

На правах рукописи

ПОЛОЗКОВ РОМАН ГРИГОРЬЕВИЧ
КОЛЛЕКТИВНЫЕ ВОЗБУЖДЕНИЯ В ПРОЦЕССАХ
ФОТОИОНИЗАЦИИ ФУЛЛЕРЕНОВ И НЕУПРУГОГО РАССЕЯНИЯ
ЭЛЕКТРОНОВ НА МЕТАЛЛИЧЕСКИХ КЛАСТЕРАХ.

01.04.07 - Физика конденсированного состояния

Автореферат диссертации на соискание ученой степени кандидата физико-
математических наук

Санкт-Петербург

2001

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Работа посвящена теоретическому исследованию коллективных электронных возбуждений в процессах фотоионизации фуллеренов и неупругого рассеяния электронов на металлических кластерах.

В диссертации изучаются два схожих типа коллективных электронных возбуждений: поверхностные и объемные плазмонные колебания. В первом случае возбуждение электронной плотности кластера происходит в узком приповерхностном слое, во втором - во всем объеме кластера. Известно, что в фуллеренах [1-3] встречаются плазмонные возбуждения первого типа, в то время как в металлических кластерах, кроме поверхностных возникают и объемные плазмонные колебания [4, 5].

Возбуждение плазмонных колебаний приводит к появлению гигантских резонансов в спектрах возбуждения многоэлектронных систем. Несмотря на то, что исследование гигантских резонансов в спектрах возбуждения многоатомных кластеров уже имеет довольно долгую историю, интерес как теоретический, так и экспериментальный, к этой проблеме не ослабевает. Объясняется это прежде всего тем, что возникновение коллективных электронных колебаний связано с проявлением многоэлектронных корреляций - эффекта, который играет существенную роль в процессах возбуждения многоэлектронных систем.

Актуальность проблемы.

Многоатомные кластеры (МК) по количеству составляющих их частиц занимают промежуточное положение между отдельными атомами и объемным материалом. Это приводит к тому, что они обладают свойствами, характерными как для отдельных атомов, так и для объемного материала, что делает МК чрезвычайно интересными объектами для исследования. В частности, в процессах возбуждения МК могут возникать резонансные плазмонные колебания, которые характерны, прежде всего, для электронной плотности электронов проводимости в металлах.

За последнее время хорошо изучены как экспериментально [1], так и теоретически [2,3] спектры возбуждений фуллеренов C_{60} . Главным результатом этих работ стало обнаружение гигантского резонанса с центром около 20 эВ и шириной 10 эВ. Возникновение гигантского резонанса может быть интерпретировано как результат возбуждения поверхностных плазмонных колебаний [2]. В последнее время были получены обнадеживающие результаты относительно возможности существования и синтеза изомера C_{20} типа фуллерен - наименьшего из возможных фуллеренов [6]. Естественно, эти результаты дали импульс дальнейшим теоретическим исследованиям этого объекта. Однако, в настоящее время существует не так много работ, посвященных исследованию динамических характеристик фуллерена C_{20} [6, 7]. Поэтому выяснение возможности существования подобных коллективных возбуждений в новом, недавно обнаруженном объекте, фуллерене C_{20} , представляется весьма актуальной задачей.

В металлических кластерах принципиально возможны коллективные возбуждения типа объемных плазмонных колебаний. Роль процесса возбуждения поверхностных

плазмонных колебаний в формировании спектра электронных потерь быстрых электронов на металлических кластерах была достаточно подробно выяснена в работе [5]. Сравнение расчетов сечений неупругого рассеяния, полученных в приближении случайных фаз с обменом (ПСФО), с волновыми функциями, рассчитанными в приближении Хартри-Фока (ХФ) в "желе" модели [4, 5], и в резонансном плазмонном приближении (РПП), указывало на то, что возбуждение поверхностных плазмонных колебаний - доминирующий процесс при энергиях порядка энергии возбуждения гигантского резонанса. Однако было замечено систематическое расхождение в сечениях, вычисленных в ПСФО (которое включает как одночастичные процессы, так и многочастичные), и в рамках РПП (которое включает только коллективные возбуждения - плазмонные колебания) - при энергиях выше порога ионизации кластера. Поэтому представлялось весьма актуальной задачей оценить вклад возбуждения объемных плазмонных колебаний в сечение неупругого рассеяния при энергиях выше порога ионизации кластера.

Целью работы является теоретическое исследование роли многоэлектронных эффектов в формировании спектров возбуждения сферических многоатомных кластеров. А именно: выяснение роли многоэлектронных корреляций в формировании спектров фотоионизации молекул фуллеренов на примере молекул C_{60} и C_{20} ; определение роли многоэлектронных корреляций в процессах неупругого рассеяния быстрых электронов на металлических кластерах в диапазоне переданных энергий выше порога ионизации.

Научная новизна.

1. Впервые рассчитано сечение фотоионизации молекулы фуллерена C_{20} с учетом многоэлектронных корреляций.
2. Обнаружен гигантский резонанс в спектре фотоионизации молекулы фуллерена C_{20} . Отмечено, что природа возникновения гигантского резонанса в спектре C_{20} аналогична природе гигантского резонанса в спектре фотоионизации C_{60} - возбуждение поверхностных плазмонных колебаний.
3. Обнаружено, что возбуждение объемных плазмонных колебаний вносит основной вклад в формирование спектра электронных потерь при рассеянии электронов на металлических кластерах в диапазоне переданных энергий выше порога ионизации.
4. Разработан эффективный метод расчета параметров затуханий плазмонных колебаний на основе резонансного плазмонного приближения.

