

反应窗理论的适用性研究*

陈兰芳^{1)†} 马新文¹⁾ 朱小龙^{1)‡}

1) 中国科学院近代物理研究所, 兰州 730000)

2) 中国科学院研究生院, 北京 100049)

(2006 年 1 月 24 日收到, 2006 年 8 月 28 日收到修改稿)

基于低能离子与原子碰撞的分子库仑过垒模型, 简要描述了与入射离子速度相关的反应窗理论. 根据这一理论, 计算了不同碰撞速度时 $O^{8+}-H$, $Ar^{8+}-H$, $Ar^{8+}-He$, $Ne^{10+}-He$ 及 $Ar^{18+}-He$ 等碰撞体系单电子俘获过程的微分截面, 还计算了碰撞速度为 0.53 a. u. 时 $^{15}N^{7+}-Ne$ 碰撞体系单电子、双电子及三电子俘获过程的微分截面, 并与他人的实验结果作了比较. 研究发现, 反应窗理论预言的末态电子分布与实验结果符合较好. 理论和实验研究表明, 随着碰撞速度的增加反应窗变宽; 反应窗理论所预言的微分截面, 当 Q 值较小时比实验结果偏大, 当 Q 值较大时比实验结果偏小.

关键词: 反应窗理论, 态选择微分截面, 分子库仑过垒模型, 离子与原子碰撞

PACC: 3410, 3420, 3470

1. 引言

近年来, 人们对散射粒子能量亏损 Q 值的测量成为研究离子-原子碰撞态选择截面的有效方法. 对纯电子俘获过程, 通过测量反冲离子的纵向动量 $p_{||}$ 即可从实验上得到碰撞反应的 Q 值, 从而可以研究该反应的态选择截面^[1-4]. 目前, 纯粹严格的量子力学理论还无法完全处理多电子转移过程, 因此, 经典的物理模型成为研究离子-原子碰撞的重要理论方法^[5-7]. Niehaus^[8] 发展了分子库仑过垒模型 (molecular Coulombic over barrier model, 简记为 MCBM), 并在考虑了与入射离子速度相关的动力学因素后, 形成反应窗理论. 运用 MCBM, 可求得纯电子俘获过程的绝对截面. 运用反应窗理论, 可求得某个特定俘获过程的绝对微分截面关于能量亏损 Q 值的一个高斯分布. 理论上, 电子的初末态势能之差即为离子-原子碰撞反应的 Q 值, 因此可以具体求出碰撞过程的微分截面. 通过与实验结果相比较, 可以研究纯电子俘获过程的态选择截面. Hoekstra^[9] 在处理 $He^{2+}-He$ 碰撞体系时对 Niehaus 的反应窗理论进行了细节上的修正, 我们已将这一修正推广到了一般离子与中性靶原子碰撞的体系中. 本文根据反

应窗理论, 计算了低能区 ($v < 1$ a. u.) 和中等能区 ($v \approx 1$ a. u.) $O^{8+}-H$, $Ar^{8+}-H$, $Ar^{8+}-He$, $Ne^{10+}-He$ 及 $Ar^{18+}-He$ 等碰撞体系单电子俘获过程的微分截面, 还计算了碰撞速度为 0.53 a. u. 时 $^{15}N^{7+}-Ne$ 碰撞体系单电子、双电子及三电子俘获过程的微分截面, 并与文献 1—4 的实验结果和理论结果作了比较.

2. 理论方法

电子转移碰撞过程如下:



式中 A^{q+} 代表入射离子, $A^{(q-k)+}$ 代表散射离子, 表示入射离子在碰撞中俘获了 k 个电子, B^{r+} 代表反冲离子, 表示靶原子在碰撞中失去了 r 个电子, $r = k$ 时, 反应式(1)为纯电子俘获过程. 本文的计算除特别说明外, 全部采用原子单位(a. u.).

MCBM 中, 为了明确表示碰撞反应中一个特定的电子转移子过程, 给每一个子过程唯一地定义一个数字串(j), 这个数字串由数字 1 和 0 组成, 其中 1 表示分子化了的电子被离子 A 俘获, 0 表示分子化了的电子又回到了靶原子 B 上 (j) 中数字的总数代表碰撞体系中最多可能被分子化的电子数.

MCBM 预言第 t 个电子被俘获到离子 A 或靶原

* 国家自然科学基金重点项目(批准号: 30434100)资助的课题.

