

He-HD (HT, DT) 非对称碰撞体系振转势能面及微分散射截面的理论计算*

沈光先¹⁾ 汪荣凯²⁾ 令狐荣锋¹⁾ 周勋¹⁾ 杨向东^{3)†}

1) (贵州师范大学物理与电子科学学院, 贵阳 550001)

2) (贵州师范大学化学与材料科学学院, 贵阳 550001)

3) (四川大学原子与分子物理研究所, 成都 610065)

(2012年4月2日收到; 2012年5月15日收到修改稿)

使用量子化学从头计算方法, 在 CCSD(T)/AUG-CC-PV5Z +bf(3s3p2d1f) 水平下, 计算了 He-HD(HT, DT) 非对称碰撞体系的靶分子取不同键长的相互作用能数据. 运用质心变换-拟合方法、Tang-Toennies 势模型和非线性最小二乘法拟合构造了碰撞体系在入射角分别取 $\theta = 0^\circ, 20^\circ, 40^\circ, 60^\circ, 80^\circ, 90^\circ, 100^\circ, 120^\circ, 140^\circ, 160^\circ, 180^\circ$ 时的振转相互作用势. 通过密耦计算, 得到了入射原子能量分别为 60, 90 和 120 meV 时碰撞体系微分截面的信息. 根据计算结果, 分析讨论了微分截面随入射能量、体系约化质量和散射角变化的规律.

关键词: Tang-Toennies 势函数, 质心变换-拟合方法, 微分截面, 散射角

PACS: 31.15.A-, 31.15.-p, 31.50.-x, 34.20.Gj

1 引言

原子与分子间相互作用势的研究是原子与分子碰撞振转激发研究的前提和基础^[1,2], 对原子分子碰撞过程的研究, 是确定原子与分子间相互作用势的理想途径. 来自不同散射实验的高质量数据提供了原子分子间相互作用势能表面的极好的测试结果. 近年来, 许多学者开始在实验和理论两方面探索原子与分子各向异性相互作用. 稀有气体与双原子分子的相互作用是各向异性相互作用中最简单的情况, 其势能表面的非球对称部分给出了碰撞过程中的转动能量转移. 对非弹性散射中单个转动跃迁的测量, 能够提供关于相互作用势角度依赖排斥部分的详细信息. 但是对于重粒子体系, 由于其转动间隔远小于入射能量, 单个转动激发的实验测量几乎不可能, 这种情况下就要求从理论上提供

一个足够准确的势能表面, 以用来解释或预计散射计算中的可观数据, 这也从客观上要求人们对原子与分子的碰撞过程进行更深入的理论研究. 从大量文献中可以看出, 原子与双原子分子之间的相互作用及碰撞很受关注^[3-19], 对它们碰撞振转激发的理论研究及散射截面的理论计算可得到一些实验难以得到的数据.

He 原子与 HD (HT, DT) 分子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. 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, 从理论上研究原子分子的碰撞激发并给出规律性结论尤为重要. 在原子与双原子分子碰撞的理论研究中, 原子与双原子分子的相互作用势常展开为便于计算的 Legendre 函数多项式形式. 我们用质心变换-拟合的方法构造了 He 原子与非对称同位素分子 HD (HT, DT) 在质心坐标系中的相互作用势, 避免了求

* 国家自然科学基金 (批准号: 10964002, 10974139)、贵州省科学技术基金 (批准号: 黔科合 J 字 [2009]2067 号, 黔科合 J 字 [2011]2110 号)、贵州省教育厅自然科学基金 (批准号: 黔教科 20090041) 和贵州师范大学博士科研基金资助的课题.

† E-mail: shguangxian@sina.com

解径向系数时复杂的数学微积分^[20,21], 具有简单性和方便性. 然后采用密耦近似方法, 对 He 与 HD, HT, DT 非对称同位素替代系统的碰撞截面进行量子力学计算, 深入而系统地总结出实际原子分子相互作用体系中同位素替代对碰撞激发散射截面的影响及规律, 以期能为相关的实验研究提供一定的理论参考和依据.

2 计算方法

原子和双原子分子碰撞体系的 Hamiltonian 可表示为

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

式中 A, BC 分别表示入射原子和靶分子, $\mu_{A,BC}$ 和 μ_{BC} 分别为总体系和靶分子的约化质量, $\cos\theta = \mathbf{R} \cdot \mathbf{r}$ (如图 1 所示), 图中 O 点为靶分子 BC 的质心.

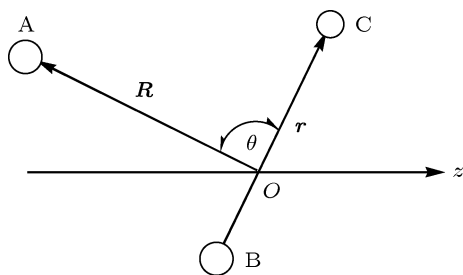


图 1 原子与双原子分子碰撞的几何图形

体系的总波函数可以写为

$$\psi_\alpha^{(+)}(\mathbf{R}, \mathbf{r}) = \frac{1}{K_{n_\alpha J_\alpha R}} \sum_{n_\gamma J_\gamma l_\gamma J} g_{n_\gamma J_\gamma l_\gamma, n_\alpha J_\alpha M_\alpha}^J(R)$$

$$\times \phi_{n_\gamma J_\gamma}(r) Y_{JM_\alpha}^{l_\gamma J_\gamma}(\mathbf{R}, \mathbf{r}), \quad (2)$$

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 α 表示入射通道, 下标 γ 表示其他可能发生的通道, n_α 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_γ, J_γ 分别表示 γ 通道中原子绕分子转动和靶分子转动的量子数. $Y(\mathbf{R}, \mathbf{r})$ 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) 和 (2) 式代入 (3) 式并进行适当变形可得:

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

方程 (4) 就是计算原子和分子碰撞径向波函数的密耦方程.

