

# СТОЛКНОВИТЕЛЬНАЯ СПЕКТРОСКОПИЯ В АТОМНОЙ ФИЗИКЕ

Ю.В. Попов

НИИЯФ МГУ им. М.В. Ломоносова

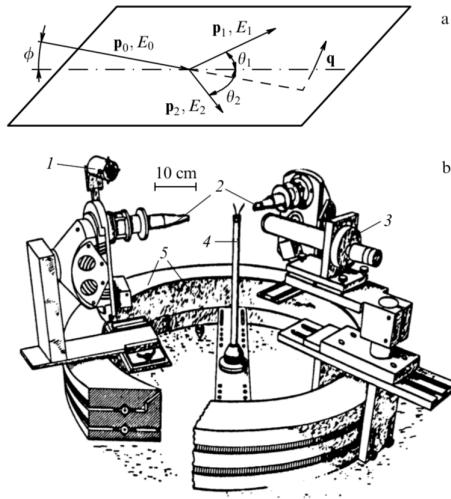
14 февраля 2021 г.

# Основные определения

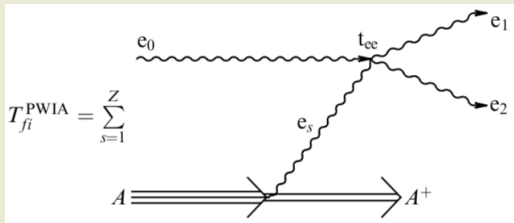
- Цель столкновительной спектроскопии – исследование импульсного и энергетического распределения активного электрона в атоме, и даже пары взаимодействующих электронов посредством измерения различных дифференциальных сечений, доступных при выбранном методе измерения.
- **Активный электрон** – это электрон, который получил дополнительный импульс и энергию от внешней (быстрой) частицы в результате столкновения. После столкновения этот электрон возбуждается вплоть до ионизации. Измеряя его угловое и энергетическое распределение в детекторе вместе с аналогичными характеристиками другого участника реакции (налетающей частицы, иона-остатка), можно заключить о его импульсном распределении внутри атома.

Одним из таких методов является т.н.  $(e,2e)$  метод в кинематике квазиупругого удара, к рассмотрению которого мы переходим.

(e,2e)



**Figure 1.** Schemes of (a) the (e, 2e) experiment, and (b) the (e, 2e) spectrometer: (1) Faraday trap, (2) electron analyzers, (3) electron gun, (4) gas beam of target atoms, (5) uncoupled rotary tables.



$$T_{fi}^{PWIA} = \sum_{s=1}^Z$$

Рассмотрим сечение ионизации неподвижного атома быстрым электроном в т.н. импульсном приближении. Активный электрон находится на оболочке с энергией  $\varepsilon_s$ . На рисунке изображен основной матричный элемент такого процесса в кинематике квазупругого выбивания. Законы сохранения

$$E_0 + \varepsilon_s = E_1 + E_2,$$

$$\vec{p}_0 = \vec{p}_1 + \vec{p}_2 + \vec{K}.$$

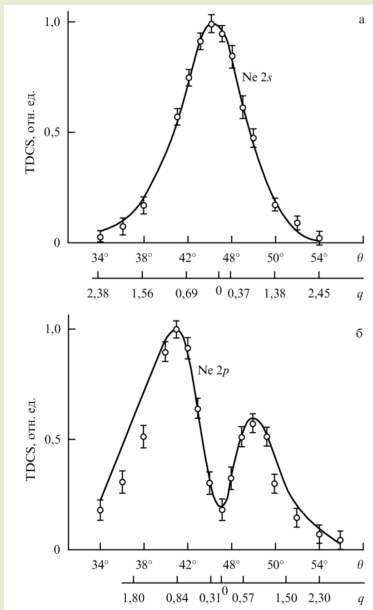
В неподвижном атоме импульс ядра  $\vec{K}$  равен с обратным знаком импульсу активного электрона  $\vec{q}$  в атоме.

