

(e, 2e)电子动量谱学

Electron Momentum Spectroscopy

一、简介

(e,2e)电子动量谱学是一种独特的研究原子、分子结构的手段，它不仅可以获得原子分子的电离能谱，而且是唯一一种可以在电子结构水平上获得特定轨道动量空间电子密度分布的实验技术 (通常称为轨道成像 Orbital Imaging)，尤其对与分子的化学反应活性有着密切的关系价壳层低动量区的电子密度分布很敏感；实验得到的电子动量谱可以直接评估量子化学波函数的质量，研究电子关联效应、相对论效应、分子干涉效应、John-Teller 效应，以及分子内超共轭相互作用等。正因为如此，电子动量谱学诞生以来，一直倍受量子化学家的青睐，形成了所谓的动量空间化学(Momentum Space Chemistry)这一独特领域。

二、基本原理

电子动量谱学的基本物理过程是动力学完全的电子碰撞单电离，即(e,2e)反应，如图 1 所示。

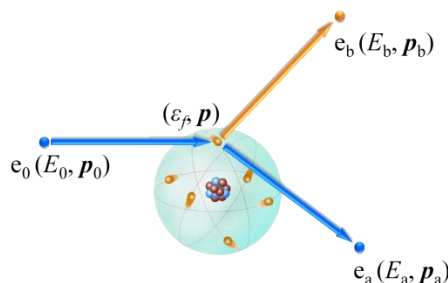


图 1. (e, 2e) 反应示意图

在两体碰撞近似下，根据能、动量守恒定律，有：

$$\text{轨道电子束缚能: } \varepsilon = E_0 - E_a - E_b$$

$$\text{轨道电子动量: } \mathbf{p} = \mathbf{p}_a + \mathbf{p}_b - \mathbf{p}_0$$

在平面波冲量近似(PWIA)和靶 Hartree-Fock 或靶 Kohn-Sham 近似下： $\sigma \propto \int d\Omega |\phi_q(\mathbf{p})|^2$

三、自主研制的实验装置

1. 能量多道的(e,2e)电子动量谱仪：采用不共面对称几何条件，应用 2 个带有一维位置灵敏

探测器的半球型电子能量分析器对出射电子进行一定能量范围的同时测量，单个方位角的逐点扫描测量。典型实验参数：入射能量： $E_0 = 1200 +$ 束缚能(eV)，能量和动量分辨分别为 1.5 eV (FWHM) 和 0.15 a.u.。

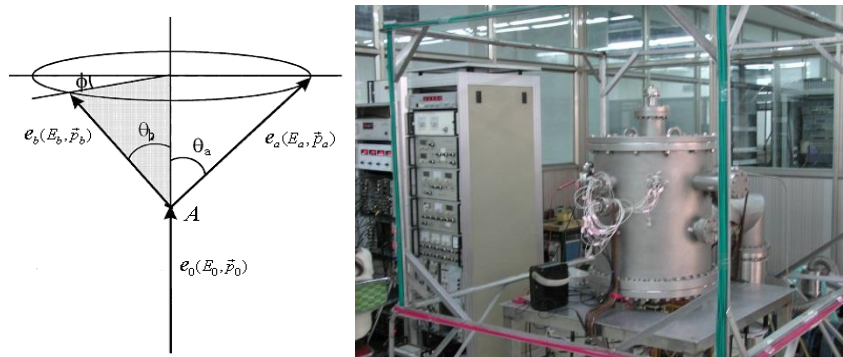


图 2. 不共面对称条件和能量多道的(e,2e)电子动量谱仪

2. 高能量分辨(e,2e)谱仪：采用不共面不对称几何条件，应用一个带有两维位置灵敏探测器的半球型分析器对散射电子的能量和角度(即动量)进行大范围测量，另一个带有一维位置灵敏探测器的半球型电子能量分析器对电离的电子进行大范围能量测量。在谱仪探测效率提高了 2 个量级的基础上，对入射电子进行单色化，进一步提高能量分辨率。典型的实验参数：入射能量： $E_0 = 2500 +$ 束缚能(eV)，能量和动量分辨分别为 0.5 eV (FWHM) 和 0.1 a.u.。