Научная значимость и практическая ценность.

1. В работе реализован метод расчета электронной структуры и спектров фотоионизации фуллеренов с учетом многоэлектронных корреляций на основе приближения случайных фаз (ПСФ) и приближения локальной плотности (ПЛП). В дальнейшем эта методика расчета может быть применена к исследованию широкого

класса процессов столкновений с участием фуллеренов и сферических металлических кластеров.

2. Метод расчета на основе ПСФ и ПЛП реализован в виде пакета программ, что позволяет легко проводить аналогичные расчеты для любых сферических кластеров, в том числе фуллеренов любых размерностей и сферических металлических кластеров.
3. Получены абсолютные значения сечений фотоионизации фуллеренов C_{20} и C_{60} , что представляет большой интерес для экспериментальных исследований.
4. Выполненное в рамках работы исследование спектров электронных потерь при рассеянии электронов на металлических кластерах при переданных энергиях выше порога ионизации позволило наконец разрешить проблему систематического расхождения результатов, рассчитанных с помощью *ab-initio* методов и с помощью резонансного плазмонного приближения.
5. Предложенный в данной работе новый метод расчета параметров затухания плазмонных возбуждений позволит более широко использовать резонансное плазмонное приближение, что безусловно повысит эффективность исследований спектров возбуждения многоатомных кластеров.

Положения, выносимые на защиту.

1. Метод расчета электронной структуры фуллеренов, реализованный на основе приближения локальной плотности в рамках сферической модели "желе"слоя, позволяет получить самосогласованные потенциалы фуллеренов C_{20} и C_{60} , имеющие острый минимум вблизи поверхности фуллеренов.
2. Сечения фотоионизации фуллеренов C_{20} и C_{60} , рассчитанные в рамках метода, объединяющего приближения случайных фаз и локальной плотности, имеют гигантские резонансы одинаковой физической природы. Они возникают как следствие коллективных возбуждений электронной плотности - поверхностных плазмонных колебаний.
3. Возбуждение объемных плазмонных колебаний вносит основной вклад в формирование спектра электронных потерь быстрых электронов на металлических кластерах в диапазоне переданных энергий выше порога ионизации.
4. Разработан метод расчета ширин плазмонных резонансов в металлических кластерах и фуллеренах на основе резонансного плазмонного приближения.

Апробация работы.

Результаты, представленные в диссертации докладывались на 7 Международных конференциях:

- 4 Международная конференция по неразрушающим методам и компьютерному моделированию в науке и технике в С-Петербурге (2000), Россия;

- 6 и 7 Европейские конференции по атомной и молекулярной физике в Сьене (1998), Италия и в Берлине (2001), Германия;

- 6 Европейская конференция по квантовым системам в химии и физике в Софии (2001), Болгария;

- 21 и 22 Международные конференции по фотонным, электронным и атомным столкновениям в Сендай (1999), Япония и в Санта-Фе (2001), США;

- 13 Международная конференция по физике вакуумного ультрафиолетового излучения в Триесте (2001), Италия.

Результаты работы докладывались на научном семинаре кафедры экспериментальной физики СПбГТУ. Кроме того, результаты работы неоднократно обсуждались на научных семинарах сектора теории твердого тела Физико-Технического института им. А.Ф.Иоффе РАН.

Публикации: Основные результаты диссертации опубликованы в 13 научных работах.

Структура диссертации: Диссертация состоит из введения, 4 глав, заключения и списка цитируемой литературы. Общий объем диссертации составляет 116 страниц, включая 51 рисунок, 2 таблицы и список литературы из 71 наименования.

ОСНОВНОЕ СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Во **введении** ставятся цели работы, очерчивается круг рассматриваемых проблем и излагается краткое содержание диссертации.

В **первой** главе освещаются основные особенности решения многоэлектронной задачи. В первом параграфе описывается простейшее приближение при решении подобных задач - одночастичное [8]. Кластеры - структуры многоэлектронные, поэтому в процессах возбуждения многоэлектронные корреляции играют большую роль. Во втором параграфе следует краткое описание методов учета многоэлектронных корреляций в процессах возбуждения многоэлектронных систем. Для расчетов процессов возбуждения с учетом многочастичных эффектов наиболее часто используются два, физически эквивалентных подхода: приближение локальной плотности в теории функционала плотности, зависящего от времени (ТФПЗВ) [9] и приближение случайных фаз (ПСФ) [10]. И в том, и в другом случае для расчета основного состояния системы используется одночастичное приближение.

Во **второй** главе описывается метод расчета электронной структуры фуллеренов, реализованный на основе ПЛП [11] в рамках сферической модели "желе"слоя. Приводятся результаты конкретных расчетов для фуллеренов C_{60} и C_{20} .

В первом параграфе описывается модель "желе"слоя [3]. В этой модели реальный потенциал взаимодействия валентных электронов с остовом заменяется на потенциал, обладающий сферической симметрией. В частности, в работе [3] потенциал остова заменяется на потенциал, создаваемый усредненным по сфере распределением заряда ионов C^{4+} . Реализация этого приближения в данной работе отличается от [3] более точным учетом влияния электронов остова на валентные электроны. Для этого предполагается, что $1s$ электроны каждого из ионов C^{4+} дают одинаковый вклад в полную электронную плотность остовных электронов. Это позволяет усреднить по сфере электронную плотность одного из ионов и затем умножить результат на полное число ионов.

