

СТРУКТУРА КОРОТКОВОЛНОВОЙ ГРАНИЦЫ ТОРМОЗНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ ЭЛЕКТРОНОВ В СТАТИЧЕСКОМ ПОЛЕ МОЛЕКУЛЫ SF_6

Павлычев А. А., Сорокина И. В., Зимкина Т. М.

В последнее время заметно повысился интерес к исследованиям процессов тормозного излучения (ТИ) электронов в поле атомов изучаемого объекта [1-6]. Это вызвано тем, что спектральная зависимость ТИ (а также изохромат ТИ [7, 8]) позволяют получать информацию о распределении плотности свободных состояний системы. Кроме того, недавно экспериментально были обнаружены мощные эмиссионные полосы в непрерывном спектре рездкоемальных элементов [1], природа которых была связана [3] с особенностями ТИ налетающего электрона, и характерная резонансная зависимость интенсивности ТИ от энергии первичного электрона [2]. Выявленные при этом особенности спектра до сих пор не получили своей достаточно полной интерпретации.

В данной работе рассмотрено формирование интенсивности спектров ТИ в области коротковолновой границы (КГ) (область КГ представляет наибольший практический интерес, поскольку именно здесь проявляется структура нижних свободных состояний системы) налетающих электронов с кинетической энергией 250 эВ в статическом поле молекулы SF_6 . Выбор объекта обусловлен прежде всего тем, что в распределении плотности сил осцилляторов переходов в свободные состояния наблюдаются энергетически хорошо локализованные мощные максимумы (природа которых тщательно исследовалась как экспериментально, так и теоретически [9-15]). Это позволяет надеяться на проявление соответствующей протяженной и хорошо разрешенной резонансной структуры в спектре КГТИ.

Вероятность процесса спонтанного излучения электроном кванта с энергией ω в телесный угол $d\Omega$ в направлении $\mathbf{k}_\omega$ и поляризацией $\mathbf{j}$ есть [16] (используется атомная система единиц)

$$w(\mathbf{k}_\omega, \mathbf{j}, \omega) = \frac{\omega}{2\pi c^3} |\langle E' | \exp(i\mathbf{k}_\omega \mathbf{r}) \nabla_{\mathbf{j}} | E \rangle|^2 d\Omega \delta(E - E' - \omega). \quad (1)$$

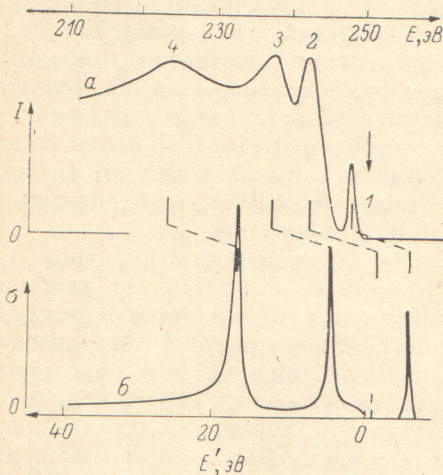
Здесь c — скорость света. Волновая функция начального состояния налетающего электрона $|E\rangle$ бралась в виде плоской волны, а волновая функция конечного состояния $|E'\rangle$ рассчитывалась методом рассеянных волн [17] в поле потенциала основного состояния молекулы.

При расчете w мы ограничивались дипольным приближением (отметим, что здесь это является достаточно грубым приближением, так как оценка величины $k_\omega r$ дает значение ~ 0.3). Если проинтегрировать выражение для интенсивности ТИ, рассчитанное на одну молекулу, по всем направлениям $\mathbf{k}_\omega$ и усреднить по возможным направлениям $\mathbf{j}$, то полная интенсивность ТИ будет определяться как

$$I(\omega) = \frac{4}{3} \frac{\omega^4}{c^3} |\langle E' | \mathbf{r} | E \rangle|^2 \delta(E - E' - \omega). \quad (2)$$

На рисунке приведен рассчитанный спектр ТИ электрона на молекуле SF_6 в области КГ. Отчетливо видны эмиссионные полосы 1-4, которые согласно проведенным расчетам, интерпретируются как переходы электрона из состояния с кинетической энергией 250 эВ на систему свободных молекулярных состояний $a_{1g}, t_{1u}, t_{2g}, e_g$ соответственно. Рассчитанные энергетические положения резонансов в спектре ($E' = 2.2, 7.5, 12.6, 27.3$ эВ) близки к энергиям максимумов, наблюдаемых в упругом рассеянии электронов на молекуле SF_6 [13-18]. Интенсивность излучения, возникающего в результате переходов $E' \leftarrow E$ в другие свободные состояния молекулы ($a_{1u}, a_{2u}, a_{2g}, e_u, t_{1g}, t_{2u}$) в рассчитываемом интервале энергий $0 < E' < 40$ эВ имеет достаточно гладкий характер и приводит к уменьшению контрастности спектра ТИ.