Обычно такие реакции проводятся при энергиях  $E_0$  порядка нескольких сотен эв. При этом  $E_i \sim E_0/2$  и  $\theta_i \sim 45^\circ$ . В приближении плоских волн для всех электронов получаем

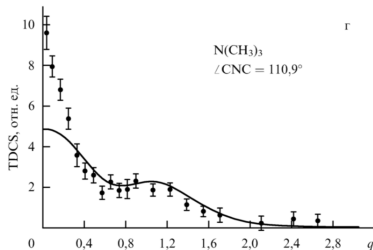
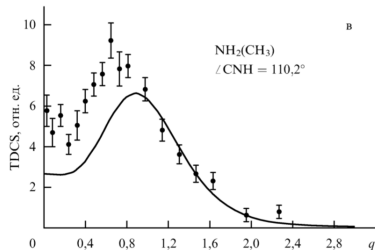
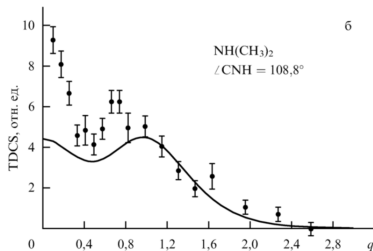
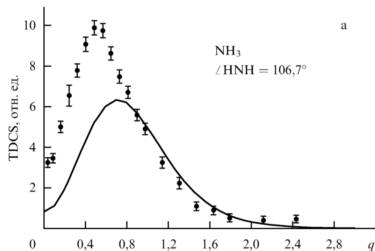
$$\frac{d^3\sigma}{dE_2 d\Omega_1 d\Omega_2} \propto |\varphi_s(\vec{q}, \varepsilon_s)|^2. \quad (1)$$

Справа стоит квадрат одночастичной волновой функции активного электрона в импульсном пространстве, который также называют импульсным распределением электрона в атоме. **Формула (1) лежит в основе одного из основных методов столкновительной спектроскопии – (e,2e) метода.**

$$E_0 = 2.6 \text{ КЭВ}$$



$$E_1 = E_2 = 600 \text{ эВ}$$



Если молекула  $\text{NH}_3$  характеризуется частичным смещением электронной плотности от атомов Н к центральному атому N, где  $p$  – компонента одноэлектронной волновой функции доминирует, то при замене атомов Н на метильные группы  $\text{CH}_3$  происходит обратное перераспределение плотности от атомов N к метильным группам  $\text{CH}_3$ , которое характеризуется растущим весом  $s$  – компоненты.

Похожее поведение дифференциальных сечений наблюдается в сериях молекул  $\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{H}_2\text{S}$ ,  $\text{H}_2\text{Se}$ ,  $\text{H}_2\text{Te}$ ;  $\text{PH}_3$ ,  $\text{PH}_2(\text{CH}_3)$ ,  $\text{PH}(\text{CH}_3)_2$ ,  $\text{P}(\text{CH}_3)_3$ ;  $\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{H}(\text{CH}_3)\text{O}$ ,  $(\text{CH}_3)_2\text{O}$  и др.



Первые работы, где описан ( $e, 2e$ ) метод, появились как обычно примерно в одно и то же время в разных странах:

- Смирнов Ю. Ф., Неудачин В. Г. *Письма в ЖЭТФ* **3**, 298 (1966)
- Неудачин В. Г., Новоскольцева Г. А., Смирнов Ю. Ф. *ЖЭТФ* **55**, 1039 (1968)
- Glassgold A. E., Ialongo G. *Phys. Rev.* **175**, 151 (1968)

но лидерство здесь принадлежит работам сотрудников НИИЯФ В.Г. Неудачина и Ю.Ф. Смирнова, приоритет которых был признан в мире. Первые эксперименты по квазиупругому выбиванию электрона из атомов были поставлены в Италии и Австралии:

- Amaldi U. Jr. et al. *Rev. Sei. Instrum.* **40**, 1001 (1969); Camilloni R. et al. *Phys. Rev. Lett.* **29**, 618 (1972)
- Weigold E, Hood S. T., Teubner P.J. O. *Phys. Rev. Lett.* **30**, 475 (1973); Hood S.T. et al *Phys. Rev. A* **8**, 2494 (1973)

После первых пионерских идей и их блестящей реализации метод стал развиваться, применяться к сложным атомам, молекулам и даже тонким пленкам (обзор представлен в работе В. Г. Неудачин, Ю. В. Попов, Ю. Ф. Смирнов, "Электронная импульсная спектроскопия атомов, молекул и тонких пленок". *УФН* **169**, 1111 (1999).

Выяснилось, что члены ряда теории возмущений, основанного на плоских волнах, имеют кулоновские сингулярности, и требуется регуляризация этого ряда для математической чистоты метода (подробности даны в обзорах В.Л. Шаблов, П.С. Виницкий, Ю.В. Попов, О. Чулуунбаатар, К.А. Кузаков. «Борновский ряд в теории ионизации атома электронным ударом», *ЭЧАЯ* **41**, 607 (2010); Ю.В. Попов, О. Чулуунбаатар, В.Л. Шаблов, К.А. Кузаков. «Процессы многократной ионизации с участием быстрых заряженных частиц», *ЭЧАЯ* **41**, 1019 (2010).) Потребовалось серьезное математическое осмысление тонкостей использования плосковолнового базиса в условиях дальнедействующих кулоновских сил.

Эффекты дальнего действия ярко проявляются в эксперименте. Рассмотрим для простоты ( $e, 2e$ ) ионизацию водорода в кинематике квазиупругого рассеяния, когда оба быстрых конечных электрона имеют примерно равные энергии (половина начальной энергии) и углы около  $45^\circ$ . Разлет электронов происходит в одной плоскости. После столкновения электрона с атомом оба электрона вылетают из зоны столкновения, ограниченной радиусом атома. Если бы электроны не взаимодействовали после вылета из этой зоны, они бы летели по прямым линиям и попали бы в детекторы под теми же углами, под какими вылетели. Однако электроны продолжают расталкиваться и вне зоны прямого удара, и при прилете в детекторы возникает угловой сдвиг  $\Delta\theta$  по сравнению с прямой траекторией. Этот сдвиг наблюдался на эксперименте, а в основу теории легли квазиклассические соображения (Yu.V.Porov, J.J.Benayoun., *J.Phys.B: At.Mol.Phys.*, **14**, 3513(1981); Ю.В.Попов, Л.Авалди, Р.Камиллони, Дж.Стефани. *ЖЭТФ* **90**, 1191 (1986); L.Avaldi, R.Camilloni, Yu.V.Porov, G.Stefani. *Phys.Rev.A*, **33**, 851 (1986). ) **Искаженными волнами полностью этот сдвиг описать не удастся (!)**

$$E_0 = 200 \text{ эВ}$$

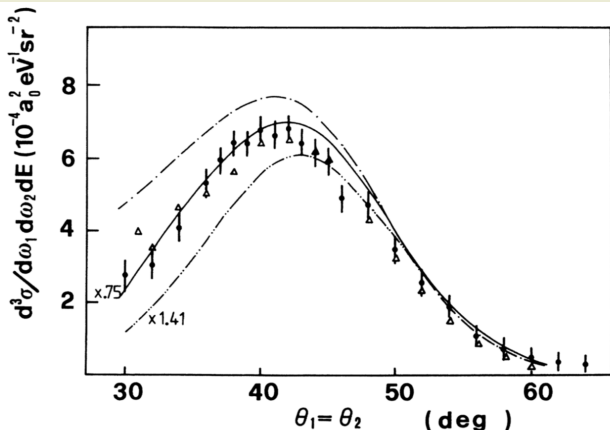
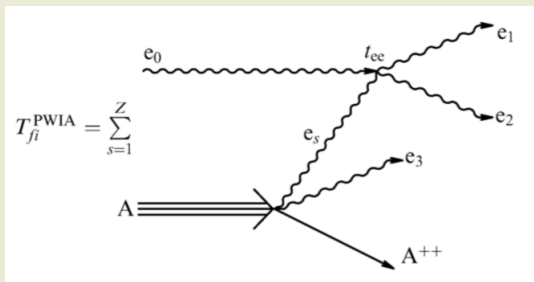


