

中、高能电子被 SO_2 分子散射的微分截面、 动量转移截面及弹性积分截面*

施德恒^{1)†} 孙金锋¹⁾ 朱遵略^{1)‡} 杨向东²⁾ 刘玉芳¹⁾ 马 恒¹⁾

1) 河南师范大学物理与信息工程学院, 新乡 453007)

2) 四川大学原子与分子物理研究所, 成都 610065)

(2006 年 12 月 4 日收到; 2007 年 3 月 14 日收到修改稿)

在考虑分子内成键原子间的电子云重叠效应的基础上, 提出了一种能够准确计算“中、高能电子-分子”散射的微分截面、动量转移截面及弹性积分截面的修正势方法. 利用可加性规则、使用 Hartree-Fock 波函数并采用被这一方法修正过的复光学势, 在 100—1000 eV 内对电子被 SO_2 分子散射的微分截面、动量转移截面及弹性积分截面进行了计算, 并将计算结果与实验及其他理论结果进行比较. 结果表明, 利用这一修正过的复光学势及可加性规则获得的微分截面比利用未修正的复光学势及可加性规则得到的结果准确得多, 计算得到的动量转移截面及弹性积分截面在入射电子能量不低于 200 eV 时也都比较接近实验值.

关键词: 可加性规则, 微分截面, 动量转移截面, 电子散射

PACC: 3410

1. 引 言

在过去的几十年里, 人们提出了多种处理“中、高能电子-原子”散射问题的方法. 然而对“中、高能电子-分子”散射问题而言, 相应的方法或者不存在, 或者非常复杂, 这主要有两方面原因. 一是在中、高能区, 几乎所有的非弹性通道(如转动、振动、电子激发、电离与离解等)都被打开, 这给计算带来了极大的困难; 另一个原因是几乎所有的计算方法都要使用单中心分子波函数, 而准确获得一个分子、尤其是复杂分子的单中心分子波函数是一件极困难的事.

可加性规则变复杂的“电子-分子”散射问题为简单的“电子-原子”散射问题, 因此一经提出便受到了人们的广泛关注. 1991 年, 文献[1]选择 5 个能量点, 在 100—500 eV 内利用这一规则计算了电子被 O_2 , CO , CO_2 和 CF_4 分子散射的总截面、微分截面及弹性积分截面. 接着, 文献[2]也用这一规则在 100—1000 eV 内计算了电子被 O_2 , CO , CO_2 和

N_2 分子散射的总截面. 随后, 这一规则被多人用于多个“电子-分子”散射体系的多种截面的计算^[3-7]. 尽管这一规则能够在足够高的入射能量下获得满意的结果, 但在中、低能区, 其计算值与实验值间总是存在较大的误差.

为使可加性规则的适用范围尽可能地朝低能方向延伸, 人们对复光学势进行了各种各样的改造^[8-12]. 在研究电子被 O_2 分子散射的微分截面时, 文献[8]在吸收势前引入了一个衰减因子 $m = 1/k$ (其中 k 为入射电子的动量), 在一个较宽的能区内得到了满意的计算结果; 文献[9]认为可加性规则缺乏对分子特性的考虑, 特别是没有充分考虑长程极化效应对“电子-分子”散射总截面的影响. 于是, 文献[9]在计算电子被 NO , CO , N_2O , CO_2 和 NH_3 分子散射的总截面时, 将“电子-分子”相互作用的极化势分成短程势和长程势两部分考虑, 在一个较宽的能区内也获得了好的结果; 在计算“电子-分子”散射的总截面时, 文献[10, 11]将吸收势^[13]中原子的能隙阈值 Δ 用原子的电离势代替, 在计算“正电子-分子”散射的总截面时, 文献[12]还将 Δ 值取

* 国家自然科学基金(批准号: 10574039, 10174019)资助的课题.

† E-mail: scattering@sina.com.cn

成正电子偶素的形成能, 还有一些其他的修正方法. 不过这些修正都是对少量靶分子进行了计算, 而仅对少量分子的计算结果是难以得出普适结论的.

针对复光学势中存在的问题, 近来我们提出了一种新的修正方法: 在考虑分子内两成键原子间的电子云重叠效应的基础上引入束缚原子概念, 进而利用这一束缚原子概念对复光学势进行修正. 计算表明^[14-16], 利用这一束缚原子概念修正过的复光学势进行计算, 可以在一个较宽的能区内大大提高电子被分子、尤其是被复杂分子散射时的总截面计算准确度.

