

电子动量谱学的应用前景

陈学俊

(清华大学现代应用物理系)

摘要: 电子动量谱学就其基本概念、基本实验和理论方法而言,均起源于核物理。近年来,它在原子和分子物理中已经形成一个新的前沿课题,而且也开始向邻近学科(例如化学、表面物理等)渗透。总之,它正在兴起。本文简要介绍电子动量谱学的基本概念、基本实验和理论方法,现有的主要进展以及一些应用前景。

一、电子动量谱学

准自由散射(如 $(p, 2p)$, $(\alpha, 2\alpha)$, ……)及其在核结构中的重要作用,是核物理工作者熟知的事实。然而,它在原子和分子物理中的延伸,并取得了更为突出进展的这一情况,则还不是遍为人们所知。当今的电子动量谱学,已经成为研究原子和分子结构的新的、很有特色的手段,在原子和分子物理中开辟了一个新的前沿领域。这是核物理与其它学科交叉的又一个成功事例。

一定能量的电子与原子(或分子)碰撞,可以发生多种变化过程,其中之一就是入射电子被散射(即仍然出来,简称散射电子)的同时,还将原子(或分子)中的某个电子碰出来(简称敲出电子),用缩写符号来表示就是 $(e, 2e)$ 。从碰撞的运动学来考虑, $(e, 2e)$ 的终态有三个粒子(两个出射电子和一个反冲离子)。即使不计自旋,也有9个空间自由度,但由于能量和动量守恒提供4个约束条件,真正独立的自由度只有5个。对这5个自由度的选择方式有多种,不同的选择构成不同的几何条件。典型的选择之一,是两个出射电子的方向以及其中之一能量。实验上测

量的是一定几何条件下两个出射电子的符合计数。只要几何条件合适,经过适当的理论处理,就可以相当直接的得出被碰出的那个电子原来在原子(或分子)中的动量谱。电子动量谱学正是这样得名。

在核物理兴起之前,人们就知道 $(e, 2e)$ 的存在。然而,它的潜在价值却是在 $(p, 2p)$ 一类准自由散射在核结构中取得重大成功之后,才被一些人意识到。1966年,苏联学者 Smirnov 和 Neudatchin⁽¹⁾ 指出, $(e, 2e)$ 在研究原子、分子和固体的电子结构问题上具有巨大的价值。稍后,其他人⁽²⁻³⁾ 做了进一步的分析和定量计算,使视野更为开阔,例如,这些作者还讨论了利用 $(e, 2e)$ 得到电子关联信息问题。在实验方面,1969年德国学者 Ehrhardt 等在共面非对称几何条件下,首次得到氦原子的 $(e, 2e)$ 的实验结果。所谓共面非对称几何条件,是指两个出射电子的 ϕ 角相等,但 θ 角不相等。1973年,澳大利亚学者 Weigold 等在非共面对称几何条件下,成功地得到氦原子的 $(e, 2e)$ 符合计数,进而得到氦原子的 3s 和 3p 电子的动量谱。现在已经清楚,非共面对称几何条件是最有价值的。通常所说的电子动量谱学就是指在这种几何条件下,对 $(e, 2e)$ 的研究。本文介绍的也主要是这方面的情况。

电子动量谱学的研究已经进行了近20年。在这期间实验和理论都有很大的发展,取得的成果是十分显著的。专门的国际会议已开过多次。值得注意的是,在国际上,电子动量谱学已经有从基础研究转向应用基础研究的趋势。例如,1988年澳大利亚的 Flinders

大学就新成立了一个以电子动量谱学为主要手段的研究机构,名叫Electronic Structure of Materials Centre。据笔者所知,超导薄膜的电子结构是他们的主要研究项目之一。

