Многоэлектронные эффекты при аномальном упругом рассеянии фотона атомом бериллия в области К-порога ионизации

Каспржицкий А.С. (anton1982@mail.ru), Хоперский А.Н., Явна В.А.

Ростовский Государственный Университет Путей Сообщения, Россия

Дифференциальное сечение упругого рассеяния линейно поляризованного рентгеновского фотона атомом бериллия в области К-порога ионизации рассчитано в нерелятивистском многоконфигурационном представлении волновых функций состояний фотоперехода с учетом эффекта релаксации электронных оболочек в поле вакансии. Результаты расчета носят предсказательный характер.

1. Введение

Исследованию фундаментального процесса упругого рассеяния фотона свободным атомом в области энергий порогов ионизации его глубоких оболочек посвящено большое количество экспериментальных и теоретических работ (см., например, обзор [1]).

Однако в аномально-дисперсионной области рассеяния существующие теоретические модели процесса с использованием приближения независимых частиц при описании волновых функций состояний атома приводят к значительным расхождениям с экспериментом. Результаты недавних исследований [2] показали, что для снятия расхождений теории с экспериментом в аномально-дисперсионной области необходимо выйти за рамки приближения независимых частиц и учесть широкую иерархию многоэлектронных эффектов, сопровождающих процесс поглощения фотона атомом в области энергий порогов ионизации его глубоких оболочек.

В данной работе методы монографии [2], развитые для жесткого рентгеновского диапазона энергий падающего фотона ($\hbar\omega$ от 600 эВ до 1,5 МэВ), обобщаются на случай мягкого ($\hbar\omega$ от 50 эВ до 1 кэВ) рентгеновского диапазона. Именно, в нерелятивистском многоконфигурационном приближении исследовано влияние монопольной перестройки электронных оболочек в поле вакансии и процессов однократного возбуждения/ионизации на дифференциальное сечение упругого рассеяния линейно поляризованного фотона в области энергий К-порога ионизации атома ^{4}Be. При этом не рассмотрены Томсоновское рассеяние на ядре, Рэлеевское рассеяние на нуклонах ядра и рассеяние Дельбрюка на виртуальных электрон-позитронных парах, рождаемых кулоновским полем ядра. Их влияние на сечение упругого рассеяния в данном случае несущественно и доминирующим типом процесса является Рэлеевское рассеяние фотона электронами атома [1].

Результаты данной работы могут быть востребованы в контексте, прежде всего, проблем осуществления лазерного термоядерного синтеза и создания рентгеновского лазера, а также решения широкого класса задач физики плазмы, поверхности и других, вплоть до задач астрофизики и космологии.

2. Теория метода

Рассмотрим квантовую систему «атом +фотоны» с полным гамильтонианом вида:

$$\widehat{H} = \widehat{H}_a + \widehat{H}_{ph} + \widehat{W}, \tag{1}$$

где $\widehat{H}_a$ – гамильтониан атома в нерелятивистском приближении, $\widehat{H}_{ph}$ – гамильтониан свободных фотонов и $\widehat{W}$ – оператор взаимодействия атома с электромагнитным полем в нерелятивистском приближении:

$$\hat{W} = \sum_{i=1}^{N}\left(\frac{\mathbf{A}_i^2}{2c^2} - \frac{(\mathbf{p}_i \cdot \mathbf{A}_i)}{c}\right), \quad \mathbf{A}_i \equiv \mathbf{A}(\mathbf{r}_i, 0). \tag{2}$$

При теоретическом описании процесса аномального упругого рассеяния фотона атомом дифференциальное сечение имеет вид [2,3]:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = r_0^2 |Q|^2. \tag{3}$$

Во втором порядке квантовомеханической теории возмущений по оператору взаимодействия (2) в нерелятивистском приближении для волновых функций состояний атома амплитуда вероятности процесса упругого рассеяния фотона атомом в (3) принимает вид:

$$Q = (\mathbf{e}_1 \cdot \mathbf{e}_2) F(\theta; \omega) + A(\omega). \tag{4}$$

В (2) оператор векторного потенциала свободного электромагнитного поля в представлении вторичного квантования:

$$\mathbf{A} = \sum_{\mathbf{k}} \sum_{m=1,2} \sqrt{\frac{2\pi}{|\mathbf{k}|}}\ \mathbf{e}_m \left(\widehat{a}_{\mathbf{k}m} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} + \widehat{a}_{\mathbf{k}m}^{+} e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}\right) \tag{5}$$

