

УДК 539.172.2

СТОЛКНОВЕНИЯ ЭЛЕКТРОНОВ С МОЛЕКУЛАМИ ГАЛОГЕНОВОДОРОДОВ

С. А. Позднеев

Представлены результаты расчетов сечений столкновений электронов с двухатомными молекулами галогеноводородов, выполненные на основе квантовой теории рассеяния в системе нескольких тел. Результаты проведенных расчетов процессов столкновений электронов с молекулами галогеноводородов сопоставляются с имеющимися экспериментальными данными и результатами расчетов, использующих иные приближения.

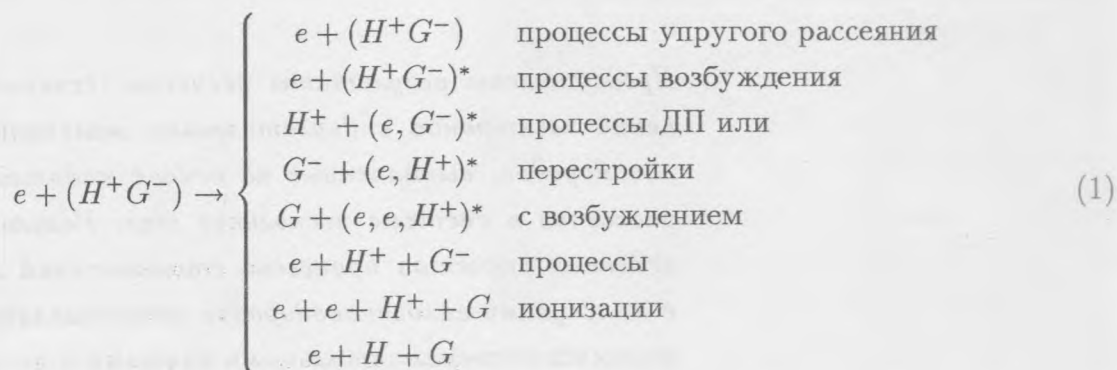
Теоретическое и экспериментальное изучение молекул галогеноводородов имеет как важное теоретическое значение, так и практическое применение, что связано со следующими обстоятельствами:

– молекулы галогеноводородов являются дипольными молекулами, в связи с тем, что электронное сродство к атому водорода значительно меньше, чем электронное сродство к атому галогена [1] и, таким образом, молекулы галогеноводородов можно представить как систему, состоящую из протона и отрицательного иона галогена. Как хорошо известно, дипольные молекулы привлекают к себе пристальное внимание теоретиков [2, 3];

– в ряде практических приложений, например, в проблеме термоядерного синтеза, роль молекул галогеноводородов состоит в том, чтобы вследствие многократной ионизации при лазерном воздействии значительно усилить кулоновский взрыв и таким образом увеличить кинетическую энергию образования дейтонов и, соответственно, сечение реакции термоядерного синтеза [2]. Плазма галогенов и галогеноводородов применяется для травления тугоплавких металлов, алюминия, сложных полупроводников. Поэтому вопросы, связанные с изучением кинетики и механизмов образования активных частиц

в плазме галогеноводородов, являются актуальными. Кроме этого, процесс диссоциативного прилипания электрона (ДП) к молекулам играет важную роль в процессах получения отрицательных ионов в процессах быстрой генерации атомов фтора и хлора из галогеносодержащих молекул в эксимерных лазерах, плазме газового разряда и т.д. [2, 3].

Поэтому настоящая работа посвящена теоретическому исследованию процессов, происходящих при столкновениях электронов с молекулами галогеноводородов



В предлагаемом подходе основное приближение состоит в том, что взаимодействие налетающего электрона с электронами и ядрами молекулы-мишени заменяется взаимодействием налетающего электрона с протоном, атомом галогена и электроном, связанным с атомом галогена. Таким образом, сложная многочастичная задача по расчетам сечений рассеяния электрона двухатомными молекулами галогеноводородов сводится к задаче столкновения в системе четырех попарно взаимодействующих тел, для решения которой и применяется метод квантовой задачи рассеяния в системе нескольких частиц.