二、基本实验和理论方法

(e, 2e)和(p, 2p)比较起来,无论是实验上还是理论上都有许多相似之处。差别自然也是有的,因为它们是不同的层次的问题。

(e, 2e)实际上是电子与原子(分子、离子)的碰撞电离。



A^N 和 A^{N-1} 分别表示具有 N 个和 $N-1$ 个电子的原子(分子、离子); E 和 \vec{P} 分别表示电子的动能和动量,而下标 $0, 1, 2$ 则分别代表入射电子、散射电子和敲出电子。在通常的实验条件下, A^N 的热运动能很小($\sim 0.025\text{eV}$),可看作是静止的。碰撞前,敲出电子与离子 A^{N-1} 构成一个束缚系统 A^N ,因此敲出电子在 A^N 中的动量有一分布,即动量谱。又因 A^N 静止,所以 A^{N-1} 的动量和敲出电子的动量正好方向相反,大小相等。碰撞后,有三个产物,有9个空间自由度。这些自由度受能量和动量守恒提供的4个约束条件限制。由于 A^{N-1} 很重,在碰撞过程中得到的能量很小,能量和动量守恒可表示成:

$$E_0 = E_1 + E_2 + \epsilon \quad (1)$$

$$\vec{P}_0 = \vec{P} + \vec{P}_1 + \vec{P}_2 \quad (2)$$

其中, ϵ 是 A^N 的某个电子被敲出时所需的能量, \vec{P} 是碰撞后 A^{N-1} 的动量。在(e, 2e)过程中各运动学变量表示在图1中。通常称 \vec{P} 为反冲动量,而 $\vec{K} = \vec{P}_0 - \vec{P}_1$ 为传递动量。

上面已经指出,碰撞后虽有三个产物,但独立的运动学变量只有5个。因此,最详尽的实验也只能测定五次微分截面。例如,在

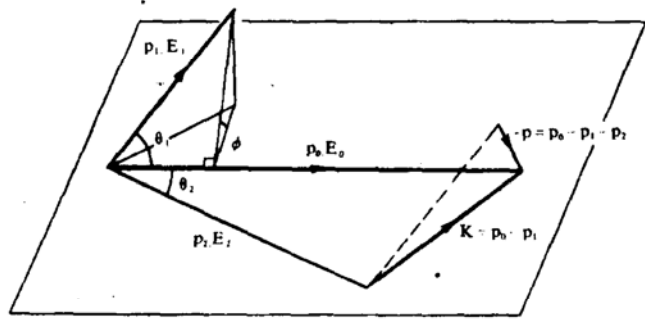


图1 (e, 2e)反应中各运动学变量的示意图。 \vec{P}, E 分别代表电子的动量和动能; θ, ϕ 代表电子的方位角。下标 $0, 1, 2$ 分别代表入射电子、散射电子和敲出电子。 \vec{P} 是反冲动量, \vec{K} 是传递动量

给定两个出射电子的方向(Ω_1, Ω_2)和其中之一能量(E_2)的几何条件下,测定两个出射电子的符合计数。这样的计数经过校正之后,就是五次微分截面 $d^5\sigma / d\Omega_1 d\Omega_2 dE_2$,不少文献上也叫做三次微分截面,并表示为 $d^3\sigma / d\Omega_1 d\Omega_2 dE_2$ 。两种符号代表的内容是一样的,不过前者更确切一些。下面我们来看看五次微分截面和我们感兴趣的那个被敲出电子原来在原子(分子)中的动量谱之间有何联系呢?为此,我们考虑准自由条件的情况。所谓准自由条件是指离子 A^{N-1} 在碰撞过程中没有能量和动量变化。此时,动量守恒条件(2)可写成意义更为明确的形式:

$$\vec{P}_0 + \vec{P} + (-\vec{P}) = \vec{P} + \vec{P}_1 + \vec{P}_2 \quad (3)$$

左边的 \vec{P} 正是碰撞前 A^{N-1} 的动量, $-\vec{P}$ 正是敲出电子在碰撞前的动量;右边的 \vec{P} 是碰撞后 A^{N-1} 的动量。由此得到一个重要的结论:在准自由条件下, $-\vec{P} = \vec{P}_1 + \vec{P}_2 - \vec{P}_0$ 就是敲出电子碰撞前的动量,相应的五次微分截面就是敲出电子原来的动量谱。这就是五次微分截面与电子动量谱的联系。要强调指出的是,这样的联系是相当直接的。

实际的(e, 2e)实验条件并不满足严格的准自由条件,因为 A^{N-1} 与散射电子和敲出电子都有相互作用。这使得实验上测量的五次微分截面尚需经过适当的理论处理才能与电