дан как решение [4] в момент времени $t = 0$ волнового уравнения:

$$\Box \mathbf{A}(\mathbf{r}, t) = 0. \tag{6}$$

Структуры уравнения (6) и линейных по электромагнитному полю слагаемых в операторе взаимодействия (2) обусловлены выбором кулоновской калибровки поля:

$$div\mathbf{A}(\mathbf{r}, t) = 0, \qquad \varphi(\mathbf{r}) = 0,$$

где $\varphi(\mathbf{r})$ – скалярная часть 4-потенциала поля $A_\mu = (\varphi, \mathbf{A})$, $\mu = 0,1,2,3$.

В (1)-(5) использована атомная система единиц $\hbar = m_e = e = 1$, c – скорость света, N – число электронов в атоме, $\mathbf{p}_i$ – оператор импульса и $\mathbf{r}_i$ – радиус-вектор i – го электрона, $\widehat{a}_{\mathbf{k}m}^{+}(\widehat{a}_{\mathbf{k}m})$ – оператор рождения (уничтожения) фотона с волновым вектором $\mathbf{k}$ и вектором поляризации $\mathbf{e}_m$, $r_0 = 2{,}818 \cdot 10^{-13}$ см – классический «радиус» электрона, $\mathbf{e}_1$ и $\mathbf{e}_2$ – единичные векторы поляризации падающего и рассеянного фотона, Ω – телесный угол (угол вылета рассеянного фотона); θ – угол рассеяния (угол между векторами $\mathbf{k}_1$ и $\mathbf{k}_2$), $\omega = \tilde{n}|\mathbf{k}_1|$ – энергия рассеиваемого фотона.

Квадратичные по электромагнитному полю слагаемые оператора (2) описывают так называемое контактное взаимодействие (в представлении диаграмм Голдстоуна-Хаббарда-Фейнмана в вершине взаимодействия сходятся две фотонные линии и линии частица/дырка) фотона с электронами атома и определяют атомный формфактор (структурная функция атома):

$$F(\theta; \omega) = \langle 0 | \sum_{j=1}^{N} \exp(i(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_j)) | 0 \rangle, \tag{7}$$

который в случае атома с заполненными оболочками в основном состоянии (терм $^1S_0$) равен:

$$F(\theta;\omega) = \sum_{nl \le f} (4l+2) \int_0^\infty P_{nl}^2(r) \frac{\sin(kr)}{kr} dr,$$
$$k = |\mathbf{k}| = |\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2| = \frac{2\omega}{c} \sin\left(\frac{\theta}{2}\right). \tag{8}$$

Исследования роли электронных корреляций в основном состоянии атома при теоретическом описании его формфактора, проведенные для легких атомов $^{2}He, ^{3}Li, ^{4}Be, ^{5}B$ и ^{6}C, привели к выводу о том, что, по крайней мере, для исследованных атомов корреляционные эффекты не более чем на $1 \div 2\%$ изменяют абсолютные значения формфакторов хартри-фоковского приближения [5]. По этой причине в данной работе построение и расчет формфактора атома ^{4}Be проведены в хартри-фоковском приближении.

Линейные по электромагнитному полю слагаемые оператора (2) описывают процессы поглощения и излучения фотона атомом через его виртуальные возбуждения/ионизацию различной кратности и определяют аномально-дисперсионные слагаемые Крамерса – Гейзенберга – Уоллера полной амплитуды вероятности упругого рассеяния:

$$A(\omega) = \underset{m>f}{S} a_1^m a_2^m \left(\frac{1}{E_{0m} + \omega} + \frac{1}{E_{0m} - \omega} \right); \tag{9}$$

$$a_{1,2}^m = \langle 0 | \sum_{j=1}^{N} (\mathbf{e}_{1,2} \cdot \mathbf{p}_j) | m \rangle;$$

$$E_{0m} = -\omega_{ð} + i\frac{\Gamma_{nl}}{2}; \;\; \omega_m = E_m - E_0$$

В формулах (7)-(9) определены $P_{nl}(r)$ – радиальная часть волновой функции nl – электрона, $\mathbf{k}$ – вектор рассеяния, E_0 – энергия $|0\rangle$ – основного состояния атома, E_m – энергия системы «атомный остаток + виртуальный фотоэлектрон» в $|m\rangle$ – промежуточном состоянии рассеяния, Γ_{nl} – полная ширина распада nl – вакансии по каналам радиационного и оже – автоионизационного типов, f – уровень Ферми (совокупность квантовых чисел валентной оболочки атома) и символ S означает суммирование (интегрирование) по промежуточным состояниям дискретного (сплошного) спектра различной кратности возбуждения/ионизации всех оболочек атома.

