

He 同位素与 H₂ 分子碰撞第二振动激发分波截面的理论研究^{*}

沈光先¹⁾²⁾ 汪荣凯²⁾ 令狐荣锋¹⁾²⁾ 杨向东^{1)†}

1) 四川大学原子与分子物理研究所, 成都 610065)

2) 贵州师范大学物理与电子科学学院, 贵阳 550001)

(2008 年 11 月 28 日收到, 2008 年 12 月 21 日收到修改稿)

用公认精确度较高的密耦近似方法计算了不同能量下惰性气体原子³He(⁴He, ⁵He)与 H₂ 分子替代碰撞体系的 00-20, 00-22, 00-24, 00-26 第二振动激发分波截面. 通过分析³He(⁴He, ⁵He)-H₂ 碰撞体系第二振动激发分波截面的差异, 总结出³He(⁴He, ⁵He)-H₂ 碰撞体系第二振动激发分波截面随同位素原子质量及入射能量改变的变化规律.

关键词: 振动激发, 分波截面, 密耦方法, 同位素

PACC: 3440, 3450

1. 引言

原子与双原子分子的振转激发碰撞在许多物质反应过程中如星际物质的冷却、气体激光行为预测^[1,2]、气体碰撞的共振荧光^[3]、气态弛豫^[4]等过程中起着重要作用, 而且它还为分子间振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振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, 除了对 H₂, D₂, T₂ 分子与原子碰撞的同位素替代效应的研究较多外^[5,6], 对其他分子与原子碰撞的同位素替代效应的研究至今报道甚少.

氦原子与氢分子(H₂)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^[7-21], 但对于它的同位素替代效应研究, 目前尚处于探索

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 H₂ 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 H₂ 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.

然而, 当入射原子能量高于靶分子的振动激发能级时, 会在转动激发发生的同时, 发生振动激发, 这种情况要比单纯的转动激发复杂得多. 有鉴于此, 本文拟对氦原子(³He, ⁴He, ⁵He)与氢分子(H₂)的同位素替代碰撞的振动激发分波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

$$H = -\frac{\hbar^2}{2\mu_{A,BC}} \nabla_R^2 - \frac{\hbar^2}{2\mu_{BC}} \nabla_r^2$$

^{*} 国家自然科学基金(批准号: 10574096)和贵州省科学技术基金(批准号: 黔科合丁字[2009]2067号)资助的课题.

[†] 通讯联系人. E-mail: shguangxian@sina.com

$$+ V(R, r, \cos\theta), \quad (1)$$

式中, A, B, C 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.

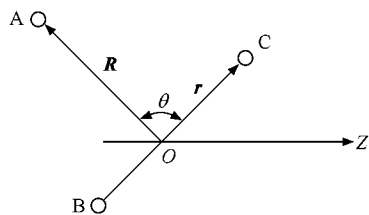


图 1 原子与双原子分子碰撞的几何图形

体系的总波函数可以写为

$$\begin{aligned} \psi_a^{(+)}(\mathbf{R}, \mathbf{r}) = & \frac{1}{K_{n_a, J_a} R} \sum_{n_\gamma J_\gamma l_\gamma} g_{n_\gamma J_\gamma l_\gamma, n_a J_a M_a}^J(R) \\ & \times \phi_{n_\gamma J_\gamma}(r) Y_{JM_a}^{l_\gamma J_\gamma}(\hat{R}, \hat{r}), \quad (2) \end{aligned}$$

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 a 表示入射通道, 下标 γ 表示其他可能发生的通道, n_a 是分子初态的振动量子数, $\hbar k_{n_a J_a}$ 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, $Y(\hat{R}, \hat{r})$ 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 $\psi_a^{(+)}(\mathbf{R}, \mathbf{r})$ 满足的 Schrödinger 方程为

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

把(1)(2)式代入(3)式并进行适当变形可得

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

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 He-H_2 碰撞体系, 其相互作用势模型可表述为如下形式^[22]:

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

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 θ 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 $V_\lambda(R, r)$ 可用短程自洽场排斥势和长程色散吸引势来表示, 有