Потенциал, создаваемый усредненной по сфере электронной плотностью остовных электронов имеет вид:

$$V_{1s^2-e}(r) = \int \langle \rho_{1s^2} \rangle(r') \frac{r'^2}{r_>} dr' \quad (1)$$

где $r_>$ - большее из r и r' . Интегрирование по r' выполняется численно - методом трапеций.

Положительный заряд ядер всех атомов кластера усредняется по сфере радиуса R и для взаимодействия ядер и валентных электронов окончательно получается:

$$V_{n-e}(r) = -\frac{N_{at}}{r_>}, \quad (2)$$

где $r_>$ - большее из r и R . При этом полный потенциал остова есть сумма этих двух составляющих:

$$V_{core}(r) = V_{n-e}(r) + V_{1s^2-e}(r) \quad (3)$$

Во втором параграфе описывается метод решения радиальных уравнений для одноэлектронных волновых функций в рамках ПЛП и модели "желе"слоя. Во третьем и четвертом параграфах приводятся результаты вычисления электронной структуры фуллеренов C_{60} и C_{20} в рамках данного приближения.

В образовании химических связей в фуллеренах участвуют $2s$ и $2p$ электроны атомов углерода - по 4 электрона от каждого атома [12]. Для фуллерена C_{60} это дает 240 делокализованных электронов, для C_{20} - 80 делокализованных электронов. Ранее [13], на примере фуллерена C_{60} , было показано, что собственные функции электронов валентной зоны и дна зоны проводимости фуллерена характеризуются главным образом одним из значений орбитального углового момента l . Более того, можно приписать им определенное значение главного квантового числа n . Таким образом, электронная структура фуллерена может быть представлена в виде набора сферически симметричных оболочек, каждая из которых характеризуется волновой функцией с набором квантовых чисел $\{n, l\}$. Соответствие между волновыми функциями с определенным количеством узлов радиальной функции и σ - и π - орбиталями планарных графитовых сеток очень простое: безузловые волновые функции, сильно локализованные в радиальном направлении на радиусе фуллерена, соответствуют σ - орбиталям; волновые функции с одним узлом соответствуют π - орбиталям.

В фуллерене C_{60} соотношение количества σ - и π орбиталей - 3/1 [12], поэтому при выборе конфигурации основного состояния фуллерена C_{60} соотношение электронов, расположенных на безузловых и одноузловых $\{n, l\}$ оболочках, выбирается в аналогичной пропорции:

$$\underbrace{1s^2 2p^6 3d^{10} 4f^{14} 5g^{18} 6h^{22} 7i^{26} 8k^{30} 9l^{34} 10m^{18}}_{\text{без узлов, } 180e^-} \quad \underbrace{2s^2 3p^6 4d^{10} 5f^{14} 6g^{18} 7h^{10}}_{\text{один узел, } 60e^-}$$

(здесь и далее используется атомная схема обозначения электронной конфигурации $n l_e^N$)

Для фуллерена C_{20} из квантово-химических расчетов [14] известно количество σ - и π - орбиталей: $n_\sigma = 30$, $n_\pi = 8$. Каждая орбиталь дважды вырождена по спину. В сумме это дает 76 электронов. Оставшиеся 2 молекулярные орбитали не могут быть однозначно характеризованы как σ или π [14].

По аналогии с C_{60} σ - и π - орбиталям сопоставлены безузловые и одноузловые радиальные волновые функции, соответственно. Электроны, соответствующие двум оставшимся молекулярным орбиталям, расположены в соответствии с принципом минимума полной электронной энергии. Таким образом конфигурация основного состояния фуллерена C_{20} выглядит следующим образом:

$$\underbrace{1s^2 2p^6 3d^{10} 4f^{14} 5g^{18} 6h^{14=10+4}}_{\text{без узлов, } (60 + 4)e^-} \quad \underbrace{2s^2 3p^6 4d^8}_{\text{один узел, } 16e^-}$$

На рисунке 1 представлен энергетический спектр фуллерена C_{20} , вычисленный в рамках ПЛП. Состояния, соответствующие безузловым функциям заполнены до $l = 5$, одноузловым - до $l = 2$. Самосогласованный потенциал и полная электронная плотность фуллерена C_{20} , вычисленные в рамках ПЛП, представлены на рисунке 2. Как и в случае C_{60} электронная плотность C_{20} , сильно локализована и имеет максимум на радиусе фуллерена. Соответственно, самосогласованный потенциал имеет острый минимум на поверхности воображаемой сферы, в которую вписан фуллерен.

Особая форма самосогласованного потенциала фуллеренов обеспечивает существование ряда особенностей, например, наличие мелких дискретных возбужденных состояний, осцилляций в сечении фотоионизации, обусловленных возможностью для фотоэлектрона образования стоячей волны внутри полости фуллерена.

Третья глава посвящена расчету спектров фотоионизации молекул фуллеренов C_{60} и C_{20} . В первом параграфе представлены основные формулы для сечения и амплитуды фотоионизации многоэлектронной системы в дипольном приближении. Выписываются расчетные формулы и определяется методика расчета [15]. Во втором параграфе описывается метод решения матричных уравнений для амплитуды фотоионизации в ПСФ и ПЛП [15]. В третьем параграфе представлены методы решения уравнений для нахождения одноэлектронных волновых функций возбужденных состояний в рамках приближения замороженного остова [15]. Четвертый параграф главы посвящен представлению и обсуждению результатов, полученных с помощью описанных выше методов.