† E-mail: chenlanfang@impcas.ac.cn

子 B 时所具有的束缚能的绝对值分别为

$$E_{A_t, s_t} = I_t + \frac{q}{R_t^i} - \frac{t + s_t}{R_t^o}, \quad (2)$$

$$E_{B_t, s_t} = I_t + \frac{q}{R_t^i} - \frac{q - s_t}{R_t^o}, \quad (3)$$

式中, s_t 为在标号大于 t 的电子中被离子 A 俘获的电子数, I_t 为靶原子中第 t 个电子的逐级电离能, R_t^i 为入射过程靶原子中的第 t 个电子被分子化时的核间距离, R_t^o 为出射过程第 t 个电子被俘获到入射离子 A 或者重新回到靶原子 B 时的核间距离.

MCBM 预言对应某一反应串(j)所有电子转移的平均能量亏损为 $Q_0^{(j)}$,

$$Q_0^{(j)} = \sum_{i=1}^N (\varepsilon_i^{(j)} - I_i), \quad (4)$$

$$\varepsilon_i^{(j)} = \begin{cases} E_{A_t, s_t} & (\text{当第 } t \text{ 个电子被 } A \text{ 俘获时}), \\ E_{B_t, s_t} & (\text{当第 } t \text{ 个电子被 } B \text{ 俘获时}). \end{cases} \quad (5)$$

(4) 式是对所有分子化的 N 个电子求和.

根据反应窗理论, 核间库仑势垒的最小不确定度可表示为

$$\Delta V_t^{\min} = \left(\left| \frac{dV_t}{dR} \right| v_{\text{rad}} \right)^{1/2} = (V_t' v_{\text{rad}})^{1/2}, \quad (6)$$

式中, V_t' 为核间库仑势垒的微商, v_{rad} 为核间径向速度.

$$v_{\text{rad}} = \frac{dR}{dt} = v \cos \theta = v \sqrt{1 - \left(\frac{b}{R} \right)^2}, \quad (7)$$

式中, v 为入射离子的速度, θ 为入射角, b 为碰撞参数. 此处我们作了修正, 对径向速度求了平均.

对第 t 个电子, 被入射离子 A 俘获或重新回到靶原子 B 的末态的能量不确定度定义为

$$\Delta E_t^{(j)} = [(\Delta V_t^{\min})^2 + (\Delta V_t^{\min})^2]^{1/2}. \quad (8)$$

(8) 式等号右端括号内前后两项分别表示入射过程和出射过程获得的能量不确定度.

能量亏损 Q 值的不确定度可表示为

$$\Delta Q^{(j)} = \left(\sum_{i=1}^N (\Delta E_i^{(j)})^2 \right)^{1/2}. \quad (9)$$

假设对应于某一个串(j)的 Q 值是围绕平均能量亏损(4)式的一个高斯分布, 分布概率为

$$W^{(j)}(Q) = (\Delta Q^{(j)} \pi^{1/2})^{-1} \exp \left[- \left(\frac{Q - Q_0^{(j)}}{\Delta Q^{(j)}} \right)^2 \right]. \quad (10)$$

由(10)式和 MCBM 预言的数字串(j)所表征的子过程中 k 个电子被俘获的绝对截面 $\sigma_{q, q-k}^{(j)}$, 可得对应

于数字串(j)的绝对微分截面为

$$\frac{d\sigma_{q, q-k}^{(j)}}{dQ} = \sigma_{q, q-k}^{(j)} W^{(j)}(Q). \quad (11)$$

故对所有俘获 k 个电子的数字串(j)求和, 可得俘获 k 个电子的绝对微分截面为

$$\begin{aligned} \frac{d\sigma_{q, q-k}}{dQ} &= \sum_{(j)} \frac{d\sigma_{q, q-k}^{(j)}}{dQ} \\ &= \sum_{(j)} \sigma_{q, q-k}^{(j)} (\Delta Q^{(j)} \pi^{1/2})^{-1} \\ &\quad \times \exp \left[- \left(\frac{Q - Q_0^{(j)}}{\Delta Q^{(j)}} \right)^2 \right]. \end{aligned} \quad (12)$$

在离子与原子碰撞中, 绝大多数情况下碰撞体系初态是确定的(一般处于基态). 根据电子被俘获的末态, 能够计算反应的 Q 值. 假如在某反应中电子被俘获到入射离子的某个具体量子态上, 则电子的初末态势能之差即为该反应的 Q 值(势能数据取自美国国家标准局原子数据库). 通过反应窗理论预言的微分截面关于 Q 值的分布即(12)式, 可以具体求出对应于该反应的微分截面, 从而可以与实验结果进行比较, 研究纯电子俘获过程的态选择截面. 这就是与态相关的碰撞动力学反应窗理论模型.

