

# $O^{3+}$ 与 $H_2$ 碰撞中非解离电荷转移 过程的全量子计算\*

吴 勇<sup>1)</sup> 刘 玲<sup>1)</sup> 王建国<sup>1,2)</sup>

1) 北京应用物理与计算数学研究所计算物理实验室, 北京 100088)

2) 中国科学院近代物理研究所, 兰州 730000)

(2007 年 3 月 20 日收到, 2007 年 4 月 17 日收到修改稿)

应用全量子的分子轨道强耦合方法, 研究了基态的  $O^{3+}(2s^2 2p^2 P)$  与氢分子碰撞的非解离电荷转移过程, 计算了不同方位角 ( $25^\circ, 45^\circ, 89^\circ$ ), 能量分别为 100, 500, 1000 和 5000 eV/u 时的单电子俘获的振动分辨的态选择截面及相应的微分截面. 分子轨道强耦合计算中采用了自旋耦合价带理论计算的三原子分子势能面和径向耦合矩阵元. 对氢分子的自身转动, 采用无限阶的冲量近似方法, 对体系的电子运动同  $H_2$  或  $H_2^+$  的振动之间的耦合, 采用了振动冲量近似. 结果发现, 对不同的入射能量, 振动态选择截面随振动量子数的分布发生了一定的改变; 不同入射能量和不同方位角的振动态分辨的微分截面具有类似的结构, 在极小的散射角附近出现一个最大值平台, 然后散射截面随着散射角的增大而减小, 并出现大量的震荡结构, 其中第一个震荡结构对应的散射角位置随入射能量  $E_p$  以  $E_p^{-1/2}$  的标度规律变化, 微分截面的结构和大小对  $H_2$  方位角  $\alpha$  的变化敏感. 这种性质为  $H_2$  取向的诊断提供了一种可能的途径.

关键词: 非解离电荷转移过程, 全量子的分子轨道强耦合方法, 无限阶冲量近似, 振动冲量近似

PACC: 5220H, 3400, 0365N

## 1. 引 言

重粒子碰撞过程是指原子、离子、分子之间发生的各种相互作用过程, 如碰撞激发、电离、电荷转移、解离等等. 在实验室等离子体和天体物理的某些环境中, 由于电子的能量或密度比较低, 重粒子碰撞过程的反应速率可能会远大于电子碰撞过程, 此时重粒子碰撞将在物质的能量转移、离子状态演化等方面起决定性的作用. 如在托克马克中, 质子与氢分子或碳氢化合物的电荷转移过程对偏滤器区域等离子体的反常冷却起着至关重要的作用<sup>[1,2]</sup>, 它也是中性束注入加热和利用光谱方法诊断等离子体裸核杂质的物理基础, 同时它也是未来聚变中产生的高能粒子输运和加热的主要机理. 在天文环境中, 它是宇宙线光电离产生的多电荷态离子的最重要复合机理<sup>[3]</sup>. 最近的极端紫外和 X 射线卫星 Extreme Ultraviolet Explorer (EUE) 和 Chandra X-ray Observatory (CXO) 的观测发现, 从很多慧星如 Hale-Bopp<sup>[4]</sup> 和

Hyakutake<sup>[5]</sup> 及行星大气中发射极端紫外和 X 射线. 实验观测和理论研究表明, 这些极端紫外和 X 射线来源于高电荷态的太阳风粒子 (如  $O^{q+}$ ,  $C^{q+}$ ,  $Ne^{q+}$ ,  $Si^{q+}$ ) 与慧星中性粒子 (包括  $H_2O$ ,  $CO$ ,  $CO_2$  和它们的解离产物  $H$ ,  $H_2$ ,  $O$ ,  $OH$ ,  $C$ ) 的碰撞电荷转移过程产生的<sup>[4]</sup>. 类似地木星极光是由于多电荷的  $O^{q+}$  和  $Si^{q+}$  离子 (可能包含  $Na^{q+}$ ,  $C^{q+}$  和  $Si^{q+}$  等离子) 与木星大气层中  $H_2$  分子、He 和 H 原子发生碰撞电荷转移产生的, 而地球极光中也有一部分是由于太阳风粒子与极地大气碰撞的电荷转移产生的. 所有这些过程的细致理论模拟都需要精确的重粒子碰撞截面或速率系数. 然而目前的实验或理论数据是远远不够的, 特别是态到态的碰撞参数几乎还是一个空白.

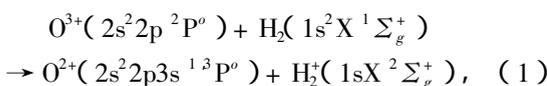
在不同能区, 各种反应在重离子碰撞过程中的地位不同, 其中单电子俘获过程在中低能区特别重要<sup>[6-8]</sup>. 在过去的工作中<sup>[9-11]</sup>, 用全量子的分子轨道强耦合 (quantum-mechanical molecular-orbital close-coupling, MOCC) 方法研究了  $O^{3+}(2s^2 2p^2 P)$  基态和氢

\* 国家自然科学基金 (批准号: 10604011, 10574018, 10574020) 和国家高技术研究发展计划 (863) 惯性约束聚变领域资助的课题.

分子碰撞的非解离电荷转移过程,结合无穷阶冲量近似(IOSA)方法,计算了0.1 eV/u—10 keV/u的能区的振动态分辨的单电荷转移截面<sup>[9,10]</sup>以及0.1—10 eV/u的能区的振动分辨的单电荷转移微分截面<sup>[11]</sup>.分子轨道强耦合计算采用了自旋耦合价带理论计算的H<sub>2</sub>不同方位角 $\alpha$ (25°, 45°, 89°)的三原子分子势能面和径向耦合矩阵元<sup>[9,10]</sup>,其中 $\alpha$ 定义为入射离子O<sup>3+</sup>相对于氢分子靶质心的坐标R同两个氢原子连线r的夹角.对每个方位角,势能面和径向耦合矩阵元的范围为 $R = (3-13)a_0$ 和 $r = 1.2a_0, 1.4a_0, 1.6a_0$ 和 $2.0a_0$ ,其中 $r = 1.4a_0$ 为基态H<sub>2</sub>的振动平衡位置<sup>[9,10]</sup>.在这些MOCC计算中,由于计算能力的限制,减少了研究中包含的H<sub>2</sub><sup>+</sup>(v)的振动束缚态的数目<sup>[9,10]</sup>,或者限制了所研究的电荷转移过程的能区<sup>[11]</sup>.此外,在振动分辨的微分截面的计算过程中发现,当入射离子的能量比较高( $E_p > 50$  eV/u)时,由于所使用的势能面和径向耦合矩阵元随r的变化不够光滑,计算结果出现反常行为.而当入射能量超过50 eV/u时,碰撞反应的时间尺度远小于H<sub>2</sub><sup>+</sup>的振动周期,电子运动和H<sub>2</sub><sup>+</sup>的振动之间的耦合很弱,在无穷阶冲量近似基础上,采取Franck-Condon型的近似,即忽略电子运动和H<sub>2</sub><sup>+</sup>的振动之间的耦合,我们称之为振动冲量近似(vibrational sudden approximation, VSA).利用该方法,研究了较高能区的基态O<sup>3+</sup>(2s<sup>2</sup>2p<sup>2</sup>P)与氢分子碰撞的非解离电荷转移过程.据我们所知,该能区还没有其他理论和实验的结果.在本文的计算中,同样采用了自旋耦合价带理论计算的H<sub>2</sub>不同方位角 $\alpha$ (25°, 45°, 89°)的三原子分子势能面和径向耦合矩阵元,具体数据见文献[9,10],MOCC方法也有详细描述,这里只进行简单的概述.