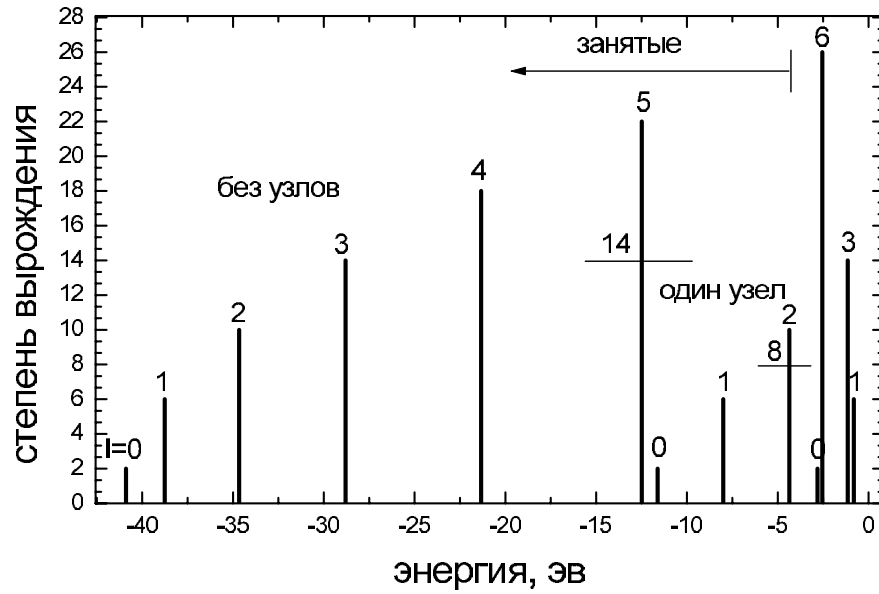


Рис. 1: Схема расположения и значения одноэлектронных энергий валентных электронов C_{20} . Цифры над столбиками - значения углового момента l состояний. Цифрами 14 (для внешнего безузлового состояния) и 8 (для внешнего одноузлового состояния) обозначены числа заполнения не до конца заполненных состояний. Остальные состояния заполнены полностью.

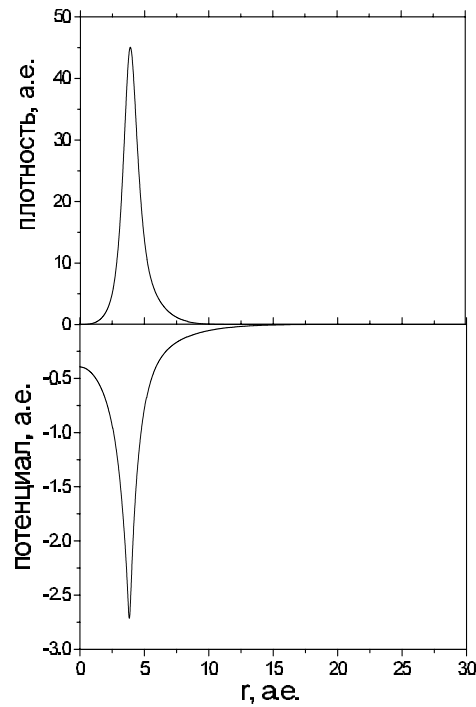


Рис. 2: Полная электронная плотность и самосогласованный потенциал фуллерена C_{20} , рассчитанные в приближении локальной плотности.

На рисунке 3 представлены полное сечение фотоионизации молекулы фуллерена C_{60} с учетом многоэлектронных корреляций, полученное методом ПСФ и ПЛП, и экспериментальное сечение из работы [1]. В соответствии с обстоятельствами, указанными в третьем параграфе диссертации, сечение, полученное в ПСФ и ПЛП, сдвинуто по шкале энергий в сторону больших энергий фотонов на величину $I_p^{exp} - I_p$, где $I_p^{exp} = 7.6$ эВ - экспериментальное значение потенциала ионизации C_{60} [1], $I_p = 2.88$ эВ - расчет в ПЛП. Главными особенностями сечения фотоионизации являются два резонанса: первый - припороговый, второй с центром ~ 20 эВ и шириной ~ 10 эВ. Расчет сечения фотоионизации C_{60} носил тестовый характер для проверки метода расчета.

