

## ФИЗИКА АТОМНОГО ЯДРА И ЭЛЕМЕНТАРНЫХ ЧАСТИЦ

**Диагностика инкапсулированных в фуллерен атомов поляризационным излучением ускоренных электронов**В. К. Гришин<sup>1,a</sup>, Д. П. Никитин<sup>2</sup><sup>1</sup> Научно-исследовательский институт ядерной физики имени Д. В. Скобельцына (НИИЯФ МГУ).<sup>2</sup> Московский государственный университет имени М. В. Ломоносова, физический факультет, кафедра общей ядерной физики.

Россия, 119991, Москва, Ленинские горы, д. 1, стр. 2.

E-mail: <sup>a</sup>vkgris@mail.ru

Статья поступила 16.12.2011, подписана в печать 02.02.2012.

Показано, что поляризационное тормозное излучение (ПТИ), которое возникает при когерентном рассеянии электромагнитного поля быстрой заряженной частицы на атомных электронах и резонансно реагирует на изменения плотности вещества, позволяет проводить диагностику состояния атомов, инкапсулированных в фуллерен. Путем моделирования, сравнивая спектры «пустого» фуллерена и фуллерена с инкапсулированным атомом и используя разностное фитирование, удается обнаружить сжатие или расширение электронной оболочки инкапсулированного в фуллерен атома. Расчеты выполнены для модельного представления эндоэдрального соединения  $P@C_{60}$ .

*Ключевые слова:* когерентное поляризационное излучение, фуллерен, инкапсулированный атом, эндоэдральное соединение, фитирование.

УДК: 539.12. PACS: 32.30.Rj, 81.05.ub.

**Введение**

В последнее время в связи с огромным интересом к наноструктурам серьезное внимание уделяется исследованиям сложных нанообъектов. В частности, для предполагаемого использования в медицине исследуются фуллерены с инкапсулированными в них атомарными и молекулярными соединениями. Однако следует отметить, что инкапсулированные в фуллеренах атомы, испытывая воздействие внешней оболочки, деформируются, сжимаясь или расширяясь. При этом относительная деформация может составлять от долей до десятков и более процентов [1–4].

Показательно, что величину деформации можно оценить, анализируя спектры поляризационного тормозного излучения (ПТИ) ускоренных электронов, возникающего при рассеянии собственного поля быстрого заряда на атомных электронах вещества. Не удивительно, что ПТИ весьма чувствительно к характеру распределения электронов в веществе, что позволяет эффективно исследовать эти распределения.

Следует предположить, что в рассматриваемом случае спектры ПТИ имеют сложный характер и состоят из больших и малых спектральных сигналов, которые являются когерентным вкладом в ПТИ электронов фуллерена и инкапсулированного атома. Однако в силу различных размеров электронных оболочек фуллерена и атома, большие (от фуллерена) и меньшие (от атома) сигналы должны располагаться на различных участках суммарного частотного спектра (когерентность излучения возникает, если длина волны излучения больше размера нанообъекта). Это позволяет разностным методом выделить наиболее интересную информацию и оценить размеры «фигурантов». Дальнейшее уточнение результатов достигается путем оптимального фитирования, используя модельные аналитические приближения.

Подобная методика описывается ниже. Приводятся примеры оценок для эндоэдрального соединения  $P@C_{60}$ .

**1. Аналитические оценки.  
Метод виртуальных волн**

ПТИ может рассматриваться как процесс рассеяния собственного электромагнитного поля быстрого электрона (или потока виртуальных фотонов) на электронах среды [5–7]. Как и в обычном рассеянии реальных фотонов, ПТИ может быть некогерентным и когерентным, когда соответственно процесс рассеяния происходит независимо на отдельных электронах вещества либо охватывает группу электронов среды. В последнем случае, наблюдаемом при длинах волн фотонов, больших межэлектронного расстояния в среде, интенсивность ПТИ резко возрастает. Именно этот процесс и представляет наибольший практический интерес. Когерентное ПТИ далее рассматривается при энергиях излучаемых фотонов в диапазоне от одного до десятков килоэлектронвольт, когда электроны среды можно считать свободными и вместе с тем участниками когерентного процесса излучения.