对于碰撞体系, 其相互作用势模型可表述为如下形式^[19]:

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

用矩阵可表示为

$$\begin{pmatrix} V(R, r, \theta_1) \\ V(R, r, \theta_2) \\ V(R, r, \theta_3) \\ \vdots \\ V(R, r, \theta_i) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} P_0(\theta_1) & P_1(\theta_1) & P_2(\theta_1) & \cdots & P_\lambda(\theta_1) \\ P_0(\theta_2) & P_1(\theta_2) & P_2(\theta_2) & \cdots & P_\lambda(\theta_2) \\ P_0(\theta_3) & P_1(\theta_3) & P_2(\theta_3) & \cdots & P_\lambda(\theta_3) \\ \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots \\ P_0(\theta_i) & P_1(\theta_i) & P_2(\theta_i) & \cdots & P_\lambda(\theta_i) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} V_0(R, r) \\ V_1(R, r) \\ V_2(R, r) \\ \vdots \\ V_\lambda(R, r) \end{pmatrix}, \quad (6)$$

其中 $V_\lambda(R)$ 为径向势函数, $P_\lambda(\cos\theta)$ 为 Legendre 函数, θ 为原子相对于双原子分子的方向角 (如图 1 所示).

将 (5) 式左乘 P^{-1} , 即得

$$V_\lambda(R, r) = P^{-1}V(R, r, \theta_i). \quad (7)$$

对非对称性同位素替代体系 He-HD (HT, DT), 为了充分反映碰撞体系弱相互作用的各向异性特征, 取 θ 在 0° — 180° 范围内的 11 个方向上的势来表示 11 个径向系数, 并采用 Tang-Toennies 拟合势形式 [22,23]:

$$V_\lambda(R) = A \exp(-bR) - \sum_{n=3}^5 \left[1 - \sum_{k=0}^{2n} \frac{(bR)^k}{k!} \times \exp(-bR) \right] \frac{C_{2n}}{R^{2n}}, \quad (8)$$

其中 $C_{2n}(n = 3, 4, 5)$,

$$C_6 = p_{60} + p_{61}(y - r_0)^1 + p_{62}(y - r_0)^2 + p_{63}(y - r_0)^3,$$

$$C_8 = p_{80} + p_{81}(y - r_0)^1 + p_{82}(y - r_0)^2 + p_{83}(y - r_0)^3,$$

$$C_{10} = p_{100} + p_{101}(y - r_0)^1 + p_{102}(y - r_0)^2 + p_{103}(y - r_0)^3.$$

根据密耦近似, 从 $(n_\alpha J_\alpha)$ 态跃迁到 $(n_\beta J_\beta)$ 态的微分截面计算公式为

$$\frac{d\sigma_{n_\alpha J_\alpha \rightarrow n_\beta J_\beta}}{d\Omega} = \frac{1}{2J_\alpha + 1} \cdot \frac{k_\beta}{k_\alpha} \times \sum_{M_\alpha M_\beta} |f_{n_\beta J_\beta M_\beta, n_\alpha J_\alpha M_\alpha}(\theta, \varphi)|^2. \quad (9)$$

3 计算结果与讨论

3.1 He-HD (HT, DT) 碰撞体系的相互作用势

对碰撞体系采用单双迭代 (包括非迭代三重激发) 耦合簇理论 CCSD(T) 方法, 选择由原子中心高斯函数和高斯键函数组成的基组, 对 He, H 原子均采用 (6s3p2d)/[4s3p2d] AUG-CC-PV5Z 基组, 同时在原子中心基组中引入了 3s3p2d1f 键函数, 键函数的中心在 He 和靶分子质心的连线上, 以靶分子的两原子距离为直径做一圆, 该圆和 He-HD(T) 连线有一个交点, 键函数中心就在该交点与 He 之间的

中点上, 使用键函数可有效地减少高角动量极化函数的数目, 提高计算的效率. 计算中总共使用了 121 个基组.

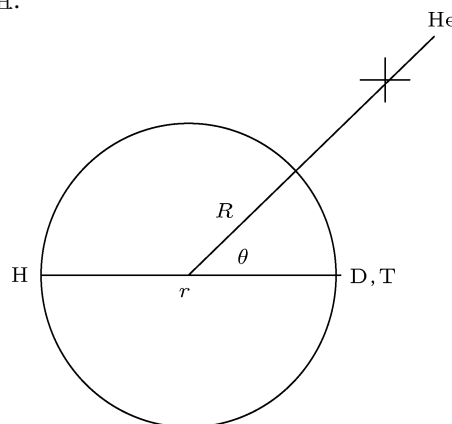


图 2 He-HD (HT, DT) 体系相互作用的坐标系

在体系势能面的计算中采用 Jacobi 坐标 (R, r, θ) 来描述分子间的几何构型, 如图 2 所示. 其中 R 为 He 原子到靶分子质心的距离, θ 为 R 和靶分子轴间的夹角, $\theta = 0^\circ$ 对应于 H-D(T)-He 线性构型.

采用超分子近似, 相互作用能 V_{int} 为 He-HD (HT, DT) 体系的总能量减去单体 He 和 HD (HT, DT) 的能量, 即

$$V_{\text{int}}(R, r, \theta) = E[\text{He} - \text{HD}(\text{HT}, \text{DT})] - E(\text{He}) - E[\text{HD}(\text{HT}, \text{DT})].$$

然而在采用从头算方法计算分子间的势能面时, 通常需要对基组误差进行校正, 在这里采用 Boys 和 Bernardi 的 FCP (full Counterpoise) 方法. 采用该方法时需要用整个体系的基组在相应的几何构型下分别计算各单体的能量, 即

$$V_{\text{int}}(R, r, \theta) = E[\text{He} - \text{HD}(\text{HT}, \text{DT})] \times [x_{\text{He}} + x_{\text{HD}(\text{HT}, \text{DT})}] - E(\text{He})[x_{\text{He}} + x_{\text{HD}(\text{HT}, \text{DT})}] - E[\text{HD}(\text{HT}, \text{DT})] \times [x_{\text{He}} + x_{\text{HD}(\text{HT}, \text{DT})}].$$

