

低能 He 原子与 Li₂ 分子碰撞散射截面理论计算*

李 劲¹⁾²⁾ 令狐荣锋¹⁾³⁾ 司冠杰¹⁾ 杨向东^{1)†}

1) (四川大学原子与分子物理研究所, 成都 610065)

2) (海南大学材料与化工学院, 硅锆钛资源综合开发与利用海南省重点实验室, 海口 570228)

3) (贵州师范大学物理与电子科学学院, 贵阳 550001)

(2009 年 8 月 10 日收到; 2009 年 11 月 19 日收到修改稿)

利用 Fuchs 势模型和密耦方法对 He-Li₂ 碰撞体系低能散射截面进行理论计算, 研究了 He-Li₂ 碰撞体系的散射总截面随能量的变化、微分截面随角度的变化、分波截面随总角动量的变化以及与入射能量之间的关系, 并总结了量子效应随入射能量的变化规律.

关键词: 密耦方法, 微分截面, 分波截面, Fuchs 势模型

PACC: 3440, 3450

1. 引 言

近几年来, 随着理论研究的进一步深入, 微观物质的相互作用越来越引起人们的关注, 而原子分子之间相互作用的研究是最为重要的方面之一, 尤其是原子和分子之间的相互作用势及他们之间相互碰撞时散射截面的变化规律, 由于我们研究的散射截面是指振动和转动激发截面, 因此它与激光物理、化学激光、化学反应动力学、天体物理等学科的发展都有着密不可分的关系^[1,2], 不仅为这些学科的发展奠定了牢固的理论基础, 而且起到了巨大的推动作用, 在理论上把这些学科紧密地联系在一起的同时, 为其交叉学科的出现和发展起到了举足轻重的桥梁作用. 而原子与分子的碰撞转动激发又是碰撞问题的主攻方向, 其在冲击波、声波、风洞扩张、气体激光器的研究设计、转动激发的共振荧光过程、星际空间物质的冷却过程、爆轰物理研究等方面也具有重要的物理意义^[3-10].

Li₂ 分子和稀有气体原子之间相互作用势是近年来备受关注的研究课题. Fuchs 和 Toennies 等人实验研究表明, He-Li₂ 体系作用势受 Li₂ 分子振动能量影响, 并在此基础上提出 Fuchs 势模型^[11], 与

键长相关的各向异性势能部分成为 He-Li₂ 体系的研究热点, Bodo 等人的从头计算^[12]、Rubahn 和 Bergmann 等人的半经验势^[13,14], 都是围绕着各向异性势能部分展开研究, Gianturco 等人利用 Fuchs 势模型研究 He-Li₂ 体系非弹性碰撞的振转耦合作用^[15], Marques 等人使用二维原子椭圆模型研究 He-Li₂ 碰撞的转动激发^[16], 而 Bodo 等人用量子计算方法研究 He-Li₂ 碰撞去激发散射截面^[17]. 本文从 Fuchs 势模型出发, 把密耦方法^[18-25] 应用在 He-Li₂ 体系中, 利用相互作用势与散射截面的关系, 分析其散射截面的变化规律.

2. Li₂ 分子的势能面

对于大多数双原子分子来说, Murrell-Sorbie 函数^[26,27] 的三阶与四阶力常数都与光谱值完全符合, 是目前最好的势能函数之一, 已广泛用于分子碰撞过程^[28], 对 Li₂ 分子势能面我们采用 Murrell-Sorbie 函数的形式. 由于绝大多数双原子分子和离子的电子态、光谱项通常能给出 $\omega_e, \omega_e \chi_e, B_e, \alpha_e$ 和解能 D_0 , 所以常采用五参数 Murrell-Sorbie 函数形式^[26,27], 即

$$V(R) = -D_e(1 + a_1\rho + a_2\rho^2 + a_3\rho^3)\exp(-a_1\rho),$$

* 国家自然科学基金(批准号:10974139,10964002), 高等学校博士学科点专项科研基金(批准号:20050610010), 贵州省优秀科技教育人才省长基金(批准号:黔省专合字(2006)113号), 贵州省科学技术基金(批准号:黔科合 J 字[2009]2066号)资助的课题.