Рассматривается следующая схема. Быстрый электрон со скоростью  $v$  падает на мишень. Далее  $e$  и  $\gamma$  — заряд и релятивистский фактор электрона. Излучение происходит под углом  $\psi$  по отношению к скорости  $v$ .

Электрическое поле быстрого электрона, создающего в пространстве плотность заряда  $\rho = e\delta(\mathbf{r} - \mathbf{v}t)$ , традиционно представляется как поток плоских волн. Однако здесь целесообразно использовать описание поля как лучевого волнового потока с указанием координатной зависимости в поперечной плоскости:

$$\mathbf{E}(t, \mathbf{r}_\perp, z) = \int \mathbf{E}_\omega(\mathbf{r}_\perp) \exp(i(k_z z - \omega t)) d\omega dk_z, \quad (1)$$

где  $\mathbf{r} = (\mathbf{r}_\perp, z)$ ; величина  $r_\perp$  отсчитывается от траектории электрона. Используя соотношение для электрического поля быстрого электрона (см., например, [8, § 18.5]), получаем для фурье-составляющей:

$$\mathbf{E}_\omega(\mathbf{r}_\perp, z) = \left( \mathbf{e}_\perp \frac{e\zeta K_1(\zeta)}{\pi\varepsilon(\omega)v r_\perp} + \mathbf{e}_z \frac{e\zeta K_0(\zeta)}{\pi\varepsilon(\omega)v\gamma r_\perp} \right) \exp(ik_z z), \quad (2)$$

где

$$\zeta = \frac{\omega r_\perp}{v\gamma},$$

$K_{0,1}$  — функции Макдональда. Здесь подразумевается, что спектральные частоты ПТИ являются достаточно высокими, так что диэлектрический показатель рассматриваемой среды близок к единице. Экспонента в правой части соотношения (2) указывает, что волновой поток распространяется вдоль траектории электрона, имеет волновой вектор  $k_z = \omega/v$  и скорость  $v$ .

В описании (2) четко прослеживаются размеры «центрального пятна» виртуального потока, которое определяется соотношением  $\zeta \leq 1$ , поскольку при больших значениях указанного аргумента величины  $K_{0,1} \rightarrow 0$ . Радиус пятна

$$R_s \simeq \frac{\beta\gamma c}{\omega} \rightarrow \frac{\beta\gamma\lambda}{2\pi}, \quad (3)$$

где  $\beta = v/c$ ,  $\lambda$  — длина волны. То же соотношение определяет ширину спектра виртуальных частот и ее изменение по мере удаления от траектории быстрого электрона.

Характерно, что спектры для продольной и поперечной составляющей поля различаются как по частотной зависимости, так и по интенсивности. Поскольку  $1/\gamma \ll 1$  даже для умеренно релятивистских электронов, вклад продольной составляющей поля в (2) в целом является второстепенным, исключая лишь излучение вблизи направления, перпендикулярного скорости  $\mathbf{v}$ .

## 2. Спектрально-угловое распределение ПТИ на фуллерене с инкапсулированным атомом

Рассмотрим достаточно простую схему. Быстрый электрон и сопутствующий поток виртуальных фотонов проходят через центры фуллерена и сцентрированного с ним инкапсулированного атома. В этом случае целесообразно воспользоваться сферической системой координат. Следуя известным процедурам [9], можно получить спектрально-угловую интенсивность излучаемой энергии ПТИ ускоренного электрона, падающего на фуллерен:

$$\frac{d^2W}{d\omega d\Omega} = \frac{e^4}{8\pi m^2 c^3} \left| \sum_{s=1}^{\infty} [\mathbf{n}' \mathbf{E}_{\omega,s}] \exp(-i\mathbf{q}_\omega \mathbf{r}'_s) \right|^2, \quad (4)$$

где  $d\Omega$  — элемент телесного угла, вектор  $\mathbf{q}_\omega = \mathbf{k}'_\omega - \mathbf{k}_\omega$ ,  $\mathbf{k}'_\omega$  — волновой вектор излучаемых фотонов, а  $\mathbf{r}'_s$  — радиус-векторы электронов вещества.

