

## Экзотические дырочные состояния атомов, образуемые в поле рентгеновского лазера на свободных электронах: двойные К–вакансии в неоне

М. Д. Киселев<sup>1,\*</sup>, Е. В. Грызлова<sup>1,†</sup>, А. Н. Грум-Гржимайло<sup>1,‡</sup>, О. Zatsarinny<sup>2,§</sup>

<sup>1</sup>Научно-исследовательский институт ядерной физики имени Д.В. Скобельцына  
Московского Государственного Университета имени М.В. Ломоносова  
Россия, 119991, Москва, Ленинские горы, д.1, стр. 2

<sup>2</sup>Department of Physics and Astronomy, Drake University, Des Moines, Iowa, IA 50311, USA  
(Статья поступила 17.06.2019; Подписана в печать 15.08.2019)

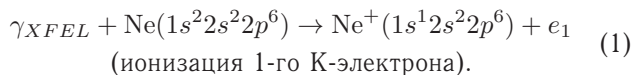
Настоящая работа посвящена теоретическому исследованию методом R-матрицы с применением В-сплайнов возбуждения и распада двойной К-вакансии при ионизации иона  $\text{Ne}^+(1s^1 2s^2 2p^6)$  в области  $\text{Ne}^+(1s^0 2s^2 2p^6 3p)$  резонанса. Ширина резонанса в сечении фотопоглощения существенным образом определяется оже–распадом состояния  $\text{Ne}^+(1s^0 2s^2 2p^6 3p)$  с пассивным  $3p$ -электроном. Получены спектры оже-электронов, вылетающих при распаде двойной К-вакансии, с учётом типичной для таких энергий лазера ширины фотонного пучка и разрешающей способности электронного детектора. Спектры соответствуют постановке эксперимента с детектированием электронов на совпадения с зарядовым состоянием иона. Экспериментальное изучение процесса доступно на современных рентгеновских лазерах на свободных электронах.

PACS: 32.80.ϕt, 32.80.Fb, 32.80.Nd      УДК: 539.184.56+539.186.22

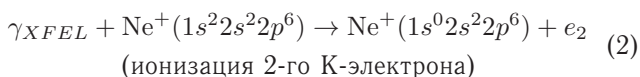
Ключевые слова: лазеры на свободных электронах, многофотонная ионизация, двойные вакансии, фотопоглощение, фотоэлектронные спектры, эффект Оже.

Интенсивные импульсы рентгеновских лазеров на свободных электронах (XFEL) дают возможность исследования нелинейных фотопроцессов в атомах и молекулах в коротковолновом диапазоне. Они включают, в частности, процессы последовательной и прямой многофотонной ионизации и возбуждения. Последовательная ионизация из внутренних электронных оболочек конкурирует с быстрой релаксацией дырок посредством оже–распада [1]. При интенсивном рентгеновском облучении могут поглотиться более одного фотона в течение нескольких фемтосекунд, прежде чем произойдёт оже–распад вакансии. Тогда вклад такого последовательного фотопоглощения электронов остова и, соответственно, относительная заселённость промежуточных высоковозбуждённых ионных состояний с двумя, а возможно и более, вакансиями во внутренних оболочках значительно возрастает. Например, последовательное поглощение двух фотонов электронами К–оболочки неона может происходить двумя ступенями по схемам:

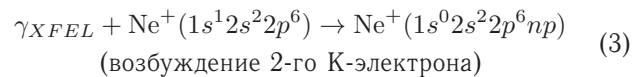
Первая ступень:



Вторая ступень (энергия фотона выше порога ионизации К–электрона в ионе  $\text{Ne}^+(1s^0 2s^2 2p^6 3p)$ ):



или (энергия фотона ниже порога ионизации К–электрона в ионе  $\text{Ne}^+(1s^1 2s^2 2p^6)$ ):



В экспериментах с источниками синхротронного излучения (SR) третьего поколения тоже можно наблюдать двойные К–вакансии [2], но только возбуждаемые одним фотоном: для поглощения второго фотона до оже–распада вакансии не хватает интенсивности излучения. В этом случае при поглощении одного фотона первый электрон ионизируется, а второй либо «встряхивается» (shake-up) на не занятую валентную оболочку



либо «вытряхивается» (shake-off) в непрерывный спектр:

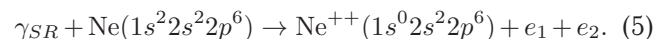


Рис. 1 иллюстрирует процесс образования двойной К–вакансии в атоме неона при последовательной двойной двухфотонной ионизации импульсом XFEL (рис.1,а,б) и при двойной однофотонной ионизации синхротронным излучением (рис. 1,в).