Необходимо отметить, что данное приближение справедливо при энергиях налетающего электрона меньших, чем энергия электронного возбуждения молекул галогеноводородов [5]. Основные сложности расчетов сечений реакций (1) в рассматриваемом приближении связаны с дальнедействующими кулоновскими потенциалами взаимодействия, причем непосредственное применение интегральных уравнений Фаддеева в этом случае невозможно – необходима либо модификация этих уравнений, либо использование дифференциальной формулировки уравнений Фаддеева в координатном пространстве.

Однако в некоторых случаях, как, например, упругое рассеяние, реакции ДП и возбуждения (т.к. в этих процессах в конечном состоянии находятся не более трех частиц) можно ограничиться уравнениями Фаддеева для трех попарно взаимодействующих тел

– налетающего электрона, протона и отрицательного иона галогена, находящихся как в основном состоянии, так и в заранее заданных колебательно-вращательных состояниях. Как показали эксперименты [3, 4], сечение реакции ДП зависит от степени возбуждения колебательно-вращательного состояния молекулы мишени, что необходимо проверить на основе предлагаемых выше моделей.

Поэтому сначала рассмотрим упрощенную трехчастичную модель, в которой в явном виде пренебрегается процессами образования отрицательных ионов водорода, а в дальнейшем, используя более строгую модель, основанную на квантовой теории рассеяния в системе четырех частиц, рассмотрим всевозможные процессы (1) и таким образом оценим справедливость трехчастичного приближения.

В качестве исходных данных в подобной постановке задачи используются массы, энергии сталкивающихся частиц и парные потенциалы взаимодействия, которые состоят из короткодействующей части и дальнедействующего кулоновского взаимодействия.

Квантовая теория рассеяния в системе нескольких тел, основанная на уравнениях Фаддеева–Якубовского, достаточно подробно представлена в работах [5, 6] вместе с различными численными методами решения этих уравнений.

В случае рассеяния электронов молекулами большая величина отношения массы протона к массе электрона является благоприятным обстоятельством, позволяющим получить также и аналитические решения, представленные в [5] в некоторых частных случаях. Сравнивая аналитическое решение с численным решением, можно контролировать точность получаемого численного решения, и, таким образом, применение обычного метода сеток в полярной системе координат для решения поставленной задачи становится обоснованным [5–7].

В качестве парных короткодействующих потенциалов взаимодействия электронов с атомами молекулы наряду с кулоновскими потенциалами применялись потенциалы нулевого радиуса (ПНР) [8] и потенциалы вида

$$V(r) = \lambda \exp(-\beta r)/r,$$

параметры которых определялись на основе энергии связи электрона в отрицательном ионе, длин рассеяния и эффективного радиуса. Парные короткодействующие потенциалы взаимодействия между ионом галогена и протоном в молекулах галогеноводородов моделировались потенциалами Морзе