† 通讯联系人. E-mail: xdyang@scu.edu.cn

$$\rho = R - R_e, \quad (1)$$

其中离解能 D_e 可由 D_0 经零点能校正得出

$$D_e = D_0 + \frac{1}{2}\omega_e - \frac{1}{4}\omega_e x_e, \quad (2)$$

式中的参数 a_1, a_2, a_3 之间的关系可由力常数 f_2, f_3 和 f_4 确定,

$$D_e a_1^4 - 6f_2 a_1^2 - 4f_3 a_1 - f_4 = 0, \quad (3)$$

$$a_2 = \frac{1}{2}(a_1^2 - f_2/D_e), \quad (4)$$

$$a_3 = a_1 a_2 - \frac{1}{3}a_1^3 - \frac{f_3}{6D_e}. \quad (5)$$

相对于 Li₂ 的势能面而言,其参数如表 1.

表 1 基态 Li₂ 分子的 Murrell-Sorbie 势能函数的参数^[26]

分子	D_e /eV	r_e /nm	a_1/nm^{-1}	a_2/nm^{-2}	a_3/nm^{-3}
Li ₂	1.068	0.26729	19.19	107.7	232

3. He 与 Li₂ 的相互作用势

目前关于卤族元素的分子与原子的相互作用势是人们广泛关注和研究的对象之一,文献[11]中给出了两种势模型:Stahl 和 Staemmler 模型及 Fuchs 和 Toennies 模型.

3.1. Stahl 和 Staemmler 共同提出的势能表面模型

Stahl 和 Staemmler 共同提出了 Li₂ 与 He 的相互作用势模型:当 Li₂ 的键长为 r_e (r_e 为分子处于平衡位置时的键长)且 γ 为 0° 和 90° (γ 是入射原子与靶分子轴之间的夹角),此时势能的各向异性很小,可以使用两项勒让德把势能展开为

$$V(R, r, \gamma) = V_0(R, r) + V_2(R, r)P_2(\cos\gamma), \quad (6)$$

其中

$$V(R, r, \gamma = 0^\circ) = V_{\parallel} = V_0 + V_2, \quad (6a)$$

$$V(R, r, \gamma = 90^\circ) = V_{\perp} = V_0 - (V_2/2), \quad (6b)$$

$$V_0 = \frac{1}{3}(V_{\parallel} + 2V_{\perp}), \quad (7a)$$

$$V_2 = \frac{2}{3}(V_{\parallel} - V_{\perp}), \quad (7b)$$

其中

$$V_i(R) = \frac{\mathcal{E}_i}{n-s}(s\rho_i^{-n} - n\rho_i^{-s}), i = \parallel, \perp. \quad (8)$$

在这里 $\rho_i = (R/R_{mi} - \beta_i)/(1 - \beta_i)$, 对于 Li₂ 与 He 碰撞体取 $n=8$ 和 $s=6$ 已经足够了,不需要太大的值, \mathcal{E} 为势阱的深度, R_m 为势阱的位置, 对于

Li₂ 与 He 碰撞体系而言,上面的参数取值如表 2.

表 2 Stahl 和 Staemmler 势能参数

\mathcal{E}_{\parallel} /meV	\mathcal{E}_{\perp} /meV	$R_{m\parallel}$ /nm	$R_{m\perp}$ /nm	β_{\parallel}	β_{\perp}
0.2	0.15	0.685	0.67	0.25	0.13

由于 Stahl 和 Staemmler 认为分子中原子间距没有变化($r = r_e$),即没有考虑 Li₂ 的振动,因此势模型不够完善.

3.2. Fuchs 和 Toennies 共同提出的势能模型^[11]

Fuchs 和 Toennies 分析了 Stahl 和 Staemmler 势模型后,提出 He-Li₂ 体系的一种新的相互作用势,这种相互作用势由于包含了 Li₂ 分子中原子间距 r 的变化,考虑了 Li₂ 的振动,其对势能面的描述也更为准确,他们也把 He-Li₂ 体系的势能分解为 γ 为 0° 和 90° 两种情况

$$V(R, r, \gamma) = V_0(R, r) + V_2(R, r)P_2(\cos\gamma), \quad (9)$$

$$V_0 = \frac{1}{3}(V_{\parallel} + 2V_{\perp}),$$

$$V_2 = \frac{2}{3}(V_{\parallel} - V_{\perp}),$$

其中

$$V_i(R, r) = \mathcal{E}_i[3\rho_i(r)^{-8} - 4c_i(r) \times g_i(r)\rho_i(r)^{-6}], \quad i = \parallel, \perp, \quad (10)$$