3. 结果及讨论

实验上^[1-4]通过测量反冲离子的纵向(平行于入射离子方向)动量 p_{\parallel} , 可由下式得到纯电子俘获过程的 Q 值:

$$Q = -vp_{\parallel} - \frac{kv^2}{2}, \quad (13)$$

式中 v 为入射离子速度, k 为俘获电子数.

图 1 为 $v = 0.50, 0.75, 0.96$ a.u. 时 O^{8+} -H 碰撞体系单电子俘获过程的 Q 值谱. 由图 1 可以看出: 计算结果以俘获到主量子数 $n = 6$ 的微分截面为最大, $n = 5$ 次之, $n = 7$ 较小, $n = 4$ 最小; 实验结果则以 $n = 5$ 的计数为最大, $n = 6$ 次之, $n = 4$ 和 $n = 7$ 较小.

表 1 给出了本文计算得到的相对截面与文献 [1] 中的理论值和实验值的比较, 其中 AOCC 为利用原子轨道紧耦合方法的计算结果. 从表 1 可知, 本文结果与实验结果偏差较大, 说明经典理论模型只能大概地给出态选择信息, 更准确的描述只有量子力学理论才能完成. 表 1 中的理论和实验结果均为归一化单位.

图 2 为 $v = 0.32, 0.50, 0.75$ a.u. 时 Ar^{8+} -H 碰撞

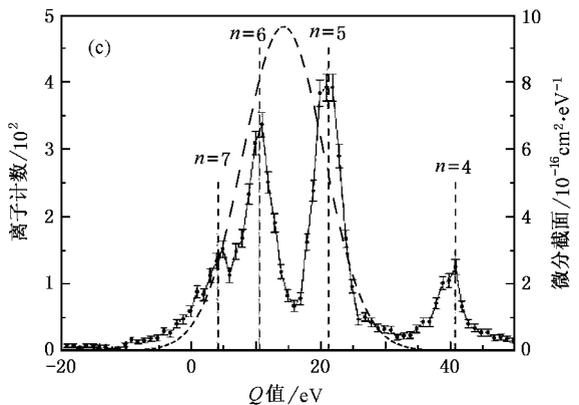
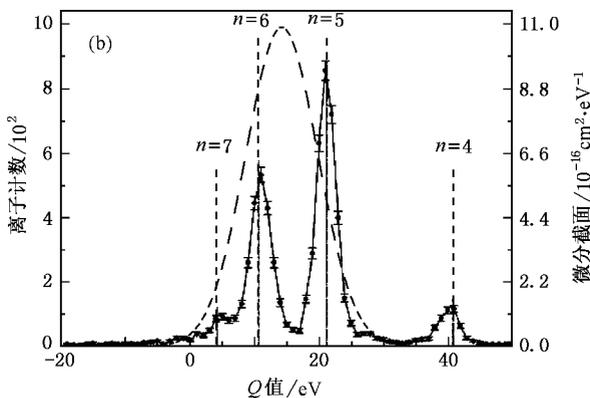
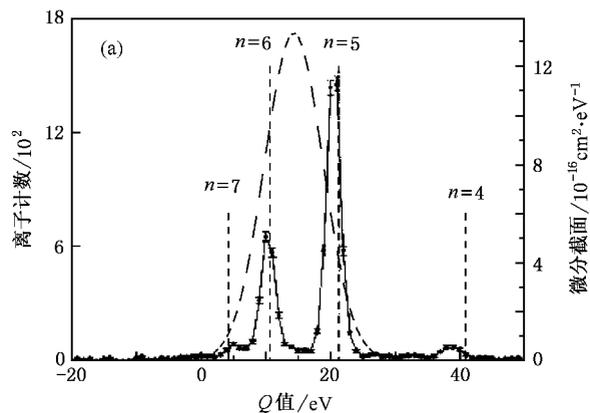


图1 O^{8+} -H体系单电子俘获过程的 Q 值谱. 实线为实验结果, 虚线为理论计算结果. (a) $v = 0.5$ a.u. (b) $v = 0.75$ a.u., (c) $v = 0.96$ a.u.