Векторное произведение  $[\mathbf{n}' \mathbf{E}_{\omega,s}]$  вычисляется в соответствии с соотношением (2), поэтому электроны среды имеют различные значения поперечных радиусов, т. е. прицельных параметров  $r_{\perp,s}$ ; в выбранной системе координат  $r_{\perp,s}$  отсчитывается от траектории электрона.

Суммирование в (4) распространяется на все электроны вещества (напомним, что они считаются свобод-

ными, поскольку энергии рассеянных фотонов предполагаются большими, чем энергии связи электронов в веществе), охватываемые виртуальным потоком. Здесь возможны когерентные и некогерентные вклады электронов среды в суммарное излучение. Действительно, сумма в (4), представляющая произведение двух комплексно сопряженных сумм с индексами  $s$  и  $s'$ , распадается на две:

$$\left| \sum_{s=1}^{\infty} \right|^2 \rightarrow \left( \sum_{s=1}^{\infty} \right) \left( \sum_{s'=1}^{\infty} \right)^* \rightarrow \sum_{s \neq s'}^{\infty} + \sum_{s=s'}^{\infty}. \quad (5)$$

Соответственно две последние суммы представляют вклады когерентного и некогерентного излучений. Заметим, что при прочих равных условиях вклад когерентной составляющей превосходит примерно в  $Z_{\text{eff}}$  раз долю некогерентной части, где  $Z_{\text{eff}}$  — количество электронов вещества, реально «охватываемое» полем быстрого заряда.

Далее, используя правило Эйлера суммирования рядов [10], получаем в первом приближении спектрально-угловую плотность когерентного излучения, направленного под углом  $\psi$  по отношению к скорости быстрого электрона [11]:

$$\frac{d^2W_{\text{coh}}}{d\omega d\Omega} = \text{const} |F_{\text{coh}}|^2, \quad (6)$$

где фактор

$$F_{\text{coh}} = \int_0^1 \int_0^1 J_1(q_1 r \sqrt{1-t^2}) \cos(q_2 r t) \eta K_1(\eta r \sqrt{1-t^2}) \times \\ \times \rho^2 dt dr \cos \psi, \quad (7)$$

при  $J_1$  — функции Бесселя первого порядка,  $\eta = E_\omega/2\beta\gamma$ ,  $q_1 = E_\omega \sin \psi/2$ ,  $q_2 = E_\omega(1/\beta - \cos \psi)/2$ ,  $E_\omega = \hbar\omega$  — энергия фотонов в килоэлектронвольтах, размерность  $q_{1,2}$  — в  $1/\text{Å}$ ,  $\rho(\mathbf{r})$  — плотность электронов рассматриваемого объекта,

$$\text{const} = \frac{e^6}{2\pi m^2 c^3 v^2}. \quad (8)$$

## 3. Численные оценки

При моделировании использовались оценки на примере прототипа эндодрального соединения  $\text{P}@C_{60}$ . Функции  $\rho r^2$  задавались после аналитической аппроксимации. Распределение электронной плотности фуллерена описывалось функцией (все расстояния указаны в  $\text{Å}$ )

$$\rho_f r^2 = r^2 \exp\left(-\frac{(r - R_f)^2}{a_0^2}\right), \quad (9)$$

где  $R_f = 3.5$ ,  $a_0 = 0.5$ .

Атом P в естественном состоянии описывался с учетом параметров модели Томаса–Ферми [9]. Средний радиус электронной оболочки

$$R_{\text{at}} = \frac{a_0}{Z^{1/3}}, \quad (10)$$

где  $Z$  — заряд атома (в единицах заряда электрона), а электронное распределение описывалось как

$$\rho_{\text{at}} r^2 = A r^2 \exp(-\alpha r). \quad (11)$$

Согласно (10), средний радиус атома  $R_{at} = 3/\alpha$ , что в итоге определяет параметры распределения (11), так что  $A = Za^3/2$ ,  $\alpha = 14.6$  при  $Z = 15$ .

Атом в сжатом и расширенном состояниях описывался функциями, аналогичными (11). Для сжатого состояния

$$\rho_a r^2 = A_1 r^2 \exp(-br) \quad (12)$$

при  $A_1 = Zb^3/2$ ,  $b > \alpha$ . Аналогичное описание использовалось для расширенного состояния с параметром  $b < \alpha$ .