本文利用可加性规则及修正后的复光学势计算 100—1000 eV 的电子被 SO₂ 分子散射的微分截面、动量转移截面及弹性积分截面. 之所以选择 SO₂ 分子作为研究对象, 一是因为这个分子是污染大气的几种主要气体之一, 研究电子被这个分子散射的微分截面、动量转移截面及弹性积分截面对指导大气污染的防治有重要意义^[17]; 另一方面是因为关于电子被 SO₂ 分子散射的微分截面、动量转移截面及弹性积分截面虽有一些实验结果^[18-22], 但有关的理论计算^[23]却非常少.

2. 计算方法

根据可加性规则, 分子对足够高能量的入射电子是透明的, 原子间的相互作用对散射截面的贡献可以忽略, 因此分子中的原子可以看作是“自由”的. 据此, 当电子被含有 N 个原子组成的分子散射时, 其散射的微分截面、动量转移截面和弹性积分截面可以写成

$$K(\theta) = \sum_{m=1}^N |f_m(\theta)|^2, \quad (1)$$

$$Q_M(E) = 2\pi \int_0^\pi K(\theta) (1 - \cos\theta) \sin\theta d\theta, \quad (2)$$

$$Q_L(E) = 2\pi \int_0^\pi K(\theta) \sin\theta d\theta, \quad (3)$$

式中 $f_m(\theta)$ 为组成分子的第 m 个原子在散射角为 θ 时的散射振幅; $K(\theta)$, $Q_M(E)$ 和 $Q_L(E)$ 分别为电子被分子散射的微分截面、动量转移截面和弹性积分截面.

(1) 式中的散射振幅 $f_m(\theta)$ 可利用下式求出:

$$f_m(\theta) = \frac{1}{2ik} \sum_l (2l+1) (S_l - 1) P_l(\cos\theta), \quad (4)$$

式中 S_l 为组成分子的第 m 个原子第 l 个分波的复

散射矩阵元.

$$S_l = \frac{(1 - \rho_{jl}) h_l^{(2)} + \rho h_l^{(2)'}}{(1 - \rho_{jl}) h_l^{(1)} + \rho h_l^{(1)'}}, \quad (5)$$

式中 $h_l^{(1)}$, $h_l^{(2)}$ 分别为第一类和第二类 Hankel 函数, $h_l^{(1)'}$, $h_l^{(2)'}$ 为其导数; j_l 为 $\rho = kr$ 处的波函数 u_l 的导数 u'_l 与波函数 u_l 的比值

$$j_l = \frac{u'_l(\rho)}{u(\rho)}. \quad (6)$$

要获得波函数 u_l 及其导数 u'_l , 须求解如下电子散射的分波方程:

$$\left(\frac{d^2}{dr^2} + k^2 - V_{\text{opt}} - \frac{K(l+1)}{r^2} \right) u_l(r) = 0, \quad (7)$$

式中

$$u_l(kr) \approx kr [j_l(kr) - in_l(kr)] + S_l kr [j_l(kr) + in_l(kr)] \quad (8)$$

为当 $r \rightarrow \infty$ 时方程(7)的边界条件. 这里 j_l 及 n_l 分别为 Bessel 和 Neumann 函数; k^2 为入射电子的能量; V_{opt} 为复光学势, 用如下形式的复函数描述:

$$V_{\text{opt}}(r) = V_s(r) + V_p(r) + V_e(r) + iV_a(r), \quad (9)$$

式中 $V_s(r)$ 为静电势, 由文献[24]给出的 Hartree-Fock 波函数确定; $V_p(r)$, $V_e(r)$ 和 $V_a(r)$ 分别为交换势、极化势和吸收势, 并分别由文献[13, 25, 26]给出.

计算表明, 在 30—5000 eV 内, (9) 式所描述的复光学势完全适合于“电子-原子”散射截面的计算. 但当利用(9)式及可加性规则计算电子被分子散射的总截面时, 中、低能区的计算值一般都大大高于实验值^[5-7], 当靶分子中含有较多的原子或含有较大原子量的原子时更是如此^[6, 7]. 这说明(9)式所描述的复光学势虽适合“电子-原子”散射截面的计算, 但不适合“电子-分子”散射截面的研究.