$$\rho_{\parallel}(r) = \{[R - (\Delta r/2)]/R_{m\parallel} - \beta_{\parallel}\}/(1 - \beta_{\parallel}), \quad (11a)$$

$$\rho_{\perp}(r) = \{[R + f(\Delta r/2)]/R_{m\perp} - \beta_{\perp}\}/(1 - \beta_{\perp}), \quad (11b)$$

$$g_{\perp}(R) = \frac{1}{1 + (3.5/R)^{12}}, g_{\parallel} = 1, \quad (12)$$

$$\Delta r = r - r_e. \quad (13)$$

相对于基态的 He-Li₂ 体系而言,通常情况下我们取 $f = 0$. $\mathcal{E}_{\parallel}, \mathcal{E}_{\perp}, R_{m\parallel}, R_{m\perp}, \beta_{\parallel}, \beta_{\perp}$ 同表 2 和表 3 中给出一个基态和两个激发态的其它参数值.

表 3 Fuchs 和 Toennies 势能参数

ν	r	c_{\parallel}	c_{\perp}
0	2.6904	1.000	1.000
1	2.7224	1.0287	1.0103
2	2.7537	1.0575	1.0207

下面就这两种势能模型进行比较和分析:从图 1 和图 2 可以看出,两种势能函数的 V_0, V_2 在 He 原

子与 Li_2 分子的间距 R 较大时基本符合,但在 R 较小时他们间的差别明显有所增大,这是因为在修正的 Fuchs 势能中含有 r 的缘故,当 Li_2 分子中原子的间距 r 变化时,即便 R 不变也会导致三体势的变化.我们选 $r = 2.2 \text{ \AA}$, 2.4 \AA , r_c , 3.0 \AA , 3.2 \AA 分别作 Fuchs 势能曲线,与 Stahl 势能线比较,相同的 R 值,各向同性势能部分 V_0 与各向异性势能部分 V_2 均随 r 增大而变大,并随 r 减小而变小,但 V_2 比 V_0 变化较为敏感,而在 $r = r_c$ 时两种势能模型一致. R 较小时,若 Li_2 键长 r 减小, Li_2 分子各向异性变小,与 Li_2 键长相关的各向异性势能部分 V_2 随之变小,反映出 He- Li_2 体系相互作用势随 Li_2 键长改变,可见经过修正的 Fuchs 势能形式较为准确.

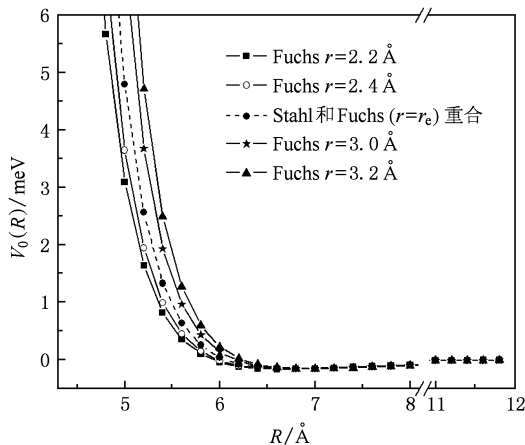


图1 He- Li_2 体系 Fuchs 和 Stahl 势函数 V_0 的比较

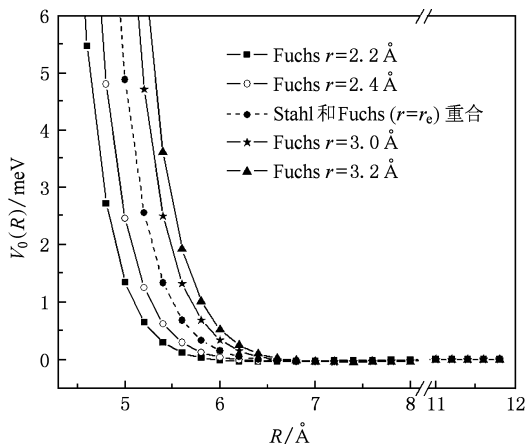


图2 He- Li_2 体系 Fuchs 和 Stahl 势函数 V_2 的比较

4. 计算结果及讨论

当入射 He 原子能量 $E = 0.001\text{--}0.11 \text{ eV}$ 时,

用密耦方法和比较合理的 Fuchs 势模型计算了基态的 He- Li_2 散射总截面、微分截面及分波截面,He- Li_2 散射总截面的计算结果表示在图3中.