子动量谱相联系。从观念上来分析,相互作用越弱,准自由条件越容易满足。由此看来,(e, 2e)比(p, 2p)更容易满足准自由条件。

当今的(e, 2e)实验大体上分成两类,一类是Ehrhardt几何条件,另一类是Weigold几何条件。在Ehrhardt几何条件下,敲出电子的能量很低,通常只有几个eV。可以预料,敲出电子受离子 A^{N-1} 的影响是很大的,也就是离准自由条件颇远,很难指望得到电子动量谱的信息,实验结果证实了这一点。实验和理论分析表明,虽然Ehrhardt几何条件不能提供电子动量谱的信息,但却能提供重要的碰撞动力学的信息。

在Weigold几何条件下,作符合测量的两个电子具有相同的能量和相同的 θ 角,即选择 $E_1=E_2, \theta_1=\theta_2=\theta$,而且通常选择 $\phi_1=\pi, \phi_2=\phi$ 。因此,反冲动量可表示为:

$$P = \left[(2P_1 \cos\theta - P_0)^2 + 4P_1^2 \sin^2\theta \sin^2 \frac{\phi}{2} \right]^{1/2} \quad (4)$$

其中 P_1 由(1)给定(本文采用原子单位):

$$P_1 = (E_0 - \epsilon)^{1/2} \quad (5)$$

为了发生最大的动量传递,通常选择 $\theta = 45^\circ$ 。

在(e, 2e)实验中,反冲动量 P 比较小,通常为 $0-2 \text{ a.u.}$ 。实验是这样做的:固定 E_0, θ ,只改变 ϕ ,从而得到符合计数率与 ϕ 的曲线,经过校正后,就得到 $d^5\sigma/d\Omega_1 d\Omega_2 dE_2 - P$ 曲线。

图2是一台典型的(e, 2e)电子动量谱仪的示意图(包括电子学部分),这台仪器是最近在Weigold的研究所由Weigold教授和他的中国博士生郑延友建成的。由图可知,仪器由几个主要部分组成:1. 电子枪。产生合适能量的电子束,能量约几百至几千电子伏,流强约 $50 \mu\text{A}$,能量单色性比较好;2. 靶室和真空系统。真空度约 $133.332 \times (10^{-5} \sim 10^{-6}) \text{ Pa}$,为了提高符合计数率,靶区的气压约 $133.332 \times 10^{-3} \text{ Pa}$;3. 两个半球静电电子能量分析器,用于选择两个出射电子的能量;4. 两个位置灵敏探测器,用于探测经过能量选择后的电子数目。为了适应各种实验的要求,能量分析器和位置灵敏探测器合在一起,可绕靶心灵活旋转,从而可改变 θ 和 ϕ ;5. 一套电子学仪器,保证符合测量的进行。