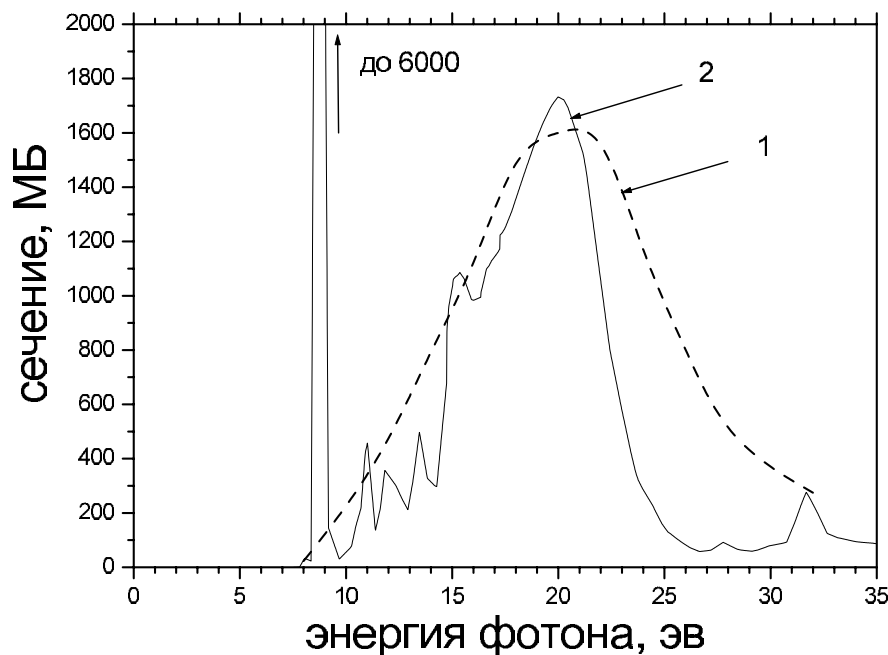


Рис. 3: Полное сечение фотоионизации C_{60} . 1 - экспериментальные данные [1], 2 - расчет в ПСФ и ПЛП.

На рисунке 4 представлено полное сечение фотоионизации молекулы фуллерена C_{20} с учетом многоэлектронных корреляций, полученное методом ПСФ и ПЛП. По аналогии с C_{60} сечение фотоионизации C_{20} , полученное в ПСФ и ПЛП, сдвинуто по шкале энергий в сторону больших энергий фотонов на величину $I_p^{LCAO} - I_p$, где $I_p^{LCAO} = 6.939$ эВ - результат квантово-химического расчета [7], $I_p = 4.362$ эВ - расчет в ПЛП.

Предсказываемые в данных расчетах припороговые резонансы соответствуют существованию метастабильных состояний C_{60}^- , C_{20}^- [7]. Абсолютная величина этих резонансов значительно переоценивается из-за ограниченной применимости приближения случайных фаз в околопороговой области энергий фотонов.

В рамках классической теории Ми для резонансной частоты колебаний в сферическом диэлектрическом слое с диэлектрической проницаемостью $\epsilon(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2}$ справедлива формула:

$$\omega_l = \sqrt{\frac{l(l+1)N_e}{(2l+1)R_{ful}^3}} \quad (4)$$

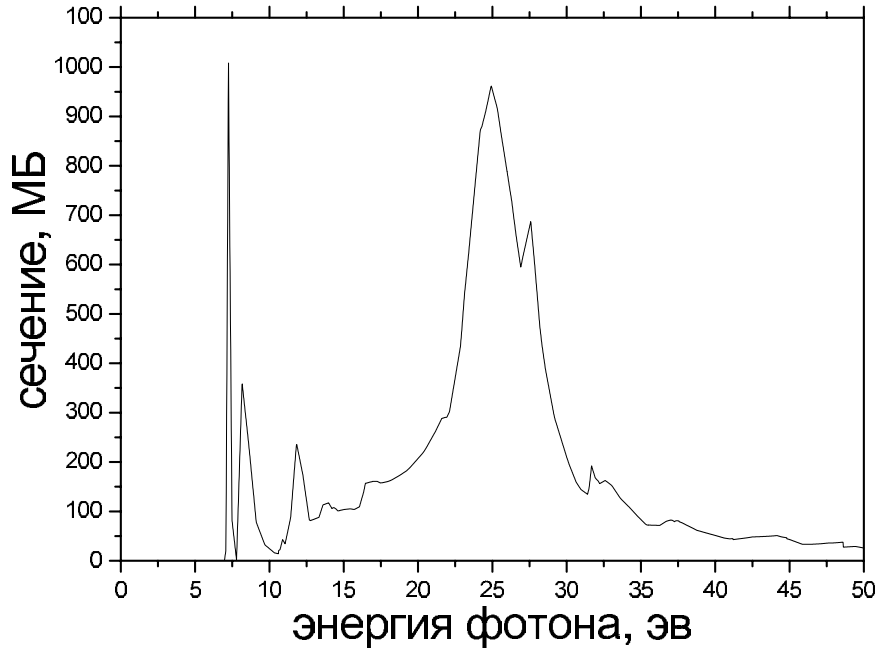


Рис. 4: Полное сечение фотоионизации C_{20} - расчет в ПСФ и ПЛП.

где $\omega_p = \sqrt{3N_e/\alpha}$ - частота плазмонных колебаний в объемном материале, ω_l - частота поверхностных плазмонных колебаний с угловым моментом l , N_e - число делокализованных электронов, α - статическая поляризуемость кластера. Для фуллерена C_{60} : $R = 6.6624$ а.е. [12], $N_e = 240$, для $l = 1$ (соответствует возбуждению дипольных плазмонных колебаний) - $\omega_1 = 20$ эВ. Аналогично, для фуллерена C_{20} получается: $R = 3.86$ а.е. [7], $N_e = 80$, для $l = 1$ (соответствует возбуждению дипольных плазмонных колебаний) - $\omega_1 = 27$ эВ. Из рисунков 3, 4 видно, что положения гигантских резонансов в нашем расчете полностью соответствует резонансным энергиям соответствующих дипольных поверхностных плазмонных колебаний.