Процесс (1)+(2) (рис. 1,а) наблюдался экспериментально и рассчитывался теоретически [1]. Процесс (4) (рис. 1,в) наблюдался и теоретически анализировался в [2]. В этой работе мы концентрируемся на теоретическом изучении процесса (1)+(3) (рис. 1,б), который является резонансным и происходит, когда энергия рентгеновского фотона соответствует энергии перехода  $\text{Ne}^+(1s^1 2s^2 2p^6) \rightarrow \text{Ne}^+(1s^0 2s^2 2p^6 np)$ . Конкретные расчеты проводятся для резонанса с  $n = 3$ .

\*E-mail: md.kiselev94@gmail.com

†E-mail: gryzlova@gmail.com

‡E-mail: grum@sinp.msu.ru

§E-mail: oleg\_zoi@yahoo.com

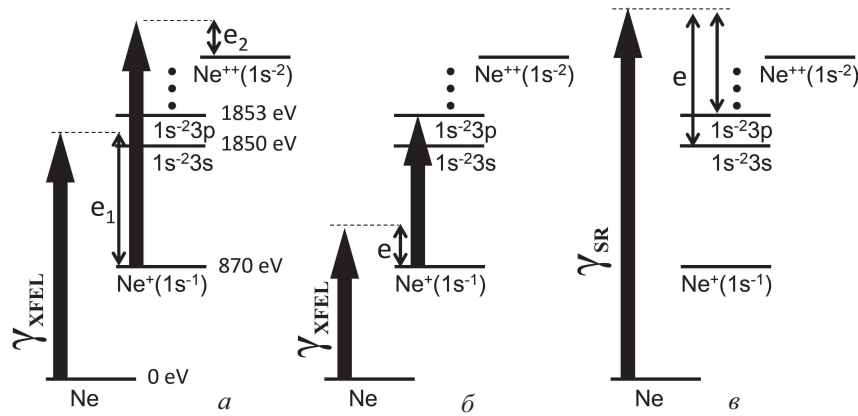


Рис. 1: Схемы образования двойной К-вакансии в атоме неона. (а — последовательная двойная двухфотонная ионизация импульсом XFEL с вылетом двух К-электронов; б — последовательная двойная двухфотонная ионизация импульсом XFEL с вылетом одного К-электрона и возбуждением второго в состоянии с конфигурацией  $1s^0 2s^2 2p^6 np$ ; в — однофотонная ионизация синхротронным излучением с вылетом одного К-электрона и встряской второго К-электрона. Указаны экспериментальные значения энергий [2]. Точками условно обозначены более высокие ридберговские состояния

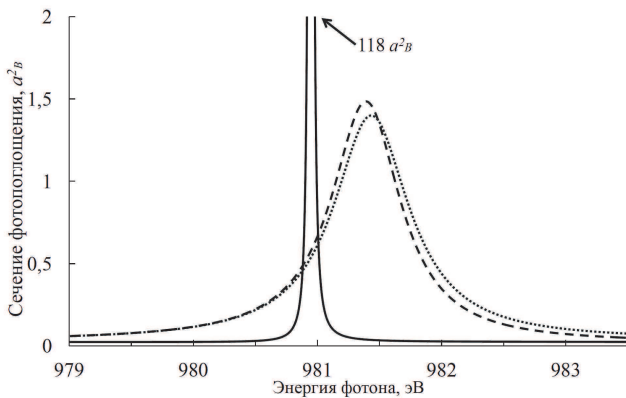


Рис. 2: Сечение фотопоглощения иона неона с одной К-вакансией  $Ne^+(1s^1 2s^2 2p^6)$  в области  $Ne^+(1s^0 2s^2 2p^6 3p)$  резонанса. Сплошная линия — учитываются только распады с активным  $3p$ -электроном (5 пороги в табл. 1); пунктирная линия — учитываются распады с активным и пассивным  $3p$ -электроном (все 27 порогов из табл. 1); точечная линия — учитываются распады с активным  $3p$ -электроном и пассивными  $3p$ - и  $4p$ -электронами (49 порогов из табл. 1 и 22 порога с  $4p$ -электроном, аналогичных конфигурациям с пассивным  $3p$ -электроном, представленным в табл. 1). Стрелкой указано пиковое значение сечения фотопоглощения для сплошной линии. Энергия фотонов из расчёта,  $a_B$  — борковский радиус