FIG. 2. The He ( $e, 2e$ ) angular correlation measured at 200 eV incident energy and coplanar symmetric kinematics. The measured cross sections of Camilloni *et al.*, Ref. 30 ( $\bullet$ ), and of Fuss *et al.*, Ref. 31 ( $\triangle$ ), are compared with theoretical predictions of the present PWIA-SC (—), and EWIA ( $\bar{V}=20$  eV) (---). (-·-·-) is the DWIA, as calculated by Fuss *et al.*, Ref. 31. Normalization of the relative experimental data has been done by scaling the value at 45° to the measured absolute cross section of van Wingerden *et al.*, Ref. 28.

## (e,3e)

Первое описание (e,3e) рассеяния и спектроскопических возможностей этой реакции опять же было представлено в работах группы В.Г. Неудачина и Ю.Ф. Смирнова (Neudatchin V.G. et al. *Phys. Lett. A* **64**, 31 (1977); Smirnov Yu.F. et al. *J. Phys. B* **11**, 3587 (1978); Neudatchin V.G., Yudin N.P., Zhivopistsev F.A. *Phys. Stat. Solidi B* **95**, 39 (1979); Levin V.G. et al. *J. Phys. B* **17**, 1525 (1984); Yudin N. P., Pavlichenkov A.V., Neudatchin V.G. *Z. Phys. A* **320**, 565 (1985)), где была сформулирована идея иерархии импульсов 3х конечных электронов.

Позже в моих работах с соавторами (Popov Yu.V. et al. *J.Phys.B* **27**, 1599 (1994); Попов Ю.В. и др. *ЖЭТФ* **107**, 337 (1995); Popov Yu.V., Dal Cappello C. *Can. J. Phys.* **74**, 843 (1996); Popov Yu.V., Dal Cappello C., Kouzakov K. *J. Phys. B* **29**, 5901 (1996); Попов Ю.В., Кузаков К.А. *Вестник МГУ Сер. Физ. Астрон.* **40**, 16 (1999)), эти идеи приобрели более конкретное звучание в виде кинематики квазиупругого удара типа (e,2e).



На рисунке изображен основной матричный элемент такого процесса в кинематике квазупругого выбивания в плосковолновом импульсном приближении для быстрых частиц. Законы сохранения

$$E_0 + \varepsilon_s = E_1 + E_2 + E_3,$$

$$\vec{p}_0 = \vec{p}_1 + \vec{p}_2 + \vec{p}_3 + \vec{K}.$$

Как и в случае (e,2e) предполагается, что энергия  $E_0$  большая. При этом  $E_{1,2} \sim E_0/2$  и  $\theta_{1,2} \sim 45^\circ$ , но энергия  $E_3$  маленькая, близкая к порогу ионизации иона  $A^+$ . Электрон  $e_3$  описывается кулоновской волной.

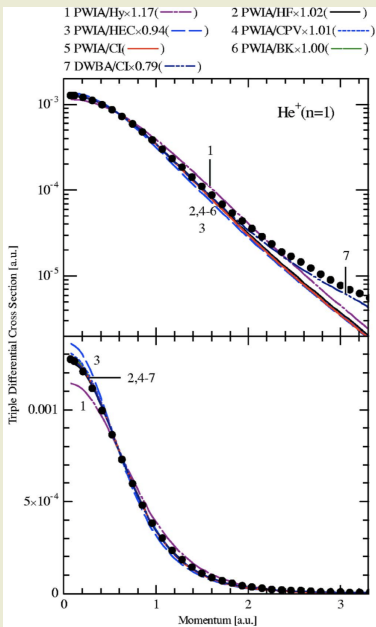
Простую теорию этого процесса можно найти в процитированных выше работах. Уникальные эксперименты были проведены в середине нулевых годов японскими экспериментаторами и нашли свое отражение в совместных работах:

- N. Watanabe, Y. Khajuria, M. Takahashi, Y. Udagawa, P. S. Vinitzky, Yu. V. Popov, O. Chuluunbaatar and K. A. Kouzakov. "(e,2e) and (e,3-1e) studies on double processes of He at large momentum transfer", *Phys. Rev. A* **72**, 32705 (2005);
- N. Watanabe, M. Takahashi, Y. Udagawa, K. A. Kouzakov and Yu.V. Popov. "Role of two-step mechanisms in ionization-excitation of He studied by binary (e,2e) experiments and second Born calculations", *Phys. Rev. A* **75**, 052701 (2007).

Попутно группа поставила (e,2e) эксперименты с возбуждением конечного иона He<sup>+</sup>.

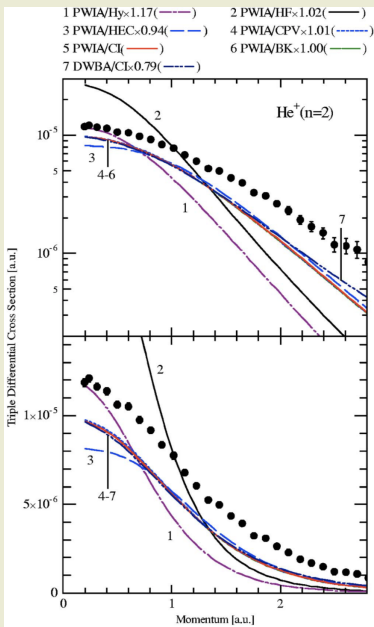
Расчеты показали селективность таких экспериментов к выбору пробной волновой функции атома гелия, даже в случае, когда не измеряется угловое распределение медленного электрона, т.н. (e, 3-1e) реакция.

$$E_0 = 2080 \text{ эВ}$$

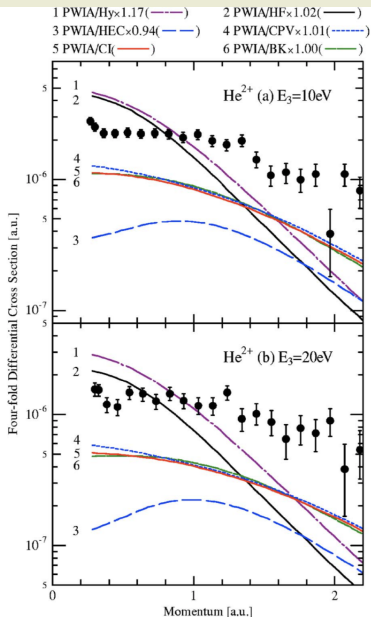




$$E_0 = 2080 \text{ эВ}$$



$$E_0 = 2080 \text{ эВ}$$



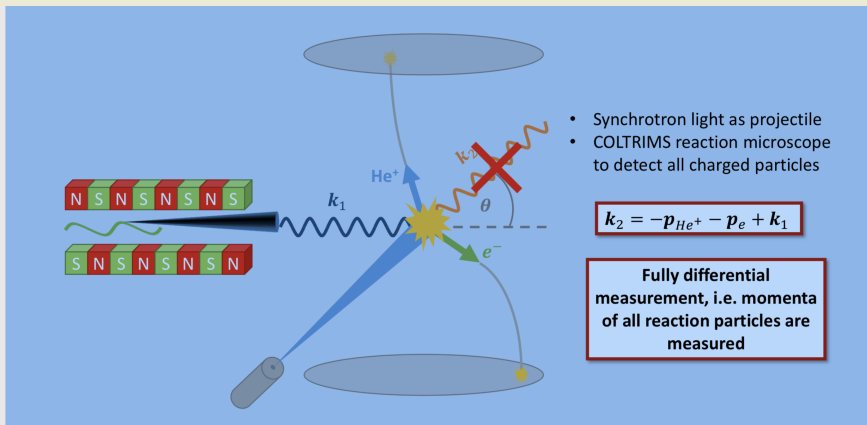
В 2002 году за цикл работ "Электронная импульсная спектроскопия атомов, молекул и тонких пленок" В.Г. Неудачин, Ю.В. Попов и Ю.Ф. Смирнов удостоены Ломоносовской премии МГУ