Для небольшого числа переходов было обнаружено малое (один, реже два) количество дискретных уровней: в C_{60} - $3s, 4p, 5d, 4s, 6f, 8i, 5p$, в C_{20} - $3s, 7i, 5f, 4p$. Их существование можно приписать особой форме самосогласованного потенциала в фуллерене. А именно, в силу того, что электронная плотность сильно локализована в районе поверхности фуллерена, эффективный потенциал имеет острый минимум, отдаленный относительно начала координат на расстояние, равное радиусу фуллерена.

Парциальные сечения, полученные в ПСФ и ПЛП, имеют ярко выраженную резонансную форму. Как показали численные расчеты, основную роль в формировании гигантского резонанса играет взаимодействие между σ - и π - переходами. Формы парциальных сечений в одночастичном приближении и в ПСФ и ПЛП заметно отличаются. Более того, происходит значительное перераспределение сил осцилляторов. Например, для фуллерена C_{60} , если в одночастичном приближении основной вклад в правило сумм вносили силы осцилляторов: 22% - вклад непрерывного спектра, 78% - вклад сил осцилляторов, то в ПСФ и ПЛП - основной вклад вносит область непрерывного спектра - 75%. Все это говорит о сильной роли многоэлектронных корреляций в формировании

спектра.

Полные сечения фотоионизации молекул фуллеренов C_{60} и C_{20} , полученные с учетом многоэлектронных корреляций, имеют ярко выраженную резонансную форму. При этом условия возникновения резонансов в спектрах двух различных молекул одинаковые. Это говорит о том, что природа этих возбуждений в случае C_{60} и в случае C_{20} - одинакова.

В **четвертой** главе исследуется роль возбуждения объемных плазмонных колебаний в формировании спектра электронных потерь на металлических кластерах в диапазоне переданных энергий выше порога ионизации в рамках резонансного плазмонного приближения. Предложен метод расчета ширин плазмонных резонансов путем выделения основных механизмов, ответственных за распад данного коллективного возбуждения.

В первом параграфе представлены основные формулы для расчета амплитуды процесса неупругого рассеяния, дифференциальных сечений рассеяния. Кратко охарактеризован *ab-initio* метод расчета сечения неупругого рассеяния электронов на металлических кластерах. Во втором параграфе представлено резонансное плазмонное приближение. Используя малость межатомных расстояний по сравнению с радиусом кластера R можно в рамках этого приближения представить динамический отклик электронной системы на электрическое поле налетающей частицы в аналитическом виде:

$$\begin{aligned} \frac{d^2\sigma}{d\varepsilon'd\Omega} &= \frac{4p'R}{\pi pq^4} \sum_l (2l+1)^2 j_l^2(qR) \frac{\omega_l^2 \Delta\varepsilon \Gamma_{sl}}{(\Delta\varepsilon^2 - \omega_l^2)^2 + \Delta\varepsilon^2 \Gamma_{sl}^2} + \\ &+ \frac{2p'R^3}{\pi pq^2} \sum_l (2l+1) \frac{\omega_p^2 \Delta\varepsilon \Gamma_{vl}}{(\Delta\varepsilon^2 - \omega_p^2)^2 + \Delta\varepsilon^2 \Gamma_{vl}^2} \times \\ &\times \left(j_l^2(qR) - j_{l+1}(qR)j_{l-1}(qR) - \frac{2}{qR} j_{l+1}(qR)j_l(qR) \right) \end{aligned} \quad (5)$$

Полученное сечение определяется только коллективными электронными возбуждениями. Первый и второй члены в (5) описывают вклады поверхностных и, соответственно, объемных плазмонных колебаний. В третьем параграфе описывается новый эффективный метод расчета параметров затухания плазмонных колебаний на основе учета основных механизмов, ответственных за распад этих коллективных возбуждений.

Выражение для параметра затухания поверхностных плазмонов:

$$\Gamma_{sl} = \frac{4\pi\omega_l}{(2l+1)R} \sum_{\nu\mu} |\langle \psi_\mu | \varphi_{sl}(\mathbf{r}) | \psi_\nu \rangle|^2 \delta(\omega_l - \varepsilon_\mu + \varepsilon_\nu), \quad (6)$$

где $\varphi_{sl}(\mathbf{r}) = \left((r/R)^l \theta(R-r) + (R/r)^{(l+1)} \theta(r-R) \right) Y_{lm}(\mathbf{n})$.

Для случая объемных плазмонных колебаний получено:

$$\Gamma_{vl} = \frac{8\pi^2\omega_p}{q^2 R^3} \frac{\sum_\nu \int |\langle \psi_\mu | \varphi_{vl}(\mathbf{r}) | \psi_\nu \rangle|^2 \delta(\omega_p - \varepsilon_\mu + \varepsilon_\nu) d\mu}{\left(j_l^2(qR) - j_{l+1}(qR)j_{l-1}(qR) - \frac{2}{qR} j_{l+1}(qR)j_l(qR) \right)}, \quad (7)$$

где $\varphi_{vl}(\mathbf{r}) = \left(j_l(qr) - j_l(qR)(r/R)^l \right) \theta(R-r) Y_{lm}(\mathbf{n})$. Здесь суммирование выполнено по всем занятым электронным состояниям ν и интегрирование ведется по состояниям непрерывного спектра μ .