В дипольном приближении $(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_i << 1)$ для фурье-компонент оператора электромагнитного поля (5) матричный элемент оператора радиационного перехода в (9) может быть определен в форме длины:

$$D_{nl}^{m(l\pm1)} = \left\langle 0;{}^1S_0 \left| \sum_{i=1}^{N} \mathbf{r}_i \right| m;{}^1P_1 \right\rangle, \tag{10}$$

или в форме скорости:

$$D_{nl}^{m(l\pm1)} = \frac{i}{\omega_m} \left\langle 0;{}^1S_0 \left| \sum_{i=1}^{N} \mathbf{p}_i \right| m;{}^1P_1 \right\rangle. \tag{11}$$

Как показал наш расчет, различие величин сечения поглощения фотона $1s$ – оболочкой атома ^{4}Be, рассчитанных с амплитудами (10) и (11) в области дискретного спектра составляет не более 4%, тогда как в области непрерывного спектра соответствует 20%. Поэтому учет корреляций приближения случайных фаз с обменом [6] необходим прежде всего в области непрерывного спектра. В данной работе результаты для области непрерывного спектра приведены в виде среднего алгебраического значения форм длины и скорости.

Появление вакансии в глубокой $nl-$оболочке атома приводит к эффекту радиальной монопольной (без изменения симметрии состояния) перестройке электронных оболочек атомного остатка в хартри-фоковском поле вакансии [7].

В рамках одноконфигурационного приближения Хартри-Фока при описании волновых функций начального и конечного состояний фотопоглощения атома эффект радиальной перестройки может быть учтен модификацией амплитуд (10) и (11) методами теории неортогональных орбиталей [8,9]. Так в случае поглощения фотона $1s-$оболочкой атома ^4Be выражение для радиальной (R) части амплитуд (10) и (11) с точностью до членов первого порядка малости принимает вид:

$$D^{mp}_{1s,R} = N_{1s}\langle 1s_0 |\hat{r}| mp\rangle , \tag{12}$$

$$D^{mp}_{1s,R} = \frac{i}{\omega_m} N_{1s}\langle 1s_0 |\hat{p}| mp\rangle . \tag{13}$$

В (12) и (13) волновые функции $1s_0-$, $mp-$электронов получены решением уравнений Хартри-Фока для конфигураций $1s_0^2 2s_0^2\left(^1S_0\right)$ и $1s^1 2s^2 mp\left(^1P_1\right)$ соответственно, $N_{1s}-$произведение интегралов перекрывания волновых функций электронов, не участвующих в переходе и обозначено:

$$\langle 1s_0 |\hat{r}| mp\rangle = \int_0^\infty P_{1s_0}(r)P_{mp}(r)r dr ,$$

$$\langle 1s_0 |\hat{p}| mp\rangle = \int_0^\infty P_{1s_0}(r)\left[\frac{dP_{mp}(r)}{dr} + \frac{P_{mp}(r)}{r}\right]dr .$$

Теоретическое описание сечения однократного возбуждения/ионизации основного состояния атома, входящего в структуру аномально-дисперсионного слагаемого $A(\omega)$ амплитуды упругого рассеяния (9), в качестве алгоритма предполагает решение двух основных задач – построение волновых функций начального и конечных состояний однократного возбуждения/ионизации и расчет собственно абсолютных величин и формы сечения фотопоглощения.

Дадим описание этого алгоритма, конкретизировав его для радиационных переходов из состояний $1s^2 n_1 l_1{}^2 (n_1 l_1 \geq f)$ в состояния с $1s-$вакансией $1s^{-1} n_1 l_1^3 (n_1 l_1 > f)$ и $1s^{-1} n_1 l_1^2 n_2 l_2$. Именно такие переходы играют основную роль при теоретическом описании процессов однократного возбуждения/ионизации атома ^4Be.