## 2. 理论方法

研究的反应过程为



在分子轨道强耦合的计算中<sup>[9,10,12-15]</sup>,首先把入射离子与靶作为一个准分子来处理,具体采用波恩-欧本海默近似计算不同空间位置的分子势能面和不同通道间的电子径向和转动耦合矩阵元,然后根据散射矩阵理论求解一组耦合的微分方程组,得到各种相关的反应通道跃迁概率.下面以离子与双原子分

子的碰撞过程为例,进行简单的介绍.碰撞系统的总哈密顿量可以写为

$$\begin{aligned} H(R, r, \rho_i) = & -\frac{1}{2\mu_R} \nabla_R^2 - \frac{1}{2\mu_r} \nabla_r^2 \\ & + H_{ad}(\rho_i | R, r), \quad (2) \end{aligned}$$

其中,R为入射离子相对于靶质心的坐标,r为电子相对于系统质心的坐标, $\rho_i$ 为靶中双原子分子的距离, $\mu_R$ 为入射离子的约化质量, $\mu_r$ 为电子的约化质量, $H_{ad}(\rho_i | R, r)$ 是绝热哈密顿量,能够写为

$$\begin{aligned} & H_{ad}(\rho_i | R, r) \phi_\gamma(\rho_i | R, r) \\ & = \varepsilon_\gamma(R, r, \theta) \phi_\gamma(\rho_i | R, r), \quad (3) \end{aligned}$$

这里 $\phi_\gamma(\rho_i | R, r)$ 为绝热波函数, $\varepsilon_\gamma(R, r, \theta)$ 为绝热能量, $\gamma$ 对应不同的电子态, $\theta$ 为入射离子和靶质心的连线与靶双原子连线方向的夹角.

采用微扰的稳态近似(the perturbed stationary-state (PSS) approximation)<sup>[9,10,14,15]</sup>,将系统总的波函数向绝热电子波函数和双原子分子或离子的振动波函数展开,可以得到

$$\begin{aligned} & \psi(R, r, \rho_i) \\ & = \sum_{\gamma, v} F_{\gamma v}(R) \phi_\gamma(\rho_i | R, r) \chi_{\gamma v}(r), \quad (4) \end{aligned}$$

这里 $F_{\gamma v}$ 为电子散射振幅, $\chi_{\gamma v}(r)$ 定义为振动态波函数.由于实验中一般初态是在振动基态,所以只考虑振动初态是基态的跃迁过程.采用无限阶冲量近似(infinite-order sudden approximation)<sup>[9,10]</sup>,在固定的多个角度 $\theta$ 分别计算反应截面,然后对角度积分,得到平均的截面.该近似的核心是认为靶的转动相对于入射离子的运动、靶的振动是一个慢过程,因此只有在入射离子能量大于0.1 eV/u的情况下才适用,否则必须考虑靶转动引起的耦合问题.最后,散射过程的强耦合方程可以写为

$$\begin{aligned} & \left\{ \nabla_R^2 + 2\mu_R [E - \varepsilon_\gamma^d(R, \theta)] \right\} F_{\gamma v}(R, \theta) \\ & = 2\mu_R \sum_{\gamma' \neq \gamma} \sum_{v' \neq v} V_{\gamma v, \gamma' v'}^d F_{\gamma' v'}(R, \theta), \quad (5) \end{aligned}$$

其中振动分辨的非绝热耦合矩阵元为

$$\begin{aligned} & V_{\gamma v, \gamma' v'}^d(R, \theta) \\ & = \chi_{\gamma v}(r) | V_{\gamma \gamma'}^d(R, r, \theta) | \chi_{\gamma' v'}(r), \quad (6) \end{aligned}$$

非绝热的振动势能为

$$\varepsilon_\gamma^d(R, \theta) = \varepsilon_\gamma^d(R, r_e, \theta) + \Delta\varepsilon_\gamma + \varepsilon_{\gamma v}. \quad (7)$$

其中 $\varepsilon_{\gamma v}$ 表示未受扰动的双原子分子的振动激发能; $\varepsilon_\gamma^d(R, r, \theta)$ 和 $V_{\gamma \gamma'}^d(R, r, \theta)$ 分别是非绝热电子态能量和振动分辨的非绝热势能矩阵元,它们是在绝热电子态能量和势能矩阵元的基础上,通过一个酉

变换<sup>[13,16]</sup>得到  $\Delta\epsilon_{\gamma}$  是根据分子解离能的实验测量值对理论计算的修正. 当入射离子能量比较高时, 碰撞反应的时间尺度远小于  $H_2^+$  的振动周期, 电子运动和  $H_2^+$  的振动之间的耦合很弱 (6) 式可以简化为

$$V_{\gamma\omega, \gamma'\omega'}^d(R, \theta) = V_{\gamma, \gamma'}^d(R, r, \theta) \chi_{\gamma\omega}(r) | \chi_{\gamma'\omega'}(r) |, \quad (8)$$

称之为 VSA. 在本文的计算中,  $|\chi_{\gamma\omega} | \chi_{\gamma'\omega'}|^2$  为 Franck-Condon 因子. 如果完全忽略  $H_2^+$  振动对碰撞过程的影响, 振动分辨的态选择截面可以通过电子态选择截面乘以 Franck-Condon 因子得到, 这种近似被称为电子态质心近似 (EACA):

$$\sigma_{\gamma\omega, \gamma'\omega'}^{CA} = \sigma_{\gamma, \gamma'}^{EA} | \chi_{\gamma\omega} | \chi_{\gamma'\omega'}|^2. \quad (9)$$

将电子振幅  $F_{\gamma\omega}$  做分波展开:

$$F_{\gamma\omega}(R) = \sum_{lm} \frac{f_{\gamma\omega}^{lm}(R)}{R} \chi_{\gamma\omega}(r) Y_{lm}(\hat{R}), \quad (10)$$

