

01;02

Вычисление параметров асимметрии углового распределения и спиновой поляризации оже-электронов для атомов с открытыми оболочками

© А.Ю. Елизаров,¹ И.И. Тупицын²

¹ Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН,
194021 Санкт-Петербург, Россия
e-mail: a.elizarov@mail.ioffe.ru

² Санкт-Петербургский государственный университет,
198904 Санкт-Петербург, Россия
e-mail: tup@tip.usrpu.ru

(Поступило в Редакцию 23 июля 2003 г.)

С использованием многоканального метода Хартри–Фока–Дирака вычислены параметры β и α_2 углового распределения и спиновой поляризации β_2 оже-электронов для натрия, криптона, ксенона, бария, ртути и аргона в возбужденном состоянии. Кулоновские матричные элементы вычислялись с использованием ортогональных многоэлектронных волновых функций начального и конечного состояния и промежуточного типа связи в релятивистском приближении. Обменное взаимодействие учитывается во всех вычислениях. Сравнение вычислений, выполненных в приближении „замороженного остова“, с вычислениями для ортогональных волновых функций начального и конечного состояния показало, что эффект релаксации имеет небольшое влияние на значение параметров анизотропии углового распределения. Полученные значения параметров β , α_2 и β_2 сравниваются с другими расчетами.

Введение

Изучение угловых распределений и спиновой поляризации оже-электронов содержит информацию о динамике оже-распада. Основные теоретические результаты с использованием многоканального многоконфигурационного метода Фока–Дирака были получены в работах [1–5] для атомов с заполненными оболочками. Вычисления параметров анизотропии углового распределения для атомов с открытыми оболочками представлены не столь широко. В связи с вышесказанным в работе были выполнены вычисления параметров α_2 и β_2 and для Kr, Xe (заполненные оболочки) и для атомов Na, Ba и Hg (случай заполненных оболочек и параметра β для $Ar^* (2p^5 3s^2 3p^6 4s)$). Известно, что вычисления угловых распределений и спиновой поляризации производятся с использованием двухступенчатой модели оже-распада, предложенной в [6]. С общей теорией оже-распада можно познакомиться во множестве работ (см., например, [5]). Обычное выражение для углового распределения оже-электронов представимо как

$$\frac{dW_{A^+ \rightarrow A^{2+}}}{d\Omega} = \frac{dW_{A^+ \rightarrow A^{2+}}^\Sigma}{4\pi} [1 + \alpha_2 A_{20} P_2(\cos(\theta))], \quad (1)$$

где $dW_{A^+ \rightarrow A^{2+}}^\Sigma$ есть интегральная по направлению траектория оже-электронов вероятность оже-процесса, величина A_{20} — заселенность по магнитным подуровням однозарядного иона, α_2 — параметр анизотропии углового распределения оже-электронов, P_2 — полином Лежандра второй степени, θ — угол между направлением эмиссии оже-электронов и поляризацией излучения.

В случае возбуждения атома из состояния с полным моментом $J_0 = 0$ линейно поляризованным излучением возможна следующая факторизация:

$$\beta = \alpha_2 A_{20}, \quad (2)$$

где $A_{20} = -\sqrt{2}$.

Мы использовали выражения для анизотропии углового распределения оже-электронов и спиновой поляризации, полученные в [4,5],

$$\alpha_2 = \frac{A(200)}{A(000)} \quad \beta_2 = -\frac{1}{\sqrt{3}} \frac{\Im A(211)}{A(000)}, \quad (3)$$