В отличие от абсорбционной спектроскопии структура свободных состояний, проявляющаяся в спектре ТИ, не искажена влиянием вакансии на электронную оболочку (влиянием налетающего электрона на электронную подсистему молекулы пренебрегалось). Поэтому сопоставление результатов, полученных из спектров поглощения и ТИ, позволяет определить отклик электронной подсистемы на образовавшуюся вакансию. Если сравнить полученные здесь результаты с данными расчетов фотопоглощения основных электронных оболочек атома серы в SF_6 [12, 19] (см. рисунок), то сдвиг свободных a_{1g} , t_{1u} , t_{2g} , e_g -состояний составит 8.7, 9.0, 8.6 и 10.3 эВ (кроме того, происходит заметное



спектральное уширение этих состояний). Интересно отметить, что энергетическое положение верхнего свободного состояния (e_g) молекулы SF_6 оказывается наиболее чувствительным к изменению потенциала молекулы при появлении вакансии на внутреннем уровне.

Коротковолновая граница тормозного излучения электронов в статическом поле молекулы SF_6 .

а — рассчитанный спектр ТИ налетающих электронов в области КГ, б — рассчитанный спектр фотопоглощения $2p$ -подоболочки атома серы в молекуле SF_6 [12, 19]. Вертикальными линиями показаны энергии резонансов в спектрах ТИ и фотопоглощения, стрелкой — энергия налетающего пучка электронов. Значения I и σ даны в относительных единицах.

Известно, что возбужденные a_{1g} - и t_{1u} -состояния молекулы SF_6 генетически связаны с резонансным поведением s и p , а t_{2g} - и e_g -состояния с поведением d парциальных волн в разложении расходящейся из центрального атома фотоэлектронной волны [9, 19, 20]. Как показали проведенные расчеты, интенсивность деталей в спектре КГТИ (и особенно их относительная интенсивность) существенным образом определяется перемешиванием анизотропным молекулярным полем указанных выше гармоник с более высокими ($l \geq 3$). Так, в формировании интенсивностей переходов налетающего электрона в a_{1g} - t_{1u} -, t_{2g} - и e_g -состояния большую роль играют $\langle 4|r|3(5) \rangle$, $\langle 3|r|2(4) \rangle$, $\langle 4|r|3(5) \rangle$ и $\langle 4|r|3(5) \rangle$ радиальные матричные элементы. Отметим, что интенсивность деталей тонкой структуры рентгеновских SK и $SL_{2,3}$ спектров поглощения, напротив, оказывается слабо чувствительной к влиянию высоких гармоник.

Экспериментальная проверка полученных результатов представляется крайне интересной. Возможные отличия могут быть связаны прежде всего с возможностью квадрупольных переходов и поляризацией молекулы, которая, согласно [3], может ожидаться достаточно большой.

Литература

- [1] Зимкина Т. М., Шулаков А. С., Брайко А. П., Ляховская И. И., Алавердов В. И. — Изв. АН СССР, сер. физ., 1982, т. 46, с. 720.
- [2] Шулаков А. С., Брайко А. П., Зимкина Т. М., Радченко В. И., Фомичев В. А. — ФТТ, 1983, т. 25, с. 789.
- [3] Амусья М. Я., Зимкина Т. М., Ручнев М. Ю. — ЖТФ, 1982, т. 51, с. 1424.
- [4] Himpel F. J., Fauser Th. — Phys. Rev. Lett., 1982, v. 49, p. 1583.
- [5] Pendry J. B. — Phys. Rev. Lett., 1980, v. 45, p. 1356.
- [6] Pendry J. B. — J. Phys. C., 1981, v. 14, p. 1381.
- [7] Bergwall K., Elango M. — Phys. Lett., 1967, v. 24A, p. 230.
- [8] Lang J. K., Baer Y. — Rev. Sci. Instrum., 1979, v. 50, p. 221.
- [9] Ведринский Р. В., Крайзман В. Л. — ЖЭТФ, 1978, т. 74, с. 1413.
- [10] Benedict M. G., Gueymont I. — Int. J. Quant. Chem., 1978, v. 13, p. 597.
- [11] Gustafsson T. — Phys. Rev., 1978, v. 18, p. 1481.
- [12] Павлычев А. А., Виноградов А. С. — ФТТ, 1981, т. 23, с. 3564.
- [13] Dehmer J. L., Siegel J., Dill D. — J. Chem. Phys., 1978, v. 69, p. 5205.