其中  $Y_{lm}$  是球谐函数, 将 (10) 式带入 (5) 式, 得到关于振幅的径向耦合方程:

$$\left[ \frac{d^2}{dR^2} - \frac{K(l+1)}{2\mu R^2} \right] f_{\gamma\omega}^{lm} - 2\mu \sum_{\gamma'\omega'} V_{\gamma\omega, \gamma'\omega'}^d(R) f_{\gamma'\omega'}^{lm} + 2\mu E f_{\gamma\omega}^{lm} = 0, \quad (11)$$

其满足的边界条件:

$$\lim_{R \rightarrow \infty} f_{\gamma\omega}^{lm}(R) \rightarrow \frac{1}{\sqrt{k_{\gamma\omega'}}} \{ \delta_{\gamma\omega, \gamma'\omega'} j_l(k_{\gamma\omega} R) + K_{\gamma\omega}^l \eta_l(k_{\gamma\omega} R) \},$$

$$k_{\gamma\omega} = \sqrt{2\mu [E - \epsilon_{\gamma\omega}(\infty)]}, \quad (12)$$

其中  $j_l$  和  $\eta_l$  分别为规则和不规则的 Bessel-Ricatti 函数,  $k_{\gamma\omega}$  为系统的约化动量,  $K^l$  为实对称  $K$  矩阵,  $S$  矩阵可以表示为

$$S^l = \frac{I + iK^l}{I - iK^l}, \quad (13)$$

从初通道  $i$  到末通道  $j$  的截面表达式为

$$\sigma_{i \rightarrow j} = \frac{\pi}{k_i^2} \sum_l (2l+1) |S^l|_{ij}^2, \quad (14)$$

相应的微分截面的表达式为

$$\frac{d\sigma(\theta)}{d\Omega} = \frac{1}{4k^2} \left[ \sum_l (2l+1) |S^l|_{ij} P_l(\cos\theta) \right]^2 \quad (15)$$

其中  $S^l$  为第  $l$  个分波对应的  $S$  矩阵,  $\theta$  为散射角.

### 3. 计算结果和讨论

我们计算了基态  $O^{3+}(2s^2 2p^2 P^o)$  与氢分子系统在入射能量分别为 100, 500, 1000, 5000 eV/u 的氢分

子离子振动分辨的非解离单电荷转移截面及相应的微分截面. 在我们的计算中, 初通道只考虑了氢分子的振动基态 ( $v=0$ ), 并且为了降低计算量, 未通道中  $H_2^+(v)$  的振动束缚态的振动量子数最大取为  $v \leq 11$ . 忽略了氢分子自身的转动, 对氢分子取不同的方位角  $\alpha = 25^\circ$ ,  $\alpha = 45^\circ$  和  $\alpha = 89^\circ$  进行了计算.

#### 3.1. 振动态分辨的非解离电荷转移截面

在 IOSA 和 VSA 的基础上, 利用自旋耦合价带理论计算的分子势能面和径向耦合矩阵元<sup>[9,40]</sup>求解 (5) 式, 通过 (14) 式可以计算氢分子离子振动分辨的非解离单电荷转移截面. 作为比较, 对不同电子态的未通道, 分别对其所有的氢分子离子振动分辨的态选择截面求和, 得到不同电子态的截面, 然后通过 (9) 式就可以得到 EACA 的氢分子离子振动分辨的非解离单电荷转移截面.

图 1 和图 2 分别给出了电子俘获到未通道  $O^{2+}(2p3s^3 P^o) + H_2^+(v')$  和  $O^{2+}(2p3s^1 P^o) + H_2^+(v')$  的氢分子离子振动分辨的非解离电荷转移截面, 并同对应的 EACA 结果比较. 可以看出, 两种方法计算的振动态选择截面随振动量子数  $v'$  的分布的规律不同. 随着入射能量的增加, VSA 方法计算结果随振动量子数  $v'$  的分布发生了改变. 在较低的入射能量, 比如 100 eV/u, 对  $H_2$  的不同方位角, 无论三重态还是单重态的未通道, 都是  $v'=1$  的振动态截面最大; 而随着入射能量增加,  $v'=2$  的振动态截面在所有振动态截面总和中的比重在逐渐增加, 当入射能量为 5000 eV/u 时, 除了  $\alpha = 25^\circ$  的三重态的振动态选择截面之外, 都是  $v'=2$  的振动态截面最大. 这是因为  $H_2^+$  的振动对电荷转移过程产生影响, 使得不同量子数的振动让电子态势能面发生不同程度的移动, 导致不同振动态的未通道同初通道势能面之间可避免交叉的位置发生了不同的改变. 而在 EACA 计算中, 完全忽略了  $H_2^+$  振动对碰撞过程的影响, 振动态选择截面随振动量子数  $v$  的分布是固定的, 即 Frank-Condon 因子的分布, 总是  $v'=2$  的态选择截面最大, 并且振动态选择截面随振动量子数  $v$  的增加减小缓慢, 因此分布在更多的振动态上. 因此,  $H_2^+$  振动对电荷转移过程产生了重要影响, 在振动态选择截面的计算中要充分考虑.

对于 VSA 的计算结果, 可以发现: 随着入射能量的增加, 单重态的振动态选择截面减小趋势明显, 而三重态的振动态选择截面减小缓慢; 对于相同的

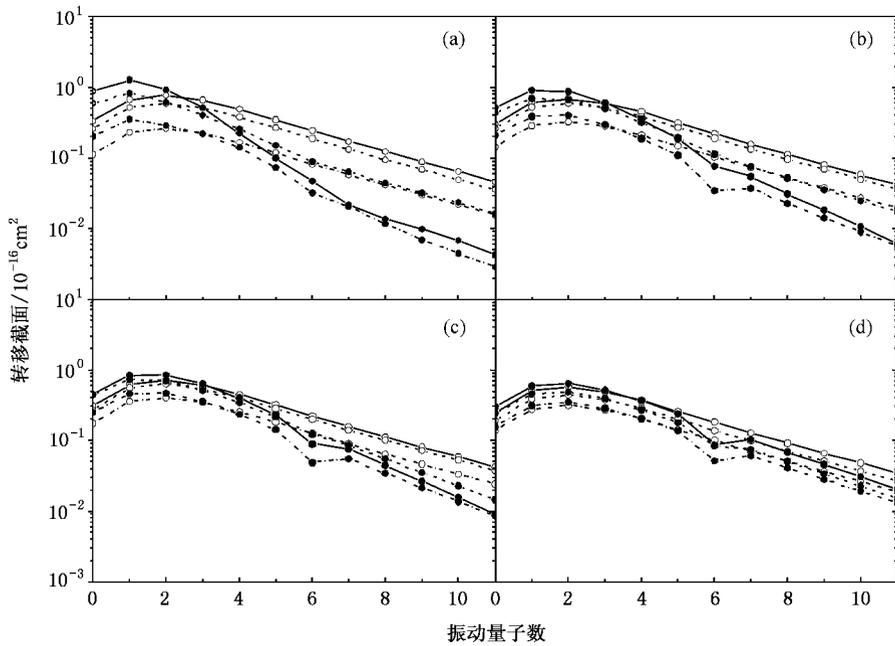


图 1  $O^3+(2s^22p^2P)+H_2(1s^2 X^1\Sigma_g^+, v=0)$  系统单电子俘获到  $O^{2+}(2p3s^3P^0)+H_2^+(1s X^2\Sigma_g^+, v')$  的氢分子离子振动分辨的非解离电荷转移截面随氢分子离子振动量子数的变化 入射能量分别为 (a) 100 eV/u (b) 500 eV/u (c) 1000 eV/u 和 (d) 5000 eV/u, 空心圆圈表示 EACA 近似的计算结果, 实心圆圈表示 VSA 近似的计算结果, 其中实线、点划线和点线分别表示氢分子方位角为  $\alpha = 25^\circ$ ,  $\alpha = 45^\circ$  和  $\alpha = 89^\circ$