(e, 2e)和(p, 2p)实验有许多相似之处,自然也有一些差别。主要差别表现在:(e, 2e)涉及的能量相当低,能量分辨率很高,目前约

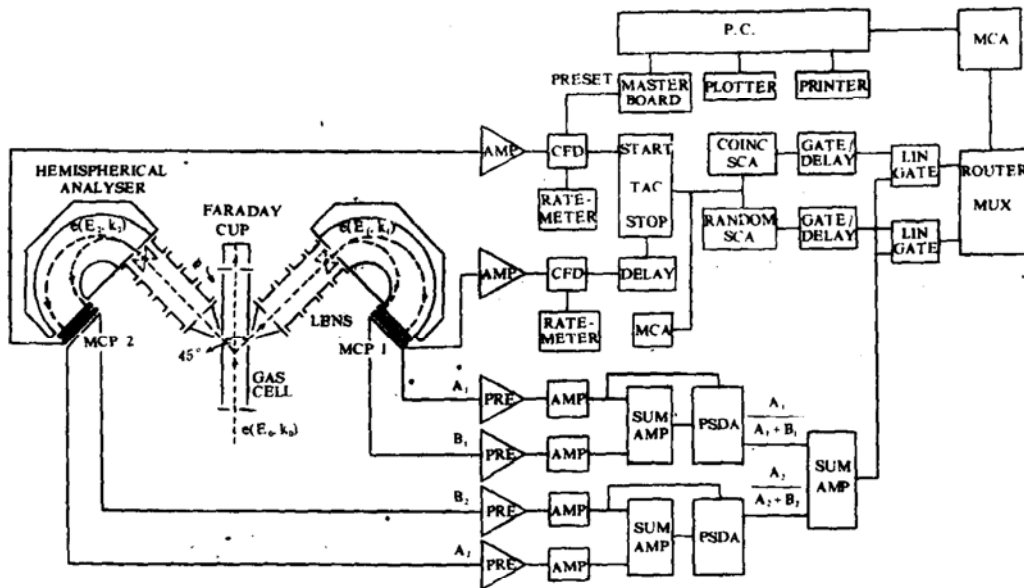


图2 一台典型的电子动量谱仪的示意图

0.1-1eV。

(e, 2e)实验必需有理论配合才能得到电子动量谱的信息。经过近二十年的发展,有关的理论很多,各有特点。在理论上,五次微分截面可表示为:

$$\frac{d^5\sigma}{d\Omega_1 d\Omega_2 dE_2} = (2\pi)^4 \frac{P_1 P_2}{P_0} \sum |M|^2 \quad (6)$$

不同的理论体现在计算M的方法有所不同。目前的所有(e, 2e)理论都采用了准三体近似,除了氢原子外,所有的(e, 2e)都是多于三体的问题。所谓准三体近似,就是把多体问题简化成三体问题:一是入射(散射)电子,二是敲出电子,三是原子(分子)实。分析表明,如果我们关心的是外层电子的动量谱,那么准三体近似是相当合理的。在这个前提下,各种方法可归纳为几类:

1. 玻恩近似。包括平面波玻恩近似⁽⁵⁻⁷⁾(PWBA); 二级玻恩近似⁽⁸⁾(SBA), 程函玻恩级数⁽⁹⁾(EBS), 扭曲波玻恩近似⁽¹⁰⁾(DWBA)。

2. 冲量近似。包括平面波冲量近似(PWIA)⁽⁴⁾, 扭曲波冲量近似(DWIA)。

3. 光学势近似。McCarthy等在这方面做了一系列的工作⁽¹¹⁻¹²⁾。

4. 多重散射展开方法。笔者在1989年提出一种称之为多重散射展开方法⁽¹³⁾。这个方法具有准确度高,计算较为方便,适用性广等特点。

三、电子动量谱学的进展和应用前景

经过近二十年的研究,电子动量谱学在原子和分子的结构问题上已经取得令人鼓舞的成果,在固体表面的电子结构问题上也取得了初步的结果⁽¹⁵⁾。由于篇幅所限,这里只举一些典型例子,至于其它可从介绍的文献和近期的国际杂志上查到。

图3是1s态氢原子的(e, 2e)实验结果⁽¹⁴⁾。

横坐标是反冲动量,由 ϕ 角决定。纵坐标是五次微分截面。在实验中,入射电子能量分别为400、800和1200eV。实线是氢原子的1s电子动量谱的模方,显然它应与入射电子能量无关,实验结果正是这样。从图可看出,实验得到的电子动量谱是非常好的,而且相当直接。这是很了不起的,因为到现在为止,还没有任何别的办法能这样精确和直接测得电子动量谱。电子动量谱模方通过傅立叶变换就是坐标空间中的电子波函数模方,也就是“电子云”密度。这些信息对了解原子和分子的电子结构是非常有价值的。所以,电子动量谱学是研究原子和分子结构的新手段,而且是很有特色的手段。对其它比较复杂的电子也已经做过类似的研究,结果是很好,如氮、氧、氩、氪、氙、钠、铅等。

图4是甲醚分子(CH₃)₂O的几何构型图。它一共有26个电子。由于(CH₃)₂O分子具有C_{2v}点群属性,其对称反射平面就是XY平面和YZ平面,于是所有正则分子轨道是a型和b型。用独立粒子模型来描写,这26个电子的分布如下:

$$\begin{aligned} & \text{(实)} \quad \underbrace{(3a_1)^2 (2b_2)^2 (4a_1)^2}_{\text{内价}} \\ & \underbrace{(1b_1)^2 (5a_1)^2 (3b_2)^2 (1a_2)^2 (4b_2)^2 (6a_1)^2 (2b_1)^2}_{\text{外价}} \end{aligned}$$

