

# $^3\text{He}(^4\text{He})$ 与 $\text{H}_2$ 分子碰撞的同位素效应研究\*

沈光先<sup>1)†</sup> 汪荣凯<sup>1)</sup> 令狐荣锋<sup>1)‡</sup> 杨向东<sup>2)†</sup>

1) 贵州师范大学理学院, 贵阳 550001)

2) 四川大学原子与分子物理研究所, 成都 610065)

(2007 年 10 月 16 日收到, 2007 年 11 月 22 日收到修改稿)

用公认精确度较高的密耦近似方法计算了入射能量  $E = 0.5$  eV 时惰性气体原子  $^3\text{He}(^4\text{He})$  与  $\text{H}_2$  分子替代碰撞体系的转动激发碰撞截面. 通过分析  $^3\text{He}(^4\text{He})\text{-H}_2$  碰撞体系分波截面和微分截面的差异, 总结出在氦原子的同位素替代情形下  $^3\text{He}(^4\text{He})\text{-H}_2$  碰撞体系分波截面和微分截面随分波数增加和同位素原子质量改变的变化规律.

关键词: 散射截面, 密耦方法, 同位素替代, 散射角

PACC: 3440, 3450

## 1. 引 言

原子与双原子分子的转动激发碰撞在许多物质反应过程如星际物质的冷却、气体激光行为预测<sup>[1,2]</sup>、气体碰撞的共振荧光<sup>[3]</sup>、气象弛豫<sup>[4]</sup>等过程中起着重要作用, 而且它还还为分子间转动激发碰撞过程的研究提供了一个简单的物理模型. 因此, 对原子与双原子分子的转动激发碰撞的深入研究, 在有关原子分子碰撞的理论研究和实际应用中具有十分重要的意义.

在原子分子碰撞的诸多研究方向中, 对同位素替代效应的研究是原子分子碰撞研究的前沿课题之一. 由于参与原子分子碰撞过程的某些原子具有数种同位素, 为了获得实际体系中各种同位素效应的大小并确定在测量中由此效应引起的精度变化, 必须研究此类原子与分子碰撞过程中的同位素替代效应. 然而, 除了  $\text{H}_2$ ,  $\text{D}_2$ ,  $\text{T}_2$  分子与原子碰撞的同位素替代效应研究<sup>[5,6]</sup>外, 其他分子与原子碰撞的同位素替代效应的研究很少.

氦原子( $^3\text{He}$ ,  $^4\text{He}$ )与氢分子( $\text{H}_2$ )碰撞作为最简单的原子分子碰撞系统之一而受到研究者的高度重视<sup>[7-16]</sup>, 但对于它的同位素替代效应研究尚处于探索阶段. 而且, 由于 He 原子的极化能力远小于其他

稀有气体(Ne, Ar, Kr, Xe), 故产生分子间相互作用势吸引部分的诱导和弥散力更小, 所以 He 与  $\text{H}_2$  分子之间的相互作用更弱, 因键能很小, 研究重稀有气体复合物的实验技术很难成功应用到 He 与  $\text{H}_2$  分子形成的复合物上. 此外, 由于散射实验对仪器设备的要求非常高, 实验难度较大, 因此散射实验数据极少. 这样从理论上研究氦及其同位素与氢分子的碰撞激发并给出规律性结论就显得尤为重要. 本文拟对氦原子( $^3\text{He}$ ,  $^4\text{He}$ )与氢分子( $\text{H}_2$ )的同位素替代碰撞的转动激发分波截面和微分截面进行理论计算和系统分析, 以期能为相关的实验研究提供一定的理论参考和依据.

## 2. 理论计算方法

原子和双原子分子碰撞体系的 Hamiltonian 可表示为

$$\mathbf{H} = -\frac{\hbar^2}{2\mu_{A,BC}} \nabla_R^2 - \frac{\hbar^2}{2\mu_{BC}} \nabla_r^2 + V(R, r, \cos\theta), \quad (1)$$

其中  $\mu_{A,BC}$  和  $\mu_{BC}$  分别为总体系和双原子分子的约化质量,  $\cos\theta = (\hat{R} \cdot \hat{r})$  (如图 1 所示). 体系的总波函数可以写为

\* 国家自然科学基金(批准号: 10574096), 高等学校博士点专项科研基金(批准号: 20050610010), 贵州省教育厅自然科学重点项目(批准号: 2005105)和贵州省优秀科技人才省长专项资金项目(批准号: 黔省专合字(2006)13号)资助的课题.

