

## МЕТОД РАССЕЯНИЯ БЫСТРЫХ МОЛЕКУЛЯРНЫХ ПУЧКОВ КАК ИНСТРУМЕНТ ИЗУЧЕНИЯ СВОЙСТВ ВЕЩЕСТВА

Калинин А.П.<sup>1</sup>, Родионова И.П.<sup>2</sup>, Родионов И.Д.<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Институт проблем механики Российской академии наук, Москва

<sup>2</sup>Институт химической физики им. Н.Н.Семенова Российской академии наук, Москва

e-mail: [kalinin@ipmnet.ru](mailto:kalinin@ipmnet.ru)

Работа посвящена описанию систематических и детальных исследований упругих и неупругих столкновений атомов и молекул методом рассеяния быстрых молекулярных пучков ( $E \sim 1$  кэВ) на малые ( $10^{-4}$  -  $10^{-2}$  рад) углы, выполненных в Институте космических исследований АН СССР, а затем в Институте проблем механики РАН. Показано, что этот метод позволяет не только исследовать упругие столкновения атомов и молекул и определять на этой основе отталкивательные короткодействующие потенциалы взаимодействия. Если наряду с детектированием факта рассеяния быстрой частицы на малый угол добавить измерение энергии быстрой частицы, то это кардинально расширяет возможности метода и позволяет исследовать неупругие процессы (при существующем энергетическом разрешении – процессы с электронным возбуждением). Приводится описание приложения полученных результатов. Показано, что метод рассеяния быстрых молекулярных пучков является эффективным инструментом изучения свойств вещества при экстремальных условиях (высоких температурах и давлениях).

## SMALL ANGLE FAST MOLECULAR BEAM SCATTERING AS AN INSTRUMENT FOR SUBSTANCE PROPERTIES STUDY

The work is devoted to description of systematic and detailed study of elastic and inelastic collisions of atoms and molecules by small angle ( $10^{-4}$  -  $10^{-2}$  rad) fast ( $E \sim 1$  keV) molecular beam method which were fulfilled in Space research Institute academy of sciences of the USSR and then in the Institute for Problems in Mechanics of Russian academy of sciences. It is shown, that this method allows not only to investigate elastic collisions of atoms and molecules and to determine on this basis repelling short-range potentials of interaction. If alongside with detecting of the fact of scattering of a fast particle on a certain angle add measurement of energy of a fast particle it cardinally expands opportunities of a method and allows to investigate inelastic processes (at the existing energy resolution - processes with electronic excitation). The description of the application of the received results is presented. It is shown, that the method of scattering of fast molecular beams on small angles is the effective tool of studying of properties of substance under extreme conditions (high temperatures and pressure).

	Введение	3
Глава 1.	Быстрые молекулярные пучки как экспериментальный метод изучения физико-химических свойств вещества	4
§1.1.	Особенности использования быстрых молекулярных пучков	4
§1.2.	Использование упругого рассеяния быстрых пучков для изучения сил парного взаимодействия атомных частиц	10
§1.3.	Переход к изучению неупругих столкновений методом рассеяния быстрых пучков на малые углы как новый шаг на пути развития исследований с быстрыми пучками	18
Глава 2.	Экспериментальные и методические аспекты изучения рассеяния быстрых пучков на малые углы	22
§2.1.	Описание экспериментальных установок, предназначенных для изучения рассеяния быстрых пучков на малые углы	23
§2.2.	Об особенностях интерпретации результатов рассеяния быстрых молекулярных пучков	34
2.2.1.	Методические проблемы обработки результатов измерений методом рассеяния быстрых молекулярных пучков на малые углы	34
2.2.2.	Функциональное описание межатомных короткодействующих потенциалов, определяемых по данным рассеяния молекулярных пучков	37
2.2.3.	О влиянии крутизны отталкивательного потенциала взаимодействия атомных частиц на ход упругого дифференциального сечения рассеяния на малые углы	40
Глава 3.	Определение эмпирических потенциалов межатомного и межмолекулярного взаимодействия на основе изучения интегральных и дифференциальных сечений рассеяния	44
§3.1.	Методика восстановления межатомного и межмолекулярного потенциала взаимодействия из данных по упругому рассеянию	44
§3.2.	Потенциалы межатомного взаимодействия для систем He-He, Ne-Ne, Xe-Xe	49
§3.3.	Эффективные потенциалы межмолекулярного взаимодействия систем He-N <sub>2</sub> , N <sub>2</sub> -N <sub>2</sub> , H <sub>2</sub> -H <sub>2</sub>	54
Глава 4.	Изучение упругих и неупругих столкновений методом рассеяния быстрых пучков на малые углы	66
§4.1.	Изучение электронного возбуждения при столкновении атомов и молекул времяпролетным методом с помощью детектора с кольцевой щелью	67
§4.2.	Изучение двойных дифференциальных сечений рассеяния атом-молекулярных систем	70
§4.3.	Интерпретация особенностей на дифференциальных сечениях и спектрах энергетических потерь при высо-	87

		коэнергетическом рассеянии атом-молекулярных систем	
	4.3.1.	Классическая задача рассеяния на системе трех пересекающихся термов	89
	4.3.2.	Расчет методом молекулярной динамики дифференциальных сечений столкновения атом-молекулярных систем	95
Глава 5.		Приложение найденных эмпирических потенциалов	102
	§5.1.	Анализ применимости получаемых из экспериментов по рассеянию эффективных (эмпирических) потенциалов взаимодействия для расчета коэффициентов переноса	103
	§5.2.	Интегралы столкновений нейтральных компонент воздуха до 20000 К	109
	§5.3.	Сжимаемость конденсированных газов в мегабарной области давлений	122
		Заключение	123
		Литература	128

## ВВЕДЕНИЕ

В настоящей работе дается обзор исследований, которые проводились в лаборатории физической кинетики при использовании метода быстрых (энергия  $\sim 1$  кэВ) пучков с восьмидесятих годов прошлого века. Эта лаборатория зародилась в стенах Московского государственного университета им. М.В.Ломоносова в шестидесятых годах прошлого века, а затем работала в Институте космических исследований АН СССР, а с 1987 г. в Институте проблем механики РАН.

Возникновение метода быстрых молекулярных пучков связано с именем профессора И. Амдура из Массачусетского технологического института в США. Его первые работы появились еще в конце тридцатых годов. Они были вызваны в первую очередь потребностями развития сверхзвуковой авиации и ракетной техники и проводились по заказу военных ведомств. Требовалось знание кинетических коэффициентов для высоких температур. В СССР развитие метода быстрых молекулярных пучков связано с именем профессора В.Б.Леонаса (1931-1992). Его работы начались в 60х годах в Московском государственном университете им. М.В. Ломоносова и были вызваны бурным развитием космических исследований и необходимостью определения условий полета космических аппаратов в плотных слоях атмосфер Земли и планет. С присущим ему талантом, настойчивостью и энергией он стал развивать новое экспериментальное направление в созданной им лаборатории физической газовой динамики. Под его руководством были разработаны и построены уникальные экспериментальные установки и получены данные, которые непосредственно использовались для расчета входа космических аппаратов в плотные слои атмосферы Земли и планет. В 1972 году он защитил докторскую диссертацию "Исследование столкновений и сил взаимодействия атомных частиц в газах". В данной работе представлены результаты развития исследований с использованием метода рассеяния быстрых молекулярных пучков в России, которые были непосредственно инициированы В.Б. Леонасом, но не вошли в его обзоры [1], [2], [3].

Прежде всего, дадим общее определение молекулярного пучка, справедливое для пучков, которые использовались в данной работе. Молекулярным пучком будем называть пространственно локализованный поток невзаимодействующих друг с другом частиц, как

правило, одного сорта, двигающихся параллельно в одном направлении с определенной скоростью. Создание пучков таких "свободных" частиц самых различных типов сыграло весьма важную роль в физике, особенно в физике столкновений. Именно этому методу физика обязана открытию спина частиц, подтверждению волновой природы атомов и электронов и т.п.

Мы не будем здесь касаться применения молекулярного пучка к изучению проблем ядерной физики, в которых этот метод сыграл поистине решающее значение.

Метод молекулярного пучка относится к микроскопическим (т.е. атомно-молекулярным) методам исследования вещества. В этом смысле, как уже указывалось выше, очень велико было значение метода молекулярного пучка как для доказательства атомарной структуры строения вещества, так и для демонстрации дуализма волна-частица (дифракции электронов и т.п.). Особенности метода рассеяния быстрых молекулярных пучков будут подробно рассмотрены в Главе 1.

Метод молекулярного пучка возник тогда, когда развитие техники (и науки) подготовили для этого соответствующие условия. В первую очередь, это связано с развитием вакуумной техники. Первым применил метод молекулярного пучка Дюнуайе, который в 1911 г. провел эксперименты с эффузионными нейтральными пучками. Но только после первой мировой войны молекулярные пучки стали широко применяться в научном эксперименте. Классические эксперименты Штерна и Герлаха во Франкфурте, которые наблюдали расщепление пучка атомов серебра в неоднородном магнитном поле и таким путем экспериментально подтвердили пространственное квантование момента, продемонстрировали уникальные возможности метода молекулярных пучков. Из числа работ по особо успешному использованию метода молекулярных пучков следует отметить работы И. Раби в Колумбийском университете. С введением магнитного резонансного метода Раби и его сотрудниками в 1937 году техника молекулярных пучков стала очень широко применяться для точных измерений электрических и магнитных свойств атомов, молекул и ядер. В результате этих исследований сам И. Раби (1944 г.) и некоторые из его сотрудников были удостоены Нобелевских премий. После второй мировой войны молекулярные пучки стали активно применяться для исследования взаимодействия атомов, молекул, ионов и фотонов между собой. За исследования элементарных процессов при столкновении атомов и молекул с использованием молекулярных пучков Ян Ли, Джоном Ч. Полани и Дадли Р. Хершбах в 1986г. были также удостоены Нобелевской премии.

Следует подчеркнуть, что метод молекулярных пучков перестал быть чисто научным методом и широко используется в промышленных технологических процессах. Одним из очень интересных и важных практических примеров использования молекулярных пучков явилось создание атомных часов. Эпитаксия на молекулярных пучках, позволяющая создавать новые полупроводниковые структуры с размерами, сходными с размерами решетки твердого тела, совершила революцию в микроэлектронике. Обогащение (разделение) изотопов с помощью молекулярных пучков достигло заводского масштаба [4]. В этой работе описана установка для производства высокообогащенного  $^{168}\text{Yb}$  в промышленном масштабе, на которой впервые в мире методом AVLIS (atomic vapor laser isotope separation) осуществлено коммерчески выгодное производство обогащенного изотопа  $^{168}\text{Yb}$ .

Актуальность исследований с быстрыми молекулярными пучками связана с тем, что изучение природных и технологических процессов потребовало знания свойств вещества с возросшей точностью в очень широком диапазоне температур и давлений (в первую очередь для наиболее простой фазы вещества – газовой). Развитие физики плазмы, газового разряда, физики лазеров и т.п. невозможно без знания количественной информации об элементарных процессах столкновений при экстремальных состояниях (высокой температуре и больших давлениях). Однако надежные сведения о свойствах реальных веществ имеются в основном для температур не выше нескольких тысяч градусов и давлений, не превышающих сотни килобар. Очень часто для такого рода экстремальных условий вычислительный экспе-

римент оказывается единственным способом детального исследования явления. Для получения информации об элементарных взаимодействиях разумно обратиться к экспериментам, в которых такие элементарные взаимодействия проявляются наиболее прямым образом, - методу рассеяния молекулярных пучков, результаты которых используются, например, для расчета свойств газов при высоких температурах [5].

Метод рассеяния быстрых молекулярных пучков, рассматриваемый в данном обзоре, является начальным в цепочке: молекулярные пучки → сечения рассеяния (упругие, неупругие) → потенциал взаимодействия, вероятности переходов → расчет свойства вещества. Приведенные в работе результаты исследований связаны с экспериментальным изучением упругих и неупругих столкновений атомов и молекул в области энергий взаимодействия 0,1-10 эВ, отвечающих диапазону температур 1000-100000 К. Для реализации этих энергий взаимодействия наиболее подходит метод рассеяния быстрых (~1 кэВ) пучков на малые углы ( $\sim 10^{-4}$  -  $10^{-2}$  рад), позволяющий получать информацию именно об интересующем нас диапазоне энергий взаимодействия. В тех случаях, когда восстановление потенциала взаимодействия по тем или иным причинам затруднено, проводится сравнение сечений, рассчитанных на основе теоретических потенциалов и экспериментально измеренных сечений, и делается заключение о справедливости тех или иных приближений, использованных при теоретических расчетах потенциалов взаимодействия или же при расчетах дифференциальных сечений. Переход от регистрации самого факта рассеяния к измерению двойных дифференциальных сечений рассеяния (по углу и энергии) значительно расширяет возможности метода молекулярных пучков). Этот переход позволяет на основе измерений спектров потерь энергии изучать неупругие процессы при столкновении атомов и молекул и определять сечения соответствующих переходов. Таким образом, открывается интересная возможность получения информации о пересечениях потенциальных кривых, ведущих к различным неупругим процессам.

## **ГЛАВА 1. БЫСТРЫЕ МОЛЕКУЛЯРНЫЕ ПУЧКИ КАК ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЙ МЕТОД ИЗУЧЕНИЯ СВОЙСТВ ВЕЩЕСТВА**

### **§1.1. ОСОБЕННОСТИ ИСПОЛЬЗОВАНИЯ БЫСТРЫХ МОЛЕКУЛЯРНЫХ ПУЧКОВ**

Использование атомных (молекулярных) пучков в научном эксперименте является одной из "вершин" экспериментального микроскопического подхода к изучению свойств вещества. По сравнению с макроскопическими методами у метода молекулярных пучков (независимо от энергии пучка) имеются существенные достоинства при использовании для изучения свойств вещества. Перечислим лишь главные достоинства.

Молекулярный пучок позволил изолировать атомарную частицу (под которой мы будем понимать атом, молекулу, ион) от многих возмущающих факторов. Только метод молекулярного пучка дал возможность осуществить контролируемое парное взаимодействие атомарных частиц, изолированных от влияния других частиц. При этом метод молекулярного пучка позволил исследовать парные взаимодействия при известной скорости столкновения, что принципиально невозможно при макроскопических исследованиях, когда обязательно имеется некоторое распределение частиц по скоростям (для быстрых пучков тоже имеется распределение частиц по скоростям, но в большинстве случаев им можно пренебречь). Таким же образом метод молекулярных пучков позволил исследовать взаимодействие изолированной атомарной частицы с поверхностью твердого тела. Только метод молекулярных пучков позволяет проводить измерения с ориентированными в пространстве частицами

и таким образом изучать экспериментально анизотропные потенциалы взаимодействия [6]. Другим основным достоинством применения молекулярных пучков для изучения свойств вещества является возможность приготовить взаимодействующие частицы в определенных состояниях и проследить за изменением этих состояний [7].

Отметим, что макроскопический и микроскопический подходы к изучению свойств вещества не противоречат друг другу, а, взаимно дополняя, обеспечивают наиболее полную и точную информацию во всем диапазоне возможных условий (температур, давлений и т.п.). Наиболее иллюстративно связь макроскопических характеристик с атомными свойствами показывает рис.1.1.1, взятый из работы [3]. Это так называемое "генеалогическое дерево" физической кинетики. Из этого рисунка видно, что "стволом" этого дерева является потенциал межмолекулярного взаимодействия частиц  $V$ , характеризующий силы взаимодействия между частицами  $F$ . Эта удобная характеристика позволяет эффективно исключить из рассмотрения электронную структуру вещества.

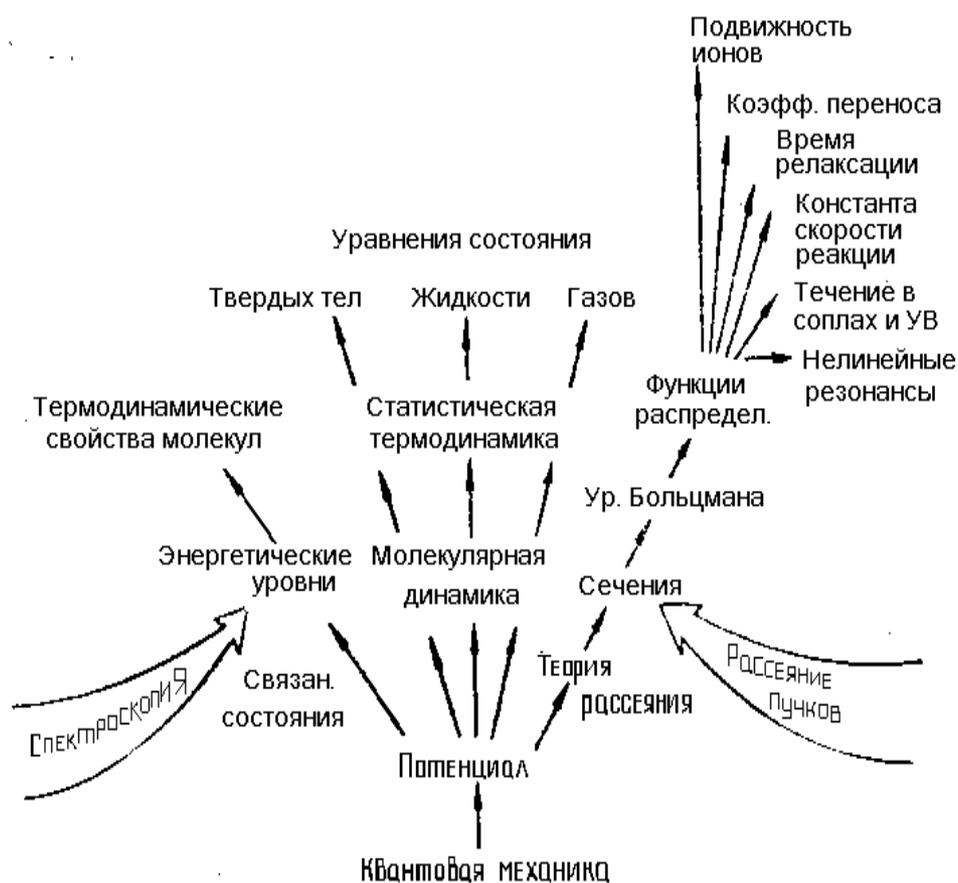
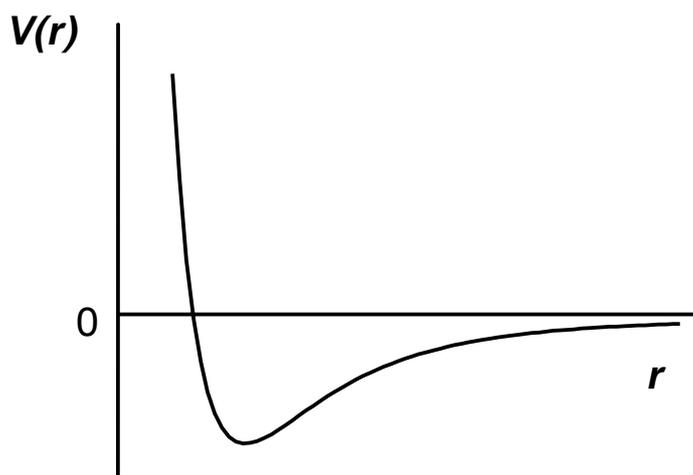


Рис. 1.1.1. "Дерево физической кинетики".

Фундаментальная роль потенциала взаимодействия следует из результатов классической статистической термодинамики [8]. Эти результаты демонстрируют, что все термодинамические функции могут быть рассчитаны, если нам известен потенциал взаимодействия.

В этой работе принимается, что взаимодействие каждой пары частиц является центральным и зависит только от расстояния между частицами. Кроме того, делается предположение об аддитивности полной энергии взаимодействия по отношению к взаимодействию всех пар частиц между собой. Утверждение об аддитивности межмолекулярных сил, в общем, несправедливо. Однако можно предполагать, что в случае взаимодействия примерно

сферических молекул "коллективные" члены дают лишь небольшой вклад в полную энергию системы и в первом приближении можно этими эффектами пренебречь. Вид потенциальной функции взаимодействия  $V(r)$  (где  $r$  – расстояние между частицами) может быть найден для каждого сорта частиц из соответствующих квантово-механических расчетов или же получен из экспериментальных данных.. Качественно ход функции  $V(r)$  должен соответствовать кривой, показанной на рис.1.1.2 (отталкивание на малых расстояниях, притяжение на больших и наличие потенциальной ямы на средних расстояниях).



**Рис.1.1.2.** Схематический вид потенциала взаимодействия.

Знание потенциала взаимодействия позволяет нам для не слишком плотных газовых систем рассчитывать неравновесные свойства (крайне правая ветвь рис.1.1.1.). На примере разреженных газов продемонстрируем возможность описания кинетических коэффициентов на основе потенциальной функции взаимодействия. Кинетическая теория разреженных газов основывается на уравнении Больцмана для функции распределения. В этой теории показывается [9], что коэффициенты переноса могут быть выражены через ряд интегралов столкновений  $\Omega^{(l,s)}$ ,  $T$  –температуру газа, массу молекул  $m$  и плотность числа частиц  $n$  (для простоты рассматриваем случай однокомпонентной смеси). Интегралы столкновений выражаются следующими соотношениями:

$$\Omega^{(l,s)} = \left( \frac{kT}{2\pi m} \right)^{1/2} \int_0^\infty \exp(-\gamma^2) \gamma^{(2s+3)} Q^{(l)}(E) \gamma d\gamma, \quad (1.1.11)$$

где

$$Q^{(l)}(E) = 2\pi \int_0^\infty \left( 1 - \cos^{(l)}(\chi) \right) b db \quad (1.1.12)$$

$\chi$  - угол рассеяния в системе центра масс, который определяется следующим соотношением [10]:

$$\chi = \pi - 2b \int_{r_0}^{\infty} \frac{dr}{r^2 [1 - V(r)/E_{cm} - b^2/r^2]^{1/2}} \quad (1.1.13)$$

Здесь  $E_{cm}$  - кинетическая энергия относительного движения, равная  $\mu v^2/2$  ( $\mu$  - приведенная масса, равная  $(m_1 \cdot m_2)/(m_1 + m_2)$ ),  $V(r)$ -потенциал взаимодействия сталкивающихся частиц,  $r_0$  - расстояние наибольшего сближения,  $b$  –прицельный параметр.

Обычно используются приведенные интегралы столкновения, которые выражаются следующим образом:

$$\Omega^{(l,s)*} = \Omega^{(l,s)} / \Omega_{hs}^{(l,s)}, \quad (1.1.14)$$

где  $\Omega_{hs}^{(l,s)}$  - интеграл столкновения для твердой сферы.

В первом приближении строгой кинетической теории коэффициенты переноса для чистого газа выражаются следующим образом:

Коэффициент вязкости:

$$\eta = 2,6693 \frac{\sqrt{mT}}{\sigma^2 \Omega^{(2,2)*}(T^*)} * 10^{-7}, \text{ мкПа} \cdot \text{с}. \quad (1.1.15)$$

Здесь  $T$  –температура в  $K$ ,  $T^*$  - приведенная температура, равная  $kT/\varepsilon$ ,  $\sigma$  - диаметр столкновений в  $\text{\AA}$ ,  $\varepsilon/k$ - глубина потенциальной ямы в  $K$ ,  $m$  – молекулярный вес.

Коэффициент теплопроводности:

$$\lambda = 83,22 \frac{\sqrt{T/m}}{\sigma^2 \Omega^{(2,2)*}(T^*)} 10^{-7}, \text{ мВт}/(\text{м} \cdot \text{К}) \quad (1.1.16)$$

Коэффициент самодиффузии:

$$D = 0,0026280 \frac{\sqrt{T^3/m}}{p \sigma^2 \Omega^{(1,1)*}(T^*)}, \text{ см}^2 / \text{с} \quad (1.1.17)$$

Здесь  $p$  –давление в атм.

Как оказалось метод молекулярного пучка удобный инструмент для изучения потенциала взаимодействия. Подробному обсуждению вопроса использования упругого рассеяния быстрых пучков для изучения парного взаимодействия атомных частиц посвящен параграф 1.2.

В методе молекулярных пучков используются пучки различных энергий. Это и тепловые (эффузионные) пучки с энергиями от сотых долей эВ до нескольких десятых эВ, сверхзвуковые пучки и, в частности, пучки в которых тяжелая компонента разгоняется наличием примеси легких частиц, позволяющие достигать энергий частиц до 25-30 эВ и, наконец, быстрые пучки с энергией в интервале порядка от нескольких сот эВ до нескольких кэВ.

Интерпретация результатов экспериментов с пучками разных энергий довольно сильно различается. Эти направления взаимно дополняют друг друга, позволяя исследовать различные диапазоны энергий взаимодействия, скоростей столкновения. Так, использование упругого рассеяния тепловых пучков (см. например, [11]) позволяет исследовать главным образом район потенциальной ямы, область притяжения и начальный участок отталкивательной ветви потенциала взаимодействия. Изучение упругого рассеяния на быстрых пучках

[1, 10 - 14] позволяет исследовать отталкивательную область потенциала взаимодействия от десятых долей эВ до нескольких эВ и выше. Развитие экспериментальной техники позволяет в настоящее время для простейших систем типа Ag-Ag практически совместить диапазоны исследуемых энергий взаимодействия методами быстрых и медленных пучков [15]. Следует отметить, что метод молекулярных пучков позволяет исследовать такой диапазон взаимодействия атомных частиц, который соответствует высоким температурам и давлениям, которые практически очень трудно достичь в обычной лабораторной практике. В настоящей работе рассматриваются такие столкновения, энергетический масштаб которых простирается от десятых эВ до десятков эВ. Эта область характеризуется экстремальными состояниями вещества - температурами до сотен тысяч Кельвина и давлений в несколько сот Мбар.

Существует ряд особенностей применения быстрых молекулярных пучков для исследования свойств вещества по сравнению с использованием тепловых пучков. Некоторые из этих особенностей являются достоинствами, другие недостатками метода быстрых пучков.

Рассмотрим сначала преимущества применения быстрых молекулярных пучков. Следует отметить, что эти достоинства и делают метод рассеяния быстрых пучков на малые углы самостоятельным экспериментальным методом исследования свойств вещества:

1) "Относительная" простота получения монокинетических ионных и нейтральных пучков. Как правило, быстрые нейтральные пучки получают из быстрых ионных пучков путем резонансной или квазирезонансной перезарядки. Такая перезарядка происходит на больших прицельных расстояниях, так что, во-первых, расходимость пучка практически не меняется и, во-вторых, вследствие малого угла отклонения энергия нейтральной частицы практически не отличается от энергии иона. Использование квазирезонансной перезарядки позволяет получать частицы пучка не только в основном электронном состоянии, но и в метастабильных состояниях. Так, перезарядка ионов  $\text{He}^+$  в основном состоянии  $1^1\text{S}$  на парах Na приводит к пучку метастабильных атомов  $\text{He}(2^3\text{S})$  [16 - 18]. Наличие на предварительной стадии быстрого ионного пучка позволяет использовать различные селекторы массы и энергии (магнитные или электростатические), которые обеспечивают монокинетичность пучка и чистоту его состава.

2) Величина скорости пучков при их энергии порядка 1 кэВ позволяет пренебречь наличием скорости частиц мишени (стационарной газовой мишени, теплового пучка), что значительно облегчает кинематическую интерпретацию результатов. Эта же относительная быстрота частиц пучка при рассмотрении взаимодействия с участием молекул (т.е. частиц, имеющих колебательную и вращательную степени свободы) позволяет пренебречь за время столкновения ( $t \sim 10^{-15} - 10^{-16}$  с) более медленными процессами колебания и вращения и считать партнеров "замороженными". Это тоже значительно облегчает интерпретацию результатов измерений с участием молекул.

3) Относительная простота регистрации частиц быстрого пучка. Если на начальном этапе для регистрации быстрых пучков использовались болометры, то в дальнейшем большое значение приобрели вторичные электронные умножители. Особенно успешно применяются для регистрации быстрых частиц полупроводниковые каналовые вторичные электронные умножители. Коэффициент усиления таких умножителей достигает  $10^8$ , что позволяет работать в режиме счета отдельных частиц. Небольшой шум этих усилителей, компактность (когда это необходимо), возможность регистрации по большой поверхности (микроканальные пластины), и, наконец, возможность определения координаты попадания частицы на поверхность детектора (координатно-чувствительные детекторы) практически решили многие проблемы с регистрацией быстрых частиц.

4) В связи с особенностями регистрации быстрых частиц (медленные частицы, как правило, не регистрируются вторичными электронными умножителями) требования к

вакуумным условиям при работе с быстрыми пучками не столь строги, как при работе с тепловыми пучками.

5) Быстрые пучки позволяют исследовать обширный диапазон энергий взаимодействия частиц. Можно использовать оценочную классическую формулу рассеяния на монотонном потенциале  $\theta E \sim 2 \cdot V$  [3] (где  $\theta$ -угол отклонения в лабораторной системе координат,  $E$  - энергия пучка,  $V$  - потенциал межмолекулярного взаимодействия) для определения исследуемого диапазона энергий взаимодействия. Так, для  $E=1$  кэВ и  $\theta \sim 10^{-4}$  рад  $V \sim 0.2$  эВ, а возможность исследования энергии взаимодействия сверху практически не ограничена.

Рассмотрим теперь некоторые недостатки, присущие методу быстрых молекулярных пучков, которые, в общем, являются продолжением его достоинств.

- В случае, когда мы хотим изучать взаимодействие частиц в области 0,1 - 10 эВ, используя пучок с энергией 1 кэВ, следует работать на достаточно малых углах рассеяния  $\sim 10^{-4}$  -  $10^{-2}$  рад. При таких углах необходимо иметь очень узкий пучок и размерами этого пучка (а также протяженностью мишени) уже нельзя пренебречь. Кроме того, апертура детектора (или его разрешение в случае использования координатно-чувствительного детектора) должна быть достаточно малой по сравнению с исследуемыми углами рассеяния и размерами этой апертуры также нельзя пренебречь. Для учета неидеальности эксперимента при работе с быстрыми пучками на малых углах нами была предложена аппаратная функция [19].
- К недостаткам быстрых пучков следует отнести тот факт, что элементарные акты исследуются при очень больших относительных скоростях сталкивающихся частиц. Для преодоления этого недостатка используется метод догоняющих пучков, которому присущи многие достоинства быстрых пучков, а относительная скорость столкновения может быть сделана как угодно малой.
- Главным недостатком метода быстрых пучков является невозможность определить продукты столкновения. Поэтому, в основном, этот метод используется для изучения упругого столкновения достаточно простых систем. Применение времяпролетного метода позволяет распространить его в достаточно ограниченном виде для изучения неупругого рассеяния.

## **§1.2. ИСПОЛЬЗОВАНИЕ УПРУГОГО РАССЕЯНИЯ БЫСТРЫХ ПУЧКОВ ДЛЯ ИЗУЧЕНИЯ СИЛ ПАРНОГО ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ АТОМНЫХ ЧАСТИЦ**

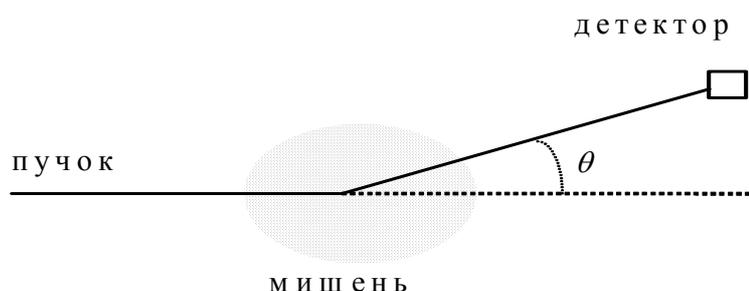
Как указывалось выше и неоднократно подчеркивалось в литературе [1-3, 13], упругое рассеяние пучков дает ценную информацию о силах взаимодействия между сталкивающимися частицами. В своей книге "Введение в теорию межмолекулярных взаимодействий" [20] И.Г.Каплан отмечает, что "основными источниками наших сведений о межмолекулярных силах служат:

- а) эксперименты по рассеянию в атомно-молекулярных пучках, позволяющие в ряде случаев непосредственно восстанавливать потенциалы по экспериментальным данным;
- б) спектроскопические измерения (колебательно-вращательные спектры, преддиссоциация, уширение линий давлением);
- в) данные по термодинамическим свойствам газов и жидкостей (вириальные коэффициенты, коэффициенты переноса);
- г) данные по свойствам кристаллов (упругие константы, фононные спектры, энергия сублимации);
- д) эксперименты по образованию радиационных дефектов в твердых телах (энергия фокусирования, пороговая энергия смещения, каналирование и т.п.);

е) эксперименты по ядерному магнитному резонансу в твердых телах и жидкостях (время спиновой и спин-решеточной релаксации)".

Не случайно И.Г.Каплан поставил эксперименты по рассеянию молекулярных пучков на первое место среди источников потенциалов взаимодействия. Хотя слово "непосредственно" в этом источнике может быть неправильно понято. В принципе не существует "непосредственных" методов, в которых можно было бы прямым образом измерять силы взаимодействия между частицами. Все методы являются косвенными: т.е. исследуется какое-либо свойство (в случае упругого рассеяния это угол, на который рассеялась частица молекулярного пучка), а по нему восстанавливается сила взаимодействия между частицами. Сама по себе такая процедура восстановления потенциала взаимодействия довольно сложная, часто неоднозначная. В этом смысле из всех вышеназванных источников метод молекулярного пучка является одним из наиболее "прямых" методов изучения сил взаимодействия между частицами (может быть спектроскопия более "прямой" метод, но у нее имеются свои ограничения). В конечном итоге можно еще раз сказать, что только совокупное использование различных методов изучения потенциалов взаимодействия (микроскопических и макроскопических) позволяет получить надежный реальный потенциал взаимодействия. Существует целое направление (один из очень активных его представителей R.A.Aziz [21], в котором подбирается (конструируется) потенциал таким способом, чтобы он наилучшим образом описал многие физические свойства вещества и воспроизвел бы различные экспериментальные данные (вязкость, теплопроводность, диффузию, рассеяние тепловых и быстрых пучков, свойства твердого тела, спектроскопические данные и т.п.).

Первоначально (еще с конца 40х годов нашего столетия) рассеяние быстрых пучков на малые углы стало применяться для изучения короткодействующих потенциалов отталкивания. Рассмотрим подробнее применение метода молекулярных пучков для определения сил парного взаимодействия атомных частиц. Метод с принципиальной точки зрения прост: молекулярный пучок рассеивается на тонкой мишени (в качестве мишени может использоваться другой молекулярный пучок или же мишень может быть стационарной (камера рассеяния, в которой частицы хаотично движутся с тепловыми скоростями, тонкая фольга и т.п.) (см. рис.1.2.1.).

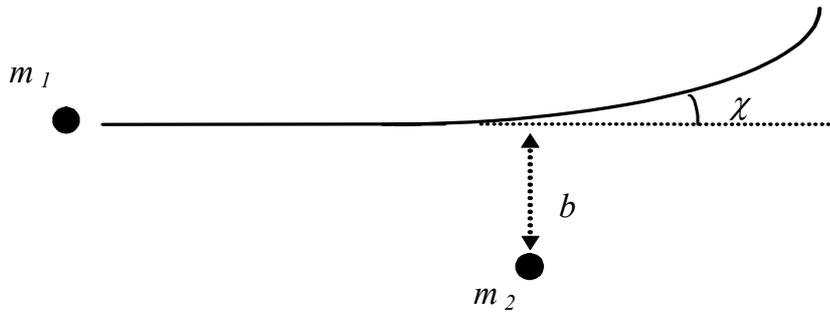


**Рис. 1.2.1.** Принцип изучения рассеяния методом молекулярного пучка.

Измеряя угол отклонения быстрой рассеянной частицы, можно получить сведения о парном взаимодействии атомных частиц. Тонкость мишени (имеется ввиду малость произведения плотности мишени на ее толщину) важна для того, чтобы за время столкновения частица пучка столкнулась с частицей мишени только один раз (следует подчеркнуть, что определение факта столкновения не такой простой вопрос, и он во многом зависит от масштаба детектора мишени и т.п.). Не вдаваясь в подробное описание теории упругих столкновений, квантовое и классическое описание которой имеется в многочисленных монографиях

(упомянем только некоторые из них [9], [10], [22-25]), рассмотрим некоторые выводы классической и квантовой механики, поясняющие метод упругого рассеяния и используемые для интерпретации результатов экспериментального изучения рассеяния.

Введем прицельный параметр  $b$ , который является минимальным расстоянием между сталкивающимися частицами  $m_1$  и  $m_2$  в том случае, как если бы при пролете эти частицы не взаимодействовали друг с другом (рис. 1.2.2).



**Рис.1.2.2.** Определение прицельного параметра  $b$

С целью удобства изложения повторим здесь формулу (1.1.13) для классического относительного угла рассеяния  $\chi$  в системе центра масс при столкновении частицы пучка массой  $m_1$ , движущейся со скоростью  $v$ , с первоначально покоящейся частицей мишени массой  $m_2$ . Исходя из законов сохранения энергии и импульса,  $\chi$  определяется следующим соотношением [10]:

$$\chi = \pi - 2b \int_{r_0}^{\infty} \frac{dr}{r^2 [1 - V(r) / E_{cm} - b^2 / r^2]^{1/2}} \quad (1.2.1)$$

Здесь  $E_{cm}$  - кинетическая энергия относительного движения, равная  $\mu v^2 / 2$  ( $\mu$  - приведенная масса, равная  $(m_1 \cdot m_2) / (m_1 + m_2)$ ),  $V(r)$ -потенциал взаимодействия сталкивающихся частиц, а  $r_0$  - расстояние наибольшего сближения, связанное с прицельным расстоянием  $b$  уравнением:

$$b^2(\chi) = r_0^2 [1 - V(r_0) / E_{cm}] \quad (1.2.2)$$

В случае малых углов рассеяния угол рассеяния  $\theta$  в лабораторной системе координат равен [10]:

$$\theta = \Delta P_{\perp} / P_{\infty}, \quad (1.2.3)$$

где  $\Delta P_{\perp}$  - импульс, сообщаемый рассеиваемой частице в поперечном направлении, а  $P_{\infty}$  - импульс налетающей частицы на бесконечности. Произведя несложные преобразования [10], получим:

$$\theta = - \frac{b}{E_{lab}} \int_{r_0}^{\infty} dV / dr \frac{dr}{\sqrt{r^2 - b^2}} \quad (1.2.4)$$

В случае рассеяния частиц, описываемого потенциалом взаимодействия обратнo-степенного вида

$$V = K / r^s \quad (1.2.5)$$

Угол рассеяния для него определяется формулой [10]:

$$\theta(b) = \frac{K C(s)}{E_{lab} b^s}, \quad (1.2.6)$$

где

$$C(s) = \frac{\sqrt{\pi} \Gamma(\frac{s+1}{2})}{\Gamma(\frac{s}{2})}.$$

Из формулы (1.2.6) сразу следует использованная выше оценочная формула  $\theta \cdot E_{lab} \sim 2 \cdot V$ .

В эксперименте, как правило, изучается рассеяние не одной частицы, а многих частиц. Рассеивается пучок, содержащий много частиц на мишени, которая тоже содержит много частиц, но поскольку используется режим однократных столкновений, то интерпретация идет в рамках парного столкновения двух частиц. Существует два экспериментальных подхода, используемых при рассеянии пучков частиц: а) измерение угловых распределений рассеянных частиц (изучение дифференциального рассеяния), б) измерение полных (интегральных) сечений рассеяния. Для описания измерений угловых распределений рассеянных частиц вводится понятие дифференциального сечения рассеяния  $\sigma(\theta, E_{lab})$ . Оно вводится как коэффициент пропорциональности между числом частиц, рассеянных на угол  $\theta$  в элемент телесного угла  $d\theta$  и интенсивностью нерассеянных частиц  $I_0$ , плотностью рассеивающей мишени  $n$  и ее длиной  $\Delta l$ :

$$I(\theta, E_{lab}) = I_0 \Delta l n \sigma(\theta, E_{lab}) \delta\Omega \quad (1.2.7)$$

Как правило, раньше дифференциальное сечение рассеяния измерялось подвижным детектором с небольшой апертурой.

Так называемое интегральное (полное) сечение рассеяния  $Q(\theta_0, E_{lab})$  характеризуется рассеянием на все углы большие  $\theta_0$  и определяется из уравнения:

$$Q(\theta_0, E_{lab}) = 2\pi \int_{\theta_0}^{\pi} \sigma(\theta, E_{lab}) \sin\theta d\theta.$$

Для нахождения интегральных сечений рассеяния с помощью детектора, расположенного на оси пучка и имеющего апертуру  $\theta_0$ , измеряются интенсивность нерассеянного пучка  $I_0$  и интенсивность пучка  $I$  при напуске газа в мишень. Тогда  $Q(\theta_0, E_{lab})$  определяется из соотношения:

$$I = I_0 \exp(-n Q(\theta_0, E_{lab}) \Delta l) \quad (1.2.8)$$

Частным случаем интегрального сечения является полное сечение, когда  $\theta_0 \rightarrow 0$ .

Соотношение для перехода от сечений в лабораторной системе координат к сечению в системе центра масс [26] имеет вид:

$$\sigma(\theta, E_{lab}) = \frac{[(m_1/m_2^2) + 2(m_1/m_2)\cos\chi + 1]}{1 + (m_1/m_2)\cos\chi} \sigma(\chi, E_{cm}), \quad (1.2.9)$$

где  $\theta$  и  $\chi$  связаны между собой выражением:

$$\operatorname{tg}(\theta) = \sin(\chi) / (m_1/m_2 + \cos(\chi)) \quad (1.2.10)$$

$m_1$  - масса налетающей частицы,  $m_2$  - масса частицы мишени.

Для малых углов ( $\chi \ll 1$ )  $\sin\chi \approx \chi$ ,  $\cos\chi \approx 1$  и тогда:

$$\sigma(\theta, E_{lab}) = [m_1/m_2 + 1]^2 \sigma(\chi, E_{cm}) \quad (1.2.11)$$

и

$$\theta = \chi / (1 + m_1/m_2) \quad (1.2.12)$$

Энергии в лабораторной системе и системе центра масс связаны соотношением:

$$E_{cm} = E_{lab} m_2 / (m_1 + m_2) \quad (1.2.13)$$

В дальнейшем для простоты будем использовать  $E$  без индексов для обозначения энергии в лабораторной системе координат. Сечение удобно выразить через параметры, характеризующие столкновения двух частиц. Будем считать связь  $\theta$  и  $b$  взаимно однозначной. В таком случае рассеиваются в заданный интервал углов  $\theta$  и  $\theta + d\theta$  лишь те частицы, которые летят с прицельными параметрами в интервале  $b$  и  $b + db$ , т.е.:

$$I(\theta, E) = 2\pi n I_0 \Delta l b db \quad (1.2.14)$$

Сравнивая (1.2.7) и (1.2.14), получаем:

$$\sigma(\theta, E) d\Omega = \frac{b}{\sin\theta} \left| \frac{db}{d\theta} \right| d\Omega \quad (1.2.15)$$

Для немонотонных зависимостей  $b(\theta)$  формулу (1.2.15) следует заменить на:

$$\sigma(\theta, E) d\Omega = \sum \frac{b_i}{\sin\theta} \left| \frac{db_i}{d\theta} \right| d\Omega \quad (1.2.16),$$

где сумма берется по всем ветвям функции  $b(\theta)$

Таким образом, для вычисления дифференциальных и интегральных сечений рассеяния необходимо знать зависимость  $\theta(b)$  которая определяется формулами (1.2.1) или (1.2.4).

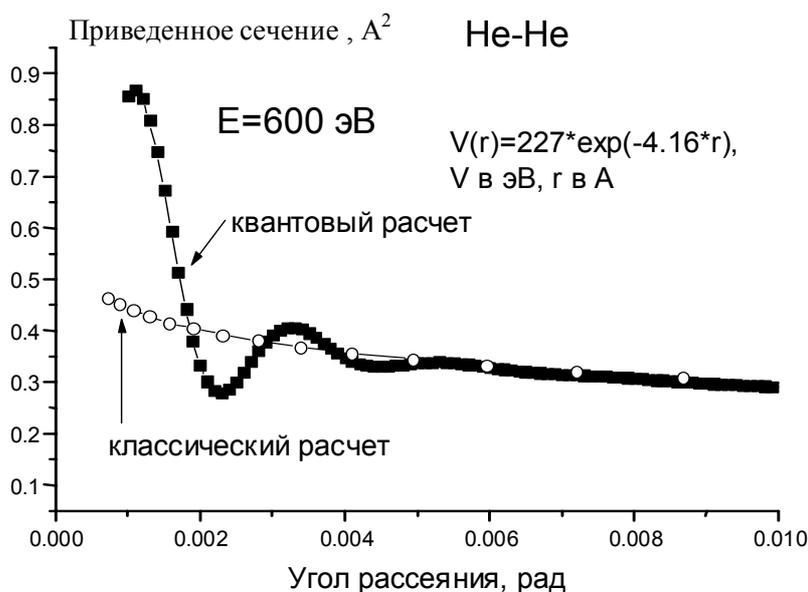
При анализе результатов экспериментального исследования всегда встает вопрос о правомочности применения классической трактовки. Необходимо всегда оценивать ошибку, возникающую при классическом рассмотрении рассеяния. Имеются два критерия применимости классической механики для описания рассеяния [12]:

а) неопределенность импульса должна быть малой по сравнению с величиной полного импульса;

б) неопределенность импульса должна быть малой по сравнению с величиной изменения импульса. Первый критерий (который может быть также сформулирован как необходимость малости длины волны де-Бройля налетающей частицы по сравнению с областью рассеивающего поля) для рассеяния рассматриваемых быстрых пучков, как правило, выполняется. Поэтому для классичности рассеяния достаточно требовать выполнения второго критерия. Неопределенность импульса обычно принимается равной  $\hbar / 2r_0$ , где  $r_0$  - область рассеивающего поля (часто  $r_0$  заменяется на расстояние наибольшего сближения). Для угла отклонения  $\chi$  и скорости частиц  $v$  критерий применимости классической механики можно записать в виде:

$$\frac{\hbar}{2r_0 \mu v \chi} < 1 . \quad (1.2.17)$$

Следует отметить, что из-за отсутствия более определенных количественных критериев справедливости классического анализа необходимо с помощью квантового расчета определить возможность применения классической механики. На рис.1.1.3 показаны выполненные нами квантовый и классический расчет дифференциального сечения для системы He-He при энергии столкновения 600 эВ.



**Рис.1.1.3.** Сравнение квантового и классического расчетов дифференциального сечения рассеяния системы He-He.

Видно, что, начиная с угла  $5 \cdot 10^{-3}$  рад, эти сечения совпадают. Следует также отметить, что для реальной геометрии эксперимента происходит усреднение дифференциальных сечений по некоторому угловому диапазону и совпадение квантового и классического расчета с учетом усреднения будет раньше.

В случае необходимости использования квантово-механического описания рассеяния дифференциальное сечение рассеяния выражается как:

$$\sigma(\chi, E_{cm}) = |f(\chi)|^2 \quad (1.2.18)$$

где  $f(\chi)$  - амплитуда рассеяния.

Для нахождения амплитуды рассеяния в общем случае необходимо решить уравнение Шредингера для волновой функции, которая при больших  $k$  должна описывать па-

дающую и рассеянную волну. Если решение волнового уравнения ищется методом парциальных волн, то для комплексной амплитуды рассеяния получается выражение:

$$f(\chi) = 1/2ik\Sigma(2l+1)\exp(2i\delta_l)P_l(\cos(\chi)) = A+iB \quad (1.2.19)$$

где:

$$A = 1/2k\Sigma(2l+1)\sin(2\delta_l)P_l(\cos(\chi))$$

$$B = 1/k\Sigma(2l+1)\sin^2(\delta_l)P_l(\cos(\chi))$$

Здесь  $l$ - квантовое число момента количества движения,  $P_l(\cos(\chi))$  полином Лежандра,  $\delta_l$  - фаза рассеяния  $l$ -ой волны, которая определяется из асимптотического поведения радиальной волновой функции. Дифференциальное сечение рассеяния равно:

$$\sigma(\chi) = A^2 + B^2 \quad (1.2.20)$$

Хотя точное квантово-механическое решение задачи рассеяния на потенциале (включая непосредственное численное интегрирование радиального волнового уравнения) в некоторых случаях может быть выполнено полностью, трудоемкость вычислений требует применения различных приближенных методов. Так, квазиклассическое приближение позволяет получать простые приближенные формулы, которые во многих случаях с хорошей точностью описывают основные особенности рассматриваемого квантового эффекта. Это позволяет во многих случаях понять физический смысл явления.

Приближение Вентцеля, Крамерса, Бриллюэна (ВКБ), как известно, справедливо только в пределе слабо меняющегося потенциала (т.е. когда дебройлевская длина волны настолько мала, что изменением  $V(r)$  на протяжении длины волны можно пренебречь). При указанном допущении радиальное уравнение можно упростить и получить приближенное решение в виде функций Эйре. Тогда, исходя из асимптотического вида радиальных волновых функций, для фазы рассеяния получается выражение:

$$\delta_l = \delta(b) = k \int_{r_0}^{\infty} [1 - (b/r)^2 - V/E_{cm}]^{1/2} dr - k \int_b^{\infty} [1 - (b/r)^2]^{1/2} dr, \quad (1.2.21),$$

где  $b=(l+1/2)/k$ . В этом выражении  $r_0$  является корнем подынтегрального выражения. Уравнение (1.2.21) содержит простое интегрирование, в то время как точное решение требует непосредственного численного интегрирования дифференциального уравнения второго порядка, поэтому быстрота вычисления фаз рассеяния в ВКБ приближении увеличивается примерно на два порядка [25]. При этом ВКБ фазы оказываются достаточно точными для большинства практических применений (до 0,1%). Это приближение не накладывает никаких ограничений на величину фазы  $\delta_l$ .

В тех случаях, когда величина  $l$  достаточно велика (например,  $l \gg kR$ , где  $R$ - некоторый характерный размер) и при достаточно больших энергиях частицы, т.е. когда член  $V/E_{cm}$  мал по сравнению с центробежным членом  $(b/r)^2$ , подынтегральное выражение в первом интеграле формулы (1.2.21) может быть разложено в ряд. При этом  $r_0$  близко к  $b$ . Пренебрегая вторым и следующими членами разложения и заменяя  $r_0$  на  $b$ , два интеграла в формуле (1.2.21) можно объединить. Тогда мы получим фазу в приближении Джеффриса:

$$\delta(b) = -k/2 \int_b^{\infty} V/E_{cm} (1 - (b/r)^2)^{-1/2} dr \quad (1.2.22)$$

Полином Лежандра при больших  $l$  можно представить в виде двух асимптотических формул [27]. Одна справедлива для малых углов ( $\sin \theta < 1/l$ )

$$P_l(\cos \chi) \approx (\cos \chi)^l J_0[(l + 1/2) \cdot \chi], \quad (1.2.23)$$

где  $J_0$  - функция Бесселя нулевого порядка, а вторая формула действительна для больших углов  $\sin \chi > 1/l$ .

$$P_l(\cos \chi) \approx (2/(\pi \sin \chi))^{1/2} [(1 - (4l)^{-1} + \dots) \sin \phi - (8l)^{-1} \text{ctg} \phi + \dots], \quad (1.2.24)$$

где  $\phi = (l + 1/2) \cdot \chi + \pi/4$

Если энергия частиц достаточно велика, то расчет амплитуды рассеяния  $f(\chi)$  может быть упрощен в области малых углов рассеяния. Соответствующий предельный случай известен в литературе как приближение прицельного параметра (его также называют приближением Мольера). Воспользуемся известным из теории бесселевых функций [27] выражением:

$$\lim P_l(\cos \chi) = J_0(2(l + 0,5) \sin(\chi/2)) \quad (1.2.25)$$

Заменим  $b$  на  $(l+0.5)/k$ , тогда в формуле (1.2.25) можно от суммирования по  $l$  перейти к интегрированию по  $b$ :

$$f(\chi) = -ik \int_0^{+\infty} db b J_0(2bk \sin(\chi/2)) (\exp(2i\delta_l(b)) - 1) \quad (1.2.26)$$

Для расчета интеграла (1.2.26) могут использоваться различные квадратурные формулы.

Как уже отмечалось выше, все предыдущие рассуждения проведены для сферически симметричного потенциала взаимодействия. Вообще говоря, сферическая симметрия характерна для взаимодействия систем, включающих атомы, а не молекулы. В случае столкновения атома с молекулой или молекулы с молекулой лишь в грубом приближении потенциал взаимодействия описывается точечным центром сил. Особенно это должно проявляться при взаимодействии с участием линейных молекул, таких как, например,  $\text{CO}_2$  и  $\text{N}_2\text{O}$ . Известен ряд геометрических моделей описания несферического силового поля [1], [9]. Строго говоря, для анализа задачи рассеяния с участием молекул, необходимо решать в классическом случае уравнения движения с учетом зависимости потенциала от ориентации. Однако из-за сложности решения подобной задачи были предложены другие подходы преодоления указанной трудности. В данной работе мы не будем подробно рассматривать вопросы, связанные с несферичностью потенциала взаимодействия, а лишь укажем те возможности, которые можно использовать при интерпретации экспериментальных результатов, и которые были использованы в настоящей работе.

Общая угловая зависимость для случая атом-молекула вполне удовлетворительно описывается разложением по полиномам Лежандра:

$$V(r, \gamma) = \sum_n V_n(r) P_n(\cos \gamma) \quad (1.2.27)$$

Здесь  $\gamma$  - угол между осью молекулы и линией, соединяющей центр тяжести молекулы. Имеется много теоретических расчетов анизотропных потенциалов взаимодействия атома и молекулы, представленные в таком виде. Именно это разложение было использовано нами для анализа рассеяния атомов  $\text{Li}^+$  на молекулах  $\text{N}_2$ ,  $\text{CO}$  и  $\text{H}_2$  [28], [29]. Однако такое представление слишком сложно, чтобы его можно было бы непосредственно использовать для восстановления потенциала взаимодействия, и оно, как правило, используется только для проверки предложенных теоретических потенциалов.

Возможность восстановления параметров потенциала по результатам рассеяния быстрых пучков дает модель нецентрального поля в виде суммы вкладов силовых центров, помещенных в точках расположения атомов молекул и принимаемых тождественными. При этом обязательно предполагается, что отклонение рассеиваемой частицы определяется взаи-

модействием на расстояниях, близких к расстоянию наибольшего сближения. Предполагается также, что потенциал системы молекула-молекула складывается из потенциалов взаимодействия каждого атома одной молекулы со всеми атомами другой; т.е.  $V = \sum V_{ij}$ , где  $V_{ij}$  - межатомный потенциал всех пар взаимодействующих молекул.

Выбор такой модели оправдан наличием единой электронной оболочки молекулы. Для такого анизотропного потенциала функция отклонения будет зависеть от взаимной ориентации молекул. При этом для малых углов отклонения рассеиваемой частицы можно воспользоваться формулой (1.2.3) где:

$$\Delta P_{\perp} = \sum \Delta P_{ij} \quad (1.2.28)$$

### **§1.3. ПЕРЕХОД К ИЗУЧЕНИЮ НЕУПРУГИХ СТОЛКНОВЕНИЙ МЕТОДОМ РАССЕЙЯНИЯ БЫСТРЫХ ПУЧКОВ НА МАЛЫЕ УГЛЫ КАК НОВЫЙ ШАГ НА ПУТИ РАЗВИТИЯ ИССЛЕДОВАНИЙ С БЫСТРЫМИ ПУЧКАМИ**

Как уже отмечалось во введении, рассеяние быстрых пучков на малые углы в течение долгого времени использовалось для изучения упругого рассеяния атомных частиц. Во многом это было связано с уровнем развития технических средств, ибо для изучения упругого рассеяния достаточно только зафиксировать сам факт изменения угла полета частицы (определить угол рассеяния частицы), тогда как для исследования неупругих столкновений надо было еще и зарегистрировать (измерить) энергию этой частицы. Но такое положение вещей со временем перестало удовлетворять нас. Потому что при изучении столкновения частиц всегда вставал вопрос, а насколько это столкновение действительно упругое? На начальном этапе большинство исследовательских групп, работающих с быстрыми пучками, исследовало взаимодействие атомов благородных газов. Так как первые возбужденные состояния атомов благородных газов лежат довольно высоко, то до определенного угла рассеяния (который можно оценить из соотношения  $\theta \cdot E \sim 2 \cdot V$ ) были основания считать, что рассеяние этих атомов упруго. После того, как в процесс исследований были вовлечены молекулы, картина рассеяния изменилась. Появилась уверенность, что неупругие процессы вносят вклад в измеряемую картину и экспериментальные дифференциальные сечения не могут напрямую использоваться для восстановления потенциала взаимодействия. Так, при изучении рассеяния He-N<sub>2</sub> еще в 1977 году нами [30] было высказано предположение о влиянии электронных переходов на дифференциальные сечения. Все это заставляло нас искать возможность изучения неупругих столкновений при рассеянии быстрых пучков на малые углы. И как только появились технические возможности, мы начали реализацию идею измерения неупругих столкновений.

Имеется большое число экспериментальных методов, позволяющих изучать неупругие столкновения частиц. Практически все они используют то или иное физическое явление, непосредственно связанное с неупругим переходом и способное дать характеристику этому неупругому переходу. В нашу задачу не входит подробный анализ всех возможных методов регистрации неупругих столкновений, и мы только упомянем некоторые наиболее часто используемые методы, чтобы показать достоинства (и недостатки) выбранного нами метода времяпролетного изучения неупругих переходов на быстрых нейтральных пучках.

Распространенным методом изучения неупругих переходов является регистрация излучения, испускаемого возбужденными при столкновении частицами. Это один из самых тонких по энергетическому разрешению методов (он практически позволяет полностью разрешить колебательные и вращательные уровни).

Спектроскопические исследования неупругих переходов проводятся довольно длительное время и позволили получить большой объем информации, по которому выпущен-

ны многочисленные таблицы. Однако этот метод обладает довольно большим недостатком - интегральным характером получаемой информации. Но самым большим недостатком этого метода является то, что он не позволяет исследовать переходы на безизлучательные уровни.

Универсальным методом изучения неупругих переходов является метод измерения кинетической энергии частицы до и после столкновения [31]. Наиболее информативным является измерение не только энергии частицы, но и угла, на который она была рассеяна. В этом случае практически измеряются двойные (по углу и энергии) дифференциальные сечения. Заметим, что измерение энергии рассеянной частицы относительно легко можно проводить в том случае, когда она несет на себе электрический заряд [32]. При этом обычно используются электростатическими анализаторами, которые позволяют достигать чрезвычайно высокого разрешения ( $\sim 100$  мэВ). Это дает возможность разрешать даже колебательные уровни молекулы  $N_2^+$ .

Мы же в лаборатории в течение долгого времени изучали взаимодействие нейтральных частиц, и поэтому нам хотелось с самого начала сделать возможным изучение неупругих переходов при столкновении нейтральных частиц. Для определения энергии быстрых нейтральных частиц, в принципе, можно использовать электростатические анализаторы (например, ионизируя быструю частицу), но это довольно сложно. Поэтому из всех возможных методов нами был выбран времяпролетный метод измерения энергии частиц. К достоинствам времяпролетного метода следует отнести то, что он не зависит от заряда частицы.

