

# ÁLLAPOT-ÁLLAPOT INTERFERENCIA KÍSÉRLETI VIZSGÁLATA ELEKTRONSPEKTROSKÓPIÁVAL

## EXPERIMENTAL ASPECTS OF STATE TO STATE INTERFERENCE BY ELECTRON SPECTROSCOPY

Paripás B. \*, Palásthy B. \*\* és Matjaz Žitnik \*\*\*

### ABSTRACT

Any two autoionizing resonances with a common final ionic state can be made to interfere by an appropriate selection of electron impact energy. We have studied this state to state interference by coincident detection of electron pairs in the final state. At 457.3 eV electron impact energy a series of  $(e,2e)$  spectra was measured for argon in 205 - 214 eV energy range for studying the neighbouring  $[2p3/2]3d$  and  $[2p3/2]4d$  resonances leading to the  $[3p2]3d$  final state.

### 1. A Fano-interferencia

Rezonancia során a találkozó két hullám az eredetiek összegénél kisebb vagy nagyobb amplitúdójú eredő hullámot hoz létre. Interferencia csak olyan hullámok között lehetséges, amelyek korreláltak, egymással koherensek, például azért, mert ugyanaból a forrásból jöttek két különböző úton. A legegyszerűbb esetben ezek geometriai utakat (trajektóriákat) jelentenek. A kvantummechanikában azonban ezek az utak ugyanannak a végállapotnak a különböző megkülönböztethetetlen formálódási módjait jelenthetik. A jól ismert esetben az  $E_F$  energiájú  $F(E_F)$  végső ion-állapot a  $G(0)$  kezdeti (alap) atomi állapotból formálódik közvetlenül (1a), vagy egy közbenső  $R(E_R)$  rezonancián keresztül (1b):

$$G(0) + e(E_0) \rightarrow F(E_F) + e_s(E_s) + e_a(E_a) \quad (1a)$$

$$G(0) + e(E_0) \rightarrow R(E_R) + e_s(E_s) \rightarrow F(E_F) + e_s(E_s) + e_a(E_a) \quad (1b)$$

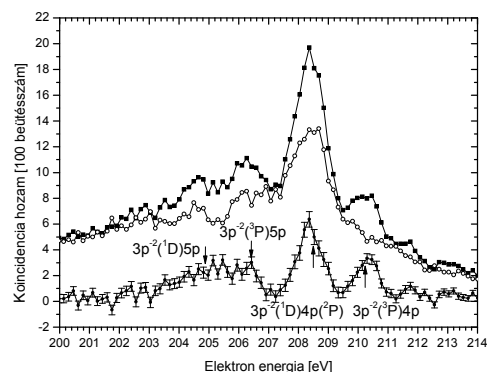
Mindkét folyamat során a primer elektron  $e(E_0)$  rugalmatlanul szóródik ( $e_s$ ) és egy másik elektron is ( $e_a$ ) kibocsájtódik. A rezonáns, kétlépéses folyamatban (1b) mindkét elektron energiája meghatározott ( $E_s = E_0 - E_R$ ;  $E_a = E_R - E_F$ ), ezért az elektron-energia spektrumban két csúcs található. A direkt folyamatban (1a) a végállapotbeli két elektron a többletenergia ( $E_0 - E_F$ ) folytonos módon osztozik. A kvantummechanikai

interferencia e két folyamat között (azaz a rezonáns és a direkt folyamat között) jön létre és Fano-interferenciának nevezik, amely egy jól ismert aszimmetrikus vonal alakra vezet az elektronspektrumban.

Koincidencia kísérletekben azonban, mind a szórt, mind a kibocsájtott elektront detektáljuk. A szórt elektronok energiáját adott  $E_s$  értéken tartva a kibocsájtott elektron energiája is meghatározottá válik ( $E_a = E_0 - E_F - E_s$ ). Tehát a koincidencia kísérletekben a direkt folyamatok is csúcsokat eredményeznek az energiaspektrumban, de ezek az  $E_0 - E_F$  többletenergia bármilyen felosztásánál lehetnek. Ennek a megfelelő beállításával a direkt koincidencia csúcsok pontosan egybe eshetnek a rezonáns folyamatból származó csúcsokkal. Ilyen típusú interferencia előfordulhat a rezonáns Auger-kísérleteinkben [1]. 344,9 eV primer elektron energián, 99 eV szórt energián a megfelelő direkt és rezonáns folyamatok:

$$Ar(^1S_0) + e_p(344.9) \rightarrow Ar^{*+}(3p^{-2}(^1D_2)4p)(37.4) + e_c(99) + e_{sc}^-(208.5) \quad (2a)$$

$$Ar(^1S_0) + e_p(344.9) \rightarrow Ar^{*+}(2p^{-1}(^3P_2)4p)(245.9) + e_c(99) \rightarrow Ar^{*+}(3p^{-2}(^1D_2)4p)(37.4) + e_c(99) + e_{sc}^-(208.5) \quad (2b)$$



1. ábra. Az  $E_0 = 344,9$  eV energián mért  $(e,2e)$  spektrum (négyzetek) ( $E_s = 99,2$  eV) és a direkt ionizációs háttér (üres körök). A két spektrum különbségét (a rezonáns Auger-spektrumot) tele körökkel és hibajellel ábrázoljuk.

\* egyetemi tanár, Miskolci Egyetem, Fizikai Tanszék

\*\* egyetemi docens, Miskolci Egyetem, Fizikai Tanszék

\*\*\* egyetemi tanár, J. Stefan Institute, Ljubljana, Szlovénia

A mért (e,2e) spektrum, amely a direkt és a rezonáns folyamatból jövő elektronok eredő energiaeloszlását tartalmazza az 1. ábrán látható. A direkt folyamat részeseését egy másik kísérletben (ahol a rezonáns folyamat nem lehetséges) megmértük ( $E_0 = 340$  eV  $E_s = 99,2$  eV), majd az energia spektrumot 4,9 eV-vel visszatoltuk. Az erős direkt folyamattal történő interferencia miatt azonban a két spektrum különbsége nem szükségképpen az  $Ar[2p_{3/2}]4p$  állapotból kibocsájtott rezonáns Auger-spektrum. A [1] cikkben azt találtuk, hogy valószínűleg ez az interferencia okozza a  $3p^{-2}(^1D)5p$  és  $3p^{-2}(^3P)5p$  állapotokra vezető felrázóási folyamatok abnormálisan nagy intenzitását.

## 2. Az állapot-állapot interferencia

Van egy másfajta típusú interferencia is, ami módosíthatja a koincidencia spektrumokat. Tétélezzük fel, hogy két nem átfedő rezonanciát ( $R'$  és  $R''$ ) gerjesztünk alapállapotból elektronütközéssel, amelyek elektronemisszióval ugyanabba a végállapotba bomlanak:

$$G(0) + e(E_0) \rightarrow R'(E_{R'}) + e_{s'} \rightarrow F(E_F) + e_{s'} + e_{a'} \quad (3a)$$

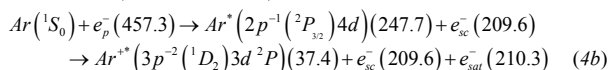
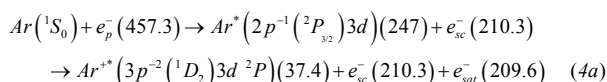
$$\rightarrow R''(E_{R''}) + e_{s''} \rightarrow F(E) + e_{s''} + e_{a''} \quad (3b)$$

(A direkt (1a) folyamat most is lehetséges.)

Az elektronpárokat koincidienciában mérjük két elektronspektrométerrel. Az interferencia feltétel megköveteli, hogy az egyik reakció csatornában szórt elektronnak az energiája (és spinje) megegyezzen a másik csatornában kibocsájtott Auger-elektron energiájával (és spinjével): ebben az esetben az  $(e_{s'}, e_{a'})$  és  $(e_{s''}, e_{a''})$  elektronpárok megkülönböztethetetlenek. Ilyen állapot-állapot interferencia csak egyetlen primer elektron energián lehetséges:  $E_0 = E_{R'} + E_{R''} - E_F$ .