† 通讯联系人. E-mail: shguangxian@sina.com

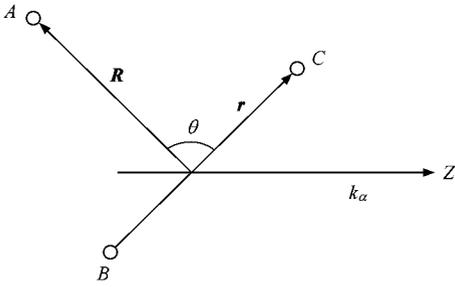


图1 原子与双原子分子碰撞的几何图形

$$\psi_{\alpha}^{(+)}(\mathbf{R}, \mathbf{r}) = \frac{1}{K_{n_{\alpha} J_{\alpha}} R} \sum_{n_{\gamma} J_{\gamma}} g_{n_{\gamma} J_{\gamma}}^J(\mathbf{R}) \phi_{n_{\gamma} J_{\gamma}}(r) Y_{JM_{\alpha}}^J(\hat{R}, \hat{r}), \quad (2)$$

式中  $g(R)$  是入射原子相对分子质心运动的径向波函数,  $\phi(r)$  是双原子分子振-转波函数的径向部分, 下标  $\alpha$  表示入射通道, 下标  $\gamma$  表示其他可能发生的通道,  $n_{\alpha}$  是分子初态的振动量子数,  $\hbar k_{n_{\alpha} J_{\alpha}}$  是初态通道的相对动量,  $l_{\gamma}, J_{\gamma}$  分别表示  $\gamma$  通道中原子绕分子转动和靶分子转动的量子数,  $Y(\hat{R}, \hat{r})$  代表原子绕分子转动和分子中原子转动的总角函数. 总波函数  $\psi_{\alpha}^{(+)}(\mathbf{R}, \mathbf{r})$  满足的 Schrödinger 方程为

$$(\mathbf{H} - E)\psi_{\alpha}^{(+)}(\mathbf{R}, \mathbf{r}) = 0, \quad (3)$$

把(1)(2)式代入(3)式并进行适当变形可得

$$\left( \frac{d^2}{dR^2} - \frac{l_{\beta}(l_{\beta} + 1)}{R^2} + k_{n_{\beta} J_{\beta}}^2 \right) g_{n_{\beta} J_{\beta}}^J(\mathbf{R}) = \frac{2\mu_{A,BC}}{\hbar^2} \sum_{n_{\gamma} J_{\gamma}} V_{n_{\beta} J_{\beta}, n_{\gamma} J_{\gamma}}^J(\mathbf{R}) g_{n_{\gamma} J_{\gamma}}^J(\mathbf{R}), \quad (4)$$

(4)式就是计算原子和分子碰撞径向波函数的密耦方程.

对于  $\text{He-H}_2$  碰撞体系, 其相互作用势模型可表述为<sup>[17]</sup>

$$V(\mathbf{R}, \mathbf{r}, \theta) = \sum_{\lambda=0} V_{\lambda}(\mathbf{R}, \mathbf{r}) P_{\lambda}(\cos \theta), \quad (\lambda = 0, 1, 2, \dots), \quad (5)$$

式中  $r$  表示双原子分子中两原子的距离,  $R$  表示入射原子到双原子分子质心的距离, 而  $\theta$  则表示位矢  $\mathbf{r}$  和  $\mathbf{R}$  间的夹角. 另外(5)式中的每一项展开系数  $V_{\lambda}(\mathbf{R}, \mathbf{r})$  可用短程自洽场排斥势和长程色散吸引势来表示:

$$V_{\lambda}(\mathbf{R}, \mathbf{r}) = A \exp(-bR) - \sum_{2n=0}^{\infty} \left[ 1 - \sum_{k=0}^{2n} \frac{(bR)^k}{k!} \exp(-bR) \right] \frac{C_{2n}}{R^{2n}}, \quad (6)$$