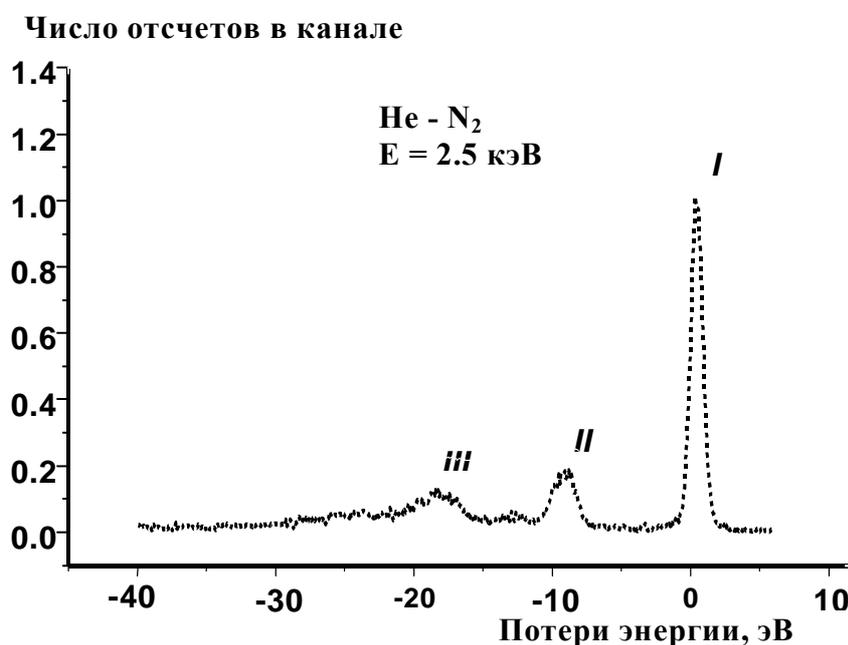
Идея времяпролетного метода чрезвычайно проста: для известного расстояния  $L$  (называемого пролетной базой) следует измерить время пролета  $t$ . Это позволяет рассчитать скорость  $v=L/t$ , а зная массу легко определить и энергию этой частицы. В эксперименте проводится накопление результатов измерения  $v$  для большого числа частиц, в результате чего образуется времяпролетное распределение частиц пучка по скоростям (энергии). Наиболее трудным в экспериментальном плане является определение момента влета частицы на пролетную базу (об этом мы поговорим несколько подробнее ниже), а момент вылета (пролета базы) обычно определяется по сигналу с детектора частиц, установленному в конце пролетной базы.

Отсюда понятно, почему времяпролетные методы различаются по способу определения момента влета частицы на пролетную базу. Широкое распространение получил так называемый метод совпадений [33]. Если заставить частицу при влете на пролетную базу излучить фотон или электрон, то, зарегистрировав этот фотон или электрон, можно найти момент влета частицы на пролетную базу. Назовем сигналом "старт" сигнал от этого фотона или электрона, а сигнал "стоп" сформируем в момент детектирования самой частицы другим детектором в конце пролетной базы. Уникальность метода совпадений состоит в том, что он позволяет получать информацию, которую невозможно измерить другими методами, и, кроме того, позволяет в некоторых случаях отстроиться от фонового излучения.

Но наиболее распространенным методом определения момента влета частицы на пролетную базу является создание в определенные моменты времени (старт) сгустков частиц. Особенностью быстрых пучков является то, что в каждом образованном "сгустке" в среднем должно быть не более одной частицы. Это связано с тем, что из-за "мертвого времени" регистрирующих систем предпочтительнее будут детектироваться частицы с большими скоростями. "Мертвое время" регистрирующей системы - это интервал времени, в течение которого после регистрации частицы не может быть зарегистрирована следующая частица. Как правило, для быстрых частиц длительность сгустка порядка 1 нс, а "мертвое время" намного больше этой величины. Поскольку в каждом так называемом "сгустке" намного меньше одной частицы (т.е. очень много пустых сгустков), то сигнал с детектора, являющийся стоповым моментом для времяпролетной системы, используется в качестве стартового, а стоповым является синхронизованный (задержанный) стартовый сигнал. Такая схема вклю-

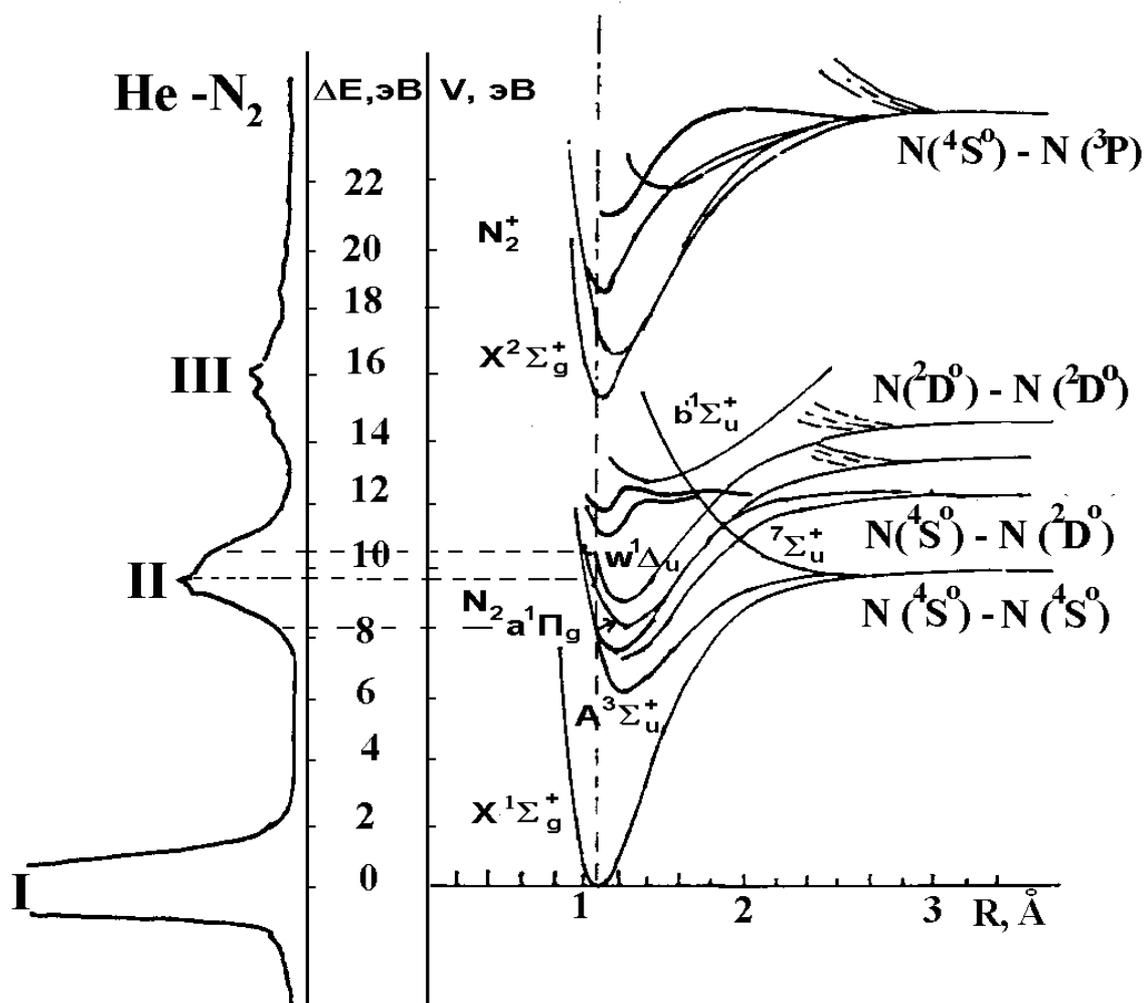
чения исключает "холостые" пуски измерителя времени и за счет этого удается улучшить статистику измерений

Непосредственное описание технической реализации времяпролетной схемы измерений неупругих потерь энергии подробно дано в главе 2. Укажем только, что в наших измерениях фактически определяется потеря кинетической энергии путем сравнения времен пролета рассеянной и нерассеянной частиц. Типичная картина потерь кинетической энергии, измеренная нами времяпролетным методом, показана на рис.1.3.3 для случая рассеяния атомов He на молекулах N<sub>2</sub> [34]. Крайний правый пик I соответствует упруго рассеянным частицам. Форма этого пика практически совпадает с формой пика нерассеянного пучка и хорошо описывается распределением Гаусса. Пики II и III соответствуют различным группам электронных переходов. Наглядная идентификация переходов может быть проведена путем сравнения спектра потерь и диаграммы термов молекулы N<sub>2</sub> (рис. 1.3.4). По времяпролетному спектру для нерассеянного пучка можно судить о качестве пучка и всей времяпролетной системы. Фактически этот спектр определяет разрешение установки.



**Рис.1.3.3.** Спектры энергетических потерь системы He - N<sub>2</sub> в диапазоне углов рассеяния 6,4-14,9 мрад.

Подчеркнем, что и в других лабораториях проводили как измерения упругих дифференциальных сечений рассеяния на быстрых пучках для малых углов рассеяния [35], так и спектров неупругих потерь энергии для определенного угла рассеяния (но, как правило, для заряженных частиц электростатическими анализаторами) [36]. Мы поставили перед собой задачу создать установку, которая могла бы делать одновременно такие измерения (определять угол рассеяния и энергию частицы). Такая установка обеспечивала бы не только количественный, но и качественный скачок в исследованиях рассеяния молекулярных пучков. При такого рода измерениях обеспечивается не только резкое увеличение скорости измерений, но и появляется возможность проводить различного рода корреляционные измерения. Создание такой установки стало возможным благодаря появлению координатно-чувствительного детектора и соответствующих электронных устройств (в частности, управляющих ЭВМ). Такая установка нами была создана и в данной статье представлено не только ее подробное описание, но и продемонстрированы результаты ее работы.



**Рис.1.3.4.** Энергетический сдвиг отдельных пиков измеренного спектра потерь в сопоставлении с величинами энергий вертикальных переходов с нулевого колебательного уровня основного X<sup>1</sup>S<sub>g</sub><sup>+</sup> - состояния молекулы азота на уровни возбужденных состояний (пунктирные линии).

Блок-схема этой новой экспериментальной установки представлена на рис.2.1.3. Стандартный масс-спектрометр МИ-1201 (1) используется для получения ионного пучка практически любой массы в диапазоне энергий частиц от 1 до 5 кэВ и состоит из ионного источника (1) и магнитного анализатора масс (2).

## ГЛАВА 2. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ И МЕТОДИЧЕСКИЕ АСПЕКТЫ ИЗУЧЕНИЯ РАССЕЙНИЯ БЫСТРЫХ ПУЧКОВ НА МАЛЫЕ УГЛЫ

Экспериментальное изучение рассеяния быстрых пучков на малые углы, как уже отмечалось во введении, имеет довольно большую историю. Впервые такие эксперименты начали проводиться Амдуром [12] более 50 лет тому назад. В них исследовались интегральные сечения рассеяния главным образом стабильных атомов и молекул. В нашей стране изучение рассеяния быстрых пучков на малые углы началось с 60х годов. В группе под руководством В.Б.Леонаса были созданы экспериментальные установки [37-38], которые позволяли получать практически пучки любых атомов и молекул, так как в отличие от установки Амдура в них имелся магнитный анализатор масс. Кроме того, чувствительность регистрации была намного больше, так как вместо используемых Амдуром болометров с конца 60х годов начали применяться электронные умножители. Кроме того, от измерений интегральных сечений рассеяния постепенно перешли к измерениям дифференциальных сечений рассеяния. Интегральные сечения рассеяния измерялись неподвижным детектором, центр которого находился на оси пучка, а дифференциальные сечения традиционно измерялись подвижным точечным детектором, который фактически измерял угловые распределения рассеянных частиц. С развитием экспериментальной техники создавались все новые установки [39-40]). На начальном (довольно продолжительном) этапе нами исследовалось в основном упругое рассеяние, что существенно ограничивало экспериментальные возможности изучения столкновения атомных частиц. Т.е. измеряя интегральные и дифференциальные сечения рассеяния, мы регистрировали только сам факт рассеяния. Информацию об изменении внутренней энергии частиц мы не могли получать. Мы просто считали, что наблюдаемое нами рассеяние является упругим (что в некоторых случаях для систем с участием молекул при больших углах рассеяния было неправильным). Как было сказано в 1 главе, такое положение вещей нас не устраивало. Мы все время (особенно при изучении рассеяния с участием молекул) получали экспериментальные доказательства того, что наряду с упругими столкновениями имеют место и неупругие. По мере развития технических возможностей была создана установка, которая с помощью времяпролетной методики позволила измерять неупругие потери энергии для определенных углов рассеяния. Но дифференциальные сечения приходилось измерять подвижным точечным детектором, и всегда вставал вопрос о совмещении этих измерений. Подключение к этой установке координатно-чувствительного детектора позволило одновременно измерять как дифференциальные сечения рассеяния, так и неупругие потери энергии - т.е. измерять двойные дифференциальные (по углу и энергии) сечения [40-41]. Таким образом, в начале 90х годов появилась новая уникальная установка с очень широкими возможностями.

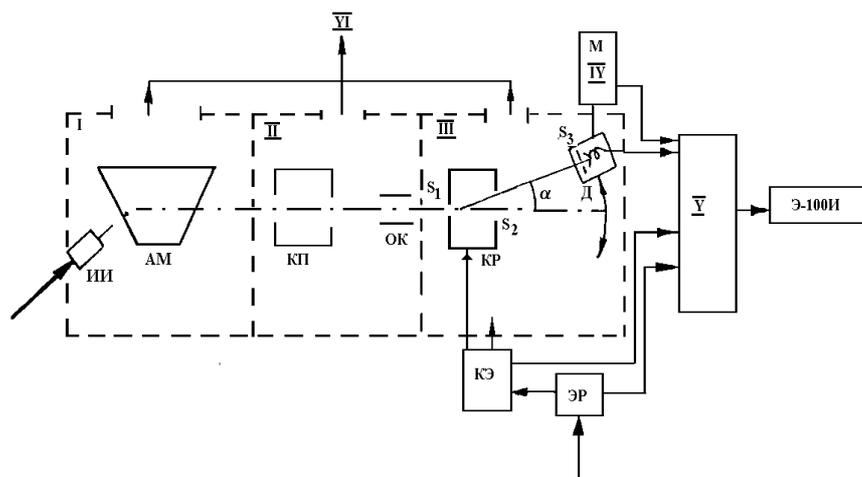
В самом начале наших исследований все измерения велись вручную. Это была очень трудоемкая работа. По мере развития экспериментальной техники стали использоваться различные автоматические устройства для выполнения отдельных рутинных операций. С развитием вычислительной техники все более широко стали применяться ЭВМ. Сначала мы использовали «Электронику -100И" [39], для которой приходилось писать программы в машинных кодах. Затем мы начали применять мини-ЭВМ, а затем персональные компьютеры. Использование модулей КАМАК позволило существенно облегчить связь ЭВМ с установкой [42]. Экспериментальные установки, на которых были получены основные результаты настоящей работы, и проблемы автоматизации эксперимента рассматриваются в параграфе 2.1.

Большое значение для успешного проведения экспериментов имеет регистрация быстрых атомов и молекул. Применение вторичных электронных умножителей позволило исследовать не только интегральные сечения рассеяния, но и перейти к измерению дифференциальных сечений рассеяния [43]. Замена жалюзных вторичных электронных умножителей на каналовые электронные умножители существенно увеличила эффективность регистрации и позволила перейти к режиму счета отдельных частиц. Было использовано большое число типов таких умножителей ВЭУ-6, ВЭУ-7, "Олень" и т.п. Поскольку характеристики этих умножителей в режиме регистрации быстрых частиц не были известны, то нам пришлось провести обширные исследования каналовых электронных умножителей и сборок микроканальных пластин [44-45].

Как уже указывалось выше, экспериментальное изучение рассеяния быстрых пучков на малые углы имеет свои особенности, и методика обработки полученных данных может существенно отличаться от принятых при анализе результатов изучения рассеяния частиц на тепловых пучках. Измерение потоков на малые углы заставляет учитывать конечные размеры пучка, камеры рассеяния и детектора [19]. При теоретическом рассмотрении и при анализе экспериментальных данных по рассеянию быстрых молекулярных пучков обычно предполагалась обратностепенная или экспоненциальная зависимость потенциала взаимодействия от расстояния. Однако накопленный нами экспериментальный опыт свидетельствовал, что указанная аппроксимация не всегда является оправданной [46]. Нами был проведен анализ [47], позволяющий на основе экспериментального дифференциального сечения рассеяния делать вывод о ходе (виде) потенциальной функции взаимодействия, которая в классическом приближении воспроизведет ход экспериментального дифференциального сечения рассеяния. Обсуждению методических вопросов, связанных с обработкой данных, полученных рассеянием быстрых пучков на малые углы, посвящен параграф 2.4.

## **§2.1. ОПИСАНИЕ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫХ УСТАНОВОК, ПРЕДНАЗНАЧЕННЫХ ДЛЯ ИЗУЧЕНИЯ РАССЕЯНИЯ БЫСТРЫХ ПУЧКОВ НА МАЛЫЕ УГЛЫ**

Экспериментальные результаты, о которых пойдет речь в главах 3, 4 и 5 были получены на разных установках. Остановимся сначала подробно на первой версии установки [39], на которой были получены результаты по изучению упругих дифференциальных и интегральных сечений рассеяния. Схема этой установки показана на рис. 2.1.1.



**Рис. 2.1.1.** Схематический вид экспериментальной установки. КП - камера перезарядки, ОК - отклоняющий конденсатор, КР - камера рассеяния, ЭР - электронный расходомер, КЭ - электромагнитный клапан.

Она содержит следующие основные узлы: секция источника ионного пучка I, секция перезарядки и формирования нейтрального пучка II, рабочая секция с камерой рассеяния, коммутирующим клапаном, устройством измерения давления рассеивающего газа и детектором III, система сканирования детектора по углам IV, измерительно-управляющий комплекс V и управляющая ЭВМ. Угловой диапазон сканирования охватывает углы детектора  $\alpha \sim 0 \div 0,05$  рад.

Эта версия установки построена в традиционной для 60х-70х годов манере с подвижным детектором. Этот детектор обеспечивал измерение угловых распределений рассеянных частиц и в этом случае он должен был иметь достаточно малую апертуру. Или же детектор имел некоторую конечную апертуру  $\alpha_0$  и размещался на оси нерассеянного пучка, что позволяло измерять ослабление пучка при напуске газа в камеру рассеяния и отсюда восстанавливать интегральные сечения рассеяния. Особенностью установки являлось то, что она позволяла проводить практически полностью автоматизированные измерения дифференциальных (и интегральных) сечений рассеяния с обработкой первичных данных по ходу их поступления и выдачей статистически обработанных результатов многих циклов измерений.

Недостатком этой установки, как это уже было сказано выше, было то, что в ней не измерялась энергия быстрой частицы, а определялись суммарные дифференциальные сечения рассеяния (т.е. сумму упругого и неупругого дифференциальных сечений).

Для достижения необходимых вакуумных условий в установке применялась дифференциальная откачка. Секция I откачивалась парортутными насосами, а секция II и III - паромасляными диффузионными насосами (в дальнейшем - турбомолекулярными насосами). Паромасляные и парортутные насосы были соединены с вакуумными объемами через высоковакуумные ловушки, охлаждаемые жидким азотом.

В качестве секции ионного источника использовалась аналитическая часть масс-спектрометра. В начале это был модифицированный масс-спектрометр МС-1, затем МИ-1309. Это позволяло получать монокинетический ионный пучок практически любого массового состава. Энергия пучка могла выбираться любой в интервале 0,6-4 кэВ путем изменения ускоряющего напряжения в источнике ионов, подаваемого от

стандартного источника питания (например, ВС-22). Для получения пучка нейтральных атомов и молекул использовалась реакция перезарядки. Перезарядка ионов осуществлялась в камере перезарядки (КП). Использовались два вида камеры перезарядки - а) для перезарядки на газах, б) прогреваемая камера перезарядки [48]. В прогреваемой камере допускался нагрев и поддержание стабильной температуры до 400<sup>0</sup>С.

Таким образом, наряду со стабильными газами для перезарядки могли использоваться мишени из легко испаряющихся элементов и соединений (в частности, щелочных металлов). Широкий спектр доступных партнеров перезарядки сделал возможным выбор мишеней, обеспечивающих случайный резонанс для перезарядки частиц (атомов и молекул) не только в основные, но и в долгоживущие (метастабильные) (время жизни >10<sup>-5</sup> с) состояния. Именно таким образом получались пучки метастабильных атомов He и молекул N<sub>2</sub> [49-50]. С помощью герметизированного микрометрического винта КП могла вводиться и выводиться из пучка. Неперезарядившиеся ионы удалялись отклоняющим плоским конденсатором, на который подавалась разность потенциалов, нейтральный пучок коллимировался диафрагмой диаметром 0,1 мм. Расходимость получаемого пучка составляла 10<sup>-3</sup> рад, что приводило к небольшому уширению профиля пучка (ширина на половине высоты равнялась 0,15 мм) в плоскости детектора, находящегося на расстоянии 202 мм от формирующей диафрагмы.

Камера рассеяния (КР) (длина 25 мм, входное и выходное отверстие диаметром 0,1 и 1 мм, соответственно) была смонтирована на специальной платформе, которая микрометрическим винтом могла смещаться в плоскости, перпендикулярной пучку.

Для подачи газа использовался электромеханический клапан (КЭ-2М1), установленный после дозирующего натекаателя системы напуска. Клапан позволял направлять газ в КР или рабочий объем, что позволяло исключать из показаний вклад, обусловленный рассеянием пучка вне КР.

Для измерений давления рассеивающего газа (диапазон 10<sup>-3</sup> -10<sup>-4</sup> мм рт ст.), необходимого для получения абсолютных значений сечений, использовалось специально разработанное в лаборатории устройство - электронный расходомер (ЭР) [51]. Определение давления основано на прецизионном измерении потоков рассеивающего газа, вытекающих через измеренные с высокой точностью щели КР. Погрешность измерения давления в КР с помощью ЭР не превышала 1-2%, система работала автоматически и была свободна от ошибок, свойственных, например, ионизационному манометру.

Система напуска была изготовлена из трех баллонов, емкостью порядка 2 литров каждый, вентилях и соединительных трубок. Система напуска позволяла направлять газ из любого баллона в ионный источник, камеру перезарядки и камеру рассеяния. На каждом баллоне был установлен манометр. Вся система была подсоединена к форвакуумному насосу и могла быть прокачена.

Детектирование пучков осуществлялось в режиме дискретного счета частиц с помощью вторичных электронных умножителей (ВЭУ). ВЭУ с диафрагмирующей апертурой (диаметром 0,3 мм) был установлен на платформе, перемещаемой относительно центра КР. Перемещение в горизонтальной и вертикальной плоскостях осуществлялось микрометрическими винтами с точностью 10<sup>-2</sup> мм. Сканирование детектора в горизонтальной плоскости в ходе измерений могло выполняться вручную и с помощью электропривода.

Показанная на рис.2.1.1 установка была сопряжена первоначально с мини ЭВМ "Электроника-100И". При сопряжении применялись как созданные в лаборатории

интерфейсы, так и заводские периферийные устройства. В состав измерительно-управляющего комплекса входил также накопитель на магнитной ленте НМЛ-67 и простейшие дисплей и графопостроитель.

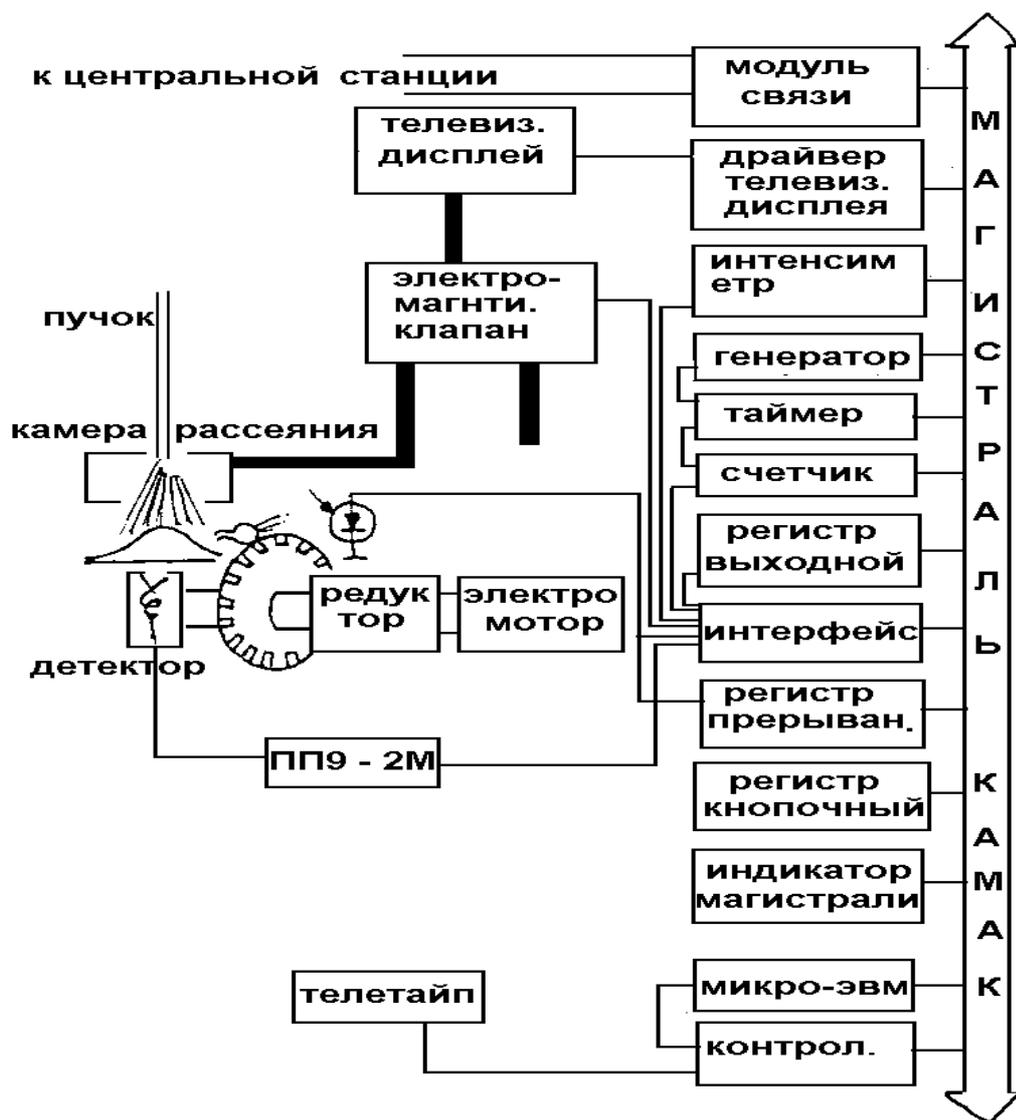
В задачу комплекса входило: контроль и сбор данных об условиях эксперимента; сканирование и контроль угловых положений детектора; запись результатов измерений, обработка их по ходу поступления и представление текущей информации на экране дисплея; статистическая обработка данных по многим циклам измерений с выдачей окончательных результатов в виде таблиц и графиков.

На следующем этапе автоматизации управляющая ЭВМ была соединена с экспериментальной установкой посредством стандартной модульной системы аппаратных средств автоматизации КАМАК. Блоки такой модульной системы предназначены для выполнения отдельных функций и унифицированы как по аппаратному сопряжению, так и по системе команд управления. На рис.2.1.2 показан измерительно-управляющий комплекс, созданный на основе модульной системы КАМАК [42]. Представленный на рис.2.1.2 комплекс являлся одной из удаленных станций комплекса коллективного пользования для автоматизации лабораторного эксперимента [52]. Затем с распространением персональных ЭВМ мы отказались от многомашинного комплекса, заменив каждую микро-ЭВМ персональным компьютером [40].

Как уже подчеркивалось в начале этой главы, описанная выше установка позволяла исследовать главным образом упругие столкновения атомов и молекул. Для того чтобы исследовать неупругие процессы нами в конце 80х годов была построена следующая версия установки. Эта установка позволяла по отдельности измерять угловые распределения рассеянных частиц и спектры энергетических потерь. Для этого в ней использовались разные детекторы: для измерения дифференциальных сечений рассеяния подвижный детектор с небольшой апертурой, а для измерения спектров потерь энергии неподвижный детектор на основе микроканальных пластин (ВЭУ-7), перед которым устанавливалась кольцевая щель для определенного угла рассеяния. Меняя диаметр кольцевой щели, можно было менять угол рассеяния.

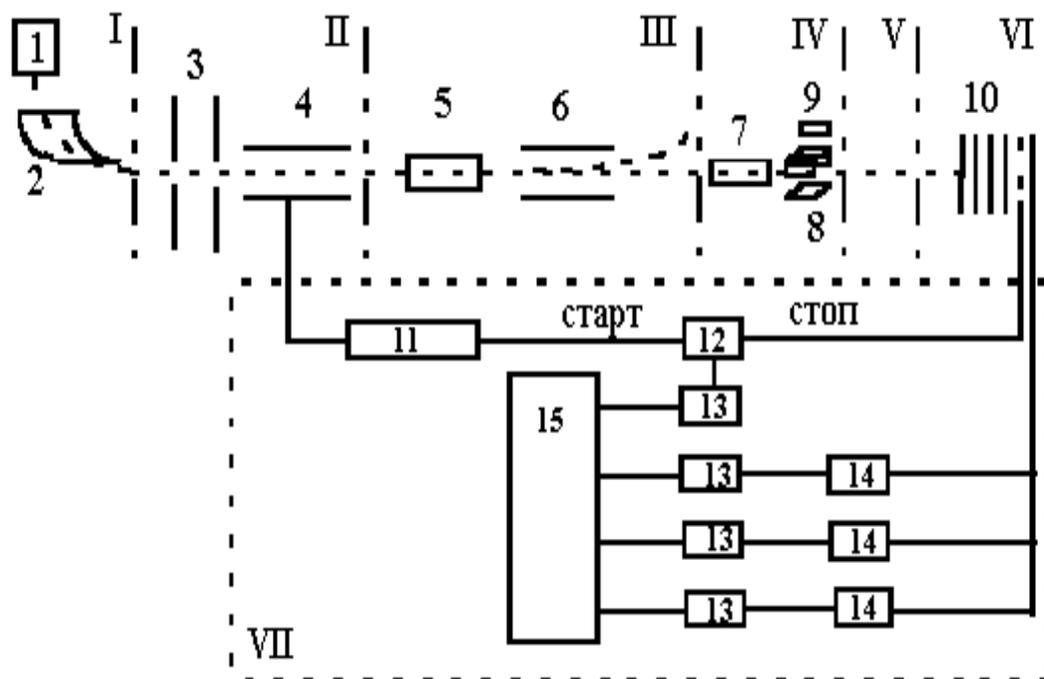
На этой установке были исследованы неупругие столкновения молекул He-N<sub>2</sub> и N<sub>2</sub>-N<sub>2</sub> для различных энергий пучка и результаты этих исследований изложены в работах [53-54] и описаны в главе 3. Измерение спектров неупругих потерь энергии проводилось времяпролетным способом (использовались две пролетные базы 424 и 723 мм). Эта версия установки была промежуточной. Вскоре мы ее переделали так, что смогли одновременно измерять как дифференциальные сечения рассеяния, так и спектры неупругих потерь энергии (т.е. измерять двойные дифференциальные сечения рассеяния) [40]. Так как переделанная версия включала в себя практически все элементы предыдущей установки, то мы расскажем только о последней версии установки.

Эта установка относится уже к новому поколению экспериментальных установок. В ней отсутствует подвижный детектор с очень малой апертурой. Создание такой установки стало возможным благодаря комбинированию времяпролетного метода измерения столкновительных потерь и координатно-чувствительного детектора. Использовался один из наиболее распространенных вариантов времяпролетного метода в кэВ диапазоне энергий - образование в известные моменты времени коротких пакетов частиц путем сканирования пучком поперек узкого отверстия. Регистрация угловой картины рассеяния осуществлялась координатно-чувствительным детектором на основе микроканальных пластин (МКП). Этот детектор позволял определять с большой точностью координаты каждой попавшей на него частицы (о времяпролетном методе смотри также §1.3).



**Рис. 2.1.2.** Измерительно-управляющий комплекс на основе модульной системы КАМАК.

Блок-схема этой новой экспериментальной установки представлена на рис.2.1.3. Стандартный масс-спектрометр МИ-1201 (1) используется для получения ионного пучка практически любой массы в диапазоне энергий частиц от 1 до 5 кэВ и состоит из ионного источника (1) и магнитного анализатора масс (2).



**Рис.2.1.3.** Схема экспериментальной установки: 1-ионный источник, 2-магнитный анализатор масс, 3- формирующие щели, 4 - модулирующий конденсатор, 5- камера перезарядки, 6- отклоняющие пластины, 7- камера рассеяния, 8 - монитор пучка, 9 - взаимноперпендикулярные пластины, 10- детектор, 11- генератор, 12 - время-амплитудный анализатор, 13 - аналого-цифровой преобразователь, 14- зарядочувствительный усилитель, 15 - персональная ЭВМ.

На выходе масс-спектрометра располагается секция модуляции ионного пучка (II). Она состоит из системы регулируемых щелей (3), определяющих фазовый объем ионного пучка (а, следовательно, и предельное энергетическое и пространственное разрешение установки), и плоского конденсатора (4), осуществляющего сканирование ионным пучком. На конденсатор подается переменное напряжение от стандартного генератора Г5-61, имеющего стабильную кварцевую частоту 25 мГц, что исключительно важно для обеспечения максимальной точности времяпролетных измерений. Система модуляции сделана прогреваемой, поскольку, как оказалось, ее характеристики существенно ухудшаются при попадании загрязнений на элементы системы.

Далее модулированный ионный пучок проходит через камеру перезарядки (5), где происходит превращение ионов в нейтральные частицы. Обычно используется резонансная (или квазирезонансная) перезарядка на газовой мишени. Газовая камера перезарядки имеет длину порядка 50 мм и сменные щели (входную и выходную). Также сохранена возможность перезарядки на парах щелочных металлов, позволяющая получать метастабильные атомы и молекулы. Для этой цели используется прогреваемая камера перезарядки. Неперезарядившиеся ионы удаляются из пучка при помощи отклоняющих пластин (6), на которые подается необходимая разность потенциалов.

Сформированный пучок частиц попадает в камеру рассеяния (7) длиной 25 мм. Входная диафрагма камеры рассеяния (диаметр 0,1 мм) и служит тем узким

отверстием, сканирование по которому образует короткие пакеты частиц. Входное отверстие камеры перезарядки имеет диаметр порядка 2 мм, что позволяет изучать рассеяние на углы  $\alpha \leq 0,1$  рад. Исследуемый газ напускается в камеру рассеяния через дозирующий натекаль. После камеры рассеяния на подвижной платформе расположены монитор пучка (8) на основе канального умножителя ВЭУ-6 и пластины двух взаимноперпендикулярных плоских конденсаторов (9), позволяющих осуществлять сканирование ионным пучком по детектору для определения его зонных характеристик. Рассеянные и нерассеянные частицы пролетают времяпролетную базу от камеры рассеяния до детектора, равную 2,06 м, и регистрируются детектором (10).

В качестве детектора используется изготовленная в лаборатории сборка из трех МКП диаметром 56 мм с коллектором в виде клиньев-полос. Подробное описание аналогичного детектора можно найти в работе [55]. В нашем детекторе между выходом третьей МКП и коллектором расположена сетка, сигнал с которой использовался для временной привязки момента регистрации частицы. Определение зонных характеристик детектора осуществлялось с помощью маски - регулярно расположенных отверстий диаметром порядка 100 мкм, по которым сканировался ионный пучок.

Для достижения необходимых вакуумных условий во всех секциях установки (I-УІ) применяется дифференциальная откачка. Для откачки используются только турбомолекулярные насосы. В масс-спектрометре штатные диффузионные насосы также были заменены на турбомолекулярные насосы ВМН-150. Секция перезарядки (III) откачивается насосом ВМН-500. Секция камеры рассеяния (IV) и времяпролетная секция (V) откачиваются насосом ТМН-500, также как и секция детектора (VI).

Для управления установки был создан измерительно-управляющий комплекс (VII) на основе персонального компьютера (15) и модулей КАМАК. Написано большое число управляющих программ, позволяющих проводить обработку получаемой информации в режиме реального времени с визуализацией получаемой информации. Кроме того, написан ряд вспомогательных программ для калибровки, настройки и контроля работы установки [41]. Времяпролетный анализ проводился путем преобразования интервалов времени в амплитуду с последующей оцифровкой в аналого-цифровом преобразователе (АЦП) (13). На вход "старт" преобразователя "время-амплитуда" (ПВА) (12) поступал сигнал с сетки детектора частиц, временная привязка которого осуществлялась формирователем с компенсацией влияния амплитуды входного сигнала на временной выбег. Точность привязки составляла несколько десятых нс. На вход "стоп" ПВА поступал синхроимпульс модулирующего генератора. Такая схема включения ПВА является типичной для данного варианта времяпролетного варианта анализа и позволяет избегать "холостых" запусков ПВА, поскольку для правильного анализа необходимо, чтобы среднее число частиц в "пакете" было много меньше единицы. Три сигнала с элементов коллектора усиливались зарядочувствительными усилителями (14), и также оцифровывались десятиразрядными АЦП (13).

По величинам зарядов путем простых арифметических действий [56] определяются координаты зарегистрированной частицы. Можно также осуществить отбор только тех событий, которые удовлетворяют некоторым заданным условиям (например, отбрасывая те события, суммарный заряд которых лежит в некоторых пределах). Такой отбор позволяет эффективно отстраиваться как от шумовых импульсов детектора, так и от пришедших почти одновременно двух частиц.

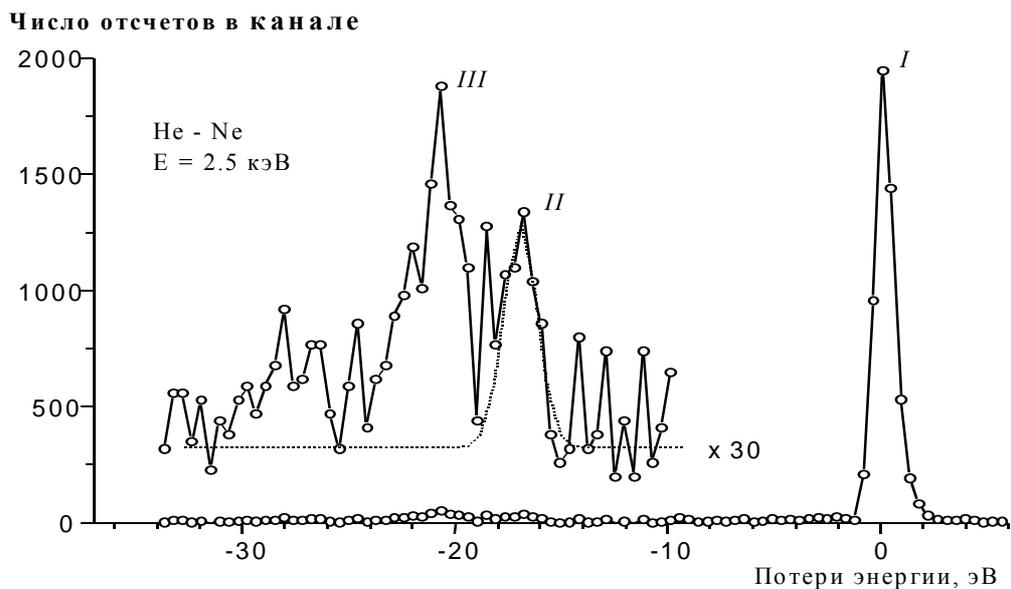
Была проведена калибровка измерительных трактов, установлена область линейности преобразования сигналов во всех трактах. Так как координаты,

вычисляемые из соотношения величин заряда, являются относительными, то необходима привязка их к реальному масштабу. Кроме того, поскольку элементы коллектора не являются идеальными, происходит некоторая деформация двухмерной картины рассеяния. Поэтому возникла необходимость в создании процедуры, которая бы преобразовывала получаемые в ходе расчета координаты к реальному виду. Обе эти проблемы были решены с помощью получения изображения от тестового объекта в виде маски, представляющей из себя фольгу с отверстиями, расположенными параллельными рядами. Для каждого отверстия были определены амплитудные распределения сигналов со всех элементов коллектора. На основании этих амплитудных распределений были подобраны оптимальные напряжения питания микроканальных пластин и сопротивлений делителя напряжений. Для этих оптимальных напряжений было измерено тестовое изображение маски и было найдено линейное преобразование, возвращающее изображение сетки к прямоугольному виду и найдены коэффициенты линейного преобразования, превращающие измеренные координаты в истинные. Таким образом, была проведена настройка детектора и разработан математический аппарат, позволяющий вычислять истинные координаты регистрируемой частицы.

Энергетическое разрешение установки определялось по полуширине пика упруго рассеянных частиц на времяпролетных спектрах. Оно изменялось в пределах  $\Delta E/E \sim (4 \div 5) \cdot 10^{-4}$  в зависимости от настройки модулирующей системы. Пространственное разрешение рассчитывалось по изображению от отдельных отверстий тестовой маски. Оно оказалось равным около 300 мкм в центре детектора и до 450 мкм на краях.

При измерениях сначала определяются пространственные и временные характеристики нерассеянного пучка частиц (координаты центра тяжести пучка и его моменты, распределение частиц пучка по энергии). Для интерпретации картины рассеяния область охватываемых детектором углов рассеяния делится на нужное число диапазонов. Определив координаты прихода рассеянной частицы, легко найти и соответствующий угловой диапазон, в который и засылается данное событие (прибавляется единица). В результате накопления достаточно большого числа событий формируется угловое распределение рассеянных частиц, от которого легко перейти к дифференциальным сечениям рассеяния.

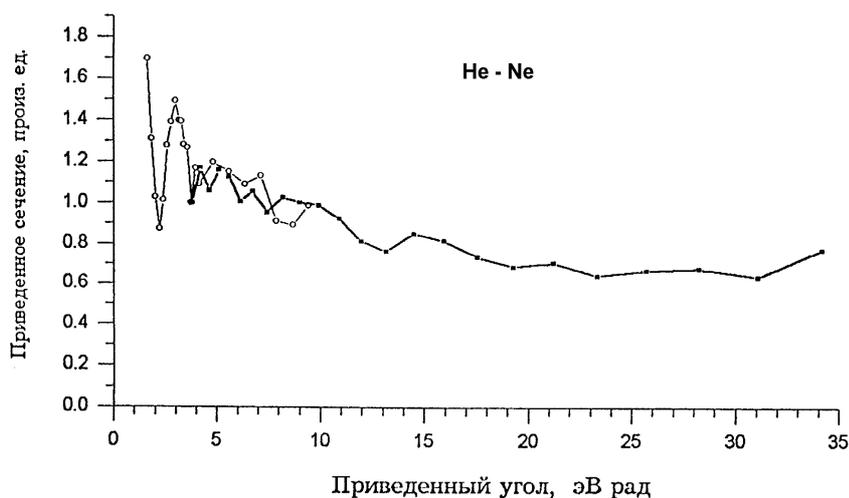
Энергетические потери, происходящие в процессе взаимодействия частиц, определялись по разности времен пролета рассеянных и нерассеянных частиц, и в каждом угловом диапазоне производится накопление соответствующих времяпролетных спектров. Для демонстрации работоспособности установки были произведены измерения двойных дифференциальных сечений рассеяния атомов He с энергией 2500 эВ на различных благородных газах. На рис.2.1.4 сплошной линией показан спектр энергетических потерь для атомов He с энергией 2,5 кэВ, рассеянных на He в диапазоне углов  $\Delta\alpha \sim 1,0 \cdot 10^{-2} - 1,5 \cdot 10^{-2}$  рад.



**Рис.2.1.4.** Спектр энергетических потерь для системы He-Ne. Энергия пучка He 2.5 кэВ. Сплошная линия - эксперимент, пунктир - аппроксимация пика II.

Крайний правый пик I соответствует упруго рассеянным частицам. Следующий слева пик II связан со столкновениями, сопровождающимися возбуждением Ne из основного  $2^1S_0$  уровня на  $2^3P_1(16,67 - 3s$  и  $16,85 - 3s')$ . Эти два перехода использовались для того, чтобы точно откалибровать шкалу потерь энергии. Было сделано предположение, что каждому переходу на спектре потерь энергии соответствует функция Гаусса с центром, соответствующим положению этого перехода и дисперсией, равной дисперсии упруго рассеянного пучка. Добиваясь наилучшего вписывания суммы двух гауссов в пик II путем варьирования шкалы энергий, мы откалибровали эту шкалу. Пунктирной линией в пике II показано наилучшее согласие вписанных гауссов. Пик III отвечает электронным переходам на более высокие уровни  $4s, \dots, 5d$ , лежащие в диапазоне энергий от 19,9 до 21,4 эВ.

На рис.2.1.5 квадратами показаны экспериментально измеренные дифференциальные сечения рассеяния  $\sigma(\theta)$  системы He-Ne для энергии 2500 эВ.



**Рис.2.1.5** Приведенные дифференциальные сечения системы He-Ne; квадраты - настоящая работа, кружки - данные работы [57].

Используются приведенные координаты  $\sigma(\theta) \cdot \theta^2$  и  $\theta \cdot E$ . На этом же рисунке кружками показано экспериментально измеренное дифференциальное сечение рассеяния из работы [57]. Поскольку в обоих случаях измерения сечений были относительными, то в точке 4 эВ-рад они были совмещены. Видно хорошее соответствие этих двух измерений.

Рассмотрим вопрос о погрешностях результатов, получаемых методом рассеяния быстрых пучков на малые углы. Когда мы обсуждаем погрешность, то необходимо рассмотреть две её составляющие. Во-первых, это погрешность измерений, т.е. погрешность экспериментальных точек. Во-вторых, это погрешность, связанная с процедурой перехода от экспериментальных точек к интересующей нас физической величине (это может быть дифференциальное сечение рассеяния, потенциал взаимодействия, вероятность перехода и т.п.). Рассмотрим в этом параграфе погрешность измерений. Вопросы, связанные с точностью восстановления потенциалов взаимодействия, мы коснемся в главе 3.

Обсудим возможные экспериментальные причины, приводящие к погрешности.

1) Немонотонность пучка. Как было отмечено в этом параграфе, разброс по энергиям в пучке, измеренный времяпролетным методом для последней версии установки не превышал  $\delta E/E \approx 5 \cdot 10^{-4}$  и определялся в основном разбросом, вносимым в пучок модулирующим генератором ( $\delta E$  – это ширина пика упруго рассеянных частиц на половине высоты, E-энергия пучка (рис. 2.1.4.)). Так что при измерении с немодулированным пучком этот разброс будет еще меньше и цифру  $5 \cdot 10^{-4}$  можно взять в качестве верхнего предела. Таким образом, при энергии пучка, равной 1 кэВ разброс энергий в пучке не превышает 0,5 эВ и не может вносить заметного влияния на точность эксперимента. Это связано с тем, что в расчетах рассеяния на малые углы входит, как правило, отношение  $V/E$  (где  $V$  – потенциал взаимодействия). Как было сказано выше, мы изучаем потенциал взаимодействия в районе 0,1 – 10 эВ и разброс по энергии в пучке будет приводить к разбросу отношения  $V/E$  не более 0,1%. Однако этот разброс дает основной вклад в погрешность измерения спектра энергетических потерь и не дает возможности изучать колебательные и вращательные переходы.

2) Массовый состав пучка. Для получения ионного пучка использовался масс-спектрометр довольно высокого класса МИ-1201, разрешающая способность

которого (измеренная на 10% высоты массового пика) не менее 1100. Это приводит к тому, что мы можем разрешить не только все изотопы благородных газов, атомов ртути, но и отличить молекулы CO от N<sub>2</sub>. Так что в отличие от экспериментов Амдура состав пучка был точно известен и не давал вклада в погрешности эксперимента.

3) Ошибки, связанные с точностью измерения давления и определения длины рассеивающей мишени из-за наличия эффузионных облаков у входного и выходного отверстий камеры рассеяния. Как мы уже видели в формулы для интегральных и дифференциальных сечений рассеяния (1.2.7) и (1.2.8) входит произведение  $n \cdot \Delta l$  ( $n$  – плотность газа в области рассеяния,  $\Delta l$  – длина области рассеяния). Истечение газа из щелей камеры рассеяния приводит к тому, что в камере рассеяния имеется некоторое распределение плотности газа и рассеяние происходит не только в камере рассеяния, но и в газовом облаке вне камеры. В работе [58] были проведены расчеты распределения плотности в эффузионных облаках для отверстий различной формы. Было показано, что рассеяние на эффузионных облаках не дает заметного вклада так как, во-первых, плотность эффузионного облака быстро спадает, а, во-вторых, в формулы для нахождения интегрального и дифференциального сечений входит произведение плотности газовой мишени на длину области рассеяния и, погрешности, связанные с неопределенностью длины области рассеяния и неточностью определения плотности газа по всей длине газовой мишени, компенсируют друг друга. Кроме того, наличие эффузионных облаков можно достаточно точно учесть в аппаратной функции [19]. Так что вклад эффузионных облаков в погрешность эксперимента является несущественным. Основной вклад в погрешность экспериментальных данных дает погрешность измерения плотности (или давления) мишени. В течение долгого времени давление в камере рассеяния измерялось ионизационной лампой (типа ЛМ-2). Погрешность измерения давления по паспортным данным составляла порядка 20%. Для некоторых измерений нами использовался электронный расходомер [51], в котором измерение давления основано на прецизионном измерении потоков рассеивающего газа через измеренные с высокой точностью щели камеры рассеяния. Погрешность измерения давления электронным расходомером по оценке авторов была в районе 1-2%.

4) Погрешность, связанная с неточностью определения угла рассеяния. На первой версии установки для измерения интегральных сечений и угловых распределений рассеянных частиц использовался подвижный детектор, который перемещался с помощью микрометрического винта. Погрешность измерения углового положения центра отверстия детектора определялась погрешностью измерения линейного положения детектора и составляла порядка 100 мкм. Так что для пролетной базы порядка 400 мм погрешность измерения углового положения детектора составляла  $\sim 0,25$  мрад. В случае использования координатно-чувствительного детектора пространственное разрешение рассчитывалось по изображениям отдельных отверстий тестовой маски. Разрешение составило около 300 мкм в центре детектора и около 450 мкм на краях. Для пролетной базы порядка 2 м это соответствовало угловому разрешению  $\sim 0,15-0,22$  мрад [41].

5) Изменение формы пучка. При измерении интегральных сечений рассеяния в зависимости от энергии имеет место изменение формы пучка при изменении энергии. В работе [59] было показано, что изменение формы пучка может приводить к погрешности измерения интегральных сечений порядка 1,5-4%. Опять же следует сказать, что при использовании аппаратной функции можно провести учет формы пучка с достаточной степенью точности, так что изменение формы пучка не будет давать заметного вклада в ошибку измерения.

б) Статистическая ошибка измерения отдельных точек как интегральных сечений, так и угловых распределений рассеянных частиц подвижным детектором составляла порядка 2%. При измерении двойных дифференциальных сечений в силу наличия модуляции пучка эта ошибка составляла ~ 5%.

Таким образом, основной вклад в погрешность измерения вносит погрешность измерения давления в камере рассеяния. Суммарная погрешность измеренных интегральных и дифференциальных сечений рассеяния зависела от способа измерения давления и менялась от 5 до 20%.

Таким образом, резюмируя результаты этого параграфа можно сказать, что нами были созданы установки, позволившие провести обширные исследования упругого и неупругого рассеяния быстрых пучков с энергией порядка нескольких кэВ на малые углы в диапазоне 1 -30 мрад.

## **§2.2. ОБ ОСОБЕННОСТЯХ ИНТЕРПРЕТАЦИИ РЕЗУЛЬТАТОВ РАССЕЙНИЯ БЫСТРЫХ МОЛЕКУЛЯРНЫХ ПУЧКОВ**

Как уже указывалось выше экспериментальное изучение рассеяния быстрых пучков на малые углы имеет свои особенности и способ обработки полученных данных может существенно отличаться от принятых при анализе результатов изучения рассеяния на тепловых пучках. Измерение потоков на малые углы заставляет учитывать конечные размеры пучка, камеры рассеяния и детектора [19]. Основные соотношения, необходимые для обработки интегральных и дифференциальных сечений рассеяния, приведены в разделе 2.2.1. При теоретическом рассмотрении и при анализе экспериментальных данных по рассеянию быстрых молекулярных пучков ранее обычно предполагалась обратностепенная или экспоненциальная зависимость потенциала взаимодействия от расстояния. Однако накопленный нами экспериментальный опыт свидетельствует о том, что указанная аппроксимация не всегда является оправданной [46]. Обсуждению этого вопроса посвящен раздел 2.2.2. В разделе 2.2.3 проводится анализ, позволяющий на основе экспериментального дифференциального сечения рассеяния сделать вывод о ходе (виде) потенциальной функции взаимодействия, которая в классическом приближении воспроизведет ход экспериментального дифференциального сечения рассеяния [47].

### **2.2.1. МЕТОДИЧЕСКИЕ ПРОБЛЕМЫ ОБРАБОТКИ РЕЗУЛЬТАТОВ ИЗМЕРЕНИЙ МЕТОДОМ РАССЕЙНИЯ БЫСТРЫХ МОЛЕКУЛЯРНЫХ ПУЧКОВ НА МАЛЫЕ УГЛЫ**

Проблема обработки результатов измерений методом рассеяния быстрых пучков на малые углы существенно отличается от аналогичных проблем с тепловыми пучками. Если при исследованиях с тепловыми пучками основной трудностью является учет распределений по скоростям в пучке и мишени, то при измерении с быстрыми пучками распределением по скоростям частиц пучка и мишени можно пренебречь. При исследовании рассеяния быстрых пучков на малые углы уже нельзя пренебречь конечными размерами пучка, апертуры детектора, длиной камеры рассеяния.

Для реального эксперимента анализ результатов (по сравнению с идеализированным) усложняется следующими факторами: а) длиной камеры рассеяния  $2L$  нельзя пренебречь; б) пучок и детектор имеют конечные размеры, обеспечивающие необходимую величину измеряемой интенсивности (во многих случаях при этом пучок

и детектор не обладают реальной симметрией); в) пучок является всегда расходящимся. Поэтому при измерении полных и дифференциальных сечений рассеяния всегда имеется некоторый набор углов, дающих вклад в измеряемую величину, которая является усредненной по этому набору. При анализе реального эксперимента в силу указанных причин возникает проблема перехода от измеренных зависимостей к истинным сечениям. Подробно проблема перехода от измеренных зависимостей к реальным сечениям рассмотрена нами в работе [19]. Здесь будут только приведены основные соотношения, которые используются в данной работе для анализа экспериментальных данных.

Куш в работе [60] ввел функцию, определяющую вероятность того, что частица, рассеянная на расстоянии  $l$  от детектора на угол  $\theta$ , будет зарегистрирована последним. Функцию  $\eta$  можно определить как отношение числа частиц, зарегистрированных детектором в случае, если все частицы пучка отклонились на угол  $\theta$ , к числу частиц, регистрируемых детектором до рассеяния.

Рассмотрим последовательно применение функции  $\eta(\theta, l)$  для случаев измерения интегрального и дифференциального сечений рассеяния. Диапазон углов, при котором  $\eta(\theta, l)$  меняет свою величину, определяется как размерами детектора и пучка, так и положением детектора относительно оси пучка. Если детектор находится на оси пучка, то эти углы заключены в интервале от 0 до  $\theta_{\max}$  ( $\theta_{\max}$  - угол, при котором частица еще может быть зарегистрирована). При измерении угловых распределений минимальный и максимальный углы рассеяния, регистрируемые детектором, зависят от угла отворота оси детектора  $\alpha$ , и поэтому функцию  $\eta(\theta, l)$  в случае измерения дифференциальных сечений рассеяния удобнее обозначать  $\eta_{\alpha}(\theta, l)$ , в отличие от  $\eta(\theta, l)$  для предыдущего случая.

Опишем связь измеряемых в пучковом эксперименте величин с начальной интенсивностью нерассеянного пучка  $I_0$  и функцией  $\eta(\theta, l)$ . Напомним, что измеряемое "полное" сечение  $Q$ , в дальнейшем называемое интегральным, следующим образом связано с ослаблением пучка:

$$\Delta I = I_0(1 - \exp(-nQ\Delta l)) \quad (2.2.1.1)$$

Будем считать при этом плотность  $n$  мишени постоянной, а интенсивность ослабленного в мишени пучка на расстоянии  $l$  от детектора равной  $I_0 \cdot A(l)$ . Из определения  $\eta(\theta, l)$  ясно, что разность  $(1 - \eta(\theta, l))$  соответствует вероятности ухода из детектора рассеянной частицы. Таким образом, число частиц, отклоняющихся на угол  $\theta$  с расстояния  $l$  при прохождении слоя рассеивающего газа  $dl$  и уходящих из детектора, по определению дифференциального сечения рассеяния равно:

$$dI = 2\pi n A(l) \sigma(\theta) \sin \theta [1 - \eta_0(\theta, l)] d\theta dl \quad (2.2.1.2)$$

Проинтегрировав  $dI(\theta, l)$  по длине пути рассеяния  $2\Delta l$  и углам от 0 до  $\pi/2$  (в случае равных масс), получим величину измеренного детектором ослабления  $\Delta I$ :

$$\Delta I = 2\pi n l \int_0^{\pi/2} \sigma(\theta) \sin \theta d\theta \int_{l_0 - \Delta l}^{l_0 + \Delta l} A(l) [1 - \eta_0(\theta, l)] dl \quad (2.2.1.3)$$

Ток, который регистрирует отклоненный на угол  $\alpha$  детектор, получается простой заменой  $(1 - \eta(\theta, l))$  на соответствующую этому положению детектора функцию  $\eta_{\alpha}(\theta, l)$ . В этом случае мы приходим к выражению:

$$I(\alpha) = 2\pi I_0 n \int_0^{\pi/2} \sigma(\theta) \sin \theta d\theta \int_{l_0 - \Delta l}^{l_0 + \Delta l} A(l) \cdot \eta_\alpha(\theta, l) dl \quad (2.2.1.4)$$

где пределы интегрирования по  $\theta$  могут быть оставлены прежними, так как вне углов, охватываемых детектором, по определению  $\eta_\alpha(\theta, l) \equiv 0$ . Обозначим:

$$f(\theta) = \frac{\int_{l_0 - \Delta l}^{l_0 + \Delta l} A(l) \eta(\theta, l) dl}{\int_{l_0 - \Delta l}^{l_0 + \Delta l} A(l) dl} \quad (2.2.1.5)$$

Тогда с учетом (2.2.1.5) соотношение (2.2.1.3) и (2.2.1.4) можно переписать в виде:

$$\Delta I = 2\pi n I_0 \int_{l_0 - \Delta l}^{l_0 + \Delta l} A(l) dl \int_0^{\pi/2} \sigma(\theta) [1 - f_0(\theta)] \sin \theta d\theta \quad (2.2.1.6)$$

$$I(\alpha) = 2\pi n I_0 \int_{l_0 - \Delta l}^{l_0 + \Delta l} A(l) dl \int_0^{\pi/2} \sigma(\theta) f_\alpha(\theta) \sin \theta d\theta \quad (2.2.1.7)$$

При слабых поглощениях ( $\approx 10\%$ )  $A(l)$ , тождественно равную единице при  $l = l_0 + \Delta l$  и равную  $K$  при  $l = l_0 - \Delta l$ , можно считать линейной функцией:

$$A(l) = \frac{1 - K}{2\Delta l} l + \frac{(1 + K)\Delta l - (1 - K)l_0}{2\Delta l}, \quad (2.2.1.8)$$

тогда

$$\int_{l_0 - \Delta l}^{l_0 + \Delta l} A(l) dl = (1 + K) \Delta l \quad (2.2.1.9)$$

Окончательная связь измеренного значения сечения и величин токов рассеянных частиц с функцией  $f(\theta)$  принимает вид:

$$Q_{mes} = 2\pi \frac{\Delta I}{2nI_0 \Delta l} = \pi(1 + K) \int_0^{\pi/2} \sigma(\theta) [1 - f_0(\theta)] \sin \theta d\theta \quad (2.2.1.10)$$

$$I(\alpha) = 2\pi(1 + K)nI_0 \Delta l \int_0^{\pi/2} \sigma(\theta) f_\alpha(\theta) \sin \theta d\theta \quad (2.2.1.11)$$

Функция  $f_\alpha(\theta)$  определяется только геометрией установки и характеристиками пучка. Поэтому она называется аппаратной функцией. При использовании  $f_\alpha(\theta)$  удается отделить влияние конкретных условий проведения эксперимента от физических причин, приводящих к рассеянию на данный угол.

Соотношение (2.2.1.10) при известной  $f_\alpha(\theta)$  более удобно для решения обратной задачи извлечения параметров потенциала из измеренных зависимостей  $\Delta I(E)$ , чем использовавшийся в работах [12], [38] метод, и свободно от ограничения случаем обратностепенного потенциала.