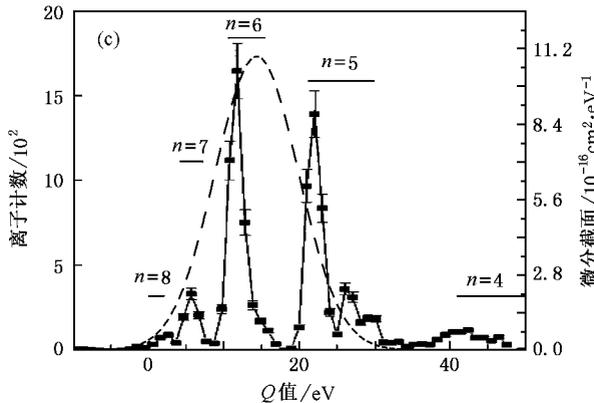
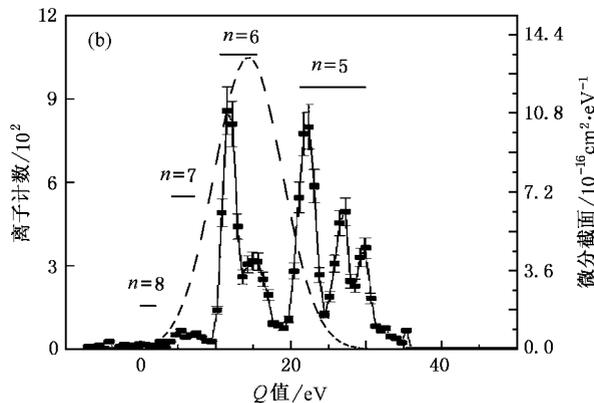
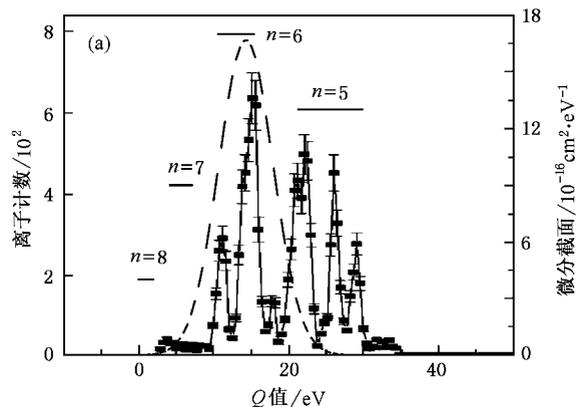


图2 Ar^{8+} -H体系单电子俘获过程的 Q 值谱. 实线为实验结果, 虚线为理论计算结果. (a) $v = 0.32$ a.u. (b) $v = 0.5$ a.u., (c) $v = 0.75$ a.u.

体系单电子俘获过程的 Q 值谱. 由图 2 可看出, 计算结果以俘获到 $n = 6$ 的微分截面为最大, $n = 8$ 最小, $n = 5$ 和 $n = 7$ 时相差不大. 实验结果以 $n = 6$ 的计数为最大, $n = 5$ 次之, $n = 7$ 较小, $n = 8$ 最小. 在 $v = 0.75$ a.u. 时, $n = 4$ 的计数超过 $n = 8$ 的计数. 计算结果与实验结果存在一定偏差.

由图 1、图 2 可以看出, 对同一碰撞体系, 随着碰撞速度(即能量)的增加, 计算结果和实验结果中

反应窗均变宽, 即电子被俘获到更多的量子态上. 由 (6)(8)(12) 式可知, 微分截面高斯分布的 2 倍方差 ($\Delta Q^{(j)}$) 与入射速度 v 成正比, 即该分布的宽度与 $v^{1/2}$ 成正比, 所以随着碰撞速度的增加, 反应窗变宽.

图 3 为 $v = 0.2, 0.5, 1.0$ a.u. 时 Ar^{8+} -He 碰撞体系单电子俘获过程的 Q 值谱. 由图 3 可以看出: 计算结果和实验结果均以俘获到 $n = 4$ 为主, 但计

算结果中 $n=5$ 的微分截面略低于 $n=4$, 而实验结果中 $v=0.2, 0.5$ a.u. 时 $n=5$ 的计数很小, $v=1.0$ a.u. 时才比较突出. $v=0.2, 0.5$ a.u. 时的计算结果同样在 Q 值较小时偏大, 在 Q 值较大时偏小, $v=1.0$ a.u. 时计算结果与实验结果则符合较好.