在 Born-Oppenheimer 近似下, 同位素替代不影响体系的相互作用势, 对  $^3\text{He-H}_2$  的同位素替代体系  $^4\text{He-H}_2$ , 不仅其势能面不变, 靶分子的质心也没有因为同位素替代而发生移动, 故其在质心坐标系中的势能函数保持不变.

从  $(n_{\alpha} J_{\alpha})$  到  $(n_{\beta} J_{\beta})$  的微分散射截面由下式给出:

$$\frac{d\sigma_{n_{\alpha} J_{\alpha} \rightarrow n_{\beta} J_{\beta}}}{d\Omega} = \frac{1}{2J_{\alpha} + 1} \times \frac{K_{\beta}}{K_{\alpha}} \sum_{M_{\alpha} M_{\beta}} \left| f_{n_{\beta} J_{\beta} M_{\beta}, n_{\alpha} J_{\alpha} M_{\alpha}}(\theta, \varphi) \right|^2, \quad (7)$$

其中

$$f_{n_{\beta} J_{\beta} M_{\beta}, n_{\alpha} J_{\alpha} M_{\alpha}}(\theta, \varphi) = \left( \frac{4\pi}{K_{\alpha} K_{\beta}} \right)^{\frac{1}{2}} \sum_{l_{\beta}} [2l_{\beta} + 1]^{\frac{1}{2}} \times A_{l_{\beta}}(n_{\alpha} J_{\alpha} M_{\alpha} \rightarrow n_{\beta} J_{\beta} M_{\beta}) Y_{l_{\beta} M_{\alpha} - M_{\beta}}(\theta, \phi), \quad (8)$$

$$A_{l_{\beta}}(n_{\alpha} J_{\alpha} M_{\alpha} \rightarrow n_{\beta} J_{\beta} M_{\beta}) = \sum_J l_{\beta} M_{\alpha} - M_{\beta} J_{\beta} M_{\beta} |JM_{\alpha} T_{n_{\beta} J_{\beta}, n_{\alpha} J_{\alpha}}^J, \quad (9)$$

从  $(n_{\alpha} J_{\alpha})$  跃迁到  $(n_{\beta} J_{\beta})$  的分波散射截面由下式给出:

$$\sigma_{n_{\alpha} J_{\alpha} \rightarrow n_{\beta} J_{\beta}}^J = \frac{1}{2J_{\alpha} + 1} \times \frac{4\pi}{K_{\alpha}^2} \sum_{l_{\beta} M_{\alpha}} (2l_{\beta} + 1) \left| T_{n_{\beta} J_{\beta}, n_{\alpha} J_{\alpha}}^J \right|^2. \quad (10)$$

### 3. 计算结果及讨论

取入射原子的相对碰撞能量  $E = 0.5 \text{ eV}$ , 对  $^3\text{He}$ ( $^4\text{He}$ )原子与  $\text{H}_2$  分子碰撞体系的总分波截面, 总微分截面, 00-00 弹性分波截面, 00-00 弹性微分截面, 00-02, 00-04, 00-06 非弹性分波截面和 00-02, 00-04, 00-06 非弹性微分截面进行了计算, 结果如图 2 至图 11 所示.