用上面的方法和基组, 并加入键函数计算了碰撞体系的靶分子取不同键长 (r 分别取 0.06259 nm, 0.074144 nm, 0.08957 nm), 入射角取不同角度时的相互作用能数据. 在 Born-Oppenheimer 近似下, 同位素替代不影响体系的相互作用势, 对非对称同

位素碰撞体系 He-HD (HT, DT), 由于氢原子质量不同, 靶分子键轴质心向 C 方向发生偏移 (如图 3 所示), 其相互作用势不变, 即

$$V(R, r, \theta) = V(R', r', \theta'). \quad (10)$$

在图 3 中, 以 C 分别代表 H, D, T 原子, 表示质心偏移的几何关系, O' 点是双原子分子 H_2 原质心位置, r' 是 C(H) 原子到原质心 O' 点的距离, O 点是双原子分子 HT 新质心位置, r 是 C(T) 原子到新质心 O 点的距离, $\delta = r' - r$ 是质心偏移量, 通过坐标变换即可从原质心坐标的相互作用势 $V(R', r', \theta')$ 得到新质心坐标下的相互作用势 $V(R, r, \theta)$.

运用质心变换-拟合方法, 计算了 He-HD (HT, DT) 非对称体系在入射角分别取 $\theta = 0^\circ, 20^\circ, 40^\circ, 60^\circ, 80^\circ, 90^\circ, 100^\circ, 120^\circ, 140^\circ, 160^\circ, 180^\circ$ 时的相互作用能数据 (见图 4—12), 同时计算碰撞体系各向异性势在上述 11 个方向上的径向系数, 然后采用 Tang-Toennies 势函数, 对 He-

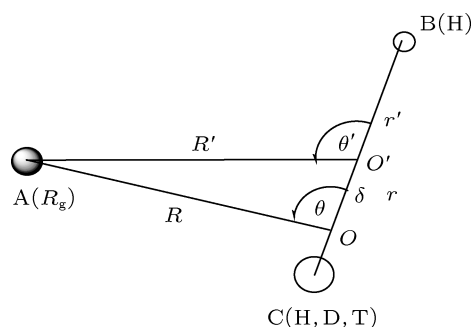


图 3 原子与双原子分子碰撞质心偏移图形

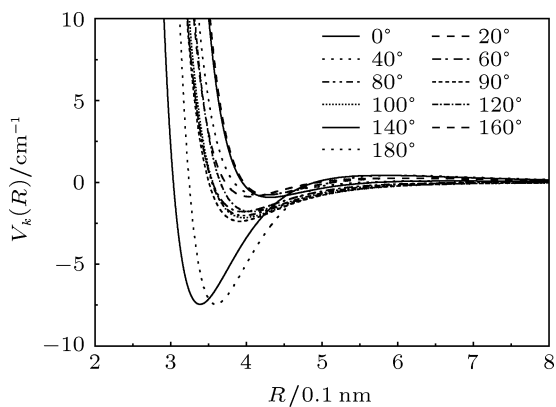


图 4 $r = 0.06259$ nm He-HD 体系各方向上的径向势能曲线

HD (HT, DT) 体系的径向系数进行三维非线性最小二乘法拟合, 得到靶分子作为弹性振子模型时基态 ($X^1 \Sigma^+$) He-HD (HT, DT) 体系的各向异性势径向系数的拟合参数.