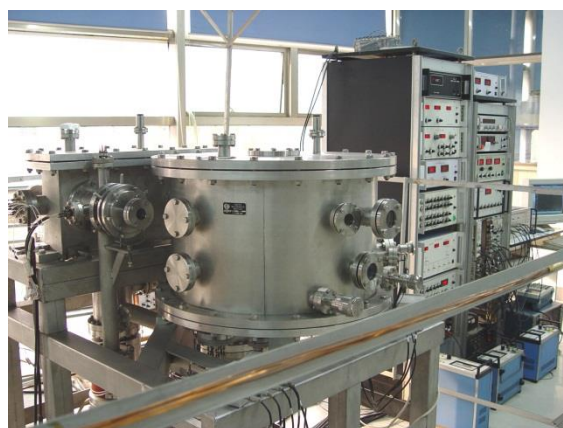
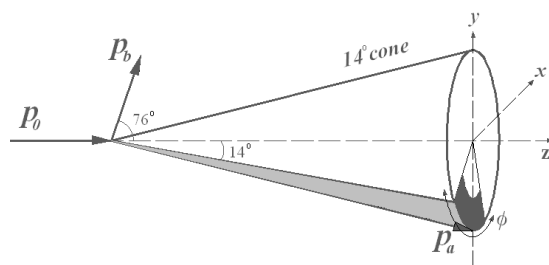


图 3. 不共面不对称条件和高能量分辨(e,2e)谱仪

3. 2π 全角度探测的(e,2e)电子动量谱仪：采用不共面不对称几何条件，应用一个鼓型电子分析器和一个双半圆楔条型二维位置灵敏探测器对两个出射电子进行 2π 全角度(即动量)的测量，探测效率提高了 4 个量级。典型的实验参数：入射能量： $E_0 = 2500 + \text{束缚能(eV)}$ ，能量和动量分辨分别为 0.5 eV 和 0.1 a.u. (FWHM)。

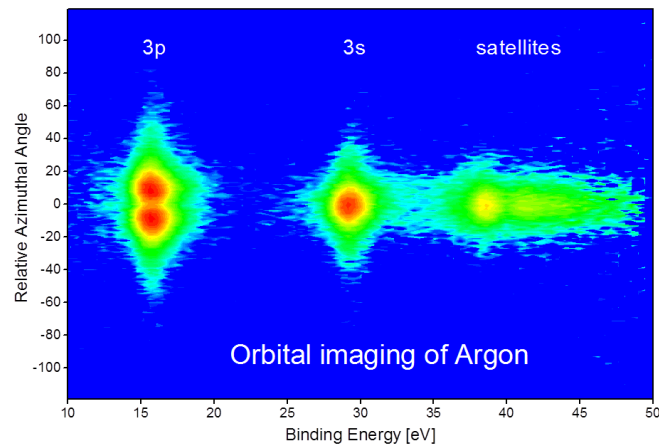
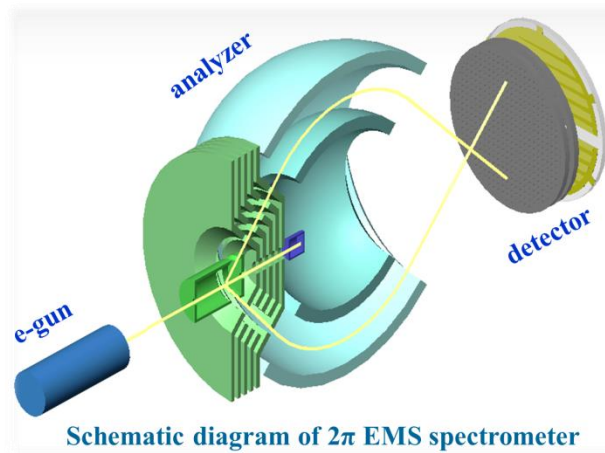


图 4. 全角度(e,2e)电子动量谱仪

四、近期研究兴趣和进展

1. 分子干涉效应

Phys. Rev. Lett., 112, 023204 (2014)

Phys. Rev. Lett. 108, 173201 (2012)

2. 分子构象异构效应

J. Phys. Chem. A 118, 4484 (2014)

J. Phys. Chem. A 118, 11780 (2014)

3. 电子关联效应

J. Chem. Phys. 136, 094306 (2012)

J. Chem. Phys. 133, 124303 (2010)

4. 分子内相互作用

J. Chem. Phys. 139, 054302 (2009)

Chem. Phys. Lett. 472, 19 (2009)

五、研究亮点

利用自主研制的高分辨(e, 2e)谱仪首次实现了振动分辨的电子碰撞电离三重微分截面的实验测量，并获得了 H₂ 分子振动分辨的电子动量分布。通过振动态的选择实现了分子核间距的选择，观测到了不同核间距下的分子杨氏干涉效应。研究结果发表在国际著名期刊物理评论快报上 ([Phys. Rev. Lett. 112, 023204 \(2014\)](#))。