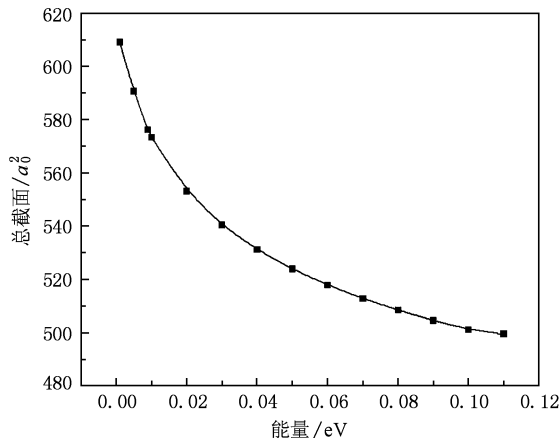


图3 He- Li_2 体系总散射截面随能量 E 的变化

从图3可以看出,随着入射能量的增加,散射总截面变得越来越小.这是因为当 He 原子向作为靶的 Li_2 分子入射时,会受到 Li_2 分子势能场的作用.相对于较低的人射能量而言,势能场对入射 He 原子的作用就显得较强,其散射率相对较大,随着能量的增大,散射率变小,散射截面也就变小.当入射 He 原子能量为 0.078 eV 时,散射总截面为 $510.1 a_0^2$,文献[11]的实验值为 $562.2 a_0^2$,文献[13]的计算值为 $642.2 a_0^2$,可见我们的计算结果更接近实验值.

在图4中绘出了 He- Li_2 碰撞体系在入射能量为 0.03 eV 时的微分散射截面,图中曲线分别表示总微分截面、弹性微分截面和非弹性微分截面,从图中可以看出,随着入射角度增大,总微分截面和弹性微分截面都逐渐变小,而非弹性微分截面则变化不大.在 $0^\circ\text{--}20^\circ$ 的范围内,经过了几次振荡后总微分截面、弹性微分截面都快速减小,而在 20° 之后它们的变化都趋于平缓,可见小角度微分截面的数值要比大角度微分截面的数值大得多,即在总微分截面和弹性微分截面中小角度散射概率比大角度散射概率要大得多,也就是说在散射过程中小角度散射是主要部分.

图5绘出了入射能量分别为 $0.001, 0.0075, 0.02 \text{ eV}$ 时,分波截面与总角动量子数 J 的关系,由图5可以看出,分波截面随着 J 的增大不断地振荡,当达到某一最大值后快速下降而趋于0,但是应该注意到的是对于入射能量为 0.001 eV 时在其最

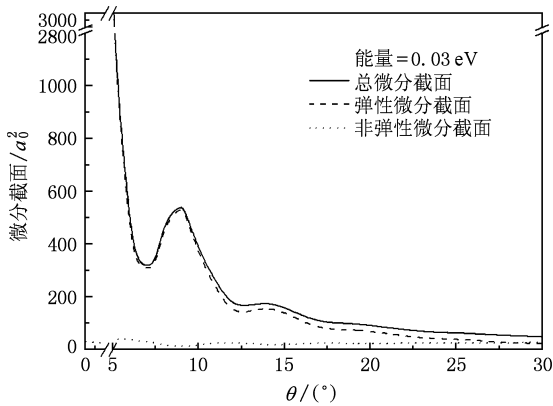


图4 He-Li₂ 体系碰撞能量 $E = 0.03$ eV 时的微分截面

大值的后面又出现了一次振荡,这就是所谓的尾部效应(尾部效应是指当入射粒子的角动量大到在经典散射情况下已不可能与散射势场发生作用时,由于量子效应,粒子仍会受到势场的散射,在图中表现为分波截面出现一个最大的极值后又出现了一个较小的极大值,称为尾部效应).而在能量入射较高时,量子效应就不明显,因此尾部效应也就不明显;由图5可以看出: $E = 0.001$ eV 时,其尾部效应

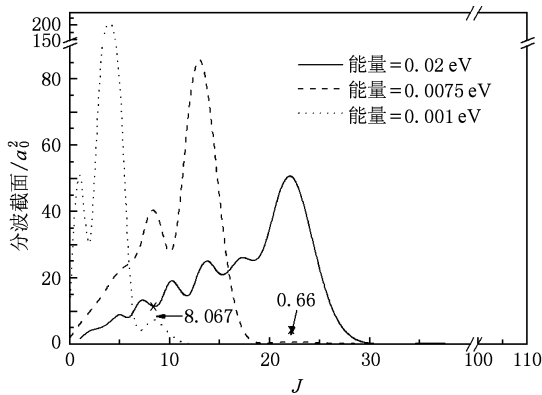


图5 He-Li₂ 体系在不同碰撞能量时的分波截面

的最大值为 $8.067 a_0^2$; 能量为 0.0075 eV 时,其尾部效应为 $0.66 a_0^2$.