Построение волновых функций начальных и конечных состояний. Оно проводится в два этапа.

На первом этапе для каждой конфигурации из набора $\{1s^2 n_1 l_1{}^2\}$ и наборов $\{1s^{-1} n_1 l_1^3\}$, $\{1s^{-1} n_1 l_1^2 n_2 l_2\}$, на которых строится многоконфигурационная волновая функция начального и конечного состояний фотопоглощения соответственно, решением нелинейных интегро-дифференциальных уравнений самосогласованного поля Хартри-Фока находятся радиальные орбитали остовных и возбужденных электронов.

На втором этапе с использованием полученных на первом этапе радиальных орбиталей строятся базисные волновые функции $|\alpha LS\rangle$ начального и конечных состояний фотопоглощения, где α обозначает совокупность квантовых чисел конфигурации определенного типа.

Наконец, волновые функции, определяющие состояния радиационного перехода, представляются в виде:

$$|ELS\rangle = \sum_\alpha a_{\alpha E} |\alpha LS\rangle , \tag{14}$$

где коэффициенты конфигурационного смешивания $a_{\alpha E}$ определяются решением векового уравнения.

Сечение фотопоглощения. Квадрат амплитуды вероятности фотоперехода в состояния (14)

$$A_{ELS} = \sum_{\alpha} a_{\alpha E} \langle \alpha LS | \mathbf{D} | 0 \rangle, \ \mathbf{D} = e\sum_{i=1}^{N} \mathbf{r}_i ,$$

определяет интенсивность спектра однократного возбуждения/ионизации.

Конкретизируем описанный выше алгоритм для нашего случая.

Волновая функция основного состояния атома бериллия определена в виде:

$$\Psi\left({}^1S\right) = \alpha\left|1s^2 2s^2\right\rangle + \beta\left|1s^2 2p^2\left({}^1S\right)\right\rangle. \tag{15}$$

Представление (15) связано с тем, что участвующие в нём конфигурации сильно электростатически смешиваются. Об этом говорит тот факт, что конфигурация $\left|1s^2 2p^2\left({}^1S\right)\right\rangle$ вносит лидирующий $(\sim 40\%)$ вклад в полную корреляционную энергию основного состояния атома ${}^4Be$.

Волновые функции конечных состояний дискретного спектра определены в виде:

$$\Psi\left({}^1P\right) = \begin{cases} \eta_2\left|1s^1 2s^2 2p\right\rangle + \xi_2\left|1s^1 2p^3\right\rangle \ ; \\ \eta_m\left|1s^1 2s^2 mp\right\rangle + \xi_m\left|1s^1 2p^2\left({}^1S\right)mp\right\rangle, \ m > 2. \end{cases} \tag{16}$$

Волновые функции конечных состояний непрерывного спектра получены в следующем приближении. Учтем тот факт, что фотоэлектрон в непрерывном спектре слабо взаимодействует с остовом. Тогда волновая функция конечного состояния непрерывного спектра определена в виде:

$$\Psi\left({}^1P\right) = \mu\left|1s^1 2s^2 \varepsilon p\right\rangle + \varsigma\left|1s^1 2p^2\left({}^1S\right)\varepsilon p\right\rangle, \tag{17}$$

где коэффициенты μ и ς получены из требования минимальности полной энергии электронной подсистемы с «отщепленным» фотоэлектроном, описываемой волновой функцией $\mu\left|1s^1 2s^2\right\rangle + \varsigma\left|1s^1 2p^2\left({}^1S\right)\right\rangle$. При этом волновая функция $\varepsilon p -$ получена в соответствующем поле базисной конфигурации в представлении (17).

3. Результаты расчета

Аномально-дисперсионное слагаемое $A(\omega)$ амплитуды упругого рассеяния (9) фотона атомом ${}^4Be$ в области энергий К-порога ионизации получено в трех приближениях.

Приближение 1 – одноконфигурационное приближение Хартри-Фока без учета эффекта монопольной перестройки электронных оболочек в поле $1s-$вакансии. Волновая функция $mp-$фотоэлектрона получена решением уравнения Хартри-Фока для конфигурации $1s_0^1 2s_0^2 mp\left({}^1P_1\right)$, т.е. в поле $1s-$вакансии с неперестроенным атомным остатком. Волновые функции электронов атомного остатка получены решением уравнений Хартри-Фока для конфигурации основного состояния $1s_0^2 2s_0^2\left({}^1S_0\right)$.