На рис. 1 приведены пространственные распределения электронной плотности атома фосфора в различных состояниях: свободный атом, сжатый атом, расширенный атом и фуллерен  $C_{60}$ .

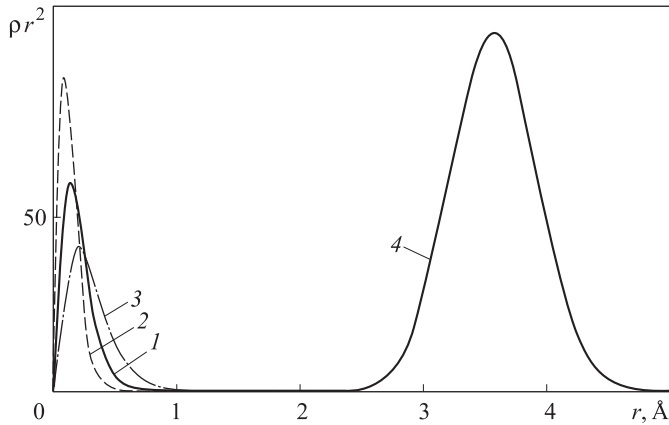


Рис. 1. Сравнительное сопоставление пространственного распределения электронной плотности (параметр  $\rho r^2$ ) атома фосфора в различных состояниях: 1 — свободный атом, 2 — сжатый атом, 3 — расширенный атом, 4 — фуллерен  $C_{60}$  (параметр  $\rho r^2$  на рисунке уменьшен в 4 раза). Площадь пиков распределений соответствует заряду  $Z = 15$  для атомов и  $Z = 360/4$  для фуллерена

Далее при моделировании необходимо было учесть, что в реальном эксперименте основную информационную ценность несут лишь два измерения: спектры излучения от «пустого» фуллерена и фуллерена с инкапсулированным атомом.

Обозначим эти спектры (с точностью до константы (8)) как  $F_f^2$ , соответствующий сигналу от фуллерена, и  $F_S^2$ , соответствующий сигналу от фуллерена с инкапсулированным атомом. Так как фактор  $F_S^2$  вычисляется для суммарной электронной плотности, то этот фактор можно представить как

$$F_S^2 = (F_f + F_{at})^2, \quad (13)$$

где  $F_{at}$  вычисляется для выбранного распределения плотности атомных электронов.

Задачей моделирования являлось выделение сигнала ПТИ от инкапсулированного атома. При этом следует подчеркнуть, что, казалось бы, поскольку заряд фуллерена значительно больше заряда атома, когерентное излучение на фуллерене является подавляющим. К тому же спектр этого излучения имеет достаточно сложную неоднородную структуру [12] (см. ниже). Тем не менее

разностное фитирование позволяет в конечном счете выделить более слабый сигнал от внутреннего атома.

Для этого, преобразуя соотношение (13), получаем следующий алгоритм для расчета спектра внутреннего атома:

$$F_{at}^2 = \left( \sqrt{F_S^2} - \sqrt{F_f^2} \right)^2. \quad (14)$$

Получаемый спектр представляет довольно широкий резонанс и для дальнейшего анализа необходимо получить алгоритм сопоставления средней энергии этого резонанса с параметрами атома, например, со средним радиусом электронной оболочки. Эту процедуру в простейшем случае можно выполнить, оставаясь в пределах соотношения (12). При моделировании средний радиус определяется соотношением  $R_{at} = 3/b$ , а положение максимальной плотности электронов —  $R_{max} = 2/b$ , где  $b$  (в возможном эксперименте) найдется фитированием путем перебора значений этого параметра.

#### 4. Результаты

Результаты моделирования представлены на рис. 2, 3, 4. Особенности предлагаемой процедуры анализа демонстрирует рис. 2, где указаны ожидаемые интенсивности  $I_\omega$  когерентного поляризованного излучения под углом наблюдения  $\psi = \pi/4$  при различных энергиях фотонов. Релятивистский фактор быстрых электронов  $\gamma_e = 10$ . Значение выбранного угла излучения является оптимальным, защищая в реальном эксперименте детектор от воздействия рассеянных электронов и традиционного тормозного излучения.