В четвертом параграфе производится анализ конкретных результатов, полученных для процессов рассеяния быстрых электронов на кластерах Na_{40} . Отмечается: существенное различие механизмов затухания поверхностных и объемных плазменных колебаний; на рисунке 5 вклады возбуждения поверхностных и объемных плазменных колебаний представлены тире и точками, соответственно. Также представлена их сумма. Сравнение результатов двух различных аппроксимаций подтверждает предположение о том, что особенность спектра электронных потерь в районе $\Delta\varepsilon \sim 5$ эВ связана с возбуждением объемных плазменных колебаний. Также, рисунок 5 демонстрирует, что коллективные возбуждения играют определяющую роль в формировании общей структуры спектра.

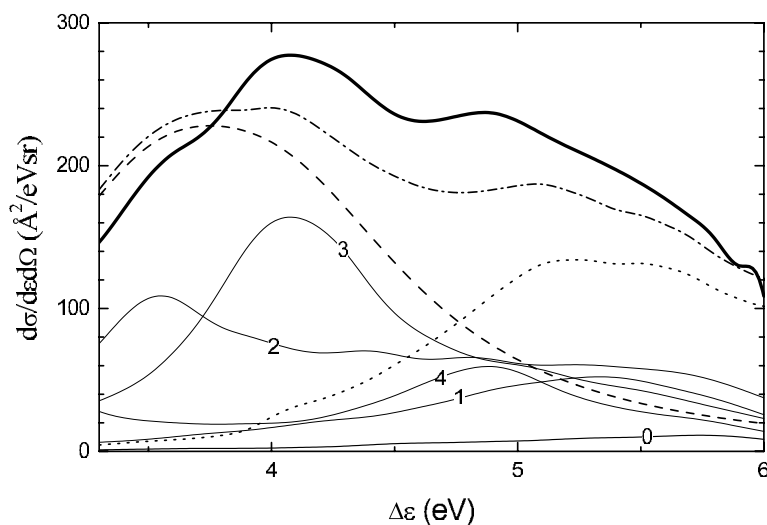


Рис. 5: Дифференциальное сечение неупругого рассеяния $d\sigma/d\varepsilon'd\Omega$ как функция переданной энергии $\Delta\varepsilon$. Энергия налетающего электрона - 50 эВ, угол рассеяния - $\theta = 9(deg)$. Сплошные линии - результаты расчетов в приближении случайных фаз с обменом, частичные вклады обозначены цифрами на линиях, штриховая линия - вклад поверхностных плазмонов, точками обозначен вклад объемных плазмонов.

В **заключении** сформулированы основные выводы диссертации.

ОСНОВНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ И ВЫВОДЫ

1. Предложен и реализован метод расчета электронной структуры фуллеренов на основе приближения локальной плотности в рамках сферической модели "желе" слоя. Получена электронная структура фуллеренов C_{60} и C_{20} .

2. Предложен и реализован метод расчета сечений фотоионизации фуллеренов с учетом многоэлектронных корреляций, объединяющий приближения случайных фаз и локальной плотности. Метод реализован в виде пакета программ для автоматизации расчетов.

3. Впервые получено сечение фотоионизации фуллерена C_{20} в широкой области энергий фотонов с учетом многоэлектронных корреляций. Сечение получено с учетом кор-

реляций во всех переходах. Для проверки метода расчета выполнен аналогичный расчет для хорошо исследованного фуллерена C_{60} .

4. Обнаружен гигантский резонанс в спектре C_{20} . Исследованы условия возникновения и механизм, ответственный за возникновение гигантского резонанса - возбуждение поверхностных плазмонных колебаний. Отмечена определяющая роль коллективных возбуждений в формировании спектра фотоионизации C_{20} .

5. Предложен механизм затухания объемных плазмонных колебаний, возникающих в процессах неупругого рассеяния быстрых электронов на металлических кластерах - одноэлектронная ионизация. Предложен и реализован метод вычисления параметров затухания резонансных плазмонных колебаний на основе выделения основных механизмов, ответственных за распад коллективных состояний. Проведены конкретные расчеты на примере кластера Na_{40} .

6. Показано, что одноэлектронная ионизация через промежуточное образование объемных плазмонных колебаний - основной канал электронных потерь в определенной области энергий и угла рассеяния. Получены кинематические условия, при которых доминирующую роль в формировании спектра электронных потерь играют коллективные возбуждения.

Основные результаты диссертации опубликованы в работах:

1. L.G.Gerchikov, A.N.Ipatov, R.G.Polozkov and A.V.Solovyov - **Surface and volume plasmon excitations in electron inelastic scattering on metal clusters**, Phys. Rev. A, **62**, 043201 (2000)
2. L.G.Gerchikov, A.N.Ipatov, R.G.Polozkov and A.V.Solovyov 1998, **Collective effects in electron impact ionization of metallic clusters**, VI European Conference on Atomic and Molecular Physics, Abstracts of contributed papers, Siena, Italy 1998, p.9-13
3. V.K.Ivanov, A.N. Ipatov, G.Yu.Kashenock, R.G.Polozkov and A.V.Solovyov 2001, **Photoionization from C_{60} fullerene within the LDA simple spherical model**, XXII International Conference on Photonic, Electronic and Atomic Collisions, Santa-Fe, New Mexico, USA July 18-24 2001, Program and Abstracts, Fr112, p.620
4. V.K.Ivanov, G.Yu.Kashenock, R.G.Polozkov and A.V.Solovyov 2001, **LDA model for spherical jellium clusters**, XXII International Conference on Photonic, Electronic and Atomic Collisions, Santa-Fe, New Mexico, USA July 18-24 2001, Program and Abstracts, Mo014, p.79
5. L.G.Gerchikov, A.N.Ipatov, R.G.Polozkov and A.V.Solovyov 1998, **Collective effects in impact ionization of metal clusters**, XXI International Conference on Photonic, Electronic and Atomic Collisions, Abstracts of contributed papers, Sendai, Japan, 22-27 July 1999, p.687