Приближение 2 – одноконфигурационное приближение Хартри-Фока с учетом эффекта монопольной перестройки электронных оболочек в поле $1s-$вакансии. Волновая функция $mp-$фотоэлектрона получена решением уравнения Хартри-Фока для конфигурации $1s^1 2s^2 mp\left({}^1P_1\right)$. Волновые функции электронов атомного остатка получены решением уравнений Хартри-Фока для конфигурации $1s^1 2s^2\left({}^2S_{1/2}\right)$, т.е. учтена радиальная релаксация атомного остатка в поле образующейся $1s-$вакансии.

Приближение 3 – многоконфигурационное приближение Хартри-Фока с учетом эффекта монопольной перестройки электронных оболочек в поле $1s-$вакансии (алгоритм – см. формулы (14),(15), (16) и (17) с $m \in [2;70]$).

Эффект монопольной перестройки электронных оболочек и корреляции приближения случайных фаз с обменом играют существенную роль лишь при энергиях поглощаемого фотона в области порогов ионизации $nl-$оболочек атома. Поскольку порог ионизации $1s-$оболочки атома ^4Be сильно отделен от порога ионизации $2s-$оболочки ($\omega_{1s}-\omega_{2s}=0{,}114$ кэВ), амплитуды радиационного перехода $D_{2s}^{m(l\pm1)}$ и соответствующие аномально-дисперсионные слагаемые амплитуды упругого рассеяния для $2s-$ оболочки получены в приближении 1.

Результаты расчета спектральных характеристик лидирующих резонансов сечения рассеяния (3) в приближениях 1 и 2 представлены в таблице.

Приближение 1		
Переход	ω, ýÂ	$d\sigma_\perp/d\Omega$, $r_0^2/ср.$
$1s\to2p$	112,6	$5{,}2\cdot10^6$
$1s\to3p$	120,7	$4{,}9\cdot10^4$
Приближение 2		
$1s\to2p$	115,0	$4{,}0\cdot10^6$
$1s\to3p$	121,0	$2{,}5\cdot10^4$

Результаты расчета сечения рассеяния (3) в приближении 3 приведены на рисунке.

Отметим, что расчет в приближении 3, наряду с уточнением спектральных характеристик резонансов рассеяния, полученных в приближении 2, приводит к появлению в области непрерывного спектра резонансов дискретного спектра, которые обусловлены переходами в состояния с волновыми функциями из (16) (см. рисунок):

$$|1\rangle = -0{,}28\left|1s^1 2s^2 2p^1\right\rangle + 0{,}95\left|1s^1 2p^3\right\rangle;$$
$$|2\rangle = -0{,}36\left|1s^1 2s^2 3p^1\right\rangle + 0{,}93\left|1s^1 2p^2\left(^1S\right)3p\right\rangle.$$

Сформулируем основные результаты данной работы.

1. Учет в теоретическом спектре рассеяния эффекта монопольной перестройки электронных оболочек в поле $1s-$вакансии приводит:
   а) к сильному подавлению амплитуд и сдвигу в коротковолновую область энергий резонансов упругого рассеяния, рассчитанных в приближении 1 (см. таблицу);
   б) к перераспределению интенсивности рассеяния, рассчитанной в приближении 1, из коротковолновой в длинноволновую область спектра рассеяния.
2. Учет эффектов конфигурационного смешивания в начальном и промежуточных состояниях упругого рассеяния, наряду с уточнением приближения 2, приводит к возникновению в теоретическом спектре дополнительных резонансов рассеяния за K-порогом ионизации атома ^4Be ёще вне процедуры учета процессов двойного возбуждения/ионизации его основного состояния.