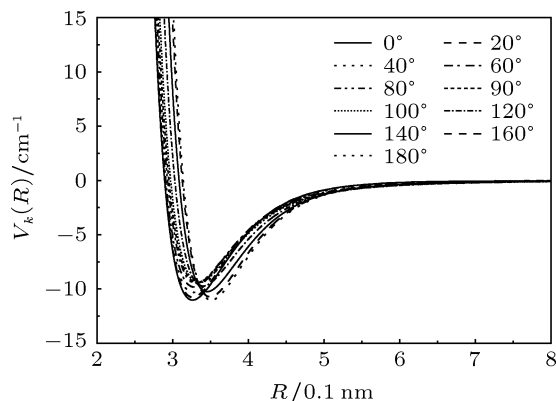


图 5 $r = 0.074144$ nm He-HD 体系各方向上的径向势能曲线

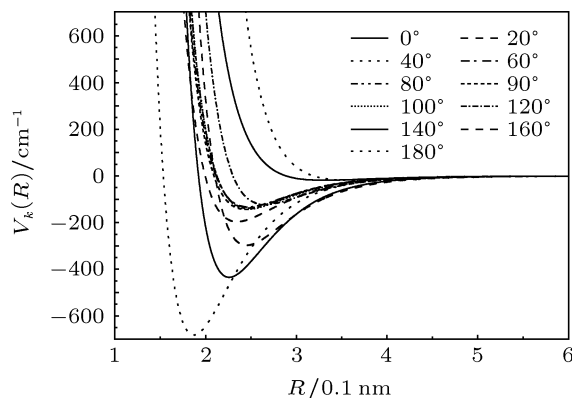


图 6 $r = 0.08957$ nm He-HD 体系各方向上的径向势能曲线

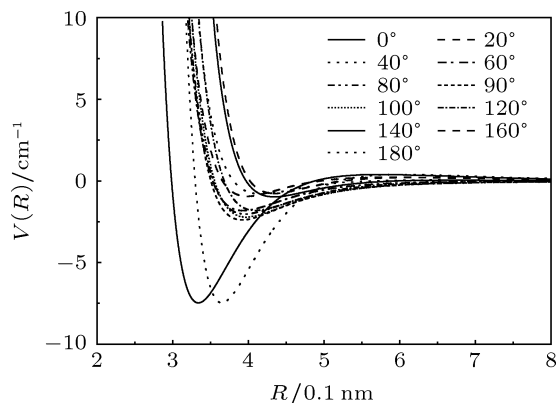


图 7 $r = 0.06259$ nm He-HT 体系各方向上的径向势能曲线

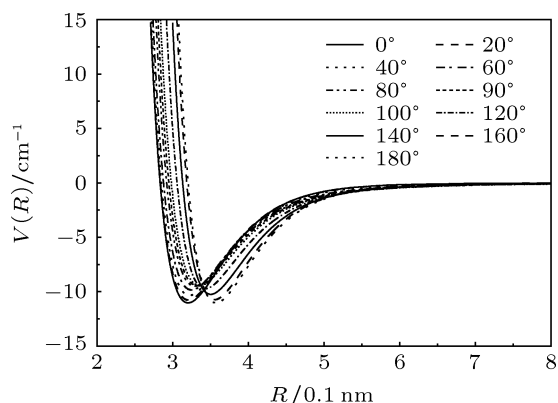


图8 $r = 0.074144$ nm He-HT 体系各方向上的径向势能曲线

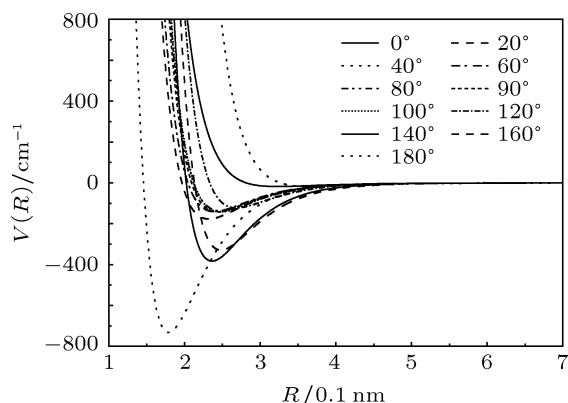


图9 $r = 0.08957$ nm He-HT 体系各方向上的径向势能曲线

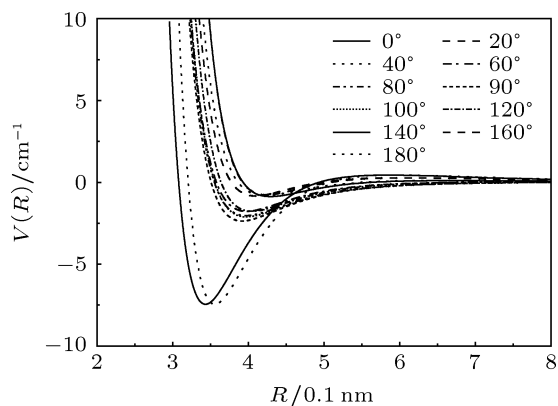


图10 $r = 0.06259$ nm He-DT 体系各方向上的径向势能曲线

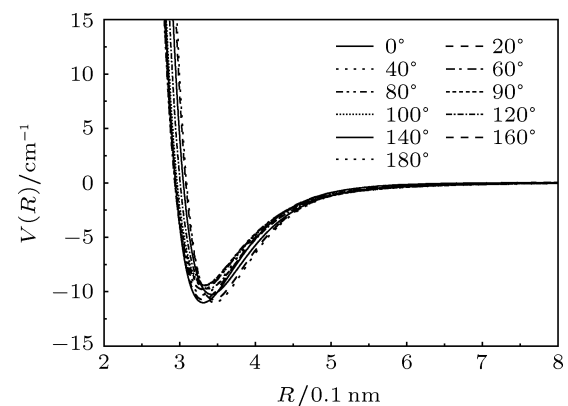


图11 $r = 0.074144$ nm He-DT 体系各方向上的径向势能曲线

图 13—21 为 He-HD (HT, DT) 体系的各向异性势径向系数随 R 的变化关系曲线, 图 22—24

是 He-HD (HT, DT) 体系相互作用势能面等势图. 所用拟合的 Tang-Toennies 势函数展开形式如下:

$$\begin{aligned}
 V = & A \exp(-bx) - \left[1 - \exp(-bx) \cdot \left(1 - bx + b^2 \cdot \frac{x^2}{2} + b^3 \cdot \frac{x^3}{6} + b^4 \cdot \frac{x^4}{24} + b^5 \cdot \frac{x^5}{120} + b^6 \cdot \frac{x^6}{720} \right) \right] \\
 & \times \frac{p_0 + p_1 \cdot (y - r_0) + p_2 \cdot (y - r_0)^2 + p_3 \cdot (y - r_0)^3}{x^6} - \left[1 - \exp(-bx) \right. \\
 & \times \left. \left(1 - bx + b^2 \cdot \frac{x^2}{2} + b^3 \cdot \frac{x^3}{6} + b^4 \cdot \frac{x^4}{24} + b^5 \cdot \frac{x^5}{120} + b^6 \cdot \frac{x^6}{720} + b^7 \cdot \frac{x^7}{5040} + b^8 \cdot \frac{x^8}{40320} \right) \right] \\
 & \times \frac{q_0 + q_1 \cdot (y - r_0) + q_2 \cdot (y - r_0)^2 + q_3 \cdot (y - r_0)^3}{x^8} - \left[1 - \exp(-bx) \cdot \left(1 - bx + b^2 \cdot \frac{x^2}{2} \right. \right. \\
 & \left. \left. + b^3 \cdot \frac{x^3}{6} + b^4 \cdot \frac{x^4}{24} + b^5 \cdot \frac{x^5}{120} + b^6 \cdot \frac{x^6}{720} + b^7 \cdot \frac{x^7}{5040} + b^8 \cdot \frac{x^8}{40320} + b^9 \cdot \frac{x^9}{362880} \right. \right. \\
 & \left. \left. + b^{10} \cdot \frac{x^{10}}{3628800} \right) \right] \cdot \frac{s_0 + s_1 \cdot (y - r_0) + s_2 \cdot (y - r_0)^2 + s_3 \cdot (y - r_0)^3}{x^{10}}, \tag{11}
 \end{aligned}$$

式中 $A, b, r_0, p_0, p_1, p_2, p_3, q_0, q_1, q_2, q_3, s_0, s_1, s_2, s_3$ 是拟合参数.