Соотношение (2.2.1.11) позволяет по измеренным угловым распределениям непосредственно восстановить истинное дифференциальное сечение, не задаваясь

априори его видом. С другой стороны, использование соотношений (2.2.1.10) и (2.2.1.11) открывает возможность экспериментальной проверки (путем сравнения измеренных и рассчитанных значений) теоретически вычисленных потенциалов любой сложной формы.

Конкретные способы вычисления аппаратной функции для конкретных геометрий эксперимента подробно описаны в работах [19], [61]. Фактически эти вычисления сводятся к взятию некоторого многомерного интеграла по распределению интенсивности нерассеянного пучка в плоскости детектора. Следует отметить, что в работе [19] впервые рассматривается вопрос об аппаратной функции для случая измерения дифференциального сечения рассеяния.

## 2.2.2 ФУНКЦИОНАЛЬНОЕ ОПИСАНИЕ МЕЖАТОМНЫХ КОРОТКОДЕЙСТВУЮЩИХ ПОТЕНЦИАЛОВ, ОПРЕДЕЛЯЕМЫХ ПО ДАННЫМ РАССЕЯНИЯ МОЛЕКУЛЯРНЫХ ПУЧКОВ

При определении отталкивательных потенциалов взаимодействия атом-атомных и атом-молекулярных систем на основе анализа измерений сечений рассеяния часто используют обратностепенную  $V=k/R^s$  или экспоненциальную  $V=A\exp(-\beta R)$  зависимости [13], [62]. Однако накопленный нами большой экспериментальный материал по дифференциальным сечениям рассеяния быстрых ( $E \sim 1$  кэВ) пучков атомов и молекул на различных мишенях дал основание считать, что использование указанных аппроксимаций во многих случаях не является оправданным.

Как следует из формул раздела 2.2.1, в случае чисто упругого рассеяния угловое распределение рассеянных частиц, измеренное детектором, связано с дифференциальным сечением рассеяния  $\sigma(\theta)$  и угловой разрешающей способностью детектора, характеризуемой аппаратной функцией  $f_\alpha(\theta)$ , соотношением типа свертки (2.2.1.11). При известной  $f_\alpha(\theta)$  соотношение (2.2.1.11) может использоваться для обращения измеренных зависимостей  $I(\alpha)$  в  $\sigma(\theta)$  - неявно делаемое при этом предположение относительно монотонности  $\sigma(\theta)$  может быть хорошо оправданным во многих случаях для отталкивательного взаимодействия.

На рис.2.2.2.1 в приведенных координатах  $P=\alpha^2 \cdot I(\alpha), T=\alpha \cdot E_{lab} I(\alpha)$  (по аналогии с  $\rho$  и  $\tau$ ) показаны измеренные зависимости  $I(\alpha)$  для ряда исследовавшихся атом-атомных и атом-молекулярных пар.

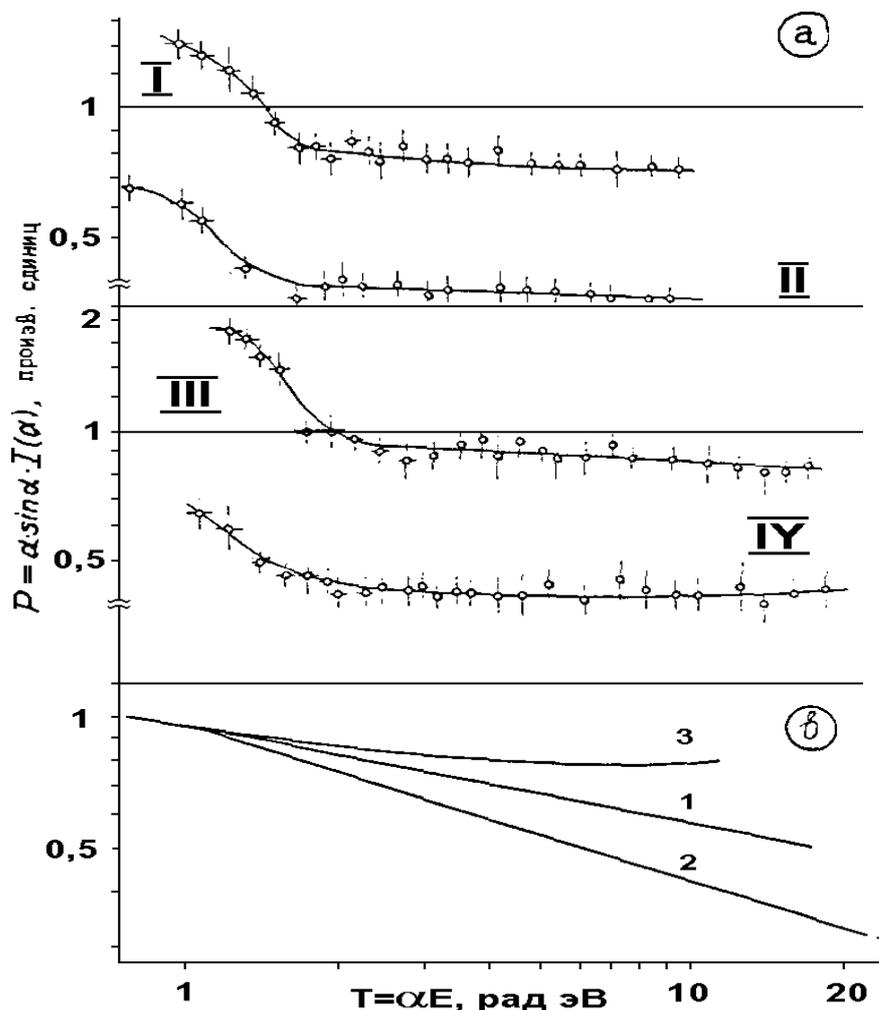
Диапазон приведенных углов  $0,5 < E < 10$  эВ рад отвечает области исследуемых энергий взаимодействия  $0,2 < V < 5$  эВ. Из рис.2.2.2.1 видно, что экспериментальные зависимости  $P(T)$  для исследованных систем He-He, He - H<sub>2</sub>, He-O<sup>+</sup>, He-Ag имеют почти горизонтальный (а иногда и медленно растущий с увеличением E) ход.

Информация о  $P(T)$  или восстанавливаемой зависимости  $\rho(\tau)$  является ключевой для получения потенциала взаимодействия  $V(R)$ . При анализе измерений дифференциального рассеяния на малые углы обычные процедуры [63] решения обратной задачи (определения  $V(R)$  по  $\sigma(\theta)$ ) предполагают знание зависимости  $\theta(b)$  вплоть до  $b=0$ , что в эксперименте невозможно получить. Поэтому более предпочтительным приемом определения  $V(R)$  является прямое вычисление свертки  $I(\alpha)$  (или приведенного дифференциального сечения  $\rho(\tau)$ ) с пробным  $V(R)$  и сравнение ее с наблюдаемой картиной рассеяния. Изменяя параметры потенциала добиваются наилучшего согласия измеренной и вычисленной  $I(\alpha)$  (минимизируя среднее квадратичное отклонение). Поскольку дифференциальное сечение рассеяния крайне

чувствительно к форме потенциала, то невозможность воспроизвести измеренную зависимость путем расчета должна восприниматься как указание на неприемлемость выбранного аналитического описания  $V(R)$ .

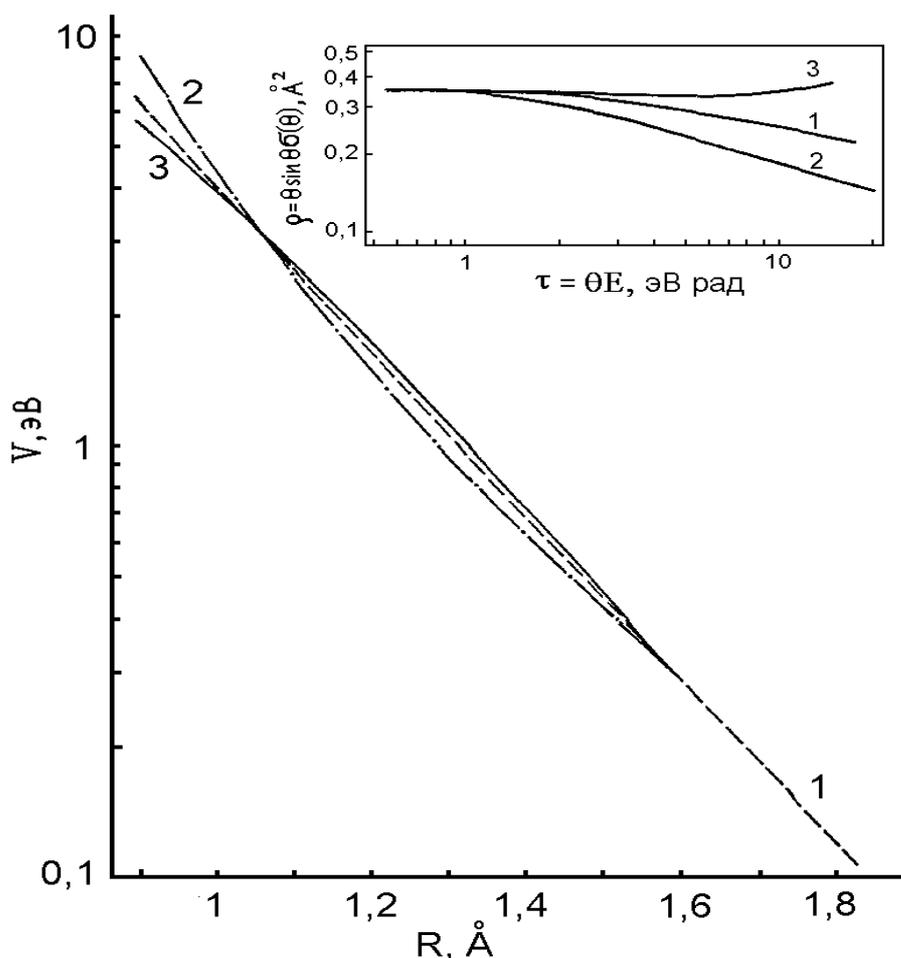
Именно такое сравнение вычисленной в классическом приближении для модельных потенциалов и измеренной картин рассеяния проводится ниже.

В качестве модельных взяты потенциалы  $V_1 = 391 \cdot \exp(-4.25 \cdot R)$  и  $V_2 = 4.53/R^{5.0}$  (здесь  $R$  в  $\text{\AA}$ , а  $V$  в эВ) и их ход показан на рис.2.2.2.2. Для получения единого хода сечений в области приведенных углов  $\tau < 1 \text{ эВ рад}$   $V_2(R)$  плавно сшит с  $V_1(R)$  в точке  $R = 1.6 \text{ \AA}$  так, что  $V_2 = 4.53 \cdot R^{-5.9}$  при  $R < 1.6 \text{ \AA}$  и  $V_1 = V_2$  при  $R > 1.6 \text{ \AA}$ . Как видно из рис.2.2.2.2 потенциалы  $V_1$ ,  $V_2$  и обсуждаемый ниже  $V_3$  (нумерация кривых та же) различаются в исследуемой области энергий взаимодействия не более чем на 10%. Как и следовало ожидать для потенциалов  $V_1$ ,  $V_2$  имеет место спадающий ход зависимости приведенного дифференциального сечения от угла рассеяния (см. врезку на рис.2.2.2.2). Этот спадающий ход сохраняется и для свертки, вычисленной по выражению (2.2.1.11) (рис.2.2.2.1).



**Рис.2.2.2.1.** Зависимости  $P(T)$ : а - измеренные кривые (He- He,  $E=400$  эВ -I;  $H_2$  - He  $E=400$  эВ -II;  $O^+$ -He,  $E=800$  эВ -III; He-Ar  $E=600$  эВ - IV). б - кривые, вычисленные с использованием потенциалов, показанных на рис.2.2.2.2. Вертикальные и горизонтальные штрихи указывают разброс экспериментальных значений  $P(T)$ .

Сравнивая вычисленные и измеренные кривые рис.2.2.2.1 видно, что характер хода этих зависимостей существенно различается (отметим, что такое различие сохраняется при любых изменениях значений параметров  $A$ ,  $K$ ,  $\beta$ ,  $s$ ). Достаточно представительный характер имеющихся данных, частично показанных на рис.2.2.2.1, позволяет заключить поэтому, что априорное использование обычных аппроксимаций - экспоненциальной и обратностепенной - не имеет достаточных оснований (и может приводить к ошибкам определения  $V(R)$  по данным рассеяния).



**Рис.2.2.2.2.** Вид модельных потенциалов в диапазоне 0,2-5 эВ и соответствующие им дифференциальные сечения (врезка): индексы “1”, “2” и “3” соответствуют потенциалам  $391 \cdot \exp(-4.52 \cdot R)$  эВ,  $4,527 R^{-5,9}$  эВ и  $233 \cdot \exp(-0.716 \cdot R^2 - 3,34 \cdot R)$ , эВ.

Дефектом обычных аппроксимаций потенциала является постоянство показателей и из общих соображений ясно, что использование, например, "плавающей" экспоненты обеспечит большую гибкость подгона расчета и измерений. Предварительный анализ показывает, что наблюдаемый характер зависимостей отвечает выпуклой кривой зависимости  $V$  от  $R$ , т.е. потенциальной кривой с отрицательной кривизной.

Именно эти соображения и использовались при конструировании модельного потенциала  $V_3(R)$ . Как и  $V_1(R)$  он имеет экспоненциальный ход при  $R > 1,6 \text{ \AA}$ , а при  $R < 1,6 \text{ \AA}$  описывается соотношением:

$$V_3(R) = 233 \cdot R \exp(-0.716 \cdot R^2 - 3.34 \cdot R) \text{ (эВ)}$$

и максимальное отклонение его от  $V_1$  в исследуемом диапазоне энергий взаимодействия не превышает 10%. Из сравнения характера вычисленной зависимости  $P_3(T)$  с измеренными на рис.2.2.2.1а и следует основной вывод настоящего раздела: для подгона экспериментальных зависимостей исследованных нами систем во многих случаях необходимо пользоваться потенциальными функциями, имеющими отрицательную кривизну зависимости  $\ln V$  от  $R$  на участке, дающем основной вклад в функцию отклонения в измеряемом угловом диапазоне; обычные аппроксимации не позволяют достичь хороших результатов. Более подробно смотри об этом в следующем разделе.

### 2.2.3. О ВЛИЯНИИ КРУТИЗНЫ ОТТАЛКИВАТЕЛЬНОГО ПОТЕНЦИАЛА ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ АТОМНЫХ ЧАСТИЦ НА ХОД УПРУГОГО ДИФФЕРЕНЦИАЛЬНОГО СЕЧЕНИЯ РАССЕЯНИЯ НА МАЛЫЕ УГЛЫ

Анализ измерений угловых распределений рассеянных частиц часто представляет большие трудности. Вопросы перехода от измеренных потоков рассеянных частиц к дифференциальным сечениям рассеяния сами по себе являются сложной задачей и рассматривались в разделе 2.2.1. Кроме того, возникает проблема нахождения потенциальной функции взаимодействия, которая в том или ином подходе (классическом или квантовом) воспроизведет ход экспериментального дифференциального сечения рассеяния. Целью настоящего раздела является рассмотрение связи поведения классического упругого дифференциального сечения рассеяния для малых углов рассеяния ( $\theta \ll 1$  рад) с ходом чисто отталкивательного потенциала взаимодействия частиц.

Прежде всего приведем соотношения, которые используются для расчетов. В дальнейшем для удобства будем рассматривать  $\theta$  и  $E$  (энергия налетающей частицы) в лабораторной системе координат. Дифференциальное сечение рассеяния выражается формулой:

$$\sigma(\theta, E) d\Omega = 2\pi b db = (b / \sin \theta) |db / d\theta| d\Omega, \quad (2.2.3.1)$$

где  $b$  -прицельный параметр,  $d\Omega$ -элемент телесного угла. Таким образом, для вычисления  $\sigma(\theta)$  необходимо знать  $\theta(b)$  и  $db/d\theta$ . В общем случае для произвольного вида потенциала взаимодействия  $V(R)$  для вычисления малых углов (когда  $\sin \theta \approx \theta$ ) отклонения удобно использовать квадратуры, полученные Меллером [64], и тогда:

$$\theta(b) = \pi / nE \sum_{j=1}^{n/2} (dV / dR) r_j, r_j = b / \cos((2j-1)\pi / 2n) \quad (2.2.3.2)$$

Оказалось, что  $n=30$  достаточно для получения точности в третьем знаке для гладких потенциальных функций. Формулы (2.2.3.1) и (2.2.3.2) позволяют вычислять дифференциальные сечения рассеяния практически для любого потенциала взаимодействия.

В качестве модельных были выбраны следующие потенциальные функции:

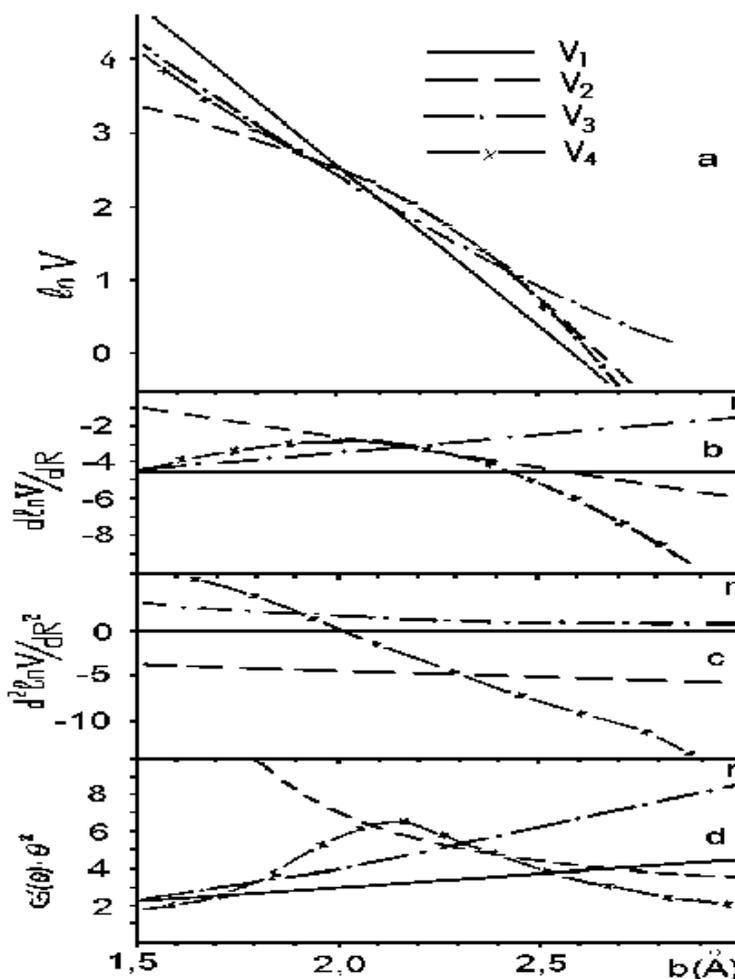
$$V_1(R) = A \cdot \exp(-\alpha \cdot R), \quad V_2(R) = B \cdot \exp(-\beta \cdot R - \gamma \cdot R^2), \quad V_3(R) = K/R^s$$

$$V_4(R) = D \cdot \exp(-\xi \cdot R + C \cdot \sin(\omega(R - \phi)) - G(R/R_0)^m)$$

Потенциалы  $V_1$  и  $V_3$  являются обычно применяемыми функциями для описания теоретических расчетов или экспериментальных данных. Выбор вида потенциальных функций  $V_2$  и  $V_4$  ясен из предыдущего раздела. Значения использованных параметров (для  $R$ - в Å,  $V(R)$  - в эВ) следующие:

$A$	$\alpha$	$B$	$\beta$	$\gamma$	$K$	$s$	$D$	$\xi$	$C$	$\omega$	$\phi$	$G$	$R_0$	$m$
$10^5$	4,5	$10^5$	-3,1	1,56	$10^3$	6,5	$10^5$	4,5	0,6	3,1	2	0,15	2,5	12

Графики потенциальных функций показаны на рис.2.2.3.1a. На рис.2.2.3.1d показан ход приведенных дифференциальных сечений рассеяния  $\sigma(\theta(b)) \cdot \theta^2(b)$  в зависимости от прицельного параметра  $b$  для всех указанных потенциалов.



**Рис.2.2.3.1.** Зависимости  $\ln V$ ,  $d \ln V / dR$ ,  $d^2 \ln V / dR^2$  и  $\sigma(\theta) \cdot \theta^2$  от прицельного расстояния  $b$ .

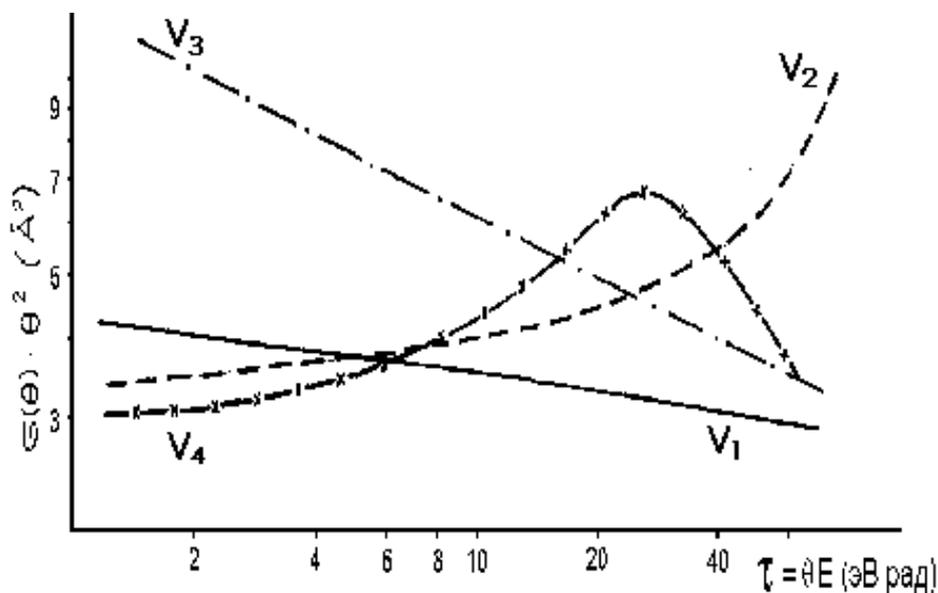
На рис.2.2.3.1 приведены зависимости  $d\ln V/dR$  и  $d^2\ln V/dR^2$  от  $R$ . Потенциалы  $V_1$  и  $V_3$  характеризуются возрастающим ( $V_3$ ) или постоянным ( $V_1$ ) ходом логарифмической производной и соответственно положительными или равными нулю значениями  $d^2\ln V/dR^2$ . Естественным является вопрос, а не будет ли потенциал, характеризуемый убыванием  $d\ln V/dR$  с ростом  $R$  (отрицательные значения  $d^2\ln V/dR^2$ ), приводить к дифференциальному сечению  $\sigma(\theta)\cdot\theta^2$  растущему с увеличением угла  $\theta$  (убывающему с ростом  $b$ ). Таким требованиям, как было показано в разделе 2.2.2, удовлетворяет потенциальная функция  $V_2$ .

При расчетах с этой функцией по формуле (2.2.3.3) принималось, что при  $R > 3.5 \text{ \AA}$   $V_2$  имеет простой экспоненциальный вид, так как в противном случае поведение потенциала становится нефизичным. Как видно из рис.2.2.3.2, приведенное дифференциальное сечение  $\sigma(\theta)\cdot\theta^2$  для функции  $V_2$  является возрастающим с увеличением угла  $\theta$  или (убывающим (рис.2.2.3.1г) с ростом  $b$ ).

На рис.2.2.3.2 приведены дифференциальные сечения рассеяния для тех же потенциальных функций в зависимости от приведенного угла  $\tau = \theta \cdot E$  (все расчеты выполнены для энергии  $E = 1000 \text{ эВ}$ ).

Как видно из рис.2.2.3.2, приведенные дифференциальные сечения для потенциальных функций  $V_1$  и  $V_3$  падают с увеличением угла  $\theta$  (или возрастают (рис.2.2.3.1г) с уменьшением  $b$ ). Как было указано в разделе 2.2.2, имеется прямая связь хода дифференциального сечения с крутизной потенциала взаимодействия. Наиболее удобно оказалось анализировать потенциальные функции в логарифмическом виде.

Возникает еще одна интересная возможность - сконструировать непрерывную потенциальную функцию, характеризуемую на разных участках различной кривизной. Функция  $V_4$  для  $R < 2 \text{ \AA}$  имеет положительную производную  $d^2\ln V/dR^2$ , а при  $R > 2 \text{ \AA}$   $d^2\ln V/dR^2 < 0$ . Дифференциальное сечение  $\sigma(\theta)\cdot\theta^2$  для  $V_4$  (рис.2.2.3.2), как и ожидалось, сначала растет, а затем убывает с увеличением  $\theta$ .



**Рис.2.2.3.2.** Зависимости приведенного сечения  $\sigma(\theta)\theta^2$  от приведенного угла  $\tau$  для различных потенциалов  $V_i$ .

Таким образом, из рассмотрения видно, что потенциальные функции взаимодействия удобнее всего анализировать на основе поведения второй

логарифмической производной  $d^2 \ln V / dR^2$ . При положительных значениях дифференциальное  $d^2 \ln V / dR^2$  сечение  $\sigma(\theta) \cdot \theta^2$  характеризуется падением с ростом  $\theta$ , а при отрицательных значениях  $d^2 \ln V / dR^2$  растет с увеличением  $\theta$ . При этом чем больше значения  $d^2 \ln V / dR^2$ , тем круче спадает  $\sigma(\theta) \cdot \theta^2$  с ростом  $\theta$ .

Как видно из рис.2.2.3.2, особенность на упругом дифференциальном сечении рассеяния может быть связана с изменением крутизны (смена знака  $d^2 \ln V / dR^2$ ) потенциальной функции взаимодействия.

Проведенный анализ позволяет на основе поведения экспериментального дифференциального сечения рассеяния в предположении упругости взаимодействия сделать вывод о ходе (виде) потенциальной функции взаимодействия, которая в классическом приближении воспроизводит ход экспериментального дифференциального сечения рассеяния. Это в значительной степени может упростить подбор пробной потенциальной функции  $V(R)$  при восстановлении сил взаимодействия на основе экспериментальных данных по дифференциальному рассеянию. С другой стороны, для известной потенциальной функции (например, рассчитанной теоретически) можно сделать качественный вывод о возможности описания с помощью этой потенциальной функции измеренной картины дифференциального сечения.

### **ГЛАВА 3. ОПРЕДЕЛЕНИЕ ЭМПИРИЧЕСКИХ ПОТЕНЦИАЛОВ МЕЖАТОМНОГО И МЕЖМОЛЕКУЛЯРНОГО ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ НА ОСНОВЕ ИЗУЧЕНИЯ ИНТЕГРАЛЬНЫХ И ДИФФЕРЕНЦИАЛЬНЫХ СЕЧЕНИЙ РАССЕЙЯНИЯ**

В конце шестидесятых и в начале семидесятых годов прошлого века в нашей лаборатории измерялись интегральные сечения рассеяния и на их основе восстанавливались потенциалы взаимодействия для различных пар взаимодействующих частиц. В дальнейшем стали использоваться измерения дифференциальных сечений рассеяния, как более чувствительных к особенностям потенциала взаимодействия. На основе этих дифференциальных сечений рассеяния проверялся теоретический потенциал взаимодействия [50], [65] или же восстанавливался, например, методом Фирсова эмпирический потенциал взаимодействия [66]. Невозможность измерения дифференциального рассеяния во всем диапазоне углов, необходимым для использования метода Фирсова напрямую, без экстраполяции дифференциальных сечений, заставил нас разработать методику совместной обработки дифференциальных и интегральных сечений рассеяния. Проблеме методики восстановления межатомного и межмолекулярного потенциала взаимодействия из данных по упругому рассеянию посвящен параграф 3.1.

В параграфе 3.2 рассматриваются результаты восстановления короткодействующих потенциалов взаимодействия для атом-атомных систем He-He, Ne-Ne и Xe-Xe [14], [53], полученных путем совместной обработки измерений дифференциальных и интегральных сечений рассеяния. Необходимость таких измерений для систем, неоднократно изучавшихся ранее [67-69 и многими другими] обусловлена возросшими требованиями к точности короткодействующих потенциалов взаимодействия, используемых, в частности, для расчета сжимаемости конденсированных газов при мегабарных давлениях [14], [53], расчете теплофизических свойств при высоких температурах [70-71].

Еще раз отметим, что проблема восстановления потенциала взаимодействия (особенно в электронвольтовом диапазоне энергий) не столь проста и связана с возможным влиянием неупругих столкновений [30], [72].

Для того чтобы окончательно дать ответ на этот вопрос мы решили начать измерения неупругих потерь энергии для частиц, испытавших столкновения. Для этой цели и была построена новая установка [40-41], подробно описанная в главе 2. На этой установке были измерены двойные дифференциальные сечения различных систем как атомарных, так и включающих молекулы. Было показано, что неупругие процессы (возбуждение электронных степеней свободы) действительно вносят заметный вклад в дифференциальное рассеяние для систем, включающих молекулы. К сожалению, энергетическое разрешение времяпролетных измерений оказалось недостаточным, чтобы разрешать колебательные, а тем более, вращательные переходы. Подробно о результатах измерений спектров неупругих потерь энергии и их учет в дифференциальном рассеянии речь пойдет в главе 6. Здесь же в параграфе 3.3 будет рассказано, как на основе учета неупругого рассеяния можно восстанавливать потенциалы упругого взаимодействия для систем, у которых имеют место неупругие переходы в исследуемом угловом диапазоне.

#### **§3.1. МЕТОДИКА ВОССТАНОВЛЕНИЯ МЕЖАТОМНОГО И МЕЖМОЛЕКУЛЯРНОГО ПОТЕНЦИАЛА ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ ИЗ ДАННЫХ ПО УПРУГОМУ РАССЕЙЯНИЮ**

Для восстановления потенциала взаимодействия из измерений зависимости интегральных сечений рассеяния от энергии [12] Амдуром был предложен способ вычисления

эффективного угла рассеяния (апертуры). Способ вычисления этого эффективного угла довольно сложен. Он может быть вычислен только для определенной геометрии установки и для определенных моделей потенциалов взаимодействия (обратностепенной и экспоненциальной) [38]. Нами был предложен универсальный способ связи интегральных сечений рассеяния и измеренных угловых распределений рассеяния с дифференциальным сечением рассеяния с помощью аппаратной функции и показан способ расчета апертуры установки независимо от используемой модели потенциала взаимодействия [19] (этот вопрос уже рассматривался в параграфе 2.3. Рассмотрим сначала процедуру восстановления потенциалов взаимодействия из интегральных сечений рассеяния, которая была использована нами для нахождения потенциалов взаимодействия в цикле работ [43], [73], [74]. Интегральное сечение рассеяния связано с ослаблением начальной интенсивности пучка  $I$ , прошедшего в мишени с плотностью  $n$  путь длиной  $\Delta l$  с помощью соотношения:

$$Q(E) = \frac{\Delta I}{I_0 n \Delta l} \quad (3.1.1)$$

Как было уже показано в параграфе 2.3 работе [19], это измеренное интегральное сечение можно в классическом приближении представить в виде:

$$Q(E) = 2\pi \int_0^{\pi/2} \sigma(\theta) [1 - f_0(\theta)] \sin\theta d\theta = 2\pi \int_0^{\infty} b [1 - f_0(\theta(b))] db \quad (3.1.2)$$

Здесь:  $\sigma(\theta)$ -дифференциальное сечение рассеяния;  $b$ -прицельный параметр; а  $f_0(\theta)$ -аппаратная функция, характеризующая эффективность регистрации частиц, рассеянных на угол  $\theta$  детектором, расположенным на оси пучка.

В общем случае, когда потенциалы взаимодействия являются анизотропными, выражение (3.1.2) принимает вид:

$$Q(E) = \frac{1}{8\pi} \int_0^{\infty} db \iint_{\varphi} d^2\varphi_i \iint_{\chi} b(\theta, E, \varphi_i, \chi_i) [1 - f_0(\theta(b))] d^2 \cos\chi_i, \quad (3.1.3)$$

где  $\varphi_i, \chi_i$  -углы, описывающие относительную ориентацию осесимметричных молекул относительно плоскости, перпендикулярной вектору относительной скорости сталкивающихся частиц.

Как уже указывалось в главе 1, довольно часто для учета несферичности используется модель нецентрального поля в виде суммы вкладов силовых центров, помещенных в точках расположения атомов молекулы и принимаемых тождественными (так называемая аддитивная или гантельная модель):

$$V(r, r_e) = \sum_{i \neq j} V(r_{ij}) \quad (3.1.4)$$

Здесь  $r$  – расстояние между центрами тяжести молекул,  $r_e$  – равновесное расстояние между атомами в молекуле,  $r_{ij}$  – расстояние между  $i$ -ым атомом одной молекулы и  $j$ -ым атомом другой. Из выражения (3.1.3) видно, что для вычисления  $Q(E)$  необходимо для данного  $b$  найти угол отклонения  $\theta(b, \varphi_i, \chi_i, E)$ . В приближении малых углов ( $\theta \ll 1$ ), которое реализуется у нас, угол отклонения  $\theta$  выражается формулой:

$$\theta = \frac{\Delta P_{\perp}}{P_0}, \quad (3.1.5),$$

где  $\Delta P_{\perp}$  - поперечный,  $P_{\parallel}$  - продольный импульс, определяемый относительной скоростью. Таким образом, для нахождения  $\theta(b, \varphi_i, \chi_i, E)$  необходимо вычислить  $\Delta P_{\perp}(b, \varphi_i, \chi_i, E)$ . Для этого используется следующий метод, предложенный Б.М.Смирновым.

При расчете угла отклонения на плоскость, нормальную вектору относительной скорости, проектируются взаимодействующие молекулы; тогда расстояния между проекциями атомов на этой плоскости окажутся прицельными расстояниями для рассеяния атомов налетающей молекулы мишени. Эти расстояния легко связать с  $r_e$  -равновесным межатомным расстоянием в молекуле и прицельным расстоянием, соответствующим движению относительно центра тяжести налетающих молекул. Векторная сумма импульсов, получаемых атомами налетающей молекулы при взаимодействии с атомами молекулы мишени, позволяет определить угол отклонения для заданной относительной ориентации взаимодействующих частиц.

Как правило, для исследованных систем аддитивный потенциал характеризуется межатомным отталкиванием, для которого обычно принималась экспоненциальная зависимость от межатомного расстояния:

$$V(r) = A \exp(-\alpha r) \quad (3.1.6)$$

Выражение (3.1.3) вычислялось методом Монте-Карло на ЭВМ. Параметры  $A$  и  $\alpha$  выбирались таким образом, чтобы среднее квадратичное отклонение вычисленной зависимости  $Q(E)$  и измеренной кривой было минимальным. Как правило, статистическая точность вычисления интеграла (3.1.3) составляла 1%, при этом число требуемых траекторий было порядка  $10^4$ . Примеры подгона расчета и эксперимента будут представлены в параграфе 3.2.

Для практического использования необходимо иметь усредненный по всем ориентациям сферически-симметричный потенциал:

$$\bar{V}(r, r_e) = \frac{1}{(4\pi)^2} \iint_{(\varphi)} \iint_{(\chi)} V(r, r_e) \sin^2 \chi_i d^2 \chi_i d^2 \varphi_j \quad (3.1.7)$$

На начальном этапе измерения дифференциальных сечений рассеяния (угловых распределений рассеянных частиц) рассчитывались угловые распределения рассеянных частиц по теоретическим потенциалам взаимодействия, которые сравнивались с измерениями. На основе такого сравнения делалось заключение о справедливости этого теоретического потенциала. Формула связи измеряемого углового распределения с дифференциальным сечением рассеяния [19] выражается как:

$$I(\alpha) = c \int \sigma(\theta) f_{\alpha}(\theta) \sin \theta d\theta = c \int b f_{\alpha}(b) db, \quad (3.1.8)$$

здесь  $f_{\alpha}(\theta)$  – аппаратная функция, характеризующая эффективность регистрации частиц, рассеянных на угол  $\theta$ , детектором, расположенным на угле  $\alpha$ ,  $c$  – экспериментальная константа. Можно также, используя формулу (3.1.8.) подбирать параметры модельного потенциала так, чтобы с некоторой точностью воспроизвести измеряемую картину рассеяния. Примеры такого подбора можно найти в работах [18], [50].

Наиболее заманчивым было бы прямое восстановление потенциала взаимодействия из измеренных интегральных или дифференциальных сечений рассеяния. О.Б.Фирсов [75] в 1953 г. впервые показал, что для случая монотонного потенциала потенциальная функция может быть восстановлена из данных по дифференциальным сечениям для фиксированной энергии  $E$ .

Традиционно этот подход использовался в случае, когда были известны абсолютные значения дифференциальных сечений рассеяния на углы от 0 до  $\pi$ . Однако в методе бы-

стрых пучков дифференциальные сечения измеряются в очень ограниченном диапазоне углов рассеяния, причем рассеяние на малые углы может быть сильно искажено аппаратными эффектами. В ранних работах, основанных на методе быстрых пучков [66], процедура Фирсова использовалась в традиционной постановке, что требовало экстраполяции экспериментальной зависимости  $\sigma(\theta)$  для  $b \rightarrow 0$ . Мы предложили модифицированный подход восстановления потенциала взаимодействия, лишенный отмеченного недостатка.

Как было указано выше, измеряемыми величинами в экспериментах по рассеянию молекулярных пучков высоких энергий на малые углы являются дифференциальные  $\sigma(\theta)$  и интегральные  $Q(E)$  сечения рассеяния. Нами было предложено измерять интегральные сечения рассеяния на углы  $\theta$ , большие некоторого угла  $\theta_{ins}$  угол  $\theta_{ins}$  выбирать из соображения, чтобы для него уже не сказывались аппаратные эффекты (т.е. диаметр отверстия детектора был значительно больше изображения пучка в плоскости детектора). В таком случае аппаратная функция  $f_0(\theta)$  – будет равна 1 для углов  $\theta \leq \theta_{ins}$  равна 0 для углов  $\theta > \theta_{ins}$ . Будем считать, что выполняются следующие условия 1) рассеяние адиабатично (т.е. рассмотрение можно проводить в рамках парного потенциала взаимодействия); 2) рассеяние описывается классической механикой (область квантовых дифракционных эффектов для углов  $\theta < 10^{-3}$  рад существенна только при рассмотрении легких систем типа He - He); 3) для описания рассеяния достаточно приближения прямолинейных траекторий. Для удобства будем использовать приведенные величины дифференциальных сечений  $\rho$  и углов  $\tau$ . ( $\rho(\tau) = \sigma(\theta, E) \cdot \theta^2$  и  $\tau = \theta \cdot E$ ). В этих переменных связь дифференциального сечения и прицельного параметра выражается соотношением:

$$\rho(\theta) = \left| \frac{d(b^2/2)}{d \ln \tau} \right| \quad (3.1.9).$$

Интегральное сечение рассеяния для монотонной зависимости  $b(\tau)$

$$Q(\tau_0) = \pi b^2(\tau_0), \quad (3.1.10),$$

где  $\tau_0 = \theta_{ins} E$ . Уравнение (3.1.9) выражает важный принцип соответствия, из которого следует, что в пределе малых углов и больших энергий приведенное сечение становится функцией только одной переменной  $\tau$ . Поэтому экспериментальные данные, полученные при различных энергиях  $E$ , в случае, если взаимодействие чисто упругое, сводятся в приведенных переменных  $\rho$ ,  $\tau$  к единой зависимости  $\rho(\tau)$ , что повышает точность и надежность экспериментальных измерений.

В приближении малых углов (прямолинейность траектории) функция отклонения  $\tau$  определяется формулой (3.1.5), которую перепишем в виде:

$$\tau = E\theta = E \frac{\Delta P_{\perp}}{P_0} = -1/2 \int_0^{\infty} \frac{b}{r} \frac{dV}{dr}(r) dz, \quad (3.1.11)$$

здесь  $z$  - координата поступательного движения частицы;  $r^2 = b^2 + z^2$ .

Таким образом, функция отклонения  $\tau(b)$  связана с потенциалом  $V(r)$  простым соотношением

$$\tau(b) = - \frac{d}{db} \int_b^{\infty} \frac{V(r)rdr}{\sqrt{r^2 - b^2}}, \quad (3.1.12),$$

которое формально можно обратить (обращение Абеля [76]):

$$V(r) = 2/\pi \int_r^\infty \frac{\tau(b)}{\sqrt{b^2 - r^2}} db \quad (3.1.13)$$

Это частный случай формулы Фирсова в приближении малых углов рассеяния и больших энергий. Таким образом, задача заключается в восстановлении  $\tau(b)$  во всем диапазоне  $b > b_{\min}$ .

В эксперименте измеряются величины  $\rho(\tau)$ , а для обращения требуется  $\tau(b)$ . Такая зависимость находится численным решением обыкновенного дифференциального уравнения первого порядка (3.1.9)

$$b_i^2 = b_k^2 - 2 \int_{\tau_k}^{\tau_i} \rho(\tau) d \ln \tau \quad (3.1.14)$$

Значения  $b_1(\tau_i)$  могут быть найдены из интегральных сечений рассеяния  $Q$ .

$$b_1^2 = Q(\tau_1) / \pi \quad (3.1.15)$$

Отметим, что теоретически достаточно было бы ограничиться измерениями интегральных сечений. Однако последние определяются как малая разность двух больших чисел, измеренных с некоторой ошибкой. Поэтому интегральные сечения не позволяют получить надежное описание "вида" потенциала. Кроме того, на практике затруднено определение интегральных сечений на больших углах. Поэтому оптимальным является совместное использование интегральных и дифференциальных измерений. Именно такой подход мы используем в настоящей работе. Он позволил значительно повысить точность эмпирических короткодействующих потенциалов.

Погрешности определения потенциалов, как уже обсуждалось во второй главе, складываются из экспериментальных погрешностей, учитывающих погрешности определения плотности мишени, длины мишени и т.п., а также из погрешностей метода восстановления потенциала взаимодействия из экспериментальных данных.

Ослабления влияния аппаратных эффектов мы добились следующим образом. При измерении дифференциальных сечений рассеяния - использованием точечного детектора и ограничением рассмотрения рассеяния на углы, при которых конечная ширина пучка не оказывает заметного влияния. При измерении интегральных сечений, в отличие от более ранних работ, ширина окна детектора выбиралась в несколько раз превышающая характерный поперечник пучка. Таким образом, мы фактически измеряли полное сечение рассеяния на угол больше некоторого заданного угла  $\theta_{ins}$ .

Математическое моделирование (методом Монте-Карло) показало [77], что для описанной установки неидеальность условий эксперимента (конечная ширина пучка, конечная длина рассеивающей мишени и т.п.) дает вклад в интегральные сечения на уровне нескольких процентов и легко учитывается как малая поправка.

Из данных углового рассеяния функция отклонения быстрых пучков  $\tau_f(b)$  восстанавливалась численно в ограниченном диапазоне и  $b_1 \leq b \leq b_2$ , определяемом экспериментальными условиями. Для  $b > b_3$  потенциал взаимодействия выбирался на основе анализа данных рассеяния тепловых пучков, далее вычислялась функция отклонения  $\tau_f(b)$ . В области  $[b_2, b_3]$  данные для функции отклонения отсутствуют, поэтому для этой области можно использовать гладкую интерполяцию:

$$\tau(b) = \tau_f(b)\xi(b) + \tau_i(b)[1 - \xi(b)], \quad (3.1.16)$$

где  $\xi(b)$  - переключающая функция. Для нее принималось:

$$\xi(b) = \{1 + \exp([b - b_0] / \Delta_0)\}^{-1}, \quad (3.1.17)$$

где  $b_0$  и  $\Delta_0$  - подгоночные параметры.

### §3.2. ПОТЕНЦИАЛЫ МЕЖАТОМНОГО ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ ДЛЯ СИСТЕМ He-He, Ne-Ne, Xe-Xe

Остановимся более подробно на рассмотрении системы He-He. Этой системе посвящено большое число как экспериментальных [12], [13], [67], [78], [79], так и теоретических работ и работ по восстановлению потенциалов взаимодействия по разнородным данным [69], [80-85] и поэтому она может считаться модельной системой для проверки методики восстановления потенциала взаимодействия. Более того, в одной из последних работ, посвященных потенциалу взаимодействия He-He [69], авторы высказывают мнение, что для He точность расчетов транспортных свойств и вириальных коэффициентов на основе точного неэмпирического потенциала на основе квантово-механических расчетов сейчас превышает точность наилучших измерений. И авторы [69] предлагают использовать этот неэмпирический потенциал для того чтобы калибровать экспериментальные установки. Следует подчеркнуть, что этот вывод относится только к взаимодействию частиц в области тепловых энергий.

Результаты наших измерений дифференциальных  $\rho(\tau)$  ( $E=600$  эВ) и интегральных  $Q(E)$  ( $E=800-2000$  эВ) сечений рассеяния для системы He-He приведены на рис. 3.2.1.

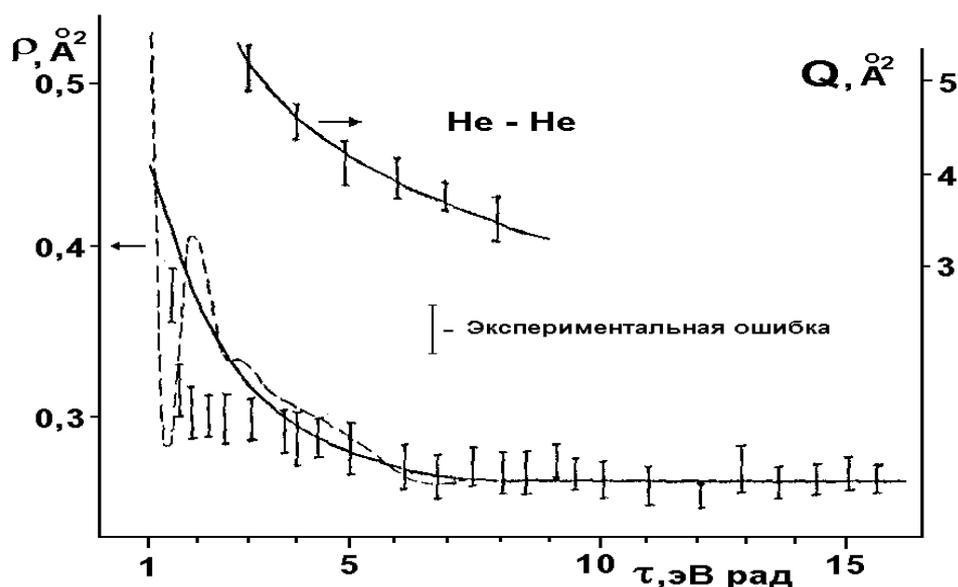


Рис.3.2.1. Приведенные дифференциальные сечения  $\rho(\tau)$  при  $E=600$  эВ и интегральные  $Q(\tau > \tau_0)$  сечения рассеяния атомов гелия в основном состоянии. Сплошные кривые классические расчеты по восстановленному потенциалу, пунктир - квантомеханические расчеты.

Перекрывание угловых интервалов измерений  $\rho(\tau)$  и  $Q(E)$  позволяет, используя результаты параграфа 3.1, восстановить функцию отклонения  $\tau(b)$  во всем угловом диапазоне измерений. Как уже отмечалось в параграфе 3.1, для построения необходимой функции отклонения во всем диапазоне расстояний сближения следует привлечь данные о потенциале

взаимодействия, полученные из измерений в тепловом диапазоне энергий, а функция отклонения рассчитывалась по стандартной формуле в классическом приближении.

Так как вычисленная по потенциалу теплового диапазона функция отклонения не перекрывается с функцией, найденной из данных высокоэнергетического рассеяния, единая функция отклонения для всего диапазона энергий взаимодействия была получена с использованием сшивающей функции (3.1.16) в области расстояний сближения 1,35–1,6 Å.

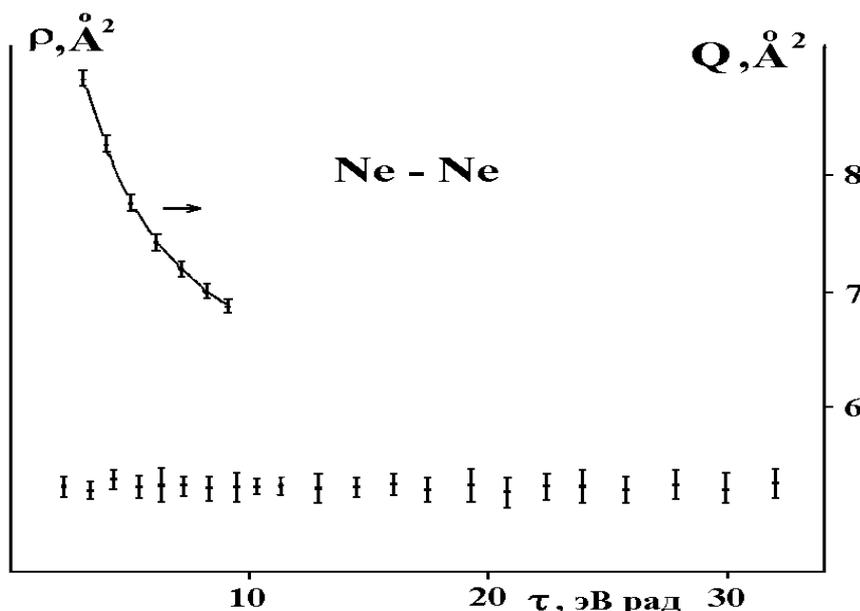
Для задания потенциала в тепловой области был проведен сравнительный анализ потенциалов, представленных в работах [67], [80], [83], [84]. В качестве такой потенциальной функции в тепловой области был выбран потенциал из работы [67].

Единая функция отклонения  $\tau(b)$  использовалась для обращения, т.е. численного определения потенциала по формуле (3.1.13). Для расчета интеграла (3.1.13) использовалась Гаусс-Меллеровская квадратура. В диапазоне межатомных расстояний  $r=0,6 - 1,35$  Å значения потенциала определяются данными высокоэнергетических измерений. Точность значений потенциалов оценивается в этом диапазоне  $r$  в 5-10%. Эта точность связана в основном с погрешностью определения плотности газовой мишени. При  $r > 1,6$  Å значения энергий естественно соответствуют потенциалу работы [67]. В промежуточной области  $1,35 < r < 1,6$  Å приводимые значения  $V(r)$  соответствуют интерполированной функции отклонения. Численные значения для системы Ne-Ne, соответствующие данным по высокоэнергетическому рассеянию, хорошо описываются экспоненциальным потенциалом:

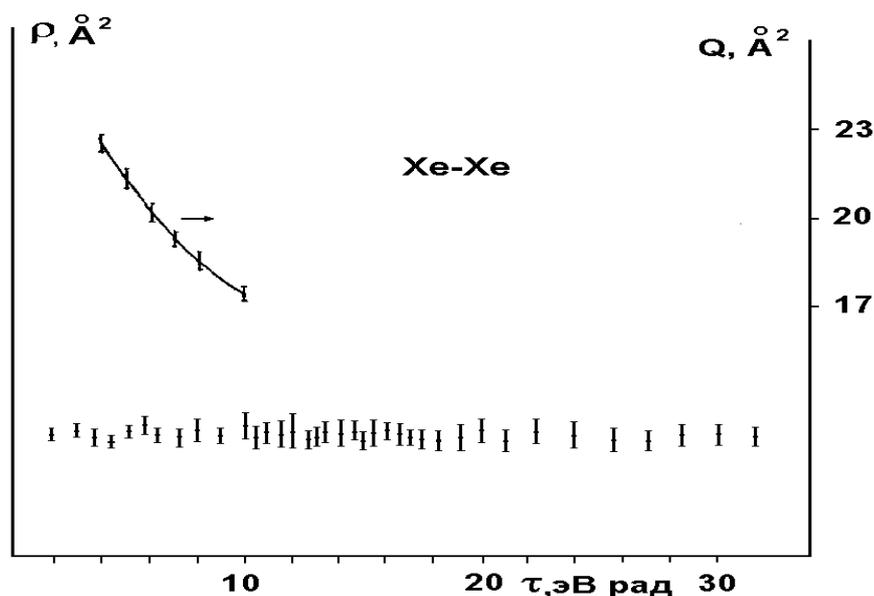
$$V=224,71 \cdot \exp(-4.16 \cdot r), \tag{3.2.1}$$

здесь  $V$  в эВ, а  $r$  в Å. Этот потенциал справедлив в диапазоне  $R$  0,8 – 2 Å. Погрешность этого потенциала составляет  $\pm 10\%$ .

Эффективность процедуры восстановления видна из рис.3.2.1, где измеренные значения  $\rho(\tau)$  и  $Q(E)$  сравниваются с классическим (сплошная линия) и квантовомеханическим (пунктир) расчетом тех же величин по найденному потенциалу. Аналогичные процедуры восстановления потенциала были проделаны и для систем Ne-Ne и Xe-Xe. Соответствующие дифференциальные сечения были измерены нами и представлены на рис.3.2.2, 3.2.3.



**Рис.3.2.2.** Приведенные дифференциальные сечения и интегральные сечения системы Ne -Ne в основном состоянии.



**Рис.3.2.3.** Приведенные дифференциальные сечения и интегральные сечения системы Хе - Хе в основном состоянии.

В качестве потенциальных функций в тепловой области использовались потенциалы из работ [86] и [87], соответственно, для систем Ne-Ne и Хе-Хе. Для системы Ne-Ne численные результаты хорошо описываются формулой:

$$V=4551 \cdot \exp(4.76 \cdot r) \tag{3.2.2}$$

Этот потенциал справедлив в диапазоне  $R$  1.25 – 2.25 Å. Погрешность этого потенциала составляет ±10%.

Численные результаты для системы Хе-Хе хорошо описываются формулой:

$$V=4868 \cdot \exp(-2.84 \cdot r) \tag{3.2.3}$$

Этот потенциал справедлив в диапазоне  $R$  2.25 – 3.75 Å. Погрешность этого потенциала составляет ±10%. В этих двух формулах  $V$  и эВ, а  $r$  в Å.

На рис.3.2.4 проводится сравнение результатов настоящей работы с некоторыми независимыми эмпирическими потенциалами и кантовомеханическими расчетами. На нем цифрой 1 показаны результаты настоящей работы, 2- потенциал, полученный в работе [13] по измерениям интегральных сечений на быстрых пучках, 3 – данные работы [88], также полученные из интегральных сечений рассеяния на быстрых пучках, 4 – квантово-механический расчет на основе теории самосогласованного поля первого порядка [89], 5 – квантово-механический расчет на основе двухцентрковой молекулярной волновой функции [85], 6 - результаты измерений дифференциальных сечений на быстрых пучках [2], 7 - результаты моделирования отталкивательных потенциалов на основе распределения электронной плотности атомов [84], 8 - результаты расчетов методом молекулярных орбиталей (параметры этого потенциала даются в работе [13]).

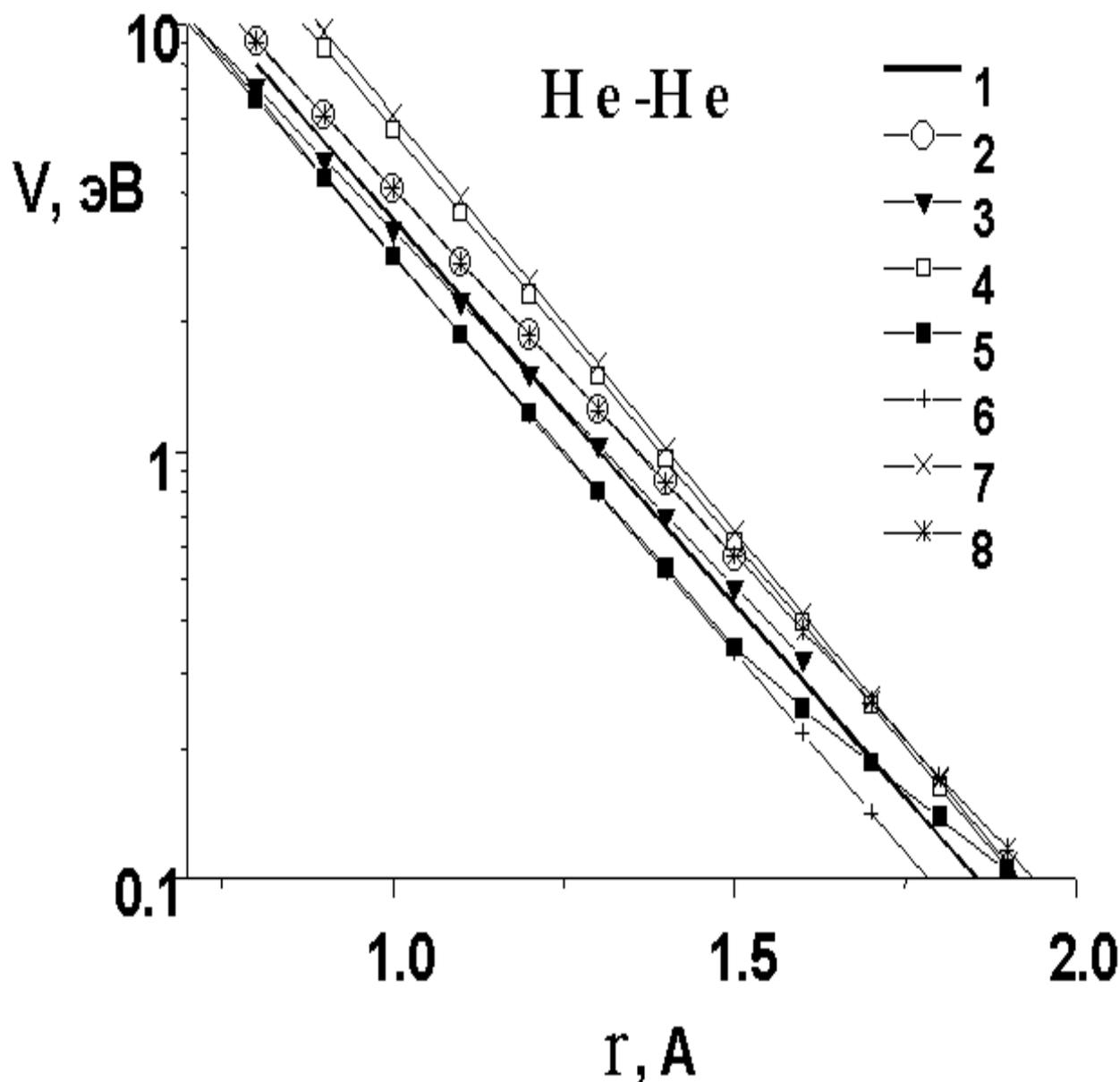


Рис.3.2.4. Потенциалы взаимодействия системы He-He: 1- настоящая работа, 2- [13], 3- [88], 4- [89], 5-[85], 1980, 6 – [2] 7- [84], 8 – данные квантово- механических расчетов (из работы [13]).

На рис.3.2.5 проводится сравнение потенциала взаимодействия системы Ne-Ne, полученного в настоящей работе, с некоторыми другими экспериментальными и теоретическими потенциалами.

На рис.3.2.5 цифрой 1 показан потенциал, полученный в настоящей работе, 2- полученный в работе [2] методом измерения интегральных сечений рассеяния на быстрых пучках, 3- полученный в работе [90] методом измерения интегральных сечений рассеяния на быстрых пучках, 4-полученный Ролом с сотрудниками из измерений интегральных сечений рассеяния на быстрых пучках (приводится в работе [91]), 5 – квантово-механический расчет на основе теории самосогласованного поля первого порядка [89]. Различие указанных потенциалов лежит, как правило, в пределах экспериментальной точности.