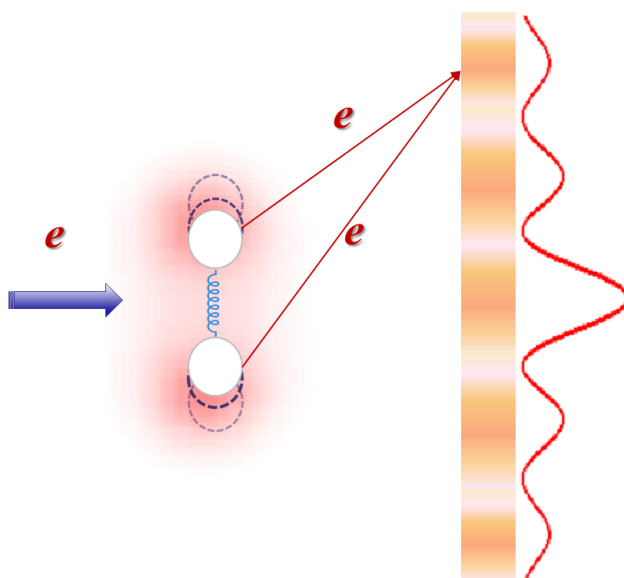


图 5. 分子干涉概念图

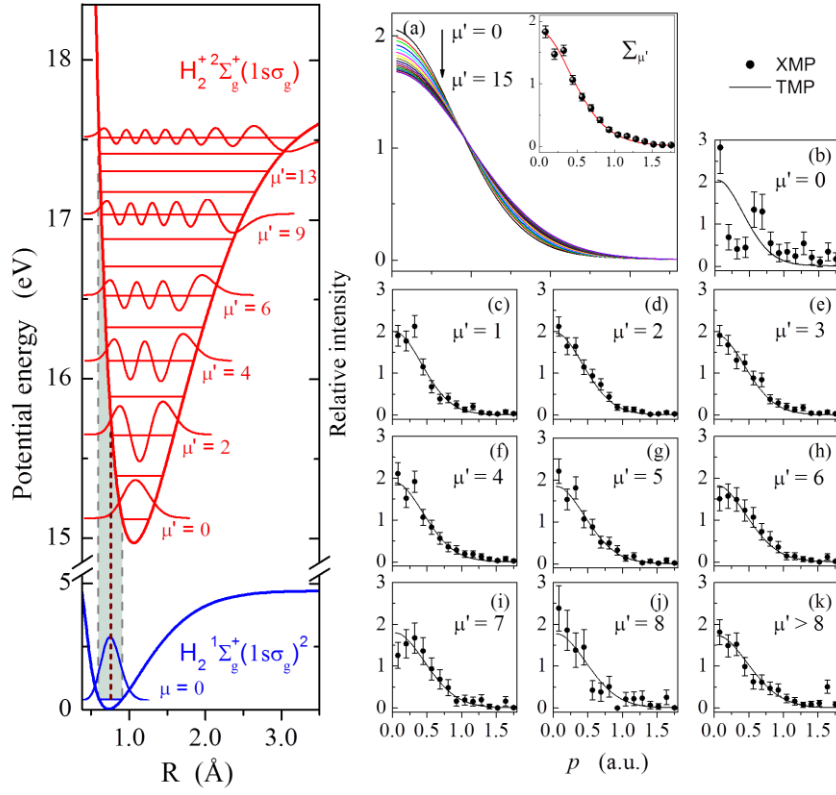


图 6. H_2 分子的势能曲线和不同振动态对应的电子动量分布

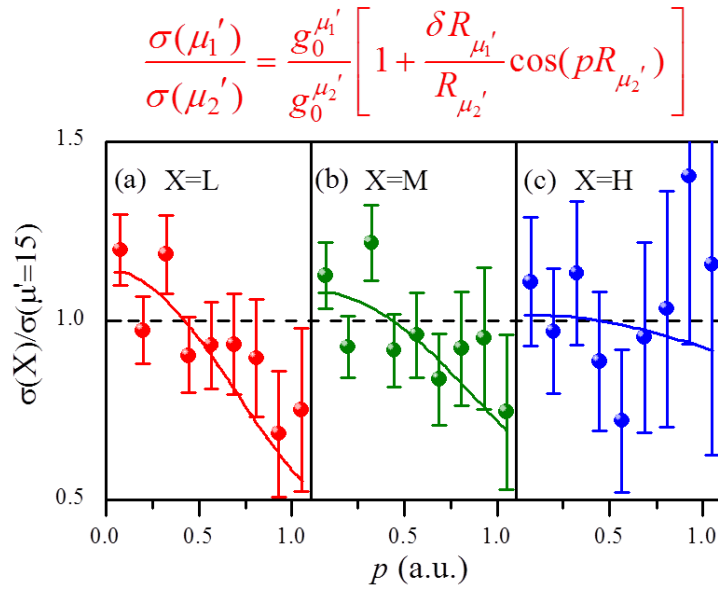


图 7. H_2 分子不同振动态（核间距）对应的干涉条纹

六、时间分辨的电子动量谱仪（在建，国家基金委仪器研制项目）

利用 pump-probe 技术，将激光泵浦分子激发和 $(e, 2e)$ 分子轨道成像技术相结合，拍摄分子激发态及其随时间演化的动态图像，探究分子激发态及其动力学过程。