当原子形成分子时, 分子中两个成键原子(即束缚原子)的电子云有部分重叠. 重叠的结果造成了束缚原子的电子云扭曲变形, 因而其对称性遭到了破坏. 分子中含有的原子数越多, 原子间的相互作用就越复杂, 情况也就越是如此. 所以, 对束缚原子的描述应不同于不受其他任何影响的自由原子. 这就意味着在中、低能区使用描述“电子-自由原子”相互作用势的(9)式及可加性规则去进行“电子-分子”散射的各种截面计算, 理应出现较大的误差.

分子内原子间的相互作用, 可以用束缚原子间

电子云的重叠效应来进行简化描述. 由于不同分子内的原子(即使是同一原子)受其他原子的影响可能不同, 因而其电子云的重叠情况也可能不相同. 电子云重叠的结果是导致电子云的扭曲, 而不再呈现自由原子时的球形. 准确进行扭曲变形的分析和计算是非常复杂的, 这里我们采用一简化模型, 即在考虑束缚原子的电子云重叠效应后, 仍将其电子云看作是球形. 只是这一球形电子云对“电子-分子”散射截面有贡献的电荷密度(本文将其称为“有效电荷密度”) $\rho'(r)$ 应比自由原子的实际电荷密度 $\rho(r)$ 小, 两者之间的关系可写成

$$\rho'(r) = f\rho(r), \quad (10)$$

式中 f 为结构因子. 电子云的重叠程度应与原子含有的电子总数 N_1 和其最外壳层的电子数 Z 有关. 计算表明, 最外壳层的电子数越多、原子的电子总数越少, 则按 (1) 式计算出的总截面的误差就越大; 反之就越小. 因此 f 因子应与 Z/N 有关. 电子云的重叠程度应与两个成键原子的核间距(键长 r) 及其原子半径 (r_1, r_2) 有关. 对电子被分子散射的总截面及微分截面所进行的大量计算表明, 若 f 因子取如下形式则可得到满意的计算结果:

$$f = 1 - \frac{r}{R} \frac{Z}{N_1}, \quad (11)$$

式中 R 为两原子的半径之和, $R = r_1 + r_2$. 于是, (9) 式修正为

$$V_{\text{opt}}(r) = fV_s(r) + V_p(r) + V_e(r) + iV_a(r), \quad (12)$$

式中

$$V_e = -\frac{1}{4} \left\{ \sqrt{[k^2 - \alpha(fV_s + V_p)]^2} + 16\pi f\rho - [k^2 - \alpha(fV_s + V_p)] \right\}. \quad (13)$$

利用 (12) 式, 我们在 30—5000 eV 内进行了大量的“电子-分子”散射总截面的计算^[14—16], 均获得了与实验值较为符合的结果. 这表明对总截面的计算而言, 该修正是成功的.

本文利用 (12) 式对 100—1000 eV 的电子被 SO₂ 分子散射的微分截面、动量转移截面及弹性积分截面进行计算. 这里, S, O 原子的半径是利用 Hartree-Fock 波函数^[24]所确定的原子电荷密度求得的, 键长则采用文献 [27] 的数据. 利用四阶 Runge-Kutta 方法编制 Fortran 程序, 在满足边界条件 (8) 式的情况下对 (7) 式求数值解, 以得到关键性的复散射矩阵元 S_l . 如未特别声明, 本文的计算一律采用

原子单位.

3. 计算结果及讨论

利用可加性规则和修正后的复光学势, 计算了 200, 500, 800 和 1000 eV 的电子被 SO₂ 分子散射的微分截面. 本文的计算结果与文献 [20, 21] 的实验结果以及文献 [23] 的计算结果分别示于图 1—图 4 中. 另外还计算了 100, 200, 300, 400, 500, 800 和 1000 eV 的电子被 SO₂ 散射的动量转移截面及弹性积分截面, 本文的计算结果连同文献 [17, 22] 的实验结果及文献 [23] 的理论结果, 一并列表 1 中.

图 1 给出了 200 eV 的电子被 SO₂ 分子散射的微分截面. 从图 1 可以看出, 采用修正后的复光学势计算出的结果与文献 [23] 的计算结果较为接近. 当散射角较小时, 本文结果与文献 [21] 的实验结果也相符很好. 虽然当散射角进一步增大时, 本文结果与文献 [21] 的实验结果间的误差有所增大, 但误差仍在合理的范围内.

