

АКАДЕМИЯ НАУК СССР

ЖУРНАЛ
ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЙ
И
ТЕОРЕТИЧЕСКОЙ
ФИЗИКИ

Том 49

(Отдельный оттиск)

8

МОСКВА · 1965

РАСЧЕТ УГЛОВОГО РАСПРЕДЕЛЕНИЯ РЕЗОНАНСНОЙ ПЕРЕЗАРЯДКИ

Ю. Н. Демков, Ю. Е. Мурашвер

В квазиклассическом приближении, позволяющем учесть различие траекторий относительного движения ядер для симметричного и антисимметричного состояний квазимолекулы, вычисляется угловое распределение резонансной перезарядки ионов He^+ в гелии. Анализируются условия применимости использованных формул. Произведено сопоставление результатов с экспериментом и с более грубыми расчетами, выполненными Эверхартом [6]. Обсуждаются пути уточнения теории.

1. Введение. Исходное приближение

За последнее время произведены детальные измерения зависимости вероятности резонансной перезарядки w от угла рассеяния θ_0 и энергии налетающего иона E_0 ¹⁾ (см., например, [1], где имеются ссылки на предшествующие работы). При этом было обнаружено, что w при фиксированных θ_0 является осциллирующей функцией от E_0 , а при фиксированных E_0 — от θ_0 . Адиабатическая теория резонансной перезарядки, развитая в рамках параметрического метода (классическое приближение для ядер) [2-4], также предсказывает наличие таких осцилляций. Однако вопреки этой теории наблюдаемые на опыте максимумы и минимумы вероятности не доходят соответственно до 1 и 0.

Кроме того, попытки рассчитать зависимость w от E_0 и θ_0 [5, 6] наталкиваются при классическом описании ядер на принципиальные трудности, поскольку при движении в полях

$$U_{\pm}(R) = Z^2 / R + \varepsilon_{\pm}(R)$$

(Z — заряд ядер и $\varepsilon_{\pm}(R)$ — основные симметричный и антисимметричный электронные термы квазимолекулы, R — расстояние между ядрами) одним и тем же значениям θ соответствуют различные параметры удара ρ , которые мы будем обозначать через $\rho_{\pm}(E, \theta)$. Данное затруднение возникает во всех задачах теории столкновений, связанных с расчетом углового распределения в классическом приближении. Однако в случае резонансной перезарядки, которая фактически является лишь результатом интерференции между молекулярными состояниями и не связана с электронными переходами между этими состояниями, его можно преодолеть (см. ниже). Это можно сделать также и для неупругих процессов, характеризующихся малой областью перехода, например для переходов при пересечении (или псевдопересечении) молекулярных термов.

Недавно Смит в серии статей [7-9] предпринял изучение перезарядки на основе квантово-механических формул Месси и Смита [10]:

$$q(\theta) = 1/4 |f^+(\theta) - f^-(\theta)|^2, \quad (1)$$

$$q_1(\theta) = 1/4 |f^+(\theta) + f^-(\theta)|^2. \quad (2)$$

В (1) и (2) q_1 и q — соответственно дифференциальные сечения упругого

¹⁾ Обе величины берутся в лабораторной системе; те же величины в системе центра масс мы будем обозначать через E и θ .

рассеяния и резонансной перезарядки, а $f^{\pm}(\theta)$ — амплитуды потенциального рассеяния в полях ²⁾ $U_{\pm}(R)$:

$$f^{\pm}(\theta) = \frac{1}{2Mv} \sum_{l=0}^{\infty} [\exp(2i\eta_l^{\pm}) - 1](2l+1)P_l(\cos \theta), \quad (3)$$

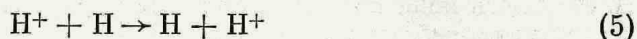
где M — приведенная масса, v — относительная скорость на бесконечности, η_l^{\pm} — l -е фазы рассеяния.