细看还会发现,当入射能量为 0.001 eV 时,其分波截面在 $J = 4$ 时开始收敛;入射能量为 0.0075 eV 时,其分波截面在 $J = 13$ 时开始收敛;入射能量为 0.02 eV 时,其分波截面在 $J = 22$ 时开始收敛.由此可见随着入射能量的增加,微分截面收敛所需的总角动量子数也随之增加.对于这种现象,可以从粒子波的观点出发进行解释,中心力场势散射的半经典公式为: $L \leq k\alpha$ (L 表示粒子的轨道角动量子数, k 表示德布罗意粒子波的波数, α 表示中心力场的有效作用半径),其中 $k = \sqrt{2\mu E}/\hbar$, 则得 $L \leq \alpha \sqrt{2\mu E}/\hbar$, 由于在本文计算的是 He-Li₂ 体系处于基态时的转动激发,因此 $j_\alpha = 0$, 则 $J = L_\alpha$, 可以得出 $J \leq \alpha \sqrt{2\mu E}/\hbar$, 由得出的这个公式可以看出:对于同一个入射粒子而言,由于质量相同, \hbar 又是一个常数,所以收敛所需要总角动量子数 J 正比于入射原子能量的开方,这就不难理解为什么当入射能量为 0.001 eV 时其收敛所需的总角动量子数就少,仅仅有 4 个;而入射能量为 0.02 eV 时其收敛所需的总角动量子数就多,则为 22 个.

由以上讨论可以得出结论:对于原子与分子的碰撞体系,分子内部的键长对分子与原子之间的相互作用势的影响是不能忽略的;对于 He-Li₂ 碰撞体系,总散射截面随入射原子能量的增大散射概率逐渐减小,微分截面的小角散射占主要部分,分波截面收敛所需总角动量子数随入射能量的增加而增大;碰撞体系的量子效应会随入射能量的增加而减小,能量越低量子效应就越明显,尾部效应也越强.

[1] Yang X D 1991 *Sci. China A* **34** 48 (in Chinese) [杨向东 1991 中国科学 A 辑 **34** 48]
 [2] Yang X D, Wang C X, Sun G H, Jing F Q 2000 *J. Sichuan University (Natural Science Edition)* **37** 553 (in Chinese) [杨向东、王彩霞、孙桂华、经福谦 2000 四川大学学报(自然科学版) **37** 553]
 [3] Yang X D 1990 *Sci. China A* **8** 833 (in Chinese) [杨向东 1990 中国科学 A 辑 **8** 833]
 [4] Yang X D, Zhang J Y, Jing F Q 1998 *Chin. Phys. Lett.* **1** 14
 [5] Julienne P S, Vigue 1991 *Phys. Rev. A* **44** 4464

[6] Krotz A H, Kuo L Y, Shields T P, Barton J K 1993 *J. Am. Chem. Soc.* **115** 3877
 [7] Sitlani A, Barton J K 1994 *Biochemistry* **33** 12100
 [8] Gilijamse J J, Hoekstra S, Sebastiaan Y T, Meerakker V D, Groenenboom G C, Meijer G 2006 *Science* **313** 1617
 [9] Wang R K, Linghu R F, Yang X D 2007 *Acta Phys. Sin.* **56** 2067 (in Chinese) [汪荣凯、令狐荣锋、杨向东 2007 物理学报 **56** 2067]
 [10] Yu C R, Wang R K, Yang X D, Yin X C 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 2906 (in Chinese) [余春日、汪荣凯、杨向东、尹训昌 2008