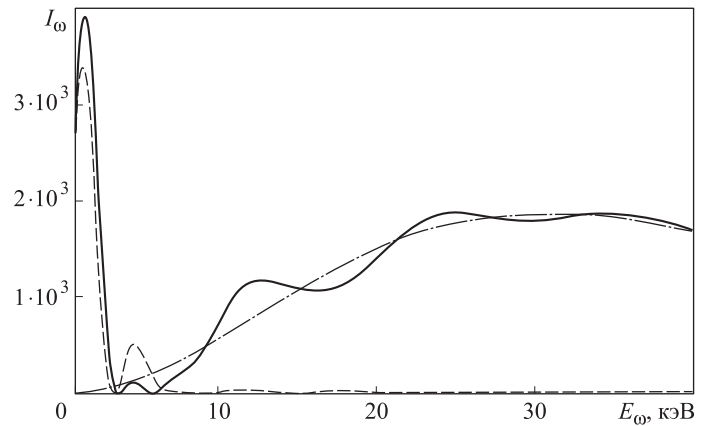


Рис. 2. Сравнительное сопоставление спектров излучения:  $I_\omega$  — интенсивность спектров (в произвольных единицах), сплошная кривая — эндоэдральное соединение  $P@C_{60}$ , пунктирная кривая — фуллерен  $C_{60}$ , штрихпунктирная кривая — свободный атом фосфора

Как видно, спектры фуллерена в свободном и «нагруженном» атомом состояниях практически совпадают в низкочастотной области, но, казалось бы, имеют не вполне ясную структуру в высокочастотной области. Однако поскольку размеры атома существенно меньше размеров фуллерена, следует предположить, что суммарный спектр когерентного поляризованного излучения в высокочастотной области определяется в основном атомной когерентной составляющей. Излучение на фуллерене имеет здесь некогерентный характер,

поскольку длина волны излучения оказывается значительно короче размеров фуллерена, так что интенсивность излучения на его электронах резко падает. Сказанное подтверждается характером рассчитанного «эталонного» спектра свободного атома (штрихпунктирная кривая).

Таким образом, подтверждается преимущество использования когерентного излучения, которое априори предсказывает области преобладания излучений, обусловленные электромагнитным взаимодействием быстрых электронов с нано-объектами различных геометрических размеров.

Подтверждением сказанного служит характер основного пика на рис. 2. Резкий обрыв этого пика — результат взаимного гашения сигналов от электронов передней и тыльной полусфер фуллерена, что соответствует сдвигу фазы излучения порядка  $\pi$ , т.е. на половине длины волны излучения<sup>1</sup>.

Пример выделения сигнала от атома, «скрытого» в фуллерене, представлен на рис. 3. Здесь используются лишь два спектра, которые и могут наблюдаться, как отмечалось, в реальном эксперименте: от фуллерена и фуллерена с инкапсулированным атомом фосфора. Восстановленный спектр не свободен от некоторых модуляций интенсивности, однако сглаживающее фитирование (построение гладкой огибающей) приводит к полному совпадению восстановленного спектра с контрольной кривой, которая представляет собой рассчитанный спектр свободного атома фосфора (штрихпунктир).

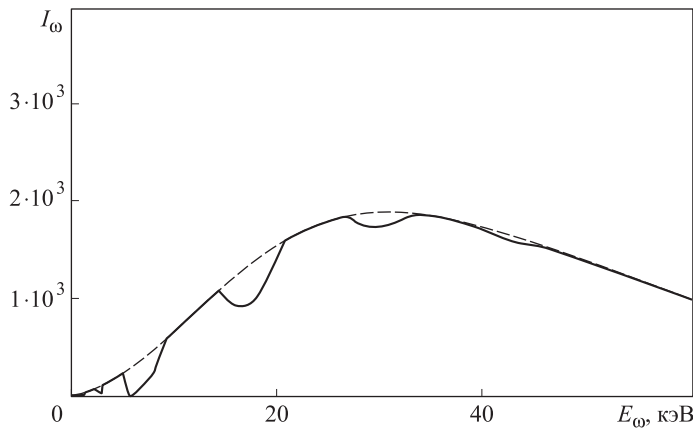


Рис. 3. Интенсивность спектров  $I_\omega$  (в произвольных единицах). Пример восстановленного из данных спектра эндодрального соединения  $P@C_{60}$  спектра излучения свободного атома фосфора по разностной методике (15). Сплошная кривая — восстановленный спектр, штрихпунктирная кривая — свободный атом фосфора. Последняя совпадает с огибающей восстановленного спектра