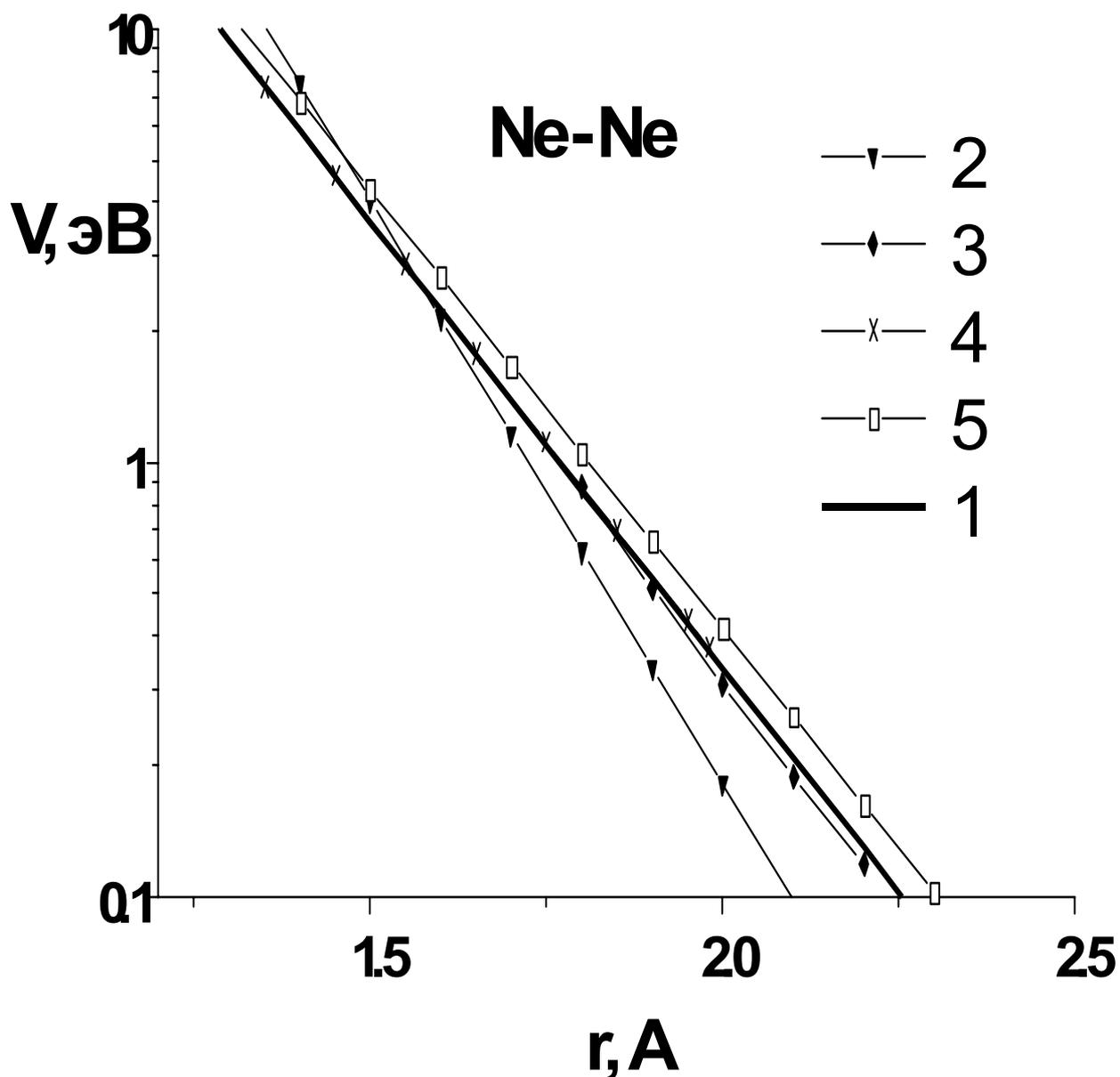


Рис.3.2.5. Потенциалы взаимодействия системы Ne-Ne: 1- настоящая работа, 2- [2], 3-[90], 4-[91], 5-[89]

Для системы Хе-Хе сравнение результатов настоящей работы с другими экспериментальными и теоретическими потенциалами показано на рис.3.2.6. Здесь цифрой 4 показан потенциал, полученный в настоящей работе, 2- полученный в работе [92] методом измерения интегральных сечений рассеяния на быстрых пучках, 3 - результаты моделирования отталкивательных потенциалов на основе распределения электронной плотности атомов [84], 4-из измерений интегральных сечений рассеяния на быстрых пучках Rol (ссылка в работе [87]).

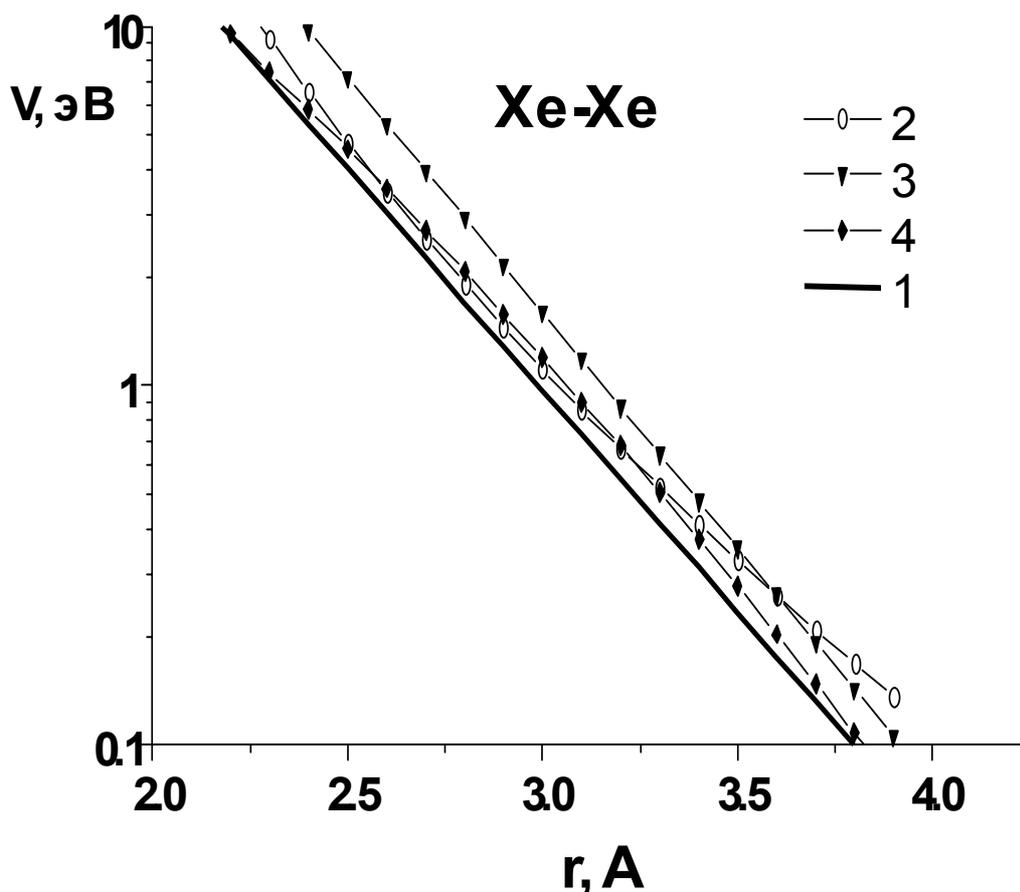


Рис.3.2.6. Потенциалы взаимодействия системы Xe-Xe: 1-настоящая работа, 2-[92], 3-[84], 4-[87]

Таким образом, мы видим, что имеющиеся экспериментальные отталкивательные потенциалы взаимодействия отличаются друг от друга, хотя если учесть погрешности этих потенциалов, то отличие будет не столь сильным. Следует отметить, что данные по измерениям на тепловых пучках и макроскопические результаты (вириальные коэффициенты, транспортные свойства), к сожалению, не могут позволить сделать вывод о справедливости тех или иных экспериментальных отталкивательных потенциалах и, поэтому требуются дополнительные исследования.

Дополнительную проверку отталкивательных потенциалов можно провести, сравнивая расчеты свойств вещества при высоких давлениях с результатами экспериментального изучения. Такое сравнение проводится в главе 7.

Полученные потенциалы взаимодействия могут использоваться для расчета свойств вещества в экстремальных условиях и при сильном нарушении термодинамического равновесия. Кроме того, указанные потенциалы взаимодействия могут служить тестом для квантово-механических расчетов поверхностей потенциальной энергии.

### §3.3. ЭФФЕКТИВНЫЕ ПОТЕНЦИАЛЫ МЕЖМОЛЕКУЛЯРНОГО ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ СИСТЕМ He-N<sub>2</sub>, N<sub>2</sub>-N<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>

Взаимодействие двухатомных молекул в основных квантовых состояниях описывается в адиабатическом приближении поверхностями потенциальной энергии (ППЭ), включающими зависимость не только от расстояния между центрами тяжести сталкивающихся

молекул  $r$ , но и от расстояния между атомами в молекуле (колебательная переменная) и от ориентации оси молекулы в пространстве (вращательные переменные).

Для нахождения ППЭ данных о дифференциальных  $\sigma(\theta)$  и интегральных  $Q(E)$  сечениях рассеяния, усредненных по колебательной и вращательной переменной, недостаточно. Поэтому можно восстановить только некоторый эффективный сферически-симметричный потенциал взаимодействия  $V(r)$ , который можно рассматривать как усредненную ППЭ.

Такой эффективный сферически-симметричный потенциал позволяет рассматривать взаимодействие между молекулами аналогично взаимодействию между атомами благородных газов. В ряде приложений (там, где эффекты внутренних степеней свободы не являются существенными) такое модельное приближение вполне оправдано.

В работе [93] (см. также главу 5 (§5.1)) на основе вычислительного эксперимента показана допустимость использования такого эффективного потенциала  $V(r)$  при расчетах кинетических свойств даже в случае взаимодействия атомов с незамкнутыми оболочками, описываемых набором ППЭ.

Итак, исходя из модели эффективного сферически-симметричного потенциала взаимодействия  $V(r)$ , были поставлена задача восстановления такого потенциала из измерений дифференциальных и интегральных сечений рассеяния систем He-N<sub>2</sub>, N<sub>2</sub>-N<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>-H<sub>2</sub> аналогично рассмотрению атом-атомных систем в параграфе 3.2. Однако при рассмотрении систем с участием молекул имеются существенные отличия от случая рассеяния атомов.

В параграфе 3.1 было обосновано, что для восстановления потенциала взаимодействия необходимо знание как упругих дифференциальных, так и абсолютных интегральных сечений рассеяния. Дифференциальные сечения для рассматриваемых систем, как уже упоминалось, были получены на первой версии установки. Если сравнить рис.3.2.1, на котором изображено дифференциальное сечение рассеяния для системы He - He, с рис.3.3.1, соответствующим системе He - N<sub>2</sub>, то явно видно наличие радужного выброса в угловом диапазоне приведенных углов рассеяния  $10 \div 20$  эВ рад на дифференциальном сечении рассеяния для системы содержащей молекулу (аналогичные выбросы характерны и для других систем, включающих молекулу [72]). Происхождение такой особенности было непонятно. Выдвигались различные гипотезы ее происхождения [94](см. более подробно главу 5). Аналогичное поведение дифференциального сечения рассеяния было обнаружено и для системы N<sub>2</sub>-N<sub>2</sub> (рис.3.3.2).

Только измерение двойных дифференциальных сечений рассеяния (по углу и энергии) [54] позволило найти истинную причину возникновения этой особенности – влияние электронного возбуждения молекул (хотя такое предположение мы выдвигали много раньше [30]). Поэтому дифференциальное сечение рассеяния, которое измерялось в экспериментах по рассеянию быстрых пучков на малые углы, представляет собой сумму упругого и неупругого дифференциальных сечений. Для оценки вклада электронных переходов в полное дифференциальное сечение рассеяния времяпролетным методом определялся спектр неупругих потерь энергии [95].

Для системы He-N<sub>2</sub> на новой установке с координатно-чувствительным детектором для энергии 2500 эВ были проведены измерения двойных дифференциальных сечений, результаты которых представлены на рис. 3.3.3 и 3.3.4 [95]. На рис.3.3.3 показаны сглаженные измеренные дифференциальные сечения рассеяния – суммарные, упругие, неупругие (используются приведенные координаты  $\tau = \theta \cdot E$  и  $\rho = \sigma \cdot \theta^2$ , где  $\sigma$  дифференциальные сечения), а на рис.3.3.4 – спектры потерь энергии для некоторых выделенных угловых диапазонов для системы He-N<sub>2</sub> при энергии столкновения 2500 эВ. Цифрой I обозначены упруго рассеянные частицы, а цифрой II и III частицы, испытавшие неупругие столкновения и потерявшие кинетическую энергию. Именно измеренные двойные (по углу и энергии) дифферен-

циальные сечения рассеяния позволяют разделить упругие и неупругие сечения, показанные на рис.3.3.3 [41].

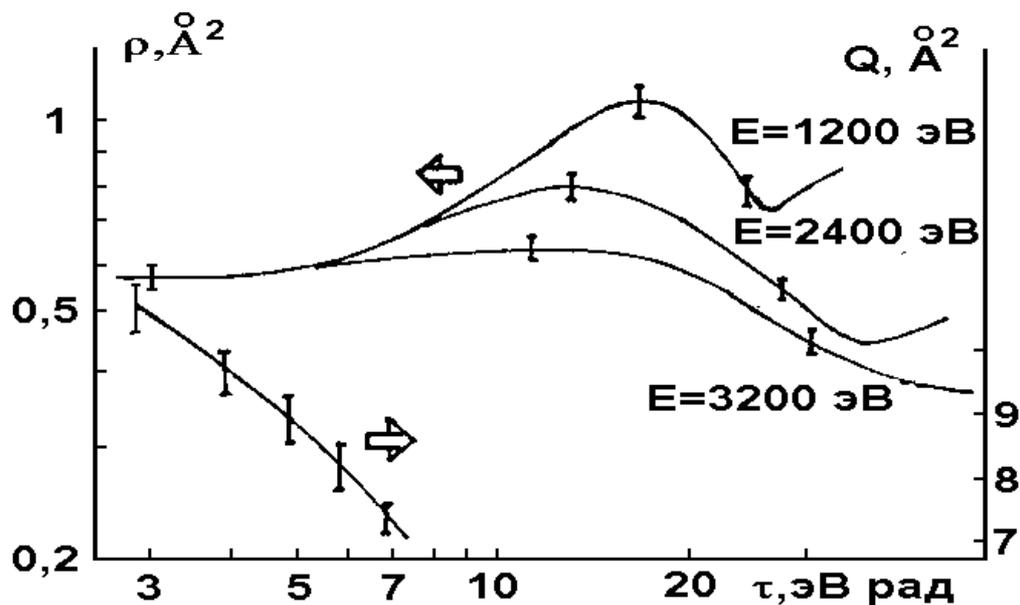


Рис.3.3.1. Приведенные дифференциальные и интегральные сечения рассеяния системы He-N<sub>2</sub>.

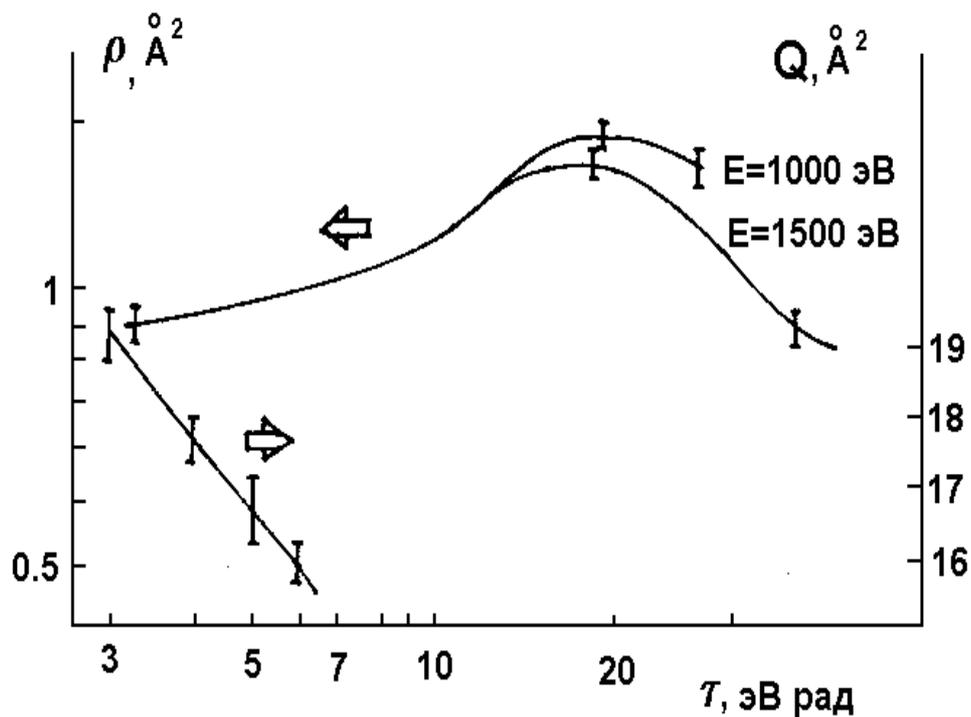


Рис.3.3.2. Приведенные дифференциальные и интегральные сечения рассеяния системы N<sub>2</sub>-N<sub>2</sub>.

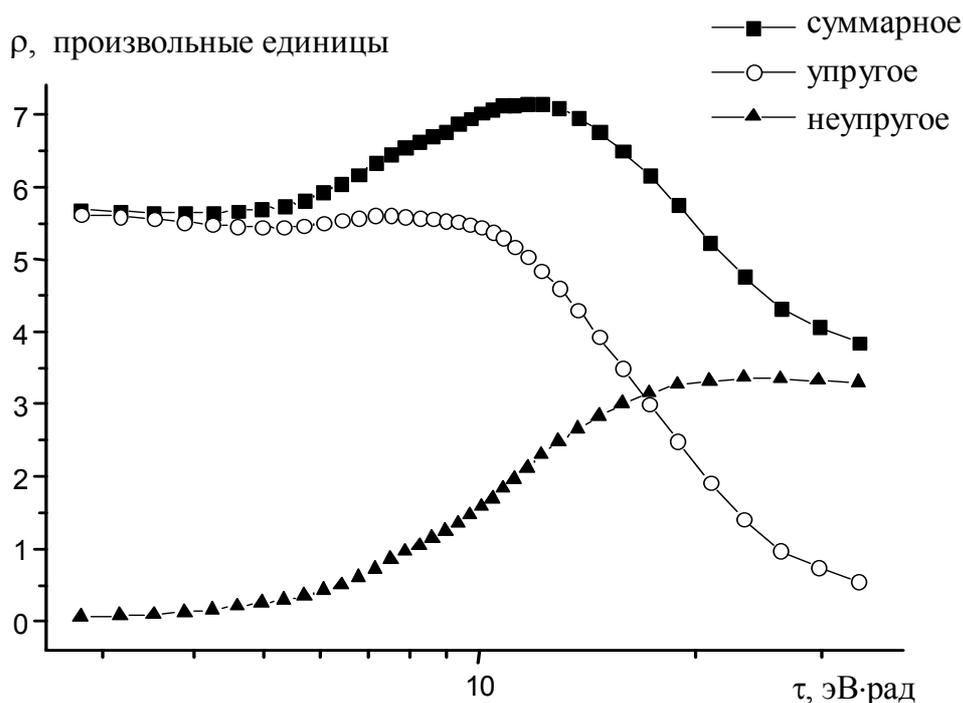


Рис.3.3.3. Сглаженная экспериментальная зависимость приведенных дифференциальных сечений  $\rho$  от приведенного угла  $\tau$  для системы He-N<sub>2</sub>.

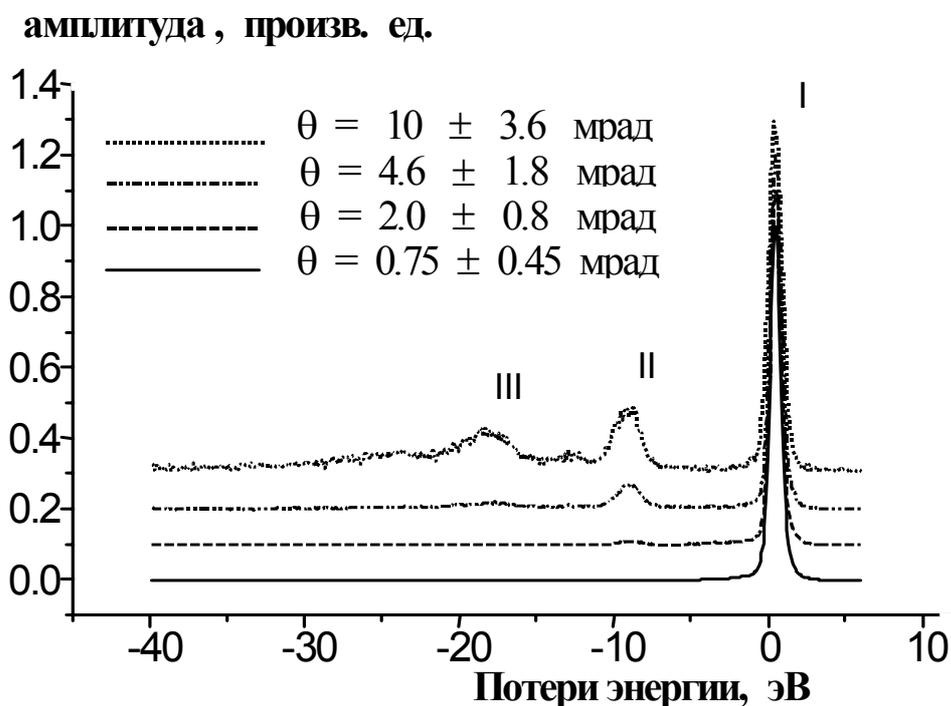


Рис.3.3.4. Времяпролетные спектры рассеяния в различных угловых диапазонах для системы He-N<sub>2</sub>.

Упругие и неупругие сечения определяются по соотношению площадей пиков I, II и III. На суммарном дифференциальном сечении в районе приведенного угла  $\tau \approx 10$  эВ·рад наблюдается особенность радужного типа, которая определяется двумя конкурирующими каналами: упругим и неупругим. Как уже отмечалось выше, эта особенность впервые наблюдалась нами еще в 1977г. [30] и ее наличие было подтверждено независимыми измерениями [35]. По величинам энергий неупругих потерь (рис.3.3.4) можно сделать вывод о том, что они связаны с возбуждением электронных степеней свободы молекулы  $N_2$ , а также, возможно, атомов He. Так как время столкновения ( $\sim 10^{-15}$  с) существенно меньше характерных времен вращения ( $\sim 10^{-12}$  с) и колебаний ( $\sim 10^{-13}$  с) молекулы  $N_2$ , то для оценки колебательного и вращательного возбуждения можно воспользоваться импульсным приближением. В условиях рассматриваемой задачи (малые углы) энергия, которая может быть передана отдельному атому N, равна  $(M_{He}/M_N) \cdot E \cdot \theta^2$  (где  $M_{He}$  и  $M_N$  - массы атомов He и N) и не превышает  $10^{-2}$  эВ для  $\theta < 5 \cdot 10^{-3}$  рад. Эта энергия значительно меньше разброса по энергии в пучке, составляющем 1-2 эВ. Таким образом, из рассмотрения можно исключить колебательное и вращательное возбуждение молекулы  $N_2$  и в результате восстановить эффективный сферически-симметричный потенциал.

Упругие дифференциальные сечения рассеяния для системы  $N_2-N_2$  приведены на рис.3.3.5.

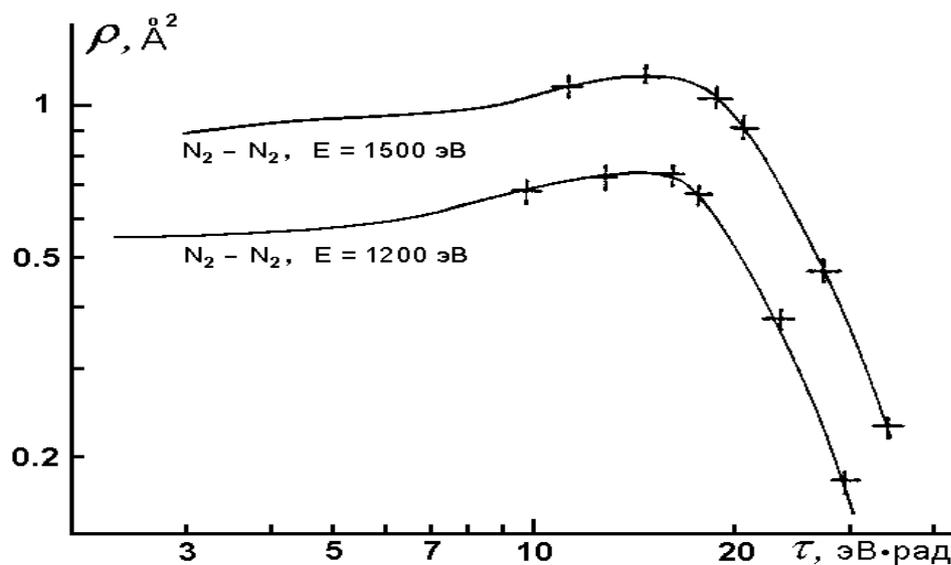


Рис.3.3.5. Приведенные упругие дифференциальные сечения рассеяния системы  $N_2-N_2$ . Крестами показаны углы, для которых измерены спектры неупругих потерь энергии.

Трудности восстановления потенциала взаимодействия из упругих дифференциальных сечений, показанных на рис.3.3.3 и 3.3.5 очевидны. Дело в том, что это не те сечения, которые были бы в том случае, когда для всех энергий взаимодействия работал некоторый потенциал, описывающий упругие столкновения во всем диапазоне прицельных расстояний (с самого начала, предположим, что сталкивающиеся частицы находятся в основном состоянии и описываются единственным потенциалом взаимодействия). В ходе столкновения имеют место переходы с основного состояния на возбужденные состояния. Качественно можно представить картину столкновения системой диабатических термов, показанных на рис.3.3.6.

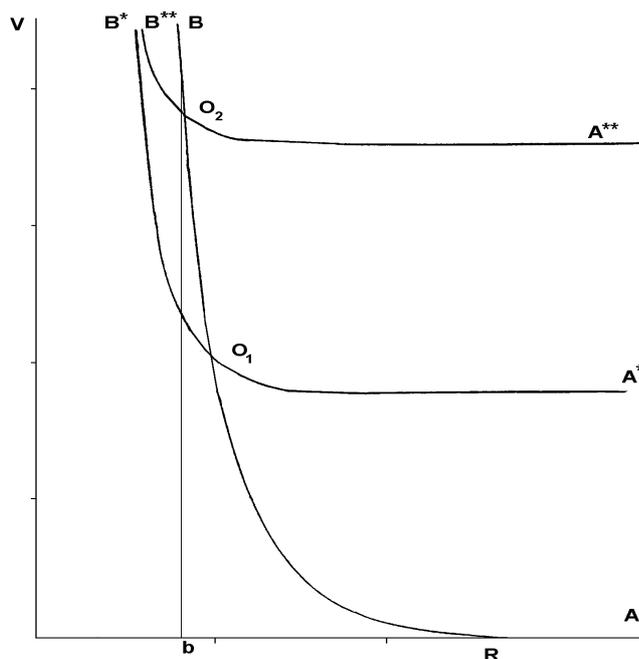


Рис.3.3.6. Качественная картина термов рассеяния на двухатомной молекуле.

Так как сталкивающиеся частицы на входном канале (при сближении) находятся в основном состоянии, то их взаимодействие определяется термом  $AO_1O_2B$ . Если бы не существовало пересечения терма  $AO_1O_2B$  с термами, соответствующими взаимодействию возбужденных частиц ( $A^*O_1B^*$ ,  $A^*O_2B^{**}$  и т.п.), то сталкивающиеся частицы сблизились бы до расстояния наибольшего сближения по терму  $AO_1O_2B$  (в случае малых углов это прицельное расстояние  $b$ ) и вернулись назад по этому же терму. Но так как терм  $AO_1O_2B$  пересекают термы, соответствующие взаимодействию возбужденных частиц,  $A^*O_1B^*$ ,  $A^{**}O_2B^{**}$  и т.п., то всегда существует вероятность перехода на входном канале на эти термы. На выходном канале (когда частицы расходятся) ситуация аналогичная и существует множество альтернатив для расходящихся частиц оказаться в возбужденном состоянии или же вернуться в основное состояние. Регистрируя спектры потерь энергии, мы выделяем столкновения, в которых произошло возбуждение частиц, и, таким образом, рассортировав частицы, выделяем упругие и неупругие дифференциальные сечения.

К сожалению, даже те частицы, которые не испытали неупругую потерю энергии, т.е. на выходном канале вернулись по терму  $O_1A$ , строго говоря, не несут информацию о адиабатическом терме  $AO_1O_2B$ . Как уже указывалось выше, частица на входном канале может перейти на возбужденный терм (например,  $A^*O_1B^*$ ), а затем на обратном пути вновь вернуться на терм  $AO_1O_2B$ . Таким образом, существует несколько значений прицельных расстояний, которые для столкновения с нулевой потерей энергии приводят к одному и тому же углу рассеяния. Поэтому проблема восстановления полной картины хода потенциалов, соответствующих столкновению атом-молекулярных частиц, даже при условии выделения при регистрации частиц, не испытавших потерю энергии, чрезвычайно сложна. Тем не менее, потребности науки и техники требуют знания хотя бы начального участка  $OA_1$  потенциала взаимодействия, позволяющего оценивать свойства веществ до достаточно высоких температур.

Возможность такого восстановления связана с тем, что, имея сведения об упругих и неупругих дифференциальных сечениях (рисунков типа рис.3.3.3), можно оценить ту область углов рассеяния, где вклад неупругих переходов достаточно мал, и по нему пытаться

восстановить ход потенциала взаимодействия. В дальнейшем, используя формализм, описанный в работах [54], [34] и рассмотренный также в главе 4, можно, включая в расчет возбужденные состояния и вероятности переходов, восстанавливать всю систему потенциалов взаимодействия.

Для восстановления эмпирического сферически-симметричного потенциала  $V(r)$  для атом-молекулярных систем He-N<sub>2</sub> и N<sub>2</sub>-N<sub>2</sub> аналогично тому как это было сделано для атом-атомных систем, были использованы чисто упругие дифференциальные и абсолютные интегральные сечения рассеяния.

Для выбора потенциальной функции в области потенциальной ямы и дальнего действующего притяжения был проведен сравнительный анализ потенциалов, приведенных в работах [96], [97], [98], [99], [100], [101], [102], [103]. В качестве потенциальной функции для систем He-N<sub>2</sub> и N<sub>2</sub>-N<sub>2</sub> в тепловой области использовались соответственно потенциалы из работ [98], [101].

Рассмотрим подробно процедуру восстановления потенциала взаимодействия системы He-N<sub>2</sub>. Для восстановления зависимости  $\tau(b)$  по формуле (3.1.14) требуется знание значений  $b$ , по крайней мере, для двух разных  $\tau_k$  (например, для двух энергий столкновения). Эти значения находились по формуле (3.1.1) из измерений абсолютных интегральных сечений рассеяния.

Восстановленная по упругому сечению рассеяния, измеренному на быстрых пучках (рис.3.3.3), зависимость  $\tau(b)$  приведена на рис.3.3.7 пустыми кружками. Заполненными квадратами показана зависимость  $\tau(b)$ , восстановленная по суммарному сечению  $\rho(\theta)$ . Эти зависимости начинают расходиться примерно в точке  $b = 1,4 \text{ \AA}$ . Именно от этой точки в сторону больших  $b$  и можно считать, что зависимость  $\tau(b)$  определяется только упругим взаимодействием (т.е. рассеянием, происходящим по потенциалу АО<sub>1</sub> и не искаженным вкладом неупругих столкновений).

Отметим, что в эксперименте по быстрым пучкам измеряются  $\rho(\tau)$  в ограниченном диапазоне углов рассеяния, а, следовательно, и прицельных расстояний  $b$ , а для определения  $V(r)$  по формуле (3.1.13) требуется знание  $\tau(b)$  во всем диапазоне прицельных расстояний от  $r$  до  $\infty$ .

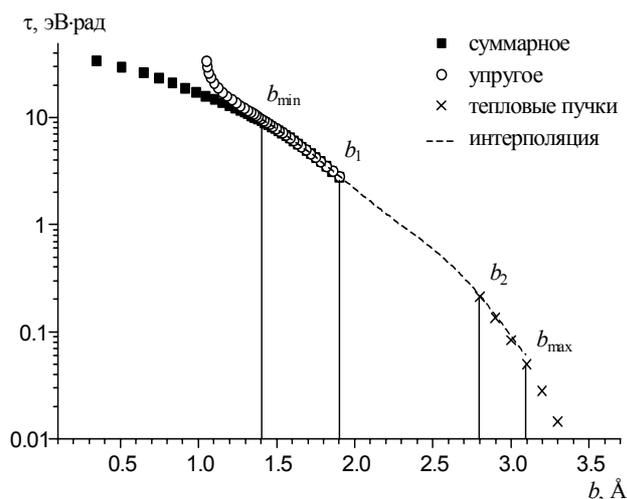


Рис.3.3.7. Зависимость приведенного угла  $\tau$  от прицельного параметра  $b$ , рассчитанная на основе суммарных и упругих дифференциальных сечений  $\rho(\tau)$  (рис.3.3.3).

Весь диапазон прицельных расстояний  $b$  можно условно разделить на три области: 1) область  $b_{min} \div b_1$ , соответствующая рассеянию быстрых пучков на малые углы и определяемая из экспериментов на быстрых пучках; 2) область  $b_2 \div b_{max}$ , соответствующая рассеянию тепловых пучков; 3) область  $b_1 \div b_2$ , в которой необходимо проводить интерполяцию для сшивки  $\tau(b)$  из двух экспериментов. Исходя из экспериментальных данных были выбраны следующие значения прицельных параметров:  $b_{min}=1,4 \text{ \AA}$ ,  $b_1=1,9 \text{ \AA}$ ,  $b_2=2,8 \text{ \AA}$ ,  $b_{max}=3,1 \text{ \AA}$ . Выбор  $b_2$  несколько произволен, так как эксперименты на тепловых пучках, как правило, не дают больших значений энергий отталкивания.

Для получения значений  $\tau(b)$  в области  $b_2 \div b_{max}$  использовался потенциал взаимодействия, полученный в работе [96]:

$$V = \varepsilon [\exp(-2\alpha(r - r_1)) - 2\exp(-\alpha(r - r_1))], \quad (3.3.1)$$

где  $\varepsilon=2,05 \cdot 10^{-3} \text{ эВ}$ ,  $\alpha=2,023 \text{ \AA}^{-1}$ ,  $r_1=3,62 \text{ \AA}$ .

Для расчетов  $\tau(b)$  по потенциалу (3.3.1) использовалось соотношение из работы [88], т.е. для потенциала  $V = A \cdot \exp(-\alpha r)$

$$\tau(b) \cong \sqrt{\frac{\pi \alpha b}{2}} V(b) \left(1 - \frac{1}{8 \alpha b}\right) \quad (3.3.2)$$

Расчет  $\tau(b)$  по данным тепловых пучков (формула (3.3.2)) показан на этом же рисунке крестами. Для сшивания этих данных с результатами наших экспериментов на быстрых пучках использовалась интерполяция с помощью полинома 9 степени. Интерполяционная кривая показана на рис. 3.3.7 пунктирной линией.

По полученной интерполяционной кривой, которая очень хорошо аппроксимирует измерения, как в области быстрых пучков, так и в области тепловых пучков, был вычислен потенциал  $V(r)$  по формуле (3.1.13). Для расчета интеграла (3.1.13) использовалась Гаусс-Меллеровская квадратура. Результаты расчетов показаны на рис.3.3.8. При этом сплошная кривая 1 отвечает области взаимодействия быстрых пучков, пунктир 2 соответствует области интерполяции, а штрих пунктир 3 соответствует тепловому потенциалу (3.3.1).

Численные значения потенциала в областях, отвечающих нашим измерениям на быстрых пучках и аппроксимации (т.е. в диапазоне от  $b_{min}=1,4 \text{ \AA}$  до  $b_2=2,8 \text{ \AA}$ ) хорошо описываются формулой:

$$V(r) = -0,032 + 220 \exp(-2,835 r), \quad (3.3.3)$$

где  $V$  в эВ, а  $r$  в  $\text{\AA}$ .

Также можно представить аппроксимацию найденного потенциала в более физическом виде:

$$V(r) = \begin{cases} 253 \cdot \exp(-2,95 \cdot r) & \text{для } r \text{ в диапазоне } 1,4 \div 1,9 \text{ \AA} \\ 435 \cdot \exp(-3,26 \cdot r) & \text{для } r \text{ в диапазоне } 1,9 \div 2,8 \text{ \AA} \end{cases} \quad (3.3.4)$$

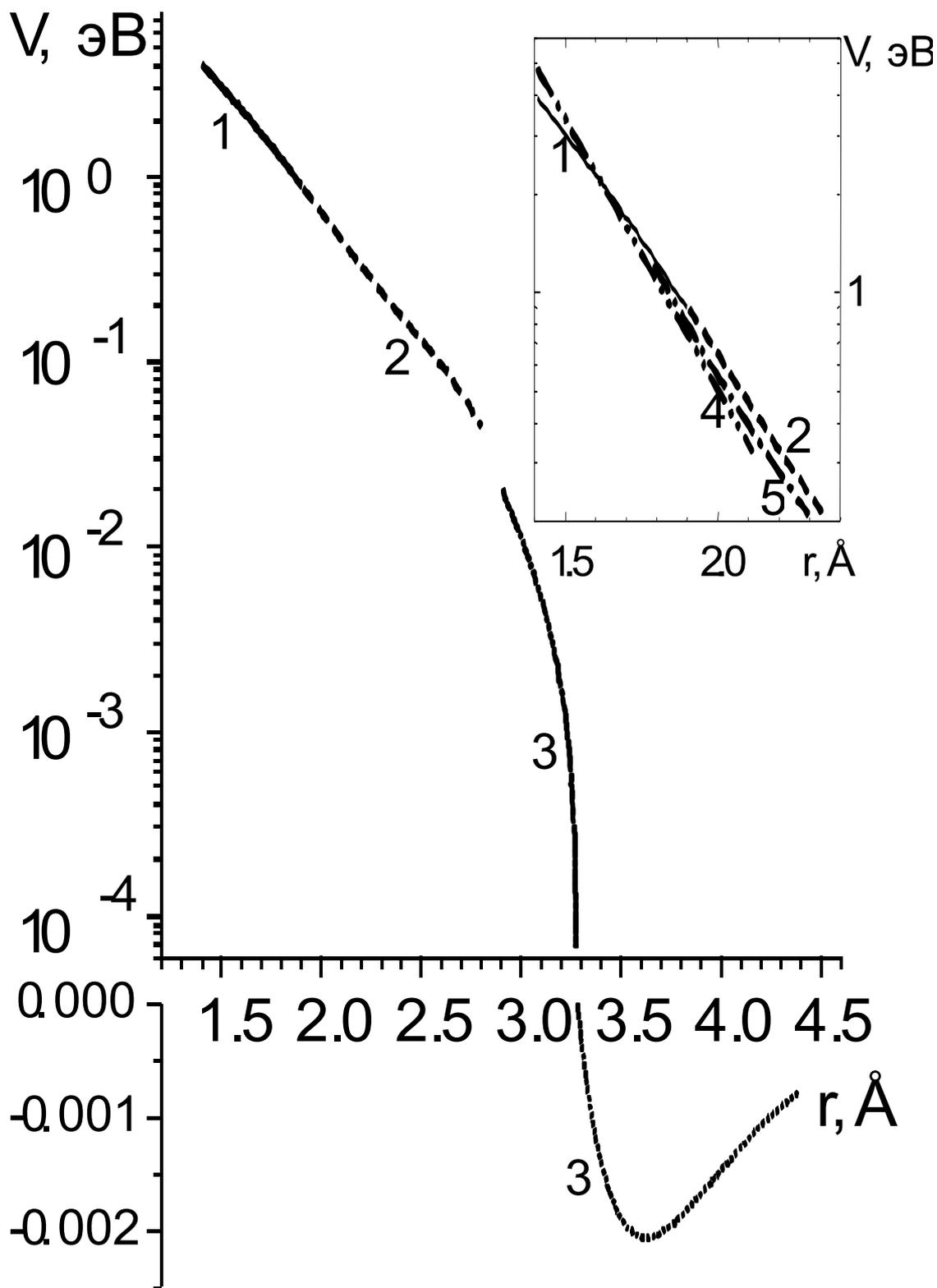


Рис.3.3.8. Восстановленный потенциал взаимодействия  $V(r)$  для системы He-N<sub>2</sub>. Сравнение с другими экспериментальными и теоретическими потенциалами (врезка).

Погрешность восстановленного потенциала составляла  $\pm 10\%$ .

Там же, на врезке, для сравнения показаны также потенциал из работы [104], найденный из измерений интегральных сечений рассеяния, (кривая 5) и потенциал, рассчитанный для модели электронного газа [105] (кривая 4). Видно, что восстановленный по измерениям потенциал взаимодействия действительно только до значения 4,5 эВ и неплохо согласуется с имеющимися в литературе данными по потенциалу системы He-N<sub>2</sub> в области отталкивания.

Аналогичное рассмотрение было проведено и для системы N<sub>2</sub>-N<sub>2</sub>. Потенциал взаимодействия этой системы хорошо аппроксимируется формулой:

$$V(r) = 88 \cdot \exp(-0.56 \cdot r - 0.512 \cdot r^2), \quad (3.3.5)$$

здесь  $r$  в Å, а  $V$  в эВ. Этот потенциал справедлив в диапазоне  $R = 2 - 3$  Å. Погрешность восстановленного потенциала составляла  $\pm 10\%$ .

На рис.3.3.9 показан полученный нами потенциал системы N<sub>2</sub>-N<sub>2</sub> и проводится сравнение его с некоторыми экспериментальными и теоретическими потенциалами. Цифрой 1 показан потенциал из работы [101], 2 - настоящая работа, 3 - [104], 4 - [2], 5 - [70], 6 - [106], 7 - сплайн функция из работы [70]. Потенциалы 1 и 6 являются экстраполяцией потенциалов, полученных в области потенциальной ямы в малые межъядерные расстояния.

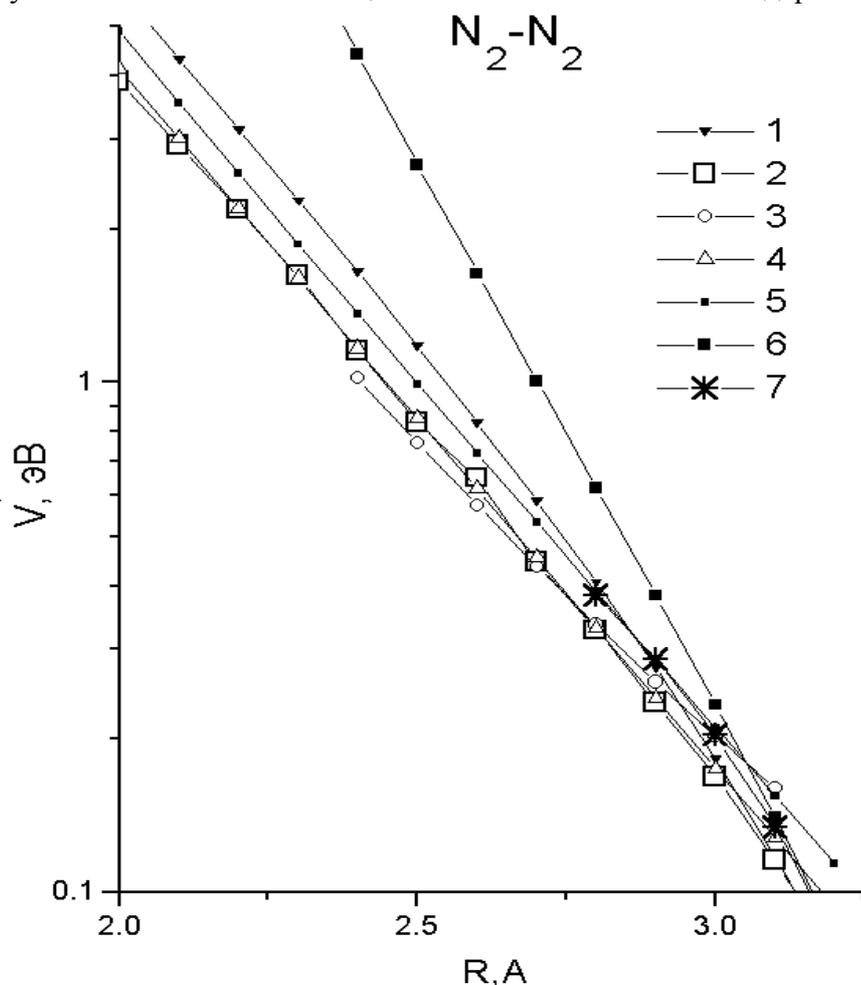


Рис.3.3.9. Сравнение потенциала взаимодействия системы N<sub>2</sub>-N<sub>2</sub> настоящей работы с некоторыми теоретическими и экспериментальными потенциалами.

Видно, что потенциал 2 хорошо совпадает с потенциалом 4. Потенциал 5 был получен путем увеличения значений потенциала 4 на 20%, а сплайн функция 7 соединяла его в тепловой области с потенциалом из работы [106]. Это увеличение потенциала 4 было необходимо для того, чтобы описать экспериментальные значения вязкости для температуры 2500 К. Так как точность потенциала 2 оценивается в 20%, то мы можем говорить о совпадении этих потенциалов в пределах экспериментальной погрешности. Тем не менее вопрос о потенциале системы  $N_2-N_2$  требует дополнительного тщательного рассмотрения.

Для системы  $H_2-H_2$  подобных времяпролетных измерений в то время нами не было проведено и поэтому восстановление потенциала взаимодействия было проведено, как и для атом-атомных систем, на основе использования совместной обработки дифференциальных и интегральных сечений рассеяния. На рис.3.3.10 показаны экспериментальные дифференциальные и интегральные сечения системы  $H_2-H_2$  для энергии пучка  $E=600$  эВ.

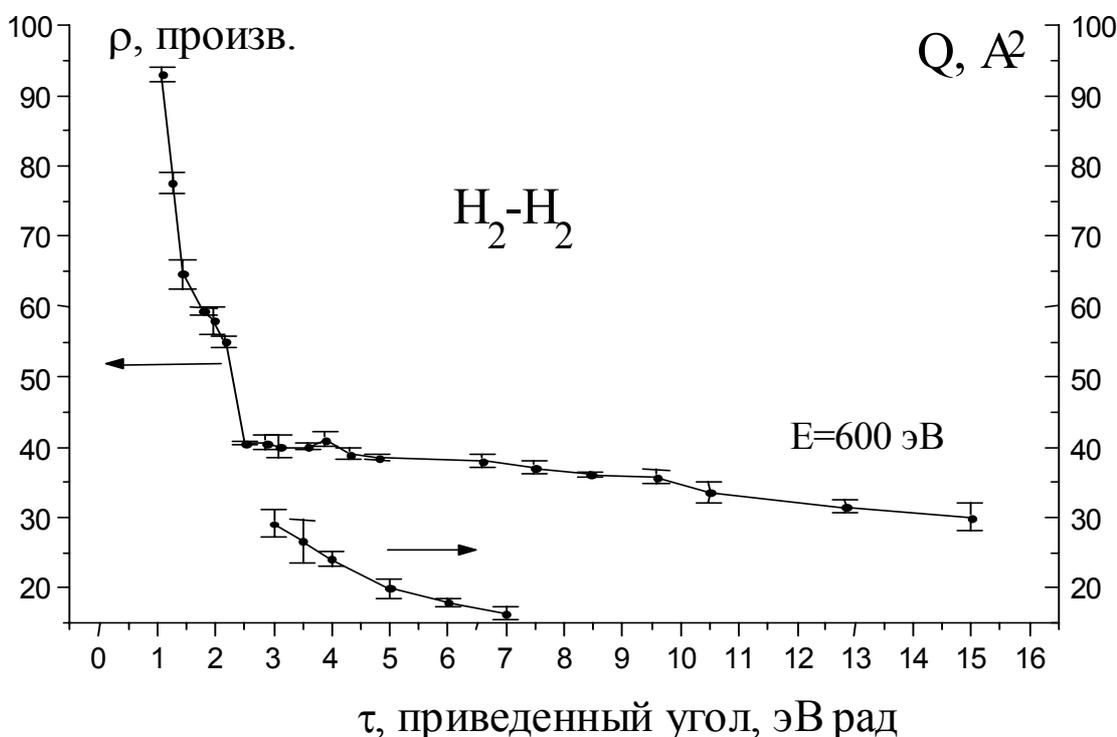


Рис.3.3.10. Дифференциальные и интегральные сечения рассеяния системы  $H_2-H_2$  для энергии пучка 600 эВ.

Восстановленный, исходя из совместной обработки дифференциальных и интегральных сечений рассеяния (с учетом потенциальной функции теплового диапазона  $H_2-H_2$  [107], эффективный сферически симметричный потенциал хорошо описывается формулой:

$$V=26,21exp(-0.848*r-0.74*r^2), \tag{3.3.6.}$$

здесь  $r$  в  $\text{Å}$ , а  $V$  в эВ. Этот потенциал справедлив в диапазоне  $R$  1 – 2,2  $\text{Å}$ . Погрешность восстановленного потенциала составляла  $\pm 10\%$ .

На рис.3.3.11 показан полученный нами потенциал системы  $H_2-H_2$  и проводится сравнение его с некоторыми экспериментальными и теоретическими потенциалами.

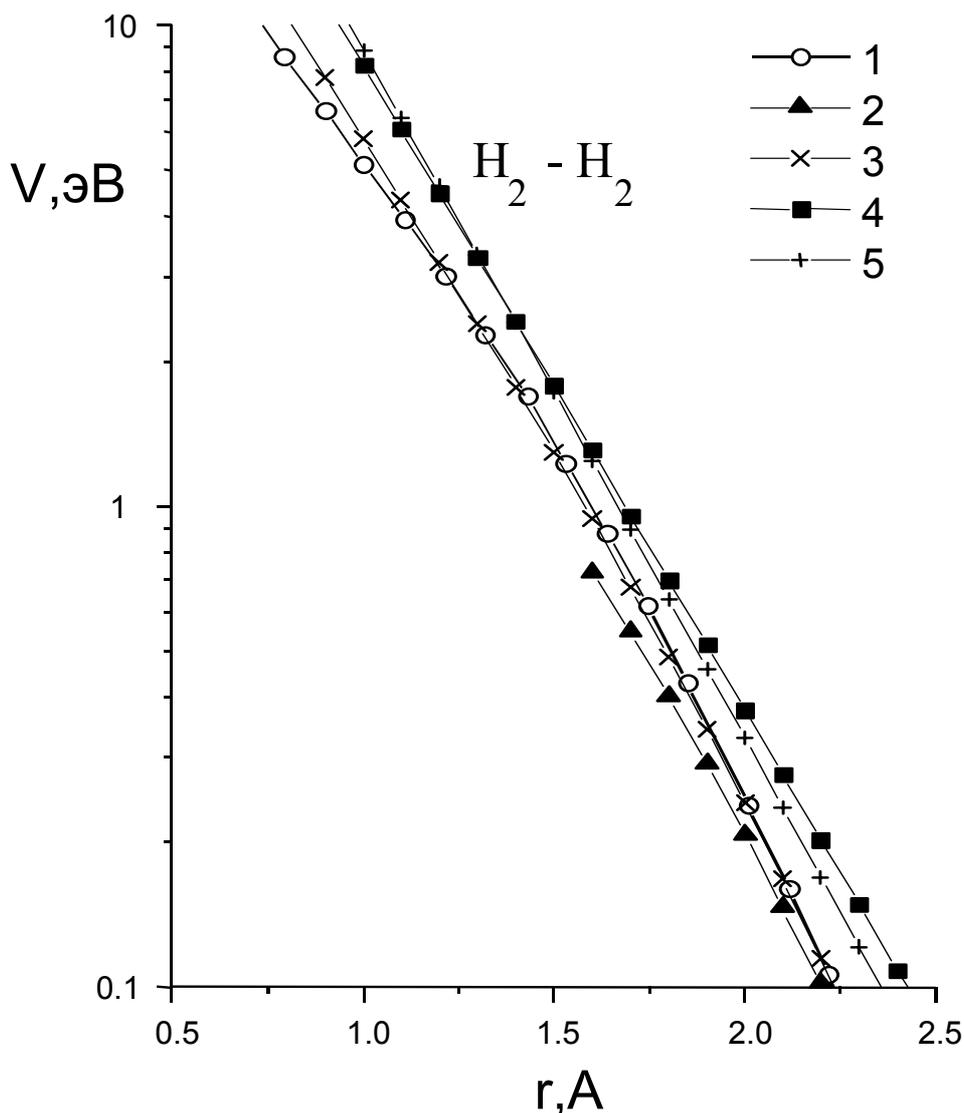


Рис.3.3.11. Сравнение потенциала системы  $H_2-H_2$  настоящей работы с различными экспериментальными и теоретическими потенциалами

Цифрой 1 показан потенциал настоящей работы из работы [108], 2-данные из работы [108], восстановленные из ударно-волновых экспериментов, 3- потенциал, полученный из измерений свойств твердого тела и данных по рассеянию в тепловой области [107], 4 – усредненный потенциал аддитивного типа (гантельная модель), полученный путем описания результатов расчетов в ССП приближении [109], 5-усредненный потенциал из измерений на быстрых пучках [110].

Из этого рисунка видно, что настоящий потенциал хорошо согласуется с потенциалом, восстановленным из ударно-волновых экспериментов [108], и данными, восстановленными из измерений свойств твердого тела и рассеяния на тепловых пучках [107].

Таким образом, нами было показано, что для надежного восстановления потенциалов систем, включающих молекулы, недостаточно просто измерений дифференциальных и интегральных сечений рассеяния. Требуется еще и измерение спектров неупругих потерь энергии, которые позволяют разделить упругие и неупругие столкновения. Восстановленные нами потенциалы взаимодействия благородных использовались для расчетов

#### Глава 4. ИЗУЧЕНИЕ НЕУПРУГИХ СТОЛКНОВЕНИЙ МЕТОДОМ РАССЕЙНИЯ БЫСТРЫХ ПУЧКОВ НА МАЛЫЕ УГЛЫ

Как уже неоднократно упоминалось выше, в течение длительного времени рассеяние быстрых пучков на малые углы использовалось для изучения упругого взаимодействия [43], [111]. Это было связано главным образом с экспериментальными трудностями измерения неупругих потерь энергии быстрой частицы. Если используется времяпролетный метод, то при разумных пролетных базах, энергии пучка  $\sim 1$  кэВ и необходимом разрешении, по крайней мере, 1 эВ требуется измерять времена пролета с точностью лучше 1 нс. Так как эффективность регистрации используемых детекторов практически не зависит от энергии быстрой частицы, то, фактически, в экспериментах с подвижным точечным детектором мы измеряли суммарное дифференциальное сечение рассеяния (т.е. сумму упругого и всех неупругих дифференциальных сечений рассеяния). Одним из тестов проверки упругого характера дифференциального сечения рассеяния было наложение друг на друга дифференциальных сечений рассеяния, измеренных при разных энергиях, в приведенных координатах ( $\tau = \theta \cdot E$  и  $\rho = \sigma(\theta) \cdot \theta^2$ ). Если рассеяние упругое, то дифференциальные сечения для разных энергий столкновения в приведенных координатах должны совпадать друг с другом в перекрывающихся областях приведенных углов рассеяния

Как уже отмечалось в главе 3, при исследовании взаимодействия с участием молекулярных частиц на дифференциальных сечениях рассеяния нами впервые были обнаружены особенности радужного типа [30]. Эти особенности мы пытались приписать особому ходу потенциала взаимодействия [112], влиянию колебаний молекулы [113]. Но еще в 1977г. нами [30] была выдвинута идея о влиянии неупругих электронных переходов на возникновение этой особенности. Для окончательного решения вопроса о причине возникновения этой особенности необходимо было наряду с измерениями дифференциальных сечений рассеяния определить и вклад неупругих дифференциальных сечений. Для этого, как рассказывается в главе 2, была построена новая экспериментальная установка, позволяющая измерять неупругие потери энергии. На первом этапе измерений мы использовали детектор с кольцевой щелью, который позволял для определенного угла рассеяния определять спектр неупругих потерь энергии. Изменением положения кольцевой щели, можно было выбирать требуемый угол рассеяния. Эти измерения не позволяли одновременно определять как дифференциальные сечения рассеяния, так и неупругие сечения [95]. Но мы их совмещали с измерениями дифференциальных сечений рассеяния, выполненными на предыдущей версии экспериментальной установки с помощью подвижного детектора, и таким образом, получали полную информацию об упругих и неупругих сечениях. Эти измерения были проведены для систем He-N<sub>2</sub> и N<sub>2</sub> - N<sub>2</sub> для относительно небольших пролетных баз и подробно обсуждаются в параграфе 4.1.

Недостатки такого одновременного измерения упругих и неупругих дифференциальных сечений рассеяния, вызванные чисто техническими трудностями, очевидны. Поэтому, как это подробно описано в главе 2, экспериментальная установка была модернизирована – существенно увеличена пролетная база и, главное, для регистрации быстрых частиц стал использоваться изготовленный в лаборатории координатно-чувствительный детектор. Это позволило непосредственно изучать двойные дифференциальные сечения рассеяния. Мы значительно увеличили разрешение и смогли не только дополнительно к дифференциальным сечениям измерять неупругие потери, но и определить вклад различных электронных переходов в эти потери. Результаты по непосредственному измерению двойных дифференциальных сечений обсуждаются в параграфе 4.2.

Параграф 4.3 посвящен интерпретации особенностей на дифференциальных сечениях атом-молекулярных систем с помощью рассмотрения динамической картины рассеяния

для системы пересекающихся термов (двух возбужденных и основного состояния) [54], [114].

#### §4.1. ИЗУЧЕНИЕ ЭЛЕКТРОННОГО ВОЗБУЖДЕНИЯ ПРИ СТОЛКНОВЕНИИ АТОМОВ И МОЛЕКУЛ ВРЕМЯПРОЛЕТНЫМ МЕТОДОМ С ПОМОЩЬЮ ДЕТЕКТОРА С КОЛЬЦЕВОЙ ЩЕЛЬЮ

В этом параграфе пойдет речь о систематическом изучении времяпролетным методом спектров неупругих потерь при столкновениях атом-молекулярных систем. С помощью точечного детектора на первой версии установки, описанной в главе 2, были измерены интегральные и суммарные дифференциальные сечения рассеяния для различных молекулярных систем. Особенно тщательно нами было исследовано рассеяние He на N<sub>2</sub> и N<sub>2</sub> на N<sub>2</sub> [30], [112], [72], [82], [93]. На рис.4.1.1 и 4.1.2 показаны интегральные и дифференциальные сечения рассеяния этих систем, измеренные точечным детектором.

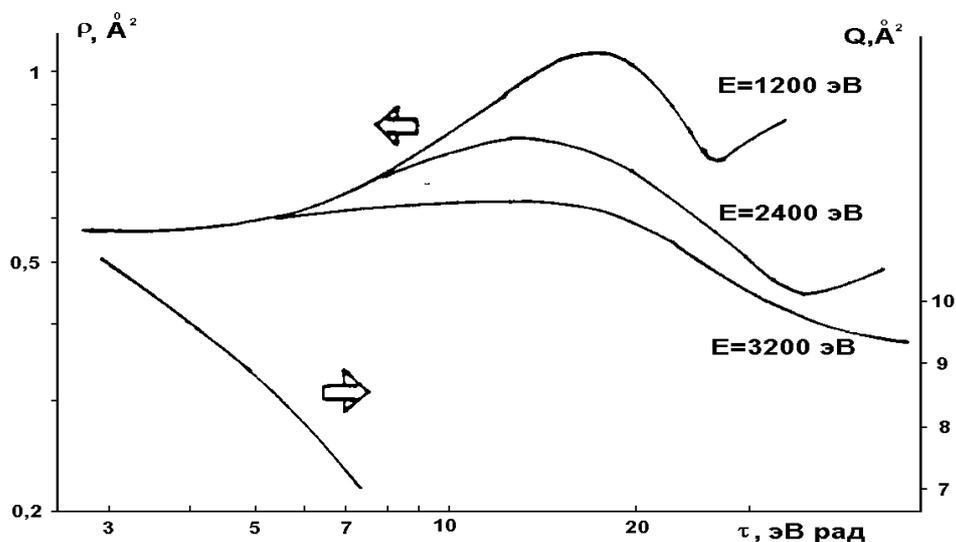


Рис.4.1.1. Приведенные дифференциальные сечения и интегральные сечения рассеяния для системы He-N<sub>2</sub>

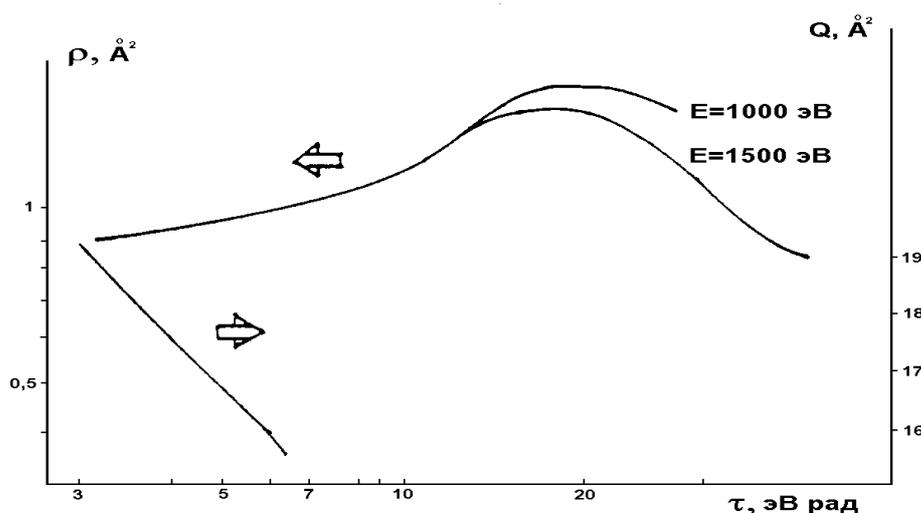


Рис.4.1.2. Приведенные дифференциальные сечения и интегральные сечения рассеяния для системы N<sub>2</sub>-N<sub>2</sub>.