- 物理学报 **57** 2906]
- [11] Fuchs M, Toennies J P 1986 *J. Chem. Phys.* **85** 7062
- [12] Bodo E, Sebastianelli F, Gianturco F A, Yurtsever E, Yurtsever M 2004 *J. Chem. Phys.* **120** 9160
- [13] Rubahn H G 1990 *J. Chem. Phys.* **92** 5384
- [14] Rubahn H G, Bergmann K 1990 *Annu. Rev. Phys. Chem.* **41** 735
- [15] Gianturco F A, Serna S, Delgado-Barrio G, Villareal P 1991 *J. Chem. Phys.* **95** 5024
- [16] Marques P F, Belchior J C, Braga J P 2001 *Phys. Chem. Chem. Phys.* **3** 5521
- [17] Bodo E, Gianturco F A, Yurtsever E 2006 *Phys. Rev. A* **73** 052715
- [18] Yang X D 1992 *Theoretical Calculation and Program of Atomic and Molecular Collision* (Chengdu: Electron Science and Technology University press) (in Chinese) [杨向东 1992 原子分子碰撞理论计算及程序(成都:电子科技大学出版社)]
- [19] Shen G X, Wang R K, Linghu R F, Yang X D 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 3827 (in Chinese) [沈光先、汪荣凯、令狐荣锋、杨向东 2009 物理学报 **58** 3827]
- [20] Yu C R, Wang R K, Zhang J, Yang X D 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 0229 (in Chinese) [余春日、汪荣凯、张杰、杨向东 2009 物理学报 **58** 0229]
- [21] Yu C R, Shi S H, Wang R K, Yang X D 2007 *Chin. Phys.* **16** 3345
- [22] Shen G X, Linghu R F, Wang R K, Yang X D 2007 *Chin. Phys.* **16** 3352
- [23] Wang R K, Shen G X, Yu C R, Yang X D 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 6932 (in Chinese) [汪荣凯、沈光先、余春日、杨向东 2008 物理学报 **57** 6932]
- [24] Wang R K, Yu C R, Shen G X, Gong L X, Yang X D 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 3084 (in Chinese) [汪荣凯、余春日、沈光先、龚伦训、杨向东 2009 物理学报 **58** 3084]
- [25] Wang R K, Shen G X, Yang X D 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 5335 (in Chinese) [汪荣凯、沈光先、杨向东 2009 物理学报 **58** 5335]
- [26] Zhu Z H, Yu H G 1997 *Molecular Structure and Potential Energy Function* (Beijing: Science press) (in Chinese) [朱正和、余华根 1997 分子结构与分子势能函数(北京:科学技术出版社)]
- [27] Linghu R F, Li J, Lü B, Xu M, Yang X D 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 0185 (in Chinese) [令狐荣锋、李劲、吕兵、徐梅、杨向东 2009 物理学报 **58** 0185]
- [28] Zhang L, Zhong Z k, Zhu Z Y, Sun Y, Zhu Z H 2003 *Chin. J. Chem. Phys.* **16** 455 (in Chinese) [张莉、钟正坤、朱志艳、孙颖、朱正和 2003 化学物理学报 **16** 455]

Theoretical calculation of the low-energy scattering cross sections for He-Li₂ system*

Li Jin^{1) 2)} Linghu Rong-Feng^{1) 3)} Si Guan-Jie¹⁾ Yang Xiang-Dong^{1) †}

1) (Institute of Atomic and Molecular Physics, Sichuan University, Chengdu 610065, China)

2) (School of Material and Chemical Engineering, Hainan University; Hainan Provincial Key Laboratory of Research on Utilization of Si-Zr-Ti Resources, Haikou 570228, China)

3) (School of Physics and Electronic Science, Guizhou Normal University, Guiyang 550001, China)

(Received 10 August 2009; revised manuscript received 19 November 2009)

Abstract

In this paper, the Fuchs potential model and the Close-coupling method are used to calculate the low-energy cross sections for a He-Li₂ scattering system. The dependences of total cross section on energies, differential section on angles, and partial wave cross section on quantum number of total angular momentum are discussed. The quantum effect on energy obtained.

Keywords: close-coupling method, differential cross section, partial cross section, the Fuchs potential model

PACC: 3440, 3450

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 10974139, 10964002), the Doctoral Program Foundation of Institution of Higher Education of China (Grant No. 20050610001), the Governor's foundation for Science and Education Elites of Guizhou Province (Grant No. QSZHZ2006(113)), the Science-technology Foundation of Guizhou province of China (Grant No. [2009]2066).

† Corresponding author. E-mail: xdyang@scu.edu.cn