表 1 O^{8+} -H 体系相对截面理论值和实验值的比较

$v/a.u.$	电子未态 n	本文计算值	AOCC ^[1]	实验值 ^[1]
0.50	4	0.000	0.080	0.048
	5	0.278	0.634	0.634
	6	0.648	0.275	0.281
	7	0.074	0.011	0.037
0.75	4	0.010	0.107	0.073
	5	0.116	0.593	0.498
	6	0.854	0.281	0.364
	7	0.021	0.019	0.065
0.96	4	0.019	0.140	0.098
	5	0.037	0.539	0.405
	6	0.923	0.283	0.365
	7	0.021	0.038	0.132

图 4 为 $v=0.55$ a.u. 时 Ne^{10+} -He 碰撞体系单电子俘获过程的 Q 值谱. 由图 4 可以看出: 计算结果和实验结果均以俘获到 $n=5$ 为主, 但计算结果以 $n=6$ 次之, $n=4$ 最小, 而实验结果以 $n=4$ 次之, $n=6$ 最小.

图 5 为 $v=0.52$ a.u. 时 Ar^{18+} -He 碰撞体系单电子俘获过程的 Q 值谱. 由图 5 可以看出: 计算结果和实验结果均以俘获到 $n=8$ 为主, 但计算结果以 $n=9$ 次之, $n=7$ 较小, $n=6$ 几乎为零, 而实验结果中 $n=7$ 的计数略小于 $n=8$ 的计数, 均远大于 $n=6, 9$ 的计数. 计算结果与实验结果有些偏差.

图 6 为 $v=0.53$ a.u. 时 $^{15}N^{7+}$ -Ne 碰撞体系单电子、双电子和三电子俘获过程的 Q 值谱. 由图 6 可以看出: 对单电子俘获过程, 计算结果和实验结果均以俘获到 $n=4$ 为主, 但计算结果在 $n=5$ 时偏大, $n=3$ 时偏小. 对双电子俘获过程, 计算结果和实验结果均以俘获到 $n=3lnl'$ 为主, 但在 $n=2lnl'$ 和 $n=3lnl'$ 较大 Q 值时计算结果偏小. 对三电子俘获过程, 计算结果同样在较小 Q 值时偏大, 在较大 Q 值时偏小.

表 2 给出了不同碰撞体系的反应串(j)所对应的平均能量亏损 $Q_0^{(j)}$ 及其不确定度 $\Delta Q^{(j)}$ 、每个反

应串对应的绝对截面 $\sigma^{(j)}$ 及 $\sum \sigma^{(j)}$.