где

$$\begin{aligned} A(KkQ) &= \frac{1}{4\pi\rho} \sqrt{(2K+1)(2k+1)} \\ &\times \sum_{l,l'} i^{(l'-l)} e^{i(\sigma_l - \sigma_{l'})} \sum_{j,j'} (-1)^{J+J_1+j+Q+l'} \\ &\times \sqrt{(2l+1)(2l'+1)(2j+1)(2j'+1)} \\ &\times \left\{ \begin{matrix} J & J_1 & j \\ K & j' & J_1 \end{matrix} \right\} \sum_X C_{l0,l'0}^{X0} C_{K-Q,kQ}^{X0} \left\{ \begin{matrix} \frac{1}{2} & \frac{1}{2} \\ j' & j \\ l' & l \end{matrix} \right\} \\ &\times \langle (J, \varepsilon j) J_1 \| V \| J_1 \rangle \langle (J, \varepsilon j') J_1 \| V \| J_1 \rangle, \quad (4) \end{aligned}$$

где J_1 — полный угловой момент начального состояния иона A^+ , J — полный угловой момент конечного состояния иона A^{2+} , j и l — полный угловой момент и момент частичной волны оже-электрона.

Во всех вычислениях многоэлектронной волновой функции однозарядного иона начального состояния и двухзарядного иона конечного состояния использовался многоконфигурационный метод Фока–Дирака. Для вычисления волновой функции оже-электрона использовался полный релятивистский метод с ортогонализацией к остовным орбиталам. Учитывалось обменное взаимодействие. Подобный метод вычислений представлен в работе [7].

Вычисление матричных элементов

В расчетах амплитуд переходов оже-процессов из начального состояния с одной дыркой во внутренней оболочке в конечное состояние с двумя дырками во внутренних оболочках волновые функции начального и конечного состояния вычисляются отдельно и, следовательно, они не ортогональны. Вычисления в таком приближении называются аппроксимация без релаксации, и в этом случае орбитали остова (заморожены) при оже-распаде. В работе представлены вычисления параметров α_2 и β_2 , вычисленные для двух случаев: 1) аппроксимация без релаксации и 2) с учетом релаксации, когда многоэлектронные волновые функции начального и конечного состояний ортогональны.

Многоэлектронная волновая функция начального или конечного состояний Ψ для N -электронной подсистемы может быть представлена в виде линейной комбинации слеттеровских детерминантов \det_α , построенных из одноэлектронных волновых функций $\phi_i(x)(\phi_f(x))$.

$$\Psi = \sum_{\alpha} C_{\alpha} \det_{\alpha}. \quad (5)$$

Для оже-процесса, когда полная энергия E атома сохраняется в течение оже-распада, амплитуда перехода из начального состояния $|A\rangle$ в конечное $|B\rangle$ определяется выражением

$$\langle A | \hat{H} - e\hat{I} | B \rangle = \sum_{\alpha\beta} C_{\alpha}^{A*} C_{\beta}^B \langle \alpha | H^{AB} - ES^{AB} | \beta \rangle, \quad (6)$$

где H^{AB} — матрица полного гамильтониана \hat{H} в базисе слеттеровских детерминантов, S^{AB} — матрица ортогональности.

Матричные элементы матрицы S^{AB} представляют собой матричные элементы единичного оператора между двумя слеттеровскими детерминантами $(\det_{\alpha} | \det_{\beta})$. Матрица S^{AB} отлична от единичной матрицы из-за неортогональности одноэлектронных функций начального и конечного состояний. Как было показано [8] матрица S^{AB} может быть представлена как

$$(\hat{S})_{\alpha\beta} = (\det_{\alpha} | \det_{\beta}) = (D_{\alpha\alpha} D_{\beta\beta})^{-1/2} D_{\alpha\beta}, \quad (7)$$

где $D_{\alpha\beta} = \det\langle \phi_i^A | \phi_j^B \rangle$ — детерминант матрицы интегралов перекрывания $S_{i,j}^{\alpha\beta} = \langle \phi_i^A | \phi_j^B \rangle$ между двумя набо-

рами орбиталей $\{\phi_i^A\}_{\alpha}$ и $\{\phi_j^B\}_{\beta}$ для двух слеттеровских детерминантов α и β соответственно.