6. V.K.Ivanov, G.Yu.Kashenock, R.G.Polozkov and A.V.Solovyov 2001, **Photoionization cross sections of the fullerenes C_{20} and C_{60} calculated in a simple spherical model**, J.Phys.B: At.Mol.Opt.Phys., **34** L669
7. V.K. Ivanov, G.Yu.Kashenok,R.G.Polozkov and A.V.Solovyov 2000, **LDA spherical jellium model for a fullerene C_{60} molecule**, The Fourth International Workshop on New Approaches to High-Tech Materials: Nondestructive Testing and Computer Simulations in Materials Science and Engineering (NDTCS-2000) Preprints and Program, Ed. A. Melker; Proceedings of SPAS, **4** B4
8. L.G.Gerchikov, A.N.Ipatov, R.G.Polozkov and A.V.Solovyov 2000, **Surface and volume plasmon excitation in electron inelastic scattering on metal clusters**, The Fourth International Workshop on New Approaches to High-Tech Materials: Nondestructive Testing and Computer Simulations in Materials Science and Engineering (NDTCS-2000) Preprints and Program, Ed. A. Melker; Proceedings of SPAS, **4** B8
9. V.K.Ivanov, G.Yu.Kashenock, R.G.Polozkov and A.V.Solovyov 2001, **LDA model: application to spherical jellium clusters**, VUV XIII International Conference on Vacuum Ultraviolet Radiation Physics, Trieste, Italy July 23-27 2001, Program and Abstracts, Th017
10. L.G.Gerchikov, A.N.Ipatov, R.G.Polozkov and A.V.Solovyov 1998, **Plasmon resonance approximation for the electron inelastic scattering on metal clusters**, VII European Conference on Atomic and Molecular Physics, Abstracts of contributed papers, Berlin, Germany 2-6 April 2001, p.44 A1.18
11. V.K. Ivanov, G.Yu. Kashenock, R.G. Polozkov and A.V. Solovyov 2001 **LDA model for spherical jellium clusters**, The 7th European Conference on Atomic and Molecular Physics ECAMP VII, Abstracts, Berlin, Germany, 2-6 April, p.44 A 1.17
12. V.K. Ivanov, G.Yu.Kashenok,R.G.Polozkov and A.V.Solovyov 2001, **LDA spherical jellium model for C_{60} molecule as a basis for a many body theory of photoionization and electron scattering**, The Fourth International Workshop on New Approaches to High-Tech Materials: Nondestructive Testing and Computer Simulations in Materials Science and Engineering (NDTCS-2000), Ed. A. Melker; Proceedings of SPIE, **4348** 98
13. V.Ivanov, G.Kashenock,R.Polozkov and A.Solovyov 2001, **Photoionization cross sections of the fullerenes C_{60} and C_{20}** , Sixth European Workshop on Quantum Systems in Chemistry and Physics QSCP-VI, April 19-24, Sofia, Bulgaria, Program and Abstracts, PI.23 p.49

Цитируемая литература

- [1] Hertel I V, Steger H, de Vries J, Wesser B, Menzel C, Kamke B and Kamke W 1992 *Phys. Rev. Lett.*, **68** 784
- [2] Bertsch G F, Bulgac A, Tomanek D and Wang Y 1991 *Phys. Rev. Lett.*, **67** 2690
- [3] Yabana K and Bertsch G F 1993 *Physica Scripta*, **48** 633
- [4] Ivanov V K, Ipatov A N, Kharchenko V A, Zhizhin M L 1994 *Phys.Rev.* **A50** 1459
- [5] Gerchikov L G, Ipatov A N, Solov'yov A V and Greiner W 1998, *J.Phys.B: At. Mol. Phys.* **31** 3065
- [6] Prizbach H, Weller A, Landenberger P, Wahl F, Worth J, Scott L T, Gelmont M, Olevano D and Issendorff B V 2000 *Nature*, **407** 60
- [7] Gianturco F A, G Yu Kashenock, Lucchese R R and Sanna N 2001 *J. Chem. Phys.*, in press
- [8] М.Г. Веселов, Л.Н. Лабзовский, "Теория атома: строение электронных оболочек"1986, Наука, Москва
- [9] Stott M J and Zaremba E 1980 *Phys. Rev. A*, **21** 12
- [10] Д. Таулес, "Квантовая механика систем многих частиц"1963, Издательство иностранной литературы,Москва
- [11] Gunnarsson O and Lundqvist B I 1976 *Phys. Rev. B*, **13** 4274
- [12] R.C. Haddon, L.E. Brus and Krishnan Raghavachari 1986 *Chem. Phys. Lett.*, **125** 459
- [13] J.L. Martins, N. Troullier and J.H. Weaver 1991 *Chem. Phys. Lett.*, **180** 457
- [14] Martin J M L, El-Yazal J and Francois J-P 1996 *Chem. Phys. Lett.*, **248** 345
- [15] М.Я. Амусья, Л.В. Чернышева, "Автоматизированная система исследования атомов"1983, Наука, Ленинград