

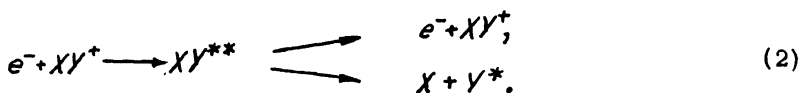
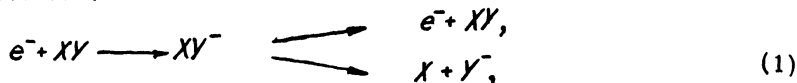
02

© 1991

О ВОЗМОЖНОСТИ ИССЛЕДОВАНИЯ РЕЗОНАНСНОГО ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ МЕДЛЕННЫХ ЭЛЕКТРОНОВ С МОЛЕКУЛАМИ И МОЛЕКУЛЯРНЫМИ ИОНАМИ ПО ТОРМОЗНОМУ ЭФФЕКТУ

Г.В. Г о л у б к о в, Г.К. И в а н о в

Взаимодействие медленных электронов (при энергиях E до 20 эВ) с молекулами XU или молекулярными ионами XU^+ характеризуется наличием ярко выраженных особенностей в энергетической структуре сечений рассеяния и реакции диссоциативного прилипания:



Эти особенности обусловлены образованием на промежуточном этапе автораспадных состояний отрицательного иона XU^- или ридберговского комплекса XU^{xx} , которые в последние годы стали предметом интенсивного экспериментального и теоретического исследования (данные о резонансных состояниях ионов N_2^- , CO^- , NO^- , O_2^- , CO_2^- и т.д. приведены, например, в [1]). Прямое экспериментальное изучение процессов (1) и (2) сопряжено с большими трудностями, связанными с необходимостью высокой монохроматизации пучка электронов и недостаточно надежной точностью последующих измерений. Кроме того, наличие колебательной (и вращательной) подструктуры сильно затрудняет анализ спектров.

В настоящей работе обсуждается возможность использования тормозного излучения (ТИ) электронов для диагностики состояний промежуточных молекулярных комплексов XU^- и XU^{xx} . В условиях их образования сечения ТИ обладают резонансной зависимостью как от начальной $E = p^2/2m_e$, так и конечной $E' = p'^2/2m_e$ энергий электрона. Поэтому особенности электронного строения промежуточных комплексов здесь должны быть более четко выражены, чем в сечениях рассеяния электронов. Вместе с тем, как будет показано ниже, резонансная структура оказывается и не критичной по отношению к деталям энергетического распределения исходных электронов. Это позволяет рекомендовать постановку эксперимента, который может существенно дополнить традицион-

ные методы исследования (многие состояния, заселяемые в процессе ТИ, как правило, недоступны другим оптическим методам, применяемым при лазерной диагностике).

Время жизни комплекса XU^- обычно не превышает период вращательного движения. Поэтому расчет процесса

$$e^- + XY \rightarrow XY^- \rightarrow e^- + XY + \hbar \Omega \quad (3)$$

может быть выполнен в системе координат, связанной с осью молекулы. Тогда используемый для классификации состояний набор квантовых чисел системы $e^- + XY$ включает эффективный угловой момент l , его проекцию l на ось молекулы и колебательное квантовое число ν . Аналогичные квантовые числа l' , l' и номер s колебательного уровня иона XU^- можно ввести и для промежуточных состояний. Для простоты спиновые переменные здесь опущены.