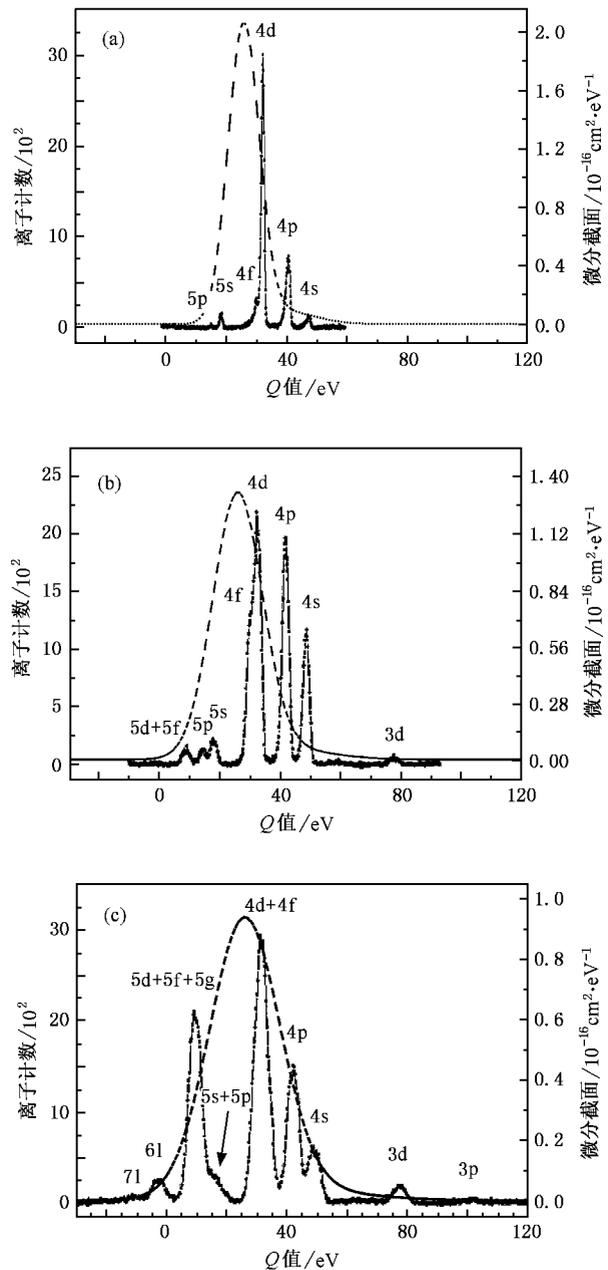


图 3 Ar^{8+} -He 体系单电子俘获过程的 Q 值谱. 实线为实验结果, 虚线为理论计算结果. (a) $v=0.2$ a.u., (b) $v=0.5$ a.u., (c) $v=1.0$ a.u.

由图 1—图 6 (图中实验值取自文献 [1—4]) 可以看出, 对单电子及多电子俘获过程, 理论预言结果基本涵盖了实验结果中的几个主要反应道, 但未态主量子数较大(对应较小 Q 值)时的反应道微分截面偏大, 未态主量子数较小(对应较大 Q 值)时的反应道微分截面偏小. 这说明 MCBM 预言的平均能量

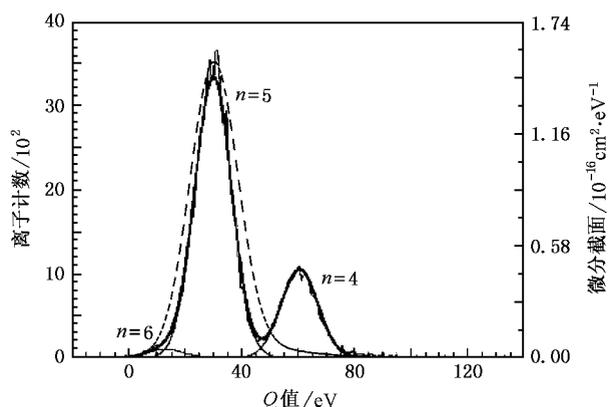


图4 $v=0.55$ a.u.时 Ne^{10+} -He体系单电子俘获过程的 Q 值谱 实线为实验结果,虚线为理论计算结果

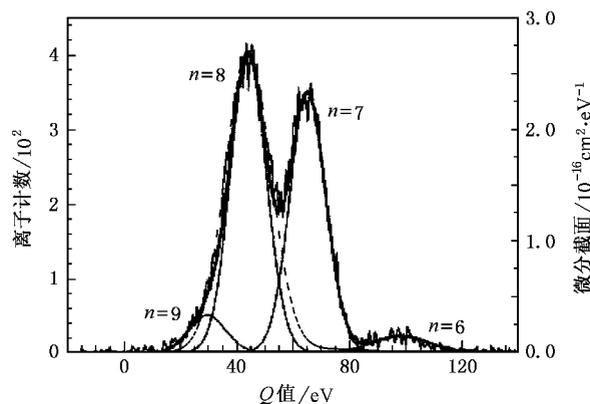


图5 $v=0.52$ a.u.时 Ar^{18+} -He体系单电子俘获过程的 Q 值谱 实线为实验结果,虚线为理论计算结果

亏损值偏小.由(2)–(5)式知,MCBM 预言的末态束缚能渐进值的绝对值偏小,末态束缚能偏大.这是由于 MCBM 中,在入射过程,第 t 个电子被分子化时,已经分子化的 $t-1$ 个电子位于第 t 个电子的外部,对入射离子 A^{q+} 与第 t 个电子的作用完全没有影响.实际上它们具有一定的屏蔽作用,即(2)和(3)式中第二项的分子 q 应为 $q-\alpha$, $\alpha>0$,此作用的忽略使束缚能渐进值的绝对值偏大.MCBM 中,在出射过程,第 t 个电子被入射离子俘获或重新被靶原子俘获时,仍处于分子化状态的 $t-1$ 个电子对此时入射离子或靶原子与第 t 个电子的作用完全没有影响.实际上它们的屏蔽作用同样不为零,即(2)和(3)式中第三项的分子应分别为 $q+r_i-\beta_1$, $q-r_i-\beta_2$, $\beta_1>0$, $\beta_2>0$,此作用的忽略使束缚能渐进值的绝对值偏小.换言之,MCBM 完全没有考虑电子与电子之间的关联作用.入射过程中 $t-1$ 个电子处于分子化状