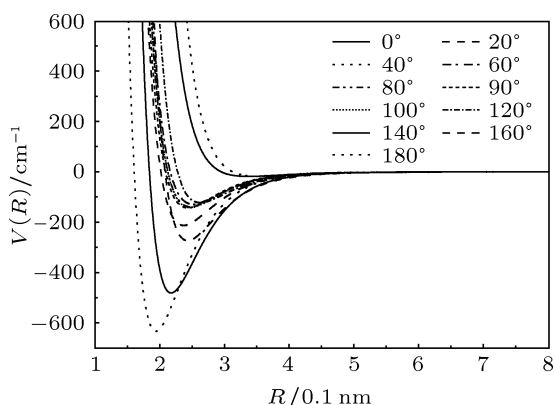


图 12 $r = 0.08957$ nm He-DT 体系各方向上的径向势能曲线

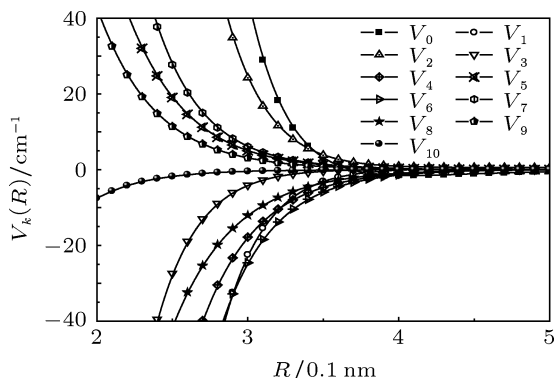


图 13 $r = 0.06259$ nm He-HD 体系径向系数随 R 的变化关系曲线

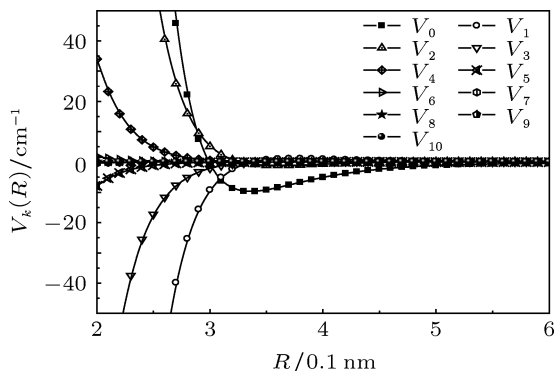


图 14 $r = 0.074144$ nm He-HD 体系径向系数随 R 的变化关系曲线

从图 13—24 可以看出, He-HD, HT, DT 体系的势能面具有各向异性的特征, 在势能面上均存在两个极小值. 体系的第一极小值在 0° , 极小值位置

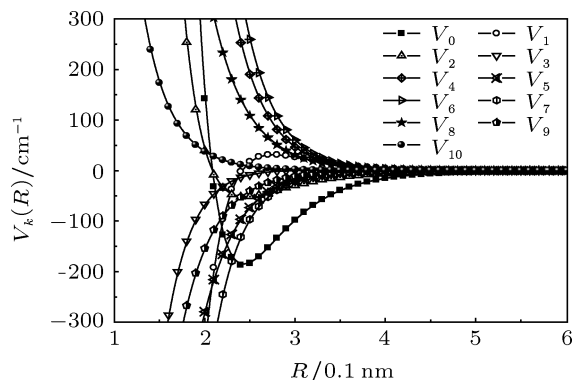


图 15 $r = 0.08957$ nm He-HD 体系径向系数随 R 的变化关系曲线

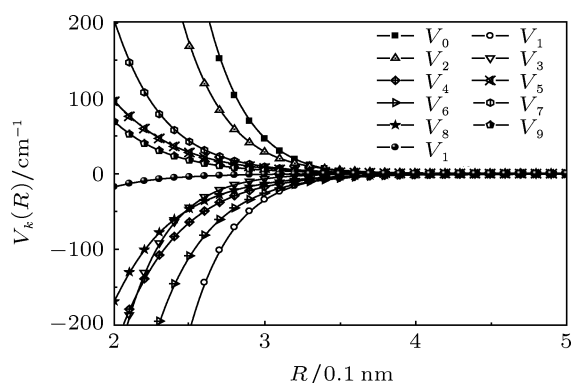


图 16 $r = 0.06259$ nm He-HT 体系径向系数随 R 的变化关系曲线

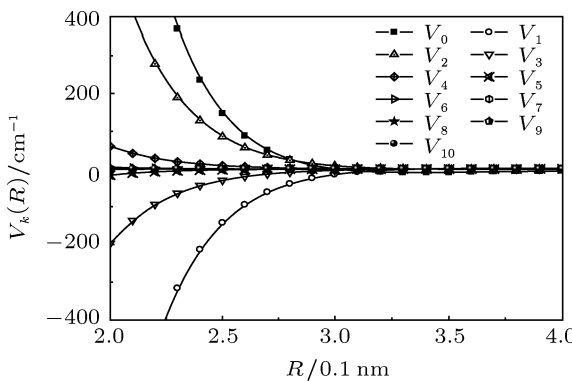


图 17 $r = 0.074144$ nm He-HT 体系径向系数随 R 的变化关系曲线

R_{\min} 分别为 $0.3251, 0.3185, 0.3299$ nm, 势能分别为 $-11.23154, -11.21402, -11.27802$ cm^{-1} ; 第二极小值在 180° , 体系的极小值位置 R_{\min} 分别为 $0.3503, 0.3556, 0.345$ nm, 势能分别为 $-11.12575, -11.03463, -11.18895$ cm^{-1} ; 从第一极小值到第二极小值存在一个鞍点, 其鞍点位置 $(\theta_{\text{sa}}, R_{\min})$ 分别为 $(94.2^\circ, 0.3324$ nm), $(98.6^\circ, 0.3337$ nm), $(92.3^\circ,$