$$V(r) = D(1 - \exp(-\alpha(r - r_0))),$$

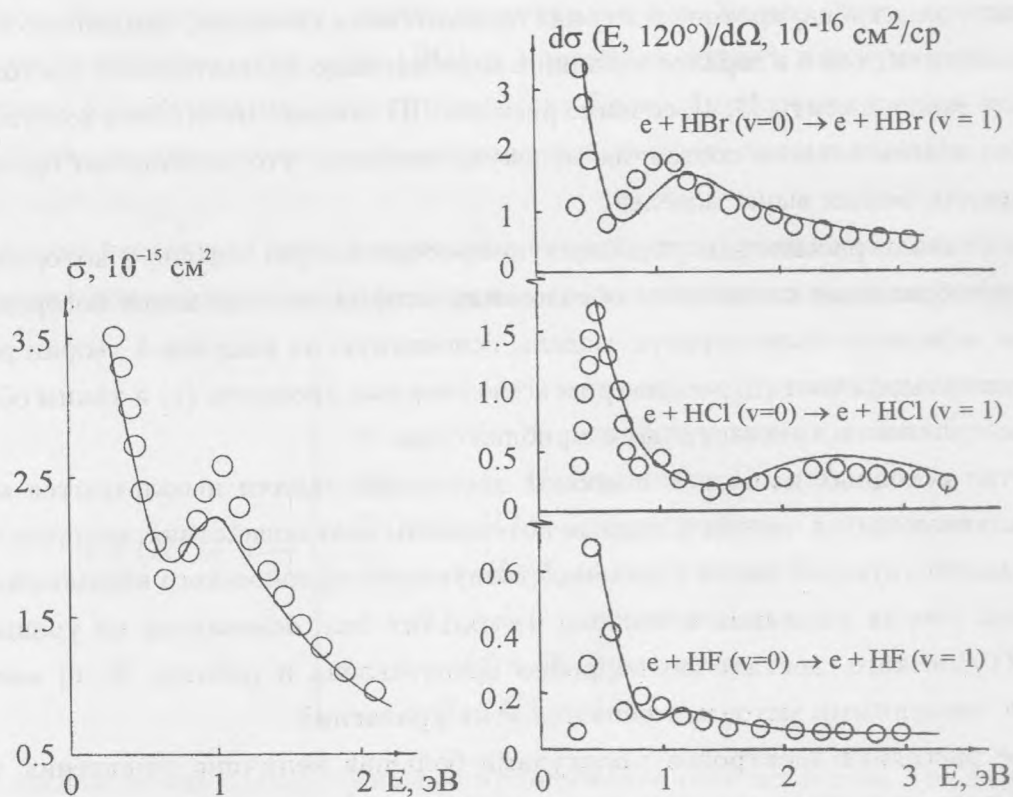


Рис. 1. Зависимость полного сечения колебательного возбуждения молекул HBr от энергии налетающих электронов. $\circ \circ \circ$ – экспериментальные данные [4b)], ——— – результаты расчетов настоящей работы.

Рис. 2. Зависимость дифференциального сечения колебательного возбуждения молекул HF , HCl , HBr от энергии налетающих электронов. $\circ \circ \circ$ – экспериментальные данные [4], ——— – результаты расчетов настоящей работы.

параметры которых определялись на основе спектроскопических данных [1].

Результаты расчетов сечений различных процессов рассеяния электронов на молекулах галогеноводородов HF , HI , HCl , DCl , HBr , находящихся как в основных, так и в возбужденных колебательно-вращательных состояниях, представлены на рис. 1–10, из которых видно, что результаты расчетов сечений этих процессов удовлетворительно воспроизводят экспериментальные данные в рамках представленной модели, которая дает как количественное описание процессов ДП, так и качественную картину явления. В рамках трехчастичного приближения удастся достаточно точно учесть действие

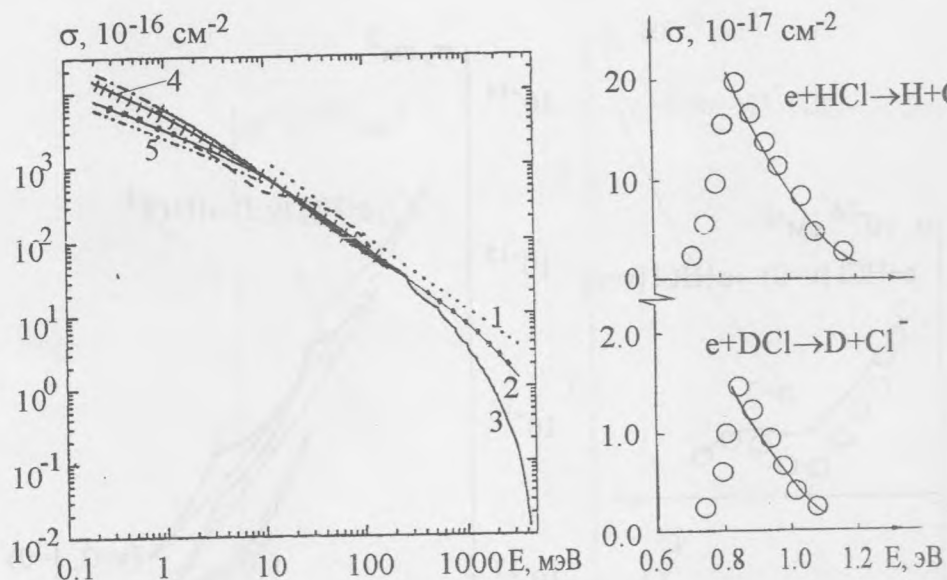


Рис. 3. Диссоциативное прилипание электронов к молекулам HI. 1 – экспериментальные данные [4с]), 2 – результаты расчетов настоящей работы, 3 – результаты расчетов [4b], 4 – результаты расчетов [4a], 5 – результаты расчетов [4с].