Ilyen interferenciát már nem koincidiencia kísérletben is [2] megfigyeltek. (e,2e) kísérletekben azonban a szög szerinti integráció kevésbé fedi el az interferencia effektusokat, tehát a jelkontraszt növelhető. A mi (e,2e) méréseink során az argon  $2p$  rezonáns Auger-spektrumokat megfigyeltük [3]. Ebben a cikkben az ugyanezzel a (e,2e) eszközzel elvégzett első állapot-állapot interferencia kísérleteinkről számolunk be.

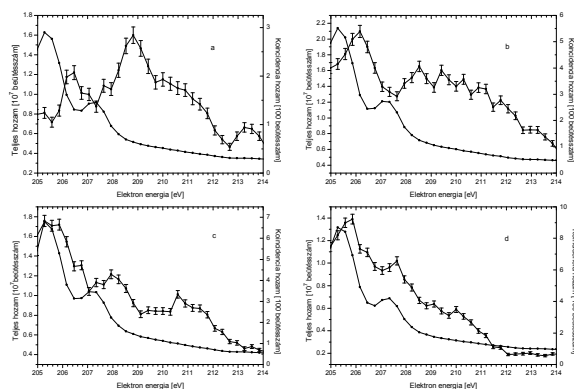
Az  $Ar^{+*}(3p^{-2}(^1D_2)3d/4d\ ^2P, ^2D)$  végállapot dublettel választottuk ki erre a célra  $E_F = 37,15 \setminus 37,40$  eV [4], amely rezonáns Auger-bomlással jelentős intenzitással keletkezik a  $[2p_{3/2}]3d$  és  $[2p_{3/2}]4d$  állapotokból köszönhetően az erős végső állapotbeli konfigurációs kölcsönhatásnak (FISCI). A megfelelő rezonancia energiák  $E_{R'} = 246,93$  eV és  $E_{R''} = 247,67$  eV [5], így az állapot-állapot interferenciát  $E_0 = 457,3$  eV ( $= 246,93 + 247,67 - 37,3$ ) energiánál várjuk. Mivel  $\Gamma_{2p} \approx 120$  meV, ezért a  $[2p_{3/2}]3d$  és  $[2p_{3/2}]4d$  rezonanciák átfedése jelentéktelen, az állapot-állapot interferencia a következő két reakciócsatorna között történhet:



## 3. Az állapot-állapot interferencia mérési módszerei

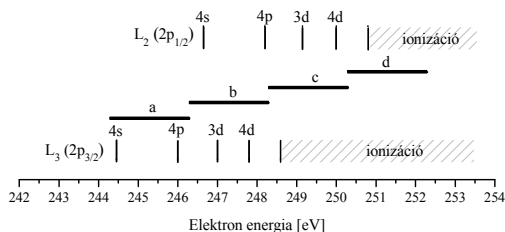
### 3.1. Az interferencia tartomány ( $E_A, E_B$ ) spektráltérképe

Az Auger-elektronspektrumot ( $E_B$ ) dupla (hengertükör típusú) analizátorral, az adott energiájú szórt elektronokat  $E_{sc}$  ( $E_A$ ) pedig szimpla spektrométerrel detektáltuk (innenlől inkább az  $E_B, E_A$  szimbólumokat használjuk, hogy a szórt és kibocsájtott elektronok megkülönböztethetlenségét hangsúlyozzuk). A két spektrométerrel a koincidiencia spektrumokat a  $205,0 \leq E_A(E_B) \leq 214,0$  eV energiatarományban 0,5 eV lépésközzel vizsgáltuk. Az energiaskálát az ismert energiájú LMM Auger-átmenetekkel kalibráltuk. A 29,2 eV kötési energiájú 3s elektron ionizációjához tartozó koincidiencia csúccsal monitoroztuk az  $E_0$  primer elektron energiát [3]. Az  $(E_A, E_B)$  spektrálsíkot (e,2e) spektrumok sorozatából alkottuk meg, ahol az  $E_A$  rögzített az  $E_B$  pedig léptetett. Az A spektrométer számlálási sebessége mutatta az elektronnyaláb és a targetgáz nyomás stabilitását. A 2. ábrán a 19 db (e,2e) spektrum közül 4 látható.