Представим гамильтониан матричных элементов атомной системы в виде комбинации одночастичной и двухчастичной матриц плотности перехода между состояниями, описываемыми слеттеровскими детерминантами α и β . Выражение для одночастичной матрицы плотности имеет следующий вид:

$$\rho_1^{\alpha,\beta}(x, x') = (D_{\alpha\alpha} D_{\beta\beta})^{-1/2} \times D_{\alpha\beta} \sum_{i,j}^N (S^{-1})_{i,j}^{\alpha,\beta} \cdot \phi_i^A(x) \cdot \phi_j^{B*}(x'). \quad (8)$$

Двухчастичная матрица плотности выражается через одночастичную матрицу, что дается выражением

$$\rho_2^{\alpha,\beta}(x_1, x_2 | x'_1, x'_2) = (D_{\alpha\alpha} D_{\beta\beta})^{-1/2} \times \sum_{i \neq k}^N \sum_{j \neq l}^N D_{i,j,k,l}^{\alpha\beta} \phi_i^A(x_1) \phi_j^{A*}(x'_1) \phi_k^B(x_2) \phi_l^{B*}(x'_2), \quad (9)$$

где

$$D_{i,j,k,l}^{\alpha\beta} = D_{\alpha\beta} \cdot \varepsilon_{i,k} \cdot \varepsilon_{j,l} \times \left[(S^{-1})_{i,j}^{\alpha,\beta} \cdot (S^{-1})_{k,l}^{\alpha,\beta} - (S^{-1})_{i,l}^{\alpha,\beta} \cdot (S^{-1})_{k,j}^{\alpha,\beta} \right],$$

$$\varepsilon_{i,k} = \begin{cases} 1 & i < k, \\ -1 & i > k. \end{cases}$$

Гамильтониан $\hat{H}_{A,B}$ можно представить как сумму

$$\hat{H}_{A,B} = \sum_i \hat{h}_i + \sum_{i \neq j}^N \hat{v}_{i,j}, \quad (10)$$

где используются выражения для одноэлектронной и двухэлектронной частей гамильтониана матричных элементов, построенных на неортогональных слеттеровских детерминантах [8],

$$\left\langle \alpha \left| \sum_i \hat{h}_i \right| \beta \right\rangle = (D_{\alpha\alpha} D_{\beta\beta})^{-1/2} \times D_{\alpha\beta} \sum_{i \neq j}^N (S^{-1})_{i,j} \alpha, \beta \cdot \langle i | \hat{v} | j \rangle, \quad (11)$$

$$\left\langle \alpha \left| \sum_{i \neq j} \hat{v}_{i,j} \right| \beta \right\rangle = (D_{\alpha\alpha} D_{\beta\beta})^{-1/2} \times \sum_{i \neq k}^N \sum_{j \neq l}^N D_{i,j,k,l}^{\alpha\beta} \cdot \langle i, j | \hat{v} | k, l \rangle. \quad (12)$$

Таблица 1. Коэффициент анизотропии углового распределения α_2 и β_2 для $L_3M_1M_{4,5}$ оже-переходов в Кг, Хе, Ва и Нг, где $\alpha_2^{(-)}$ и $\beta_2^{(-)}$ вычислены в приближении ⟨замороженного остова⟩, а $\alpha_2^{(+)}$, $\beta_2^{(+)}$ — с учетом эффекта релаксации в течении оже-распада