图 2 给出了入射能量  $E = 0.50 \text{ eV}$  时  $^3\text{He}$ ( $^4\text{He}$ ) -  $\text{H}_2$  碰撞体系的弹性与非弹性碰撞分波截面. 图 3 给出了入射能量  $E = 0.50 \text{ eV}$  时  $^3\text{He}$ ( $^4\text{He}$ )与  $\text{H}_2$  分子碰撞体系的 00-00 弹性碰撞分波截面. 从图 2 中可以看出, 对于确定的入射能量  $E$ , 总的分波截面与弹性分波截面的变化规律非常相似, 即分波截面均随  $J$  的增加而不断振荡, 且振幅越来越大, 直到达到一个极大值, 然后收敛, 但振荡的各极大值的位置依次向  $J$  较大的方向移动, 且未出现明显的尾部效应, 收敛所需分波数随同位素原子质量(即入射原子质量)的

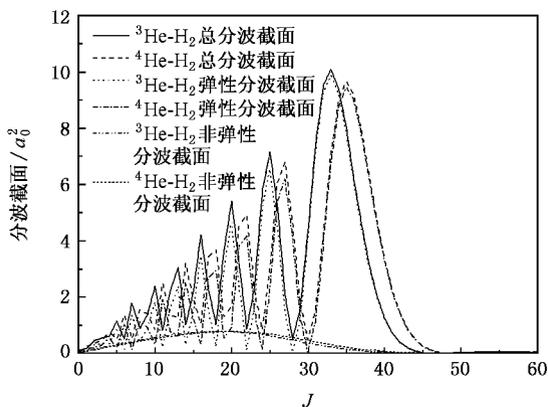


图2  ${}^3\text{He}({}^4\text{He})\text{-H}_2$  碰撞弹性与非弹性分波截面的比较

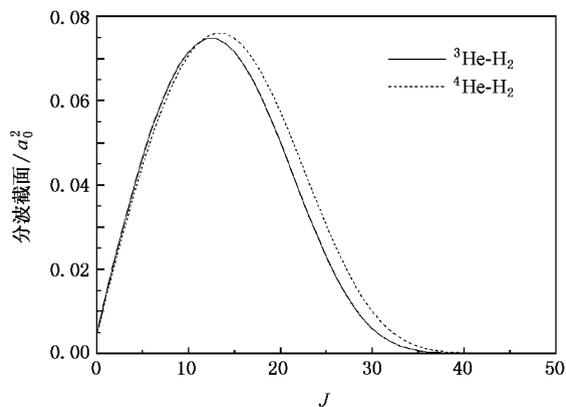


图5  ${}^3\text{He}({}^4\text{He})\text{-H}_2$  碰撞 00-04 分波截面随  $J$  的变化

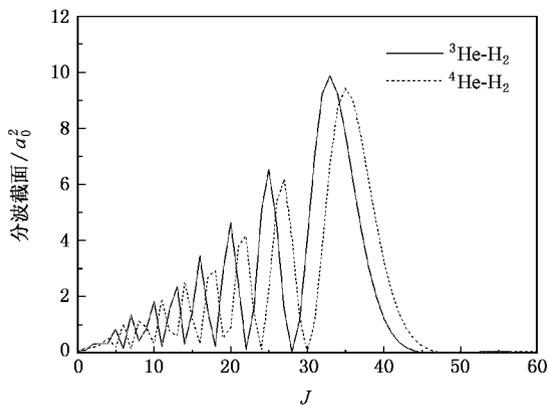


图3  ${}^3\text{He}({}^4\text{He})\text{-H}_2$  碰撞 00-00 分波截面随  $J$  的变化

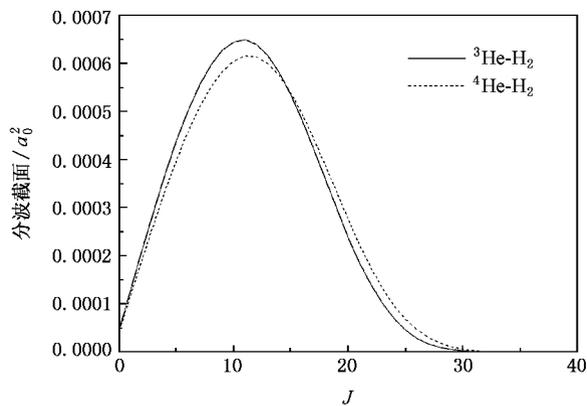


图6  ${}^3\text{He}({}^4\text{He})\text{-H}_2$  碰撞 00-06 分波截面随  $J$  的变化

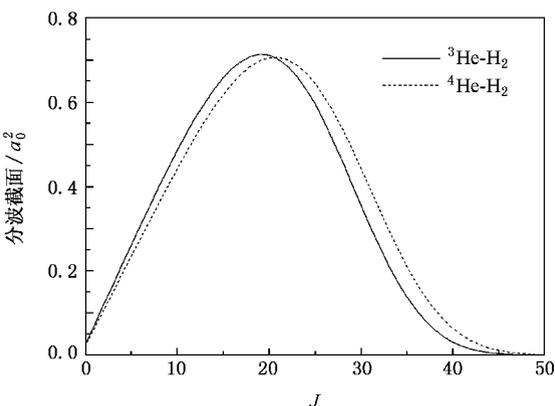


图4  ${}^3\text{He}({}^4\text{He})\text{-H}_2$  碰撞 00-02 分波截面随  $J$  的变化

增加而增加. 收敛分波数 ( $J$ ) 见表 1 所示. 从图 2 中还可看出, 弹性分波截面在总的分波截面中所占的比重较大, 而非弹性分波截面只占其中的一小部分.