- [14] Vinogradov A. S., Zimkina T. M. — J. de Phys. C, 1971, v. 4, p. 4.
 [15] Hitchcock A. P., Brion C. E. — Chem. Phys., 1978, v. 33, p. 55.
 [16] Бете Г., Солпитер Э. Квантовая механика атомов с одним и двумя электронами. М., 1960.
 [17] Павлычев А. А., Виноградов А. С., Оношко Д. Е., Титов С. А. — ФТТ, 1978, т. 18, с. 3671.
 [18] Kennerly R. E., Bonham R. A., McMillan M. — J. Chem. Phys., 1979, v. 70, p. 2039.
 [19] Павлычев А. А. Канд. дис. Л.: ЛГУ, 1981.
 [20] Павлычев А. А., Виноградов А. С., Зимкина Т. М. — Опт. и спектр., 1982, т. 52, в. 2, с. 231.

Поступило в Редакцию 8 сентября 1983 г.

УДК 538.61

Опт. и спектр., т. 57, в. 4, 1984

ПРИРОДА ТЕМПЕРАТУРНО-НЕЗАВИСИМОГО ВКЛАДА В ЭФФЕКТ ФАРАДЕЯ В РЕДКОЗЕМЕЛЬНОМ ПАРАМАГНИТНОМ ГРАНАТЕ $Tb_3Ga_5O_{12}$

Валиев У. В., Вировец Т. В., Левитин Р. З., Мукимов К. М., Соколов Б. Ю.,
Турганов М. М.

Как было показано в работах [1, 2], эффект Фарадея (ЭФ) в парамагнетиках может быть представлен в виде суммы трех вкладов: «парамагнитного», обусловленного разностью заселенностей магнитных подуровней основного мультиплета магнитоактивного иона, «диамагнитного», связанного с зеемановским расщеплением в магнитном поле уровней основного и возбужденных мультиплетов, и «смешивания», обусловленного возмущениями волновых функций основного и возбужденных мультиплетов в магнитном поле посредством «примешивания» к ним волновых функций близких мультиплетов. Первый механизм дает вклад в ЭФ, пропорциональный магнитному моменту магнитоактивного иона, и, следовательно, его температурная зависимость обусловлена температурной зависимостью восприимчивости магнитоактивного иона. Два других вклада от температуры не зависят [1, 2].

В нашей работе [3] была исследована температурная зависимость ЭФ редкоземельного (РЗ) парамагнитного граната $Tb_3Ga_5O_{12}$ на длинах волн 0.63 и 1.15 мкм, и было показано, что в этом случае наряду с температурно-зависимым «парамагнитным» вкладом в ЭФ имеется значительный по величине температурно-независимый вклад. Однако оставался открытым вопрос об относительной роли различных механизмов «диамагнитного» и «смешивания» в формировании температурно-независимого вклада в ЭФ галлата-граната. Ответить на этот вопрос можно, исследуя температурную зависимость ЭФ на различных длинах волн и используя то обстоятельство, что «парамагнитный» вклад и вклад от «смешивания» имеют одинаковую частотную зависимость, отличную от частотной зависимости «диамагнитного» вклада [1, 2]. Действительно, согласно [1, 2], вдали от собственных частот первых разрешенных по четности и по спину электродипольных переходов на возбужденные мультиплеты РЗ иона, возникающие из конфигурации $4f^{n-1}5d$ (для иона Tb^{3+} они находятся в УФ области спектра), выражение для константы Верде в парамагнетиках может быть представлено в виде (в лорентцовом приближении)

$$V = - \frac{4\pi N_0}{hc} \left[\frac{2\omega_0 \omega^2 A}{\hbar (\omega_0^2 - \omega^2)^2} + \frac{\omega^2}{(\omega_0^2 - \omega^2)} \left(B + \frac{C}{kT} \right) \right]. \quad (1)$$

Коэффициенты A , B , C описывают соответственно вклады: «диамагнитный», «смешивания» и «парамагнитный», ω_0 — «эффективная» частота электродипольных переходов, ω — частота света, k — константа Больцмана, T — температура, c — скорость света, N_0 — заселенность основного состояния в отсутствии магнитного поля, $\hbar$ — постоянная Планка. Строго говоря, в формуле (1)