Наконец, трансформации электронной оболочки атома фосфора, инкапсулированного в фуллерен, представлены на рис. 4. Критерием изменения параметров электронной оболочки служит смещение максимумов спектров по отношению к спектру (1) в высокочастотную область (сжатие атома, кривая 2) или низкочастотную

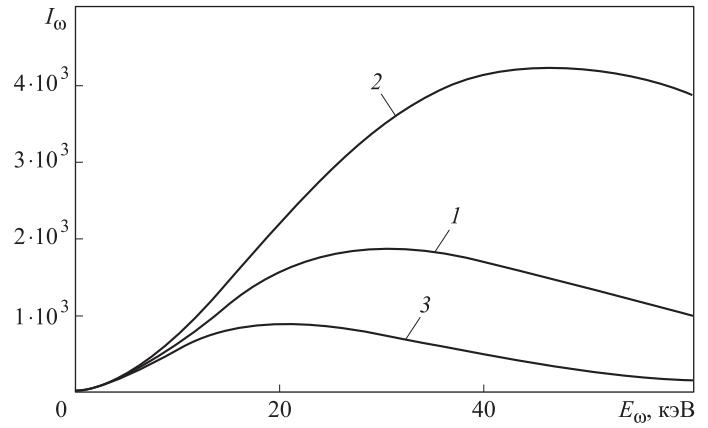


Рис. 4. Спектры излучения (после восстановления и сглаживания) с интенсивностью  $I_\omega$  (в произвольных единицах), испускаемые прототипом атома фосфора, инкапсулированного в фуллерен  $C_{60}$  в различных состояниях: 1 — свободный атом при  $\alpha = 14.6$ , 2 — сжатый атом при  $b = 22$ , 3 — расширенный атом при  $b = 10$

область (расширение атома, кривая 1). При трансформации атома происходит повышение или снижение удельной плотности электронов, что и проявляется не только в смещении максимумов, но и в соответствующем изменении величин максимальной интенсивности.

Однако трансформация атома в предшествующем примере предполагалась довольно большой и достигала от +30 до -46%, судя по вариациям величин средних радиусов, равным (см. выше)

$$\frac{\delta R}{R} = \frac{(b - \alpha)}{b}. \quad (15)$$

Для демонстрации чувствительности метода на рис. 5 представлены восстановленные спектры атомов, испытавших 8% деформации (кривые 2 и 3). Все

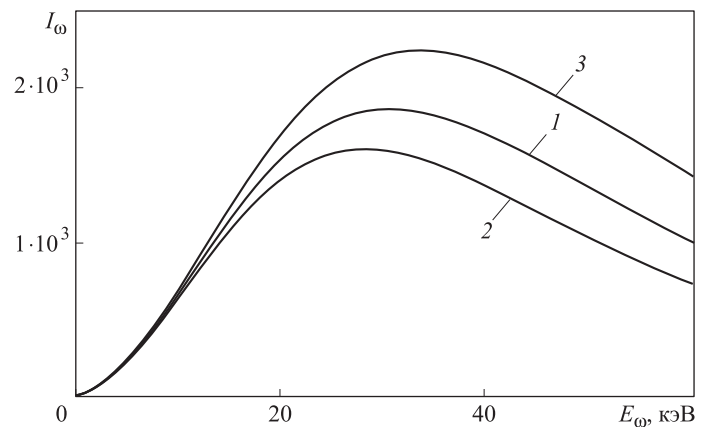


Рис. 5. Спектры излучения (после восстановления и сглаживания) с интенсивностью  $I_\omega$  (в произвольных единицах), испускаемые прототипом атома фосфора, инкапсулированного в фуллерен  $C_{60}$  в различных состояниях: 1 — свободный атом при  $\alpha = 14.6$ , 2 — сжатый атом при  $b = 16$ , 3 — расширенный атом при  $b = 13.5$

<sup>1</sup> Благодаря этому можно оценить расстояние между эффективными центрами зарядов полусфер фуллерена. Обрыв происходит при энергии фотонов в 3 кэВ и длине волны  $\simeq 4$  Å, а искомое расстояние  $\simeq 2$  Å.