Формула (1) дает правильные значения полного сечения перезарядки σ при ³⁾ $v \ll v_0$ (v_0 — скорость «активного» электрона на боровской орбите). Однако, даже если это условие выполнено, при малых $\rho(E, \theta)$ величины $q(\theta)$ и $q_1(\theta)$ определяются неверно, так как в этом случае нужно учитывать все состояния квазимолекулы, имеющие при $R=0$ одну и ту же энергию (см., например, [11], гл. 18). Этот эффект, называемый вращательной связью, несуществен, и электронная волновая функция изменяется адиабатически, если

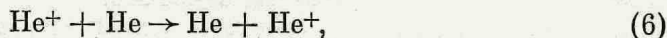
$$v/\rho \ll a\rho^2, \quad (4)$$

где левая часть по порядку величины равна угловой скорости вращения квазимолекулы, а правая — расщеплению термов, вырожденных при $R=0$, одним из которых является $\varepsilon_-(R)$.

В упомянутых выше статьях Смита произведены расчеты перезарядки



в широком интервале энергий и углов рассеяния. Смит учел также эффект вращения, используя для этой цели результаты Бейтса и Вильямса [12], и получил хорошее согласие с экспериментом для $\theta_0 = 3^\circ$ (для других углов экспериментальные данные до настоящего времени отсутствуют). В настоящей статье будет рассмотрен резонансный процесс



который во многих отношениях интереснее, чем (5). Кроме того, в этом случае имеются экспериментальные данные для широкого диапазона E и θ . Поскольку у Смита не проанализированы достаточно четко условия дальнейших приближений, мы остановимся на этом более подробно в следующем разделе. Это тем более важно, что полученные результаты можно существенно развить в различных направлениях.

2. Полуклассическое приближение

Ввиду большой массы атомов движение их в достаточно широкой области является квазиклассическим, т. е. для фаз справедлива формула (приближение Лангера — Джеффриса):

$$\eta_l^{\pm} = Mv \left[\int_{R^{\pm}}^{\infty} \left(1 - \frac{\rho^2}{R^2} - \frac{U_{\pm}(R)}{E} \right)^{1/2} dR - \int_{\rho}^{\infty} \left(1 - \frac{\rho^2}{R^2} \right)^{1/2} dR \right], \quad (7)$$

где

$$\rho = (l + 1/2) / Mv \quad (8)$$

— классический параметр удара и R^{\pm} — наибольшие корни соответствующих подынтегральных выражений. Формула (7), во всяком случае, применима, если (см. [13], гл. 7)

$$\eta_l \gg 1. \quad (9)$$

²⁾ Всюду, где не оговорено противное, используются атомные единицы.

³⁾ В настоящей статье мы ограничиваемся указанным интервалом скоростей.

В квазиклассической области E и θ ряды (3) сходятся очень плохо: необходимо учитывать несколько сотен и даже тысяч парциальных волн. Поэтому в (3) можно суммирование заменить интегрированием, использовать для $P_l(\cos \theta)$ асимптотические выражения при $l \rightarrow \infty$ и получившиеся интегралы вычислить по методу стационарной фазы. Эта процедура, подробно описанная в [14], § 126, приводит к выражению

$$f^\pm(\theta) = A_l^\pm \exp \{i[2\eta_l^\pm - (l_\pm + 1/2)\theta]\} = [q^\pm(\theta)]^{1/2} \exp(iS^\pm), \quad (10)$$

где

$$A_l^\pm = \frac{1}{Mv} \left[\frac{l_\pm}{\sin \theta} \left| \frac{d^2 \eta_l^\pm}{dl_\pm^2} \right|^{-1} \right]^{1/2} = [q^\pm(\theta)]^{1/2} \quad (11)$$

— квадратный корень из классического дифференциального сечения рассеяния на потенциале $U_\pm(R)$ и $l_\pm(E, \theta)$ есть корень уравнения

$$2 \frac{d\eta_l^\pm}{dl_\pm} = \theta. \quad (12)$$

Полезно отметить, что величина $S^+(S^-)$, входящая в (10), имеет простой физический смысл: она равна разности между классическим действием (вычисленным за весь процесс рассеяния) для частицы, отклоненной в поле $U_+(U_-)$ на угол θ , и действием частицы, движущейся прямолинейно и равномерно. Выражение (10) справедливо в случае монотонной зависимости U_\pm от R при условии

$$l_\pm(E, \theta)\theta \gg 1. \quad (13)$$

Если же потенциал имеет минимум (как U_+ для процесса (5) и U_- для (6)), то существует угол экстремального отклонения $\theta_c = 2(d\eta_l/dl)l_c$, где $l_{c\pm}$ — корень уравнения $d^2\eta_l^\pm/dl_\pm^2 = 0$. При $\theta \lesssim \theta_c$, благодаря так называемому «эффекту радуги», формула (10) неприменима [15, 9].