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

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 $^4\text{He-H}_2$, $^5\text{He-H}_2$, 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 $(n_a J_a)$ 跃迁到 $(n_\beta J_\beta)$ 的分波散射截面由下列公式给出:

$$\begin{aligned} \sigma_{n_a J_a \rightarrow n_\beta J_\beta}^J = & \frac{1}{2J_a + 1} \frac{4\pi}{K_a^2} \sum_{l_\beta M_a} (2l_\beta + 1) \\ & \times |T_{n_\beta J_\beta l_\beta, n_a J_a M_a}^J|^2. \quad (7) \end{aligned}$$

3. 计算结果与讨论

我们首先计算了 H_2 分子的 00-20, 00-22, 00-24, 00-26 振转激发能级, 得到其能级值分别为 1.003207, 1.0428282, 1.133834 和 1.272759 eV. 由计算可知, 00-26 能级的振转间距最大, 00-24, 00-22 次之, 00-20 最小.

取入射原子的相对碰撞能量 $E = 1.1, 1.2, 1.3$ eV, 研究了 $^3\text{He} (^4\text{He}, ^5\text{He})$ 原子与 H_2 分子碰撞体系第二振动激发分波截面 (partial cross section, 简称 PCS), 计算结果如图 2 所示.

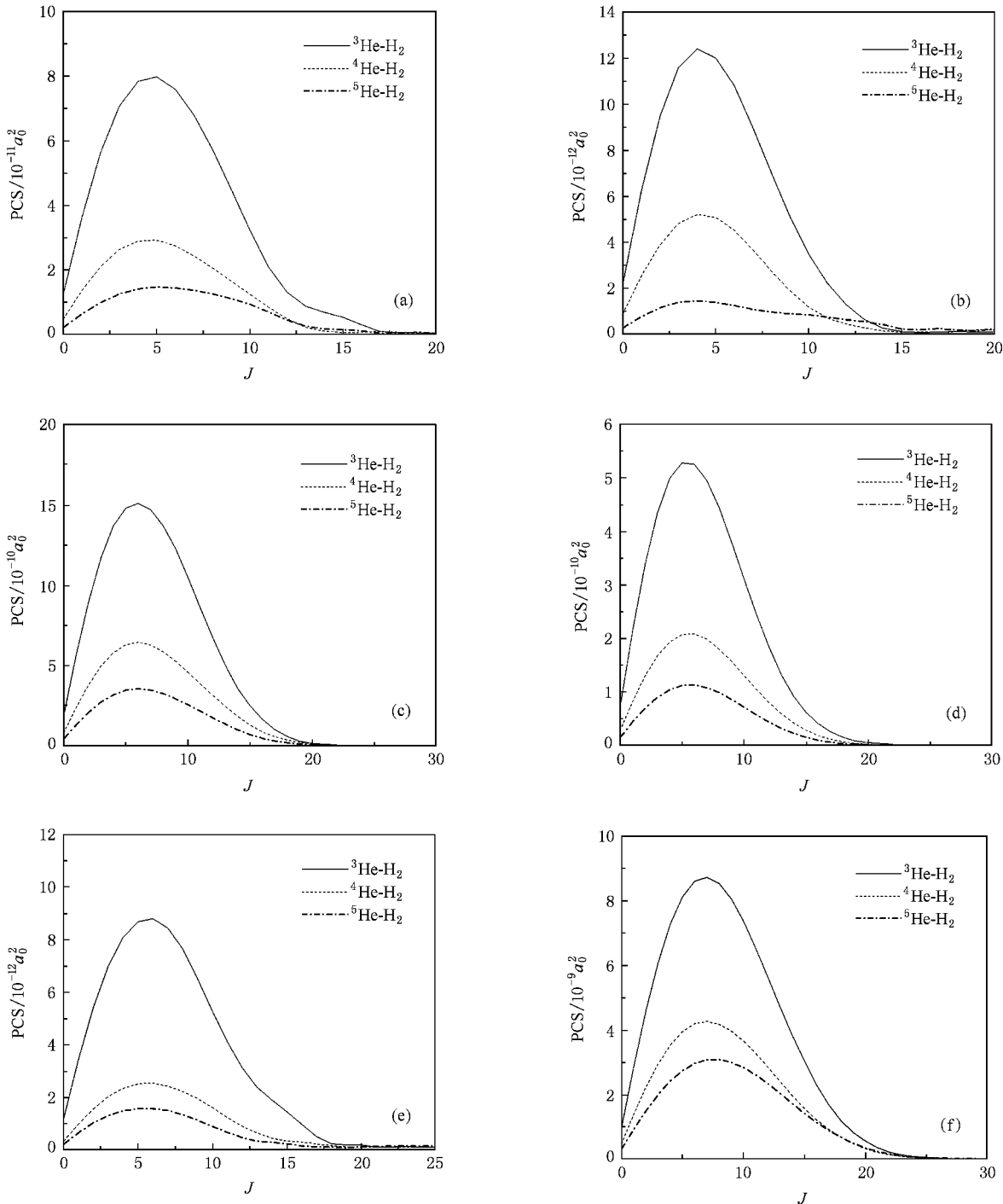
图 2 中的 (a) (b) 为入射能量 $E = 1.1$ eV 时 $^3\text{He} (^4\text{He}, ^5\text{He})\text{-H}_2$ 分子碰撞体系的 00-20, 00-22 振动激发分波截面, (c) (d) (e) 为入射能量 $E = 1.2$ eV 时 $^3\text{He} (^4\text{He}, ^5\text{He})\text{-H}_2$ 分子碰撞体系的 00-20, 00-22, 00-24 振动激发分波截面, (f) (g) (h) (i) 为入射能量 $E = 1.3$ eV 时 $^3\text{He} (^4\text{He}, ^5\text{He})\text{-H}_2$ 分子碰撞体系的 00-20, 00-22, 00-24, 00-26 振动激发分波截面. 从图 2 可以看出: 在入射能量和入射原子质量不同时, 碰撞体系的第二振动激发分波截面随 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, 但在峰值幅度和收敛速度方面却有如下差异:

1) 当入射能量一定时, 随着入射同位素原子质量的增加, 振动激发分波截面峰值减小.

2) 当入射原子质量一定时, 振动激发分波截面峰值随入射原子能量的增加而增加, 散射极大值的位置随入射原子能量的增加而向大 J 方向移动, 详细数据如表 1 所示.

3)当入射原子能量一定时,随入射同位素原子质量的增加,收敛速度变慢.收敛量子数 J 如表2所示.对He同位素替代及入射原子能量变化所引起的分波截面随 J 的有规律的变化,可作如下解释^[23]: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 μ 及动能 E 的关系为 $k = \sqrt{2\mu E}/\frac{h}{2\pi}$.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: $k \leq \sqrt{2\mu E}/\frac{h}{2\pi}$.由于我们考虑了分子振转激发,故 $J = a \sqrt{2\mu E}/\frac{h}{2\pi}$,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³He-H₂, ⁴He-H₂,



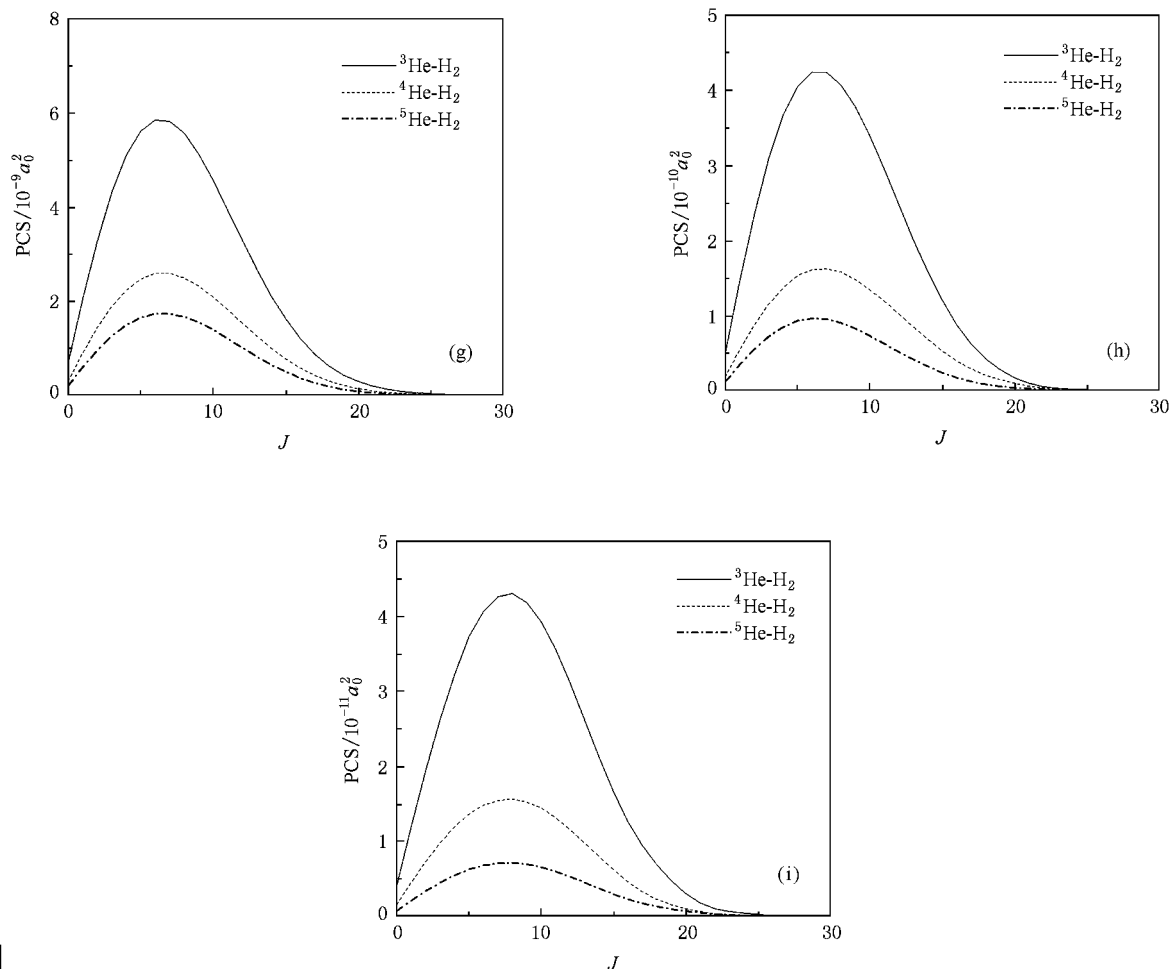


图2 ^3He (^4He , ^5He)- H_2 碰撞体系振动激发分波截面 (a)00-20, $E = 1.1 \text{ eV}$ (b)00-22, $E = 1.1 \text{ eV}$ (c)00-20, $E = 1.2 \text{ eV}$ (d)00-22, $E = 1.2 \text{ eV}$; (e)00-24, $E = 1.2 \text{ eV}$ (f)00-20, $E = 1.3 \text{ eV}$ (g)00-22, $E = 1.3 \text{ eV}$ (h)00-24, $E = 1.3 \text{ eV}$ (i)00-26, $E = 1.3 \text{ eV}$

^5He - H_2 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, 当入射能量一定时, 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 $J \propto \sqrt{\mu}$; 而当体系约化质量一定时, 入射能量的开方与得到的收敛截面所需的分波数也成正比, 即 $J \propto \sqrt{E}$, 而 ^3He - H_2 , ^4He - H_2 , ^5He - H_2 碰撞体系约化质量逐渐增加. 因此, 分波截面振荡极大值的位置和收敛所需的分波数均依次向大 J 方向移动.