Как уже отмечалось во введении к этой главе, на дифференциальных сечениях рассеяния с участием молекул имеется особенность радужного типа. Была сделана попытка с

помощью времяпролетной техники исследовать спектры неупругих потерь энергии для некоторых углов рассеяния [94]. Для этого использовалась вторая версия экспериментальной установки и измерительно-управляющий комплекс, подробно описанные в параграфе 2.1.

Детектирование рассеянных (и нерассеянных) частиц проводилось с помощью ВЭУ-7, перед которым располагалась маска с центральным отверстием (диаметром  $\sim 0,5$  мм) для мониторинга пучка и кольцевой щелью ( $\Delta r/r = 5 \cdot 10^{-2}$ , где  $r$  и  $\Delta r$  - радиус и ширина щели) для полного сбора частиц, рассеянных на заданный угол  $\alpha$  ( $\alpha = r/L$ , где  $L$  - пролетная база (расстояние от камеры рассеяния до детектора)).

Меняя кольцевые щели, мы исследовали времяпролетные спектры для различных углов рассеяния. При измерении спектров неупругих потерь частиц, рассеянных на угол  $\alpha > 0$ , центральное отверстие детектора перекрывалось нитью шириной 2 мм, расположенной перед детектором так, что нерассеявшиеся частицы не регистрировались. Спектры неупругих потерь исследовались для двух пролетных баз  $L=404$  и  $724$  мм и различных углов рассеяния ( $0,8 \cdot 10^{-3}$ ;  $1 \cdot 10^{-2}$ ;  $1,3 \cdot 10^{-2}$ ;  $1,4 \cdot 10^{-2}$ ;  $1,9 \cdot 10^{-2}$ ;  $2,4 \cdot 10^{-2}$  рад). Использовались те же энергии пучков, для которых были измерены дифференциальные сечения рассеяния ( $E=1200$  эВ,  $2400$  эВ и  $3200$  эВ для He-N<sub>2</sub>) и ( $E=1000$  эВ и  $1500$  эВ для N<sub>2</sub>-N<sub>2</sub>).

На рис.4.1.3 и 4.1.4 показаны примеры измеренных спектров неупругих потерь энергии системы He-N<sub>2</sub> для различных углов рассеяния и различных энергий атомов He. Достигнутое энергетическое разрешение установки ( $\Delta E/E \sim 10^{-3}$ ) оказалось недостаточным для разрешения колебательных переходов. Структура на спектрах слева от упругого рассеяния соответствует частицам, испытавшим различные электронные переходы. Из полученных спектров неупругих потерь можно оценить вклад неупруго рассеянных частиц для данного угла и вычесть этот вклад из измеренных величин полных сечений дифференциального рассеяния. В результате такого вычитания должны получиться дифференциальные сечения упругого рассеяния.

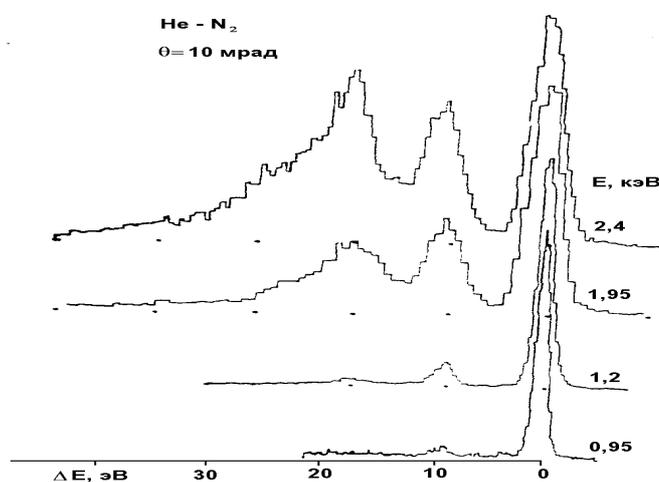


Рис.4.1.3. Спектры энергетических потерь для системы He-N<sub>2</sub>, для фиксированного угла рассеяния  $\alpha = 10$  мрад и различных энергий пучка  $E$ .

Количественная оценка вклада неупругого рассеяния делается путем измерения площади, занимаемой упругим пиком, и делением ее на полную площадь времяпролетного спектра. В тех случаях, когда упругий пик частично перекрыт пиками неупругих каналов (для больших энергий пучка и углов рассеяния), площадь упругого пика в области перекрытия определялась в предположении гауссовской формы пика рассеянных частиц.

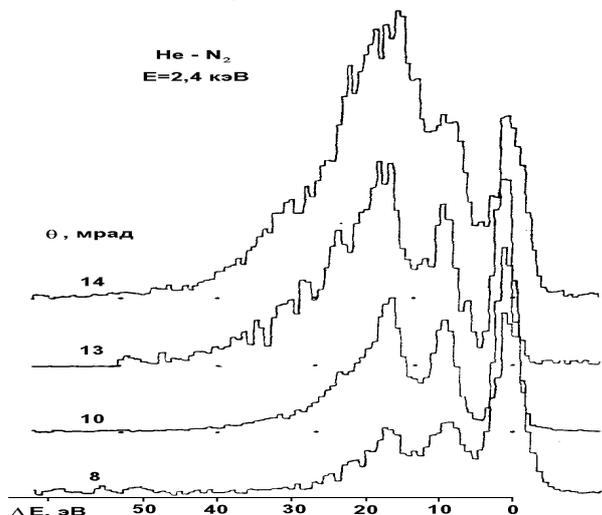


Рис.4.1.4. Спектры энергетических потерь для системы He-N<sub>2</sub> при фиксированной энергии пучка  $E$  и различных углах рассеяния  $\theta$ .

Доли неупругого вклада были найдены для систем He - N<sub>2</sub> и N<sub>2</sub> - N<sub>2</sub> во всем измеренном диапазоне энергий пучка и углов рассеяния и с их учетом были найдены дифференциальные сечения чисто упругого рассеяния. Дифференциальные сечения упругого рассеяния для систем He - N<sub>2</sub> и N<sub>2</sub> - N<sub>2</sub> показаны на рис. 4.1.5. Для системы He - N<sub>2</sub> наблюдается резкий излом дифференциального сечения, начиная с приведенного угла  $\tau=16$  эВ·рад. До этого угла дифференциальное сечение можно считать чисто упругим, не искаженным неупругими процессами. Резкое падение после угла  $\tau=16$  эВ·рад соответствует включению неупругого канала и сильной “откачке” рассеянных частиц за счет рассеяния на другой угол при неупругом рассеянии. Аналогичная картина имеет место и для системы N<sub>2</sub> - N<sub>2</sub>. Неискаженное неупругим каналом дифференциальное сечение может использоваться для восстановления потенциала взаимодействия по упругим полным дифференциальным сечениям (смотри главу 3).

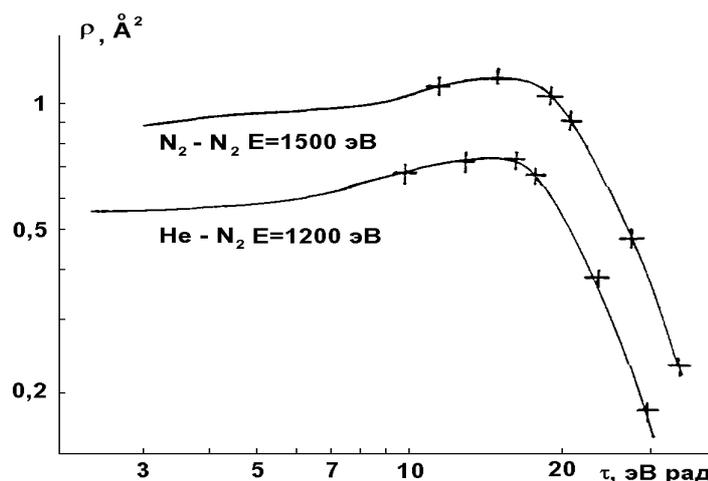


Рис.4.1.5. Приведенные упругие дифференциальные сечения рассеяния систем He-N<sub>2</sub> и N<sub>2</sub>-N<sub>2</sub>. Крестами показаны углы, для которых измерены спектры неупругих потерь энергии.

## §4.2. ИЗУЧЕНИЕ ДВОЙНЫХ ДИФФЕРЕНЦИАЛЬНЫХ СЕЧЕНИЙ РАССЕЙЯНИЯ АТОМ-МОЛЕКУЛЯРНЫХ СИСТЕМ

Последняя версия экспериментальной установки, описанная в главе 2, позволила одновременно измерять как дифференциальные сечения рассеяния, так и спектры неупругих потерь энергии во всем угловом диапазоне, стягиваемом детектором. В результате этого удалось непосредственно определить упругие и неупругие дифференциальные сечения без дополнительных измерений с точечным детектором. Поскольку пролетная база была увеличена до 2,06 м, то это значительно улучшило энергетическое разрешение установки. В качестве тестовой была исследована система He-N<sub>2</sub> [41]. Были также изучены системы He-CO, He-H<sub>2</sub> и He-O<sub>2</sub> [41]. Особый интерес представляла возможность сравнения систем He-N<sub>2</sub> и He-CO, поскольку они являются изоэлектронными друг другу. Измерения проводились для пучков с энергией 2,5 кэВ для систем He-N<sub>2</sub>, He-H<sub>2</sub> и 1.5 и 2.5 кэВ для He-CO, He-O<sub>2</sub> и углового диапазона 10 - 1.5 10<sup>-2</sup> рад, что соответствует энергии взаимодействия порядка 1 - 10 эВ.

На рис.4.2.1-4.2.6 представлены дифференциальные сечения рассеяния в приведенных координатах  $\rho = \sigma(\theta, E)$  и  $\tau = \theta \cdot E$ . Полное дифференциальное сечение рассеяния измерялось непосредственно координатно-чувствительным детектором, а вклад упругого и неупругого дифференциальных сечений определялся из измерений спектров потерь энергии (рис.4.2.7-4.2.12; спектры для различных угловых диапазонов рассеяния для наглядности разнесены по вертикали) аналогично тому, как это было сделано в предыдущем параграфе. Хорошо видно значительное улучшение разрешающей способности по сравнению с данными предыдущего параграфа. На спектрах потерь энергии пик I соответствует упруго рассеянным частицам. Пики II и III соответствуют рассеянию частиц, испытавших различные электронные переходы. По соотношению пиков I и II, III были найдены упругие и неупругие дифференциальные сечения. На суммарных дифференциальных сечениях рассеяния для всех систем видна особенность радужного типа в районе приведенного угла  $\tau \sim 10$  эВ·рад. (для системы He-O<sub>2</sub> особенность сдвинута в сторону больших  $\tau$ ), которая определяется двумя конкурирующими каналами - упругим и неупругим. В свою очередь, неупругое сечение связано с электронным возбуждением двухатомных молекул

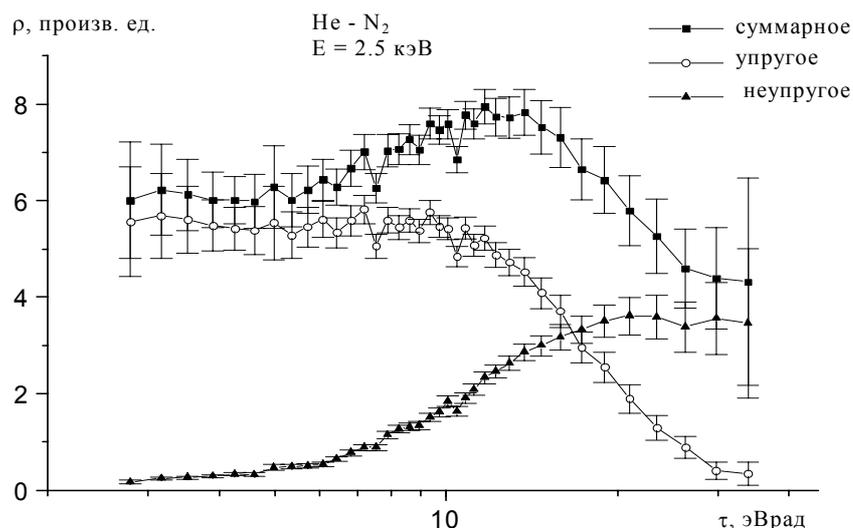


Рис.4.2.1. Приведенные дифференциальные сечения рассеяния для системы He-N<sub>2</sub> при энергии E = 2.5 кэВ.

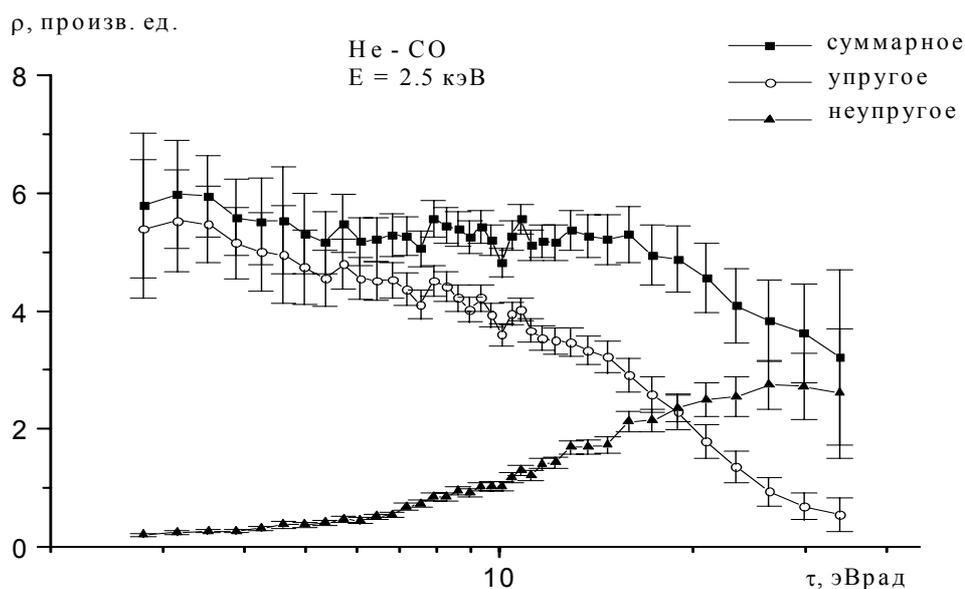


Рис.4.2.2. Приведенные дифференциальные сечения рассеяния для системы He- CO при энергии E = 2.5 кэВ.

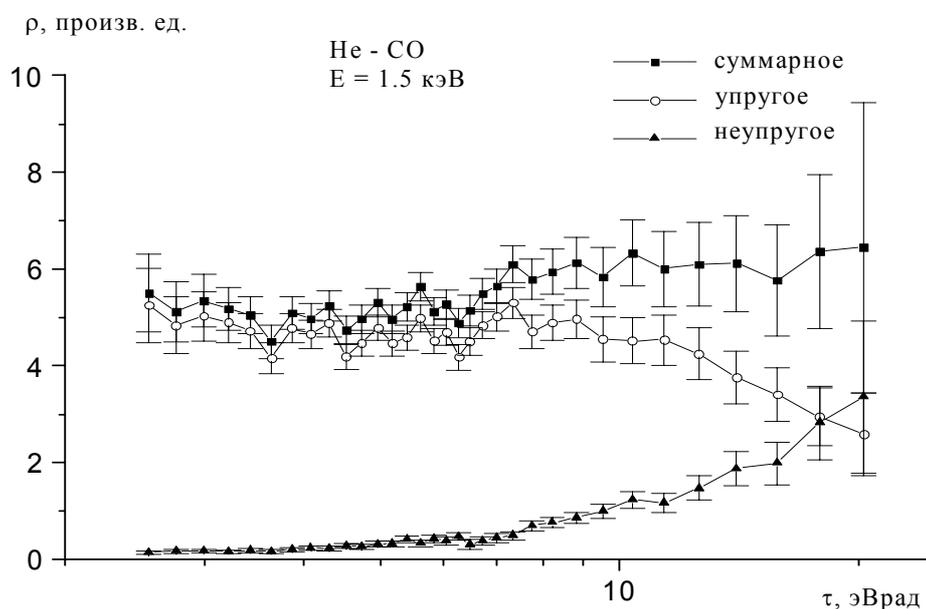


Рис.4.2.3. Приведенные дифференциальные сечения рассеяния для системы He - CO при энергии E = 1.5 кэВ.

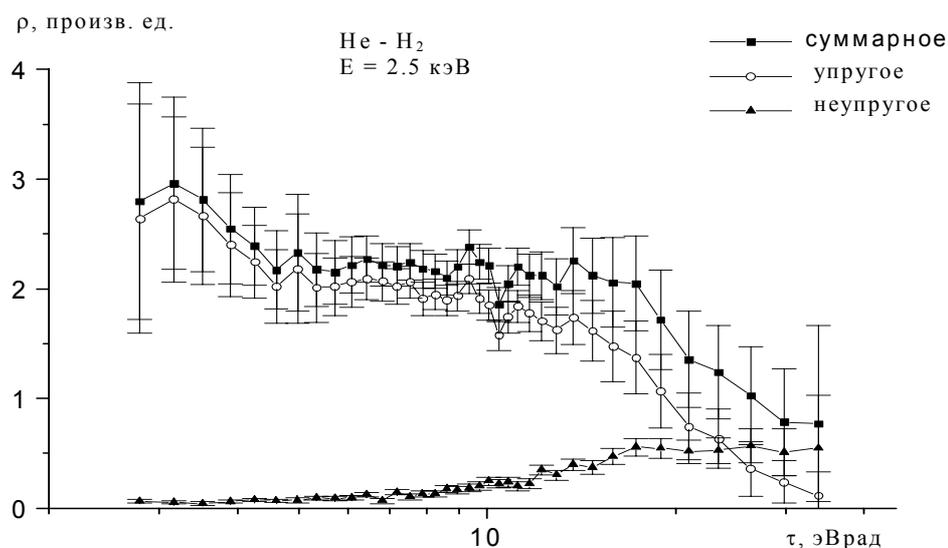


Рис.4.2.4. Приведенные дифференциальные сечения рассеяния для системы He - H<sub>2</sub> при энергии E = 2.5 кэВ.

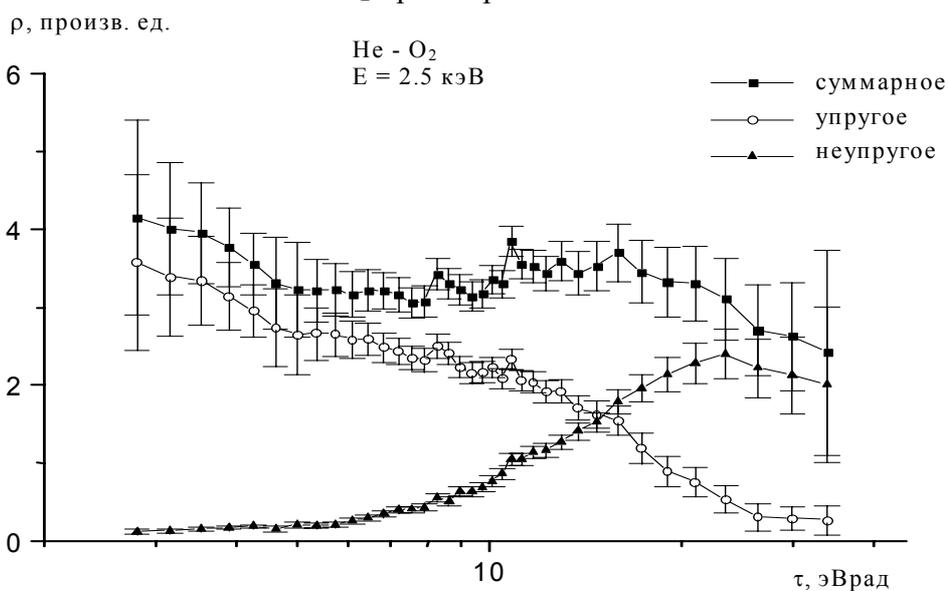


Рис.4.2.5. Приведенные дифференциальные сечения рассеяния для системы He - O<sub>2</sub> при энергии E = 2.5 кэВ.

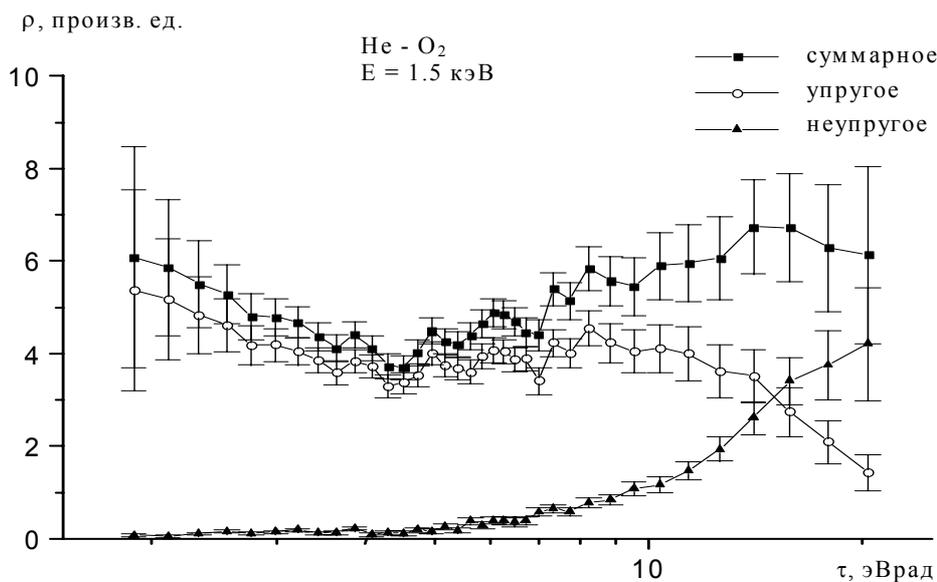


Рис.4.2.6. Приведенные дифференциальные сечения рассеяния для системы He - O<sub>2</sub> при энергии E = 1.5 кэВ.

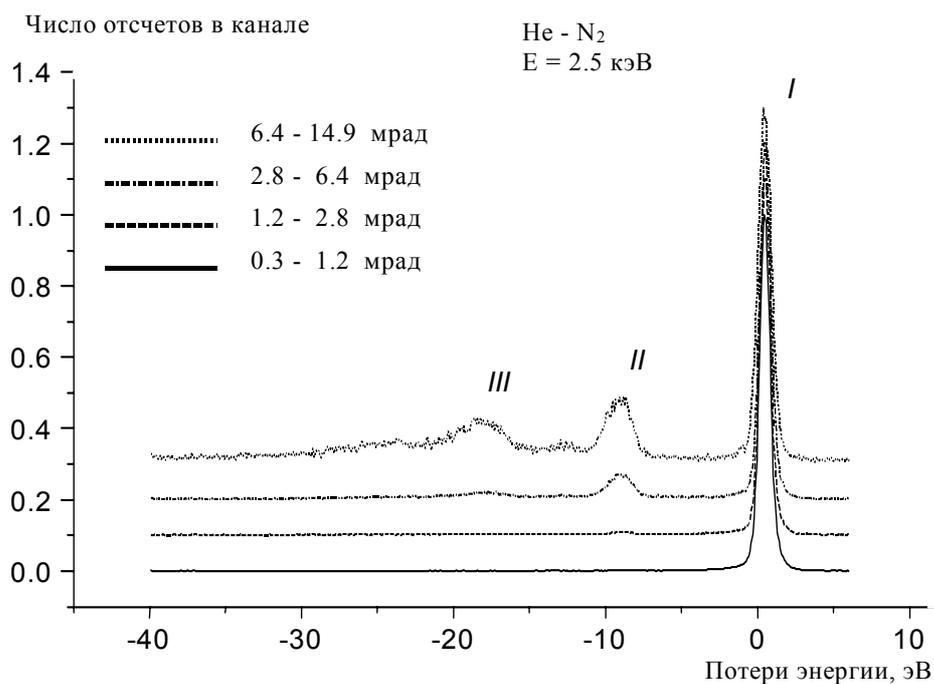


Рис.4.2.7. Спектры энергетических потерь для системы He - N<sub>2</sub> для энергии пучка E = 2.5 кэВ.

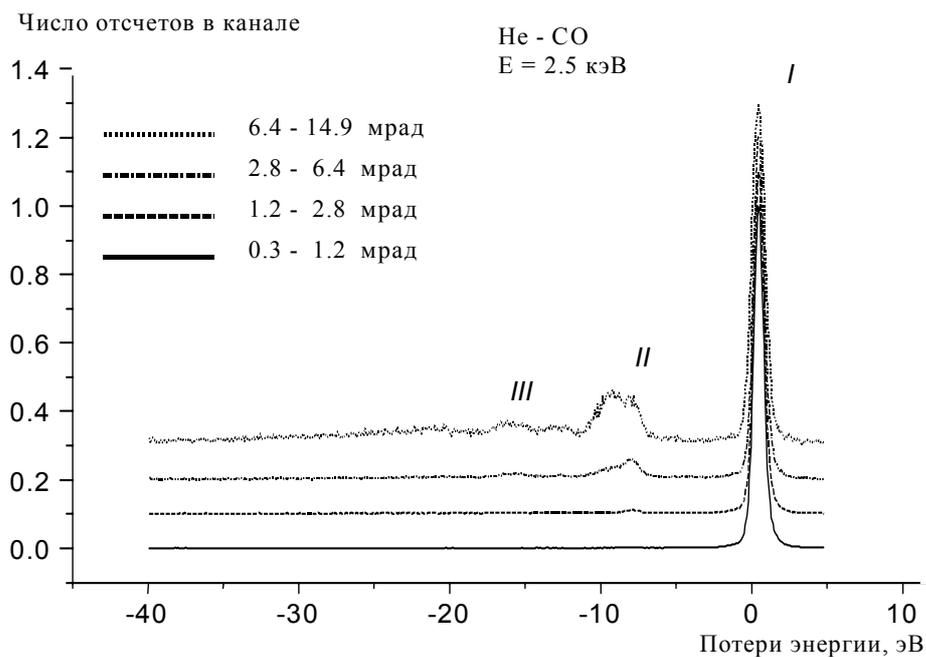


Рис.4.2.8. Спектры энергетических потерь для системы He - CO для энергии пучка E = 2.5 кэВ

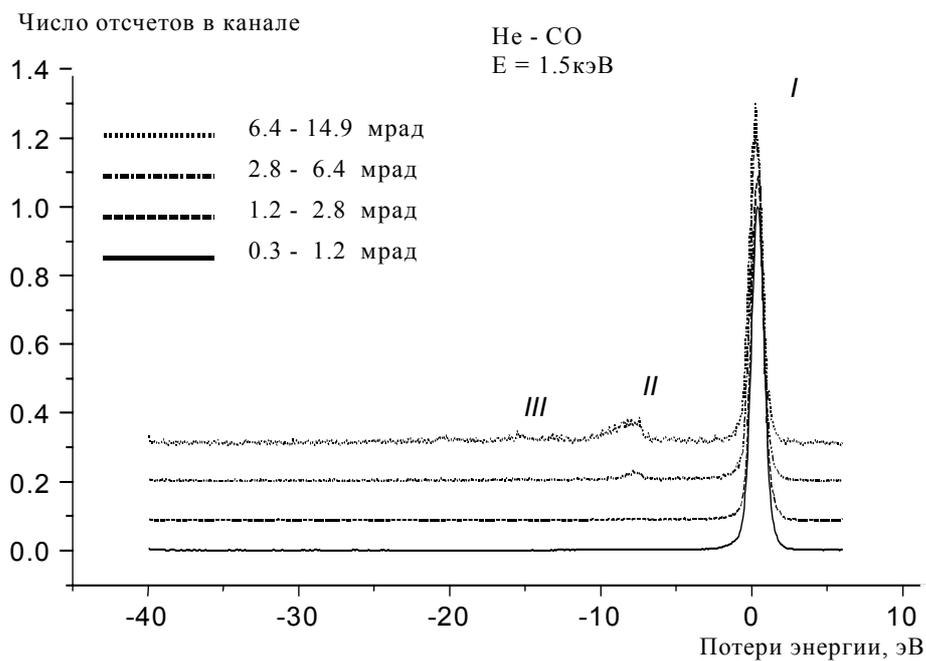


Рис.4.2.9. Спектры энергетических потерь для системы He - CO для энергии пучка E = 1.5 кэВ.

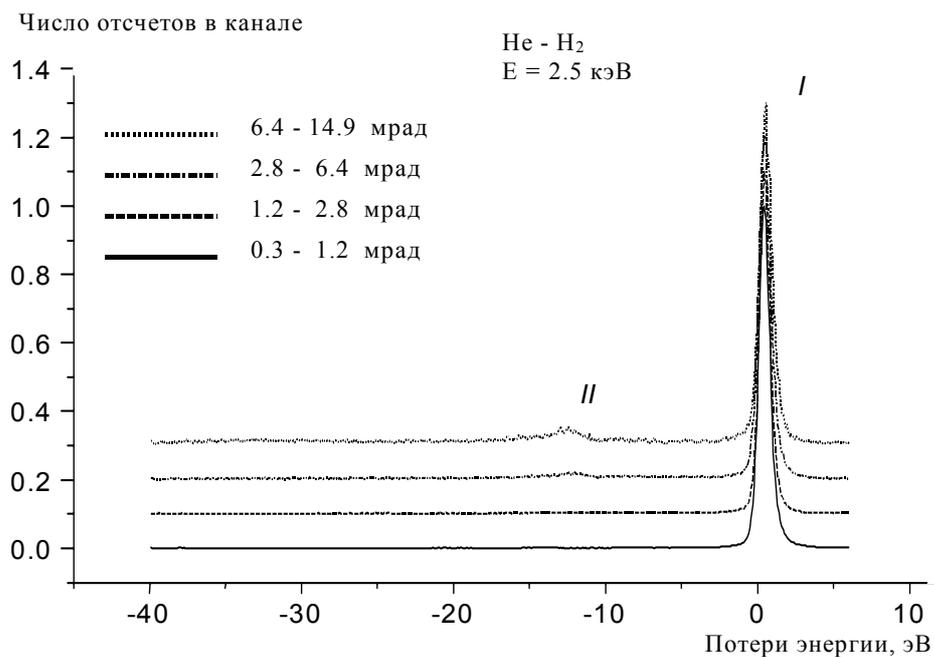


Рис.4.2.10. Спектры энергетических потерь для системы He - H<sub>2</sub> для энергии пучка E = 2.5 кэВ.

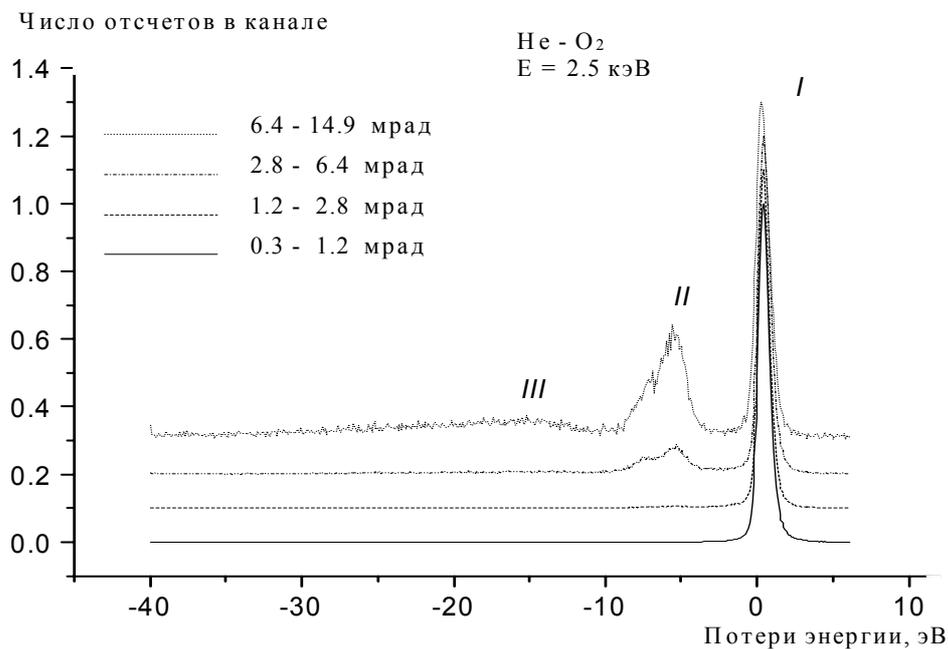


Рис.4.2.11. Спектры энергетических потерь для системы He - O<sub>2</sub> для энергии пучка E = 2.5 кэВ.

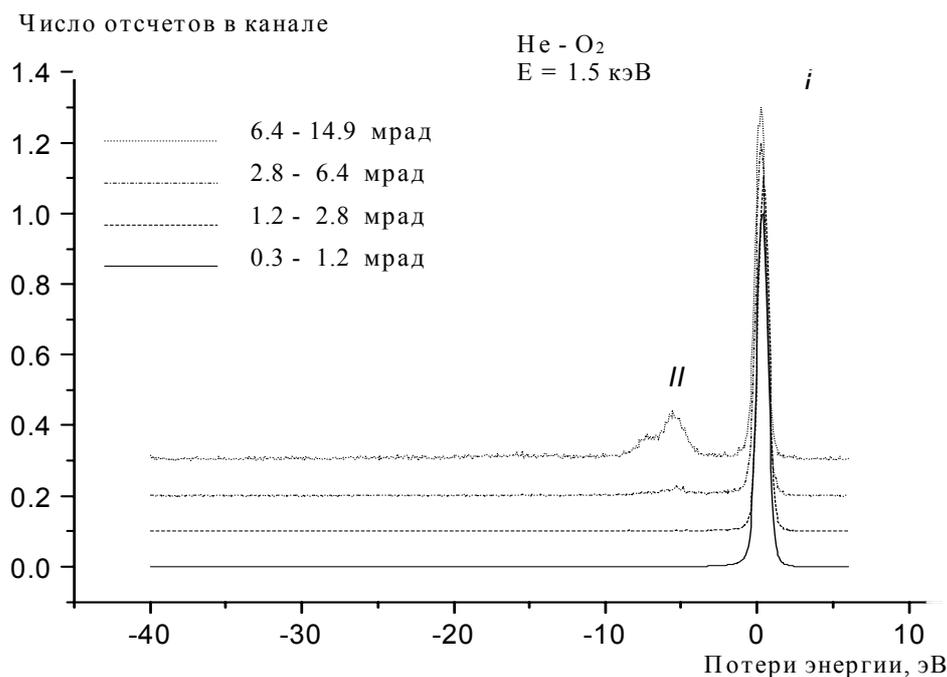


Рис.4.2.12. Спектры энергетических потерь для системы He - O<sub>2</sub> для энергии пучка E = 1.5 кэВ.

Идентификация переходов (как об этом уже говорилось в первой главе (параграф 1.3)) может быть проведена путем сравнения спектра потерь энергии с диаграммой термов молекул. Так как первые возбужденные состояния атомов He лежат в районе 19 эВ, то возбуждение гелия, по-видимому, не вносит существенного вклада в измеренную картину спектров потерь энергии пика II. Из сравнения спектров потерь энергии систем He-N<sub>2</sub> и He-CO видно, что вероятность электронного возбуждения молекул CO значительно меньше, чем вероятность электронного возбуждения молекул N<sub>2</sub>.

Интересно сравнить форму пика II для различных угловых диапазонов рассеяния. На рис.4.2.13 и 4.2.14 для систем He-N<sub>2</sub> и He-CO при энергии пучка He E=2,5 кэВ представлены нормированные в некоторой точке пики II для различных угловых диапазонов. Из сравнения этих рисунков видно, что форма пика II для системы He-N<sub>2</sub> практически не меняется с углом рассеяния, в то время как для системы He-CO форма пика II резко меняется с изменением угла рассеяния. Это связано с тем, что пик II для систем He-N<sub>2</sub> и He-CO определяется электронными переходами по крайней мере на два возбужденных состояния. Совпадение формы пика II для различных угловых диапазонов в случае системы He-N<sub>2</sub> свидетельствует о том, что вероятности переходов на эти возбужденные состояния не меняются с углом рассеяния, тогда как для системы He-CO такое изменение происходит. Аналогичные зависимости для других систем приведены на рис.4.2.15-4.2.18.

Была сделана попытка на основе спектров потерь энергии и диаграмм термов молекул N<sub>2</sub> и CO в рамках модели Франка-Кондона интерпретировать неупругий пик II как результат перехода из основного состояния на некоторые возбужденные состояния двухатомных молекул и определить вклад этих электронных состояний. Для проведения подобной интерпретации было сделано предположение, что каждому переходу на отдельный колебательный уровень соответствует функция Гаусса с центром, соответствующим положению этого перехода, и дисперсией, равной дисперсии упруго рассеянного пучка.

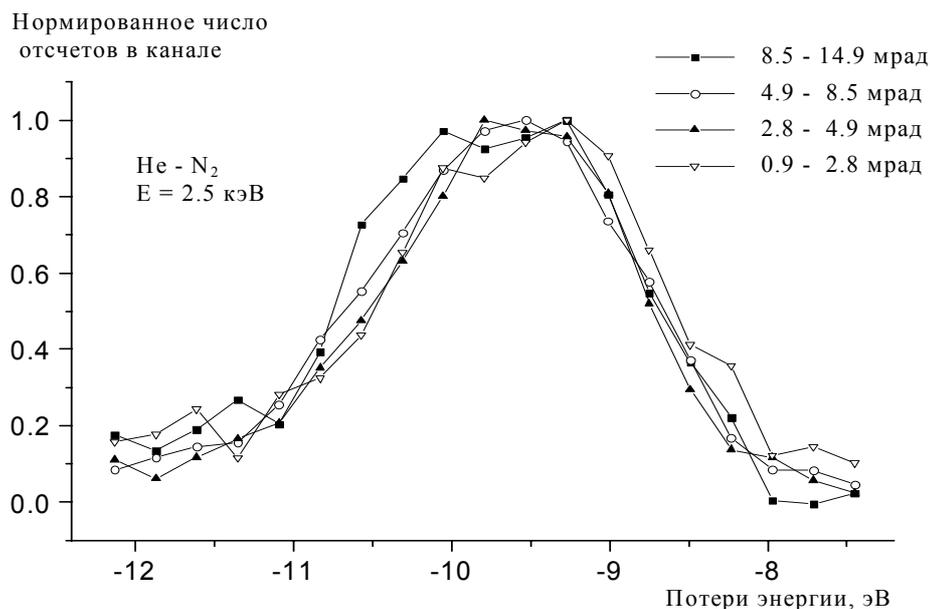


Рис.4.2.13. Неупругий пик II для системы He - N<sub>2</sub> (E = 2.5 кэВ) для различных угловых диапазонов рассеяния.

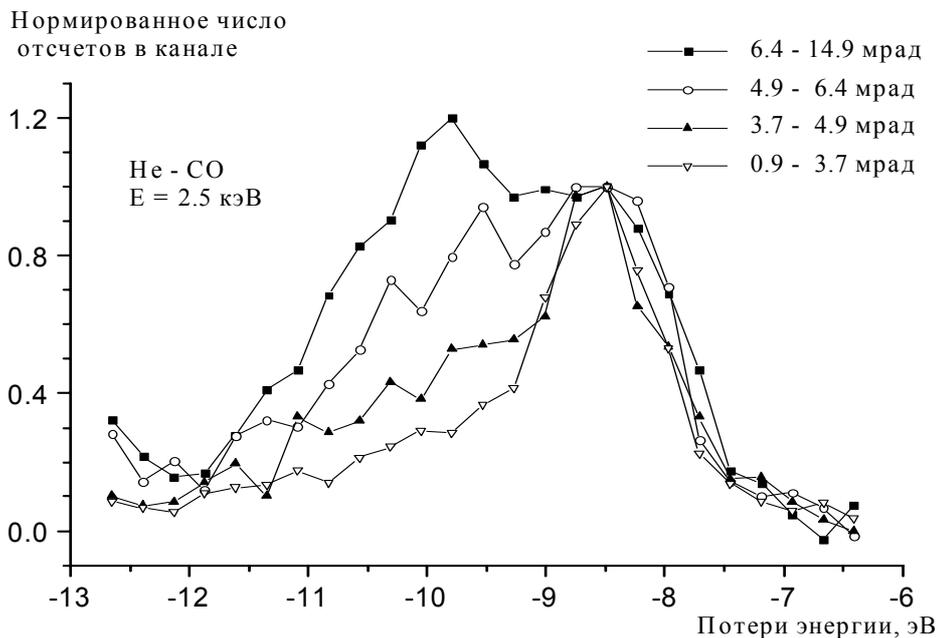


Рис.4.2.14. Неупругий пик II для системы He - CO (E = 2.5 кэВ) для различных угловых диапазонов рассеяния

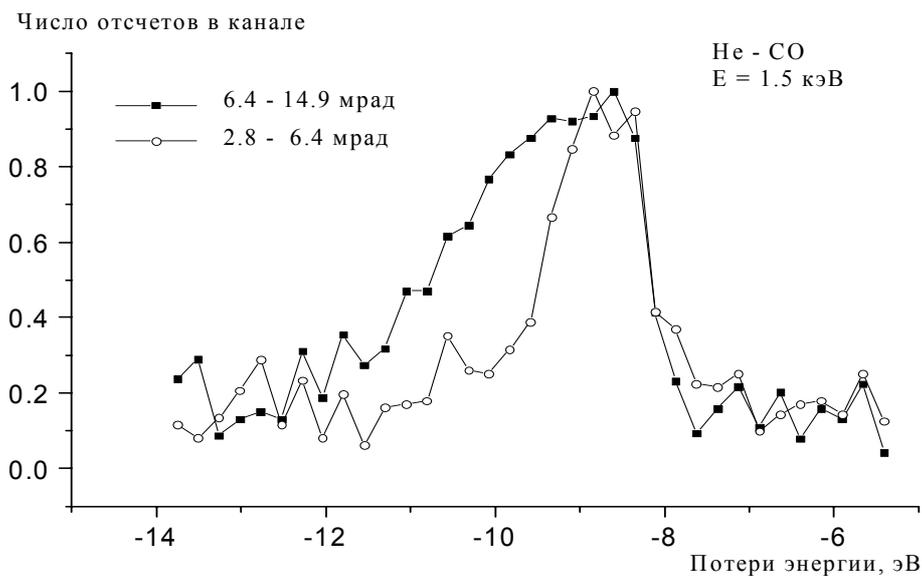


Рис.4.2.15. Неупругий пик II для системы He - CO (E = 1.5 кэВ) для различных угловых диапазонов рассеяния.

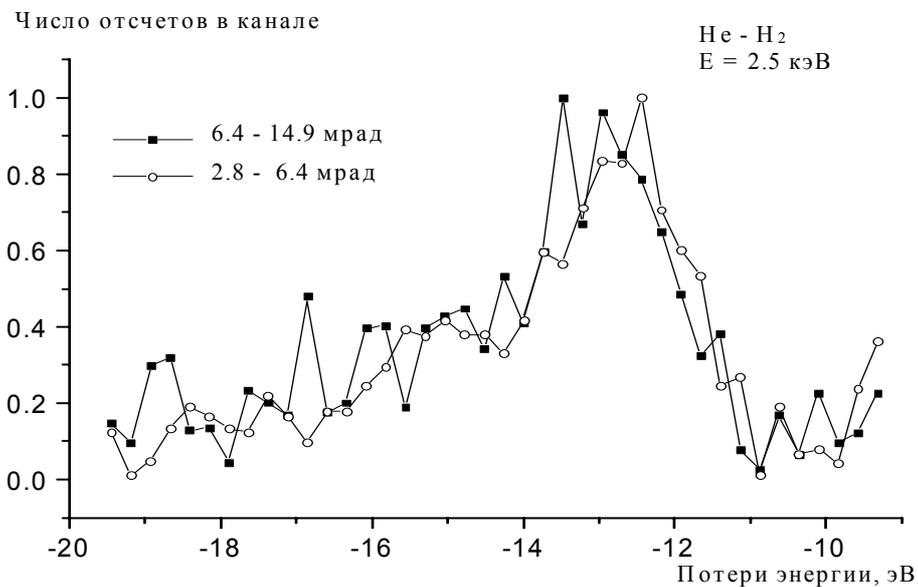


Рис.4.2.16. Неупругий пик II для системы He - H<sub>2</sub> (E = 2.5 кэВ) для различных угловых диапазонов рассеяния.

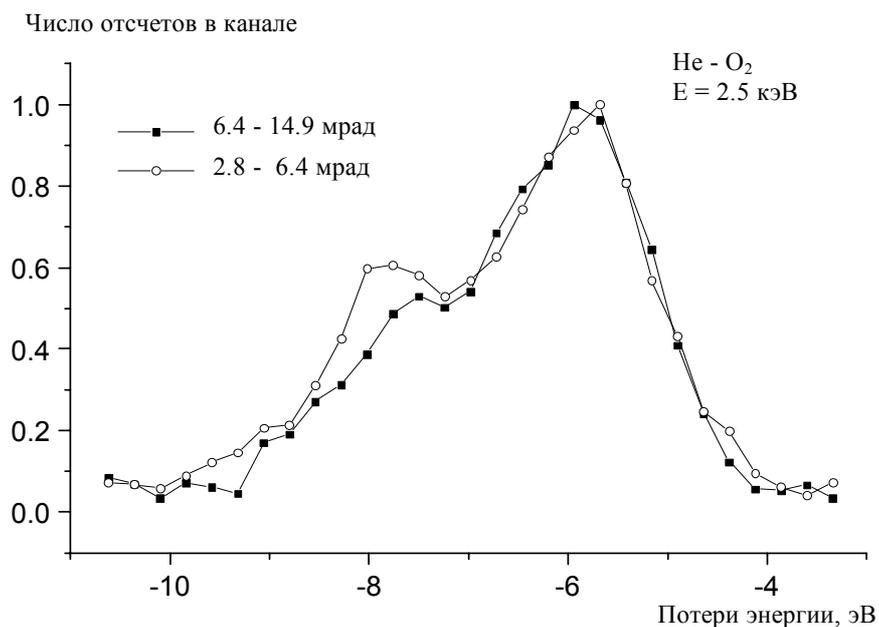


Рис.4.2.17. Неупругий пик II для системы He - O<sub>2</sub> (E = 2.5 кэВ) для различных угловых диапазонов рассеяния.

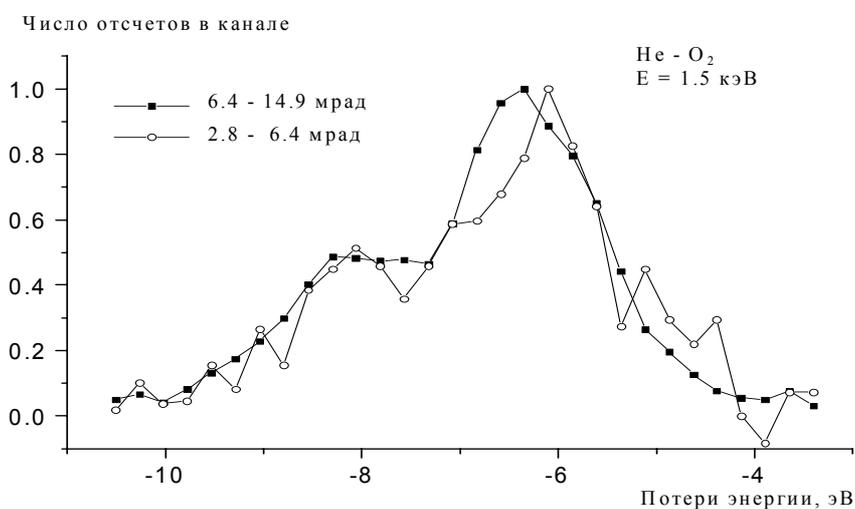


Рис.4.2.18. Неупругий пик II для системы He - O<sub>2</sub> (E = 1.5 кэВ) для различных угловых диапазонов рассеяния

Электронным переходам в этом случае будет отвечать сумма таких гауссов, относительная высота которых по сравнению друг с другом определяется коэффициентами Франка-Кондона (в общем случае остается неясным, насколько применима модель Франка-Кондона при ударном возбуждении, однако для ряда систем ее применимость подтверждена экспериментально [115]). Варьируя высоты построенных таким образом функций для разных электронных переходов, мы добивались наилучшего согласования с экспериментальным распределением. Численные значения факторов Франка-Кондона были частично взяты из

литературы [116], [117], [118], а частично рассчитаны при помощи специальной программы.

Для системы He-N<sub>2</sub> в качестве возможных кандидатов на основе правил запрета были выбраны переходы на термы  $a^1\Sigma_u^+$  и  $w^1\Delta_u$ . На рис.4.2.19 показана подгонка рассчитываемых и экспериментальных спектров потерь неупругого пика II (угловой диапазон 1.6 - 14.9 мрад). Оказалось, что переход на терм  $a^1\Sigma_u^+$  полностью подавляется, и неупругий пик II очень хорошо описывается переходами на термы  $a^1\Pi_g$  и  $w^1\Delta_u$ . Вклад этих переходов определяется отношением площадей пиков, показанных на рис.4.2.19, и равен 1,1 (как уже отмечалось выше, этот вклад не меняется с изменением угла рассеяния).

Для системы He-CO в качестве возможных кандидатов были выбраны переходы на термы  $A^1\Pi$ ,  $I^1\Sigma^-$  и  $D^1\Delta$ . Однако оказалось, что для численного описания неупругого пика II достаточно лишь два из них: либо  $A^1\Pi$  и  $I^1\Sigma^-$ , либо  $A^1\Pi$  и  $D^1\Delta$ .

На рис.4.2.20, 4.2.21 хорошо видно, что подгон неупругого пика II при энергии 1,5 кэВ практически одинаков для различных наборов термов. Однако для энергии пучка 2,5 кэВ система термов  $A^1\Pi$  и  $I^1\Sigma^-$  заметно хуже отвечает экспериментальным данным, чем  $A^1\Pi$  и  $D^1\Delta$ . На рис.4.2.22 показано описание неупругого пика II (угловой диапазон 4.4 - 14.9 мрад) с помощью переходов на  $A^1\Pi$ ,  $I^1\Sigma^-$  и  $D^1\Delta$ , а на рис.4.2.23 описание этого же спектра с использованием только двух термов:  $A^1\Pi$  и  $D^1\Delta$ .

На рис.4.2.24-4.2.26 показано аналогичное описание пика II для других угловых диапазонов с использованием переходов опять же лишь на термы  $A^1\Pi$  и  $D^1\Delta$  (в диапазоне малых углов- 0,3-1,2 мрад - рассеяние слабое, и статистика довольно плохая, однако все же видно, что переход на терм  $D^1\Delta$  уже не проявляется и пик II определяется лишь переходом на  $A^1\Pi$ ,  $I^1\Sigma^-$  и  $A^1\Pi$  и  $D^1\Delta$ ). На рис.4.2.27, 4.2.28 изображены зависимости сечений переходов на термы  $A^1\Pi$  и  $D^1\Delta$  для системы He-CO (энергия соответственно 2,5 и 1,5 кэВ) от угла рассеяния.

Эти сечения определялись как площади подогнанных пиков  $A^1\Pi$  и  $D^1\Delta$ , описывающих неупругий пик II для различных угловых диапазонов.

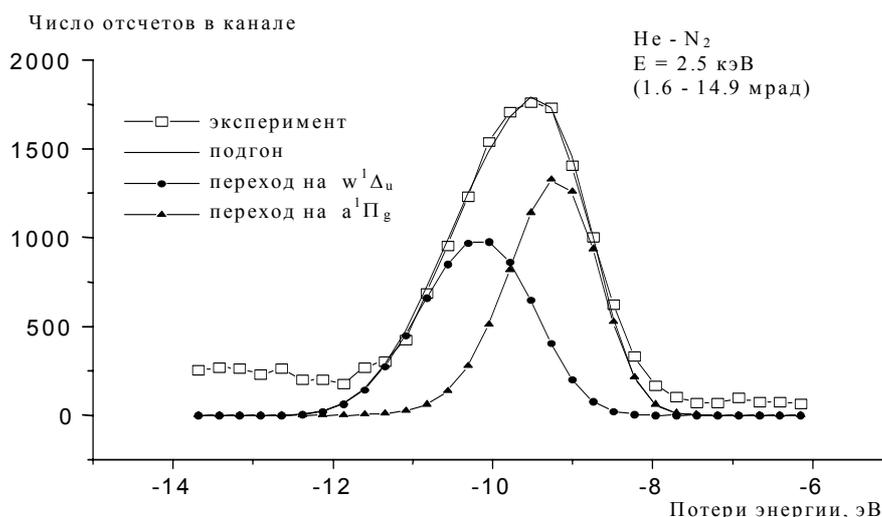


Рис.4.2.19. Интерпретация неупругого пика II для системы He - N<sub>2</sub> как результат перехода на два возбужденных терма в угловом диапазоне 1.6 -14.9 мрад.

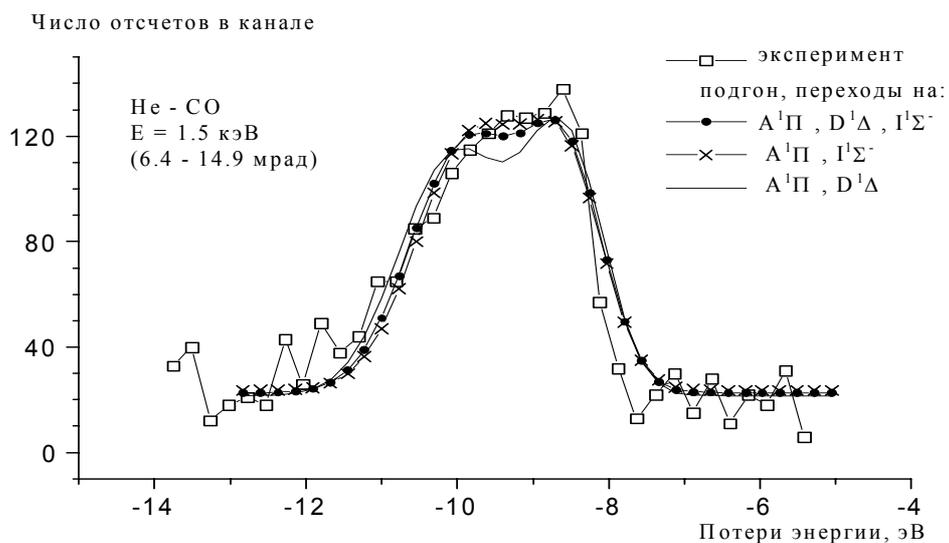


Рис.4.2.20. Интерпретация неупругого пика II для системы He - CO как результат перехода на различные возбужденные термы в угловом диапазоне 6.4 - 14.9 мрад

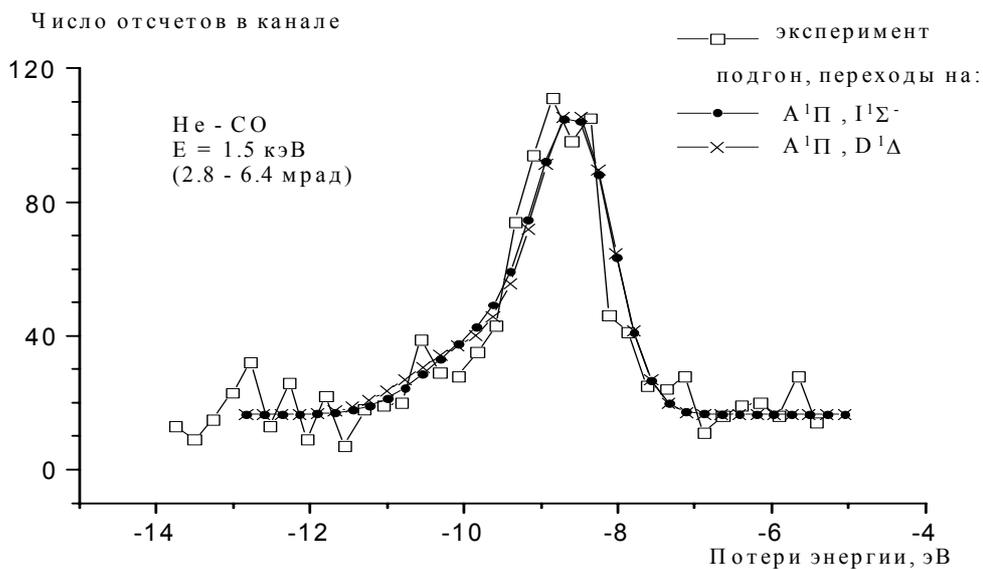


Рис.4.2.21. Интерпретация неупругого пика II для системы He - CO как результат перехода на различные возбужденные термы в угловом диапазоне 2.8 - 6.4 мрад.

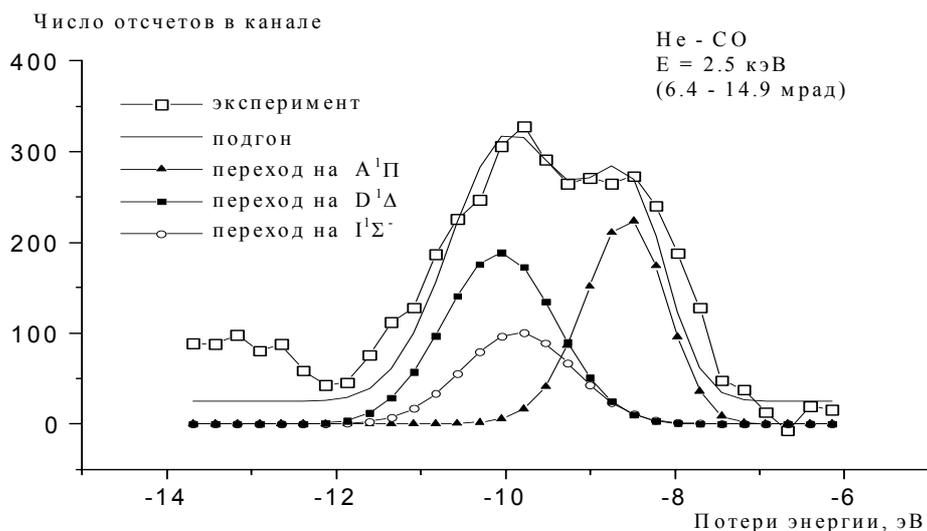


Рис.4.2.22. Интерпретация неупругого пика II для системы He - CO как результат перехода на три возбужденных терма в угловом диапазоне 6.4 -14.9 мрад.