Для случая гелия эффект радуги может возникнуть при рассеянии в поле $U_-(R)$. Поэтому условия применимости формулы (10) вместо (13) оказываются следующими:

$$l_+\theta \gg 1, \quad l_-(\theta - \theta_c) \gg 1. \quad (14)$$

Запишем теперь исходную формулу для вероятности резонансной перезарядки:

$$w(E, \theta) = q / (q + q_1), \quad (15)$$

или на основании (10):

$$w = 1/2 [1 - G(E, \theta) \cos(S^- - S^+)], \quad (16)$$

$$G(E, \theta) = 2(q^+q^-)^{1/2} / (q^+ + q^-) < 1. \quad (17)$$

Формулы (16), (17) показывают, что одной из причин сглаживания интерференционных экстремумов является различие классических сечений q^+ и q^- .

Пусть далее

$$U_\pm(\rho_\pm) / E \ll 1. \quad (18)$$

Тогда формула (7) принимает более простой вид:

$$\eta_l^\pm = -\frac{1}{v} \int_\rho^\infty \frac{U_\pm(R) R dR}{(R^2 - \rho^2)^{1/2}} = -\frac{1}{v} F_\pm(\rho) \quad (19)$$

(см., например, [14], § 123). Хотя при выводе (19) мы не накладывали ограничений на θ , данная формула в действительности применима только

при $\theta \ll 1$, что нетрудно усмотреть из (18) (см. также задачу 1 к § 20 книги Ландау и Лифшица [16]).

Если условия (4), (9), (14) и (18) выполнены, то на основании (10) — (12) и (19) определение $w(E, \theta)$ сводится к следующим операциям: из уравнения

$$\left| \frac{dF_{\pm}(\rho)}{d\rho} \right| = E\theta \quad (20)$$

находим $\rho_{\pm}(E\theta)$; затем вычисляем

$$G(E\theta) = 2 \frac{[\rho_+ \rho_- (d^2 F_+ / d\rho_+^2) (d^2 F_- / d\rho_-^2)]^{1/2}}{\rho_+ d^2 F_- / d\rho_-^2 + \rho_- d^2 F_+ / d\rho_+^2}, \quad (21)$$

и

$$S^- - S^+ = \frac{2}{v} \beta(E\theta) = \frac{2}{v} [F_+(\rho_+) - F_-(\rho_-) + E\theta(\rho_+ - \rho_-)]. \quad (22)$$

Величины (21) и (22) подставляем в (16) и получаем вероятность перезарядки как функцию E и θ . Заметим, что при $\theta \ll 1$ ρ_{\pm} , G и β являются функциями произведения $E\theta$, но не E и θ в отдельности.

3. Перезарядка в гелии

Методика численных расчетов по формулам предыдущего раздела во многих существенных чертах аналогична описанной в работе Эверхарта [6], где в рамках параметрического метода рассмотрен процесс (6). Ниже мы остановимся главным образом на тех моментах, которые не встречались в [6]. В качестве $\epsilon_+(R)$ мы, как и Эверхарт, берем „adiaбатическую” кривую, рассчитанную Лихтенем [17]. Этот терм, которому в приближении молекулярных орбит соответствует конфигурация $(1\sigma_g)(1\sigma_u)^2$ молекулы He_2^+ , определяет, согласно Лихтену, процесс резонансной перезарядки He^+ в He при не очень малых v . При $R < 2$ он пересекает бесконечное число термов и затем границу сплошного спектра квазимолекулы He_2^+ .

Однако наличие интерференционной картины показывает, что взаимодействие с этими термами и со сплошным спектром невелико. Поэтому при не слишком малых v можно рассчитывать процесс (6) по формулам раздела 2, заменяя, однако, адиабатический терм Σ_g соответствующей адиабатической кривой.

Ввиду того, что функция $G(E\theta)$ изменяется очень медленно (рис. 1), экстремумы $w(E, \theta)$ определяются, согласно (16), условием

$$S^- - S^+ = \pi k, \quad (23)$$

четные k соответствуют минимумам, нечетные — максимумам.