图 4—6 分别给出了入射能量  $E = 0.50$  eV 时  ${}^3\text{He}({}^4\text{He})\text{-H}_2$  碰撞体系的 00-02, 00-04, 00-06 非弹性

碰撞分波截面. 可以看出, 碰撞体系的非弹性分波截面随  $J$  的变化曲线的形状相似, 即截面只经过一个极大值便很快趋于零. 在入射能量相同时, 随着同位素原子质量 (即入射原子质量) 的增加, 散射极大值的位置向  $J$  较大方向移动, 收敛速度变慢. 收敛分波数 ( $J$ ) 见表 1 所示.

对 He 同位素替代所引起的分波截面随  $J$  的有规律的变化, 可作如下解释<sup>[18]</sup>:

用半经典公式  $L \leq ka$  表示对中心力场中的势散射粒子被散射中心场散射的条件是其轨道角动量子数  $L$  应不大于入射粒子对应的德布罗意波波数  $k$  与中心场有效作用半径  $a$  的乘积, 其中波数  $k$  与入射粒子的质量  $\mu$  及动能  $E$  的关系为  $k = \sqrt{2\mu E}/\hbar$ . 于是, 要得到收敛的总截面所需计算的分波数可写成如下表达式:  $k \leq \sqrt{2\mu E}/\hbar$ . 由于我们只考虑分子转动激发, 即  $j_a = 0$ , 因而入射通道的总

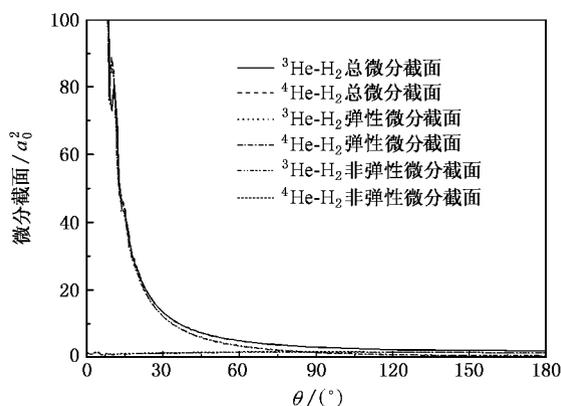
角动量与轨道角动量相等,即  $J = L_a$ ,故  $J \leq a \times \sqrt{2\mu E}/\frac{h}{2\pi}$ ,且在 Born-Oppenheimer 近似下,同位素替代不改变体系的相互作用势能面的形状,因而  $^3\text{He}-\text{H}_2$ ,  $^4\text{He}-\text{H}_2$  两碰撞体系应有相同的有效势作用半径  $a$ .故对同一散射势场和同一入射能量,体系约化质量的开方与得到的收敛截面所需的分波数成正比,即  $J \propto \sqrt{\mu}$ ,而  $^3\text{He}-\text{H}_2$ ,  $^4\text{He}-\text{H}_2$  两碰撞体系约化质量逐渐增加,因此,总分波截面与弹性分波截面的振荡极大值的位置和收敛所需的分波数均依次向  $J$  较大方向移动.