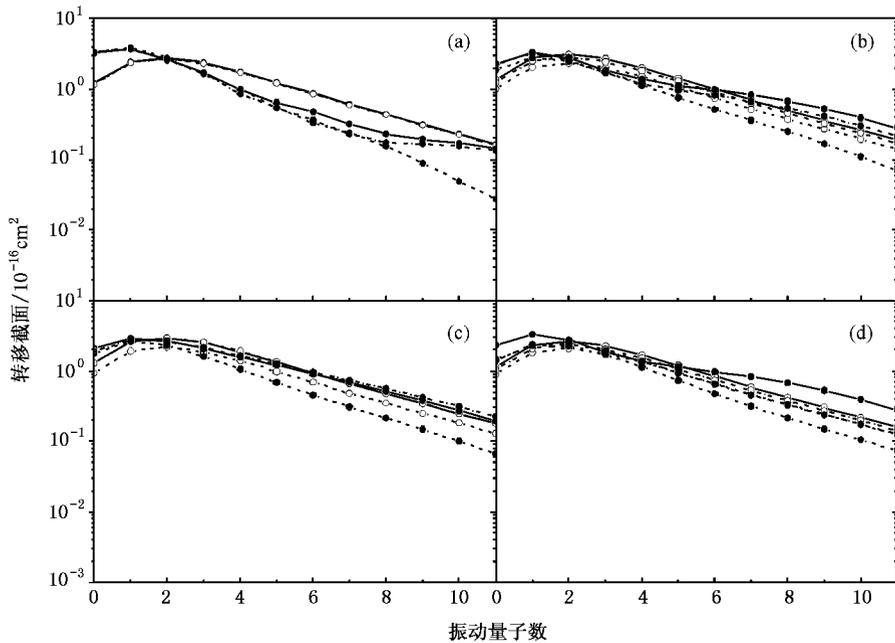


图 2  $O^3+(2s^22p^2P)+H_2(1s^2 X^1\Sigma_g^+, v=0)$  系统单电子俘获到  $O^{2+}(2p3s^1P^0)+H_2^+(1s X^2\Sigma_g^+, v')$  的氢分子离子振动分辨的非解离电荷转移截面随氢分子离子振动量子数的变化 入射能量分别为 (a) 100 eV/u (b) 500 eV/u (c) 1000 eV/u 和 (d) 5000 eV/u, 空心圆圈表示 EACA 近似的计算结果, 实心圆圈表示 VSA 近似的计算结果, 其中实线、点划线和点线分别表示氢分子方位角为  $\alpha = 25^\circ$ ,  $\alpha = 45^\circ$  和  $\alpha = 89^\circ$

入射能量和  $H_2$  方位角的散射,三重态的振动态选择截面要远大于相应的单重态的振动态选择截面(入射能量为 100 eV/u,  $H_2$  的方位角为  $\alpha = 25^\circ$  时最为接近,约为 4 倍),这种差别是由于三重态与单重态的末通道同初通道在可避免交叉点附近的相互作用的强弱不同所决定;而对于相同入射能量和不同  $H_2$  方位角的散射,无论三重态还是单重态,振动态选择截面随振动量子数的分布都存在差异,这是由于  $H_2$  方位角不同时,  $O^{3+}$  同  $H_2$  之间的极化作用不同,这种差异在微分截面的计算中会有更明显的反映.此外,从图 1 和图 2 的 VSA 振动态选择截面曲线可以看出,除个别曲线外,其他曲线的最低点值( $v = 11$  的振动态选择截面)都不到其峰值值的 4%,而当  $v_{\max}$  从 9 增加到 11 时,总的三重态选择截面的增加约  $10^{-3}$  量级,单重态选择截面的增加不到  $10^{-4}$ .这表明  $v > 11$  的  $H_2^+(v)$  的振动态截面已经很小(电子基态的  $H_2^+(v)$  共有 20 个振动束缚态,  $v = 0-19$ ),本文中由于计算量的原因截取  $v \leq 11$  是一种合理的近似,文献 [9] 中取  $v \leq 9$  也是合理的.

### 3.2. 振动态分辨的非解离电荷转移微分截面

在 IOSA 和 VSA 的基础上,利用自旋耦合价带理论计算的分子势能面和径向耦合矩阵元<sup>[9,10]</sup>求解(5)式,通过(15)式可以计算氢分子离子振动态分辨的非解离电荷转移的微分截面.

图 3 显示了  $H_2$  方位角为  $45^\circ$ ,入射能量分别为 100, 500, 1000 和 5000 eV/u,单电子俘获到  $O^{2+}(2p3s^3P^o)$  和  $O^{2+}(2p3s^1P^o)$  的振动分辨的微分截面,三重和单重电子态微分截面分别由其包含的振动态微分截面对振动量子数求和而得到.可以看出,对不同能量,三重和单重态微分截面具有类似的结构:在极小的散射角附近出现一个最大值平台,然后随着散射角的增大而减小,并出现大量的震荡结构,其中第一个震荡结构对应的散射角位置随入射能量  $E_p$  以  $E_p^{-1/2}$  的标度规律变化.这种类似的结构在对其他体系的电荷转移过程研究中也被发现<sup>[17,18]</sup>.本文认为,这些震荡结构的出现,是初末通道不同角动量的  $l$  分波间的相互作用的结果,是对分子自身结构的反映,而第一个震荡结构对应的散射角的位置随入射能量变化的规律,同与经典散射中角动量守恒的规律是一致的.在以前的 IOSA 计算中<sup>[11]</sup>发现,当入射能量比较高( $E_p > 50$  eV/u)时,这种标度规律就不能很好地保持了,主要原因是计算中使用的自旋耦合

价带理论计算的径向耦合矩阵元<sup>[9,10]</sup>  $V_{\gamma,\gamma'}^d(R,r,\theta)$  不够光滑,从而导致了振动分辨的非绝热耦合矩阵元光滑性不够(见(6)式);而在本文的 VSA 计算中,对  $V_{\gamma,\gamma'}^d(R,r,\theta)$  的光滑性要求降低(见(8)式),从而消除了这种反常行为,并极大地降低了计算量.还可以发现,随着入射能量的不断增加,小角度散射的概率逐渐增大,这是由于快速碰撞的相互作用时间比较短,能量和动量转移比较少,因此更多的入射离子会在小角度被散射.对于相同的入射能量,三重态截面同单重态截面具有类似的结构,第一个震荡结构对应的散射角位置很接近,但在大小上却存在很大的差别,这是由于三重态和单重态势能面的可避免交叉的位置很接近,而相互作用强弱却差别很大所造成的<sup>[9,10]</sup>.