Учет связи с другими состояниями приводит (см. [9]) вместо (16) к следующей формуле для полной вероятности перезарядки:

$$w = 1/2 [1 - G(E, \theta) A(E, \theta) \cos(S^- - S^+ + \Phi(E, \theta))], \quad (24)$$

$$A = [1 - P(1 + |f^+(\theta)|^2 / |f^-(\theta)|^2)]^{1/2}, \quad (25)$$

где P — вероятность всех неупругих процессов, кроме ионизации, и Φ — поправка к фазе $f^-(\theta)$.

В случае процесса (5), рассмотренного Смитом [9], существенна лишь связь между состояниями $2p\sigma$ и $2p\pi$ (вращательная связь). Вычисления показывают, что $A(E, \theta)$ близко к единице, т. е. вращательная связь мало

меняет величины экстремумов. Но при $E\theta > 2$ кэв·град, когда $\rho_+ \ll 1$, $\Phi(E, \theta)$ оказалось близким к π ; при наименьшем значении $E\theta = 0,75$ кэв·град $\Phi \sim 2$.

Поскольку в настоящей работе мы не будем вычислять величины P и Φ , то постараемся косвенно учесть эффект вращения. Для этого положим $A = 1$ ($P = 0$) и $\Phi = \pi$. Первое из допущений естественно, второе требует некоторых обоснований. Обратимся для этого к формуле (4), положив в ней для грубых оценок $a = 1$ (точное определение a трудоёмко).

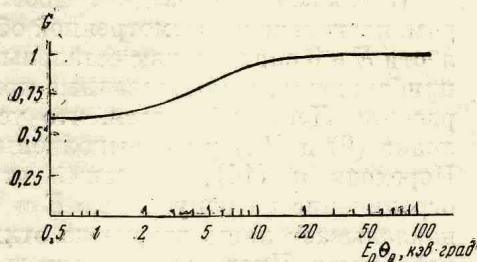


Рис. 1. «Сглаживающая» функция $G(E_0\theta_0)$

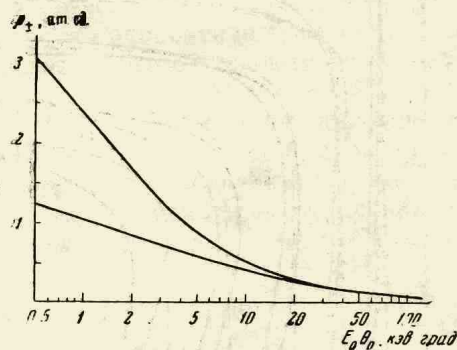


Рис. 2. Эффективные параметры удара $\rho_{\pm}(E_0\theta_0)$

Используя рис. 2, заключаем, что в большей части изученной экспериментально области E и θ ($0,5^\circ < \theta_0 < 5^\circ$ и $0,4$ кэв $< E_0 < 25$ кэв) выполнено условие, обратное (4). Поскольку вращение квазимолекулы есть в основном геометрический эффект, естественно ожидать, что при указанных E и θ фаза Φ близка к π . В меньшей, хотя и значительной, части обследованного диапазона E и θ выполнено неравенство (4), т. е. предположение, что $\Phi = \pi$ необоснованно. Однако можно думать, что при этих E и θ выполняется неравенство $|\pi - \Phi| > \Phi$, как и для процесса (5).

Полагая в (24) $\Phi = \pi$ ⁴, получаем вместо (23) следующее условие экстремума:

$$S^- - S^+ = \pi(k - 1). \quad (26)$$

Для процесса (5) $S^- - S^+ < 0$, а для перезарядки (6) $S^- - S^+ > 0$. Поэтому в первом случае эффект вращения сдвигает экстремумы в сторону меньших, а во втором — в сторону больших E и θ .

На рис. 3 представлены теоретические и экспериментальные [18] кривые, определяющие максимумы вероятности перезарядки для $k = 7, 9, 11, 13$ и 15 ($S^- - S^+ = 6\pi, 8\pi, 10\pi, 12\pi$ и 14π соответственно). Как видно из рисунка, результаты настоящей работы согласуются с экспериментом заметно лучше, чем данные Эверхарта [6]. Исключение составляет область весьма малых $E\theta$, когда Φ , вероятно, существенно меньше, чем π .