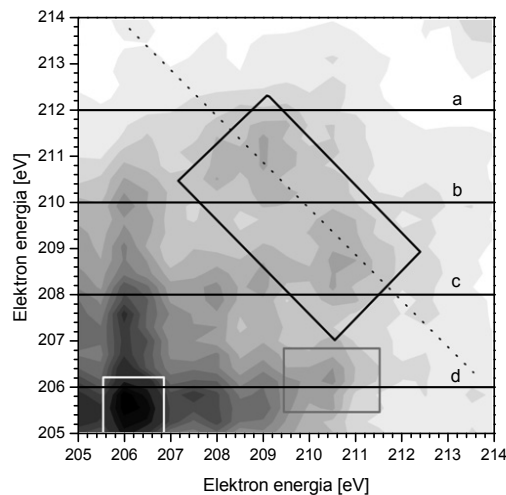
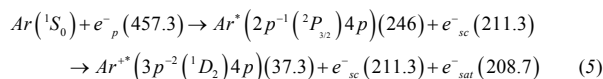
2. ábra. Az (e,2e) spektrum  $E_0 = 457,3$  eV primer energián,  $E_A$  rögzített az  $E_B$  léptetett; a)  $E_A = 212$  eV, b)  $E_A = 210$  eV, c)  $E_A = 208$  eV, d)  $E_A = 206$  eV. A hibajellel jelölt koincidiencia spektrumok a véletlen koincidienciát ( $\approx 30\%$ ) nem tartalmazzák.

Ezekre a spektrumokra az atomnak átadott energia „ablakok” ( $= E_0 - E_A$ ) helyzetét a 3. ábrán láthatjuk. A különböző  $E_A$  értékeken mért spektrumokat összenormáltuk egy fordított módon felvett (e,2e) spektrum segítségével ( $E_A$  változik,  $E_B = 212,0$  eV).



3. ábra. Az atomnak átadott energia „ablakok” helyzete az előző ábrán bemutatott spektrumokra

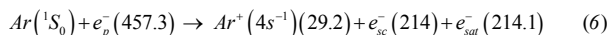
Az általunk mért spektrális térképet a 4. ábrán láthatjuk. A szórt és kibocsájtott elektronok megkülönböztethetlensége miatt a térképnek a 45°-os tengelyre nézve szimmetrikusnak kellene lennie, de instrumentális hatások elrontják ezt a szimmetriát. A különböző folyamatokat mutató térképi tartományokat a 3. ábra alapján azonosíthatjuk. A 206 eV környékén talált nagyon erős koinkidencia jelek az ugyanolyan energiájú szórt és  $L_2$ - $M_{23}M_{23}$  ( $^3P$ ) Auger-elektron párokhoz tartoznak. A rezonáns Auger-folyamatokból származó elektronok kör alakú foltokat eredményeznek. Pl. a (209eV, 211eV) körüli pont valószínűleg a következő folyamatból származik:



4. ábra. Az interferencia tartomány ( $E_A, E_B$ ) spektráltérképe  $E_0=457,3$  eV primer energián. (A sötétebbre színezett részek felelnek meg a nagyobb koinkidencia hozamoknak.)

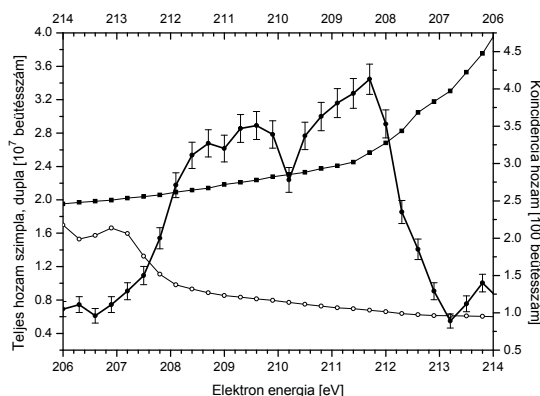
A direkt folyamatok járuléka  $-45^\circ$ -os csíkoknak felel meg, mivel a két elektron energiaösszege adott végállapot esetén állandó. A  $3p^{-2}nl$  gerjesztett ionállapotot energiája 36-40 eV, így ennek a széles csíknak a 4. ábrán szereplő szaggatott vonal környékén kellene lenni. Ennek a csíknak a hiánya azt mutatja, hogy a direkt folyamatok ezen a primer energián nagyon

gyengék a rezonánshoz képest. A 4. ábra jobb felső sarkában látható „folt” a  $4s^{-1}$  ionállapotnak megfelelő csík metszete:



### 3.2. Diagonális léptetés az interferencia tartományban

Ha a kiválasztott végállapotra koncentrálunk, akkor az állapot-állapot interferencia tanulmányozásának leghatékonyabb módszere a diagonális léptetés, ami azt jelenti, hogy mindkét spektrométert léptetjük, de ellentétes irányban. Egy adott végállapotra a két (szórt és kibocsájtott) elektron energiájának az összege állandó lesz ( $E_A + E_B = E_0 - E_F$ ), tehát az adatainkat a spektráltérkép  $-45^\circ$ -os irányú egyenesé mentén gyűjtjük. A „mágikus” 457,3 eV primer energián ez az egyenes a 4. ábrán szereplő szaggatott vonal ( $E_A + E_B = E_0 - E_F = 420$  eV), az ezen mért spektrumokat az 5. ábrán láthatjuk. A két teljes spektrum eltérése mutatja a szimpla és a dupla spektrométerek eltérő energiafelbontását ( $\Delta E_A(\text{FWHM}) = 0.009 E_A$  ill.  $\Delta E_B(\text{FWHM}) = 0.005 E_B$ ).



5. ábra. A diagonális léptetés eredménye 457,3 eV primer energián ( $E_A + E_B = E_0 - E_F = 420$  eV). Az energia spektrumot a szimpla (tele négyzetek, felső energiaskála) és dupla (üres körök, alsó energiaskála) spektrométerekkel mértük. A hibajellel jelölt koinkidencia spektrum adatait a véletlen koinkidenciákat ( $\approx 30\%$ ) nem tartalmazzák.

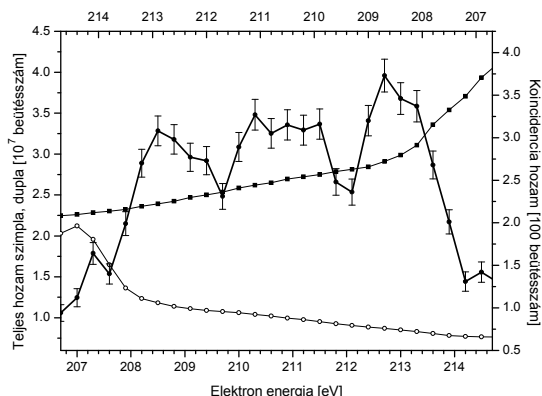
A diagonális léptetés nagy előnye az, hogy a direkt folyamat csak konstans háttérrel és nem csúcsherű szerkezeteket hoz létre a koinkidencia spektrumban. Tehát a csúcsokat a rezonáns folyamatok okozzák. Mint a  $[2p]4p$  ((5) egyenlet) és a  $[2p]3d/4d$  ((4a) és (4b) egyenletek) gerjesztések hozzájárulhatnak ehhez az összetett szerkezethez létrehozva vonalpárokat a 208,7/211,3 eV és a 209,6/210,3 eV energiákon. Ez az összetett szerkezet szétszedhető, ha – tartva a végállapotot – a primer energiát megnöveljük. A 6.

ábrán a diagonális léptetés eredményét láthatjuk 458,7 eV primer energián ( $E_A+E_B=E_0-E_F=421,4$  eV). Ezen a primer energián az eredeti egyenletek ((5), (4a) és (4b)) helyébe a következők lépnek:

$$\begin{aligned} Ar(^1S_0) + e^- (458.7) &\rightarrow Ar^{*}(2p^{-1}(^2P_{3/2})4p)(246) + e^-_{sc} (212.7) \\ &\rightarrow Ar^{*+}(3p^{-2}(^1D_2)4p)(37.3) + e^-_{sc} (212.7) + e^-_{sat} (208.7) \end{aligned} \quad (7a)$$

$$\begin{aligned} Ar(^1S_0) + e^- (458.7) &\rightarrow Ar^{*}(2p^{-1}(^2P_{3/2})3d)(247) + e^-_{sc} (211.7) \\ &\rightarrow Ar^{*+}(3p^{-2}(^1D_2)3d^2P)(37.4) + e^-_{sc} (211.7) + e^-_{sat} (209.6) \end{aligned} \quad (7b)$$

$$\begin{aligned} Ar(^1S_0) + e^- (458.7) &\rightarrow Ar^{*}(2p^{-1}(^2P_{3/2})4d)(247.7) + e^-_{sc} (211) \\ &\rightarrow Ar^{*+}(3p^{-2}(^1D_2)3d^2P)(37.4) + e^-_{sc} (211) + e^-_{sat} (210.3) \end{aligned} \quad (7c)$$