Рис. 4. Диссоциативное прилипание электронов к молекулам HCl и DCl. ooo – экспериментальные данные [4с]), ——— – результаты расчетов настоящей работы.

многократного рассеяния, т.к. хорошо известны эквивалентность уравнений Фаддеева и теории многократного рассеяния [5–8]. В этом же приближении воспроизводится изотопический эффект, впервые предсказанный Ю.Н. Демковым [2, 8] (рис. 4).

На рис. 3 представлены как экспериментальные данные [4], так и расчеты, выполненные на основе различных приближений [4], включая и результаты настоящей работы, а на рис. 5 – результаты расчетов реакции ДП электронов к колебательно-вращательно возбужденным молекулам галогеноводородов. Сравнение проведенных расчетов с экспериментальными данными [1–4] показывает, что предлагаемая модель позволяет получить удовлетворительное согласие с экспериментальными данными: совпадение порядков сечений, изотопические эффекты, а также подтверждение гипотезы о подавлении эффекта Ефимова кулоновскими силами в трехчастичной системе, выдвинутой более двадцати лет назад в работах [5–7].

Для оценки адекватности предлагаемой трехчастичной модели и реальной систе-

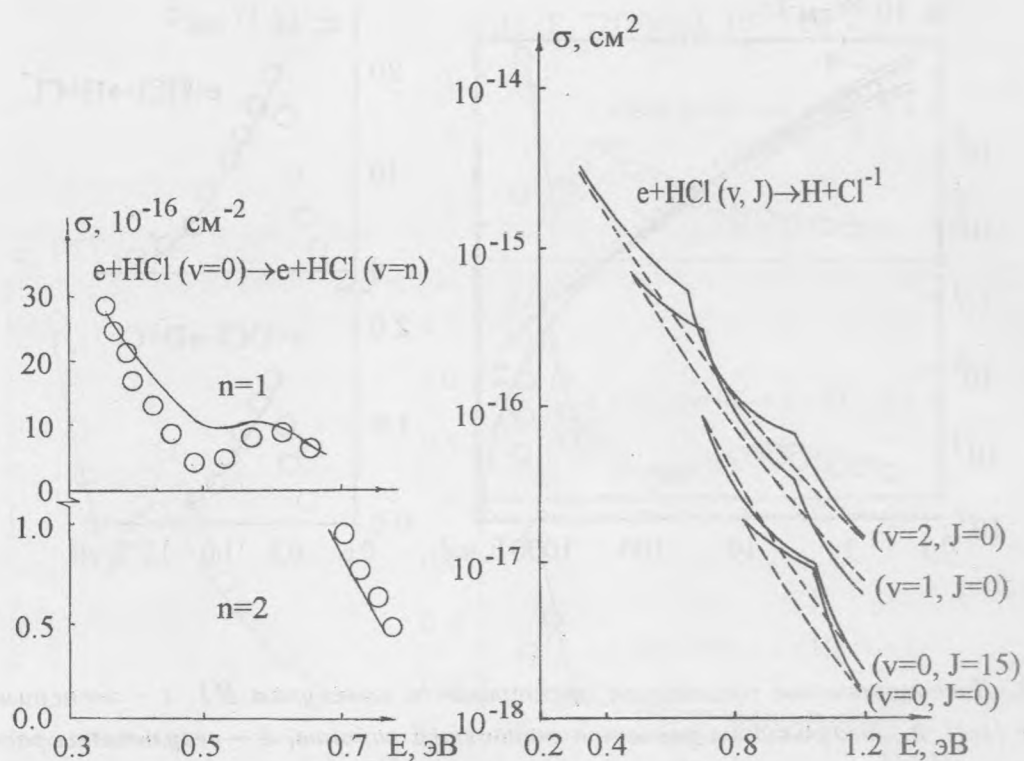


Рис. 5. Зависимость полного сечения колебательного возбуждения молекул HCl от энергии налетающих электронов. $\circ\circ\circ$ – экспериментальные данные [4с]), ——— – результаты расчетов настоящей работы.