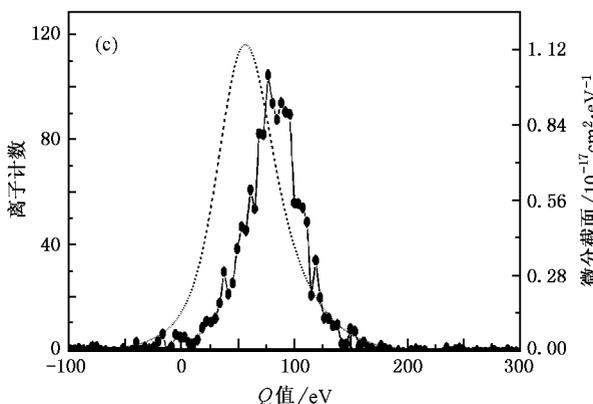
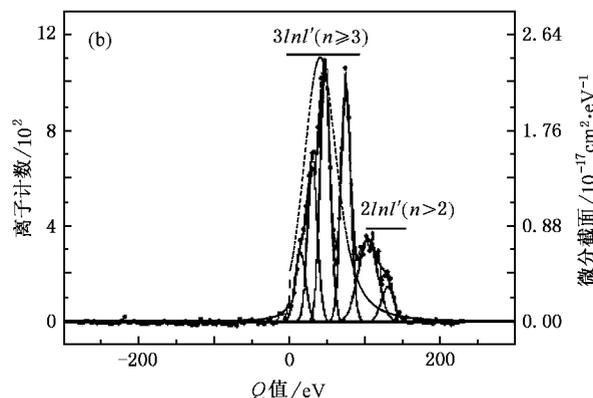
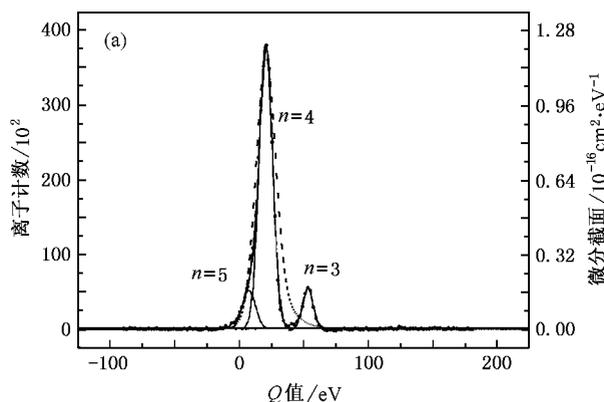


图6 $v=0.53$ a.u.时 N^{7+} -Ne体系的 Q 值谱 实线为实验结果,虚线为理论计算结果.(a)单电子俘获过程 (b)双电子俘获过程 (c)三电子俘获过程

态,而第 t 个电子位于靶原子的势场中,出射过程中 $t-1$ 个电子与第 t 个电子则同样处于分子化状态.故出射过程的作用距离较入射过程小,所以出射过程的屏蔽作用或电子关联作用更强,也就是使束缚能渐进值的绝对值偏小的屏蔽作用更强,因而屏蔽作用的忽略最终使束缚能渐进值的绝对值偏小,平均能量亏损值偏小.

表 2 不同碰撞体系的反应串(j)所对应的 $Q_0^{(j)}$, $\Delta Q^{(j)}$, $\sigma^{(j)}$ 及 $\sum \sigma^{(j)}$

体 系	$v/a. u.$	(j)	$Q_0^{(j)}/eV$	$\Delta Q^{(j)}/eV$	$\sigma^{(j)}/10^{-16} \text{ cm}^2$	$\sum \sigma^{(j)}/10^{-16} \text{ cm}^2$
$O^{8+} - H$	0.50	(1)	14.3	6.4	151	151
	0.75	(1)	14.3	7.8	151	151
	0.96	(1)	14.3	8.8	151	151
$Ar^{8+} - H$	0.32	(1)	14.3	5.1	151	151
	0.50	(1)	14.3	6.4	151	151
	0.75	(1)	14.3	7.8	151	151
$Ar^{8+} - He$	0.20	(10)	25.9	7.3	26.20	28.42
		(01)	39.2	14.5	2.22	
	0.50	(10)	25.9	11.5	26.20	28.42
		(01)	39.2	22.9	2.22	
	1.00	(10)	25.9	16.3	26.20	28.42
		(01)	39.2	32.3	2.22	
$Ne^{10+} - He$	0.55	(10)	30.2	11.9	31.9	33.77
		(01)	46.5	23.6	1.87	
$Ar^{18+} - He$	0.52	(10)	44.1	11.3	54.10	55.28
		(01)	69.3	22.3	1.18	
$^{15}N^{7+} - Ne$	0.53	(1000000)	20.6	10.5	19.60	23.90
		(0100000)	27.3	18.7	3.15	
		(0010000)	32.3	27.7	0.84	
		(0001000)	37.7	39.4	0.16	
		(0000100)	40.0	51.3	0.07	
		(0000010)	41.2	64.0	0.05	
		(0000001)	41.2	80.4	0.03	