Из этих данных также видно, что согласие результатов Эверхарта [6] с экспериментом [18] до известной степени случайное. Оно является результатом частичной компенсации двух неучитываемых им эффектов: сдвига фазы из-за вращения оси и эффекта несовпадающих траекторий для полей U_+ и U_- . Такая же компенсация была обнаружена Смитом [9] при изучении процесса (5).

⁴ При этом мы неявно предполагаем, что взаимодействие состояния $(1\sigma_g)(1\sigma_u)^2$ с другими не приводит к дополнительным фазовым множителям у амплитуды $f^+(\theta)$, так как внезапное переворачивание межъядерной оси не меняет в этом случае знака волновой функции.

В работе Локвуда и др. [18] приведены экспериментальные кривые $w(\theta)$ при $E = 25; 8, 07$ и $5,03$ кэв, а также $w(E)$ при $\theta = 1, 3$ и 5° .

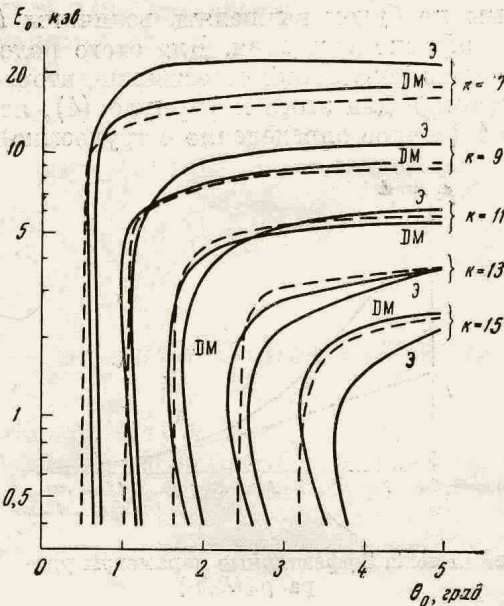


Рис. 3. Кривые, определяющие положение максимумов вероятности перезарядки: сплошные — теория, пунктирные — эксперимент (DM — результаты настоящей работы, Э — данные Эверхарта)

ной на рис. 3). Типичное же значение левой части (27) составляет несколько десятков. Таким образом, описанный в разделе 2 переход к классическому пределу оправдан и при этом эффект радуги несуществен.

4. Заключение

В настоящей статье не учтены или учтены недостаточно последовательно следующие причины сглаживания резонансов: 1) вращение квазимолекулы; 2) переходы, связанные с тем, что адиабатическая кривая пересекает бесконечное число термов той же симметрии; 3) автоионизация, связанная с тем, что при малых R состояние $(1\sigma_g)(1\sigma_u)^2$ является квазистационарным.

Учет первого эффекта можно выполнить как в работе Бейтса и Вильямса [12] (см. также формулу (24)). Второй эффект вряд ли может быть учтен теоретически. Разумнее поставить обратную задачу: сопоставляя рассчитанные (с учетом вращательной связи) w_{max} и w_{min} с измеренными, оценить вероятность соответствующих процессов; сопоставляя же их относительное расположение, оценить добавку к фазе $f^+(\theta)$, связанную с процессами псевдопересечения.

Теоретический расчет автоионизации также связан с большими трудностями. Однако можно думать, что в нашей области E и θ этот процесс не играет большой роли. В самом деле, используя формулы (24), (25), легко усмотреть, что усредненное по некоторой области E и θ значение вероятности (обозначим его через \tilde{w}) близко к $1/2$. Экспериментальные же значения заключены в пределах $0,4 < \tilde{w} < 0,6$. Если бы автоионизация

Из рис. 3 ясно, что положения теоретических и экспериментальных экстремумов в основном оказываются близкими. Однако соответствующие w_{max} и w_{min} согласуются плохо, кроме кривой $w(\theta)$ при $E = 1$ кэв, где совпадение может быть признано удовлетворительным.

В заключение раздела проверим, насколько в рассмотренной области E и θ справедливы остальные приближения, использованные при расчете. Легко убедиться, что условия (9) и (18) у нас выполнены. Переходя к (14), заметим, что ограничение на допустимые E и θ накладывает лишь второе из этих неравенств. Численные оценки дают: $l_c \approx 3/2 Mv$, $E\theta_c \approx 0,2$. Таким образом, это неравенство можно переписать:

$$2v^{-1}\rho_-(E\theta - 0,2) \gg 1. \quad (27)$$

Используя кривую $\rho_-(E\theta)$ на рис. 2, можно убедиться, что написанное условие не выполнено лишь при наименьших E и θ (левый нижний угол области, изображенной на рис. 3).