Элемент	Терм конечного состояния	α_2 [9]	$\alpha_2^{(-)}$	$\beta_2^{(-)}$	$\alpha_2^{(+)}$	$\beta_2^{(+)}$
Кг	1D_2	0.218	-0.081	0.034	-0.026	0.033
	3D_1	-0.034	-0.337	-0.147	-0.279	-0.156
	3D_2	0.278	0.191	-0.153	0.243	-0.160
	3D_3	0.331	0.612	0.147	0.570	0.141
Хе	1D_2	0.228	-0.234	0.077	-0.191	0.080
	3D_1	0.101	-0.422	-0.139	-0.391	-0.147
	3D_2	0.342	0.584	-0.193	0.638	-0.201
	3D_3	0.161	0.606	0.147	0.580	0.144
Ва	1D_2	0.235	-0.211	0.076	-0.211	0.076
	3D_1	0.147	-0.380	-0.152	-0.380	-0.152
	3D_2	0.328	0.716	-0.186	0.716	-0.186
	3D_3	0.134	0.553	0.140	0.553	0.140
Нг	1D_2	0.334				
	3D_2		0.025	0.073	0.393	0.073
	3D_1	0.801	-0.80	-0.240	0.034	-0.250
	3D_2	0.068	0.406	0.015	0.402	0.017
	3D_3	-0.162	0.133	0.057	0.112	0.053

Результаты вычислений

Параметры анизотропии углового распределения α_2 и спиновой поляризации β_2 для оже-переходов вида $L_3M_1M_{4,5}$ в Аг, Хе, Ва и Нг представлены в табл. 1. В расчетах использовался промежуточный тип связи в LSJ -представлении для удобства сравнения с экспериментом. В этом случае наши вычисления параметров анизотропии углового распределения и спиновой поляризации находятся в противоречии с результатами работы [9]. Причина этого расхождения недостаточна ясна. Одна из возможных причин расхождений расчетов может быть связана с вычислением сдвига фаз волновых функций непрерывного спектра. В табл. 2 представлены расчеты коэффициентов α_2 для KLL оже-переходов в На, которые находятся в хорошем согласии с [10], тем не менее причины расхождений в значениях параметра β_2 для оже-переходов в Аг, Хе, Ва и Нг остаются невыясненными.

Как было показано в [11], для атомов с заполненными оболочками в случае глубоких вакансий ионов начального состояния учет эффекта релаксации имеет небольшое влияние на параметры α_2 и β_2 . Результаты наших вычислений, представленные в табл. 1 и 2, позволяют сделать аналогичный вывод и для атомов с незаполненными оболочками, что оправдывает использование приближения ⟨замороженного остова⟩ для вычисления различных параметров, описывающих оже-распад.

В табл. 3 представлены результаты вычислений параметра β и энергий оже-переходов, вычисленные для

процесса

$$\text{Ag}^*(2p^53s^23p^64s, J_0 = 0) \rightarrow \text{Ag}^{*+}(2p^53s3p^54s, ^2P; ^4P) + e^{(-)}(lj). \quad (13)$$

Результаты расчетов частично согласуются с теоретическими и экспериментальными результатами [13]. Расхождение теоретических расчетов с экспериментом параметров асимметрии угловых распределений для оже-переходов отмечалось многими авторами (см., например, [4,11,12]), однако о причинах расхождений результатов вычислений говорить преждевременно. Численные значения параметров асимметрии угловых распределений оже-электронов исключительно чувствительны к методу вычислений, поэтому для выяснения расхождений в результатах вычислений требуются дальнейшие исследования.

Заключение

В работе представлены результаты вычислений параметров α_2 и β_2 для оже-переходов вида LMM для атомов Аг* и Кг, Хе, Ва, Нг и оже-переходов вида KLL для На. В расчетах учитывались обменные эффекты и взаимодействие различных каналов оже-перехода. Было показано, что эффект релаксации не имеет существенного влияния на результаты вычисления параметров α_2 и β_2 .