图 4 显示了  $H_2$  方位角为  $89^\circ$  时,入射能量分别为 100, 500, 1000 和 5000 eV/u,分别俘获到  $O^{2+}(2p3s^3P^o)$  和  $O^{2+}(2p3s^1P^o)$  的电子态微分截面,三重和单重态截面分别由其包含的振动态微分截面对  $H_2^+(v')$  的振动量子数求和而得到.氢分子方位角为  $25^\circ$  时的电子态微分截面,在结构和大小上都与  $45^\circ$  方位角的散射截面非常相似,这里不再给出.对比图 4 和图 3 可以看出,在散射截面的结构上,  $89^\circ$  方位角的重态微分散射截面同  $45^\circ$  方位角的散射截面很相似,而单重态微分散射截面之间却存在较大差异:  $89^\circ$  散射截面的第一个震荡结构不太明显,靠近  $0^\circ$  角的极大值平台显著降低.在散射截面的大小上,对相同的能量不同的氢分子方位角的散射,三重态的微分散射截面随氢分子方位角的变化不大,而单重态截面则有明显不同,特殊是在  $89^\circ$  方位角的散射,与其他两者有着数量级的差异,即存在这样的规律:对相同能量的散射,随着氢分子方位角的增大,三重态微分截面与单重态微分截面的比值显著增大,这种性质可以用来定性确定  $H_2$  的方位角大小.这种由于  $H_2$  方位角不同而导致微分散射截面在结构和大小上的差异,是由于从不同方向的散射导致系统结构上存在的微小差别所产生的,在后面我们将通过某个能量某个方位角的单一振动态的微分截面进行分析.

图 5 和图 6 分别给出了入射能量为 100 eV/u,  $H_2$  方位角分别为  $45^\circ$  和  $89^\circ$ ,  $H_2^+(v')$  振动量子数分别为  $v' = 0, 1, 2, 3$  的振动态微分截面.根据 3.1 节知道,  $v' = 0, 1, 2, 3$  的振动态选择截面较大,最能代表单一振动态的微分截面的性质.从图中可以看出,

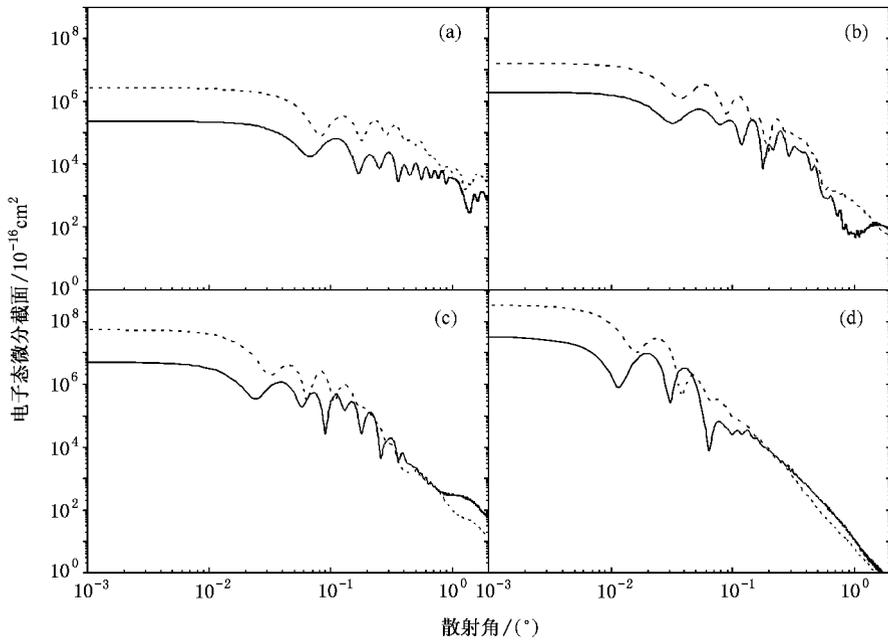


图3  $O^3+(2s^22p^2P)+H_2(1s^2X^1\Sigma_g^+,v=0)$ 系统单电子俘获到  $O^2+(2p3s^3P^o)+H_2^+(1sX^2\Sigma_g^+,v'=0,11)$ 和  $O^2+(2p3s^1P^o)+H_2^+(1sX^2\Sigma_g^+,v'=0,11)$ 的电子态微分截面,这里三重态和单重态微分截面分别由其包含的振动态微分截面求和得到.入射能量分别为(a)100 eV/u,(b)500 eV/u,(c)1000 eV/u和(d)5000 eV/u,氢分子方位角为  $\alpha=45^\circ$ .其中实线表示三重态微分截面,点划线表示单重态微分截面.