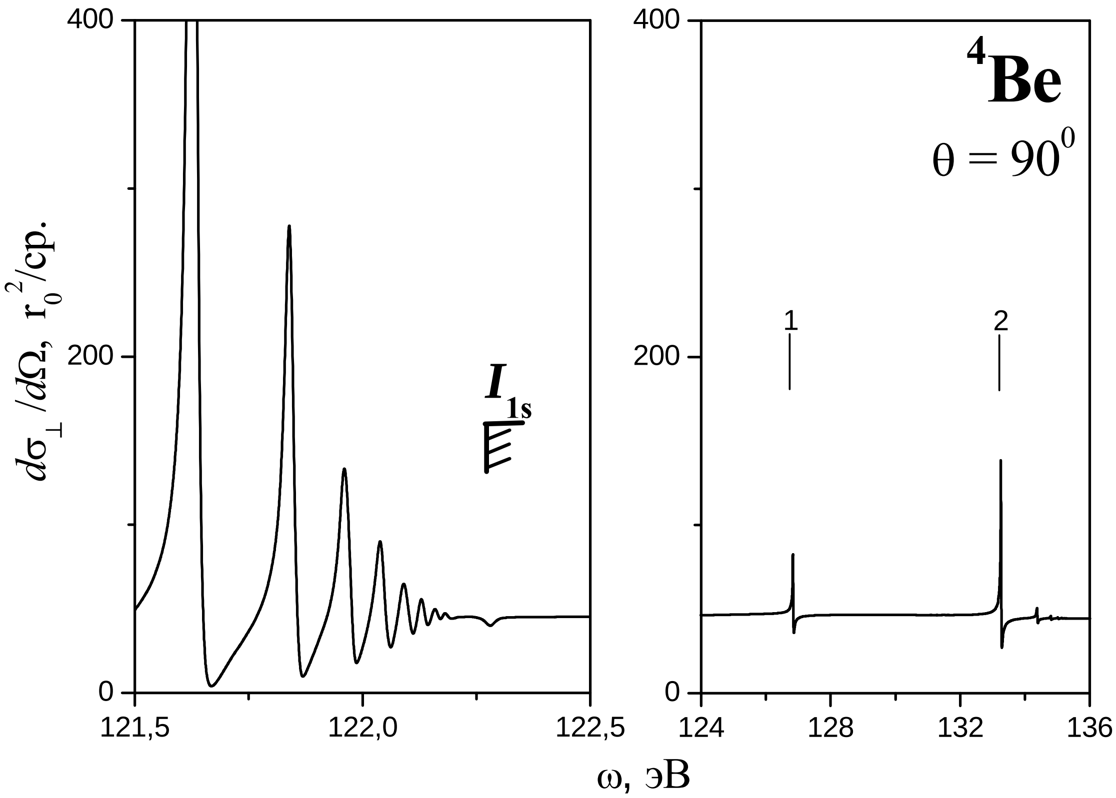

Рис. Дифференциальное сечение (в единицах $r_0^2\Big/$ñòåðàäèàí) аномального упругого рассеяния линейно поляризованного (перпендикулярно плоскости рассеяния, $\perp$, плоскость рассеяния проходит через волновые векторы $\mathbf{k}_1$ и $\mathbf{k}_2$) рентгеновского фотона атомом ^4Be в области энергий К-порога ионизации. Идентификация резонансов, отмеченных цифрами, дана в тексте. $\theta-$угол рассеяния, $\omega-$энергия рассеиваемого фотона. Указано рассчитанное в приближении 3 положение энергии порога ионизации $1s-$оболочки $I_{1s} = 122{,}3$ эВ. Ширина распада $1s-$вакансии (расчет данной работы) $\tilde{A}_{1s} = 0{,}016$ эВ.

Литература

1. *P.P. Kane, L. Kissel, R.H. Pratt, S.C. Roy,* Phys.Rep.**140**,75(1986)
2. *А.Н. Хоперский, В.А. Явна.* Рассеяние фотона многоэлектронной системой. М.: Энергоатомиздат, 2004, 276 с.
3. *Р.И. Каразия.* Введение в теорию рентгеновских и электронных спектров свободных атомов. Вильнюс: Мокслас,1987, 276 с.
4. *А.И. Ахиезер, В.Б. Берестецкий.* Квантовая электродинамика. М.: Наука,1969,624 с.
5. *J.H. Hubbell, I. Overbo,* J. Phys. Chem. Ref. Data. **8**,69 (1979)
6. *М. Я. Амусья.* Атомный фотоэффект. М.: Наука,1987, 272 с.
7. *V. Schmidt,* Rep. Prog. Phys. **55,** 1483 (1992)
8. *P.O. Löwdin,* Phys.Rev.**97**,1474 (1955)
9. *А.П. Юцис, А.Ю. Савукинас.* Математические основы теории атома. Вильнюс: Минтис,1973, 480 с.