# Комптоновская ионизация как метод атомной спектроскопии

Теоретическое описание комптоновского рассеяния на свободных электронах было дано почти сто лет назад независимо А. Комптоном и П. Дебаем на основе представления о фотоне как о релятивистской частице, однако их описание совершенно не учитывало эффекты связанности электронов в атомах. Эти эффекты были впервые рассмотрены Дж. Дюмоном, который вскоре после создания квантовой механики и описания в ее рамках строения атомов на основании результатов своих экспериментов сделал предположение, что с помощью комптоновского рассеяния можно судить о строении атомов рассеивателя.

Со времени опытов Комптона эксперименты в этой области были основаны на методе совпадений для одновременного детектирования испущенного в результате ионизации электрона и рассеянного фотона, который был предложен немецкими физиками В. Боте и Г. Гейгером как раз для изучения эффекта Комптона в 1924 году. Однако применение электрон-фотонного метода совпадений для прецизионных измерений невозможно в силу ряда технических ограничений.

# COLTRIMS – COLD Target Recoil Ion Momentum Spectroscop



Здесь не измеряются на совпадение фотон и электрон, но электрон и ион отдачи. Импульс фотона просто определяется из законов сохранения

$$\omega_1 = \omega_2 + I_p + E_e + E_{ion}, \quad \vec{k}_1 = \vec{k}_2 + \vec{p} + \vec{K}, \quad k = \omega/c.$$

Обычно используются большие энергии фотона в несколько КэВ и даже десятков КэВ, что, однако, не мешает использовать нерелятивистскую физику. В расчетах используется т.н. приближение  $A^2$ , где  $\vec{A}(\vec{r}, t)$  – вектор-потенциал фотона. По сути и по форме – это первое борновское приближение в теории рассеяния.

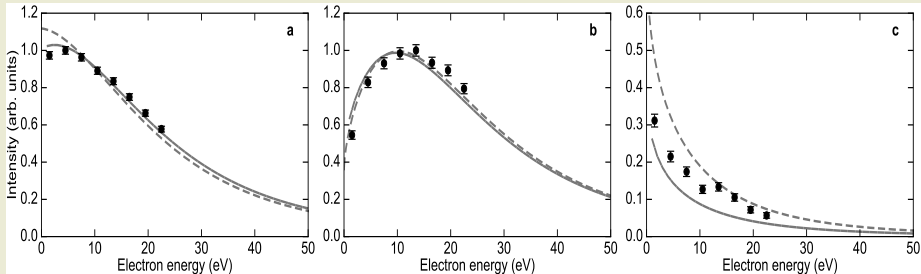
Полное дифференциальное сечение однократной ионизации атома при комптоновском рассеянии (FDCS):

$$\frac{d^3\sigma}{dE_e d\Omega_e d\Omega_2} = \frac{\alpha^4}{(2\pi)^3} p \left(1 - \frac{E_e + I_p}{\omega_1}\right) \frac{1}{2} \sum_{\mathbf{e}_1, \mathbf{e}_2} |M|^2.$$