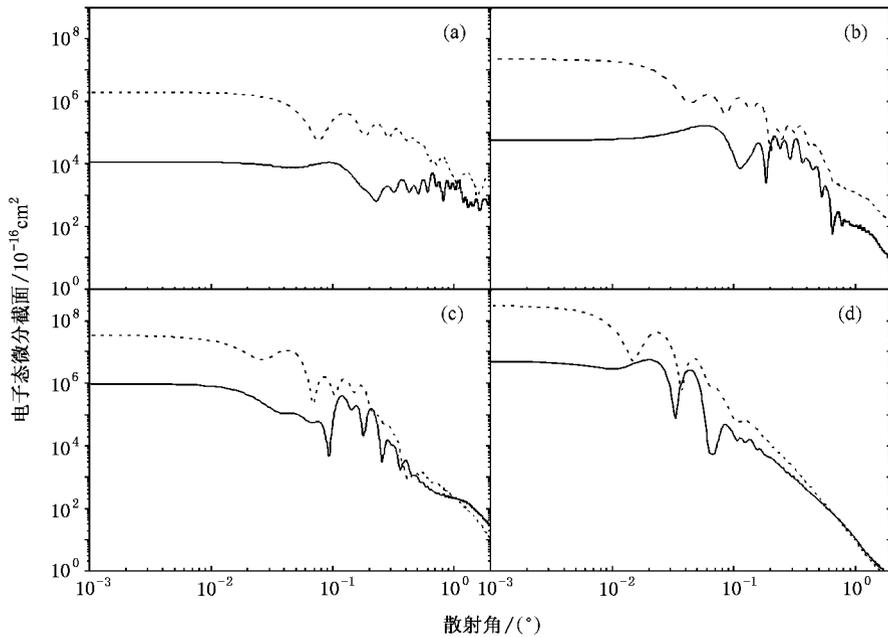


图4  $O^3+(2s^22p^2P)+H_2(1s^2X^1\Sigma_g^+,v=0)$ 系统单电子俘获到  $O^2+(2p3s^3P^o)+H_2^+(1sX^2\Sigma_g^+,v'=0,11)$ 和  $O^2+(2p3s^1P^o)+H_2^+(1sX^2\Sigma_g^+,v'=0,11)$ 的电子态微分截面,这里三重态和单重态微分截面分别由其包含的振动态微分截面求和得到.入射能量分别为(a)100 eV/u,(b)500 eV/u,(c)1000 eV/u和(d)5000 eV/u,氢分子方位角为  $\alpha=89^\circ$ .其中实线表示三重态微分截面,点划线表示单重态微分截面.

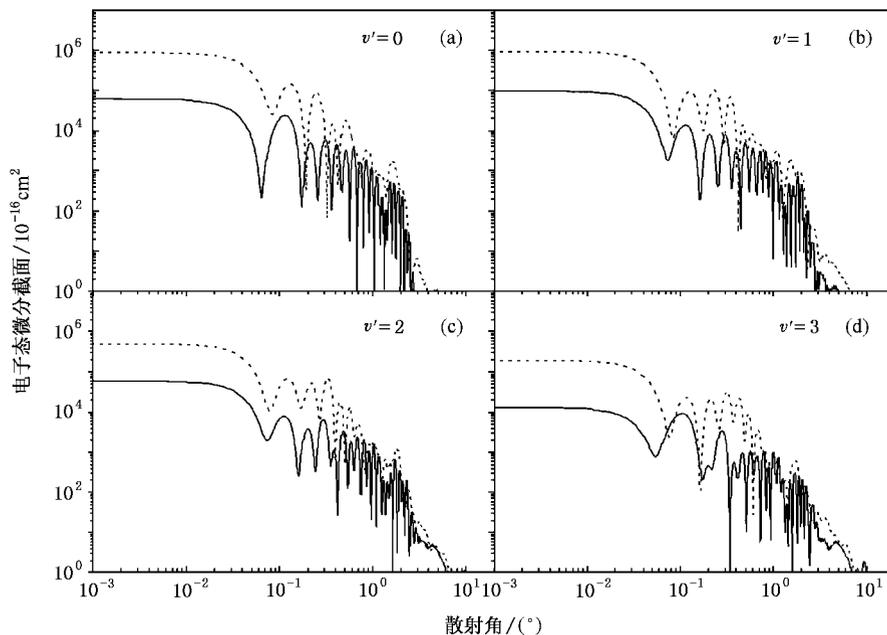


图 5  $O^{3+}(2s^2 2p^2 P) + H_2(1s^2 X^1 \Sigma_g^+, v=0)$  系统单电子俘获到  $O^{2+}(2p3s^3 P^o) + H_2^+(1s X^2 \Sigma_g^+, v'=0, 1, 2, 3)$  和  $O^{2+}(2p3s^1 P^o) + H_2^+(1s X^2 \Sigma_g^+, v'=0, 1, 2, 3)$  的  $H_2^+$  的振动态选择微分截面 入射能量为 100 eV/u, 氢分子方位角为  $\alpha = 45^\circ$ , 其中实线表示三重态微分截面, 点划线表示单重态微分截面

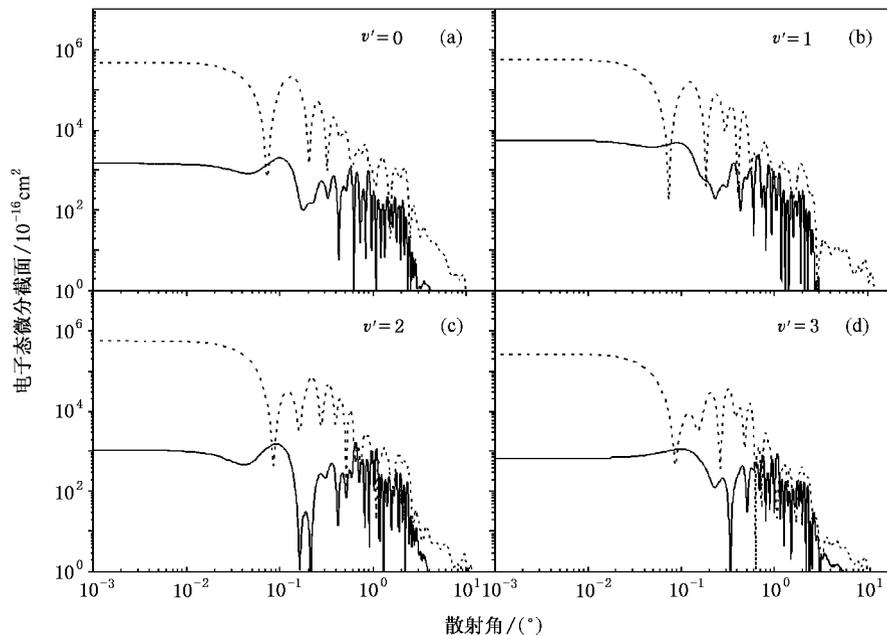


图 6  $O^{3+}(2s^2 2p^2 P) + H_2(1s^2 X^1 \Sigma_g^+, v=0)$  系统单电子俘获到  $O^{2+}(2p3s^3 P^o) + H_2^+(1s X^2 \Sigma_g^+, v'=0, 1, 2, 3)$  和  $O^{2+}(2p3s^1 P^o) + H_2^+(1s X^2 \Sigma_g^+, v'=0, 1, 2, 3)$  的  $H_2^+$  的振动态选择微分截面 入射能量为 100 eV/u, 氢分子方位角为  $\alpha = 89^\circ$ , 其中实线表示三重态微分截面, 点划线表示单重态微分截面