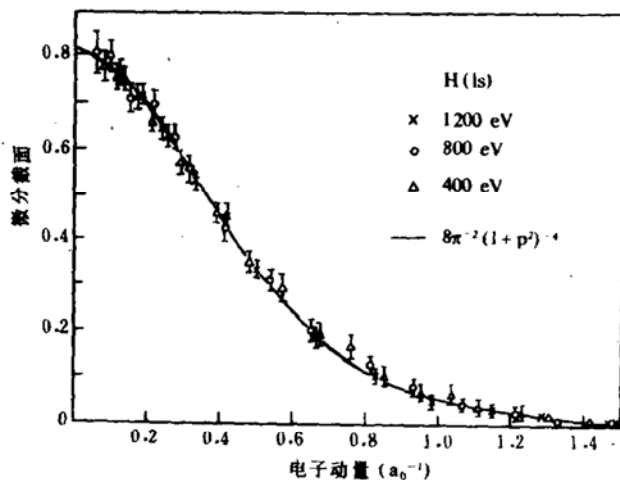


图3 1s态氢原子的(e, 2e)实验结果⁽¹⁴⁾

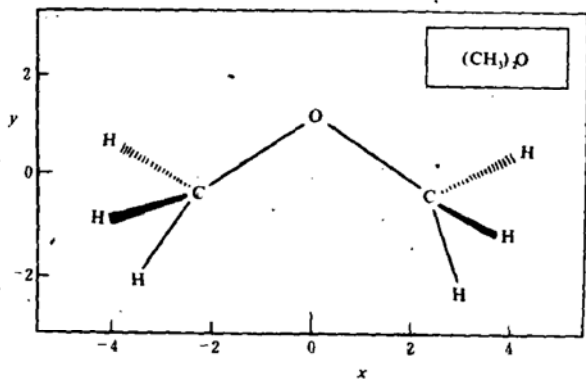


图4 甲醚分子的几何构型

电子动量谱学对研究分子的电子结构同样是非常好的工具。典型的分子也已经被仔细研究过,例如, H_2 , N_2 , HCl , HF , CH_3Cl , SF_6 等。

总结起来,电子动量谱学在原子和分子结构问题上的巨大价值,已经被近 20 年的研究所证实,它在半导体薄膜和超导薄膜的电子结构上的潜在价值已被重视。很有可能,不久的将来,电子动量谱学会变成很有实用价值的一种新工具。一些国家的研究动向已经表明了这一点。

参考文献

(1) Yu. F. Smirnov and V. G. Neudatchin, JETP Lett.

3, 192 (1966)

(2) V. G. Neudatchin, G. A. Novoskol'tseva and Yu. F. Smirnov, Sov. Phys. JETP 28, 540 (1969)

(3) A. E. Glassgold and G. Ialongo, Phys. Rev. 175, 151 (1968)

(4) I. E. McCarthy and E. Weigold, Rep. Prog. Phys. 51, 299 (1988)

(5) W. D. Robb, S. P. Rountree and T. Burnett, Phys. Rev. A11, 1193 (1975)

(6) M. Schulz, J. Phys. B6, 2580 (1973)

(7) S. J. Geltman, J. Phys. B7, 1994 (1974)

(8) F. W. Byron Jr, C. J. Joachain and B. Piraux, J. Phys. B13, L673 (1980)

(9) F. W. Byron Jr, C. J. Joachain and B. Piraux, J. Phys. B18, 3203 (1985)

(10) I. E. McCarthy, E. Weigold, X. Zhang and Y. Zheng, J. Phys. B22, 931 (1989)

(11) I. E. McCarthy and A. T. Stelbovics, Phys. Rev. A22, 502 (1980)

(12) I. E. McCarthy and A. T. Stelbovics, Phys. Rev. A28, 2693 (1983)

(13) X. J. Chen, Phys. Rev. A40, 1795 (1989)

(14) B. Lohmann and E. Weigold, Phys. Lett. 86A, 139 (1981)

(15) J. F. Williams, J. Phys. D21, 109 (1988)