Рис. 6. Диссоциативное прилипание электронов к молекулам HCl , первоначально находящимся в возбужденных колебательно-вращательных состояниях, где видно отсутствие осцилляций в сечениях (в отличие от ДА к молекуле водорода [5]), что и подтверждает вывод о подавлении эффекта Ефимова кулоновскими силами. ——— – результаты расчетов работы [4с]), - - - - - результаты расчетов настоящей работы.

мы, состоящих из достаточно большого количества частиц $N \gg 3$, были выполнены расчеты процессов образования отрицательных ионов водорода в четырехчастичном приближении на основе уравнений Фаддеева для четырех частиц в конфигурационном пространстве с граничными условиями [5, 6]. Для численного решения этих уравнений использовался метод, представленный в [5, 6]. Результаты расчетов представлены на рис. 7–10, из которых видно, что применение трехчастичного приближения в рассматриваемой области энергий для расчетов процессов ДП и колебательного возбуждения

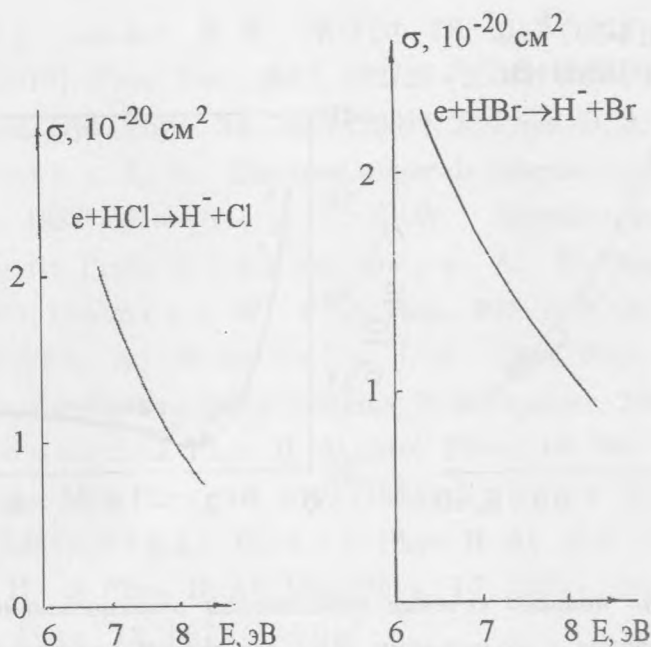


Рис. 7. Зависимость полного сечения образования отрицательных ионов водорода при столкновении электронов с молекулами HCl от энергии налетающих электронов. — результаты расчетов настоящей работы в четырехчастичном приближении.

Рис. 8. Диссоциативное прилипание электронов к молекулам HBr . — результаты расчетов настоящей работы в четырехчастичном приближении.

молекул галогеноводородов является оправданным, т.к. вклад этих четырехчастичных процессов достаточно мал, вследствие малости соответствующих сечений. Помимо этого был выполнен расчет и полного сечения рассеяния электронов на молекулах HCl в трехчастичном приближении, результаты которого представлены на рис. 10. Представленный расчет также достаточно наглядно подтверждает обоснованность трехчастичного приближения.

В заключение отметим, что именно в этом случае явно проявляются преимущества подхода, основанного на квантовой теории рассеяния в системе нескольких частиц, который позволяет рассчитывать всевозможные процессы столкновений в рамках рассматриваемых приближений, что видно из сравнения результатов расчетов с экспериментальными данными [1–5].