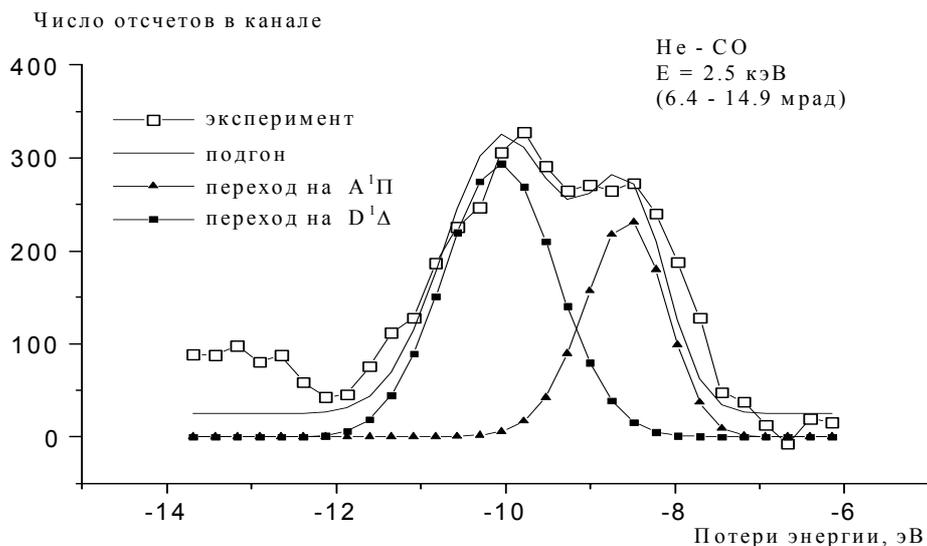


Рис.4.2.23. Интерпретация неупругого пика II для системы He - CO как результат перехода на два возбужденных терма в угловом диапазоне 6.4 -14.9 мрад.

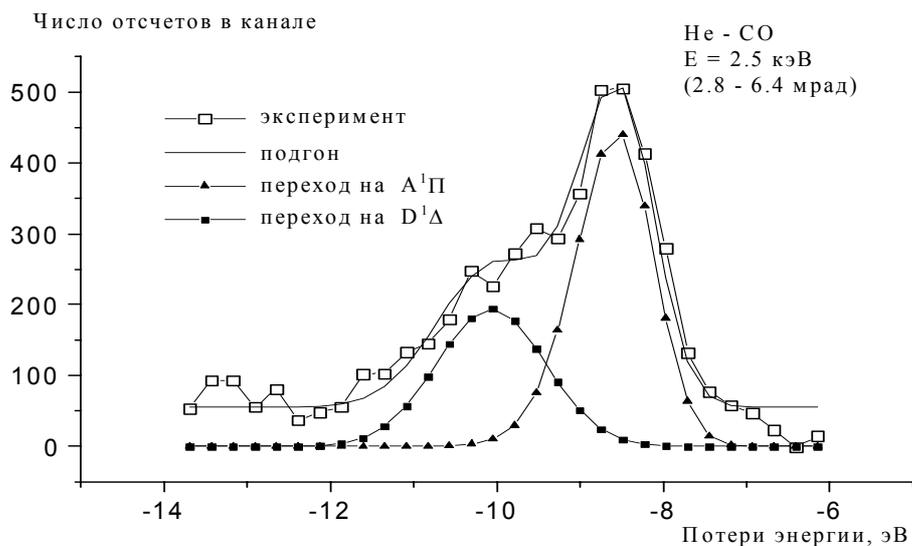


Рис.4.2.24. Интерпретация неупругого пика II для системы He - CO как результат перехода на два возбужденных терма в угловом диапазоне 2.8 - 6.4 мрад

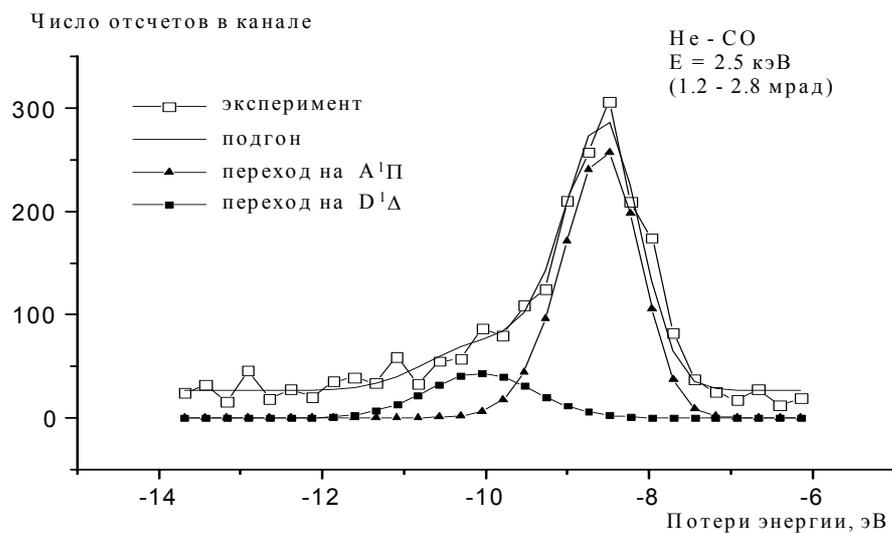


Рис.4.2.25. Интерпретация неупругого пика II для системы He - CO как результат перехода на два возбужденных терма в угловом диапазоне 1.2 - 2.8 мрад.

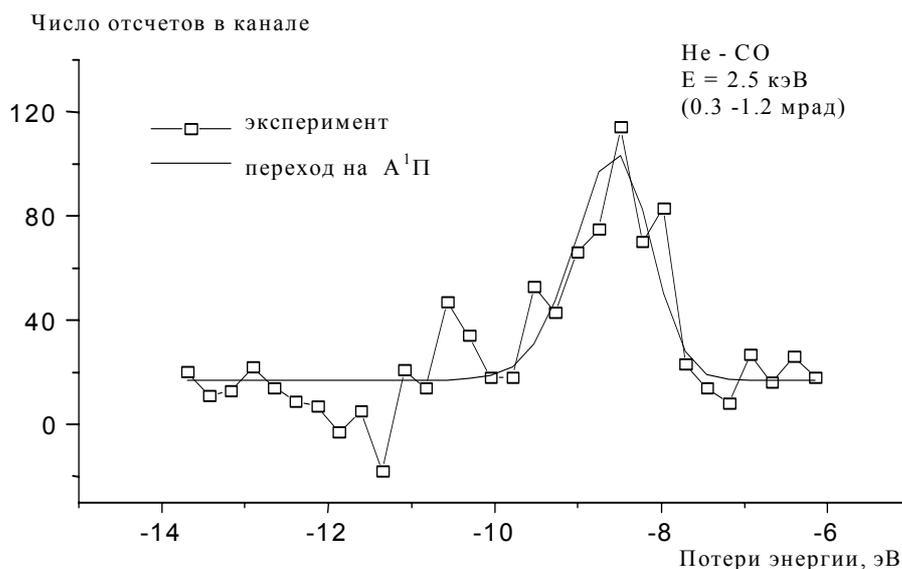


Рис.4.2.26. Интерпретация неупругого пика  $\Pi$  для системы He - CO как результат перехода на два возбужденных терма в угловом диапазоне 0.3 - 1.2 мрад.

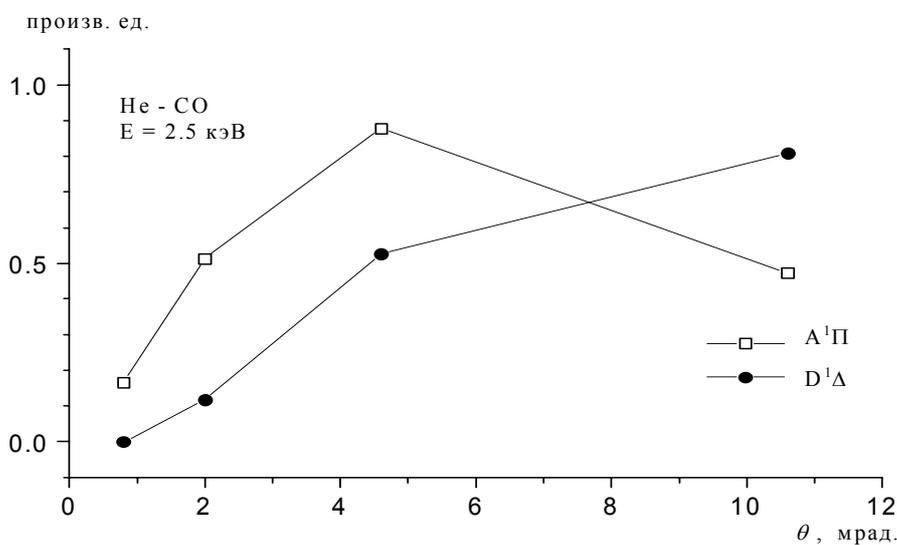


Рис.4.2.27. Зависимости вкладов возбуждения термов  $A^1\Pi$  и  $D^1\Delta$  от угла рассеяния для системы He - CO ( $E=2,5$  кэВ).

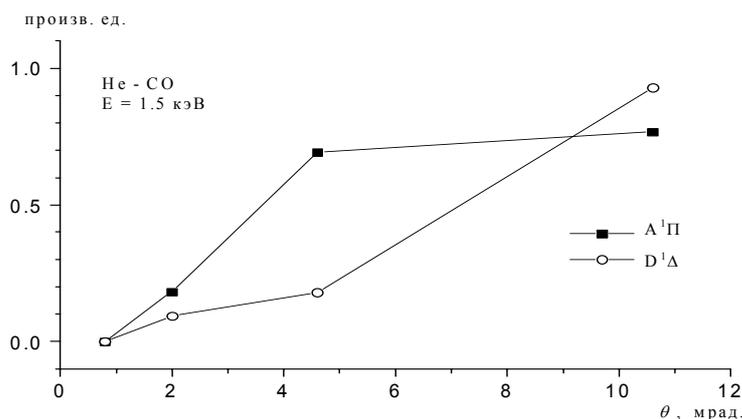


Рис.4.2.28. Зависимости вкладов возбуждения термов  $A^1\Pi$  и  $D^1\Delta$  от угла рассеяния для системы He - CO ( $E = 1,5$  кэВ).

Для системы He- $H_2$  рассматривались возможности переходов на следующие термы:  $V^1\Sigma_u^+$ ,  $C^1\Pi_u^+$ ,  $D^1\Pi_u^+$  и  $B^1\Sigma_u^+$ . При численном подгоне переход на  $B^1\Sigma_u^+$  оказался подавленным и, таким образом, форма пика II определялась переходами на три остальных терма. Результаты подгона для разных угловых диапазонов представлены на рис.4.2.29-4.2.31.

На рис.4.2.32 изображены зависимости сечений переходов на различные возбужденные термы от угла рассеяния, полученные аналогично тому, как это было сделано для системы He-CO.

В случае рассеяния атомов гелия на  $O_2$  интерпретация неупругого пика II затруднена тем, что в исследуемой области спектра энергетических потерь кроме одного связанного возбужденного состояния (а именно, терма  $V^3\Sigma_u^+$ ) присутствует целый ряд отталкивательных термов, а следовательно методика подгона пика суммой гауссов в данном случае неприменима.

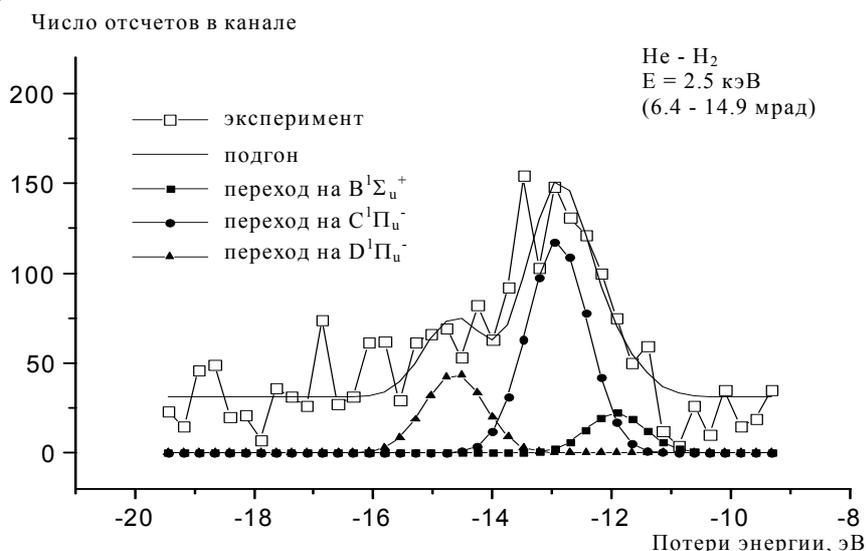


Рис.4.2.29. Интерпретация неупругого пика II для системы He -  $H_2$  как результат перехода на три возбужденных терма в угловом диапазоне 6.4 -14.9 мрад.



Рис.4.2.30. Интерпретация неупругого пика II для системы He - H<sub>2</sub> как результат перехода на три возбужденных терма в угловом диапазоне 2.8 - 6.4 мрад



Рис.4.2.31. Интерпретация неупругого пика II для системы He - H<sub>2</sub> как результат перехода на три возбужденных терма в угловом диапазоне 1.2 - 2.8 мрад.

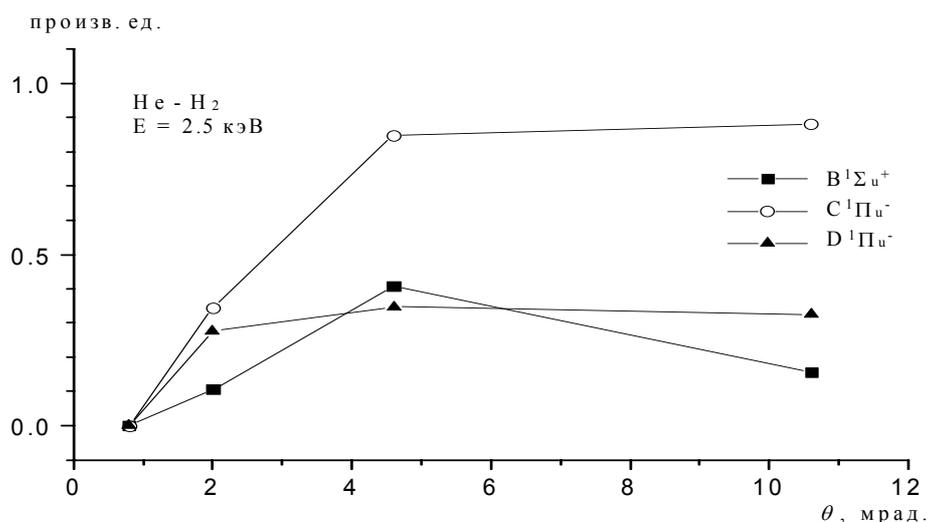


Рис.4.2.32. Зависимости вкладов возбуждения термов  $B^1\Sigma_u^+$ ,  $C^1\Pi_u^-$  и  $D^1\Pi_u^-$  от угла рассеяния для системы He - N<sub>2</sub> (E = 2.5 кэВ).

### §4.3. ИНТЕРПРЕТАЦИЯ ОСОБЕННОСТЕЙ НА ДИФФЕРЕНЦИАЛЬНЫХ СЕЧЕНИЯХ И СПЕКТРАХ ЭНЕРГЕТИЧЕСКИХ ПОТЕРЬ ПРИ ВЫСОКОЭНЕРГЕТИЧЕСКОМ РАССЕЯНИИ АТОМ-МОЛЕКУЛЯРНЫХ СИСТЕМ

В данном параграфе рассматриваются попытки интерпретации измерений дифференциальных сечений рассеяния и спектров энергетических потерь для быстрых пучков. Как только что отмечалось в параграфе 4.1, одной из наиболее исследованных систем является рассеяние атомов He на молекуле N<sub>2</sub>. Интерес к этой системе не случаен. При изучении дифференциального рассеяния этой системы была обнаружена особенность типа радужного выброса, амплитуда и положение которой зависят от энергии столкновения (рис. 4.3.1).

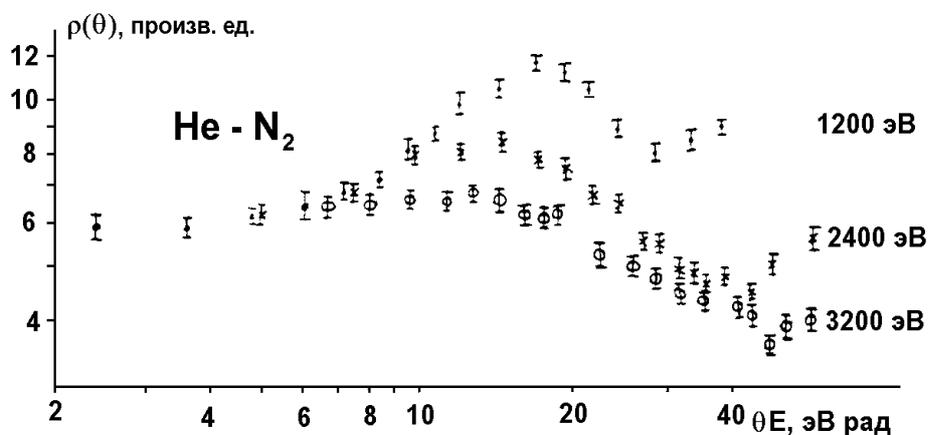


Рис.4.3.1. Приведенные дифференциальные сечения рассеяния  $\rho(\theta)$  системы He-N<sub>2</sub> для различных энергий столкновения E.

Подобные особенности характерны и для других атом - молекулярных и молекулярных систем [72] и были также обнаружены в других независимых исследованиях [35]. Для оценки вклада электронных переходов времяпролетным методом были измерены энергетические потери частиц в результате рассеяния на малые углы атомов He на молекулах  $N_2$  [94].

Типичные спектры неупругих потерь энергии были показаны на рис. 4.1.3 и 4.1.4 (см. параграф 4.1). Из этих рисунков видно, что имеется две главные особенности, связанные с неупругими электронными переходами, которые имеют максимумы в районе 9 и 18 эВ. Другой особенностью спектров неупругих потерь энергии является обнаружение при сравнительно малых значениях приведенных углов рассеяния  $\tau \sim 10$  эВ-рад небольшого (порядка нескольких процентов) числа неупруго рассеянных частиц с потерей энергии  $\Delta E \sim 10-20$  эВ).

При рассмотрении проводится совместная обработка измерений как суммарных (упругих и неупругих) дифференциальных сечений рассеяния, так и времяпролетных спектров энергетических потерь. Очевидно, что пики неупругих потерь энергии, показанные на рис. 4.1.3 и 4.1.4, связаны с переходами на несколько возбужденных состояний (как  $N_2$ , так и, возможно, He для больших значений  $\Delta E > 20$  эВ). Более детальный анализ проводится в параграфе 4.3. Для облегчения интерпретации рассматриваемой картины будем считать, что у нас имеется только два возбужденных состояния квазимолекулы (He -  $N_2$ ) (т.е. будем использовать два эффективных возбужденных терма, показанных на рис.4.3.2).

Нами было рассмотрено два подхода к интерпретации полученных результатов. В одном из этих подходов мы рассматриваем классическую задачу рассеяния по системе термов, показанных на рис.4.3.2 [54]. Эта задача рассматривается в разделе 4.3.1. В другом подходе также рассматривается классическая задача рассеяния по системе термов (рис. 4.3.2), но уже методом молекулярной динамики [114].

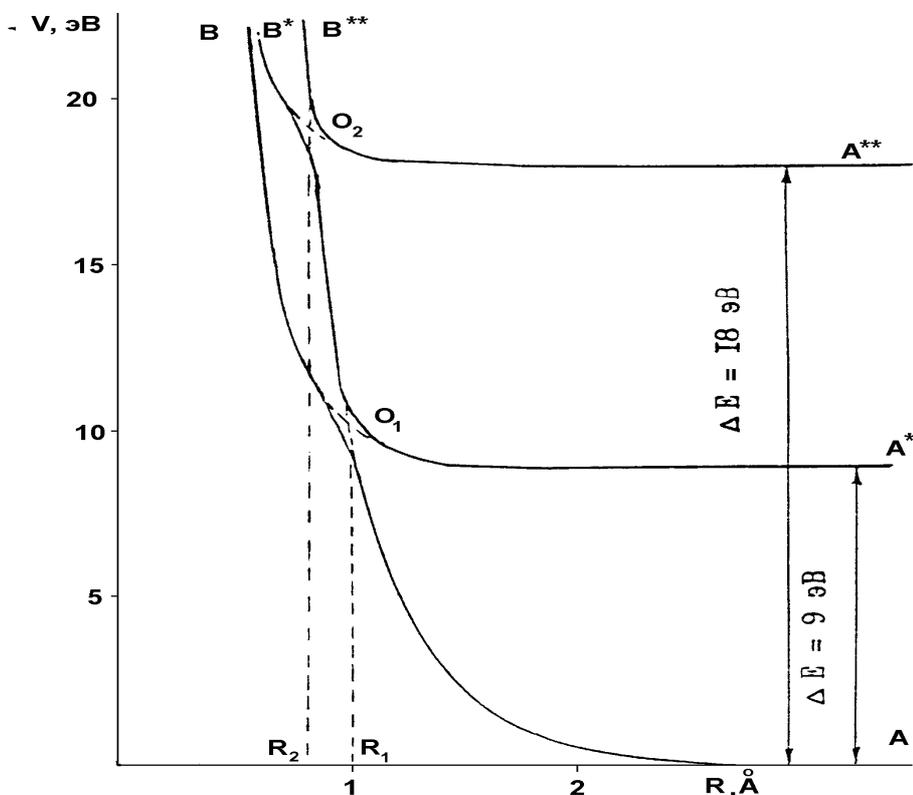


Рис.4.3.2. Система эффективных термов основного и двух возбужденных электронных состояний He- $N_2$ .

Целью этого второго подхода было описание зависимости положения особенности на дифференциальном сечении рассеяния от скорости. Второй подход рассмотрен в разделе 4.3.2. Оба эти подхода продемонстрировали возможность воспроизведения результатов экспериментов и позволили сделать ряд выводов о характере происходящих при столкновении процессов.

### 4.3.1. КЛАССИЧЕСКАЯ ЗАДАЧА РАССЕЯНИЯ НА СИСТЕМЕ ТРЕХ ПЕРЕСЕКАЮЩИХСЯ ТЕРМОВ

Рассмотрим классическую задачу рассеяния по системе термов, показанных на рис.4.3.2. Будем считать, что вероятность перехода с адиабатического терма АВ на терм А\*В\* равна  $P_1$ , а вероятность перехода с терма А\*В\* на терм А\*\*В\*\* равна  $P_2$ . В соответствии с формулой Ландау-Зинера эти вероятности можно записать в виде:

$$P_i = \exp\left(-\frac{2\pi\varepsilon^2}{v_0 h \Delta F \sqrt{(1-(b/R_i^2))-(V(R_i)-V_i(\infty))/E}}\right) \quad (4.3.1.1)$$

где  $b$  - прицельный параметр,  $v_0$  - скорость относительного движения на бесконечности,  $2\varepsilon$ - раздвижение термов,  $\Delta F$  - разность производных адиабатических термов в точке перехода  $R_i$ ,  $V_i(\infty)$ -потенциальная энергия в начальном состоянии,  $V(R_i)$ - значение потенциальной энергии в точке  $R_i$ .

Для системы термов, нарисованных на рис.4.3.2, при рассеянии частиц первоначально (на входном канале) "движущихся" по терму АВ могут реализовываться следующие события:

АО <sub>1</sub> ВО <sub>1</sub> А	- (т.е. частица до точки наибольшего сближения "движется" по терму АО <sub>1</sub> В, а затем "возвращается" по тому же терму АО <sub>1</sub> В); вероятность такого события равна $(1-P_1)^2$	
АО <sub>1</sub> О <sub>2</sub> В*О <sub>2</sub> О <sub>1</sub> А	с вероятностью $P_1(1-P_2)^2P_1$	
АО <sub>1</sub> О <sub>2</sub> В**О <sub>2</sub> О <sub>1</sub> А	-- " -- $P_1^2P_2^2$	(4.3.1.1)
АО <sub>1</sub> ВО <sub>1</sub> А*	-- " -- $(1-P_1)P_1$	
АО <sub>1</sub> О <sub>2</sub> В*О <sub>2</sub> О <sub>1</sub> А*	-- " -- $P_1(1-P_2)^2(1-P_1)$	
АО <sub>1</sub> О <sub>2</sub> В**О <sub>2</sub> О <sub>1</sub> А*	-- " -- $P_1P_2^2(1-P_1)$	
АО <sub>1</sub> О <sub>2</sub> В*О <sub>2</sub> А**	-- " -- $P_1P_2(1-P_2)$	
АО <sub>1</sub> О <sub>2</sub> В**О <sub>2</sub> А**	-- " -- $P_1P_2(1-P_2)$	

Случаи 1,2 и 3 на выходе приводят к входному каналу, то есть соответствуют упругому рассеянию и вызывают появление пика на спектре неупругих потерь энергии в районе 0 эВ. Случаи 4, 5 и 6 приводят к выходу по каналу О<sub>1</sub>А\* и соответствуют возбуждению первого возбужденного уровня и вызывают появление пика на спектре неупругих потерь энергии в районе 9 эВ. Случаи 7 и 8 приводят к выходу по каналу О<sub>2</sub>А\*\* и соответствуют возбуждению второго возбужденного уровня и вызывают появление пика в районе 18 эВ. В приближении малых углов рассеяния воспользуемся соответствующими формулами для расчета угла отклонения  $\theta$  и дифференциального сечения  $\sigma(\theta)$  (в дальнейшем будем использовать приведенные координаты  $\tau = \theta \cdot E$  и  $\rho = \sigma(\theta) \cdot \theta^2$

$$\tau = - \left| \frac{d}{db} \int_b^{\infty} \frac{V(R) \cdot R \cdot dR}{\sqrt{R^2 - b^2}} \right| \quad (4.3.1.3)$$

$$\rho(\tau) = \sum_i \frac{b(\tau)}{\frac{d\tau}{db}} \quad (4.3.1.4)$$

Так как рассмотренные случаи 1-8 не могут быть описаны единой аналитической функцией для расчетов  $\tau$  и  $\rho$ , воспользуемся квадратурной формулой Гаусса-Чебышева:

$$\tau = - \frac{\pi}{2n} \sum_{j=1}^n \frac{dV}{dR} \Big|_{r_j} r_j \quad (4.3.1.5),$$

где

$$r_j = \frac{b}{\cos\left(\frac{2j-1}{2n}\pi\right)} \quad (4.3.1.6)$$

В формуле (4.3.1.5) суммирование ведется до  $n$ , а не до  $n/2$  как обычно, так как в случаях 4-8 выходной канал не идентичен входному.

Для упрощения расчетов в качестве потенциальных функций выберем три аналитические экспоненциальные функции, описывающие зависимости  $AO_1O_2B^{**} - V_1$ ,  $A^*O_1B - V_2$  и  $A^{**}O_2B^* - V_3$ , из которых составляются случаи 1-8:

$$V_i = A_i \exp(-\alpha_i R) / (1 - \exp(-\beta(R/R_1)))^2 \quad (4.3.1.7)$$

Член  $\exp(-\beta(R/R_1))$  использован для того, чтобы правильнее описывать поведение потенциала взаимодействия при малых  $R$  (т.е. обеспечивать рост потенциала при  $R \rightarrow 0$ ). В противном случае на дифференциальном сечении рассеяния появляется искусственная особенность, связанная с конечностью потенциала при  $R = 0$ . В качестве потенциала  $V_1$  был выбран:

$$V_1 = 174,748 \exp(-2,837R) / (1 - \exp(-3(R/R_2)))^2 \quad (4.3.1.8),$$

который основан на потенциале упругого взаимодействия  $AO_1$ , найденный в работе [94] (смотри также главу 3). В формуле (4.3.1.8) и в дальнейшем  $V$  в эВ, а  $R$  в Å. Из этой же работы также было приблизительно установлено положение точки  $O_1$  ( $R_1 = 1$  Å) - точки пересечения термов первого возбужденного и основного состояний.

В качестве потенциала  $V_2$  была выбрана зависимость:

$$V_2 = 150,67 \exp(-4,8R) / (1 - \exp(-3(R/R_2)))^2 \quad (4.3.1.9),$$

которая обеспечивает точку пересечения  $O_1$  и асимптотическое поведение при  $R \rightarrow 0$ .

Потенциал взаимодействия  $V_3$  подбирался довольно произвольно:

$$V_3 = 43317 \exp(-4,8R) / (1 - \exp(-3(R/R_2)))^2 \quad (4.3.1.10).$$

Для положения точки пересечения  $O_2$  было выбрано значение  $R_2 = 0.8$  Å. Следует отметить, что в дальнейшем при подгонке можно было менять параметры потенциалов  $V_1$ ,  $V_2$  и  $V_3$  и положение точек  $R_1$  и  $R_2$ , так, чтобы воспроизвести полученные результаты (например, момент появления первого и второго возбужденных состояний, положение максимума на полном дифференциальном сечении и т.п.).

Сложнее было с параметрами для формулы (4.3.1.1). Запишем ее в виде:

$$P_i = \exp\left(-\frac{PO_i}{v_0 \sqrt{1 - (b/R_0)^2 - \frac{V(R_0) - V(\infty)}{E}}}\right) \quad (4.3.1.11)$$

Таким образом, появляется параметр  $PO_i$ , который может также варьироваться.

Если рассматривать все восемь возможных событий в том виде, как они записаны выше (4.3.1.2), то максимальное значение суммарной вероятности случаев 7 и 8 не может превышать 0,25, т.е. никаким образом при больших  $\tau$  второе возбужденное состояние не может значительно превосходить упругое рассеяние и первое возбужденное состояние. Поэтому было сделано предположение, что если частица перешла на адиабатический терм  $A^{**}O_2B$  на входном канале, то на выходе она уже не может вернуться (перейти) в состояние  $A^*O_1B^*$ . В этом случае вероятности переходов (4.3.1.2) преобразуются в следующие выражения:

$$\begin{aligned} (1-P_1)^2 &= W_1 \\ P_1(1-P_2)^2 P_1 &= W_2 \\ &\text{не существует} \\ (1-P_1)P_1 &= W_4 \\ P_1(1-P_2)^2(1-P_1) &= W_5 \\ &\text{не существует} \\ P_1P_2(1-P_2) &= W_7 \\ P_1P_2 &= W_8 \end{aligned} \quad (4.3.1.12)$$

и вероятность ухода по восьмому каналу может быть достаточно большой (т.е. стремится к 1 при  $P_1$  и  $P_2$ , стремящихся к 1).

Можно выдвинуть несколько вариантов обоснованности сделанного предположения. Например, считать, что адиабатический терм  $A^{**}O_2B^{**}$  соответствует либо автоионизационному состоянию, либо имеет место переход в отталкивательное состояние молекулы  $N_2$ . Экспериментальная проверка показала, что процессы ионизации не являются определяющими. Если при столкновении произошел переход в отталкивательное состояние на входном канале, то на выходе система, в принципе, может не вернуться на связанное состояние  $A^*O_1B^*$ . Однако, из оценки времени столкновения следует нереальность такого предположения. Наиболее реалистичным, на наш взгляд, выглядит следующее объяснение. Адиабатический терм  $A^{**}O_2B^{**}$  соответствует системе близлежащих термов (на это указывает заметное уширение второго пика на спектре энергетических потерь). Если вероятность перехода между термами этой системы равна  $P$ , а число термов системы  $n$ , то полная вероятность вернуться на кривую  $O_2O_1$  равна:

$$Q = P^{2n} + (1-P)^2 \sum_{i=1}^n P^{2(n-i)}$$

Как показывают оценки, эта вероятность  $Q$  для  $n=5$  и  $P=0,7$  равна 0,2, а для  $n=10$  и  $P=0,8$   $Q=0,12$ , т.е. достаточно мала. Тем самым становится оправданным предположение о невозможности вернуться с терма  $A^{**}O_2B^{**}$  на терм  $A^*O_1B$ .

На рис.4.3.1.1 приведены зависимости  $\rho_i(\tau)$  для каждого из рассмотренных в (4.3.1.12) случаев, рассчитанных в предположении, как если бы рассеяние происходило только для случая  $i$ . Из этого рисунка видно, что имеется возможность появления неупругих потерь энергии при малых приведенных углах рассеяния. Так, первое возбужденное состояние появляется при  $\tau > 9,5$  эВ·рад ( $\rho_4$ ), а второе возбужденное состояние при  $\tau > 12,5$  эВ·рад ( $\rho_7$ ). Это связано с тем, что для некоторых случаев зависимость  $\tau(b)$  для составного потенциала имеет особенность радужного типа. На это впервые было указано в работах [119], [120].

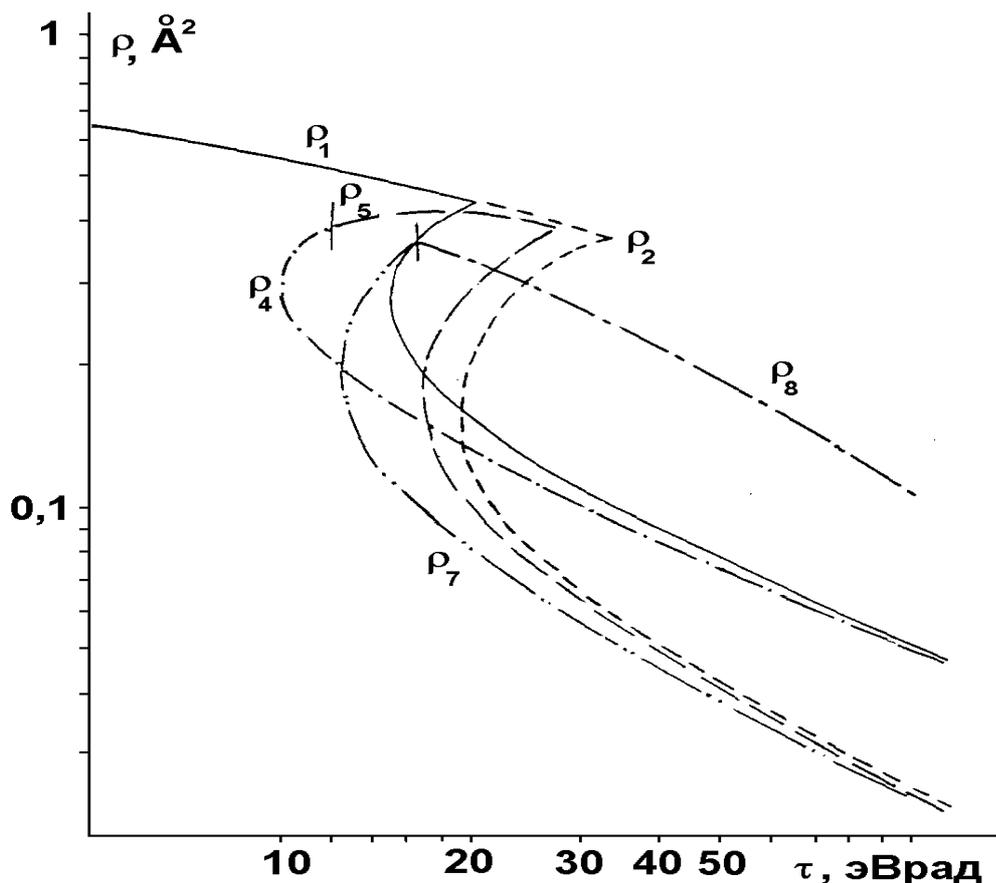


Рис.4.3.1.1. Приведенные дифференциальные сечения для рассеяния по системе термов, показанных на рис.4.3.2. Вертикальные штрихи разделяют сечения  $\rho_4, \rho_5$  и  $\rho_7, \rho_8$

Для различных наборов параметров  $\rho_{O_1}$  и  $\rho_{O_2}$  из формулы (4.3.1.11) и различных энергий  $E$  в диапазоне 1000 - 3200 эВ проводился расчет полной картины рассеяния  $b \rightarrow \tau$ ,  $P_1, P_2 \rightarrow \rho(\tau) = \sum \rho_i^* \cdot W_i$ . При этом суммировались различные случаи (каналы), приводящие на выходе к упругому рассеянию, возбуждению первого и второго возбужденных электронных состояний:

$$\begin{aligned}
 \rho_{\text{упр}}(\tau) &= \rho_1(\tau)W_1 + \rho_2(\tau)W_2 \\
 \rho_{1\text{возб}}(\tau) &= \rho_4(\tau)W_4 + \rho_5(\tau)W_5 \\
 \rho_{2\text{возб}}(\tau) &= \rho_7(\tau)W_7 + \rho_8(\tau)W_8
 \end{aligned}
 \tag{4.3.1.13}$$

На рис.4.3.1.2 приведен вариант расчета по формулам (4.3.1.13) для случая  $\rho_{O_1} = 5,93 \cdot 10^6$  см/с,  $\rho_{O_2} = 3,73 \cdot 10^6$  см/с и  $E = 2400$  эВ.

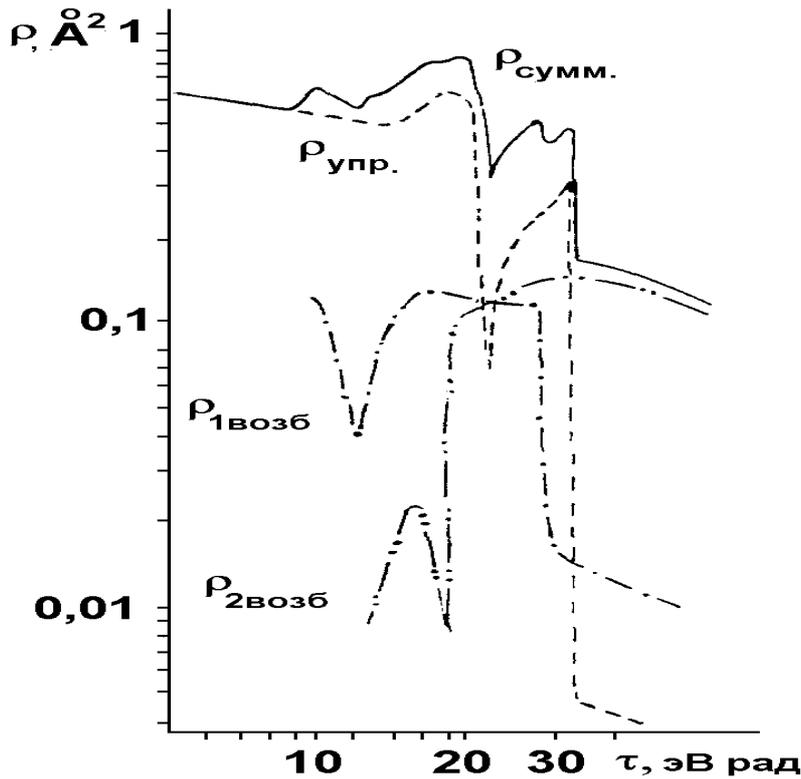


Рис.4.3.1.2. Приведенные дифференциальные сечения  $\rho_{сумм}$ ,  $\rho_{упр}$ ,  $\rho_{1возб}$ ,  $\rho_{2возб}$  для  $PO_1=5,93 \cdot 10^6$  см/с,  $PO_2=3,73 \cdot 10^6$  см/с и  $E=2400$  эВ.

Для сравнения полученных теоретических результатов с экспериментом необходимо учесть, что в измерениях происходит усреднение показанных на рис.4.3.1.2 дифференциальных сечений по некоторой аппаратной функции, определяемой геометрическими размерами пучка детектора и т.п.. Вопрос расчета аппаратной функции довольно сложен и в данной работе было решено ограничиться простейшей аппаратной функцией в виде прямоугольника с шириной  $\Delta\alpha$ . Усреднение проводилось по формуле:

$$I(\alpha) = \int_{\alpha - \Delta\alpha}^{\alpha + \Delta\alpha} \sigma(\theta) \theta \sin \theta d\theta \tag{4.3.1.14}$$

На рис.4.3.1.3 показаны результаты расчетов  $I_{сумм}(\alpha)$ ,  $I_{упр}(\alpha)$ ,  $I_{1возб}(\alpha)$  и  $I_{2возб}(\alpha)$  при  $\Delta\alpha = 2 \cdot 10^{-3}$  рад для приведенных дифференциальных сечений, изображенных на рис.4.3.1.2. На рис.4.3.1.4 представлены результаты расчетов  $I_{сумм}(\alpha)$  для тех же  $PO_i$  и  $\Delta\alpha$  при  $E=1200, 2400$  и  $3200$  эВ. Из этого рисунка хорошо видно уменьшение амплитуды пика на дифференциальном сечении рассеяния ( $I_{сумм}$ ) и сдвиг положения максимума этого пика в районе  $\tau \sim 10-20$  эВ рад при увеличении энергии столкновения (можно сопоставить с рис.4.3.1). Этот сдвиг вызван изменением вклада  $I_{упр}(\alpha)$ ,  $I_{1возб}(\alpha)$  и  $I_{2возб}(\alpha)$  в зависимости от скорости (энергии пучка). Для сравнения полученных теоретических результатов с имеющимися спектрами неупругих потерь была проделана следующая процедура для  $\tau = 1$  мрад эВ для различных энергий пучка ( $E=1200, 2400$  и  $3200$  эВ) по рисункам, аналогичным рис. 4.3.1.3,  $\tau$  были определены сечения  $I_{упр}(\tau_0)$ ,  $I_{1возб}(\tau_0)$  и  $I_{2возб}(\tau_0)$  эти амплитуды были отложены по оси ординат в точках  $\Delta E = 0$  эВ, 9 эВ и 18 эВ, соответственно. Поскольку

в эксперименте первоначальный пучок не является строго монокинетичным, а имеет разброс по энергиям, описываемый гауссовским распределением, то для воспроизведения экспериментальных результатов вокруг  $I_i(\alpha)$  были построены гауссовские распределения с дисперсией, полученной из эксперимента. Таким образом, был получен рис.4.3.1.5. Аналогичным образом построен рис.4.3.1.6. Эти рисунки можно сравнить с рис. 4.1.2 и 4.1.3. Из сравнения видно, что расчеты качественно (и полуколичественно) описывают также и измеренные спектры неупругих потерь.

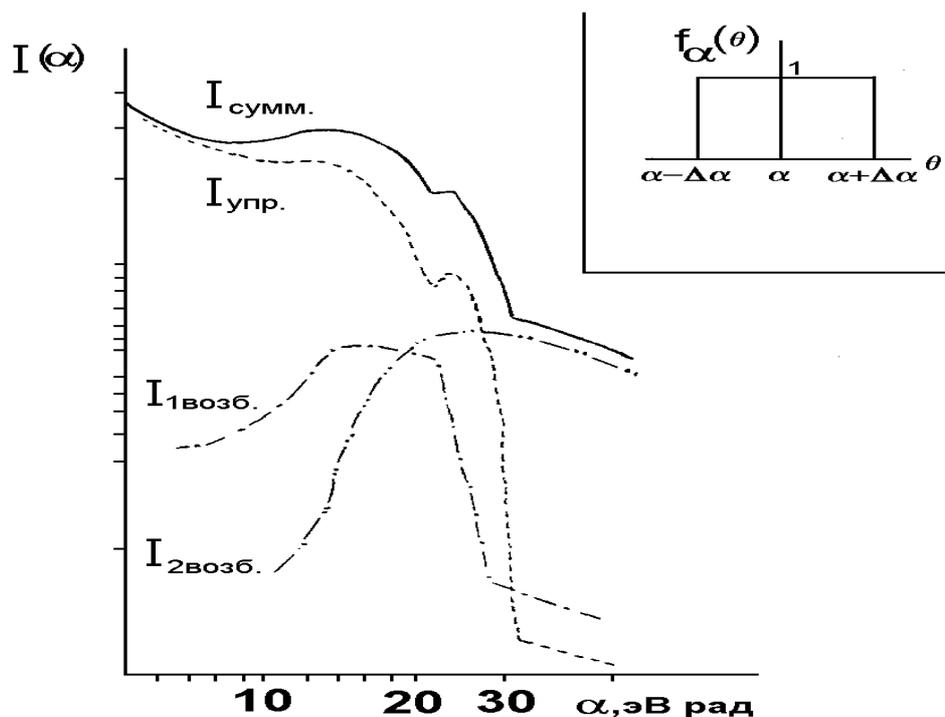


Рис.4.3.1.3. Усредненные по аппаратной функции приведенные дифференциальные сечения, показанные на рис.4.3.1.3. Вид аппаратной функции показан на врезке ( $\Delta\alpha=20$  мрад).

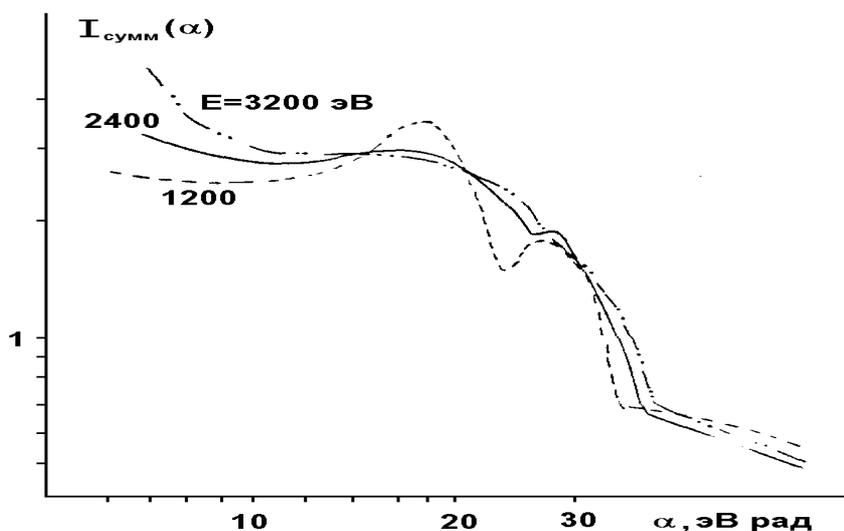


Рис.4.3.1.4. Результаты расчетов  $I_{сумм}(\alpha)$  для  $E=1200, 2400$  и  $3200$  эВ  $PO_1=5,93 \cdot 10^6$  см/с,  $PO_2=3,73 \cdot 10^6$  см/с).

Суммируя результаты, можно сказать, что нам удалось воспроизвести качественно все особенности экспериментально измеренных полных дифференциальных сечений рассеяния [113], [93] и экспериментальных спектров неупругих потерь энергии. Проведенный анализ позволил получить оценки параметров в формуле вероятности переходов Ландау-Зинера.

#### **4.3.2. РАСЧЕТ МЕТОДОМ МОЛЕКУЛЯРНОЙ ДИНАМИКИ ДИФФЕРЕНЦИАЛЬНЫХ СЕЧЕНИЙ СТОЛКНОВЕНИЯ АТОМ-МОЛЕКУЛЯРНЫХ СИСТЕМ**

Как было показано в разделе 4.3.1, особенность радужного пика на полных дифференциальных сечениях рассеяния с участием молекул можно объяснить на основе модели трехуровневой квантовой системы. Было показано, что можно подобрать параметры модели так, что она полуколичественно воспроизведет почти все наблюдавшиеся в эксперименте [94] особенности.

Специального рассмотрения, однако, требует вопрос количественного описания этой моделью обнаруженной зависимости положения радужных пиков на полных дифференциальных сечениях рассеяния от скорости (смотри параграф 4.1). В предыдущем параграфе было лишь указано, что трехуровневая модель с двумя точками пересечения между основным и возбужденными состояниями такую зависимость предсказывает. Количественно данный вопрос в предыдущем параграфе не обсуждался. Между тем, наличие здесь расхождений между теорией и экспериментом может послужить обоснованием для введения в модель гипотезы о зависимости положения точек пересечения электронных термов от скорости в момент столкновения и тем самым возврату к идее о влиянии радиальных движений ядер  $N_2$  на рассеивающий потенциал. Чтобы окончательно исключить из рассмотрения механизмы, связанные с движением ядер, в данном параграфе зависимость радужных пиков на полных дифференциальных сечениях рассеяния от энергии пучка  $E$  исследована с количественной стороны.

Имеется еще одна сторона проблемы, которая не нашла в предыдущем разделе должного исследования. Так, в разделе 4.3.1 подмечено, что в трехуровневой модели вероятность переходов на верхнее электронное состояние не может превышать вероятности переходов системы на первый возбужденный уровень. В экспериментах, однако, вероятность перехода на верхние возбужденные электронные состояния может быть значительно больше, чем на нижние. Чтобы описать измерения спектров потерь энергии He на молекулах  $N_2$ , в предыдущем параграфе было введено предположение о том, что любая атом-молекулярная система, попавшая на верхнее возбужденное состояние, не может никоим образом перейти на низколежащие электронные уровни. Такое предположение подправляет результаты теории в нужную сторону. В качестве обоснования этого предположения утверждалось, что второй возбужденный электронный уровень представляет из себя набор близлежащих электронных термов с малой вероятностью переходов на каждый из них. При этом, если молекулярная система попадает на такую структуру, то она с заметной вероятностью уйдет с основного состояния и с малой вероятностью вернется обратно. С целью проверки этого предположения в данном параграфе численно исследовался вопрос о том, позволяет ли включение в расчет большого числа близлежащих электронных уровней во второе возбужденное состояние описать экспериментальную зависимость положений радужных пиков на дифференциальных сечениях рассеяния от энергии.

Рассмотрим методику расчета дифференциального сечения. Аналогично разделу 4.3.1 было предположено, что в системе He- $N_2$  действуют сферически - симметричные силы взаимодействия, причем трехуровневую квантовую задачу можно решить, считая, что пере-

ходы локализованы вблизи некоторых межатомных расстояний  $R_0$  можно воспользоваться для вычисления вероятностей переходов моделью Ландау-Зинера. Тогда, пренебрегая квантово-механическими интерференционными эффектами, дифференциальное сечение рассеяния можно вычислить по формуле:

$$\rho(\tau) = \sum \theta b_i db_i P_i(b_i(\theta)), \quad (4.3.2.1)$$

где  $b_i = b_i(\theta)$ .. зависимость прицельного параметра от угла рассеяния, определяемая на основе  $i$ -ой ветви потенциальной кривой, а  $P_i(b_i(\theta))$ .. вероятности переходов, вычисленные по модели Ландау-Зинера.

В принципе соотношение (4.3.2.1) вполне достаточно для проведения вычислений, если задана система сферически-симметричных термов в He-N<sub>2</sub> и численные значения параметров в модели Ландау-Зинера. Для этих величин можно воспользоваться данными, найденными в предыдущем разделе. При этом отметим одно обстоятельство, которое в предыдущем параграфе не учитывалось, а в данном рассмотрении было принято во внимание.

Спектры энергетических потерь показывают значительную ширину пиков, соответствующих возбужденным состояниям. Эта ширина при некоторых приведенных углах заметно превышает ширину пика, отвечающего упруго рассеянными частицам. Можно предположить, что это не только аппаратные эффекты, но вклад в каждый пик дают несколько возбужденных состояний (это было показано в параграфе 4.2). Поскольку возбужденных состояний, отвечающих заданному пику, может быть большое число, то параметры потенциалов всей совокупности этих состояний вряд ли когда - либо могут быть определены строго. Следовательно, практически невозможно прогнозировать их точки пересечения и возможные пути, с помощью которых молекулярная система оказывается в заданном конечном состоянии.

Если на траектории квазимолекула много раз случайным образом совершала электронные переходы, то это эквивалентно тому, что на нее на траектории действовала хаотическая по модулю сила. Наличие такой силы приводит к случайному разбросу в углах рассеяния. Чтобы учесть этот случайный разброс, не прибегая к точному заданию параметров большого числа неизвестных потенциалов, можно поступить следующим образом.

Обратим внимание на то, что из данных [94] следует, что все возможные потенциалы можно разделить на группы по величине порога (т.е.  $\Delta E = 9$  и  $16,5$  эВ для He-N<sub>2</sub>). Будем считать, что если состояние принадлежит к группе с порогом  $\Delta E$ , то при любых межатомных расстояниях оно не выходит за пределы полосы шириной в  $\delta(\Delta E)$  в переменных  $V(R)$  и  $R$ . Будем считать, что в любой точке потенциала  $V(R)$ , если он принадлежит полосе, система может совершить электронный переход на соседнее состояние  $V(R)$ , также принадлежащее этой полосе, и не может совершать переходы в состояния  $V(R)$ , принадлежащие другим полосам. Таким образом, внутри полосы путь системы в переменных  $V(R)$  и  $R$  подобен дрейфу заряженной броуновской частицы в электрическом поле. Построенную таким образом конструкцию назовем квазиуровнем.

Чтобы рассчитать дифференциальное сечение рассеяния в системе He-N<sub>2</sub> с учетом квазиуровней имеется две возможности. Во-первых, воспользоваться методом Монте-Карло. При этом, чтобы учесть "диффузное" движение системы по квазиуровням, придется вычислять континуальные интегралы, аналогичные интегралам Фейнмана-Винера, методом численного интегрирования. Во-вторых, использовать метод молекулярной динамики. Мы выбрали второй путь. Согласно этому методу алгоритм расчета дифференциальных сечений рассеяния состоит в следующем. Задается  $M$  - число частиц, траектории которых будут "разыгрываться" в пространстве  $V(R)$ ,  $R$ . Для каждой частицы разыгрывается значение прицельного параметра. Для заданного значения прицельного параметра с помощью датчика псевдослучайных чисел разыгрывается путь системы в переменных  $V(R)$  и  $R$ . То, как это было сде-

лано в настоящей работе, требует специального пояснения.

Предложенный алгоритм, как легко убедиться, зависит от трех произвольных параметров: от шага дискретизации траектории по времени -  $ht$ ; от шага по углам при построении гистограмм дифференциального сечения рассеяния -  $\Delta\tau$ , от числа шагов системы внутри квазиуровня -  $N$ , для которых разыгрывается вероятность ухода системы из основного состояния на квазиуровень или с квазиуровня на квазиуровень по модели Ландау-Зинера.

Шаг дискретизации траектории по времени фактически определяет шаг вычисления однократных интегралов численными методами. Все физические результаты получались при исследовании численных результатов на сходимость при  $ht \rightarrow 0$ .

Шаг  $\Delta\tau$  определяет уровень углового разрешения, с которым вычисляется в молекулярно-динамических расчетах дифференциальные сечения рассеяния. Вообще говоря, истинное дифференциальное сечение рассеяния следует получать при исследовании численных дифференциальных сечений рассеяния на сходимость при  $\Delta\tau \rightarrow 0$ . Однако, на практике это невозможно. Задание мелких шагов приводит к необходимости в счете разыгрывать большое общее число траекторий, что требует слишком большой памяти ЭВМ и большого времени счета. Задание очень крупных шагов сильно искажает результат и поэтому малоинформативно. Существует оптимальное значение  $\Delta\tau$ , с которым следует работать. Нами оно выбиралось из условия, чтобы угловое разрешение в расчетах методом молекулярной динамики совпадало с угловым разрешением аппаратуры, которая использовалась для измерений дифференциальных сечений рассеяния в [30] и составляло  $\Delta\tau \sim 1$  эВ·рад. При этом зачастую отдельные элементы структуры дифференциальных сечений рассеяния исследовались на гистограммах, построенных при различных  $\Delta\tau$ .

Параметр  $N$  фактически определял используемую в расчетах трехуровневую модель. Если внутри квазиуровня система могла совершить только один шаг, для которого разыгрывалась вероятность ее ухода из основного состояния, то такой случай соответствовал расчетам с изолированными электронными уровнями. Если внутри квазиуровня система совершала большое число шагов, в которых разыгрывалась вероятность переходов из основного состояния на квазиуровень, то в этом случае в расчетах реализовывался случай, когда возбужденное состояние является набором близкорасположенных электронных термов.

Прежде всего был рассмотрен вопрос, может ли трехуровневая модель описать дифференциальное сечение рассеяния в He-N<sub>2</sub> без предположения, запрещающего девозбуждение с верхнего электронного терма. Оказалось, что это предположение играет весьма важную роль. Без него молекулярно-динамические расчеты начинают противоречить эксперименту не только в описании спектров энергопотерь, но и в предсказываемой зависимости положения радужного угла в дифференциальном сечении рассеяния от энергии. Сказанное подтверждают следующие результаты. В серии молекулярно-динамических расчетов было принято, что ширина квазиуровней мала. При этом шаг расчета внутри квазиуровня был выбран таким, чтобы один раз разыгрывалась вероятность ухода системы из основного состояния на квазиуровень. Поставленные условия реализуют трехуровневую модель, в которой гипотеза о запрещении девозбуждения с верхнего электронного уровня не выполнена. Полученные результаты показаны на рис.4.3.2.1-4.3.2.4.

На рис. 4.3.2.1 приведены дифференциальные сечения рассеяния системы He-N<sub>2</sub> в переменных  $\rho$  [произвольные единицы] от  $\ln\tau$  при  $E=1200$  эВ, рассчитанные в работе [54]; молекулярно-динамические расчеты настоящей работы; а также экспериментальные данные [121].

На рис.4.3.2.2 те же зависимости отвечают энергии атомов He в 2400 эВ. Видно, что теоретические кривые качественно верно описывают характер изменения положения радужного пика с энергией, хотя и заметно, что в теории положение пика меняется слабее,

чем в эксперименте. С увеличением энергии наблюдается значительное различие в результатах между молекулярно-динамическими расчетными данными с одной стороны и данными расчетов [54] и экспериментом [121] с другой.

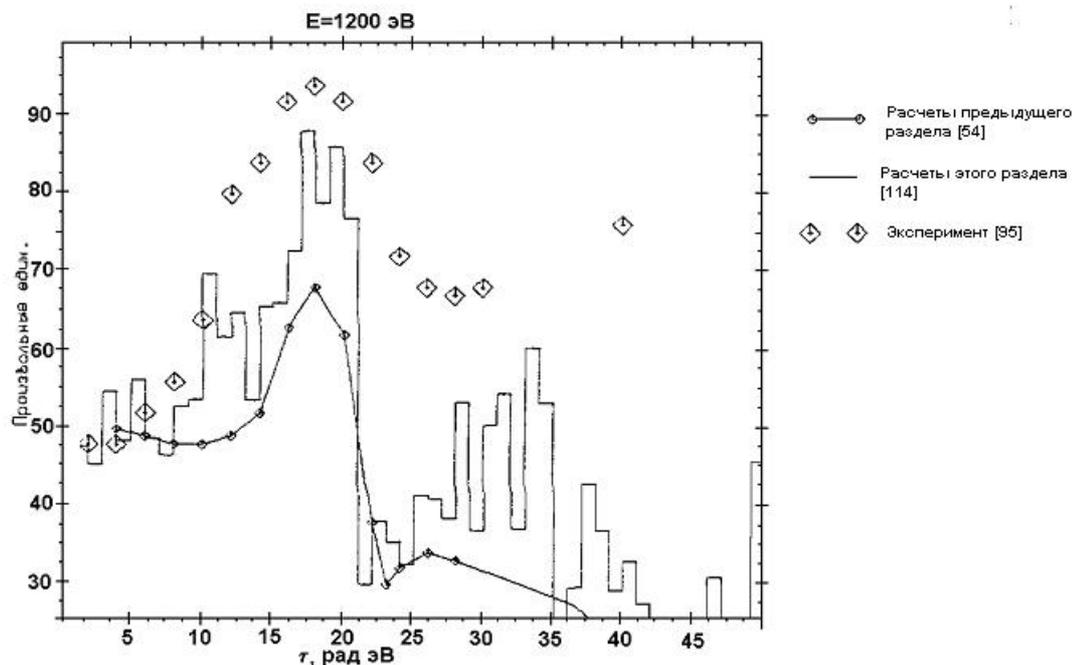


Рис.4.3.2.1. Экспериментальные и расчетные дифференциальные сечения рассеяния системы He-N<sub>2</sub> для энергии 1200 эВ.