表 1 分波截面收敛分波数 ( $J$ )

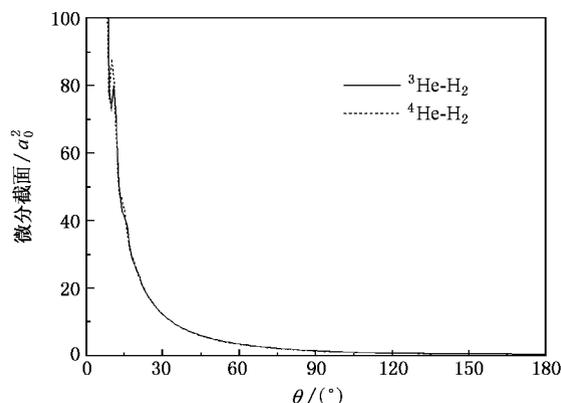
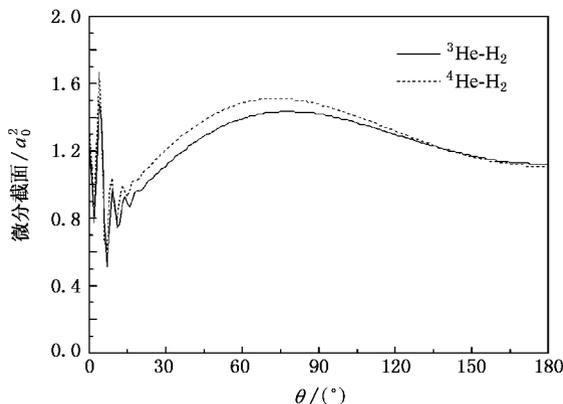
	00-00	00-02	00-04	00-06
$^3\text{He}-\text{H}_2$	44	46	36	28
$^4\text{He}-\text{H}_2$	49	48	39	32

图 7 给出了入射能量  $E = 0.50 \text{ eV}$  时  $^3\text{He}$ ( $^4\text{He}$ ) -  $\text{H}_2$  碰撞体系的弹性与非弹性碰撞微分截面.图 8 给出了入射能量  $E = 0.50 \text{ eV}$  时  $^3\text{He}$ ( $^4\text{He}$ ) -  $\text{H}_2$  碰撞体系的 00-00 弹性碰撞微分截面.从图中可以看出:小角部分主要是弹性散射,大角部分主要是非弹性散射.但由于散射主要发生在小角部分,总截面仍以弹性截面为主.

从图 8 可以看出,对每一个碰撞体系,其弹性微分散射截面在  $\theta = 0^\circ$  时有一个最大值,然后随着散射角的增加,弹性微分散射截面迅速趋于零,随同位素原子质量的增加,散射截面值无明显变化.

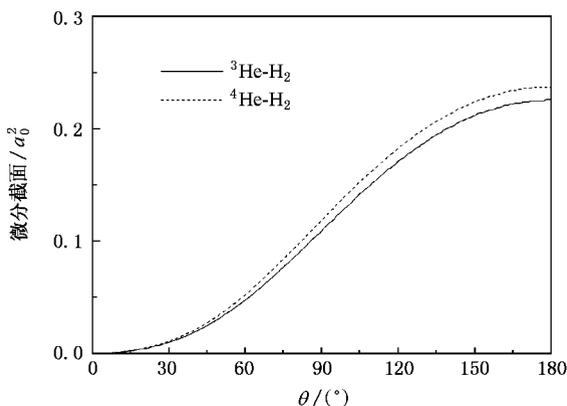
图 7  $^3\text{He}$ ( $^4\text{He}$ ) -  $\text{H}_2$  碰撞弹性与非弹性微分散射截面的比较

从图 9 可以看出,对 00-02 非弹性微分散射截面,在散射角较小时,其散射截面值相对较大,且随散射角的变化而振荡,但随同位素原子质量的增加

图 8  $^3\text{He}$ ( $^4\text{He}$ ) -  $\text{H}_2$  碰撞 00-00 微分截面随  $\theta$  的变化图 9  $^3\text{He}$ ( $^4\text{He}$ ) -  $\text{H}_2$  碰撞 00-02 微分截面随  $\theta$  的变化

散射截面值无明显变化,在中等散射角部分,散射截面值随同位素原子质量和散射角的增加由小变大,到达某一最大值后又逐渐减小,在大角部分,随散射角的增大,散射截面值逐渐变小,但随同位素原子质量的增加,散射截面值无明显差别.