Работа выполнена при поддержке Научного фонда Китайской Народной Республики

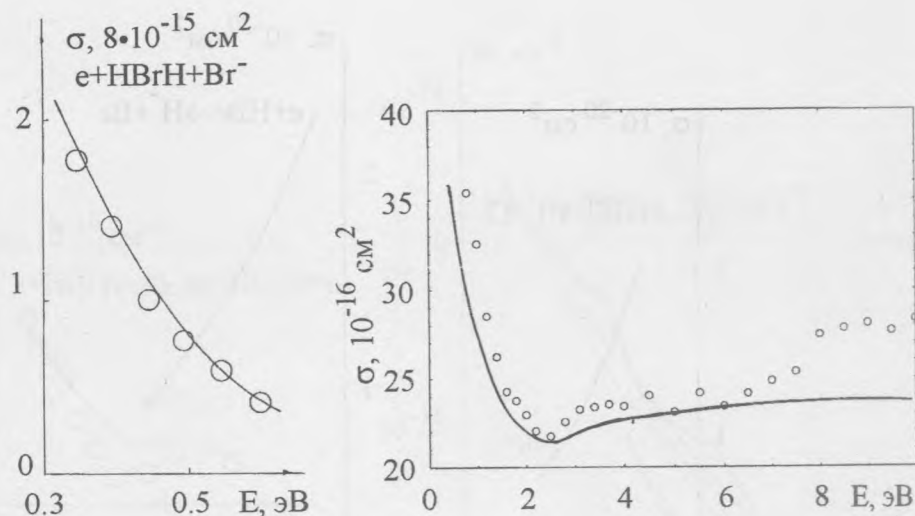


Рис. 9. Зависимость полного сечения образования отрицательных ионов водорода при столкновении электронов с молекулами HBr от энергии налетающих электронов. — результаты расчетов настоящей работы в трехчастичном приближении, о о о о о — экспериментальные данные [4с].

Рис. 10. Зависимость полного сечения столкновений электронов с молекулами HCl от энергии налетающих электронов. о о о — экспериментальные данные [4с]), — результаты расчетов настоящей работы в трехчастичном приближении.

ки (грант NSF 19734030), Академии наук Тайваня (грант NSC 85-212-M-007-009), Совместного научного фонда Израиля и США, и Российского фонда фундаментальных исследований (гранты NN 98-02-17266, 01-02-16075).

ЛИТЕРАТУРА

- [1] Хьюбер К. Р., Герцберг Ж. Константы двухатомных молекул, М., Наука, 1981; Huber K. R., Gerzberg G. Constants of Diatomic Molecules, New Jersey, 1979; March N. H., Mucci J. F. J. Chem. Phys., **77**, 4555 (1982).
- [2] Басов Н. Г. и др. Письма в ЖЭТФ, **8**, 26 (1968); Крайнов В. Г., Смирнов Б. М. ЯФ, **66**, 640 (2003).
- [3] Друкарев Г. Ф. Теория столкновений электронов с атомами и молекулами. М., Наука, 1978; Казанский А. К., Фабрикант И. И. УФН, **143**,