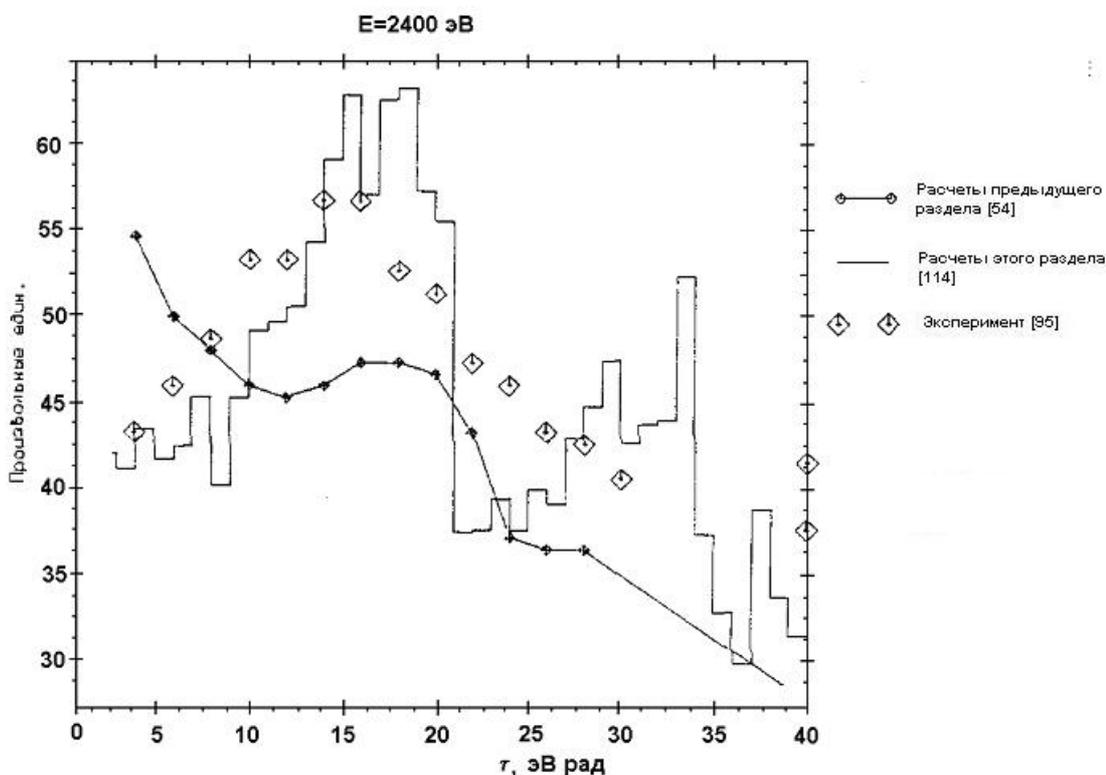


Рис.4.3.2.2. Экспериментальные и расчетные дифференциальные сечения рассеяния системы He-N<sub>2</sub> для энергии 2400 эВ.

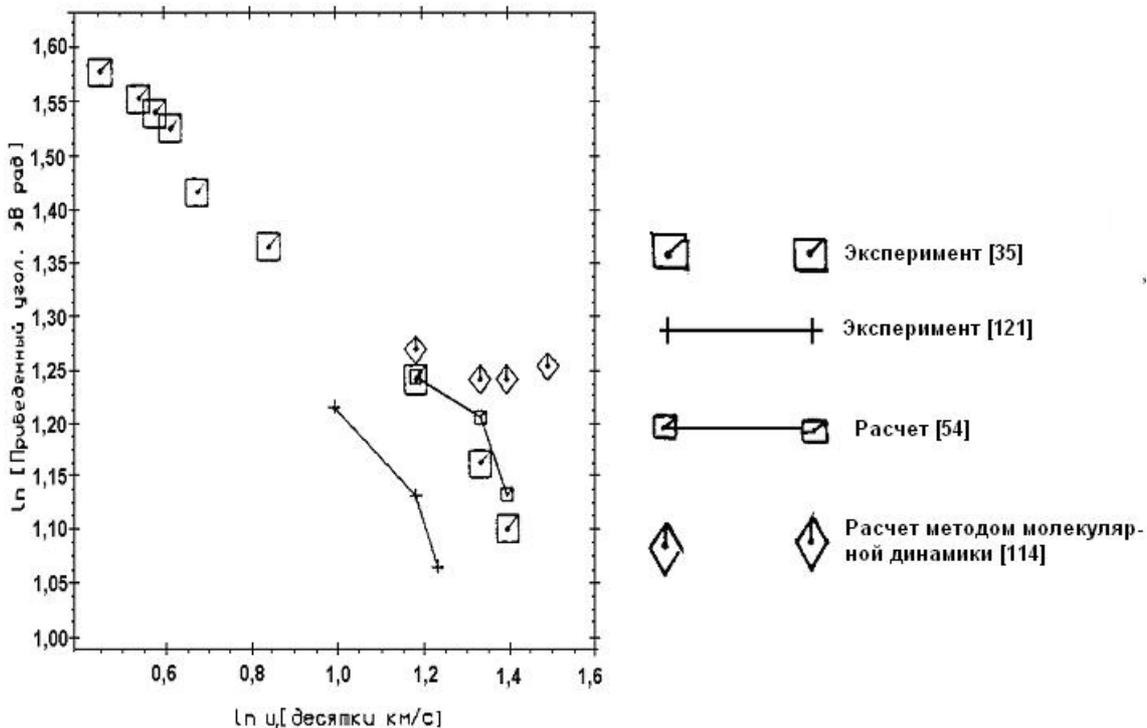


Рис.4.3.2.3. Зависимость радужного угла от скорости столкновения в двойных логарифмических координатах.

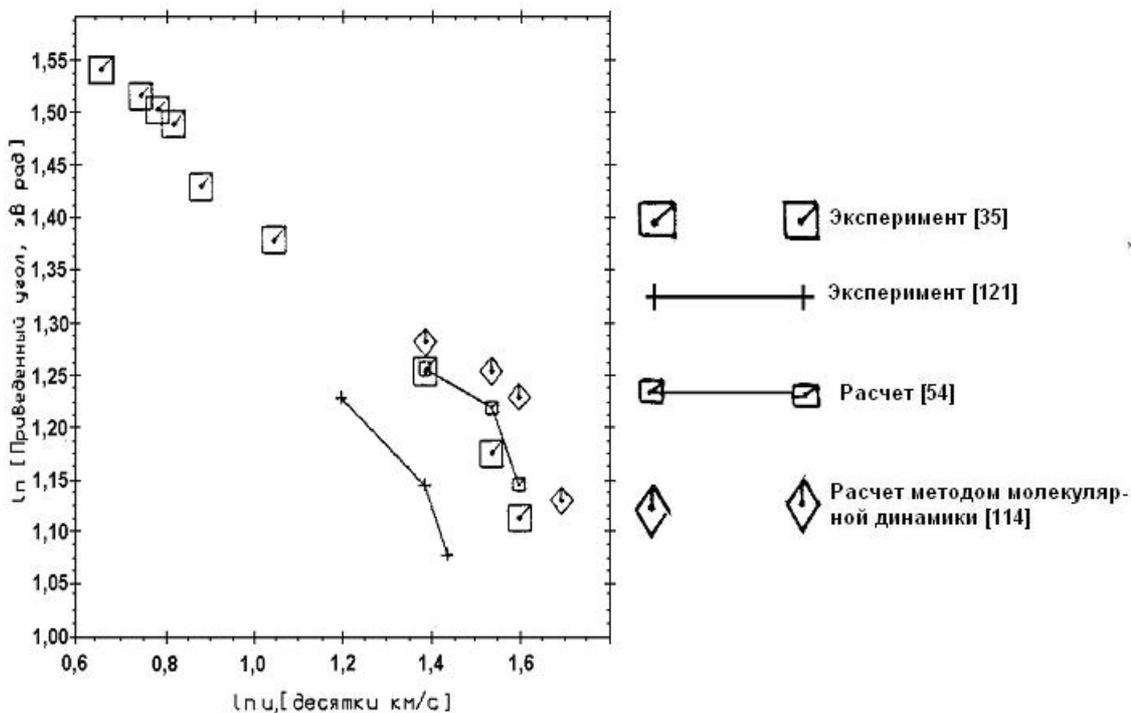


Рис.4.3.2.4. Зависимость радужного угла от скорости столкновения с учетом гипотезы, запрещающей девозбуждение со второго уровня в двойных логарифмических координатах.

Сказанное иллюстрирует рис.4.3.2.3, где по оси координат отложено значение натурального логарифма радужного угла, а по оси абсцисс логарифм скорости  $u$ , выраженной в

десятках км/сек. Видно, что начиная с энергии  $E = 2400$  эВ (что соответствует логарифму скорости 1.5), данные расчетов расходятся между собой, причем к эксперименту ближе результаты [54], в которых запрещено девозбуждение со второго уровня.

В связи с рис.4.3.3.3 отметим еще одно обстоятельство. На нем экспериментальные данные представлены двумя сериями точек. Эти серии взяты из работ разных экспериментальных групп [121] и [35]. Как видно, в выбранных переменных точки хорошо ложатся на прямые, наклоны которых взаимно согласуются между собой, между тем как положения этих кривых отличаются друг от друга.

Итак, проведенное сравнение показывает, что отсутствие в трехуровневой модели гипотезы, предложенной в предыдущем разделе, приводит к неверным результатам при попытке описать динамику изменения положений максимумов радужных пиков с изменением энергии. Для объяснения введенной гипотезы имеется несколько возможностей. Обсудим их.

Предположим, что верхнее электронное состояние является каналом, попадая на который система достаточно быстро и кардинально изменяет свое строение, причем необратимым образом. К процессам такого типа в данном случае следует отнести диссоциацию  $N_2$  и ионизацию одной из частиц в процессе столкновения. Также можно предположить, что трехуровневая модель не верна, потому что три уровня могут иметь больше точек пересечения. Кроме того, допустимо предположение, что верхнее возбужденное состояние является набором близко расположенных электронных уровней. Проанализируем эти причины.

Прежде всего следует отметить, что в обсуждаемых экспериментах условия таковы, что время столкновения примерно на порядок меньше времени диссоциации молекулы  $N_2$ . Действительно,

$$\tau_{He \rightarrow N_2} / \tau_{N_2 \rightarrow 2N} \sim \sqrt{E_{\text{дисс}} / E} \approx \sqrt{10/1000} = 0,1,$$

где  $E_{\text{дисс}}$  - энергия диссоциации молекулы  $N_2$ . Следовательно, диссоциация  $N_2$  не может являться причиной “залипания” системы в верхнем электронном состоянии. Аналогичная оценка для времени ионизации системы дает:

$$\tau_{He \rightarrow N_2} / \tau_{N_2 \rightarrow N_2^+ + e} \sim \sqrt{I_{\psi^m} / E} * \sqrt{\mu / m_e} \approx \sqrt{10/1000} \sqrt{10^4} = 10$$

I-потенциал ионизации  $N_2$ ;  $\mu$  - приведенная масса системы He- $N_2$ ;  $m_e$  - масса электрона. Это говорит о том, что процесс выброса электрона из системы по отношению ко времени ее взаимодействия с атомом - процесс быстрый и, следовательно, одна из возможных причин обсуждаемых особенностей в экспериментальных данных - ионизация.

Если в трехуровневую модель ввести еще одну точку пересечения, то окажется, что в такой системе термов вероятность оказаться во втором возбужденном состоянии может быть больше, чем в первом. Таким образом, это означает, что данная схема в принципе пригодна для описания особенностей экспериментальных спектров энергопотерь в He- $N_2$ . Нами специально исследовался вопрос - можно ли выбрать в такой системе параметры модели Ландау-Зинера так, чтобы описать наблюдаемое в экспериментах движение положения пиков дифференциальных сечений рассеяния по шкале  $\tau$  с изменением энергии  $E$ . Была проведена выборочная проверка нескольких комбинаций параметров модели Ландау-Зинера в трехточечной схеме.

Ни в одной из выбранных комбинаций нам не удалось наблюдать заметного изменения положений радужного пика при изменении энергии с 2400 эВ до 3200 эВ. Таким образом, мы склонны считать, что данная причина не является удовлетворительной для объяснения всех особенностей экспериментальных данных в He- $N_2$ .

Специальная серия расчетов была проведена с целью имитировать ситуацию, когда второй возбужденный электронный уровень представляет из себя набор большого числа близкорасположенных электронных термов с малой вероятностью перехода на каждый из

них. Для молекулярно-динамических расчетов была выбрана малая ширина первого квазиуровня  $\delta(\Delta E_1)=1$  эВ и большая ширина второго  $\delta(\Delta E_2)=13.5$  эВ. Потенциалы, описывающие границы квазиуровней, выбирались в форме:

$$V(R) = A_{1,2}^{u,d} \exp(-\lambda_{1,2}^{u,d} R) + d_{1,2}^{u,d},$$

где  $d_{1,2}^{u,d}$  - величина порога для верхней и нижней границ квазиуровней 1 и 2 соответственно.

В частности, параметры потенциалов, описывающих нижние границы квазиуровней, выбирались в виде:

$$A_1^d = 150,67 \text{ эВ}; \lambda_1^d = 2,544 \text{ а.е.}; d_1^d = 9 \text{ эВ};$$

$$A_2^d = 43,317 \text{ эВ}; \lambda_2^d = 2,544 \text{ а.е.}; d_2^d = 16,5 \text{ эВ}.$$

Для верхней границы квазиуровней использовались значения:

$$A_1^u = 150,67 \text{ эВ}; \lambda_1^u = 2,544 \text{ а.е.}; d_1^u = 10 \text{ эВ};$$

$$A_2^u = 43,317 \text{ эВ}; \lambda_2^u = 2,544 \text{ а.е.}; d_2^u = 30 \text{ эВ}.$$

Шаг расчетов внутри второго квазиуровня был принят таким, чтобы много раз разыгрывалась возможность ухода системы с основного состояния на квазиуровень. Поставленные условия реализуют ситуацию, когда гипотеза, запрещающая девозбуждение со второго возбужденного уровня, в трехуровневой модели выполнена. Были проведены расчеты для энергий атомов  $E=1200-5000$  эВ. Расчеты показали, что если во второй квазиуровень включить большое число возбужденных состояний (т.е. придать второму квазиуровню значительную ширину), то молекулярно-динамические расчеты весьма неплохо воспроизводят экспериментальные положения максимумов на кривых дифференциальных сечений рассеяния. Сказанное иллюстрирует график зависимости логарифма радужного угла от логарифма скорости, который был получен в этой серии (см. рис.4.3.2.4). Тем самым можно утверждать, что использование гипотезы, запрещающей девозбуждения со второго уровня, необходимо для объяснения экспериментальных данных [121], [35].

Из сказанного ранее следует, что наличие такого запрета может объясняться двумя причинами. Во-первых, ионизацией одной из частиц в системе в момент соударения. Во-вторых, тем, что второй неупругий пик в спектрах энергопотерь соответствует системе близкорасположенных электронных термов. В настоящий момент нет достаточных оснований для того, чтобы выбрать, какая из этих двух причин играет определяющую роль. Альтернативу можно было бы разрешить, исследовав процессы ионизации в системе He-N<sub>2</sub> в кэВ диапазоне экспериментально (особенно для углов, где второй пик по амплитуде существенно превосходит первый). Предварительные исследования этого вопроса были проведены и показали, что процессы ионизации дают малый вклад в сечения. Однако, эта проблема должна быть более тщательно исследована. Таким образом, нами было показано:

1. Что трехуровневая модель с двумя точками пересечения без дополнительных предположений не позволяет воспроизвести в расчете экспериментальную зависимость [121] положения радужного пика от скорости.

2. Если в эту модель ввести запрет на девозбуждение системы со второго возбужденного уровня, то расчеты неплохо воспроизводят зависимость [121] положения радужного пика от скорости.

3. Из четырех рассмотренных механизмов, следствием которых может быть запрет на девозбуждения, следует, что только два - ионизация и возбуждение системы близлежащих термов - имеет смысл принимать во внимание. При этом отмечается целесообразность проведения дополнительных экспериментальных исследований эффектов ионизации в системе He-N<sub>2</sub> в кэВ области с целью установить, какой из перечисленных двух факторов доминирует.

## ГЛАВА 5. ПРИЛОЖЕНИЕ НАЙДЕННЫХ ЭМПИРИЧЕСКИХ ПОТЕНЦИАЛОВ

В данной работе уже неоднократно подчеркивалось, что изучение рассеяния быстрых пучков на малые углы позволяет получать информацию о взаимодействии частиц на малых расстояниях сближения. Эти расстояния реализуются при высоких температурах ( $T > 2000$  К) и больших давлениях ( $P > 100$  Кбар). Надежные данные о свойствах реальных веществ имеются в основном для температур, не выше одной – двух тысяч градусов, и давлений, не превышающих сотни килобар. Данных о свойствах при более высоких температурах существенно меньше. Они, как правило, имеют заметно меньшую точность и заполняют только отдельные участки плоскости термодинамических переменных. Такое положение обусловлено трудностями создания таких экстремальных условий и, главным образом, сложностью проведения количественных измерений для них. Особенно это относится к процессам, в которых нарушается локальное термодинамическое равновесие, когда в среде происходят неравновесные химические реакции.

Очень часто для такого рода экстремальных состояний вычислительный эксперимент оказывается почти единственным способом детально исследовать явление. Важность приложений стимулирует проведение математического моделирования даже в условиях отсутствия надежных данных о свойствах реальных веществ. Для получения информации об элементарных взаимодействиях естественно обратиться к экспериментам, в которых такие взаимодействия можно выделить в явном виде, и изучать эффект каждого элементарного акта по отдельности.

Такой микроскопический подход к определению коэффициентов в уравнениях макроскопических состояний вещества достаточно известен, однако при всей очевидности реализуется не слишком часто. Это связано с тем, что, во-первых, не разработаны адекватные физические модели процессов при экстремальных условиях, и, во-вторых, во многих случаях отсутствуют надежные сведения о межчастичных и межмолекулярных взаимодействиях и не всегда ясна роль эффектов многочастичности.

В общем случае при высоких давлениях эффект многочастичности превалирует, однако для определенных систем с замкнутыми электронными оболочками взаимодействие носит в основном локальный характер и двухчастичное приближение может дать достаточно хорошую количественную оценку (например, для сжатых благородных газов). Интересующим нас экстремальным состояниям вещества отвечают столкновения с энергиями взаимодействия между частицами в диапазоне 0,1-10 эВ. Для реализации таких энергий взаимодействия наиболее подходит метод рассеяния быстрых пучков ( $E \sim 1$  кэВ) на малые углы ( $\sim 10^{-2}$ - $10^{-3}$  рад), позволяющий получить информацию именно об интересующем нас диапазоне энергий взаимодействия.

Но в эксперименте по изучению рассеяния быстрых пучков во многих случаях мы получаем эффективный потенциал взаимодействия. Это связано как с тем, что в процессе столкновения могут взаимодействовать частицы в разных квантовых состояниях, имеет место усреднение по многим взаимным ориентациям сталкивающихся частиц и, кроме того, для частиц с незамкнутыми электронными оболочками взаимодействие происходит по нескольким потенциальным кривым, асимптотически сходящимся к определенным состояниям свободных атомов или молекул. В результате столкновений многих частиц с незамкнутыми электронными оболочками (когда эффектами ориентации можно пренебречь) мы получаем картину рассеяния, определяемую некоторым набором потенциальных кривых, из которой и определяется эффективный потенциал. Перед нами встал вопрос - насколько этот эффективный потенциал может реально описывать свойства взаимодействующих частиц? В параграфе 5.1 и пойдет речь об анализе применимости получаемых из экспериментов по рассеянию эффективных потенциалов взаимодействия [93]. На примере взаимодействия атомов кислорода

в основном состоянии  $0(^3P)-0(^3P)$  и атомов водорода в основном состоянии  $H(^1S)-H(^1S)$ , которые осуществляются по нескольким потенциальным кривым, асимптотически сходящимся к определенным состояниям свободных атомов, мы демонстрируем возможность использования эффективных потенциалов для расчета интегралов столкновений. Это весьма важно для практических применений.

В параграфе 5.2 рассматриваются вопросы вычисления интегралов столкновений в широком интервале температур. Сначала мы рассматриваем вопрос о влиянии хода потенциала взаимодействия на интегралы столкновения. Затем на основе анализа многочисленных экспериментальных данных, получаемых как методом молекулярных пучков, так и из теплофизических данных, строится единая потенциальная кривая, а затем рассчитываются интегралы столкновений систем  $N_2-N_2$ ,  $O_2-O_2$ ,  $N-O_2$ ,  $O-N_2$ ,  $O-O_2$ ,  $N-N_2$ ,  $N-O_2$  [70], [71]. Кроме того, будет показано, что с точностью в несколько процентов высокотемпературные интегралы столкновения (начиная примерно с 1000 К) можно рассчитывать, используя отталкивательный потенциал экспоненциального вида во всем диапазоне расстояний сближения.

Одним из интересных приложений данных по рассеянию пучков на малые углы является использование потенциалов взаимодействия на малых расстояниях сближения для расчета сжимаемости конденсированных газов. В параграфе 5.3 рассматривается вопрос о расчете сжимаемости конденсированных газов в мегабарной области давлений [54] на основе парных потенциалов взаимодействия, полученных методом рассеяния быстрых пучков на малые углы, и проводится сравнение с различными теоретическими расчетами.

### §5.1. АНАЛИЗ ПРИМЕНИМОСТИ ПОЛУЧАЕМЫХ ИЗ ЭКСПЕРИМЕНТОВ ПО РАССЕЯНИЮ ЭФФЕКТИВНЫХ (ЭМПИРИЧЕСКИХ) ПОТЕНЦИАЛОВ ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ ДЛЯ РАСЧЕТА КОЭФФИЦИЕНТОВ ПЕРЕНОСА

Для газов, состоящих из атомов и молекул с замкнутыми электронными оболочками и находящихся в  $^1S$  или  $^1\Sigma$  состояниях, процедура определения коэффициентов вязкости, теплопроводности и т.п. довольно проста, т.к. взаимодействие таких атомов и молекул происходит по единственной поверхности потенциальной энергии. Эту единственную потенциальную функцию мы и определяем из экспериментов по рассеянию молекулярных пучков. Для атомов и молекул с незамкнутыми электронными оболочками (например, для компонентов диссоциированного воздуха) мы сталкиваемся с серьезными трудностями экспериментального определения потенциалов взаимодействия.

Дело в том, что взаимодействие таких частиц происходит по нескольким потенциальным кривым, асимптотически сходящимся к определенным состояниям свободных атомов или молекул. Так например, взаимодействие  $O_2-O_2$  в линейной конфигурации происходит по трем ( $^5\Sigma$ ,  $^3\Sigma$  и  $^1\Sigma$ - термам. В частично диссоциированном кислороде взаимодействие  $O-O_2$  в линейной конфигурации осуществляется по 6 термам ( $^5\Sigma$ ,  $^5\Pi$ ,  $^3\Sigma$ ,  $^3\Pi$ ,  $^1\Sigma$ ,  $^1\Pi$ ). В полностью диссоциированном кислороде атомы  $O$  в основном состоянии  $^3P$  взаимодействуют друг с другом по 18 термам (рис.5.1.1).

Тем не менее, в течение долгого времени было общепризнанно использовать некий эффективный потенциал взаимодействия и на его основе рассчитывать интегралы столкновений [73].

В работе [122] показано, что интегралы столкновений в случае систем с несколькими потенциальными кривыми совпадают со средними интегралами столкновений:

$$\Omega^{(l,s)}(T) = \frac{\sum_i \Omega_i^{(l,s)}(T) * p_i}{\sum_i p_i}, \quad (5.1.1)$$

где  $\Omega^{(l,s)}$  -интеграл столкновения, определяемый термом  $V_i(R)$ ,  $p_i$  - статистический вес этого терма. Экспериментальное нахождение всех термов практически невозможно. Лишь для связанных состояний спектроскопическая информация допускает восстановление хода терма в области расстояний, соответствующих потенциальной яме, а для отталкивательных термов таких данных нет.

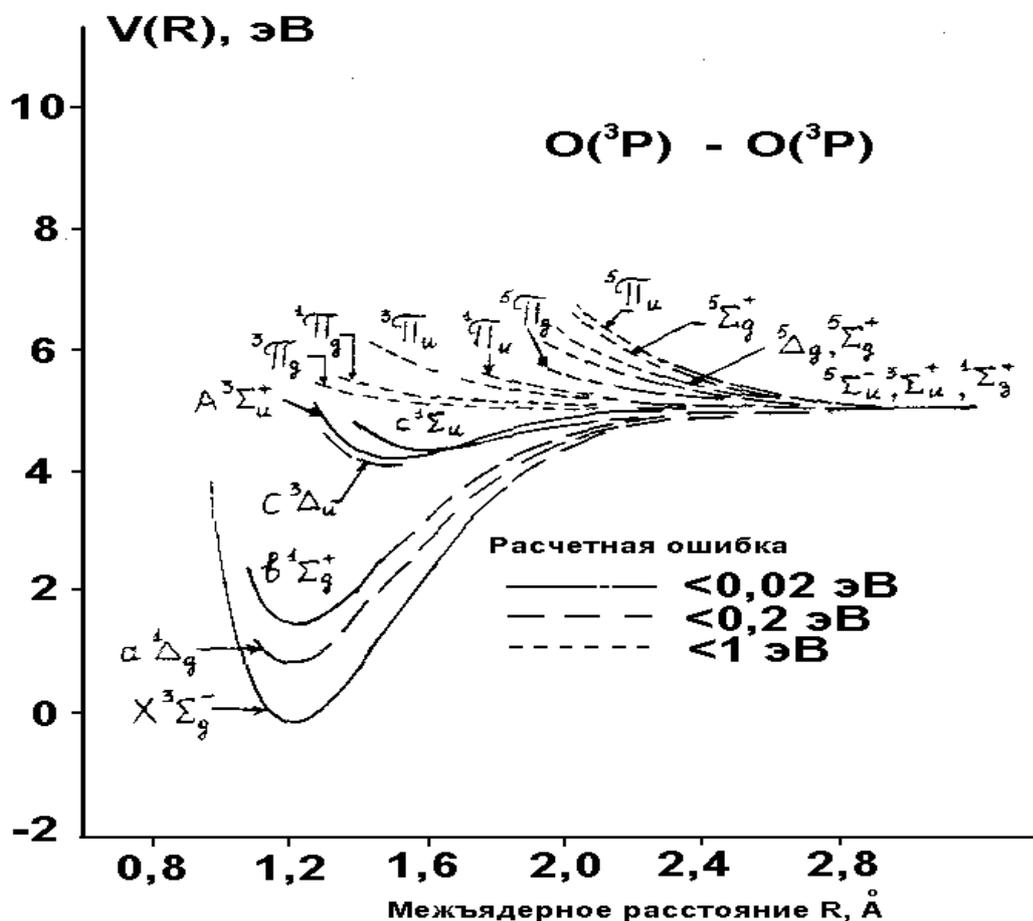


Рис. 5.1.1. Потенциалы взаимодействия системы  $O(^3P)-O(^3P)$ .

Вместо индивидуальных термов, соответствующих определенным электронным состояниям квазимолекулы, можно рассматривать эффективный потенциал взаимодействия, дающий описание картины упругого рассеяния, наблюдаемой в эксперименте, когда автоматически происходит усреднение по всем участвующим термам взаимодействия. Именно такие эффективные потенциалы определялись в экспериментах по рассеянию атомов и молекул O, N, O<sub>2</sub>, N<sub>2</sub> [43], [73], [74].

Вообще говоря, заранее не является очевидным, что такой эффективный потенциал будет обеспечивать надежный расчет коэффициентов переноса. Это тем более не очевидно для случаев, когда наряду с отталкивательными имеются термы притяжения (связанные состояния), как, например, в системе O-O. Таким образом, возникает вопрос проверки обоснованности использования эффективных потенциалов для расчетов высокотемпературных свойств диссоциирующих газов.

Ясно, что простейшим способом получения ответа является сравнение рассчитанных по эффективному потенциалу значений с данными, полученными на основе использования совокупности индивидуальных термов взаимодействия. В настоящей работе рассмотре-

ны системы  $\text{H}^1\text{S})\text{-H}^1\text{S})$  и  $\text{O}^3\text{P})\text{-O}^3\text{P})$ , которые представляют собой два крайних случая: наличие только двух термов (связанного и отталкивательного) для системы Н-Н и 18 термов у системы О-О. Поэтому полученные результаты будут, по-видимому, давать максимальную и минимальную ошибки и служить ориентиром при оценке возможных ошибок результатов для других систем.

Представим себе эксперимент по рассеянию быстрых пучков, позволяющий измерять дифференциальное сечение упругого рассеяния  $\sigma(\theta)$  систем  $\text{H}^1\text{S})\text{-H}^1\text{S})$  или  $\text{O}^3\text{P})\text{-O}^3\text{P})$ . Наличие нескольких термов означает, что наблюдаемая картина углового рассеяния окажется суммой картин рассеяния, отвечающих отдельным термам. Вклад терма определяется его статистическим весом, характеризующим частоту его реализации при столкновениях. Статистический вес терма пропорционален вырождению этого состояния [123]. Так, например, терм  $^3\Pi$   $\text{O}^3\text{P})\text{-O}^3\text{P})$  имеет вырождение, равное 6, а полное число вырождений всех 18 термов равно 81 и поэтому статистический вес  $^3\Pi$  состояния равен 6/81 ( $\sum p_i = 1$ ). Таким образом, измеряемое в таком эксперименте средневзвешенное дифференциальное сечение  $\bar{\sigma}(\theta)$  ( $\theta$  - угол рассеяния) будет равно:

$$\bar{\sigma}(\theta) = \sum_{i=1}^n \sigma_i(\theta) p_i,$$

где  $\sigma_i(\theta)$  - дифференциальное сечение, соответствующее рассеянию по терму  $V_i(R)$ . Это средневзвешенное дифференциальное сечение  $\bar{\sigma}(\theta)$  может быть использовано для решения обратной задачи - восстановления эффективного потенциала взаимодействия.

Цель настоящего исследования заключалась в том, чтобы показать, как коэффициенты переноса, рассчитанные по эффективному потенциалу, соотносятся со значениями, рассчитываемыми на основе суммирования вкладов от всех возможных термов.

Вместо проведения реального эксперимента по рассеянию пучка  $\text{O}^3\text{P})$  на мишени из атомов  $\text{O}^3\text{P})$  (или атомов  $\text{H}^1\text{S})$  на  $\text{H}^1\text{S})$ ) воспользуемся численным экспериментом, обеспечивающим расчет ожидаемой картины рассеяния. В качестве потенциальных функций межатомного взаимодействия  $V_i(R)$  для  $\text{O}^3\text{P})\text{-O}^3\text{P})$  используем аналитические представления из работы [124], аппроксимирующие результаты квантовохимических расчетов [125], а для  $\text{H}^1\text{S})\text{-H}^1\text{S})$  данные из работы [126]. Заметим, что в рамках численного эксперимента абсолютная точность данных используемых квантовохимических расчетов незначительна. Нами были использованы результаты работ [124],[125], а не более точные данные работы [127], потому что в работе [124] используются простые аналитические формулы, аппроксимирующие потенциалы взаимодействия, что значительно упростило расчет интегралов столкновения. Важно, чтобы расчет средней картины рассеяния и вычисление  $\bar{\Omega}^{(l,s)}(T)$  выполнялось с одними и теми же потенциалами. На рис.5.1.2 показана диаграмма, поясняющая смысл обсуждаемого численного эксперимента. Заметим, что вычисления  $\bar{\Omega}^{(l,s)}(T) = \sum p_i \Omega_i^{(l,s)}(T)$  для  $\text{O}^3\text{P})\text{-O}^3\text{P})$  с использованием тех же термов приведены в работе [125].

Ожидаемые для взаимодействий, описываемых термами из работ [124] и [126], зависимости средневзвешенного классического дифференциального приведенного сечения  $\rho = \sigma(\theta)\theta^2 = b \cdot \theta / b/d\theta'$  от приведенного угла  $\tau = \theta * E$ ,  $E$ - энергия столкновения) показаны на рис.5.1.3. На этом же рисунке для системы О-О показано приведенное дифференциальное сечение  $\bar{\rho}(\tau)$ , связанное только с отталкивательными термами. Величина этого сечения  $\bar{\rho}(\tau)$  составляет примерно 80% от полного средневзвешенного сечения.

На рис.5.1.3 видны остатки радужных особенностей индивидуальных дифференциальных сечений, отвечающих шести связанным состояниям  $\text{O}_2$  и связанному состоянию  $\text{X}^1\Sigma_g^+$  для  $\text{N}_2$ . Для восстановления эффективного потенциала взаимодействия  $\text{O}^3\text{P})\text{-O}^3\text{P})$  ис-

пользовался сглаженный ход приведенного дифференциального сечения, а в случае Н(<sup>1</sup>S)-Н(<sup>1</sup>S) потенциал взаимодействия восстанавливался из  $\bar{\rho}(\tau)$  вплоть до  $\tau=5$  эВ·рад.

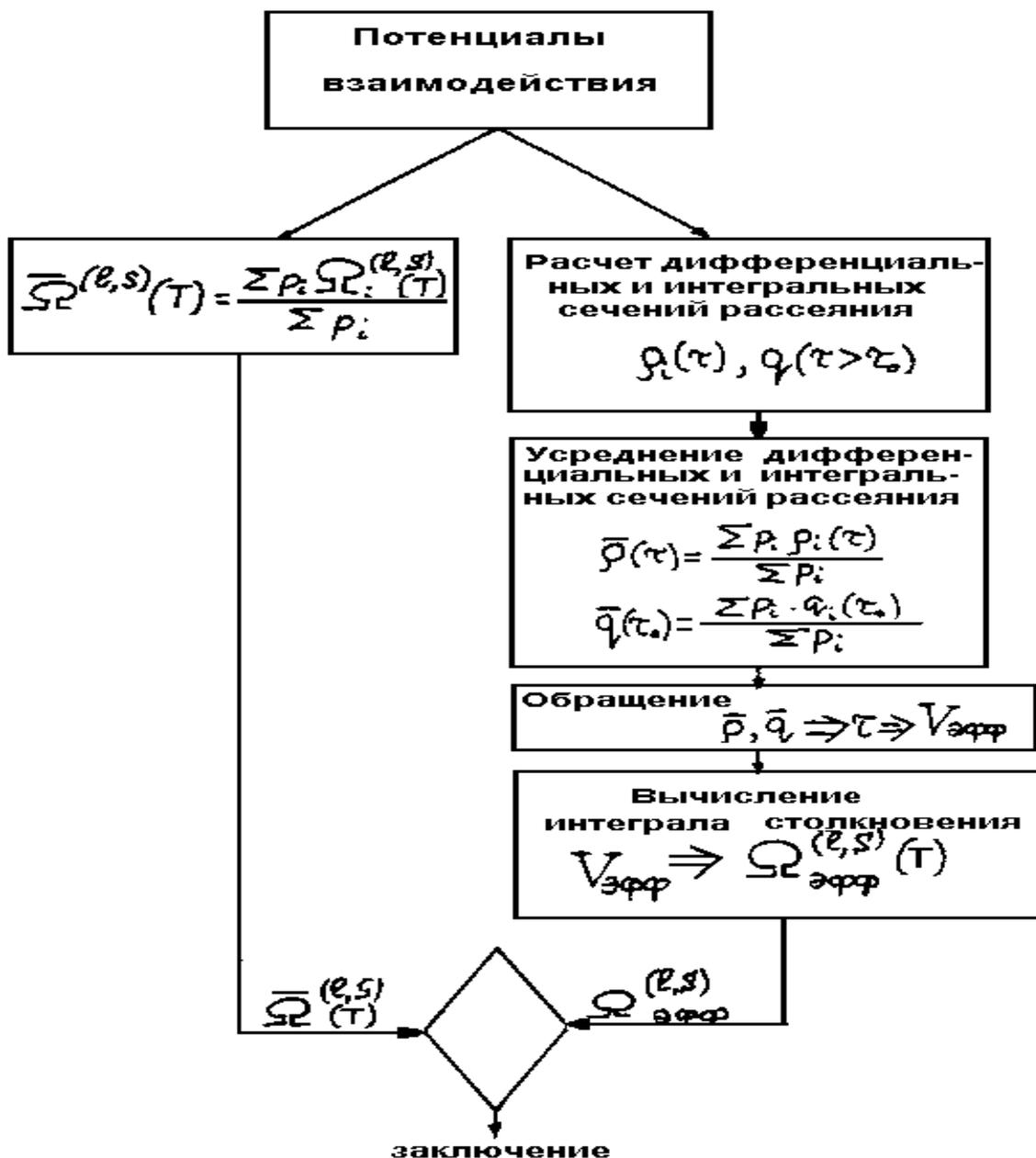
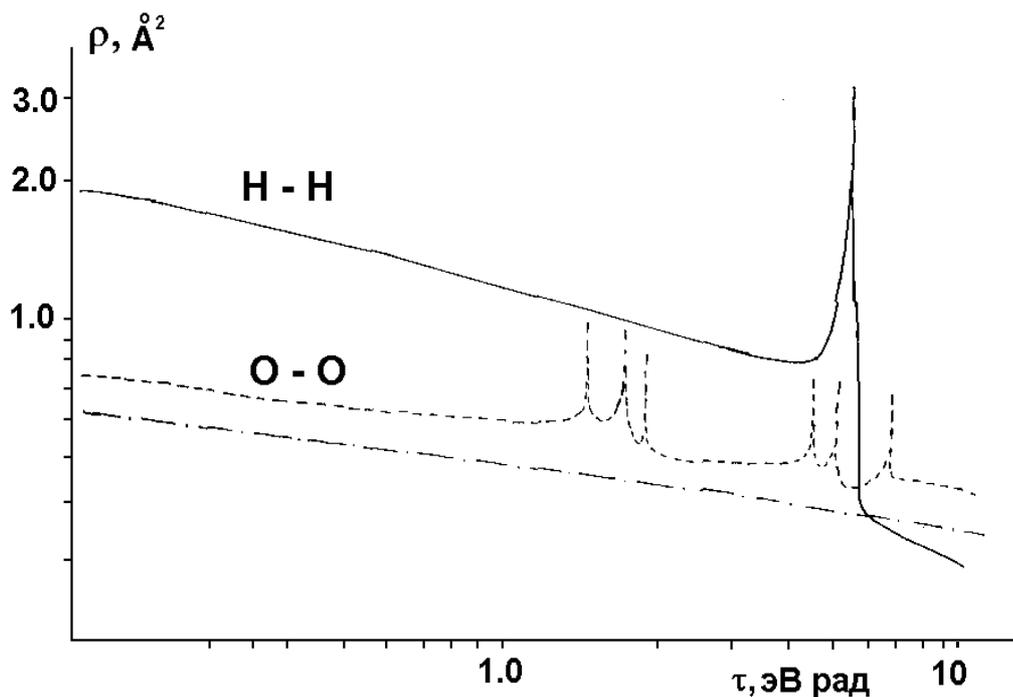


Рис. 5.1.2. Диаграмма, поясняющая численный эксперимент.

Это позволило определить  $V_{эфф}(R)$  для Н(<sup>1</sup>S)-Н(<sup>1</sup>S) до значения  $\sim 3$  эВ. Процедура восстановления потенциала взаимодействия из измерений упругого рассеяния подробно описана в главе 3. Следует отметить, что способ, сглаживания хода приведенного дифференциального сечения для О-О лишь незначительно (менее 1%) влияет на значения восстанавливаемого потенциала взаимодействия. Для проведения процедуры обращения необходимо знание среднего интегрального сечения  $\bar{q}(\tau > \tau_0)$  рассеяния на все углы, большие некоторого угла  $\tau_0$ . При известных термах вычисление  $\bar{q}(\tau > \tau_0) = \sum_i q(\tau > \tau_0) p_i$  не вызывает затруднений.



**Рис. 5.1.3.** Зависимость приведенного дифференциального сечения от приведенного угла: сплошная кривая  $-\rho(\tau)$  для Н-Н, штриховая  $-\rho(\tau)$  для О-О, штрихпунктирная  $-\rho(\tau)$  для О-О при учете только отталкивательных термов.

Очевидно, что обращение монотонной зависимости  $\bar{\rho}(\tau)$  приведет также к монотонному (отталкивательному) потенциалу  $V_{эфф}(R)$ . Потенциал  $V_{эфф}(R)$ , полученный численным обращением  $\bar{\rho}(\tau)$ , хорошо аппроксимируется экспоненциальной зависимостью как для  $O(^3P)-O(^3P)$ :

$$V_{эфф}(R) = 1004,7 \exp(-3,79 \cdot R),$$

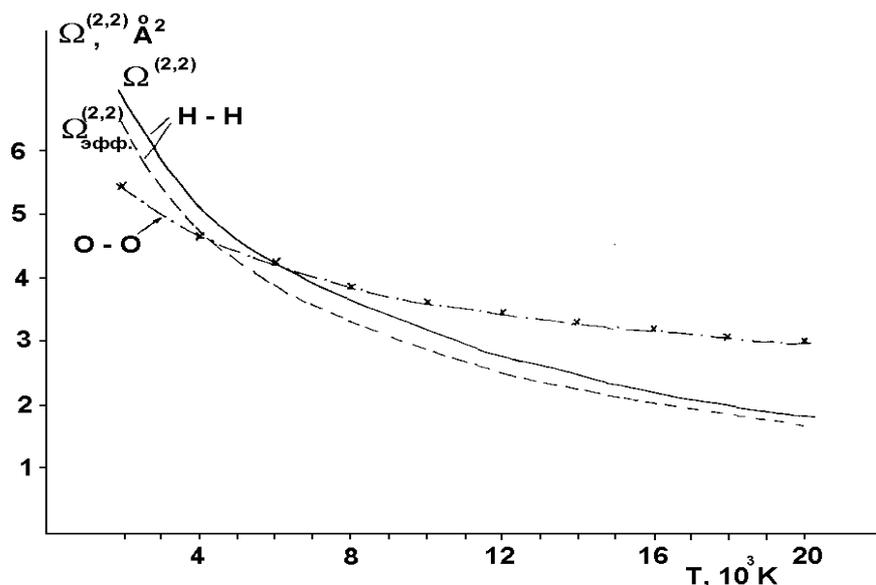
так и для  $H(^1S)-H(^1S)$ :

$$V_{эфф}(R) = 23,45 \exp(-1,96 \cdot R),$$

здесь  $R$  в  $\text{Å}$ , а  $V$  в эВ.

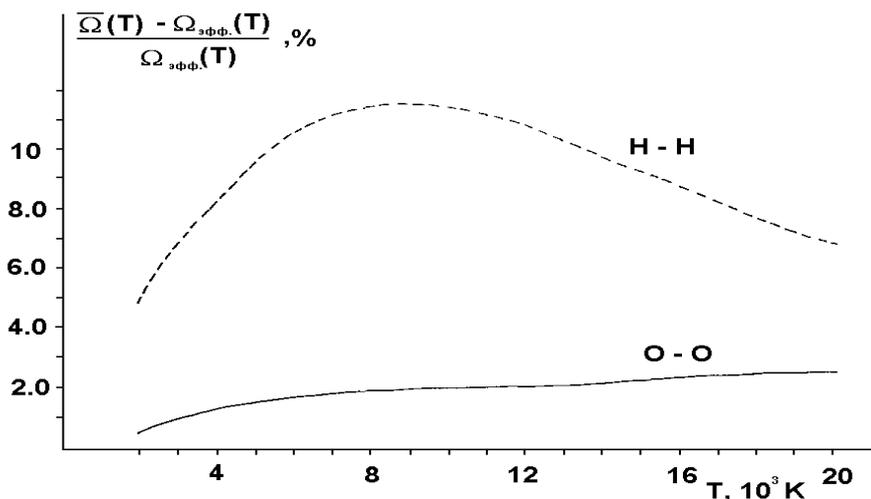
Найденный с помощью простой процедуры - усреднения  $\bar{V}(R) = \sum p_i V_i(R)$  - потенциал взаимодействия системы О-О отличается от найденного  $V_{эфф}(R)$  во всем исследуемом диапазоне примерно на 20%.

Для экспоненциальных потенциалов, используя соотношения работы [129], можно вычислить интеграл столкновений  $\Omega_{э\text{тмтм}}^{(l,s)}(T)$ . В данном случае вычислялись интегралы столкновений  $\Omega_{эфф}^{(2,2)}(T)$ . Зависимости  $\Omega_{э\text{тмтм}}^{(2,2)}(T)$  от температуры для Н-Н и О-О показаны на рис.5.1.4. Средний интеграл столкновений для системы О-О был рассчитан в работе [128]. Для системы Н-Н  $\Omega_{э\text{тмтм}}^{(2,2)}(T)$  были вычислены нами, для чего была написана программа расчета  $Q^l$  и  $Q^{l,s}(T)$  для потенциала произвольного вида. Найденные  $\bar{\Omega}^{(2,2)}(T)$  для систем О-О и Н-Н также показаны на рис.5.1.4.



**Рис. 5.1.4.** Зависимость интегралов столкновений от температуры (штрих-пунктир-эффективные интегралы столкновений, точки - средние интегралы столкновений для системы О-О [125])

На рис.5.1.5 приведены зависимости относительных отклонений  $(\bar{\Omega}^{(2,2)}(T) - \Omega_{эфф.}^{(2,2)}(T)) / \Omega_{эфф.}^{(2,2)}(T)$ . Видно, что отклонения для системы О-О не превышают 3%, а для Н-Н могут достигать ~10% (для  $\bar{\Omega}^{(1,1)}(T)$  аналогичные отклонения не превышают 6%). Это означает, что для систем с большим числом термов с успехом можно пользоваться эффективным потенциалом для расчетов кинетических коэффициентов. В случае систем с малым числом термов ошибка  $\bar{\Omega}^{(2,2)}(T)$  может достигать 10%.



**Рис. 5.1.5.** Величины относительных отклонений  $\bar{\Omega}^{(2,2)}(T)$  от  $\Omega_{эфф.}^{(2,2)}(T)$  для систем Н-Н и О-О.

На основании результатов описанного численного эксперимента можно заключить, что целесообразна постановка экспериментов по рассеянию с целью получения эффективного потенциала, особенно в случае наличия большого числа термов. Эмпирический эффективный потенциал  $V_{эфф}(R)$  во многих случаях позволяет рассчитывать перенос, сняв неопределенности, связанные с квантовохимическими расчетами отдельных термов взаимодействия.

### §5.2. ИНТЕГРАЛЫ СТОЛКНОВЕНИЙ НЕЙТРАЛЬНЫХ КОМПОНЕНТОВ ВОЗДУХА ДО 20000 К

Прежде чем рассчитать интегралы столкновения нейтральных компонентов воздуха, рассмотрим вопрос о влиянии хода потенциала взаимодействия в короткодействующей области на значения интегралов столкновения. В частности, рассмотрим насколько сильно изменяются интегралы столкновения при изменении хода потенциала взаимодействия  $V(R)$ , в какой мере чувствительными являются рассчитанные нами интегралы столкновения к области сшивки, какие диапазоны энергий взаимодействия (высокоэнергетическая, область сшивки, тепловая) дают вклад в интересующий нас интервал температур (2000 - 20000 К). С этой целью были проведены расчеты для различных видов потенциалов взаимодействия. В качестве основы брались системы He-He и Xe-Xe, интегралы столкновения рассчитывались в приведенном виде.

Система He-He.

Для исследования влияния потенциалов в области сильного отталкивания ( $V \sim 1-10$  эВ) были проведены расчеты для трех видов потенциалов, показанных на врезке рис.5.2.1.

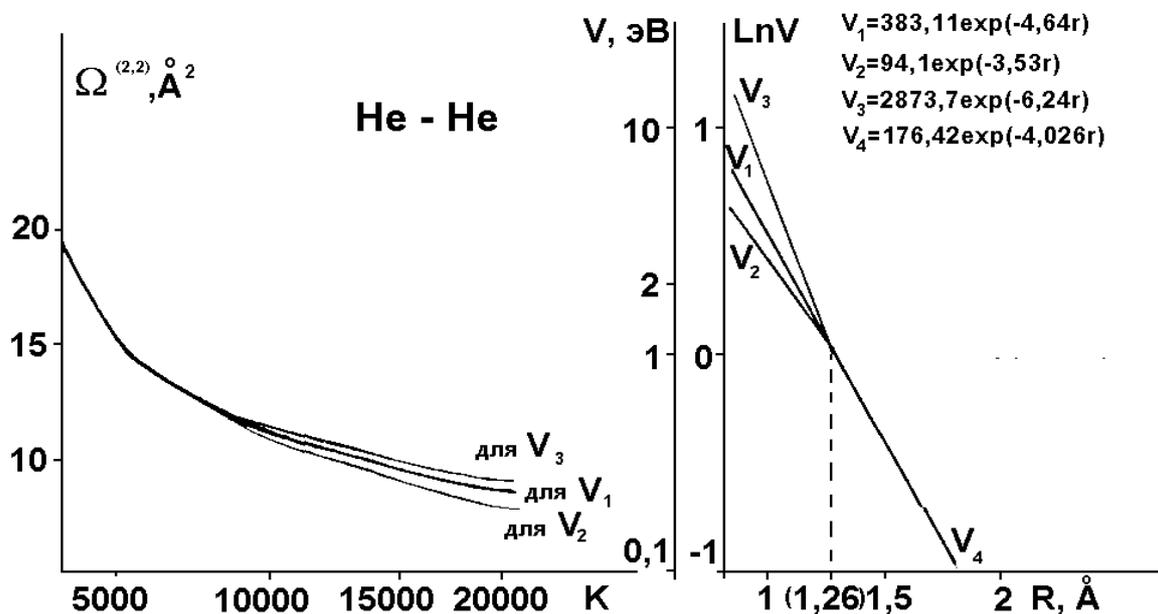


Рис. 5.2.1. Приведенные интегралы столкновения системы He-He для потенциалов, показанных на врезке.

Здесь при  $R > R_{св} = 1,26 \text{ Å}$  все потенциалы имели вид:

$$V_4 = 176,42 \exp(-4,026 \cdot R),$$

а при  $R < R_{св}$  (т.е. в короткодействующей области) использовались потенциалы  $V_1, V_2, V_3$ :

$$V_1 = 383,4 \exp(-4,64 \cdot R)$$

$$V_2 = 94,1 \exp(-3,53 \cdot R) \tag{5.2.1}$$

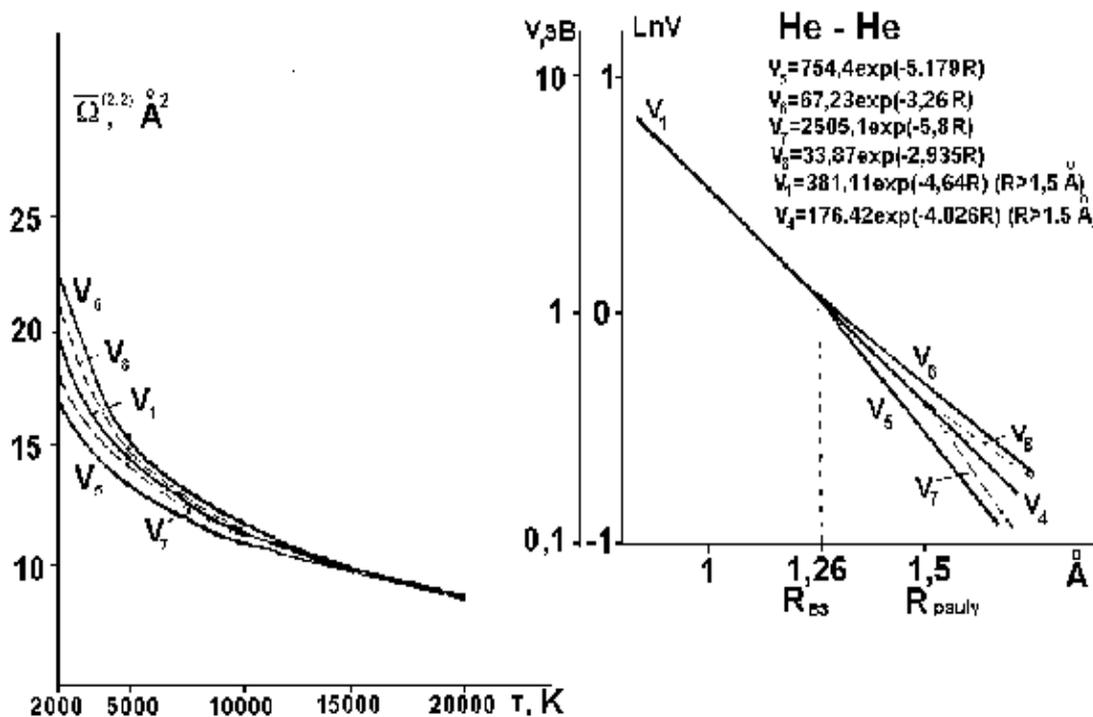
$$V_3 = 2873,7 \exp(-6,24 \cdot R)$$

Все потенциалы  $V_1 - V_4$  в эВ, а  $R$  в Å.

На рис. 5.2.1 представлены результаты расчета приведенных интегралов столкновений  $\bar{\Omega}^{(2,2)}(T)$ . Из рисунка видно, что изменение потенциала взаимодействия  $V(R)$  в диапазоне от 1 эВ и выше приводит к изменению  $\bar{\Omega}^{(2,2)}(T)$  только при температурах больше 10000 К.

На рис. 5.2.2 показано влияние на приведенные интегралы столкновения изменения потенциалов взаимодействия  $V(R)$  в области меньше 1 эВ для двух случаев: 1)  $R < 1,26$  Å; 2)  $R < 1,5$  Å (область расстояний  $1,26$  Å  $< R < 1,5$  Å соответствует области сшивки потенциалов). Из рисунка видно, что влияние диапазона энергий взаимодействия  $V(R) < 0,4$  эВ начинает сказываться только в области температур  $T < 10000$  К. Также хорошо видно, что изменение потенциала взаимодействия в области  $V(R) \sim 0,1 - 0,25$  эВ (при  $R = 1,7$  Å) соответствует изменению  $\bar{\Omega}^{(2,2)}(T)$  в районе  $T = 2000$ К.

Аналогичные расчеты проводились для системы Хе-Хе (см. рис. 5.2.3). Из рисунка видно, что, подобно системе Не-Не, изменения потенциала в области  $V(R) > 1$  эВ меняет  $\bar{\Omega}^{(2,2)}(T)$  только в области  $T > 10000$ К. Если же потенциал  $V(R)$  варьируется в области больше 0,2 эВ, то это ведет к изменению  $\bar{\Omega}^{(2,2)}(T)$  уже в интервале  $T > 2000$ К. Таким образом, нами было найдено соответствие между областями потенциала взаимодействия и соответствующими температурными диапазонами интегралов столкновений.



**Рис. 5.2.2.** Приведенные интегралы столкновений системы Не-Не для потенциалов, показанных на врезке.

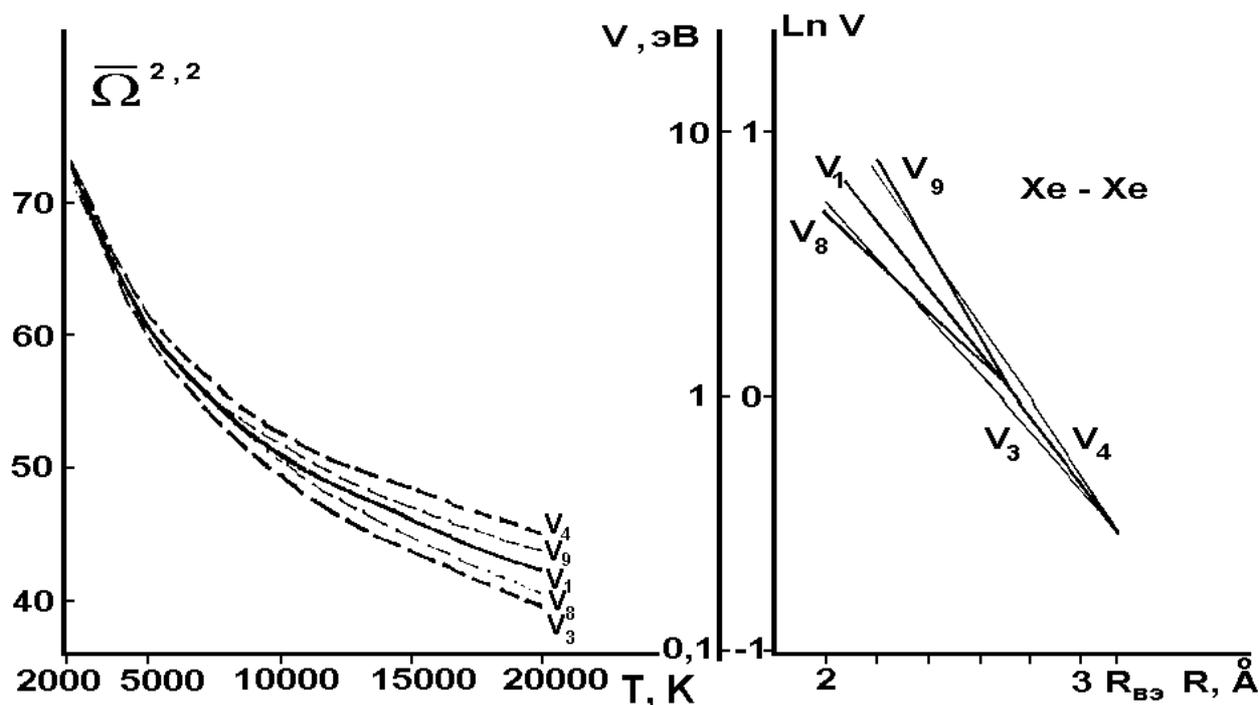


Рис. 5.2.3. Приведенные интегралы столкновений системы Хе-Хе для потенциалов, показанных на врезке.

Для вычисления интегралов столкновений молекулярных компонентов  $N_2$  и  $O_2$  в широком диапазоне температур от 200 до 20000К возникает проблема согласования высокотемпературных данных ( $T > 3000K$ ), где они целиком определяются отталкивательной ветвью потенциала при  $R < \sigma$  ( $V(\sigma) = 0$ ) и данных в интервале  $T$  60÷3000К, которые в основном зависят от потенциала в диапазоне  $0,9 \cdot \sigma < R < \sigma$ . Возможны два пути такого согласования: а) можно согласовывать интегралы столкновения  $\Omega^{(l,s)}(T)$ , получаемые различными методами в разных интервалах температур [129], [130]; б) или же сшивать высокоэнергетическую часть потенциала, определяемую из квантовомеханических расчетов и опытов с молекулярными пучками, и низкоэнергетическую часть, восстанавливаемую в основном как из данных по тепловым молекулярным пучкам, так и из теплофизических данных, а затем рассчитывать интегралы  $\Omega^{(l,s)}(T)$ . Мы использовали для расчетов  $\Omega^{(l,s)}(T)$  для взаимодействия  $N_2 - N_2$ ,  $O_2 - O_2$ ,  $N_2 - O_2$ ,  $O - O_2$ ,  $O - N_2$ ,  $N - N_2$  и  $N - O_2$  второй путь.

Для определения высокоэнергетических участков потенциалов  $N_2 - N_2$ ,  $O_2 - O_2$ ,  $N_2 - O_2$  были проанализированы результаты изучения рассеяния быстрых пучков на малые углы. В качестве отталкивательной части были выбраны потенциалы, предложенные в работе [131], в виде экспоненциального отталкивания  $V = A \cdot \exp(-\alpha R)$ .

Для восстановления низкоэнергетической ветви потенциалов  $N_2 - N_2$ ,  $O_2 - O_2$ ,  $N_2 - O_2$  была использована совместная статистическая обработка на ЭВМ разнородных теплофизических данных на базе единых молекулярных потенциалов взаимодействия. В качестве исходных были включены следующие опытные данные: второй вириальный коэффициент, коэффициенты вязкости, само- и термодиффузии и теплопроводности. Все указанные выше свойства рассчитывались в рамках парных взаимодействий и моделью обработки являлся единый парный потенциал. Подробно эта процедура для  $N_2 - N_2$ ,  $O_2 - O_2$  и  $N_2 - O_2$  рассматривается в работе [70], а для  $O - O_2$ ,  $O - N_2$ ,  $N - N_2$  и  $N - O_2$  в работе [71].

Для  $N_2 - N_2$ ,  $O_2 - O_2$  и  $N_2 - O_2$  в низкоэнергетической области потенциал задавался в виде [106]:

$$V/\varepsilon = \frac{d^m(6+\gamma)}{m-6} (\sigma/R)^m - \frac{d^6[m-\gamma(m-8)]}{m-6} (\sigma/R)^6 - \gamma d^8 (\sigma/R)^8, \quad (5.2.2.)$$

где  $d=R_e/\sigma$ ,  $V(\sigma)=0$ ,  $V(R_e)=-\varepsilon$ ,  $d(\gamma)$  при  $m=11$  приведены в таблице 5.2. 1 [106].