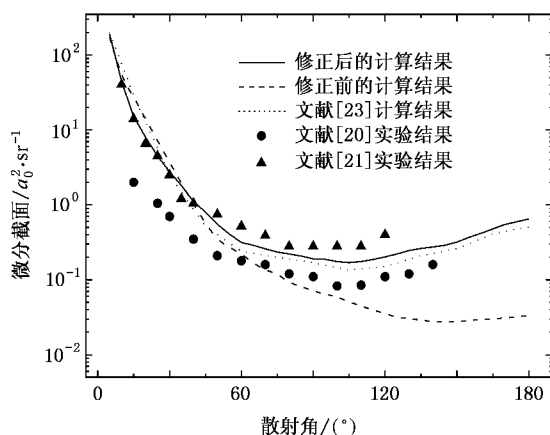
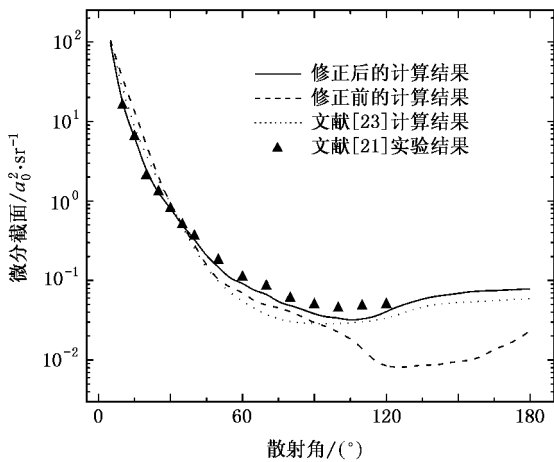
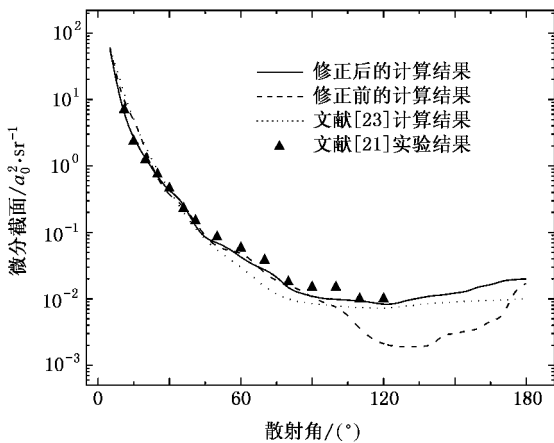


图 1 200 eV 的电子被 SO₂ 散射的微分截面

图 2 和图 3 分别给出了 500 和 1000 eV 的电子被 SO₂ 分子散射的微分截面. 由图 2、图 3 可清楚地看出, 本文结果与唯一的一个实验结果^[21]非常相符. 与文献 [23] 的计算结果相比, 本文结果在一个较大的散射角范围内更接近于文献 [21] 的实验值.

图 1—图 3 还给出了使用未修正的复光学势及可加性规则计算出的微分散射截面. 由图 1—图 3 不难看出, 尽管在小散射角的计算结果与实验值间的误差不算太大, 但散射角稍大时则存在着明显的误差.

显然, 使用修正后的复光学势计算得到的微分

图2 500 eV的电子被SO₂散射的微分截面图3 1000 eV的电子被SO₂散射的微分截面

散射截面,在某些散射角处明显优于使用未修正的复光学势得到的结果.唯一的原因就是在修正后的复光学势中考虑了分子内两成键原子间的电子云重叠效应,而未修正的复光学势则未考虑.因此本文的计算表明这一修正对中、高能电子被SO₂分子散射的微分截面的计算是成功的.

可加性规则忽略了分子内的多重散射效应和价键扭曲效应^[28,29].因此即使采用了修正后的复光学势,在较低的能量下于某些散射角处计算得到的微分截面依然与实验值间存在着相对较大的误差.另外,当电子的入射能量较低时,入射电子的德布罗意波长与分子的内核间距可以比拟、甚至大于内核间距,这也增大了多重散射的可能性.可以预期的是,在较低能量下若考虑多重散射效应及价键扭曲效应,则可能会显著地提高计算结果的准确性^[28,29],相关的计算正在进行中.

随着电子入射能量的增加,分子内的多重散射效应和价键扭曲效应对微分截面的影响逐渐减小,因此其计算结果也就越来越准确.这就是图2、图3的计算结果较之于图1的计算结果更接近于实验值的原因.

