

УДК 539.172.2

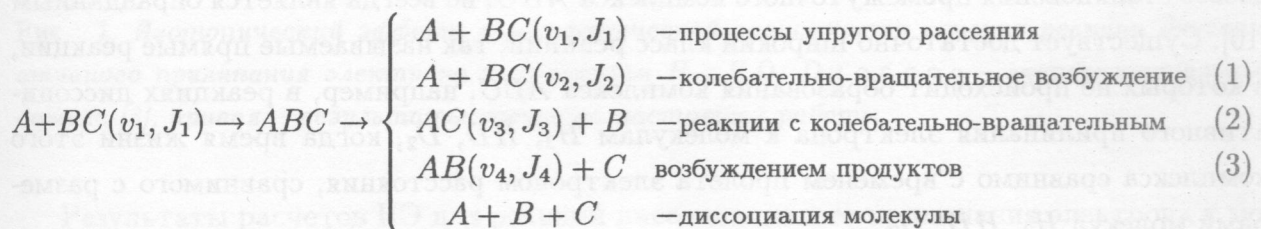
## ИЗОТОПИЧЕСКИЕ ЭФФЕКТЫ В РАССЕЙАНИИ ЭЛЕКТРОНОВ И АТОМОВ МОЛЕКУЛАМИ

С. Позднеев

*Представлены результаты расчетов изотопических эффектов в рассеянии электронов и атомов молекулами на основе квантовой теории рассеяния в системе трех тел. Результаты проведенных расчетов сечений столкновений электронов и атомов с различными молекулами сопоставляются с имеющимися экспериментальными данными и результатами расчетов, выполненных в различных приближениях.*

Изотопические эффекты (ИЭ) в рассеянии играют важную роль при исследовании кинетики термоядерных реакций [1], мюонного катализа [2], диагностики плазмы [1, 2], нуклеосинтеза, связанного с образованием химических элементов [3], изучении активных лазерных сред [4 – 6] и т.д.

Теоретическая трактовка ИЭ в различных реакциях типа



основана на представлении, в котором в реакциях, представленных выше, сначала образуется промежуточный активированный комплекс  $\dot{A}BC$ , который в дальнейшем распадается в соответствии с (1) – (3) [2 – 5]. В этом случае сечения этих реакций могут быть представлены в виде [7]:

$$\sigma = \sigma_c \exp(-\rho),$$

где  $\sigma_c$  – сечение захвата электрона (атома) молекулой,  $(-\rho)$  – вероятность выживания. Эта же формула может быть представлена также в виде [7]:

$$\sigma = a(R_c)\sqrt{(m_{BC,AC})} \exp(-b(R_c)\sqrt{(m_{BC,AC})}), \quad (4)$$

где  $m_{BC,AC}$  – приведенные массы,  $a$ ,  $b$  – медленно меняющиеся функции,  $R_c$  – точка пересечения или квазипересечения термов [7].

Таким образом, в соответствии с этой моделью в реакциях (1–3) должен наблюдаться ИЭ – т.е. зависимость сечения реакции от приведенной массы молекулы. Впервые ИЭ наблюдался в электрон-молекулярном рассеянии, что является естественным, т.к. отношение массы атомов молекулы к массе электрона достаточно большое. Этот ИЭ наблюдался как уменьшение сечения образования ионов  $D^-$  из  $D_2$  по сравнению с образованием  $H^-$  из  $H_2$  в реакции диссоциативного прилипания [6].

Из (4) видно, что влияние фактора выживания является преобладающим в случае больших  $\rho$ , т.к. в этом случае вероятность выживания мала и ИЭ может быть очень большим. Например, ИЭ в случае реакции диссоциативного прилипания электрона к молекулам  $H_2$ ,  $HD$ ,  $D_2$  при энергии налетающего электрона 3.75 эВ равен  $\frac{\sigma(H^-)}{\sigma(D^-)} = 200$ . Необходимо отметить, что знание ИЭ позволяет определить время жизни переходного состояния и потенциальные кривые или поверхности для системы  $ABC$ .