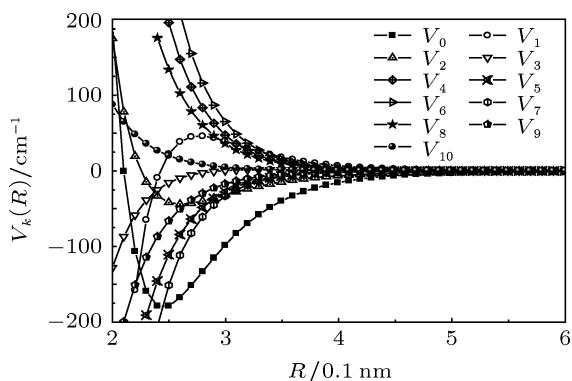


图 18 $r = 0.08957$ nm He-HT 体系径向系数随 R 的变化关系曲线

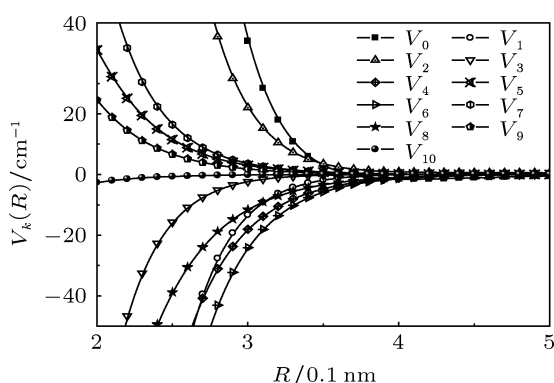


图 19 $r = 0.06259$ nm He-DT 体系径向系数随 R 的变化关系曲线

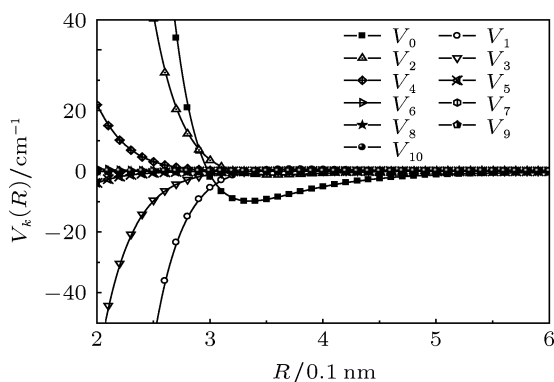


图 20 $r = 0.074144$ nm He-DT 体系径向系数随 R 的变化关系曲线

0.3318 nm), 势能分别为 -9.66461 , -9.63662 , -9.64965 cm^{-1} .

3.2 量子散射计算结果与讨论

我们用密耦方法计算了入射能量从 30 meV 至 150 meV 时 He 原子与 HD, HT, DT 分子碰撞

的弹性微分截面 EDCS (elastic differential cross section)、总非弹性微分截面 TIDCS (total inelastic differential cross section)、总微分截面 TDCS (total differential cross section). 在计算结果中仅列出了当入射原子能量分别为 60, 90 和 120 meV 时, 各碰撞体系微分截面的信息. 根据计算结果, 进一步分析讨论了微分截面随入射能量、体系约化质量和散射角变化的规律.

图 25 是 He-HD (HT, DT) 非对称碰撞体系弹性微分截面随散射角 θ 的变化曲线.

从图中可以看出: 弹性微分截面在散射角 $\theta = 0^\circ$ 时最大, 并随着入射能量和体系约化质量的增加而增大. 对最大散射均出现在 $\theta = 0^\circ$ 这一现象可做如下解释: 对于弹性微分截面, 它主要由势能中的各向同性部分决定, 因而可以将弹性微分截面理解为入射波 (粒子) 受各向同性势能散射的概率. 因此, 在 $\theta = 0^\circ$ 处出现的散射极大可理解为入射波受球对称势场作用后的衍射极大.