图4给出了800 eV的电子被SO₂分子散射的微分截面,遗憾的是在这一能量点处无任何实验或理论结果可供比较.但作者根据500和1000 eV处的计算结果与实验值间的符合情况推定,在这一能量点处使用修正后的复光学势计算得到的结果应当是合理的.

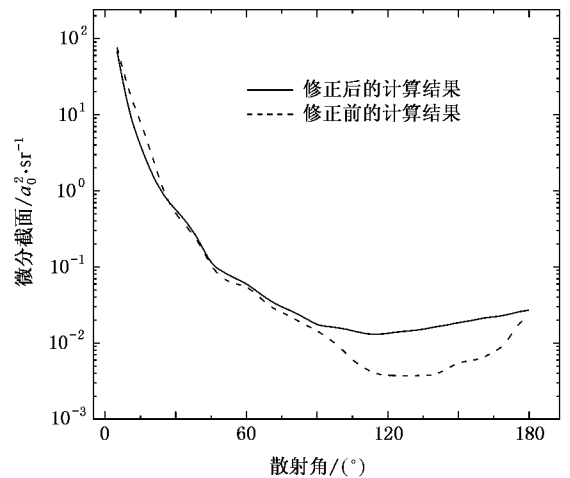
图4 800 eV的电子被SO₂散射的微分截面

表1列出了使用可加性规则并利用修正后的复光学势计算得到的100—1000 eV内若干能量点处的电子被SO₂分子散射时的动量转移截面及弹性积分截面.对动量转移截面而言,本文的计算结果显然比文献[23]的计算结果更接近文献[22]的实验值,而且随着电子入射能量的增加,本文结果与文献[22]的实验值间的误差也越来越小.例如:在100 eV处,本文结果与文献[22]的实验值间的误差虽然有26.9%,但在200 eV处就已降至9.6%;对弹性积分截面而言,本文结果在100 eV处与文献[17]的实验结果间虽然有很大的误差,但当 $E = 200$ eV时就已降到较低的水平.由于在入射能量高于200 eV的区域暂无实验结果,因此我们无法进行直接比较.不过根据200—1000 eV内本文计算得到的微分截面与实验结果^[21]较为一致且动量转移截面与文献[22]的实验值又较为相符等情况,可以判定在300,400,500,800和1000 eV处本文计算得到的弹性积分截面应该是可靠的.

表 1 不同能量的电子被 SO₂ 分子散射时的动量转移截面及弹性积分截面

能量/eV	100	200	300	400	500	800	1000
动量转移截面							
本文计算值	11.8	4.88	3.08	2.29	1.89	1.33	0.98
文献 22 实验值	9.3	5.4	3.4	2.5	2.0	—	1.0
文献 23 计算值	13.3	3.9	2.0	1.2	0.8	—	0.3
弹性积分截面							
本文计算值	40.13	27.46	18.13	14.32	12.08	8.39	7.03
文献 17 实验值	30.4	25.0	—	—	—	—	—
文献 23 计算值	67.4	29.4	19.8	15.4	12.7	—	7.1

4. 结 论

本文在考虑分子内两成键原子间的电子云重叠效应的基础上,提出了一种能够准确计算‘中、高能电子-分子’散射的微分截面、动量转移截面及弹性积分截面的修正势方法.利用可加性规则及这一方法修正后的复光学势,对电子被 SO₂ 分子散射的微分截面、动量转移截面和弹性积分截面进行了计算,并将计算结果与实验及其他理论结果进行了比较.

结果表明,利用可加性规则及修正后的复光学势计算出的微分截面、动量转移截面和弹性积分截面能够与实验值较好相符,说明本文给出的这一修正对电子被 SO₂ 分子散射的微分截面、弹性积分截面和动量转移截面的计算是成功的.

作为下一步的工作,作者正在对更多、更复杂的‘电子-分子’散射体系的微分截面、动量转移截面和弹性积分截面进行计算,以进一步检验这一修正方法的合理性和适用性.