Отметим, что, благодаря первому множителю (4), сечения реакций (1–3) будут расти с увеличением массы ядер, если вероятность выживания не играет существенной роли. Этот “обратный” ИЭ также был экспериментально обнаружен в [8, 9].

Однако приближение, в котором используется представление о возникновении в процессе столкновения промежуточного комплекса  $ABC$ , не всегда является оправданным [10]. Существует достаточно широкий класс реакций, так называемые прямые реакции, в которых не происходит образования комплекса  $ABC$ , например, в реакциях диссоциативного прилипания электрона к молекулам  $H_2$ ,  $HD$ ,  $D_2$ , когда время жизни этого комплекса сравнимо с временем пролета электроном расстояния, сравнимого с размерами молекул  $H_2$ ,  $HD$ ,  $D_2$ .

Поэтому в настоящей работе применяется приближение, в котором не используется представление о возникновении в процессе реакции промежуточного комплекса. Это приближение, в котором налетающий электрон взаимодействует с каждым из атомов молекулы в целом, считая атомы молекулы силовыми центрами. Для решения этой задачи используется приближение квантовой теории рассеяния в системе трех тел, основанное на уравнениях Фаддеева [6, 10, 11], которые применимы как для прямых процессов,

так и для процессов, в которых может возникать промежуточный комплекс. Естественно это приближение справедливо при энергиях налетающего электрона меньших, чем энергия электронного возбуждения молекулы.

Уравнения Фаддеева и все необходимые для расчетов исходные данные – парные потенциалы взаимодействия и выбор их параметров, а также численные методы решения этих уравнений представлены в [6, 10, 11].

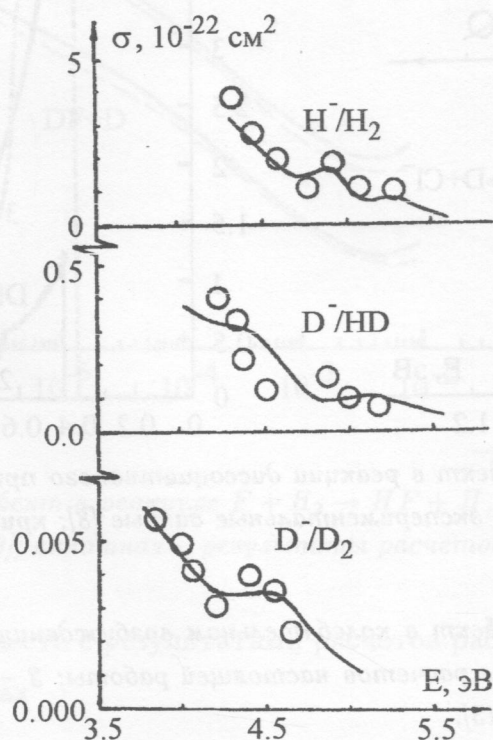


Рис. 1. Изотопический эффект в энергетической зависимости сечения реакции диссоциативного прилипания электрона к молекулам  $H_2$ ,  $HD$ ,  $D_2$ :  $\circ \circ \circ \circ \circ$  – экспериментальные данные [8], кривая – результаты расчетов настоящей работы.

Результаты расчетов ИЭ для реакций диссоциативного прилипания электрона к молекулам  $H_2$ ,  $HD$ ,  $D_2$  представлены на рис. 1 вместе с экспериментальными данными [8].

ИЭ в колебательном возбуждении молекул  $HCl$ ,  $DCl$ ,  $HBr$  и  $DBr$  электронами представлен на рис. 2, 3. На рисунке 3 представлены расчеты, выполненные на основе нелокальной резонансной теории [12].