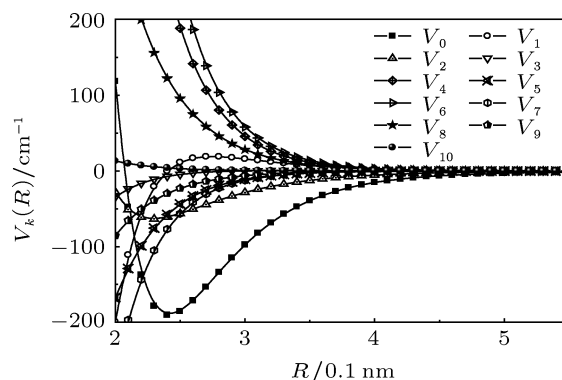


图 21 $r = 0.8957$ nm He-DT 体系径向系数随 R 的变化关系曲线

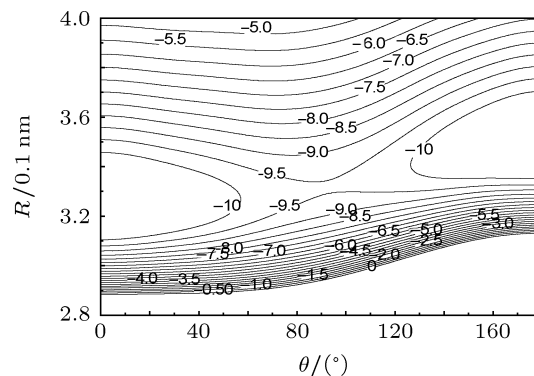


图 22 He-HD 体系相互作用势能面等势图

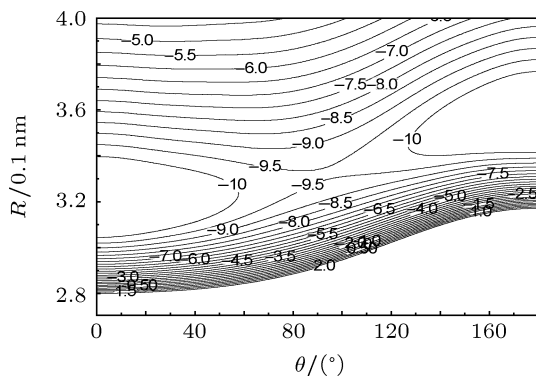


图 23 He-HT 体系相互作用势能面等势图

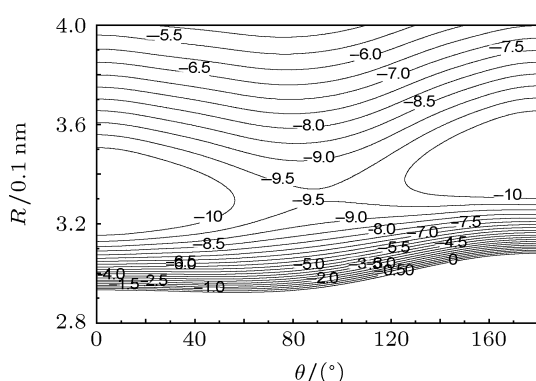


图 24 He-DT 体系相互作用势能面等势图

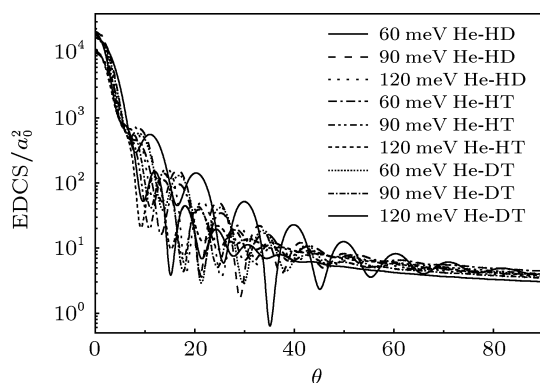


图 25 He-HD (HT, DT) 非对称碰撞体系弹性微分截面随散射角的变化

从图中还可看出: 随着散射角 θ 的增大, 弹性微分截面迅速减小, 并伴有衍射振荡现象, 而且角度越大, 振幅越小, 此后振荡逐渐消失, 弹性微分截面也逐渐减小并趋于某一较小的值. 随着入射能量和体系约化质量的增加, 微分截面的同一级极小值位置逐渐减小, 同时散射振荡间隔 $\Delta\theta$ 也逐渐减小. 由散射振荡间隔 $\Delta\theta$ 与碰撞体系折合质量 μ 、相对碰撞速度 ν_R 和球平均势能零点位置 σ 的

关系 [24]:

$$\Delta\theta \approx \pi\hbar/\mu\nu_R\sigma, \quad (12)$$

式中, μ, σ 为常数, 其值分别为 $3.002534, 6.866a_0$, 经计算得到当入射能量分别为 60, 90, 120 meV 时 He-HD 非对称碰撞体系的散射振荡间隔 $\Delta\theta$ 分别为 $8.6^\circ, 7.0^\circ$ 和 6.1° ; He-HT 体系的散射振荡间隔 $\Delta\theta$ 分别为 $7.9^\circ, 6.5^\circ$ 和 5.6° ; He-DT 体系的散射振荡间隔 $\Delta\theta$ 分别为 $7.7^\circ, 6.3^\circ$ 和 5.4° .

对微分截面的同一级极小值位置随入射能量和体系约化质量的增加逐渐减小这种现象可用势场对入射物质波的衍射来解释: 由德布罗意波长公式 $\lambda = h/\sqrt{2\mu E}$ (μ 是体系约化质量, E 是入射能量) 和衍射公式 $2d\sin\theta = n\lambda$ 可得 $\sin\theta \propto n/\sqrt{\mu E}$. 由此可知, 入射能量和体系约化质量越大, 同一级衍射极小值位置越小.

图 26 是 He-HD (HT, DT) 非对称碰撞体系总非弹性微分截面随散射角 θ 的变化曲线.

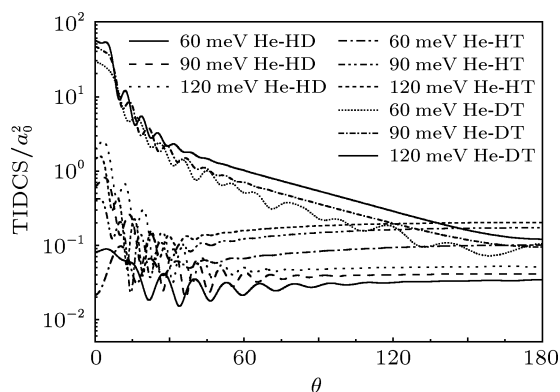


图 26 He-HD (HT, DT) 非对称碰撞体系总非弹性微分截面随散射角的变化

从图中可以看出: 在散射角较小时, He-HD (HT) 非对称碰撞体系总非弹性微分截面其散射截面值相对较大, 并随散射角的变化而振荡, 当入射原子能量和体系约化质量增加时散射截面逐渐增大; 在中等散射角和大角部分, 散射截面值随散射角的增加略有增大, 最后趋于某一截面值; 在散射角较小时, He-DT 非对称碰撞体系总非弹性微分截面其散射截面值相对较大, 并随散射角的变化而振荡, 但随散射角的逐渐增大, 其截面值则逐渐减小, 最后趋于某一稳定值.

图 27 是 He-HD (HT, DT) 非对称碰撞体系弹性、总非弹性和总微分截面随散射角 θ 的变化曲

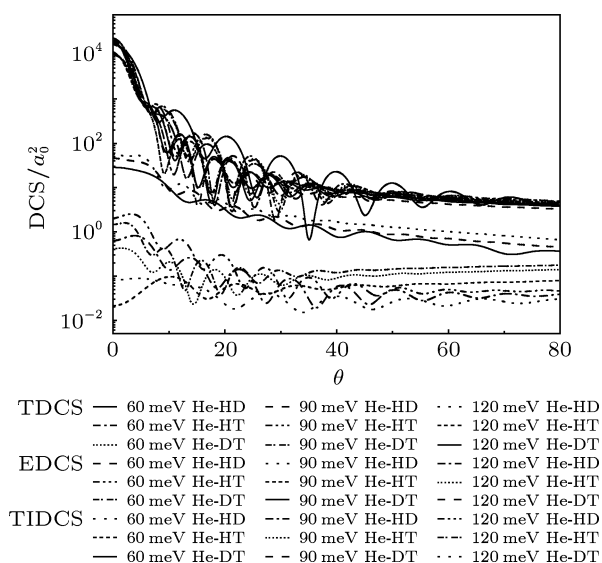


图 27 He-HD (HT, DT) 非对称碰撞体系弹性、总非弹性和总微分截面随散射角的变化

线. 从图中可以看出, 碰撞体系总非弹性微分截面对总微分截面的贡献较小, 弹性微分截面对总微分截面的贡献较大, 并与总微分截面随散射角 θ 的变

化具有相同的规律和特征, 碰撞体系的总微分截面主要以弹性截面为主.