4) 当入射原子的质量和入射能量一定时, 00-20, 00-22, 00-24, 00-26 振动激发分波截面峰值随能级的升高逐渐减小. 这主要是由于 H_2 分子 00-20, 00-22, 00-24, 00-26 振转能级间距方面的差异造成的, 因为 00-20 振转能级间距最小, 在相同的碰撞能量下, 从 $\nu_j = 00$ 被激发到 $\nu_j = 20$ 的几率最大, 因而

He - H_2 体系的 00-20 振动激发截面的峰值最大, 00-22 次之, 00-26 振转能级间距较大, 在入射能量 $E = 1.1 \text{ eV}$ 时, 不能被激发到 $\nu_j = 24$ 或更高能级; 在入射能量 $E = 1.2 \text{ eV}$ 时, 则不能被激发到 $\nu_j = 26$ 或更高能级.

从表 1 中可以看出, 当入射原子的相对碰撞能量一定时, 随着体系约化质量的增加, 00-20, 00-22, 00-24, 00-26 振动激发分波截面峰值逐渐减小; 当入射原子的质量一定时, 随着能量的增加, 振动激发分波截面峰值的位置也向大 J 的方向移动, 截面值逐渐增加.

从表 2 中可以看出, 当入射原子质量一定时, 随着入射能量的增加, 收敛速度变慢; 当入射原子的相对碰撞能量一定时, 随着入射同位素原子质量的增加, 收敛速度也变慢.

表 1 不同能量时振动激发分波截面峰值及相应量子数 J

碰撞体系	跃迁能级	$E = 1.1 \text{ eV}$		$E = 1.2 \text{ eV}$		$E = 1.3 \text{ eV}$	
		截面峰值/ a_0^2	J	截面峰值/ a_0^2	J	截面峰值/ a_0^2	J
$^3\text{He-H}_2$	00-20	7.98×10^{-11}	5	1.51×10^{-9}	6	8.73×10^{-9}	7
	00-22	1.24×10^{-11}	4	5.28×10^{-10}	5	5.85×10^{-9}	6
	00-24	—	—	8.8×10^{-12}	6	4.24×10^{-10}	7
	00-26	—	—	—	—	4.3×10^{-11}	8
$^4\text{He-H}_2$	00-20	2.92×10^{-11}	5	6.45×10^{-10}	6	4.26×10^{-9}	7
	00-22	5.21×10^{-12}	5	2.08×10^{-10}	6	2.59×10^{-9}	7
	00-24	—	—	2.54×10^{-12}	6	1.62×10^{-10}	7
	00-26	—	—	—	—	1.56×10^{-11}	8
$^5\text{He-H}_2$	00-20	1.47×10^{-11}	5	3.56×10^{-10}	6	3.08×10^{-9}	8
	00-22	1.45×10^{-12}	4	1.13×10^{-10}	6	1.73×10^{-9}	7
	00-24	—	—	1.58×10^{-12}	6	9.61×10^{-11}	7
	00-26	—	—	—	—	7.1×10^{-12}	8

表 2 不同能量时振动激发分波截面收敛量子数 J

E/eV	$^3\text{He-H}_2$				$^4\text{He-H}_2$				$^5\text{He-H}_2$			
	00-20	00-22	00-24	00-26	00-20	00-22	00-24	00-26	00-20	00-22	00-24	00-26
1.1	17	16	—	—	18	17	—	—	20	19	—	—
1.2	23	22	19	—	25	24	20	—	27	26	21	—
1.3	24	23	22	21	26	24	23	22	27	25	24	23

4. 结 论

由以上分析可看出 , $^3\text{He}(^4\text{He}, ^5\text{He})\text{-H}_2$ 碰撞体系第二振动激发分波截面随同位素原子质量及入射能量的改变表现出以下规律性 :

1)在相同的入射能量下 ,分波截面的峰值随同位素原子质量的增加而减小 ,激发态越高 ,其散射截面的峰值越小 ,低激发态被激发的几率远远大于高

激发态被激发的几率 ;分波截面收敛分波数随入射同位素原子质量的增加而增加 .但由于 $^3\text{He}, ^4\text{He}, ^5\text{He}$ 的原子质量相差较小 ,使得分波截面收敛分波数的改变也较小 .