Волновые функции системы $e^- + XY$, содержащие дискретные состояния XU^- , определены нами по схеме Фано [2] с учетом взаимодействия V_c , смешивающего конфигурации $e^- XY$ и XU^- . Причем базисные функции этих конфигураций $|l\nu\rangle$ и $|l'\nu'\rangle$ нормированы следующим образом:

$$\langle l\nu | l'\nu' \rangle = \pi \delta(E - E') \delta_{l\nu, l'\nu'}, \quad \langle l\nu s | l'\nu' s' \rangle = \delta_{l\nu s, l'\nu' s'}$$

Интенсивность ТИ для перехода $\{l\nu\} \rightarrow \{l'\nu'\}$, усредненная по начальному распределению $F(E)$ электронов ($\int F(E) dE = 1$), в этом случае пропорциональна величине ($\hbar = m_e = e = 1$):

$$I_{l\nu, l'\nu'}(\Omega) = \int |\langle l\nu | r_k | l'\nu' \rangle|^2 F(E) dE + \frac{1}{\pi} \sum_{s, s'} \frac{\Gamma_{s\nu} \Gamma_{s'\nu'}}{\Gamma_s} |\langle l\nu s | r_k | l'\nu' s' \rangle|^2 \frac{\Gamma_s + \Gamma_{s'}}{[\Omega - (E_{l\nu s} - E_{l'\nu' s'})^2 + (\Gamma_s + \Gamma_{s'})^2]} \frac{\Gamma_{s'\nu'}}{\Gamma_{s'}} F(E_{l\nu s}). \quad (4)$$

Здесь $r_k - k$ -я сферическая компонента радиус-вектора электрона, $\Gamma_{s\nu}$ - парциальная ширина резонансного уровня, Γ_s - его полная ширина ($\Gamma_s = \sum_{\nu'} \Gamma_{s\nu'}$, где суммирование ведется по всем открытым каналам), $E_{l\nu s}$ - положение резонансного вибронного уровня. Из полученного выражения (4) следует, что на частотах $\Omega = E_{l\nu s} - E_{l'\nu' s'}$ должны возникать резонансные всплески ТИ, величины которых зависят от вида функции распределения $F(E)$ падающих электронов. Таким образом, по спектру ТИ немонотонного пучка электронов экспериментально могут быть определены расстояния между резонансными уровнями и их автораспадные ширины, т.е. основные характеристики комплекса XU^- , которые проявляются и в сечениях столкновения медленных электронов с молекулами.

В случае ТИ медленных электронов на колебательно невозбужденных ионах XU^+ резонансная структура спектров формируется, в основном, в области энергий, расположенных ниже порога ω ко-

поблательного возбуждения иона $E < \omega$. Физическая причина появления таких резонансов заключается в том, что электрон с энергией $E < \omega$ при колебательном внутримолекулярном переходе ($\nu = 0 \rightarrow \nu = 1$) захватывается кулоновской ямой. Как и в предыдущем случае для системы, связанной с осью молекулы введем гармоники $|\nu L \nu\rangle$. Тогда состояния $|\nu L 0\rangle$ и $|\nu L 1\rangle$ будут относиться, соответственно, к открытому и закрытому каналам. При построении волновой функции электрона в поле молекулярного иона нами использован метод многоканального квантового дефекта (МКД) [3]. Для интенсивности спонтанного излучательного перехода из состояния $|\nu L 0\rangle$ с начальным распределением электронов $F(\varepsilon)$ запишем

$$I_{\nu L, \nu' L'}^{(K)} = \int |\langle \nu L 0 | x_k | \nu' L' 0 \rangle|^2 F(\varepsilon) d\varepsilon + \frac{1}{\pi} \sum_{\nu'' L'', \nu'' L'''} \frac{1}{(n n')^3} \frac{\Gamma_n^{\nu L, \nu' L'}}{\Gamma_n^{\nu L}} \frac{|\langle \nu L 1 | x_k | \nu'' L'' \rangle|^2}{\Gamma_n^{\nu L} + \Gamma_n^{\nu' L'}} \frac{\Gamma_n^{\nu' L', \nu'' L''}}{\Gamma_n^{\nu' L'}} F(E_{n \nu L}), \quad (5)$$