从图 10 可以看出,对 00-04 非弹性微分散射截

图 10  $^3\text{He}$ ( $^4\text{He}$ ) -  $\text{H}_2$  碰撞 00-04 微分截面随  $\theta$  的变化

面 散射截面随散射角和同位素原子质量的增加而逐渐变大,其差值较为明显.

从图 11 可以看出,对 00-06 非弹性微分散射截面,散射截面随散射角的增加而逐渐变大,随同位素原子质量的增加散射截面有微量增加.

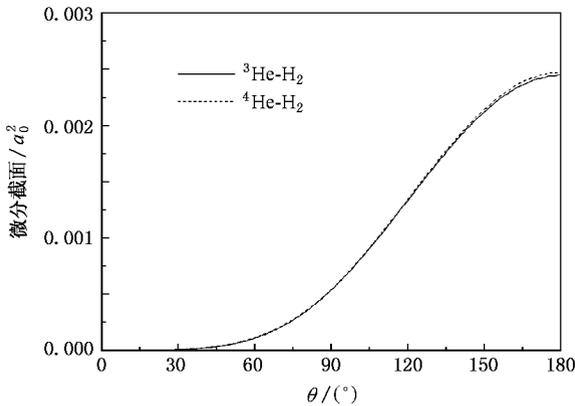


图 11  ${}^3\text{He}({}^4\text{He})\text{-H}_2$  碰撞 00-06 微分截面随  $\theta$  的变化

从图 9—11 还可看出,随着激发态的升高,微分散射截面的数值逐渐减小,即低激发态比高激发态更容易被激发;另外,激发态越高,大角散射的概率越大,即高激发态散射主要发生在大角部分.这是由于只有当入射原子和靶分子很接近时,才能使二者产生较强的相互作用,这一方面既能导致粒子之间发生

能量转移,从而诱导靶分子内部产生转动激发;另一方面强烈的相互作用又能导致巨大的动量转移而引起大角度散射.因此,转动激发总是和大角度散射相伴随.对由于同位素原子质量的改变导致的微分散射截面值的微弱改变,则主要是由于微分散射截面值与体系的约化质量之间存在密切联系,其随体系约化质量的增加而增加. ${}^3\text{He}$ , ${}^4\text{He}$  的原子质量相差较小,同位素替代虽也引起了微分散射截面值的改变,但改变的幅度较为微弱<sup>[18]</sup>.

## 4. 结 论

由以上分析可看出,在氦原子的同位素替代情形下, ${}^3\text{He}({}^4\text{He})\text{-H}_2$  碰撞体系分波截面和微分截面随同位素原子质量改变表现出以下规律性:

1) 对分波截面,弹性与非弹性截面收敛分波数均随同位素原子质量的增加而增加;弹性分波截面在总的分波截面中所占的比重较大,而非弹性分波截面只占其中的一小部分.

2) 对微分截面,弹性散射主要发生在小角部分,非弹性散射主要发生在大角部分;低激发态被激发的概率远远大于高激发态被激发的概率;激发态越高,大角散射的概率越大,散射截面值随同位素原子质量的增加有一定程度的增加.