Таблица 2. Коэффициенты анизотропии углового распределения α_2 для KLL оже-переходов в Na

Терм	Оже-переход								
	3P_1	3P_2	1P_1	3P_1	3P_2	1P_1	3P_1	3P_2	1P_1
	α_2 [10]			$\alpha_2^{(-)}$			$\alpha_2^{(+)}$		
$2s2p^5^2S_{\frac{1}{2}}$	0.706	-0.837	-1.411	-0.108	-0.837	-1.411	0.707	-0.837	-1.411
$2s2p^5^2P_{\frac{3}{2}}$	~ 0.00	0.673	0.705	0.006	0.673	0.706	-0.003	0.672	0.705
$2s2p^5^2P_{\frac{1}{2}}$	-0.665	-0.837	0.705	-0.677	-0.837	0.707	-0.660	-0.837	0.705
$2s2p^5^2D_{\frac{5}{2}}$	-0.141	-0.170	-0.141	-0.141	-0.170	-0.141	-0.146	-0.111	-0.142
$2s2p^5^2D_{\frac{3}{2}}$	0.138	0.673	-0.141	0.144	0.673	0.141	0.139	0.672	-0.141
$2s2p^5^2S_{\frac{1}{2}}$	-1.414	-0.837	-1.413	0.707	-0.837	-1.412	0.706	-0.837	-1.411
$2s2p^5^2P_{\frac{3}{2}}$	-0.701	-0.837	0.701	-0.635	-0.837	0.702	-0.363	-0.837	0.705
$2s2p^5^2P_{\frac{1}{2}}$	0.281	0.811	0.621	0.325	0.811	0.601	0.330	0.817	0.622
$2s2p^5^2D_{\frac{3}{2}}$	-0.076	0.797	-0.061	-0.064	0.833	-0.041	-0.054	0.855	-0.019
$2s2p^5^2D_{\frac{5}{2}}$	-0.141	-0.035	-0.141	0.141	-0.088	-0.141	0.139	0.672	-0.141
$2s2p^5^4P_{\frac{1}{2}}$	-1.149	-0.837	-0.351	-1.115	-0.837	-0.319	-1.115	-0.837	-0.351
$2s2p^5^4P_{\frac{3}{2}}$	0.652	-0.513	0.273	0.656	-0.504	0.441	0.644	-0.457	0.443
$2s2p^5^4P_{\frac{5}{2}}$	-0.141	0.820	-0.141	-0.141	0.826	-0.141	-0.141	0.826	-0.142
$2s2p^5^4D_{\frac{1}{2}}$	0.684	-0.837	0.698	0.683	-0.837	0.700	0.682	-0.846	0.700
$2s2p^5^4D_{\frac{3}{2}}$	0.145	0.800	0.260	0.143	0.805	0.183	0.121	0.807	0.313
$2s2p^5^4D_{\frac{5}{2}}$	-0.141	0.202	-0.141	-0.141	0.194	-0.141	-0.139	0.145	-0.142
$2s2p^5^4D_{\frac{7}{2}}$		0.239		~ 0.00	-0.239	~ 0.00	0.707	-0.241	~ 0.00
$2s2p^5^4S_{\frac{1}{2}}$	0.706	-0.834	0.707	0.706	-0.834	0.705	0.705	-0.833	0.706
$2s^22p^4^2P_{\frac{1}{2}}$	~ 0.00	-0.841	~ 0.00	-0.690	-0.836	-0.693	-0.688	-0.836	-0.694
$2s^22p^4^2P_{\frac{3}{2}}$	~ 0.00	~ 0.00	~ 0.00	0.511	0.010	-0.693	0.501	0.010	-0.694
$2s^22p^4^2P_{\frac{5}{2}}$	-0.702	-0.837	-0.707	-0.703	-0.837	-0.708	-0.704	-0.837	-0.708
$2s^22p^4^2P_{\frac{7}{2}}$	0.517	~ 0.00	-0.707	0.528	0.001	-0.708	0.518	~ 0.00	-0.708
$2s^22p^4^2D_{\frac{1}{2}}$	-0.144	0.589	0.705	-0.139	0.597	0.706	-0.146	0.598	0.705
$2s^22p^4^2D_{\frac{3}{2}}$	-0.573	~ 0.00	0.699	-0.578	~ 0.00	0.702	-0.571	~ 0.00	0.700
$2s^22p^4^2F_{\frac{7}{2}}$	-0.202	-0.240	-0.202	-0.202	-0.239	-0.202	-0.202	-0.239	-0.202
$2s^22p^4^2F_{\frac{5}{2}}$	0.196	0.598	-0.202	0.204	0.598	-0.202	0.197	0.598	-0.202
$2s^22p^4^2P_{\frac{1}{2}}$	-0.635	-0.836	-0.689	-0.690	-0.836	-0.693	-0.689	-0.836	-0.694
$2s^22p^4^2P_{\frac{3}{2}}$	0.501	0.005	-0.691	0.511	0.010	-0.693	0.501	0.010	-0.693