4 结论

1) 运用质心变换-拟合方法拟合构造了 He 与同位素分子 HD, HT, DT 在质心坐标系下的相互作用势, 计算结果表明碰撞体系相互作用势具有各向异性特征.

2) 对 He-HD (HT, DT) 碰撞体系, 随着靶分子质量的改变, 体系的相互作用势不变, 只是靶分子键轴质心发生微小偏移, 同位素替代不影响体系的相互作用势.

3) He-HD (HT, DT) 非对称碰撞体系的弹性微分截面、总非弹性微分截面和总微分截面的极大值、极小值位置和衍射振荡现象等散射特征均随入射能量、体系约化质量和散射角的改变呈现规律性变化.

- [1] Ovchinnikova M Y 1985 *Chem. Phys.* **93** 101
- [2] Smith M J, Rabitz H 1991 *Chem. Phys.* **150** 361
- [3] Qi R, Yu X L, Li Z B, Liu W M 2009 *Phys. Rev. Lett.* **102** 185301
- [4] Ji A C, Liu W M, Song J L, Zhou F 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101** 010402
- [5] Liang Z X, Zhang Z D, Liu W M 2005 *Phys. Rev. Lett.* **94** 050402
- [6] Yang X D 1990 *Science in China A* **8** 833 (in Chinese) [杨向东 1990 中国科学 (A 辑) **8** 833]
- [7] Yang X D, Zhang J Y, Jing F Q 1998 *Chin. Phys. Lett.* **15** 19
- [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] Shen G X, Wang R K, Linghu R F, Yang X D 2011 *Acta Phys. Sin.* **60** 013101 (in Chinese) [沈光先, 汪荣凯, 令狐荣锋, 杨向东 2011 物理学报 **60** 013101]
- [11] Tang K T, Toennies J P 1981 *J. Chem. Phys.* **74** 1148
- [12] Yang X D, Zhou X L, Zhang J Y, Sun G H, Zhu J 2002 *Chin. Phys.* **11** 1013
- [13] Shen G X, Linghu R F, Wang R K, Yang X D 2007 *Chin. Phys.* **16** 3352
- [14] 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]
- [15] Shen G X, Wang R K, Linghu R F, Yang X D 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 3452 (in Chinese) [沈光先, 汪荣凯, 令狐荣锋, 杨向东 2008 物理学报 **57** 3452]
- [16] 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]
- [17] Wang R K, Shen G X, Song X S, Linghu R F, Yang X D 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 4138 (in Chinese) [汪荣凯, 沈光先, 宋晓书, 令狐荣锋, 杨向东 2008 物理学报 **57** 4138]
- [18] 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]
- [19] Yang X D 1992 *A Theoretical Calculation and Program of Collisions between Atom and Molecule* (Chengdu: Publishing Company of Electron Science and Technology University) [杨向东 1992 原子与分子碰撞理论计算及程序 (成都: 电子科技大学出版社)]
- [20] Kreek H, Le Roy R J 1975 *J. Chem. Phys.* **63** 338
- [21] Liu W K, Grabenstetter J E, Le Roy R J, McCourt F R 1978 *J. Chem. Phys.* **68** 5028
- [22] Tang K T, Toennies J P 1978 *J. Chem. Phys.* **68** 5501
- [23] Tang K T, Toennies J P 1981 *J. Chem. Phys.* **74** 1148
- [24] Bernstein R B 1979 *Atom-Molecule Collision Theory: A Guide for the Experimentalist* (New York: A Division of Plenum Publishing Corporation)

Theoretical calculation of the vib-rotational interaction potential and the differential coefficient cross sections for He-HD (HT, DT) system*

Shen Guang-Xian¹⁾ Wang Rong-Kai²⁾ Linghu Rong-Feng¹⁾
Zhou Xun¹⁾ Yang Xiang-Dong^{3)†}

1) (*School of Physics and Electronic Sciences, Guizhou Normal University, Guiyang 550001, China*)

2) (*School of Chemistry and Material Science, Guizhou Normal University, Guiyang 550001, China*)

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

(Received 2 April 2012; revised manuscript received 15 May 2012)

Abstract

The interaction potential surfaces of He-HD (HT, DT) are calculated by employing ab initio method at the CCSD(T)/AUG-CC-PV5Z +bf(3s3p2d1f) calculational level when the key-lengths of target-molecule are different. The vib-rotational interaction potentials of He-HD (HT, DT) system are fitted using the method of center of mass transformation-fitting, the Tang-Toennies potential function and nonlinear least square method at the incident angles of 0°, 20°, 40°, 60°, 80°, 90°, 100°, 120°, 140°, 160° and 180°. The differential coefficient cross sections at the energies of 60, 90 and 120 meV are calculated by using the quantum close-coupling method. On the basis of the above result, the change rules of the differential coefficient cross section with incident energy, reduced mass of system and scattering angle are discussed.

Keywords: Tang-Toennies potential function, method of center of mass transformation-fitting, differential coefficient cross sections, scattering angle

PACS: 31.15.A-, 31.15.-p, 31.50.-x, 34.20.Gj

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 10964002, 10974139), the Science-Technology Foundation of Guizhou Province, China (Grant Nos. [2009]2067, [2011]2110), the Natural Science Foundation of Education Bureau of Guizhou Province, China (Grant No. 20090041), and the Scientific Research Foundation for Doctors of Guizhou Normal University, China.

† E-mail: shguangxian@sina.com