Суммирование предполагает усреднение по начальной поляризации  $\mathbf{e}_1$  и суммирование по конечной  $\mathbf{e}_2$  поляризации фотона. Матричный элемент в случае атома гелия имеет вид ( $\vec{Q} = \vec{k}_1 - \vec{k}_2$  – переданный импульс):

$$M(\mathbf{Q}, \mathbf{p}) = (\mathbf{e}_1 \cdot \mathbf{e}_2) \langle \Phi_f^-(\mathbf{p}) | \sum_{j=1}^2 e^{i\mathbf{Q}\cdot\mathbf{r}_j} | \Phi_0 \rangle.$$

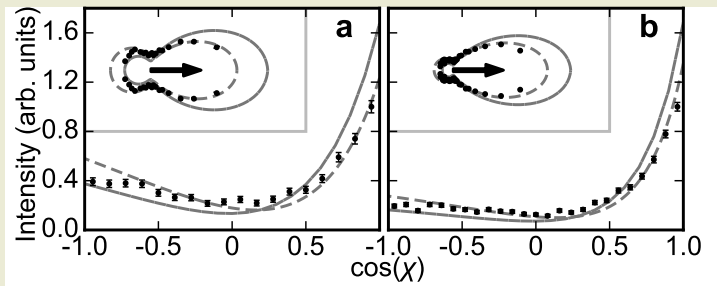
Сечение очень маленькое из-за фактора  $\alpha^4 = c^{-4} = r_0^2$  (квадрат радиуса электрона).



На всех панелях угол рассеяния фотона  $140^\circ < \theta < 180^\circ$  (задний конус). **a)** Сечение проинтегрировано по всем углам вылета электрона; **b)** Угол вылета электрона ограничен диапазоном  $0^\circ < \theta_e < 40^\circ$  (вперед); **c)** Угол вылета электрона ограничен диапазоном  $140^\circ < \theta_e < 180^\circ$  (назад). Сплошная линия – хорошо коррелированная пробная функция атома гелия + кулоновская волна электрона в постоянном поле иона  $\text{He}^+$  ( $Z = 1$ ). Штриховая линия – одночастичная в.ф. активного электрона типа Хартри-Фока + кулоновская волна в поле переменного заряда  $Z(r)$ .

Эксперименты выполнены в относительной шкале, но в одной (!) На рисунке **а)** максимум распределения нормирован на 1, а все остальные распределения на этом и следующем рисунках нормированы в этой шкале. При этом теория нормализована таким образом к эксперименту, что площади под теоретическими кривыми и точками приравниваются.





$130^\circ < \theta < 170^\circ$  (обратный конус).  $\chi$  – угол между векторами  $\vec{Q}$  и  $\vec{p}$  (в теории рассеяния удобно различать передний пик и пик отдачи). **a)** Энергия электрона  $1.0 < E_e < 3.5$  эв **b)** Энергия электрона  $3.5 < E_e < 8.5$  эв. На полярных графиках стрелка указывает направление переданного импульса. Линии те же, что и на предыдущем рисунке.

Подробно этот метод рассмотрен в недавних работах:

- M. Kircher, F. Trinter, S. Grundmann, I. Vela-Perez, S. Brennecke, N. Eicke, J. Rist, S. Eckart, S. Houamer, O. Chuluunbaatar, Yu.V.Popov, I. P.Volobuev, Kai Bagschick, M.N. Piancastelli, M. Lein, T. Jahnke, M.S.Schöffler, and R. Dörner. “Kinematically complete experimental study of Compton scattering at helium atoms near the threshold”, *Nature Physics* **16**, 756 (2020);
- S. Houamer, O. Chuluunbaatar, I.P. Volobuev, and Yu.V. Popov. “Compton ionization of hydrogen atom near threshold by photons in the energy range of a few keV: Nonrelativistic approach” *Eur.Phys.Journ.D* **74**, 81 (2020).

## Краткий вывод

В докладе рассмотрены только три метода столкновительной импульсной спектроскопии из множества других. Выбор пал на эти методы лишь потому, что в их разработке на протяжении многих лет принимали активное участие различные поколения ученых НИИЯФ МГУ. И работы эти выполнены на мировом уровне и используются на практике.

Спасибо за внимание и терпение!