Таблица 3. Коэффициенты анизотропии углового распределения β , рассчитанные в приближении промежуточного типа связи (I) с учетом релаксации $^+\beta(I)$ и без учета релаксации $^-\beta(I)$ для $L_2, 3M_1, M_{2,3}$ оже-переходов в Ag^*

$3s3p^54s$ Терм	$^+\beta(I)$	$^-\beta(I)$	β Эксперимент [13]	β Теория [13]	E_e, eV	E_e, eV Эксперимент [13]	E_e, eV Теория [13]
$^1P4s^2P_{\frac{3}{2}}$	-0.609	-0.701	0.11	-0.052	188.4	197.2	198.1
$^3P4s^2P_{\frac{3}{2}}$	-0.191	-0.195	0.09	-0.152	194.0	194.0	194.3
$^3P4s^4P_{\frac{3}{2}}$	0.063	0.071	-0.02	-0.032	196.4	197.7	198.7
$^1P4s^2P_{\frac{1}{2}}$	-0.062	-0.077	0.06	-0.003	188.4	196.1	196.5
$^3P4s^2P_{\frac{1}{2}}$	-0.321	-0.344	0.05	-0.031	195.6	199.3	200.2
$^3P4s^4P_{\frac{1}{2}}$	0.072	0.077	0.00	-0.032	196.4	199.8	200.9

Список литературы

- [1] *Eichler J., Fritsch W.* // J. Phys. B. 1976. Vol. 9. P. 1477–1451.
- [2] *Berezhko E.G., Kabachnik N.M.* // J. Phys. B. 1977. Vol. 10. P. 2467–2473.
- [3] *Klar H.* // J. Phys. B. 1980. Vol. 13. P. 4741–4749.
- [4] *Blum K., Lohmann B., Taute E.* // J. Phys. B. 1986. Vol. 19. P. 3815–3825.
- [5] *Lohmann B.* // J. Phys. B. 1990. Vol. 23. P. 3147–3165.
- [6] *Mehlhorn W.* // Phys. Lett., 1986. Vol. 26. P. 166–168.
- [7] *Елизаров А.Ю., Тупицын И.И.* // ЖТФ. 2003. Т. 73. Вып. 12. С. 1–8.
- [8] *McWeeny R., Sutcliffe B.T.* Methods of Molecular Quantum Mechanics. London; New York: Academic Press, 1969.
- [9] *Kleiman U., Lohmann B.* // J. Phys. B. 2000. Vol. 33. P. 2653–2663.
- [10] *Lohmann B., Fritzsche S., Larkins F.P.* // J. Phys. B. 1996. Vol. 29. P. 1191–1206.
- [11] *Tulkki J., Kabachnik N.M., Aksela H.* // Phys. Rev. A. 1993. Vol. 48. P. 1277–1291.
- [12] *Chen M.H.* // Phys. Rev. A. 1992. Vol. 45. P. 1684–1690.
- [13] *Ueda K., Shimizu Y., Chiba H., Kitajima M., Tanaka H., Fritzsche S., Kabachnik N.M.* // J. Phys. B. 2001. Vol. 34. P. 107–119.