Расчёты фотопоглощения в процессе (3) проводились методом R-матрицы с помощью программного комплекса BSR (B-Spline R-matrix) [3]. В основе метода лежит разделение пространства на две части: ограниченную внутреннюю область, в которой можно ввести удобный базис квадратично-интегрируемых функций, позволяющих сделать хорошую аппроксимацию радиальных частей электронных орбиталей с учётом взаи-

модействий в многоэлектронной системе, и внешнюю область, в которой взаимодействие частей исследуемой системы хорошо описывается известными дальнедействующими потенциалами. В качестве базисных функций во внутренней области в программе BSR выбраны B-сплайны. В расчетах используется приближение LS-связи и неортогональные электронные орбитали. Эта неортогональность полностью учитывается при вычислении матричных элементов. Расчёты электронных орбиталей для начального и конечного связанных состояний проводились многоконфигурационным методом Хартри-Фока с помощью программы MCHF [4]. Все энергии в представленных ниже результатах взяты из наших расчётов, если не оговорено особо.

Состояние  $Ne^+(1s^0 2s^2 2p^6 3p^2 P)$  распадается с испусканием оже-электрона, и весь процесс образования короткоживущей двойной К-вакансии и последующего её распада является так называемым «резонансным процессом Оже», который является частным случаем резонансной фотоионизации. Для проведения фотоионизационных расчётов методом R-матрицы необходимо задать набор многоэлектронных конфигураций остаточного фотоиона («пороги»), в нашем случае — конфигураций двукратно заряженного иона неона. Этот набор порогов определяет каналы оже-распада и приведён в табл. 1. Возможны два варианта оже-распада состояния  $Ne^+(1s^0 2s^2 2p^6 3p^2 P)$ , указанные в табл. 1: когда  $3p$ -электрон активен, т.е. непосредственно участвует в оже-распаде двойной вакансии, и когда  $3p$ -электрон пассивен («спектатор»), т.е. не участвует в оже-распаде и остаётся после распада на  $3p$ -оболочке.

На рис. 2 показаны сечения фотопоглощения, рассчитанные с разными наборами порогов. Добавление мод распада с пассивным  $3p$ -электроном критически меняет форму спектра фотопоглощения, а ширина ре-

Таблица I: Учитываемые в расчетах конфигурации остаточного иона  $\text{Ne}^{++}$ 

Конфигурация	Термы	Энергия относительно состояния $1s^1 2s^2 2p^6$ , эВ	Тип оже-распада
$1s^1 2s^2 2p^5$	$1s^1 2s^2 ({}^2S) 2p^5 {}^3P$	45.14	активный
	$1s^1 2s^2 ({}^2S) 2p^5 {}^1P$	49.47	$3p$ -электрон
$1s^1 2s^2 2p^6$	$1s^1 2s^2 ({}^2S) 2p^6 {}^3S$	72.83	активный
	$1s^1 2s^2 ({}^1S) 2p^6 {}^1S$	78.60	$3p$ -электрон
$1s^1 2s^2 2p^4 3p^1$	$1s^1 2s^2 2p^4 ({}^2D) 3p^1 {}^3F$	100.14	пассивный $3p$ -электрон
	$1s^1 2s^2 2p^4 ({}^2D) 3p^1 {}^1F$	100.47	
	$1s^1 2s^2 2p^4 ({}^2D) 3p^1 {}^3D$	100.69	
	$1s^1 2s^2 2p^4 ({}^2D) 3p^1 {}^3P$	100.90	
	$1s^1 2s^2 2p^4 ({}^2D) 3p^1 {}^1D$	101.01	
	$1s^1 2s^2 2p^4 ({}^2D) 3p^1 {}^1P$	101.50	
	$1s^1 2s^2 2p^4 ({}^2S) 3p^1 {}^3P$	103.92	
	$1s^1 2s^2 2p^4 ({}^2S) 3p^1 {}^1P$	104.28	
$1s^1 2s^2 2p^5 3p^1$	$1s^1 2s^1 ({}^1S) 2p^5 3p^1 {}^3S$	120.41	пассивный $3p$ -электрон
	$1s^1 2s^1 ({}^1S) 2p^5 3p^1 {}^3D$	120.84	
	$1s^1 2s^1 ({}^1S) 2p^5 3p^1 {}^1D$	121.25	
	$1s^1 2s^1 ({}^1S) 2p^5 3p^1 {}^3P$	121.28	
	$1s^1 2s^1 ({}^1S) 2p^5 3p^1 {}^1P$	121.44	
	$1s^1 2s^1 ({}^1S) 2p^5 3p^1 {}^1S$	123.97	
	$1s^1 2s^1 ({}^3S) 2p^5 3p^1 {}^3D$	133.30	
	$1s^1 2s^1 ({}^3S) 2p^5 3p^1 {}^1D$	133.57	
	$1s^1 2s^1 ({}^3S) 2p^5 3p^1 {}^3P$	133.65	
	$1s^1 2s^1 ({}^3S) 2p^5 3p^1 {}^3S$	133.76	
	$1s^1 2s^1 ({}^3S) 2p^5 3p^1 {}^1S$	133.976	
	$1s^1 2s^1 ({}^3S) 2p^5 3p^1 {}^1P$	133.979	
$1s^1 2s^0 2p^6 3p^1$	$1s^1 2s^0 2p^6 ({}^2S) 3p^1 {}^3P$	158.24	пассивный $3p$ -электрон
	$1s^1 2s^0 2p^6 ({}^2S) 3p^1 {}^1P$	158.60	
$1s^0 2s^2 2p^6$	$1s^0 2s^2 2p^6 {}^1S$	990.83	активный $3p$ -электрон