играла существенную роль, то наблюдалось бы заметное уменьшение \bar{w} по сравнению с $1/2$ ⁵⁾. Тот факт, что во многих случаях $\bar{w} > 1/2$, может являться следствием или экспериментальных ошибок или же используемого при выводе формулы (24) необоснованного предположения о том, что переходы в возбужденные состояния не ведут к изменению угла рассеяния налетающей частицы. Если скорости достаточно малы, то состояние квазимолекулы изменяется в соответствии с адиабатической кривой. Вполне строгое описание перехода к ней от адиабатического терма является непросто задачей. Следует, впрочем подчеркнуть, что такой переход можно реализовать только на экспериментах с рассеянием на большие углы ($\theta \sim 1 \text{ рад}$), когда можно добиться не только адиабатического изменения состояния квазимолекулы, но и достаточно тесного сближения иона с атомом.

В заключение следует отметить, что, благодаря наличию интерференции, измерения дифференциального сечения резонансной перезарядки позволяют получить гораздо больше информации о поведении термов, чем обычные опыты по измерению углового распределения при отсутствии интерференции (упругое рассеяние атомов, рассеяние ионов на атомах другого газа и т. п.).

Ленинградский государственный
университет

Поступила в редакцию
6 марта 1965 г.

Литература

- [1] H. F. Helbig, E. Everhart. Phys. Rev., 136, A674, 1964.
- [2] О. Б. Фирсов. ЖЭТФ, 21, 1001, 1951.
- [3] Ю. Н. Демков. Уч. зап. ЛГУ, физика, 8, 74, 1952.
- [4] T. Holstein. J. Phys. Chem., 56, 832, 1952.
- [5] F. P. Ziemba, A. Russek. Phys. Rev., 115, 922, 1959.
- [6] E. Everhart. Phys. Rev., 132, 2083, 1963.
- [7] F. J. Smith. Phys. Letters, 10, 290, 1964.
- [8] F. J. Smith. Physica, 30, 497, 1964.
- [9] F. J. Smith. Proc. Phys. Soc., 84, 889, 1964.
- [10] H. S. W. Massey, R. A. Smith. Proc. Roy. Soc., A142, 142, 1933.
- [11] Atomic and molecular processes, N. Y., Academic press., 1962. Перев. Атомные и молекулярные процессы, ИИЛ, 1964.
- [12] D. R. Bates, D. A. Williams. Proc. Phys. Soc., 83, 425, 1964.
- [13] N. F. Mott, H. S. W. Massey. The theory of atomic collisions, Oxford, 1949. Перев. Н. Мотт, Р. Месси. Теория атомных столкновений, ИИЛ, 1951.
- [14] Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц. Квантовая механика, Физматгиз, 1963.
- [15] K. W. Ford, J. A. Wheeler. Ann. Phys. N. Y., 7, 259, 1959.
- [16] Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц. Механика, Физматгиз, 1958.
- [17] W. Lichten. Phys. Rev., 131, 229, 1963.
- [18] G. J. Lockwood, H. F. Helbig, E. Everhart. Phys. Rev., 132, 2078, 1963.

CALCULATION OF THE ANGULAR DISTRIBUTION OF RESONANCE CHARGE EXCHANGE

Yu. N. Demkov, Yu. E. Murakhver

The angular distribution of resonance charge exchange for He⁺ ions in helium is calculated in the quasiclassical approximation which permits one to take into account the difference in the trajectories of the relative motion of the nuclei for symmetric and antisymmetric states of the quasimolecule. The conditions of applicability of the formulas employed are analyzed. The results are compared with the experiments and with rough calculations performed by Everhart^[6]. Possible ways of refinement of the theory are discussed.

⁵⁾ Как видно из (24), переходы в возбужденные связанные состояния He₂⁺ не меняют \bar{w} , так как половина частиц, испытавших такой переход, дает вклад в сечение перезарядки (с возбуждением), а другая половина — в сечение возбуждения.