Отметим, что большая величина отношения массы ядер к массе электрона является благоприятным обстоятельством, позволяющим получить аналитическое решение



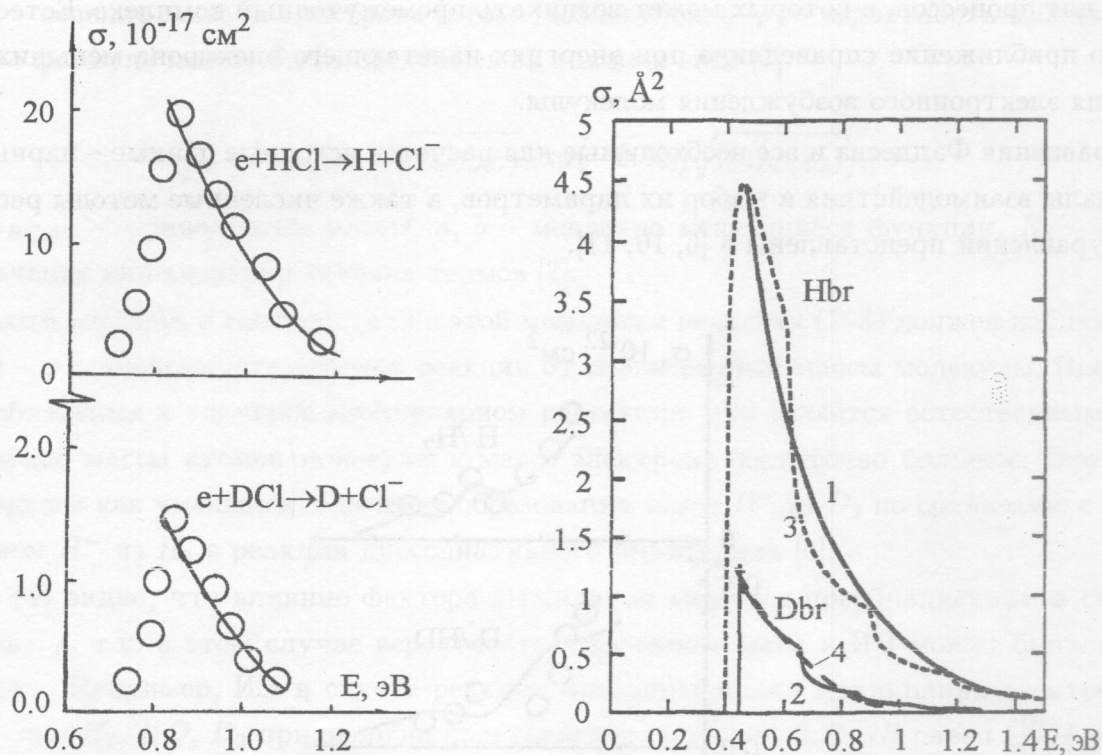
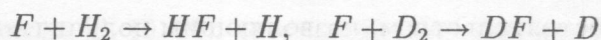


Рис. 2. Изотопический эффект в реакции диссоциативного прилипания электрона к молекулам  $\text{HCl}$  и  $\text{DCl}$ :  $\circ\circ\circ\circ$  – экспериментальные данные [8]; кривая – результаты расчетов настоящей работы.

Рис. 3. Изотопический эффект в колебательном возбуждении молекул  $\text{HBr}$  и  $\text{DBr}$  электронами: 1, 2 – результаты расчетов настоящей работы; 3 – результаты расчетов [12]; 4 – результаты расчетов [13].

уравнений Фаддеева для парных нелокальных сепарабельных потенциалов типа Юкавы, которое представлено в [6, 10]. В этом случае также можно для сечений реакций получить формулу, аналогичную (4). Важно отметить, что в этом случае не делается никаких предположений о том, каким образом протекает та или иная реакция: с образованием или без образования промежуточного комплекса. Это является основным преимуществом предлагаемого метода, т.к. заранее предполагать, каким образом протекает та или иная реакция, достаточно сложно.