спектры отчетливо различаются по высоте и положению максимумов (соответственно в точках 28, 30.5 и 33 кэВ).

### Заключение

Проведенный анализ в первую очередь отвечает на основной вопрос: можно ли «увидеть» нанообъект и его трансформации, заэкранированные окружающим веществом? Предложенный способ с использованием когерентного поляризованного тормозного излучения ускоренных электронов, хотя и нуждается в определенной доработке, уже сейчас дает положительный ответ и по меньшей мере может быть использован как альтернативный по отношению к другим методам, изложенным, в частности, в работах [1–4].

Авторы выражают благодарность Е. В. Грызловой за предоставление данных по параметрам сжатых атомов и полезные обсуждения по затронутой тематике.

### Список литературы

1. Tkalya E.V., Bibikov A.V., Bodrenko I.V. // Phys. Rev. C. 2010. **81**. P. 024610.
2. Ohtsuki T., Yuki H., Muto M. et al. // Phys. Rev. Lett. 2004. **93**. P. 112501.
3. Zhitnikov R.A., Dmitriev Y.A. // Optical Orientation of Atoms and Molecules. 1990.
4. Knapp C., Weiden N., Kaess H. et al. // Mol. Phys. 1998. **95**. P. 999.
5. Ter-Mikaelian M.L. High Energy Electromagnetic Processes in Condensed Media. N. Y., 1972.
6. Amus'ia M., Buimistrov V., Zon B. et al. Polarization Bremsstrahlung of Particles and Atoms. N. Y., 1992.
7. Ахиезер А.И., Берестецкий В.Б. Квантовая электродинамика. § 26. М., 1969.
8. Пановский В., Филлипс М. Классическая электродинамика. § 18.5. М., 1963.
9. Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М. Теория поля. М., 1960.
10. Маделунг Э. Математический аппарат физики. М., 1968.
11. Гришин В.К. // Поверхность. 2009. № 3. С. 70.
12. Grishin V.K. // Nucl. Instr. Meth. in Phys. Res. B. 2005. **227**, № 1–2. P. 82.

### Diagnosics of atoms encapsulated in fullerenes by polarizing bremsstrahlung from accelerated electrons

V. K. Grishin<sup>1,a</sup>, D. P. Nikitin<sup>2</sup>

<sup>1</sup>*D. V. Skobeltsyn Institute of Nuclear Physics, M. V. Lomonosov Moscow State University.*

<sup>2</sup>*Department of General Nuclear Physics, Faculty of Physics, Moscow State University.*

*Moscow 119991, Russia.*

*E-mail: <sup>a</sup>vkgris@mail.ru.*

It is shown, that coherent polarizing bremsstrahlung radiation (PB) which arises at electromagnetic field dispersion of the fast charged particle on atomic electrons and has a resonant reaction to changes of substance density, allows to carry out a diagnostics parameters of an atom, encapsulated in a fullerene. By modeling, comparing spectra of «empty» fullerene and containing atom one and using subtract fitting, it is possible to find out compression or expansion of an electronic shell of atom encapsulated in fullerene. Calculations are executed on model representation of nanoobject P@C<sub>60</sub>.

*Keywords:* coherent polarizational bremsstrahlung, fullerene, encapsulated atom, endrohedral fullerene, fitting.

*PACS:* 32.30.Rj, 81.05.ub.

*Received* 16 December 2011.

English version: *Moscow University Physics Bulletin* 3(2012).

### Сведения об авторах

1. Гришин Владислав Константинович — докт. физ.-мат. наук, профессор, профессор; тел.: (495) 939-56-35, e-mail: vkgris@mail.ru.
2. Никитин Денис Петрович — магистр физики, аспирант; e-mail: infinity115@rambler.ru.