- 602 (1984); Ф а б р и к а н т И. И. ЖЭТФ, **73**, 1317 (1977); J. Phys. B: At. Mol. Phys., **11**, 3621 (1978); Phys. Rev., **A63**, 022706 (2001); Phys. Rev., **53**, 3348 (1996); J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys., **34**, 3855 (2001); Z. Phys. D, **3**, 401 (1986);
- Ch r i s t o p h o r o u L. G. Electron molecule interaction and their application. Acad.Press, N.Y., 1984; M a s s e y H. S. W. Negative Ions, 1976, Cambridge, Cambridge University Press; H e r z e n b e r g A. Electron-molecular collision, Plenum, N.Y., 1984; D o m s k e W. Phys. Rep., **208**, N 2, 98 (1991); C h u t j i a n A., G a r s c a d d e n A., W a d e r h a J. M. Phys. Rep., **264**, 393 (1996); A n d r a s T. Resonances in Few-Body Systems, N.Y., Springer, 2002.
- [4] a) R o b e r t A b o u a f. J. Phys. B: At. Mol. Phys., **18**, 3017 (1985); G a u y a c q J. P. J. Phys. B: At. Mol. Phys., **16**, 4049 (1983); S p e n c e D. J. Phys. B: At. Mol. Phys., **14**, L107 (1981); S e g a l G. A. J. Phys. B: At. Mol. Phys., **14**, 2291 (1981); R u d g e M. R. H. J. Phys. B: At. Mol. Phys., **13**, 1269 (1980); B r i o n C. E. J. Phys. B: At. Mol. Phys., **13**, L677 (1980);
- b) H o r a c e k J i r i, D o m k e W. Phys. Rev., **A53**, 2262; F l a n d r e y e r R., B u r k e P. G. J. Phys. B: At. Mol. Phys., **18**, 339 (1996); S h a w D. J. Phys. B: At. Mol. Phys., **17**, 1173 (1984); Y v o n n i c L e C o a t J. Phys. B: At. Mol. Phys., **15**, 1569 (1982); R o h r K. J. Phys. B: At. Mol. Phys., **10**, 1849 (1978);
- c) H a m a d a A. J. Phys. B: At. Mol. Phys., **27**, 5055 (1994); T e i l l e t - B i l l y D. J. Phys. B: At. Mol. Phys., **17**, 4041 (1984); P a d i a l N. T., N o r c r o s D. W. Phys. Rev., **27**, 141 (1983); A z r i a R. J. Phys. B: At. Mol. Phys., **13**, 1909 (1980); C o l l i n s L. A. J. Phys. B: At. Mol. Phys., **13**, 2299 (1980); D o m s k e W. J. Phys. B: At. Mol. Phys., **14**, 149 (1980); К а з а н с к и й А. К., Ф а б р и к а н т И. И. УФН, **143**, 602 (1984); F a b r i c a n t L. I., H o t o p H. Phys. Rev., **A63**, 022706 (2001); G a l l u p G. A., X u Y., F a b r i c a n t I. I. Phys. Rev., **A57**, 2596 (1998); К а з а н с к и й А. К., X u Y., F a b r i c a n t I. I. Phys. Rev., **A63**, 014703 (2000).
- [5] П о з д н е е в С. А. Применение квантовой теории рассеяния в системе трех тел для расчетов различных процессов ядерной, атомной и молекулярной физики, М., Янус-К, 2001, 412 с.; P o z d n e e v S. Dynamics of Elementary Atomic-Molecular Processes in Gas and Plasma. Nova Science Publ, **212**, 99 (1996); П о з д н е е в С. А. ХВЭ, **18**, 290 (1984); ЖТФ, **52**, 1500 (1984); Краткие сообщения по физике ФИАН, N 11, 3 (2003).

- [6] Меркурьев С. П., Фаддеев Л. Д. Квантовая теория рассеяния для систем нескольких частиц, М., Наука, 1985, 400 с.; Яфаев Д. Р. Математическая теория рассеяния, Санкт-Петербург, Изд. С.-Петербургского университета, 1994; Faddeev L. D., Merkuriev S. P. Quantum scattering theory for several particles systems, Kluwer, London, 1993; Беляев В. Б. Лекции по теории малочастичных систем. М., Энергоиздат, 1986.
- [7] Efimov V. Nucl. Phys., **A362**, 45 (1981); **A378**, 581 (1982); Phys. Rev., **C47**, 1876 (1993); Вугальтер С. А., Жислин Г. М. ДАН СССР, **267**, 784 (1982); Ефимов В. Влияние резонансов в парных силах на спектр уровней трех частиц, М., МИФИ, 1973; Ребане Т. К. ЯФ, **61**, N 1, 61 (1998); Rozdnееv S. Phys. Lett., **V125**, 355 (1983); Коноплев В. А., Позднеев С. А., Щеглов В. А. Краткие сообщения по физике ФИАН, N 6, 88 (1987).
- [8] Демков Ю. Н., Островский В. Н. Метод потенциалов нулевого радиуса в атомной физике, Л., Изд.ЛГУ, 1975; Demkov Yu. N., Ostrovskii V. N. Zero-range potentials and their application in atomic physics, Plenum, 1988; Demkov Yu. N. Phys. Lett., **15**, 235 (1965).

Поступила в редакцию 15 декабря 2003 г.