зонанса увеличивается почти на два порядка. Напротив, пороги, открывающие каналы распада с пассивным  $4p$ -электроном (аналогичные 22-м каналам с пассивным  $3p$ -электроном, указанным в табл. 1), практически не меняют сечение в области  $3p$ -резонанса, а незначительная сдвигка пика объясняется изменением энергий порогов за счёт смешивания с добавленными конфигурациями с  $4p$ -электронами. С увеличением главного квантового числа  $np$ -электрон всё больше удаляется от ионного остова и его участие в оже-распаде всё меньше.

Таким образом, наши расчеты для наименьшего значения  $n = 3$  указывают на то, что распады с пассивными  $np$ -электронами являются определяющими для правильного описания релаксации системы с двойной вакансией и сечений фотопоглощения в области соответствующих  $\text{Ne}^+(1s^0 2s^2 2p^6 np)$  резонансов.

Полученные при расчёте сечения фотопоглощения парциальные вклады от фотоионизации на определенные конечные состояния иона  $\text{Ne}^{++}$  позволяют, путём

простого пересчёта энергетической шкалы, получить спектр фотоэлектронов (оже-электронов). На рис. 3 мы приводим небольшой участок такого спектра с учётом типичной для таких энергий XFEL шириной фотонного пучка и разрешающей способности электронного детектора. Спектр соответствует постановке эксперимента с детектированием электронов на совпадения с зарядовым состоянием иона, в данном случае двухзарядным ионом  $\text{Ne}^{++}$ . В спектре можно выделить три основных максимума. Максимум при энергии 877 эВ соответствует двум не разрешенным по энергии линиям от распада резонанса  $\text{Ne}^+(1s^0 2s^2 2p^6 3p)$  на состояния  $\text{Ne}^{++}(1s^1 2s^2 2p^4 ({}^2S) 3p^1 {}^{1,3}P)$  (табл. 1). Средний максимум при 881 эВ образован шестью линиями от распада этого  $3p$ -резонанса на различные термы конфигурации  $\text{Ne}^{++}(1s^1 2s^2 2p^4 ({}^2D) 3p^1)$ , а максимум при энергии 886 эВ — линиями от распада  $4p$ -резонанса на состояния  $\text{Ne}^{++}(1s^1 2s^2 2p^4 3p)$ . При увеличении энергии фотона меняется относительный вклад резонансов в фотоэлектронный спектр: если при энергии фо-

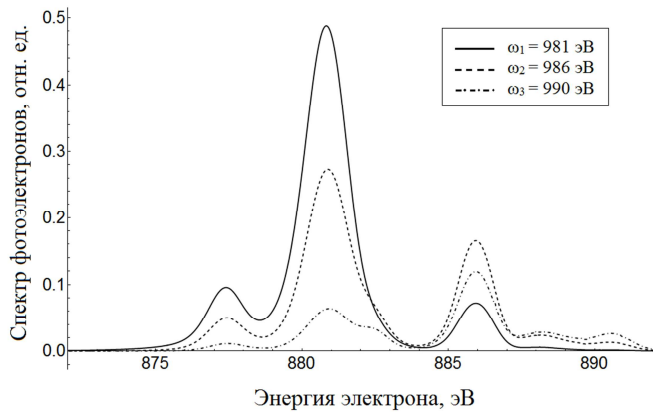


Рис. 3: Спектр фотоэлектронов, свёрнутый с гауссовской функцией распределения по энергии фотонов в пучке и с учётом гауссовской аппаратной функции электронного детектора при трёх различных центральных частотах падающего фотона, указанных на рисунке. Ширина на половине высоты распределений 10 эВ для фотонного пучка и 1 эВ для электронного спектрометра

тона 981 эВ  $3p$ -резонанс сильно доминирует над  $4p$ -резонансом, то при энергии фотона 986 эВ вклады от этих двух резонансов становятся сопоставимыми.