4. 结 论

本文讨论了与入射离子速度相关的反应窗理论,得到了反应窗与入射离子速度的关系.据此计算了碰撞体系 $O^{8+} - H$, $Ar^{8+} - H$, $Ar^{8+} - He$, $Ne^{10+} - He$, $Ar^{18+} - He$ 在不同碰撞速度时的单电子俘获过程微分截面,还计算了 $^{15}N^{7+} - Ne$ 体系在 $v = 0.53 \text{ a. u.}$ 时单电子、双电子和三电子俘获过程的微分截面.讨论了低能区和中等能区不同碰撞体系单电子俘获及多电子

俘获过程的 Q 值谱,并将反应窗理论的计算结果与实验结果进行了比较分析.可以得出以下结论:第一,反应窗理论的预言结果基本涵盖了实验结果中的几个主要反应道,且随着碰撞速度的增加,理论结果和实验结果中反应窗均变宽,即电子被俘获到更多的量子态上.第二,与实验结果比较,反应窗理论预言的微分截面在未态主量子数较大(对应较小 Q 值)时偏大,未态主量子数较小(对应较大 Q 值)时偏小.

[1] Edgu-Fry E, Wech A, Stuhlman J *et al* 2004 *Phys. Rev. A* **69** 052714

[2] Cassimi A, Duponchel S, Flechard X *et al* 1996 *Phys. Rev. Lett.* **76** 3679

[3] Abdallah M A, Wolff W, Wolf H E *et al* 1998 *Phys. Rev. A* **57** 4373

[4] Zhang H L, Flechard X, Cassimi A *et al* 2001 *Phys. Rev. A* **64** 012715

- [5] Ma X W 1998 *J. At. Mol. Phys.* **15** 91 (in Chinese) [马新文 1998 原子与分子物理学报 **15** 91]
- [6] Cai X H , Yu D Y , Cao Z R *et al* 2004 *Chin. Phys.* **13** 1679
- [7] Cao Z R , Cai X H , Yu D Y *et al* 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 2943 (in Chinese) [曹柱荣、蔡晓红、于得洋等 2004 物理学报 **53** 2943]
- [8] Niehaus A 1986 *J. Phys. B* **19** 2925
- [9] Hoekstra R 1990 *Photos Shedding Light on Electron Capture by Highly Charged Ions* (Groningen : Drukkerij Van Denderen) p43

Applicability of the reaction window theory^{*}

Chen Lan-Fang^{1,2)†} Ma Xin-Wen¹⁾ Zhu Xiao-Long^{1,2)}

¹⁾ *Institute of Modern Physics , Chinese Academy of Sciences , Lanzhou 730000 , China)*

²⁾ *Graduate School of Chinese Academy of Sciences , Beijing 100049 , China)*

(Received 24 January 2006 ; revised manuscript received 28 August 2006)

Abstract

Based on the molecular Coulombic over barrier model for description of slow ion-atom collisions , the reaction window theory related to projectile velocity is presented briefly. According to the theory , the state-selective differential cross sections of single electron capture in $O^{8+} - H$, $Ar^{8+} - H$, $Ar^{8+} - He$, $Ne^{10+} - He$ and $Ar^{18+} - He$ collisions at different collision velocities are calculated and compared with experimental results. Calculations are also done for single , double , and triple electron capture in $^{15}N^{7+} - Ne$ collisions at fixed velocity of 0.53 a. u. , and are compared with experimental data. It is found that the predictions of the final electronic state distribution of captured electron(s) are in agreement with experimental data , and both theory and experiments show that the widths of the reaction window increase with the projectile velocity. The differential cross sections predicted by the theory are larger for smaller Q -values , vice versa , when compared with experimental data.

Keywords : reaction window theory , state-selective differential cross sections , molecular Coulombic over barrier model , ion-atom collisions

PACC : 3410 , 3420 , 3470

^{*} Project supported by the Key Program of the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 10434100).

[†] E-mail : chenlanfang@impcas.ac.cn