$H_2$  方位角分别为  $45^\circ$  和  $89^\circ$  时, 三重态和单重态的单一振动态的微分截面都与其相应的电子态微分截面

具有类似的结构:  $45^\circ$  方位角散射的三重态和单重态的单一振动态及  $89^\circ$  方位角的三重态的单一振动态,

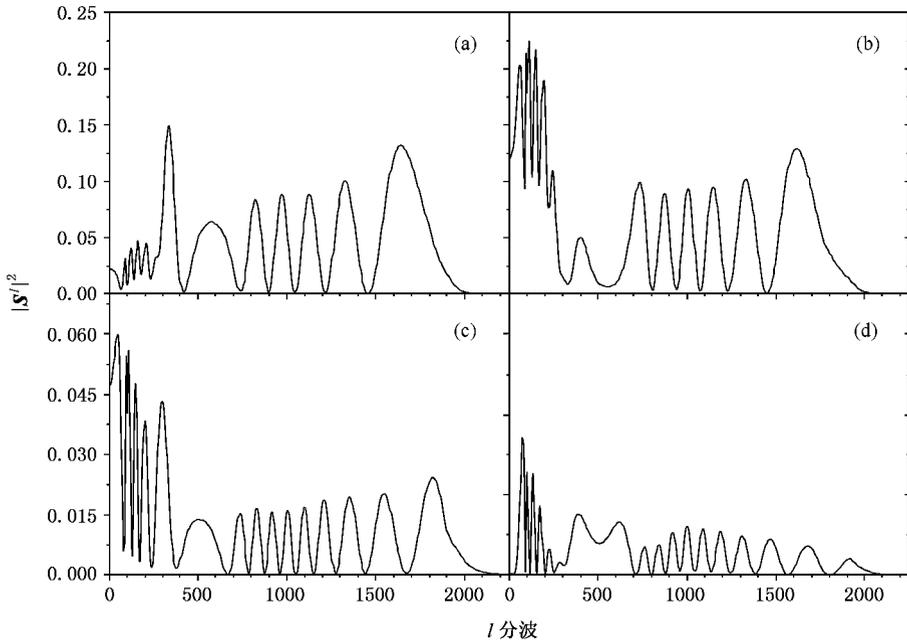


图 7  $O^{3+}(2s^2 2p^2 P) + H_2(1s^2 X^1 \Sigma_g^+, v=0)$  系统单电子俘获到  $O^{2+}(2p3s^3 P^o) + H_2^+(1s X^2 \Sigma_g^+, v'=1)$  和  $O^{2+}(2p3s^1 P^o) + H_2^+(1s X^2 \Sigma_g^+, v'=1)$  的  $|S^l|^2$  随分波  $l$  的变化. 入射能量为 100 eV/u. 氢分子方位角及未通道的多重度为 (a)  $\alpha = 45^\circ$ , 三重态 (b)  $\alpha = 89^\circ$ , 三重态 (c)  $\alpha = 45^\circ$ , 单重态 (d)  $\alpha = 89^\circ$ , 单重态

在散射角很小时出现极大值平台, 然后随着散射角的增大而减小, 并出现震荡结构; 而  $89^\circ$  方位角的单重态的单一振动态, 在散射角很小时的极大值平台显著降低, 第一个震荡结构变的不明显. 在微分散射截面的大小上, 同  $45^\circ$  方位角的散射相比,  $89^\circ$  方位角散射的某个振动态的三重态微分散射截面与单重态微分散射截面的比值显著增大. 下面, 对入射能量为 100 eV/u,  $H_2$  方位角分别为  $\alpha = 45^\circ$  和  $\alpha = 89^\circ$ , 振动量子数  $v' = 1$  的微分散射截面, 通过分析其对应的  $S$  矩阵的  $l$  分波矩阵元的平方  $|S^l|^2$  随分波  $l$  的变化规律, 来对以上的现象予以解释.

图 7 给出了  $S$  矩阵的  $l$  分波矩阵元的平方  $|S^l|^2$  随  $l$  分波的变化. 我们知道, 经典散射中小角度散射对应于大的碰撞参数, 即对应于角动量大的分波. 在这里具有同样的定性对应关系. 图 7 中  $l = 2000$  附近的  $|S^l|^2$  的波包对应于图 5 和图 6 中  $v' = 1$  的振动态微分散射截面在很小散射角附近的极大值平台. 从图 7 可以看出, 方位角为  $89^\circ$  的单重态微分散射截面的  $S$  矩阵在  $l = 2000$  附近的  $|S^l|^2$  很小, 这就是导致图 6 中  $v' = 1$  的微分散射截面在很小散射角附近的极大值平台显著降低的原因, 同样的理由也可以解释图 4 中  $89^\circ$  方位角的单重微分散射截面的结构同

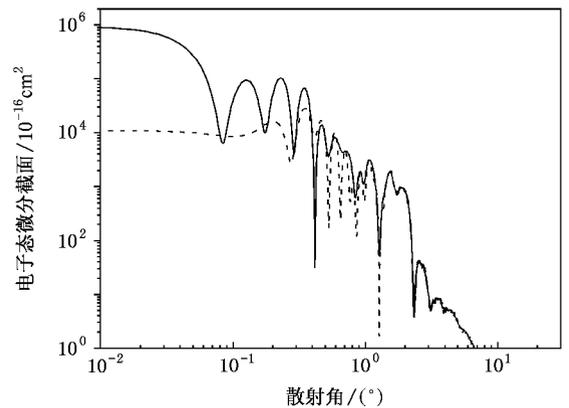


图 8  $O^{3+}(2s^2 2p^2 P) + H_2(1s^2 X^1 \Sigma_g^+, v=0)$  系统单电子俘获到  $O^{2+}(2p3s^3 P^o) + H_2^+(1s X^2 \Sigma_g^+, v'=1)$  的振动态微分散射截面, 当包含不同数目的分波矩阵元贡献时的比较. 入射能量为 100 eV/u, 氢分子方位角为  $\alpha = 45^\circ$ . 其中实线表示包含所有分波贡献的微分散射截面, 点划线表示排除  $1455 \leq l \leq 2100$  范围内分波矩阵元贡献的微分散射截面

其他方位角的微分散射截面结构差异. 而  $S$  矩阵分波矩阵元不同, 则是由于从不同方向入射时, 入射离子同靶分子之间的极化作用不同所造成的. 这种极化作用对低能离子同分子碰撞的电荷转移过程非常重要. 对于不同角动量的分波矩阵元与不同散射角处

的微分截面的定性对应关系, 我们可以通过计算进行检验.

从图 7 中可以看出, 对于氢分子方位角  $\alpha = 45^\circ$ ,  $v' = 1$  的三重态电荷转移过程, 根据我们的定性对应关系,  $S$  矩阵在  $1455 \leq l \leq 2100$  之间的矩阵元平方  $|S^l|^2$  的极大值波包对应与图 5(b) 的三重微分截面在极小散射角处的极大值平台, 在利用(15)式计算微分散射截面时, 如果排除这部分分波矩阵元的贡献来计算微分截面, 并把结果同图 5(b) 的三重微分截面进行比较, 就可以检验这种对应关系, 比较见图 8. 从图 8 可以看出, 在排除  $1455 \leq l \leq 2100$  范围内分波矩阵元的贡献之后, 三重微分截面在极小散射角处的极大值平台显著降低, 其结构与图 4(a) 及图 6(b) 的  $89^\circ$  的单重态微分截面的结构非常相似, 这就验证了不同角动量的分波矩阵元与不同散射角处的微分截面间存在这种定性对应关系.