- [1] Raj D 1991 *Phys. Lett. A* **160** 571
- [2] Joshipura K N, Patel P M 1994 *Z. Physik D* **29** 269
- [3] Joshipura K N, Vinodkumar M 1997 *Phys. Lett. A* **224** 361
- [4] Reid D D, Wadehra J M 1999 *Chem. Phys. Lett.* **311** 385
- [5] Blanco F, Garcia G 2003 *Phys. Lett. A* **317** 458
- [6] Baluja K L, Agrawal A 1995 *Phys. Lett. A* **198** 225
- [7] Sun J F, Xu B, Liu Y F, Shi D H 2005 *Chin. Phys.* **14** 1125
- [8] Raj D, Kumar A 2001 *Phys. Lett. A* **282** 284
- [9] Joshipura K N, Patel P M 1996 *J. Phys. B* **29** 3925
- [10] Joshipura K N, Baluja K L 1997 *Z. Phys. D* **41** 133
- [11] Raizada R, Baluja K L 1997 *Phys. Rev. A* **55** 1533
- [12] Baluja K L, Jain A 1992 *Phys. Rev. A* **45** 7838
- [13] Staszewska G, Schwenke D W, Thirumalai D, Truhlar D G 1983 *Phys. Rev. A* **28** 2740
- [14] Shi D H, Zhu Z L, Sun J F, Yang X D, Liu Y F, Zhao Y 2004 *Chin. Phys. Lett.* **21** 474
- [15] Shi D H, Sun J F, Zhu Z L, Liu Y F, Yang X D 2006 *Chin. Phys.* **15** 1278
- [16] Shi D H, Liu Y F, Sun J F, Yang X D, Zhu Z L 2005 *Chin. Phys.* **14** 2208
- [17] Zecca A, Nogueira J C, Karwasz G P, Brusa R S 1995 *J. Phys. B* **28** 477
- [18] Gulley R J, Buckman S J 1994 *J. Phys. B* **27** 1833
- [19] Trajmar S, Shyn T W 1989 *J. Phys. B* **22** 2911
- [20] Orient O J, Iga I, Srivastava S K 1982 *J. Chem. Phys.* **77** 3523
- [21] Iga I, Perreira M E, Lee M T, Nogueira J C, Homen R P, Miglio H S 1995 *Proc. Xth Int. Conf. on the Physics of Electronics and Atomic Collisions*(Whistler : America Institute of Physics)
- [22] Hayashi S 1987 *Swarm Studies and Inelastic e⁻-Molecule Collision* (New York : Springer) p167
- [23] Raj D, Tomar S 1997 *J. Phys. B* **30** 4075
- [24] Clementi E, Roetti C 1974 *Atomic Data and Nuclear Data Tables* **14** 177
- [25] Riley M E, Truhlar D G 1983 *J. Chem. Phys.* **63** 2182
- [26] Shi D H, Sun J F, Zhu Z L, Liu Y F 2005 *Chin. Phys.* **14** 120
- [27] Lide D R 2001 *CRC Handbook of Chemistry and Physics* (81st ed) (Boca Raton : Chemical Rubber Company)
- [28] Hayashi S, Kuchitsu K 1976 *Chem. Phys. Lett.* **41** 575
- [29] Bonham R A, Iijima T 1963 *J. Phys. Chem.* **67** 2266

Absolute differential , elastic integral and moment transfer cross sections for electron scattering by SO₂ at intermediate and high energies ^{*}

Shi De-Heng^{1,2)†} Sun Jin-Feng¹⁾ Zhu Zun-Lue^{1,2)} Yang Xiang-Dong²⁾ Liu Yu-Fang¹⁾ Ma Heng¹⁾

¹ *College of Physics and Information Engineering , Henan Normal University , Xinxiang 453007 , China)*

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

(Received 4 December 2006 ; revised manuscript received 14 March 2007)

Abstract

Taking into consideration the overlapping effect of electron clouds between two bonded atoms in a molecule , a modified potential method is presented which can be used to accurately calculate various cross sections for electron scattering by molecules at intermediate and high energies. The modified complex optical potential is directly employed to calculate the absolute differential , elastic integral and moment transfer cross sections for electron scattering by SO₂ in the energy range 100—1000 eV by using the additivity rule at Hartree-Fork level. The quantitative results are compared with those obtained by measurement and other theories wherever available. It is shown that the additivity rule model together with the modified complex optical potential can give the encouraging results , which are much closer to the measurements than the unmodified ones.

Keywords : additivity rule , absolute differential cross section , moment transfer cross section , electron scattering

PACC : 3410

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 10574039 , 10174019).

[†] E-mail : scattering@sina.com.cn