Расчеты ИЭ в реакциях



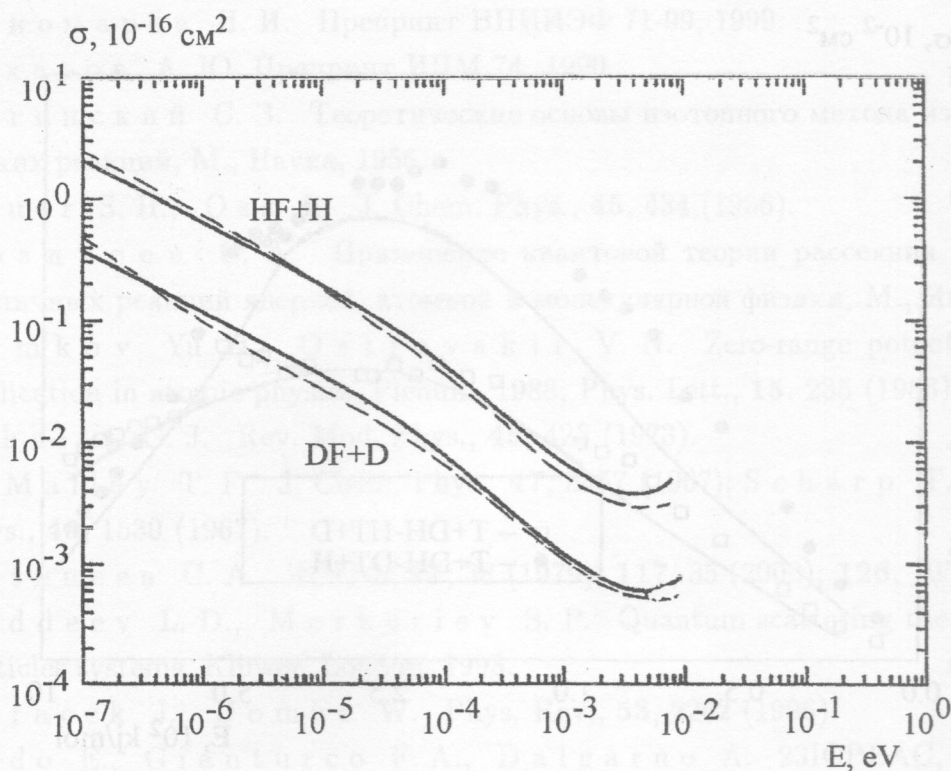
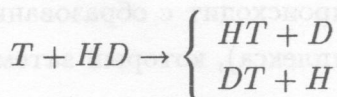


Рис. 4. Изотопический эффект в реакциях  $F + H_2 \rightarrow HF + H$ ,  $F + D_2 \rightarrow DF + D$ . Штрихи – результаты расчетов [13]; сплошная – результаты расчетов настоящей работы.

представлены на рис. 4 вместе с результатами расчетов работы [13].

Расчеты ИЭ в процессах



представлены на рис. 5. На этом же рисунке приведены расчеты этих реакций, выполненные на основе классической механики [5, 14].

Представленные результаты расчетов показывают, что применение методов квантовой теории рассеяния в системе нескольких тел позволяет достаточно надежно рассчитывать различные процессы атомной, молекулярной и химической физики, используя в качестве входных данных энергию, массы и парные потенциалы взаимодействующих частиц, и не привлекать эмпирические данные, такие как поверхности потенциальной энергии, построение которых представляет собой достаточно сложную задачу, а также