[1] Collins C B, Johnson B W 1972 *J. Chem. Phys.* **57** 3317  
 [2] Peterson L M, Lindgult G H, Arnold C B 1974 *J. Chem. Phys.* **61** 3840  
 [3] Alkins D L, Fink E H, Moore C B 1970 *J. Chem. Phys.* **52** 1604  
 [4] Gordon R G, Klemperer W 1968 *Annual. Rev. Phys. Chem.* **19** 215  
 [5] Yang X D, Zhou X L, Zhang J Y, Sun G H, Zhu J 2002 *Chin. Phys.* **11** 1013  
 [6] Yang X D, Zhang J Y, Jing F Q 1998 *Chin. Phys. Lett.* **15** 19  
 [7] Yang X D 1990 *Science in China (Series A)* **8** 833 (in Chinese)  
 [杨向东 1990 中国科学(A辑) **8** 833]  
 [8] Yang C L, Zhu Z H 1999 *Acta Phys. Sin.* **48** 1852 (in Chinese)  
 [杨传路、朱正和 1999 物理学报 **48** 1852]  
 [9] Jiang G, Xie H P, Tan M L, Zhu Z H 2000 *Acta Phys. Sin.* **49** 665 (in Chinese) [蒋刚、谢洪平、谭明亮、朱正和 2000 物理学报 **49** 665]  
 [10] Yu C R, Huang S Z, Feng E Y, Wang R K, Cheng X L, Yang X D 2006 *Acta Phys. Sin.* **55** 2215 (in Chinese) [余春日、黄时中、凤

尔银、汪荣凯、程新路、杨向东 2006 物理学报 **55** 2215]  
 [11] Yu C R, Feng E Y, Wang R K, Yang X D 2006 *Chin. Phys.* **15** 2571  
 [12] Yu C R, Yang X D 2007 *Acta Phys. Sin.* **56** 2577 (in Chinese)  
 [余春日、杨向东 2007 物理学报 **56** 2577]  
 [13] Yu C R, Yang X D 2007 *Acta Phys. Sin.* **56** 4441 (in Chinese)  
 [余春日、杨向东 2007 物理学报 **56** 4441]  
 [14] Yu C R, Yang X D 2007 *Acta Phys. Sin.* **56** 5739 (in Chinese)  
 [余春日、杨向东 2007 物理学报 **56** 5739]  
 [15] Shen G X, Linghu R F, Wang R K, Yang X D 2007 *Chin. Phys.* **16** 3352  
 [16] Shen G X, Wang R K, Linghu R F, Yang X D 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 155 (in Chinese) [沈光先、汪荣凯、令狐荣锋、杨向东 2008 物理学报 **57** 155]  
 [17] Tang K T, Toennies J P 1982 *J. Chem. Phys.* **76** 2524  
 [18] Brian H B 1979 *Atomic Collisions Theory* (Benjamin: Cummings Publishing Company inc) p372

# Study of isotope effect in $^3\text{He}$ ( $^4\text{He}$ )- $\text{H}_2$ collisions<sup>\*</sup>

Shen Guang-Xian<sup>1,2)</sup> Wang Rong-Kai<sup>2)</sup> Linghu Rong-Feng<sup>2)</sup> Yang Xiang-Dong<sup>1)</sup>†

1) *School of Sciences, Guizhou Normal University, Guiyang 550001, China*

2) *Institute of Atomic and Molecular Physics, Sichuan University, Chengdu 610065, China*

(Received 16 October 2007; revised manuscript received 22 November 2007)

## Abstract

Close-coupling equation is applied to the  $^3\text{He}$ ( $^4\text{He}$ )- $\text{H}_2$  system, and the rotational excitation cross sections for incidence energy of 0.5 eV are calculated. By analyzing the differences between these partial wave cross sections and differential cross sections, the change of the partial wave cross sections and differential cross sections with increase of quantum number, as well as with the change of the mass of isotope atom are found out. Based on the calculation, the effect of isotopic substitution on atom-diatom collision is discussed.

**Keywords** : cross section, close-coupling method, isotope substitution, scattering angle

**PACC** : 3440, 3450

<sup>\*</sup> Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 10574096), the Specialized Research Fund for the Doctoral Program of Higher Education of China (Grant No. 20050610010), the Natural Science Foundation of Education Bureau of Guizhou Province, China (Grant No. 2005105) and the Nomarch's Foundation for Outstanding Science and Education Scholars of Guizhou Province, China (Grant No. QSZHZ 2006(113)).

† Corresponding author. E-mail. shguangxian@sina.com