2)在入射原子质量一定时 ,随着入射能量的增加 ,振动激发分波截面最大值的位置向大 J 的方向移动 ,截面值增加 .

3)在入射原子质量和入射能量均相同时 ,振动激发分波截面值随能级的升高而减小 .

[1] Yang X D 1990 *Sci . China Ser . A* **8** 833 (in Chinese) [杨向东 1990 中国科学 ,A 辑 **8** 833]

[2] Yang X D , Zhang J Y , Jing F Q 1998 *Chin . Phys . Lett .* **1** 14

[3] Zhang J Y 1997 (MS Thesis)(Chengdu : Sichuan University)(in Chinese) [张继彦 1997 (硕士学位论文文)(成都 :四川大学)]

[4] 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]

[5] 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]

[6] 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]

[7] Gurtiss C F 1970 *J . Chem . Phys .* **52** 1078

[8] Gordon M D , Secrest D 1970 *J . Chem . Phys .* **52** 120

[9] Tang K T , Toennies J P 1981 *J . Chem . Phys .* **74** 1148

[10] Yang X D , Zhou X L , Zhang J Y , Sun G H , Zhu J 2002 *Chin . Phys .* **11** 1013

[11] Feng Y B , Zhang J Y , Jiang D Q 2000 *J . At . Mol . Phys .* **17** 477 (in Chinese) [冯一兵、张继彦、蒋德琼 2000 原子与分子物理学报 **17** 477]

- [12] Jiang D Q ,Yang X D 2001 *J. Sichuan University(Natural Science Edition)* **24** 580 (in Chinese) [蒋德琼、杨向东 2001 四川师范大学学报(自然科学版) **24** 580]
- [13] Jiang D Q ,Wang X Q , Yang X D 2002 *J. At . Mol . Phys .* **19** 75 (in Chinese) [蒋德琼、王小琴、杨向东 2002 原子与分子物理学报 **19** 75]
- [14] Jiang D Q ,Li X ,Wei Q 2003 *J. Sichuan University(Natural Science Edition)* **26** 486 (in Chinese) [蒋德琼、李 旭、魏 强 2003 四川师范大学学报(自然科学版) **26** 486]
- [15] Meyer W 1980 *J. Chem . Phys .* **73** 1880
- [16] Tang K T ,Toennies J P 1986 *J. Phys .* **D 1** 91
- [17] Shen G X , Linghu R F , Wang R K , Yang X D 2007 *Chin . Phys .* **16** 3352
- [18] 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]
- [19] 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]
- [20] 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]
- [21] 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]
- [22] Yang X D 1992 *A Theoretical Calculation and Program of Collisions between Atom and Molecule* (Chengdu : Electron Science and Technology University Press) (in Chinese) [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)]
- [23] Brian H B 1979 *Atomic Collisions Theory* (Benjamin : Cummings Publishing Company)

Theoretical study on the partial cross section for the second vibrational excitation in He-H₂ collisions^{*}

Shen Guang-Xian^{1,2)} Wang Rong-Kai²⁾ Linghu Rong-Feng^{1,2)} Yang Xiang-Dong¹⁾†

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

² *School of Physics and Electronic Sciences , Guizhou Normal University , Guiyang 550001 , China)*

(Received 28 November 2008 ; revised manuscript received 21 December 2008)

Abstract

Close-coupling method was applied to the ³He(⁴He , ⁵He)-H₂ system , and the second vibrational excitation cross sections of “ 00-20 , 00-22 , 00-24 , 00-26 ” at different incident energies have been calculated. By analysing the differences of these partial wave cross sections , the change rules of how the partial wave cross sections change with the mass of isotope atom and the relative kinetic energy of incident atoms are obtained .

Keywords : vibrational excitation , partial cross sections , close-coupling method , isotope

PACC : 3440 , 3450

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China(Grant No. 10574096) , and the Science-Technology Foundation of Guizhou Province , China (Grant No. [2009] 2067) .

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