## 4. 结 论

本文利用全量子的分子轨道强耦合方法, 研究了基态的  $O^{3+}(2s^2 2p^2 P)$  与氢分子碰撞的非解离电

荷转移过程. 分别计算了不同的氢分子方位角 ( $25^\circ$ ,  $45^\circ$ ,  $89^\circ$ ), 入射能量分别为 100, 500, 1000, 5000 eV/u 的单电子俘获的振动分辨的态选择截面及相应的微分截面. 结果发现, 不同入射能量和不同氢分子方位角的振动分辨的微分截面具有类似的结构, 在极小的散射角附近出现一个最大值平台, 随着散射角的增大而减小, 并出现大量的震荡结构. 随着能量  $E_p$  的增加, 第一个震荡结构对应的散射角位置以  $E_p^{-1/2}$  的标度规律减小. 随着  $H_2$  方位角的增加, 同一能量同一方位角散射的三重态微分截面与单重态微分截面的比值增大, 并且  $89^\circ$  方位角的微分截面的结构发生了明显变化. 极小散射角附近的极大值平台显著降低, 第一个震荡结构不太明显. 这种微分截面的结构和相对大小随  $H_2$  方位角的敏感变化的特性, 可以用来对  $H_2$  的取向进行诊断. 此外, 随着入射能量的增加, 振动分辨的微分截面随振动量子数的分布发生改变: 入射能量从 100 eV/u 逐渐增加到 5000 eV/u 的过程中, 散射截面最大的振动态逐渐从  $v = 1$  态变为  $v = 2$  态. 目前为止, 还没有关于这个过程的其他理论和实验结果, 我们期待能有这方面的高精度的实验测量, 来对本文的工作进行检验.

- [1] Janev R K 1995 *Atomic and Molecular Processes in Fusion Edge Plasma* (New York: Plenum Press) p397
- [2] Janev R K, Kato T, Wang J G 2000 *Physics of Plasma* **7** 4364
- [3] Sternberg A, Yan M, Dalgarno A 1996 in *Molecules in Astrophysics: Probes and Processes*, IAU symposium 178, ed. van Dishoeck E F (IAU, 1996) p141
- [4] Lisse C M, Dennerl K, Englhauser J, Harden M, Marshall F E, Mumma M J, Petre R, Pye J P, Ricketts M J, Schmitt J, Trümper J, West R G 1996 *Science* **274** 205
- [5] Krasnopolsky V A, Mumma M J 2001 *Astrophys. J.* **549** 629
- [6] Liu C L, He B, Yan J, Wang J G 2007 *Acta Phys. Sin.* **56** 327 (in Chinese) [刘春雷, 何斌, 颜君, 王建国 2007 物理学报 **56** 327]
- [7] Ning Y, He B, Liu C L, Yan J, Wang J G 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 3075 (in Chinese) [宁焯, 何斌, 刘春雷, 颜君, 王建国 2005 物理学报 **54** 3075]
- [8] Liu C L, He B, Ning Y, Yan J, Wang J G 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 3206 (in Chinese) [刘春雷, 何斌, 宁焯, 颜君, 王建国 2005 物理学报 **54** 3206]

- [9] Wang J G, Stancil P C, Turner A R, Cooper D L 2004 *Phys. Rev. A* **69** 62702
- [10] Stancil P C, Wang J G, Turner A R, Cooper D L 2004 *Faraday Discussion* **127** 73
- [11] Liu L, Wu Y, Ning Y, Zeng S L, Wang J G 2008 *Eur. Phys. J. D* (in Press)
- [12] Kimura M, Lane N F 1990 *Adv. At. Mol. Opt.* **26** 79
- [13] Zygelman B, Cooper D L, Ford M J, Dalgarno A, Gerratt J, Raimondi M 1992 *Phys. Rev. A* **46** 3846
- [14] Wang J G, Stancil P C, Turner A R, Cooper D L 2003 *Phys. Rev. A* **67** 12710
- [15] Wang J G, Turner A R, Cooper D L, Schultz D R, Rakovi M J, Fritsch W, Stancil P C, Zygelman B 2002 *J. Phys. B* **35** 3137
- [16] Heil T G, Butler S E, Dalgarno A 1983 *Phys. Rev. A* **27** 2365
- [17] Suno H, Rai S N, Liebermann H P, Bunker R J, Kimura M, Pichl L 2003 *Phys. Rev. A* **67** 12710
- [18] Gao R S, Dutta C M, Lane N F, Smith K A, Stebbings R F 1992 *Phys. Rev. A* **45** 6388

# Quantum-mechanical calculations of vibrationally resolved cross sections for non-dissociative charge transfer of $O^{3+}$ with $H_2$ \*

Wu Yong<sup>1)</sup> Liu Ling<sup>1)</sup> Wang Jian-Guo<sup>1,2)</sup>

<sup>1)</sup> *Laboratory of Computational Physics, Institute of Applied Physics and Computational Mathematics, Beijing 100088, China*

<sup>2)</sup> *Institute of Modern Physics, Chinese Academy of Sciences, Lanzhou 730000, China*

( Received 20 March 2007 ; revised manuscript received 17 April 2007 )

## Abstract

Charge transfer due to collisions of ground state  $O^{3+}(2s^22p^2P)$  ions with molecular hydrogen is investigated using the quantum-mechanical molecular-orbital close-coupling (MOCC) method, and electronic and vibrational state-selective cross sections along with the corresponding differential cross sections are calculated for projectile energies of 100, 500, 1000 and 5000 eV/u at the orientation angles of  $25^\circ$ ,  $45^\circ$  and  $89^\circ$ . The adiabatic potentials and radial coupling matrix elements utilized in the QMOCC calculations were obtained with the spin-coupled valence-bond approach. The infinite order sudden approximation (IOSA) and the vibrational sudden approximation (VSA) are utilized to deal with the rotation of  $H_2$  and the coupling between the electron and the vibration of  $H_2$ . It is found that the distribution of vibrationally resolved cross sections with the vibrational quantum number  $v'$  of  $H_2^+(v')$  varies with the increment of the projectile energy; and the electronic and vibrational state-selective differential cross sections show similar behaviors: there is a highest platform within a very small scattering angle, beyond which the differential cross sections decrease as the scattering angle increases and lots of oscillating structures appear, where the scattering angle of the first structure decreases as  $E_p^{-1/2}$  with the increment of the projectile energy  $E_p$ ; and the structure and amplitude of the differential cross sections are sensitive to the orientation of molecule  $H_2$ , which provides a possibility to identify the orientations of molecule  $H_2$  by the vibrational state-selective differential scattering processes.

**Keywords:** non-dissociative electron capture, molecular-orbital close-coupling method, infinite-order sudden approximation, vibrational sudden approximation

**PACC:** 5220H, 3400, 0365N

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 10604011, 10574018, 10574020) and the National High Technology Research and Development Program for Intertial Confinement Fusion of China.