В заключение, в работе методом R-матрицы получены сечение фотопоглощения и спектры фотоэлектронов при ионизации иона с K-вакансией  $\text{Ne}^+(1s^1 2s^2 2p^6)$  в области оже-состояния с двойной K-вакансией  $\text{Ne}^+(1s^0 2s^2 2p^6 3p)$ . Доминирующими каналами оже-распада состояния  $1s^0 2s^2 2p^6 3p$ , как и вообще состояний с двумя K-вакансиями  $\text{Ne}^+(1s^0 2s^2 2p^6 np)$  являются каналы с пассивным возбужденным  $np$ -электроном. Полученные результаты представляют интерес для экспериментов на рентгеновских лазерах на свободных электронах.

Мы выражаем благодарность сотрудникам Европейского XFEL М. Мейеру (M. Meyer) и Т. Мацца (T. Mazza) за интерес к работе и плодотворные обсуждения. Работа Е. В. Грызловой и М. Д. Киселева была поддержана грантом Фонда развития теоретической физики и математики «Базис».

[1] Young L. et al. // Nature. 2010. **466**. P. 56.  
[2] Goldzstein G. et al. // Phys. Rev. Lett. 2016. **117**. P. 133001.  
[3] Zatsarinny O. // Comp. Phys. Commun. 2006. **174**. P. 273.

[4] Fischer C. F., Brage T., Jönsson P. Computational Atomic Structure: an MCHF Approach. Bristol: IOP Publishing, 1997.

## Exotic hole states of atoms created in the field of an X-ray free electron laser: Double K-vacancies in neon

M. D. Kiselev<sup>1,a</sup>, E. V. Gryzlova<sup>b</sup>, A. N. Grum-Grzhimailo<sup>1,c</sup>, O. Zatsarinny<sup>2,d</sup>

<sup>1</sup>Skobeltsyn Institute of Nuclear Physics, Lomonosov Moscow State University, Moscow 119991, Russia

<sup>2</sup>Department of Physics and Astronomy, Drake University, Des Moines, Iowa, IA 50311, USA

E-mail: <sup>a</sup>md.kiselev94@gmail.com, <sup>b</sup>gryzlova@gmail.com, <sup>c</sup>grum@sinp.msu.ru, <sup>d</sup>oleg\_zoi@yahoo.com

Present article is dedicated to theoretical study of excitation and decay of a double K-vacancy during ionization of the  $\text{Ne}^+(1s^1 2s^2 2p^6)$  ion in the resonance  $\text{Ne}^+(1s^0 2s^2 2p^6 3p)$  region by the R-matrix method with B-splines. The resonance width in the photoabsorption cross section is crucially determined by Auger decay of the state  $\text{Ne}^+(1s^0 2s^2 2p^6 3p)$  with a spectator  $3p$ -electron. The Auger electron spectra from the decay of the double K-vacancy are obtained taking into account the photon beam width typical for such laser energies and the resolution of the electronic detector. The spectra correspond to the experiment with the detection of electrons for coincidences with the charge state of the ion. An experimental study of the process is available with modern X-ray free electron lasers.

PACS: 32.80.ϕt, 32.80.Fb, 32.80.Hd

Keywords: free electron lasers, multiphoton ionization, double core holes, photoabsorption, photoelectron spectra, Auger effect.

Received 17 June 2019.

### Сведения об авторах

1. Киселев Максим Дмитриевич — программист 1 категории; e-mail: md.kiselev94@gmail.com.
2. Грызлова Елена Владимировна — канд. физ.-мат. наук, ст. науч. сотрудник; тел.: (495) 939-47-76, e-mail: gryzlova@gmail.com.
3. Грум-Гржимайло Алексей Николаевич — доктор физ.-мат. наук, вед. науч. сотрудник; тел.: (495) 939-47-76, e-mail: grum@sinp.msu.ru.
4. Zatsarinny Oleg — Senior Research Scholar and Lecturer; тел.: 515-271-4596, e-mail: oleg\_zoi@yahoo.com.