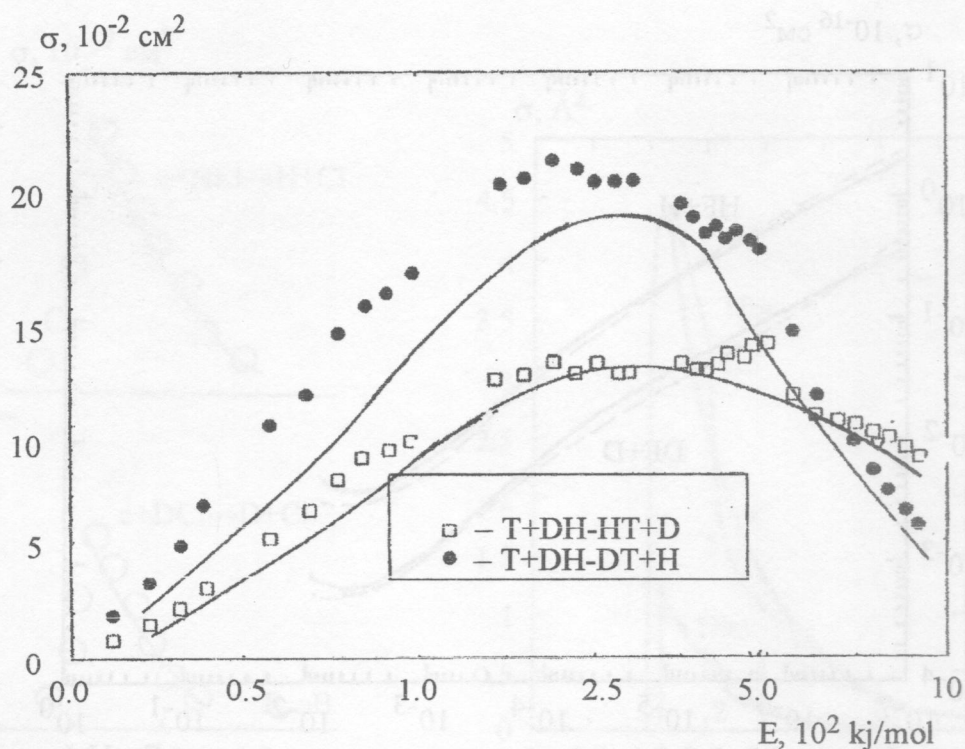


Рис. 5. Изотопический эффект в реакциях  $T + HD \rightarrow \begin{cases} HT + D \\ DT + H \end{cases}$ ;  $\square\square\square$  – результаты расчетов [14];  $\bullet\bullet\bullet$  – результаты расчетов [5]; сплошная – результаты расчетов настоящей работы.

дополнительные сведения о происходящем процессе, который “a priori” рассматривается как многостадийный, т.е. происходит с образованием промежуточного компаунд-состояния (активированного комплекса), который затем распадается по тем или иным каналам распада.

Работа выполнена при поддержке Академии наук Тайваня (грант NSC 85-212-M-007-009), Научного фонда Китайской Народной Республики (грант NSF 19734030), Совместного научного фонда Израиля и США, Российского фонда фундаментальных исследований (грант 98-02-17266, 01-02-16075).

#### ЛИТЕРАТУРА

- [1] Феоктистов Л. П. УФН, **163**, 89 (1993); ДАН, **354**, 755 (1997).



- [2] Пономарев Л. И. Препринт ВНИИЭФ 71-99, 1999.
- [3] Захаров А. Ю. Препринт ИПМ 74, 1990.
- [4] Погинский С. З. Теоретические основы изотопного метода изучения химических реакций, М., Наука, 1956.
- [5] Bauer S. H., Oss E. J. Chem. Phys., **45**, 434 (1966).
- [6] Позднеев С. А. Применение квантовой теории рассеяния для расчетов различных реакций ядерной, атомной и молекулярной физики, М., Янус-К, 2001.
- [7] Demkov Yu. N., Ostrovskii V. N. Zero-range potentials and their application in atomic physics, Plenum, 1988; Phys. Lett., **15**, 235 (1956).
- [8] Schultz G. J. Rev. Mod. Phys., **45**, 423 (1973).
- [9] O'Malley T. F. J. Chem. Phys., **47**, 5457 (1967); Scharr T. E. J. Chem. Phys., **46**, 1530 (1967).
- [10] Позднеев С. А. ЖЭТФ, **77**, 38 (1979); **117**, 35 (2000); **126**, 1051 (2004).
- [11] Faddeev L. D., Merkuriev S. P. Quantum scattering theory for several particles systems, Kluwer, London, 1993.
- [12] Horacek J., Domke W. Phys. Rev., **53**, 2262 (1996).
- [13] Bodo E., Gianturco F. A., Dalgarno A. 23ICPEAC, Sweden, 2003.
- [14] Malcolm-Lawes D. J. J. Chem. Phys., **61**, 1183 (1974).

Поступила в редакцию 19 мая 2005 г.