где n - главное квантовое число ридберговского вибронного уровня закрытого канала, $E_{n \nu L} = \frac{1}{2(n - \mu_{\nu L})^2}$, $\mu_{\nu L}$ - квантовый дефект. В формуле (5) дипольные матричные элементы $\langle \nu L 1 | x_k | \nu' L' 0 \rangle \sim \langle \nu L 0 | x_k | \nu' L' 0 \rangle$ и правила отбора такие же, как и для континуума. Поэтому положения $E_{n \nu L}$ ридберговских уровней и их ширины $\Gamma_n^{\nu L}$ воспроизводятся здесь в состояниях с эффективными угловыми моментами $\nu \leq \nu' \sim \Omega^{-1/3}$ как и для прямых свободно-свободных переходов на частоте Ω , т.е. в этих условиях появляется простая возможность наблюдения ридберговских резонансов с большими угловыми моментами, что обычно затруднено в экспериментах с лазерной накачкой.

Приведенные выше формулы характеризуют парциальные сечения ТИ. Полное сечение является их суперпозицией и может быть представлено в виде

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{128}{9\pi} \left(\frac{\Omega}{c}\right)^3 \frac{\rho'}{\rho} \sum_{\nu L, \nu' L', k} I_{\nu L, \nu' L'}^{(K)}(\Omega), \quad (6)$$

c - скорость света. В процессах $e^- + XY$ взаимодействия ТИ исчерпывается небольшим количеством парциальных сечений в (6). Число состояний νL в системе $e^- + XY^+$, влияющих на ТИ, велико, однако резонансные переходы здесь существенны во всех гармониках. Поэтому, основной вывод о проявлении линейчатой структуры спектров ТИ и воспроизводимости на их основе резонансной структуры сечений процессов (1) и (2) остается в силе и для полного сечения (6).

Для оценки возможности экспериментального наблюдения резонансной структуры спектра приведем ожидаемую величину се-

чения Γ_I (6) для процесса (1) в окрестности s -го резонанса

$$G_{s \rightarrow s'}^{(r)} \sim G_0 \frac{\Gamma_{s0}}{\Gamma_s} \frac{1}{(\Gamma_s + \Gamma_{s'})} \cdot \frac{1}{\Delta E}, \quad (7)$$

где $G_0 \sim 10^{-22} - 10^{-21} \text{ см}^2$, $\Delta E \sim 10^{-1} \text{ эВ}$ - характерная величина разброса в пучке. Принимая типичные значения автораспадных ширин для фешбаховских резонансов $\Gamma_s \sim 10^{-3} \text{ эВ}$, нетрудно получить $G^{(r)} \sim 10^{-17} - 10^{-18} \text{ см}^2$, что соответствует хорошо регистрируемым интенсивностям спонтанного излучения. В качестве примера систем $e^- + \text{ХУ}$, в которых оптические переходы могут наблюдаться в видимой области спектра, укажем на следующие [1]:

$$b^3 \Pi^- (E_r^0 = 5.41 \text{ эВ}, \omega^- = 0.29 \text{ эВ}) \longrightarrow \chi^3 \Sigma^- (E_r^0 = -0.03 \text{ эВ}, \omega^- = 0.0165 \text{ эВ})$$

для иона NO^- и

$$b^4 \Sigma_g^- (E_r^0 = 14.27 \text{ эВ}, \omega^- = 0.16 \text{ эВ}) \longrightarrow a^4 \Pi_u (E_r^0 = 11.69 \text{ эВ}, \omega^- = 0.126 \text{ эВ})$$

для O_2^- (E_r^0 - положение резонанса для основного колебательно-го состояния иона, ω^- - частота колебаний).

С п и с о к л и т е р а т у р ы

- [1] H a s t e d J.B., M a t h u r D., In: Electron-Molecule Interactions and Their Applications. 1984. V. 1. P. 403-475.
- [2] F a n o U. // Phys. Rev. 1961. V. 124. P. 1866-1878.
- [3] I v a n o v G.K., G o l u b k o v G.V. // Z. Phys. 1986. V. D1, P. 199-206.

Институт химической физики
АН СССР, Москва

Поступило в Редакцию
17 мая 1990 г.