6. ábra. Ugyanaz, mint az 5. ábra, de 458,7 eV primer energián mérve ( $E_A+E_B=E_0-E_F=421,4$  eV)

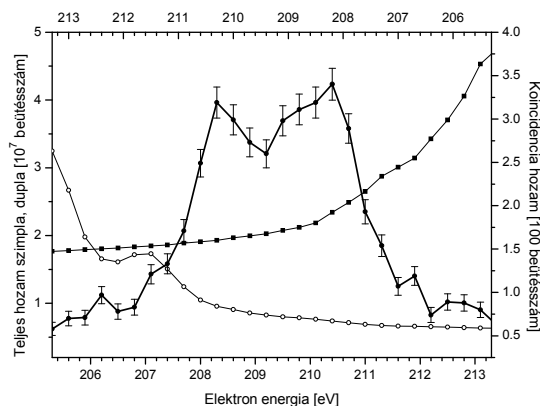
A szórt elektron csúcsok eltolódnak a primer energiák különbségével (ebben az esetben 1,4 eV-vel), de a rezonáns Auger-csúcsok a helyükön maradnak (tehát a spektrum, mozgó, és álló csúcsok kombinációja). A [2p]4p gerjesztés ((7a) egyenlet) járuléka valóban leválasztható, legalábbis a 212,7 eV-on levő, de a többi vonal leválasztása nem egyértelmű.

Ugyanennyivel csökkentve a primer energiát (455,9 eV-re), a szórt elektron csúcsok lefelé tolnak 1,4 eV-vel (209,9, 208,9 és 208,2 eV-re) és rácsúsznak az Auger-csúcsokra (208,7, 209,6 és 210,3 eV), ami egyszerűbbnek tűnő, de a valóságban még bonyolultabb spektrumot eredményez (7. ábra).

#### 4. Következtetések

Mind a spektráltkép (4. ábra), mind a diagonális léptetéssel kapott spektrumok (5-7. ábrák) azt sugallják, hogy a [3p<sup>2</sup>]4p végállapotra vezető [2p]4p elektron-ütközéses gerjesztés egy nagyon erős forrása a

koincidenencia spektrumnak. Ez esetleg lehetetlenné teszi a [2p]3d/4d állapot-állapot interferencia megmérését. A végső konklúziót azonban csak az összes koincidenencia spektrum egyidejű számítógépes kiértékelése után vonhatjuk le.



7. ábra. Ugyanaz, mint az 5. ábra, de 455,9 eV primer energián mérve ( $E_A+E_B=E_0-E_F=418,6$  eV)

#### 5. Köszönetnyilvánítás

A bemutatott kutató munka a TÁMOP-4.2.1.B-10/2/KONV-2010-0001 jelű projekt részeként az Európai Unió támogatásával, az Európai Szociális Alap társfinanszírozásával valósul meg.

#### 6. Hivatkozások

- [1] B. PARIPÁS, B. PALÁSTHY, M. ZITNIK and K. TÓKÉSI, Nucl. Instr. and Meth. B (2011), doi:10.1016/j.nimb.2011.10.039
- [2] VAN DEN BRINK J P, NIENHUIS G, VAN ECK J and HEIDEMAN H G M 1989, J. Phys. B 22 3501
- [3] M. ZITNIK, M. KAVCIC, K. BUCAR, B. PARIPÁS, B. PALÁSTHY, K. TÓKÉSI, Nucl. Instr. and Meth. B 267 (2009) 260.
- [4] MURSU J et al. 1996. J. Phys. B 29 4387
- [5] KING G C, TRONC M, READ F H and BRADFORD R C 1977 J. Phys. B 10 2479