Таблица 5.2.1

$\gamma$	0	1	1,5	2	2,5	3
$d(\gamma)$	1,12888	1,123333	1,12087	1,11858	1,11645	1,11645

В результате такой совместной статистической обработки были найдены следующие параметры потенциалов взаимодействия:

Таблица 5.2.2

	$\sigma, \text{Å}^2$	$\varepsilon, \text{К}$	$m$	$\gamma$
$\text{O}_2\text{-O}_2$	$3,4217 \pm 0,0038$	$116,637 \pm 0,9$	11	1
$\text{N}_2\text{-N}_2$	$3,5958 \pm 0,095$	$108,72 \pm 2,0$	$11 \pm 0,4$	$2,5 \pm 0,65$
$\text{N}_2\text{-O}_2$	3,5087	112,6	11	2

Для  $\text{N}_2 - \text{O}_2$  параметры были рассчитаны по правилам комбинирования ( $a_{12} = (a_1 + a_2)/2$  для  $\sigma$ ,  $\gamma$  и  $\beta$  и  $a_{12} = (a_1 a_2)^{1/2}$  для  $\varepsilon$  и  $\bar{A}$ ). В области малых  $R$  потенциалы взаимодействия для систем  $\text{N}_2 - \text{N}_2$ ,  $\text{O}_2 - \text{O}_2$  и  $\text{N}_2 - \text{O}_2$  выбирались в виде  $V = A_1/R \exp(-\beta_1 R)$ , что обеспечивало условие  $V(R \rightarrow 0) \rightarrow \infty$ . Процедура подбора параметров  $A_1$ ,  $\beta_1$  описана в работе [70], а найденные параметры приведены в таблице 5.2.3:

Таблица 5.2.3

	$A_1, \text{эВ Å}$	$\beta_1, \text{Å}^{-1}$
$\text{N}_2\text{-N}_2$	6300	2,40
$\text{O}_2\text{-O}_2$	2376	2,745
$\text{N}_2\text{-O}_2$	1117	2,573

Здесь следует отметить, что для того чтобы согласовать рассчитываемые и опытные данные по вязкости для молекулярного азота пришлось изменить параметр  $A_1$  в пределах 20-30% по сравнению с результатами измерений на быстрых пучках. Это изменение лежит в пределах погрешности определения отталкивательной ветви потенциала (потенциалы взаимодействия системы  $\text{N}_2\text{-N}_2$  обсуждаются в главе 3).

Для расчета интеграла  $\Omega^{(l,s)}$  в широкой области температур были сконструированы составные потенциалы. В области пересечения высокотемпературной и низкотемпературной частей делалась сшивка методом сплайн-аппроксимации [70].

В таблицах 5.2.4-5.2.6 приведены интегралы  $\Omega^{(l,s)}$  для  $\text{N}_2 - \text{N}_2$ ,  $\text{O}_2 - \text{O}_2$  и  $\text{N}_2 - \text{O}_2$ . Формулы для расчетов можно найти во введении в работе (Гордеев и др., 1985), а также в главе 1.

Для систем  $\text{O-O}_2$ ,  $\text{O-N}_2$ ,  $\text{N-N}_2$  и  $\text{N-O}_2$  был проведен обзор опытных и расчетных данных по потенциалам [71] и было показано, что в настоящее время отсутствует детальная информация относительно интересующих нас атомно-молекулярных потенциалов и известные данные относятся в основном к усредненным эффективным взаимодействиям. В этой ситуации для обобщения данных в широкой области положительных и отрицательных энергий потенциала взаимодействия было решено для всех четырех систем использовать доста-

точно простой потенциал с “правильным“ поведением при малых и больших расстояниях. В качестве такового было решено использовать модифицированный потенциал Букингема-Корнера:

$$V(R) = \begin{cases} \frac{\varepsilon\alpha}{\alpha-6} \left[ \frac{6}{\alpha} \exp\left(\alpha\left(1-\frac{R}{R_m}\right)\right) - \left(\frac{R}{R_m}\right)^6 \right], & R < R_m \\ \frac{\varepsilon\alpha}{\alpha-6} \left\{ \frac{6}{\alpha} \exp\left(\alpha\left(1-\frac{R}{R_m}\right)\right) - \left(\frac{R}{R_m}\right)^6 \exp\left(-4\left(\frac{R_m}{R}-1\right)^3\right) \right\}, & R < R_m \end{cases} \quad (5.2.3)$$

Была проведена процедура совместной обработки разнородных исходных данных [71] и были найдены параметры  $R_m$ ,  $\alpha$  и  $\varepsilon$ . Оказалось, что обработка разнородных данных отдельно по системам O-O<sub>2</sub>, O-N<sub>2</sub>, N-N<sub>2</sub> и N-O<sub>2</sub> дает очень близкие значения параметров для модифицированного потенциала Букингема-Корнера. В результате для расчетов интегралов столкновений в широком диапазоне температур мы рекомендовали для всех систем (O-O<sub>2</sub>, O-N<sub>2</sub>, N-N<sub>2</sub> и N-O<sub>2</sub>) единый потенциал с  $R_m=3,665 \text{ \AA}$ ,  $\varepsilon=80 \text{ К}$  и  $\alpha=12$ . В таблице 5.2.7 приводятся интегралы столкновений  $\Omega^{(1,1)}$  и  $\Omega^{(2,2)}$ , а также коэффициенты  $A^* = \Omega^{(1,1)}/\Omega^{(2,2)}$  и  $B^* = (5\Omega^{(1,2)} - 4\Omega^{(1,3)})/\Omega^{(1,1)}$  и  $C^* = \Omega^{(1,2)}/\Omega^{(1,1)}$  в интервале температур 200-20000 К, рассчитанные с помощью обобщенных таблиц [132] и рекомендуемого потенциала.

Рассчитывая интегралы столкновения по сложным потенциалам взаимодействия в широком диапазоне температур, мы, тем не менее, всегда задавались вопросом - а нельзя ли для расчетов интегралов столкновений для высоких температур воспользоваться простым потенциалом взаимодействия отталкивательного типа во всем диапазоне расстояний сближения? Было выполнено несколько расчетных работ [111], [133], в которых получены кинетические коэффициенты области высоких температур для чисто экспоненциальных потенциалов отталкивания. Однако анализа справедливости использования такого подхода дано не было. Поэтому было решено проверить [134], какую ошибку дает использование отталкивательного потенциала взаимодействия атомов и молекул экспоненциального вида:

$$V(R) = A \exp(-\alpha R), \quad (5.2.4)$$

(где  $R$  – межмолекулярное расстояние,  $A$  и  $\alpha$  – параметры потенциала) во всем диапазоне прицельных расстояний по сравнению с расчетом по сложным потенциалам, у которых отталкивательная часть представима в экспоненциальном виде или же может быть хорошо аппроксимирована экспоненциальным потенциалом. В конечном итоге мы хотели продемонстрировать, что, начиная примерно с 1000 К, расчет интегралов столкновения  $\Omega^{(l,s)}$  для большого набора  $(l,s)$  по экспоненциальному потенциалу в пределах нескольких процентов не отличается от расчета по потенциалу, учитывающему потенциальную яму и дальнюю действующую часть.

Таблица 5.2.4.  
Интегралы  $Q(l,s)$  ( $\text{Å}^2$ ) для молекулярного азота  $\text{N}_2$ .

$T, K$	$Q^{(1,1)}$	$Q^{(2,2)}$	$Q^{(1,2)}$	$Q^{(2,3)}$	$T, K$	$Q^{(1,1)}$	$Q^{(2,2)}$	$Q^{(1,2)}$	$Q^{(2,3)}$
50	25,68	28,91	22,31	26,06	2400	8,05	9,42	7,45	8,97
100	18,92	21,05	16,06	18,52	2500	7,98	9,35	7,38	8,89
200	14,20	15,56	12,59	14,19	2600	7,91	9,28	7,31	8,82
300	12,59	13,75	11,42	12,82	2700	7,84	9,21	7,25	8,75
400	11,70	12,82	10,75	12,12	2800	7,78	9,14	7,18	8,68
500	11,10	12,25	10,30	11,67	2900	7,71	9,08	7,12	8,61
600	10,68	11,86	9,96	11,34	3000	7,65	9,01	7,06	8,55
700	10,35	11,55	9,68	11,08	4000	7,15	8,47	6,57	8,00
800	10,08	11,31	9,43	10,87	5000	6,76	8,06	6,20	7,59
900	9,86	11,10	9,22	10,68	6000	6,46	7,72	5,91	7,25
1000	9,66	10,92	9,04	10,51	7000	6,21	7,43	5,67	6,98
1100	9,48	10,76	8,86	10,35	8000	5,99	7,19	5,46	6,74
1200	9,32	10,62	8,10	10,21	9000	5,81	6,98	5,29	6,54
1300	9,17	10,49	8,58	10,07	10000	5,65	6,79	5,14	6,36
1400	9,03	10,36	8,42	9,94	11000	5,50	6,63	5,00	6,20
1500	8,91	10,25	8,30	9,82	12000	5,37	6,44	4,88	6,05
1600	8,79	10,14	8,18	9,71	13000	5,25	6,34	4,76	5,95
1700	8,68	10,03	8,07	9,60	14000	5,14	6,22	4,66	5,80
1800	8,57	9,93	7,97	9,50	15000	5,07	6,11	4,57	5,69
1900	8,47	9,84	7,87	9,40	16000	4,95	6,00	4,48	5,59
2000	8,38	9,75	7,78	9,31	17000	4,87	5,90	4,40	5,50
2100	8,29	9,66	7,69	9,22	18000	4,79	5,81	4,33	5,41
2200	8,21	9,58	7,61	9,13	19000	4,72	5,72	4,26	5,33
2300	8,13	9,50	7,53	9,05	20000	4,65	5,64	4,19	5,25

Таблица 5.2.5.

Интегралы  $Q^{(l,s)}$  ( $\text{\AA}^2$ ) для молекулярного кислорода  $\text{O}_2$ .

T, K	Q(1,1)	Q(2,2)	Q(1,2)	Q(2,3)	T, K	Q(1,1)	Q(2,2)	Q(1,2)	Q(2,3)
50	25,69	28,34	21,63	25,50	2400	7,28	8,58	6,70	8,16
100	18,16	20,10	15,68	17,49	2500	7,21	8,51	6,63	8,09
200	13,21	14,51	11,59	13,14	2600	7,14	8,44	6,56	8,02
300	11,63	12,68	10,43	11,75	2700	7,07	8,38	6,49	7,95
400	10,71	11,75	9,80	11,05	2800	7,01	8,32	6,43	7,88
500	10,14	11,18	9,37	10,61	2900	6,95	8,26	6,37	7,82
600	9,74	10,80	9,06	10,29	3000	6,89	8,20	6,31	7,75
700	9,43	10,50	8,80	10,05	4000	6,39	7,67	5,76	7,21
800	9,19	10,27	8,53	9,85	5000	6,00	7,25	5,43	6,78
900	8,97	10,08	8,38	9,69	6000	6,69	6,91	5,13	6,44
1000	8,78	9,92	8,21	9,54	7000	5,43	6,62	4,88	6,15
1100	8,62	9,77	8,05	9,40	8000	5,21	6,37	4,67	5,91
1200	8,47	9,64	7,90	9,29	9000	5,02	6,15	4,49	5,70
1300	8,33	9,53	7,77	9,15	10000	4,86	5,96	4,34	5,51
1400	8,20	9,42	7,64	9,05	11000	4,71	5,79	4,20	5,35
1500	8,09	9,32	7,52	8,94	12000	4,58	5,64	4,07	5,20
1600	7,98	9,22	7,41	8,84	13000	4,46	5,50	3,96	5,07
1700	7,87	9,13	7,29	8,75	14000	4,35	5,37	3,86	4,95
1800	7,78	9,04	7,20	8,66	15000	4,25	5,26	3,77	4,83
1900	7,68	8,95	7,11	8,57	16000	4,16	5,15	3,68	4,73
2000	7,60	8,87	7,02	8,48	17000	4,07	5,05	3,60	4,63
2100	7,51	8,80	6,94	8,40	18000	3,99	4,95	3,53	4,55
2200	7,43	8,72	6,85	8,32	19000	3,92	4,87	3,46	4,46
2300	7,35	8,65	6,78	8,24	20000	3,85	4,78	3,40	4,38

Таблица 5.2.6.

Интегралы  $Q^{(l,s)}$  ( $\text{Å}^2$ ) для системы  $\text{N}_2 - \text{O}_2$ .

T, K	Q(1,1)	Q(2,2)	Q(1,2)	Q(2,3)	T, K	Q(1,1)	Q(2,2)	Q(1,2)	Q(2,3)
50	25,28	28,44	21,90	25,57	2400	7,56	8,93	6,95	8,47
100	18,49	20,54	15,89	18,00	2500	7,49	8,86	6,88	8,39
200	13,72	15,04	12,10	13,68	2600	7,41	8,78	6,81	8,31
300	12,12	13,23	10,94	12,30	2700	7,35	8,71	6,74	8,24
400	11,22	12,31	10,28	11,62	2800	7,28	8,64	6,67	8,17
500	10,63	11,74	9,83	11,18	2900	7,22	8,58	6,61	8,10
600	10,20	11,36	9,49	10,86	3000	7,16	8,51	6,55	8,03
700	9,88	11,06	9,21	10,61	4000	6,64	7,96	6,05	7,48
800	9,61	10,83	8,96	10,39	5000	6,25	7,53	5,68	7,05
900	9,39	10,62	8,75	10,20	6000	5,94	7,18	5,39	6,71
1000	9,19	10,45	8,56	10,03	7000	5,69	6,89	5,15	6,43
1100	9,01	10,29	8,38	9,88	8000	5,48	6,65	4,95	6,19
1200	8,84	10,15	8,22	9,73	9000	5,29	6,43	4,77	5,98
1300	8,69	10,01	8,08	9,60	10000	5,13	6,25	4,62	5,80
1400	8,55	9,89	7,94	9,47	11000	4,98	6,08	4,48	5,64
1500	8,43	9,77	7,81	9,34	12000	4,85	5,93	4,36	5,50
1600	8,31	9,66	7,69	9,23	13000	4,74	5,79	4,25	5,37
1700	8,19	9,55	7,58	9,12	14000	4,63	5,67	4,15	5,25
1800	8,09	9,45	7,48	9,01	15000	4,53	5,55	4,06	5,14
1900	7,99	9,36	7,38	8,91	16000	4,44	5,45	3,97	5,04
2000	7,89	9,27	7,28	8,81	17000	4,36	5,35	3,90	4,94
2100	7,81	9,18	7,19	8,72	18000	4,28	5,25	3,82	4,85
2200	7,72	9,09	7,11	8,63	19000	4,20	5,17	3,75	4,77
2300	7,64	9,01	7,03	8,55	20000	4,13	5,09	3,69	4,70

**Таблица 5.2.7.**

Обобщенные интегралы столкновений  $Q^{(1,1)}$  и  $Q^{(2,2)}$  ( $\text{Å}^2$ ) и величины  $A^*$ ,  $B^*$  и  $C^*$  для атомно - молекулярных взаимодействий компонентов воздуха: O - O<sub>2</sub>, O - N<sub>2</sub>, N - N<sub>2</sub> и N - O<sub>2</sub>

T, K	Q(1,1)	Q(2,2)	A*	B*	C*
200	10,12	11,26	1,113	1,129	0,886
300	9,00	10,08	1,120	1,121	0,905
400	8,26	9,31	1,128	1,122	0,916
500	7,86	8,91	1,134	1,240	0,920
600	7,59	8,65	1,140	1,126	0,922
700	7,32	8,37	1,143	1,129	0,924
800	7,14	8,20	1,148	1,132	0,924
900	6,98	8,03	1,150	1,134	0,924
1000	6,85	7,92	1,156	1,136	0,924
1200	6,69	7,76	1,160	1,138	0,924
1400	6,41	7,47	1,165	1,140	0,924
1600	6,20	7,25	1,170	1,141	0,923
1800	6,06	7,12	1,175	1,142	0,922
2000	5,92	7,00	1,179	1,143	0,922
2500	5,64	6,65	1,188	1,143	0,921
3000	5,37	6,44	1,200	1,143	0,920
3500	5,23	6,30	1,205	1,142	0,920
4000	5,09	6,17	1,212	1,141	0,920
4500	4,98	6,07	1,218	1,139	0,920
5000	4,84	5,92	1,225	1,138	0,920
6000	4,62	5,71	1,237	1,137	0,920
7000	4,43	5,52	1,247	1,135	0,921
8000	4,28	5,38	1,257	1,133	0,921
9000	4,16	5,25	1,262	1,131	0,921
10000	4,08	5,18	1,270	1,129	0,921
20000	3,29	4,40	1,337	1,114	0,930

В работе [128] было показано, что для потенциала экспоненциального вида (5.2.4) во всем диапазоне расстояний сближения приведенные интегралы столкновения  $\Omega^{(l,s)*}$  могут быть выражены как:

$$\Omega^{(l,s)*} = \frac{8\beta^2 I^{(l,s)}(\beta)}{\alpha^2 (s+1)! \left[ 1 - \frac{1}{2} \frac{1 + (-1)^l}{1+l} \right]} \quad (5.2.5)$$

Здесь  $\beta = \ln(A/kT)$ .  $I^{(l,s)}$  табулированы в работе [128] для значений  $\beta$  от 3.5 до 28.5. Там же приведены таблицы значений  $A^*$ ,  $B^*$  и  $C^*$  в зависимости от  $\beta$ , где:

$$A^* = \frac{\Omega^{(2,2)*}}{\Omega^{(1,1)*}} \quad B^* = \frac{5\Omega^{(1,2)*} - 4\Omega^{(1,3)*}}{\Omega^{(1,1)*}} \quad C^* = \frac{\Omega^{(1,2)*}}{\Omega^{(1,1)*}} \quad (5.2.6)$$

Для расчета  $\Omega^{(l,s)*}$  и  $A^*$ ,  $B^*$  и  $C^*$  по экспоненциальным потенциалам (5.2.4) табличные значения  $I^{(l,s)}(\beta)$ ,  $A^*(\beta)$ ,  $B^*(\beta)$  и  $C^*(\beta)$  были описаны функцией вида:

$$f(\beta) = a_1 \frac{1 + a_2 \beta^{a_3}}{1 + a_4 \beta^{a_5}}, \quad (5.2.7)$$

использованной в работе [135] для аппроксимации расчетов интегралов столкновений атомов, молекул и ионов воздушных смесей в широком интервале температур (50÷100000 К). Эта формула была немного видоизменена, и в ней используются пять варьируемых параметров вместо шести, как в [135]. Найденные коэффициенты  $a_i^{(l,s)}$  приведены в Таблице 5.2.8.

Аппроксимационная формула (5.2.7) со значениями параметров из таблицы 5.2.8 описывают результаты всех расчетов [128] с точностью не хуже 0.4%, а в большинстве случаев эта ошибка не превышает 0.2%.

Для сравнения нами использовались данные расчетов интегралов столкновений, опубликованные в работах [70], [71], [135], часть из которых были рассмотрены выше в этом параграфе. В работах [70], [71] использовались составные потенциалы (короткодействующее отталкивание – сплайн-функция – потенциальная яма и далекодействующая часть) и модифицированный потенциал Букингема – Корнера (5.2.3).

Для расчета интегралов столкновений систем  $O_2 - O_2$ ,  $N_2 - N_2$ ,  $N_2 - O_2$  в работе [70], применялся составной потенциал, в котором короткодействующее отталкивание представлено в виде:

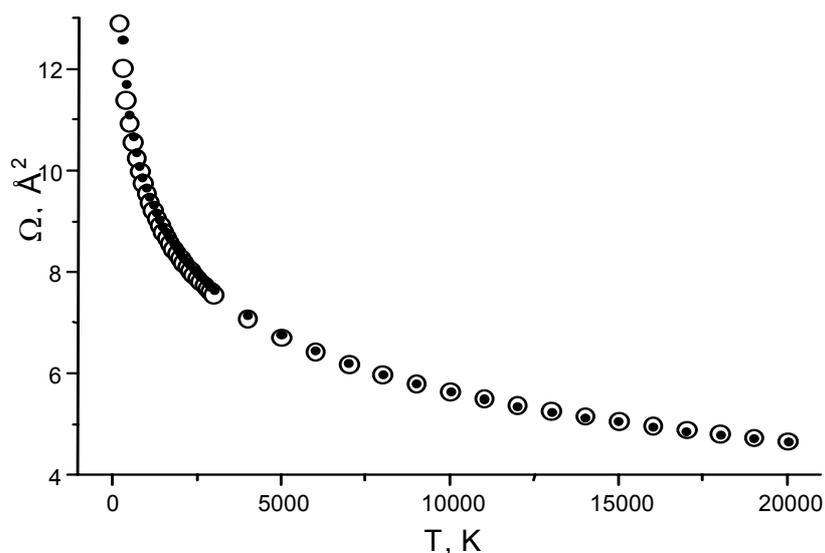
$$V(R) = \frac{A}{r} \exp(-\alpha R) \quad (5.2.8)$$

Этот потенциал аппроксимировался экспоненциальным потенциалом (5.2.4) (минимизировалось среднее квадратичное отклонение), и по формулам (5.2.5) проводились расчеты с коэффициентами таблицы. На рис. 5.2.4 приведены результаты вычислений  $\Omega^{(l,s)}$  для  $l = 1$ ,  $s = 1$  системы  $N_2 - N_2$  из статьи [70] на основании потенциала (5.2.8) (показаны кружка-

ми), а также результаты наших вычислений на основании аппроксимации (обозначены точками). Ясно видно, что они практически совпадают.

Таблица 5.2.8. Параметры аппроксимирующего выражения (5.2.7).

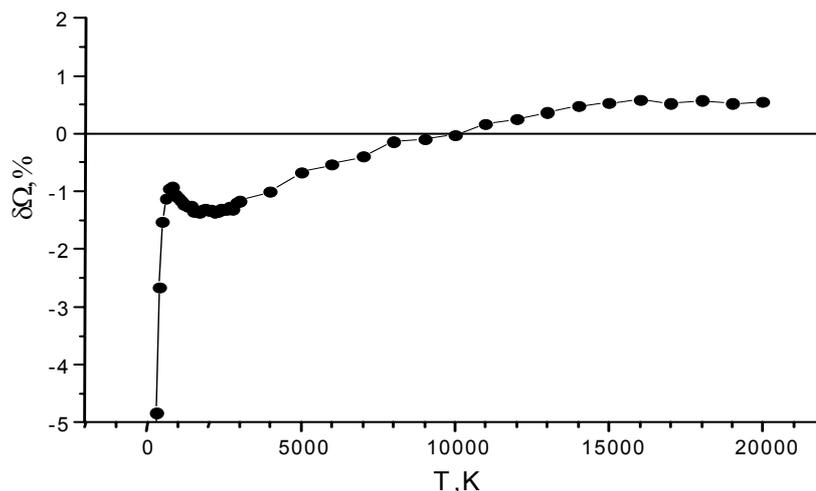
	$a_1$	$a_2$	$a_3$	$a_4$	$a_5$
I(1,1)	-0.37408	-1.84143	0.3469	1.55656	0.43466
I(1,2)	-2.45494	-1.1083	0.37406	1.75483	0.49301
I(1,3)	-19.15271	-0.90457	0.42507	3.16205	0.52375
I(1,4)	14.97972	-1.22745	-0.86142	1.83561	-1.19191
I(1,5)	-22.57874	-0.64492	1.49846	0.20821	1.44388
I(2,2)	0.6393	-0.79547	0.35104	-0.79008	0.39671
I(2,3)	3.10465	-0.86288	0.36992	-0.9847	0.42391
I(2,4)	-16.29538	-0.87136	1.4775	1.3983	1.48231
I(3,3)	9.45886	-1.08987	0.38647	-2.44343	0.44116
A*	1.48904	0.07096	1.61454	0.08898	1.65138
B*	1.87461	0.17711	1.41776	0.30545	1.43536
C*	-0.79704	-2.17865	1.2303	1.77783	1.22551



**Рис.5.2.4.** Сравнение результатов вычислений  $\Omega^{(l,l)}$  для системы  $N_2 - N_2$  из работы [70] (кружки) и данной работы на основании предложенной аппроксимации (точки).

На рис. 5.2.5 показана разность

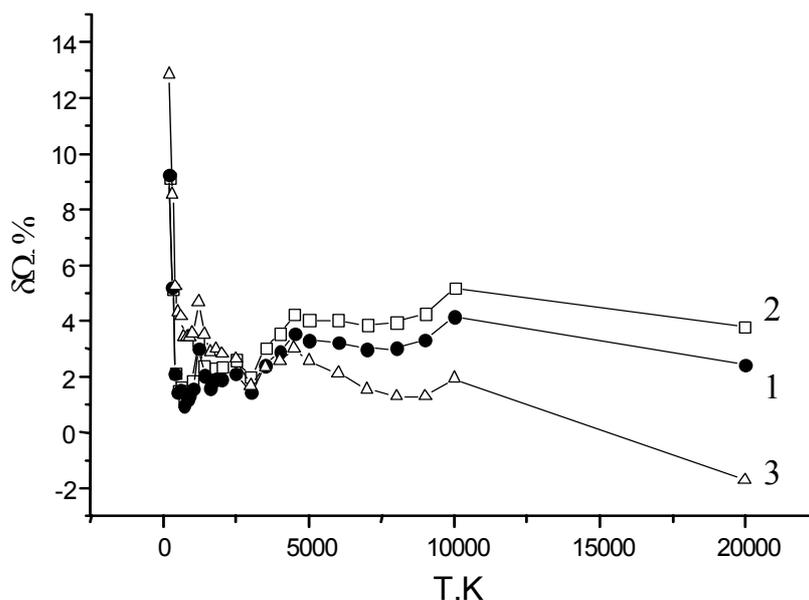
$$\delta\Omega = \frac{(\Omega_a^{(l,s)} - \Omega_b^{(l,s)})}{\Omega_a^{(l,s)}} \times 100 \% \tag{5.2.9}$$



**Рис.5.2.5.** Разность (в процентах) между  $\Omega^{(l,1)}$  (система  $N_2 - N_2$ ), вычисленными в работе [70] и в данной работе.

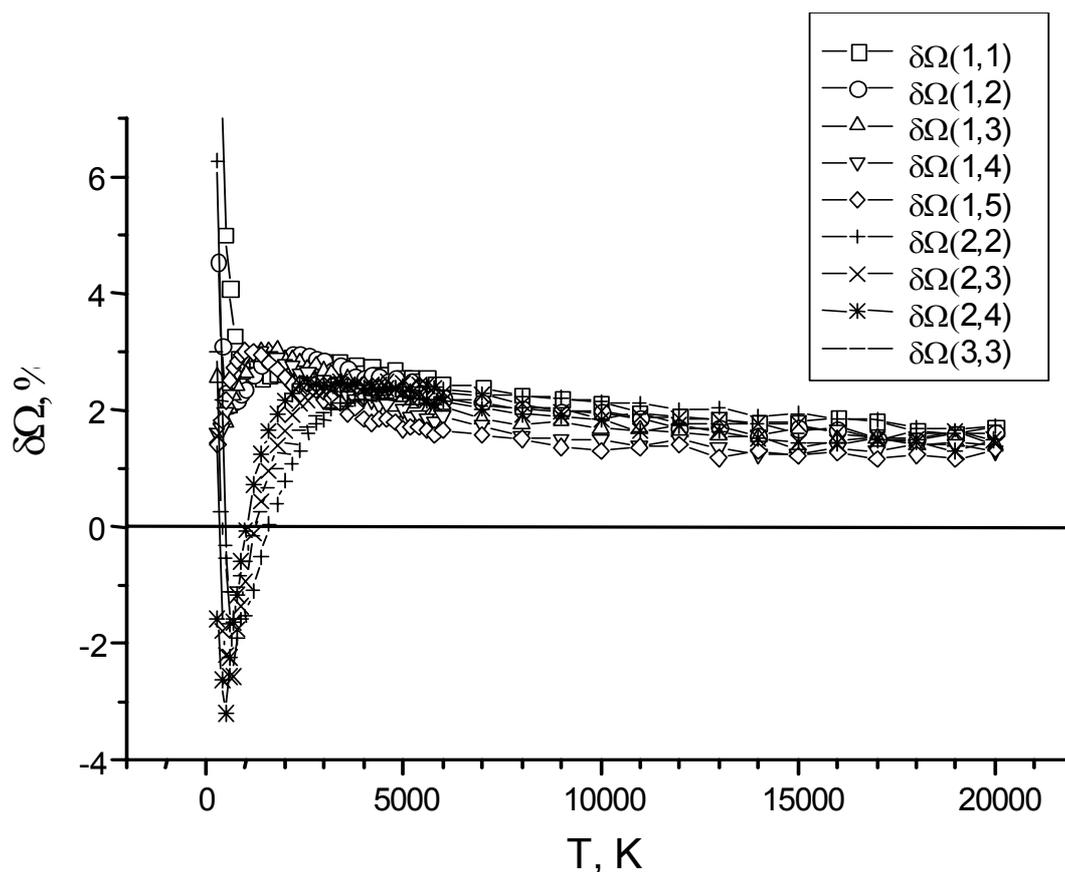
Здесь  $\Omega_a^{(l,s)}$  – данные работы (Гордеев и др., 1985), а  $\Omega_b^{(l,s)}$  – результаты наших расчетов для экспоненциального потенциала (5.2.4), аппроксимирующего функцию (5.2.8). Видно, что для точки  $T = 300$  К разности не превышают 5%, а начиная с 500 К все отклонения лежат в пределах  $\pm 1\%$ .

Для расчетов интегралов столкновений систем  $N - N_2$ ,  $O - O_2$ ,  $N - O_2$ ,  $O - N_2$  в работе [71] применялся потенциал (5.2.3). Мы аппроксимировали короткодействующую часть этого потенциала экспоненциальным отталкиванием (5.2.4). Аппроксимация осуществлялась минимизацией среднего квадратичного отклонения. При этом рассматривалась аппроксимация потенциала на его различных участках. Цифрой 1 на рис. 5.2.6 для  $\Omega^{(l,1)}$  показана разность  $\delta\Omega$  для случая, когда потенциал вида (5.2.4) аппроксимирует участок потенциала (5.2.3) в диапазоне от 0.14 до 9 эВ, цифрой 2 – участок от 1 до 9 эВ и цифрой 3 – участок от 0.1 до 2 эВ. Видно, что в последнем случае  $\delta\Omega$  минимально для диапазона температур 1000÷20000 К.



**Рис.5.2.6.** Разность  $\delta\Omega$  (сравнение для  $\Omega^{(l,1)}$  из работы [71] в случае аппроксимации потенциала в различных диапазонах энергий взаимодействия.

Для систем NO - NO, NO - N<sub>2</sub> в работе [71] проведены расчеты интегралов столкновения для большого набора ( $l,s$ ). Использовался составной потенциал (экспоненциальное отталкивание – сплайн-функция – потенциальная яма и дальнедействующая часть). На рис. 5.2.7 показаны  $\delta\Omega$ , рассчитанные по формуле (5.2.9) для системы NO - NO. Здесь аналогично  $\Omega_a^{(l,s)}$  – данные работы [71], а  $\Omega_b^{(l,s)}$  – результаты наших расчетов по экспоненциальному потенциалу. Из этого рисунка видно, что с 1000 К для всех ( $l,s$ ) отличия не превышают 3%. Аналогичные результаты получены и для различных интегралов столкновений и систем работы [135].



**Рис.5.2.7.** Разность  $\delta\Omega$  для различных  $\Omega^{(l,s)}$  (система NO – NO из работы [71]).

В заключение можно сказать, что начиная примерно с  $T^* > 10$  (где  $T^* = T/\varepsilon$ ,  $\varepsilon$  – глубина потенциальной ямы исследованных систем) для расчетов различных интегралов столкновений атомов и молекул можно использовать экспоненциальный потенциал (5.2.4) и при этом ошибка не превышает 3%. При этом следует отметить, что при аппроксимации модельного потенциала экспоненциальным необходимо выбирать соответствующий диапазон энергий взаимодействия (так для 1000÷2000 К оптимальной является область потенциала взаимодействия 0.1÷2 эВ). Применение для расчетов интегралов столкновений формулы (5.2.7) и данных таблицы 5.2.8 позволяет намного упростить и ускорить такого рода расчеты, сделав возможным расчеты высокотемпературных свойств сложных систем.

### §5.3. СЖИМАЕМОСТЬ КОНДЕНСИРОВАННЫХ ГАЗОВ В МЕГАБАРНОЙ ОБЛАСТИ ДАВЛЕНИЙ

Одним из интересных приложений данных по рассеянию быстрых пучков на малые углы является использование потенциалов взаимодействия для расчета сжимаемости конденсированных газов в мегабарной области давлений [14], [135]. Ведь при рассеянии быстрых пучков атомы сближаются на расстояния, соответствующие расстояниям между атомами сильно сжатого вещества (до давлений больше 1 Мбар). При этом энергия сжатия элементарной ячейки кристалла  $\varepsilon$  может быть найдена по потенциалу взаимодействия  $V(R)$ .

Традиционные методы определения сжимаемости газов (ударноволновые эксперименты, изоэнтальпическое сжатие, сжатие в алмазных наковальнях) не дают надежной информации при низких температурах ( $T=0, K$ ) при давлениях  $P$  больше 0,5-1 Мбар.

Связь  $V$  и  $\varepsilon$  зависит от выбранной модели описания взаимодействия частиц в сильно сжатом веществе. В дальнейшем мы используем модель аддитивности сил взаимодействия в пределах первой координационной сферы, для которой:

$$\varepsilon(v)=6 \cdot V(d), \quad (5.3.1)$$

где  $d=1,1224 v^{1/3}$ ,  $v$ -объем ячейки.

В этой модели считается, что реализуется одна из плотных упаковок, в которой выделенный атом окружают 12 соседей. Полагается, что первая координационная сфера эффективно экранирует взаимодействие выделенного атома с атомами более высоких координационных сфер, и не учитываются эффекты нулевых колебаний атомов решетки. В этой модели пренебрегается эффектами многочастичности, т.е. полная энергия взаимодействия складывается из энергий парных взаимодействий выделенного атома с каждым атомом первой координационной сферы.

Так как  $P = \partial \varepsilon / \partial v$ , то исходя из формулы (5.3.1) получим:

$$P = \frac{2}{d^2} (1.1224)^3 \frac{dV(d)}{dd} \quad (5.3.2)$$

Если  $d$  и  $V$  в атомных единицах, то и  $P$  в атомных единицах. Для перехода к Мбар необходимо правую часть выражения (5.3.2) умножить на 296.

Область применимости такой модели, например, для конденсированного He: давления больше 0,5 Мбар и меньше 500 Мбар. Следует отметить, что при сжатии меньше десятикратного разница энергий данной модели и получаемой суммированием взаимодействий по всем координационным сферам (а не только по первой) меньше нескольких процентов. Фактически способ суммирования существенен только в случае He при  $P > 10$  Мбар, а для других конденсированных газов достаточно ограничиться суммированием по атомам первой координационной сферы и при больших давлениях.

На основе парных потенциалов взаимодействия He, Ne и Xe, полученных нами методом рассеяния быстрых пучков на малые углы (см. главу 3), были рассчитаны кривые холодного сжатия [136].

Использовались следующие потенциалы взаимодействия:

$$\begin{aligned} V_{He-He}(R) &= 224.7 \exp(-4.16 \cdot R) \\ V_{Ne-Ne}(R) &= 4551 \exp(-4.76 \cdot R) \end{aligned} \quad (5.3.3)$$

$$V_{Xe-Xe}(R)=4868 \exp(-2.84 \cdot R)$$

Здесь  $V$  в эВ, а  $R$  в Å.

Расчитанные кривые холодного сжатия по формуле (5.3.2) представлены на рис. 5.3.1, 5.3.2 и 5.3.3.

Представленные на рисунках данные расчетов по формуле (5.3.2) для наших потенциалов сравниваются с имеющимися экспериментальными результатами по сжатию в алмазных наковальнях и расчетами  $P$  по формуле (5.3.2) для некоторых имеющихся в литературе потенциалов взаимодействия.

Сравнение позволяет сделать заключение о соответствии найденных нами по экспериментальным парным потенциалам кривых холодного сжатия с имеющимися макроскопическими экспериментальными данными и с расчетами кривых холодного сжатия на основе других экспериментальных и полуэмпирических парных потенциалов.

Для Ne расчеты по предлагаемому парному потенциалу практически совпадают с экспериментальными значениями [136]. Несколько выше лежат результаты расчетов холодного сжатия по потенциалу из работы [13], полученному из измерений интегральных сечений рассеяния на быстрых пучках. Отличие кривых холодного сжатия рассчитанных по нашему потенциалу и потенциалу [13] лежит в пределах экспериментальной ошибки определения потенциалов. Поэтому, к сожалению, сравнение расчетов по эмпирическим потенциалам не может дать ответ о роли эффектов многочастичности (неаддитивности) взаимодействия.

Для Ne-Ne результаты настоящей работы (рис.5.3.2) лежат несколько ниже экспериментальных значений по холодному сжатию [137]. Расчет по потенциалу, полученному Ролом с сотрудниками (ссылка дается в работе [91] довольно хорошо совпадает с экспериментальными значениями холодного сжатия. Однако, как и в случае с Ne-Ne расхождение лежит в пределах ошибки потенциалов.

Для системы Xe-Xe (рис.5.3.3) ситуация в общем сходная со случаем систем Ne-Ne и Xe-Xe.

Указанное согласие расчетов и экспериментов в пределах экспериментальной ошибки потенциалов взаимодействия служит дополнительным свидетельством того, что приближение парного взаимодействия является достаточно хорошим приближением для описания холодного сжатия конденсированного газа при мегабарных давлениях.

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Из свойств вещества, исследования которых доступно методом молекулярных пучков, наиболее очевидным является изучение коэффициентов переноса в разряженных газах в электронвольтовом диапазоне энергий. Метод рассеяния быстрых молекулярных пучков становится более универсальным в том случае, когда наряду с регистрацией факта рассеяния частицы на определенный угол осуществляется регистрация энергии рассеянной частицы. Измерение спектров неупругих потерь энергии позволяет исследовать неупругие процессы, происходящие при столкновении частиц, в частности, исследовать электронное возбуждение сталкивающихся простейших атомов и молекул. В развитии метода быстрых молекулярных пучков – метода скрещенных пучков, на уровне взаимодействия двух малоатомных молекул можно будет реализовать полный опыт – изучение сечения рассеяния с обменом атомами и энергообменом со знанием как начального, так и конечного состояния, в том числе диссоциация. Фактически это позволяет в идеале на фундаментальном уровне описать кинетику смеси до тех пор, пока можно использовать приближения парных взаимо-

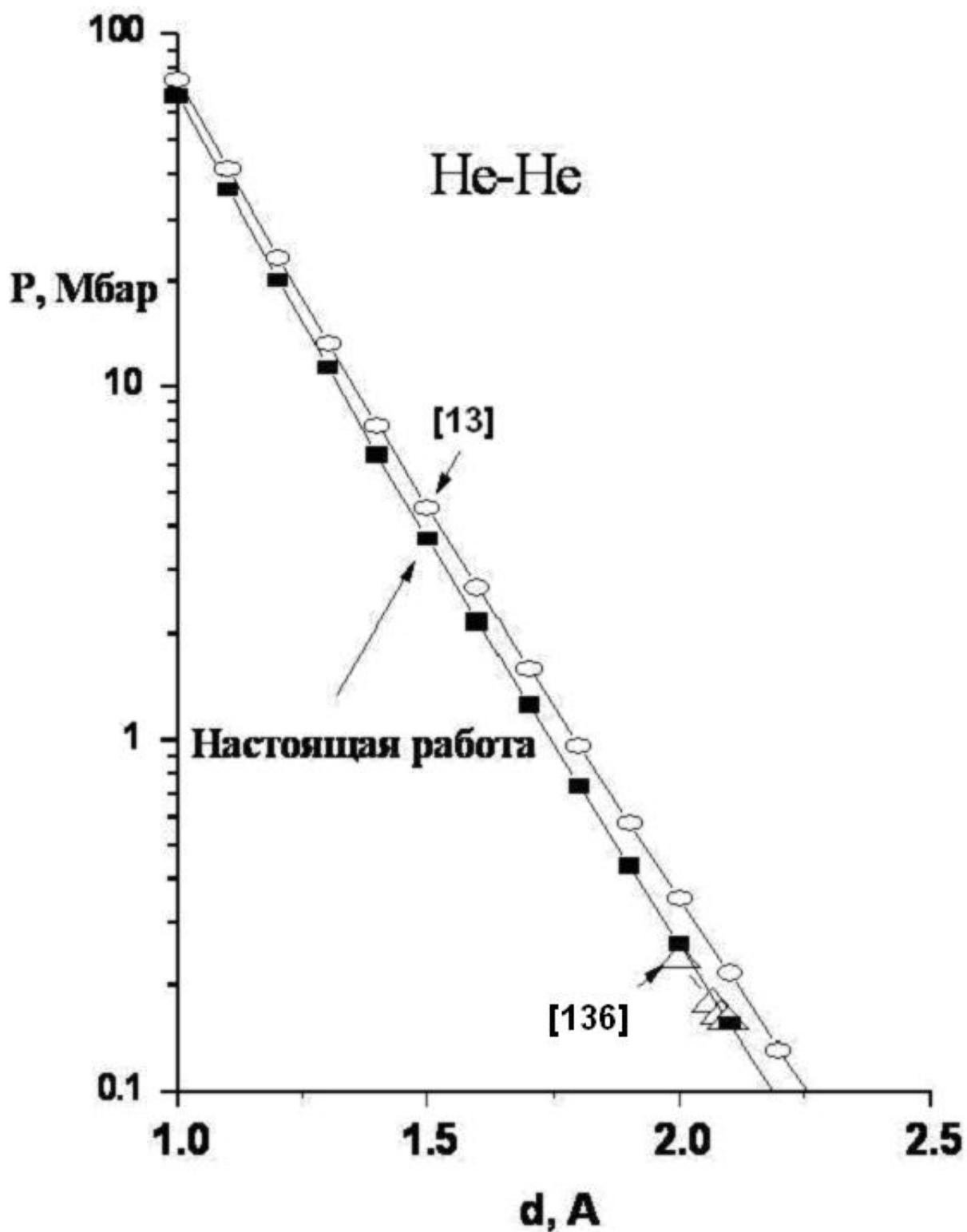
действия. В случае плазмы существенным фактором является взаимодействие в самосогласованном поле многочастичного взаимодействия. Таким образом, основное ограничение метода – многочастичность взаимодействия.

Отметим, что экспериментальное исследование взаимодействий не преследует цели получения всей бесконечной совокупности кинетических данных. Реализовать можно только ограниченное количество ситуаций. Для их расширения необходимо развитие теоретических моделей достоверность которых повышается за счет валидации моделей экспериментом или определение некоторых параметров моделей повышающих адекватность моделей.

Возможность распространения метода на конденсированные состояния возникают из-за того, что взаимодействие образований с замкнутыми оболочками между собой часто равносильно взаимодействию благородных газов и имеет локальный характер. В определенных приближениях такие взаимодействия можно рассматривать как парные.

Особое интерес может представлять взаимодействие с кластерами. В этом случае эффекты многочастичности можно изучать непосредственно причем в случае промежуточном между твердым телом и газовой фазой.

Таким образом, новые технологии позволяют могут позволить существенно расширить области применимости метода быстрых пучков..



**Рис.5.3.1.** Сравнение рассчитанных и экспериментальных кривых холодного сжатия для системы He-He

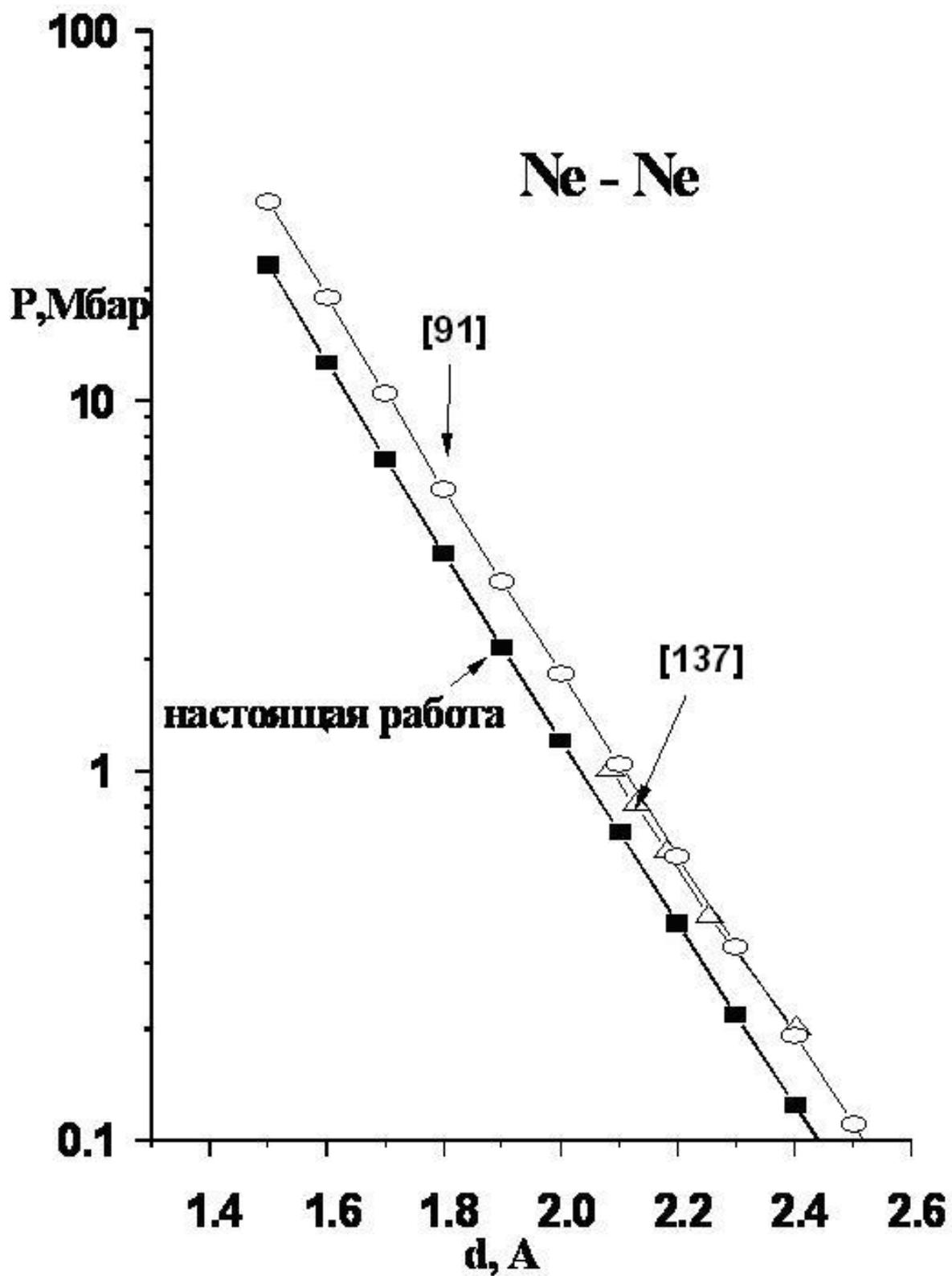
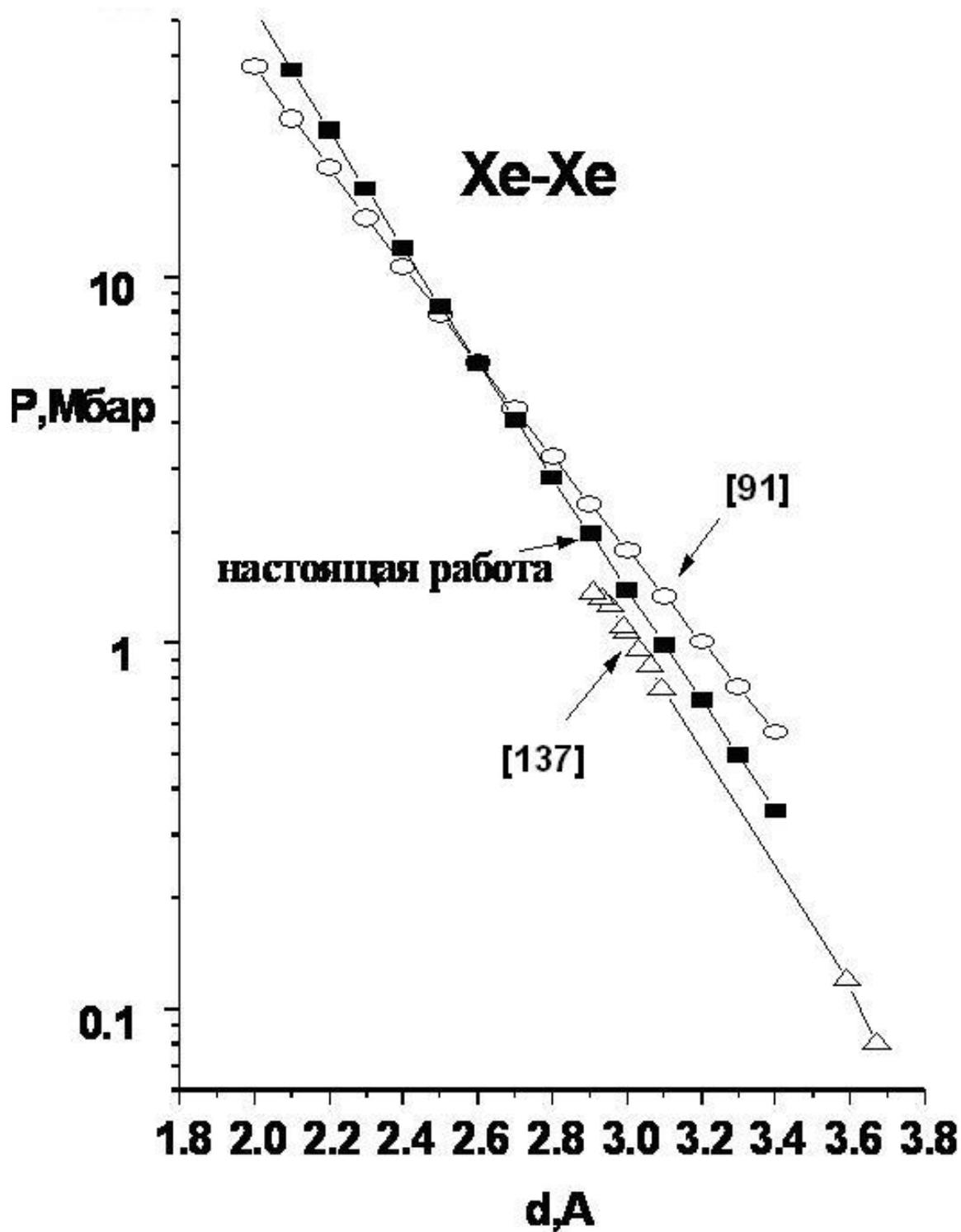


Рис.5.3.2. Сравнение рассчитанных и экспериментальных кривых холодного сжатия для системы Ne-Ne.



**Рис.5.3.3.** Сравнение рассчитанных и экспериментальных кривых холодного сжатия для системы Xe-Xe

**ЛИТЕРАТУРА**

1. Леонас В.Б. Современное состояние и некоторые новые результаты метода молекулярного пучка, УФН, т.107, вып.2, 287-323
2. Леонас В.Б., Исследования короткодействующих межмолекулярных сил, УФН, т.107, вып.1, 29-55, 1972
3. Леонас В.Б., Межмолекулярные взаимодействия и столкновения атомов и молекул, Итоги науки и техники, Физика атома и молекулы, Оптика, Магнитный резонанс, т.1, 1980.
4. Яковленко С.И., Основные физические проблемы лазерного выделения весовых количеств редкого изотопа иттербия Квантовая Электроника, 1998, Том 25, № 11, с. 971-987
5. Capitelli M., Gorse C., Longo S, Giordano D., Transport properties of high temperature air species, AIAA/ASME 7th joint thermophysics and heat transfer conference, Albuquerque, Paper AIAA 98, 1998.
6. Scoles G., editor, Atomic and molecular beam methods, v. 1, Oxford University Press, 1988.
7. Brutschy B., Haberland H., Long range helium excimer potentials (A,C 1 $\sigma$ ug and a,c3 $\sigma$ +ug) from high resolution differential cross sections for He(21S,23S)+He, Phys. Rev. 19A, n. 6, h. 2232-2248, 1979
8. Фишер И.З., Статистическая теория жидкостей, М., Гос. издат. физ.-мат. литературы, 280 с., 1961
9. Гиршфельдер Дж., Кертисс Ч., Берд Р., Молекулярная теория газов и жидкостей, Изд-во иностранной литературы, 1961
10. Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М., Механика, Наука, М., 1973
11. Parson J.M., Siska P.E., Lee Y.T., Intermolecular potentials from crossed beam differential elastic scattering measurements. IV Ar-Ar, J. Chem. Phys., v.56, № 4, 1511-1515, 1972
12. Амдур И., Джордан Дж., Упругое рассеяние пучков высоких энергий, в книге «Исследование с молекулярными пучками», М:Мир., 39-87, 1969.
13. Foreman P.B., Rol P.K., Coffin K.P., The repulsive He potential obtained from total cross sections, J. Chem. Phys., v.61, № 5, 1658-1665, 1974
14. Калинин А.П., Леонас В.Б., Родионов И.Д., Родионова И.П., Изучение физико-химических свойств вещества методом рассеяния быстрых молекулярных пучков, в книге Математическое моделирование, физико-химические свойства вещества, Ред. Самарский А.А., Калиткин Н.И., М., Наука, 41-72, 1989
15. Родионов И.Д., Калинин А.П., Книжников М.Ю., Кругерский М.А., Родионова И.П., Семенов Д.В., Диффракционные осцилляции в сечениях упругого рассеяния атомов аргона на аргоне, Химическая физика, т.15, № 5, 13-18, 1996
16. Калинин А.П., Леонас В.Б., О возможности экспериментального определения частот автоионизационного распада возбужденных молекулярных состояний, Письма в ЖЭТФ, т.21, вып. 12, 715-718, 1975
17. Калинин А.П., Леонас В.Б., Изучение дифференциального рассеяния атомов с ионизацией Пеннинга: He(2<sup>3</sup>S)-Ar, Kr, Xe», Всесоюзная конференция по электронным и атомным столкновениям, Тбилиси, 191, 1975
18. Калинин А.П., Леонас В.Б., Изучение метастабильных атомов He(2<sup>3</sup>S) и молекул N<sub>2</sub>(E<sup>3</sup> $\Sigma_g^+$ ) в газах, Сборник Аэродинамика и газовая динамика, М., Наука, 237-255, 1976
19. Калинин А.П., Леонас В.Б., Сермягин А.В., О разрешающей способности при измерениях полных и дифференциальных сечений с помощью атомных

- пучков, Вестник Московского университета, сер. физика, астрономия, №3, 245-251, 1971
20. Каплан И.Г., Введение в теорию межмолекулярных взаимодействий, М., Наука, 1982
  21. Aziz R.A., A highly accurate interatomic potential for argon, J. Chem. Phys., v.99, № 6, 4518-4525, 1993
  22. Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М., Квантовая механика (нерелятивистская теория), М., Физматгиз, 1963
  23. Квливидзе В.А., Красильников С.С., Введение в физику атомных столкновений, Изд-во Московского университета, 1985
  24. Мотт Н., Месси Г., Теория атомных столкновений, М., Мир, 1969
  25. Бернштейн Р., Квантовые эффекты при упругом рассеянии молекул, в сб. Исследования с молекулярными пучками, М., Мир, 88-149, 1969
  26. Мак-Даниель И., Процессы столкновений в ионизованных газах, Мир, 1967
  27. Mason E.A., Vanderslice J.T., Raw C.J. J.Chem.Phys., v.40, 2153, 1964
  28. Kalinin A.P., Khromov V.N., Wijnaends van Resandt, Los J., Leonas V.B., Differential scattering of Li<sup>+</sup> ions on N<sub>2</sub> molecules VII International Symposium on molecular beams, Trento, Italy, 211-216, 1979
  29. Kalinin A.P., Wijnaends van Resandt, Khromov V.N., Kleyn A.W., Los J., Leonas V.B., Differential cross-sections for Li<sup>+</sup> scattering by N<sub>2</sub> molecules Chemical Phys., v.85, 341-347, 1984
  30. Калинин А.П., Леонас В.Б., Хромов В.Н., Изучение дифференциального рассеяния атомов He в CO<sub>2</sub> и N<sub>2</sub>, Письма в ЖЭТФ, вып.2, т.26, 65-68, 1977
  31. Калинин А.П., Исследование времяпролетным методом неупругого рассеяния частиц высокой энергии, Физика электронных и атомных столкновений, т. 12, 141-151, 1991.
  32. Lebehot A., Camparque R., Differential cross sections for vibrational excitation in collisions of He with H<sub>2</sub> at moderate energies, J. Phys. B.: Atom. Molec. Phys., v.5, 1711-1728, 1982
  33. Fayeton J.A., Hoewer J.C., Brenot J.C., Barat M., Investigation of inelastic processes in He-He collisions using a multicoincidence technique, J. Phys. B., Atom.Molec.Phys., v.14, 2599-2609, 1981
  34. Калинин А.П., Дубровицкий Д.Ю., Морозов В.А., Козочкина А.А., Родионов И.Д., Родионова И.П., Экспериментальное определение отталкивательных потенциалов взаимодействия в диапазоне 0,1-10 эВ из измерений рассеяния быстрых пучков на малые углы: система He-N<sub>2</sub>, Препринт ИПМ РАН №646, 16 с, 1999
  35. Newman J.H., Smith K.A., Stebbings R.F., Chen Y.S., Differential scattering cross sections for collisions of 0.5-, 1.5-, and 5.0- keV helium atoms with He, H<sub>2</sub>, N<sub>2</sub>, and O<sub>2</sub>, Journal of Geophysical Research, v.90, № A11, 11045-11054, 1985
  36. Dhuicq D., Brenot J.E., Sidis V., Vibrational population of N (B<sup>3</sup>P) and CO(a<sup>3</sup>P) produced by He impact N<sub>2</sub>(X) and CO(X) in 200-1000 eV. energy, J. Phys. B. Atom. Molec. Phys., v.18, 1395-1407, 1985
  37. Беляев Ю.Н., Экспериментальное определение межмолекулярных сил и определение поперечников переноса в газах при высоких температурах, Диссертация на соискание ученой степени кандидата физ.-мат. наук, МГУ, 1966
  38. Камнев А.Б., Леонас В.Б., Попов В.Г., Установка для получения быстрых пучков атомов и молекул, ПТЭ, № 2, 182-186, 1966

39. Зубков Б.В., Калинин А.П., Автоматизированная установка для исследования дифференциального рассеяния быстрых пучков, ПТЭ, № 4, 201-204, 1977
40. Дубровицкий Д.Ю., Калинин А.П., Морозов В.А., Установка для измерения двойных дифференциальных сечений (по углу и энергии) при рассеянии быстрых пучков на малые углы, ПТЭ, № 3, 152-155, 1996
41. Дубровицкий Д.Ю., Калинин А.П., Морозов В.А., Изучение упругого и неупругого взаимодействия атомов и молекул методом рассеяния быстрых пучков на малые углы, Препринт № 591 Института проблем механики РАН, 51с., 1997
42. Зубков Б.В., Калинин А.П., Автоматизация измерений дифференциального рассеяния с применением модулей КАМАК, Препринт ИКИ АН СССР № 822, М., 24 с, 1983
43. Калинин А.П., Леонас В.Б., Экспериментальное изучение взаимодействия атомов благородных газов с молекулой CO<sub>2</sub>, Доклады АН СССР, т.197, № 2, 393-395, 1971
44. Грунтман М.А., Калинин А.П., Характеристики каналового электронного умножителя ВЭУ-6 при регистрации нейтральных частиц, ПТЭ, № 2, 180-182, 1977
45. Грунтман М.А., Калинин А.П., Характеристика блока микроканальных пластин в режиме регистрации тяжелых частиц, ПТЭ, №.4, 175-177, 1980
46. Kalinin A.P., Leonas V.B., Sermyagin A.V., On the functionality of short-range potentials derived from the beam scattering data, Chemical Physics Letters, v.39, № 1, p.191- 193, 1976
47. Калинин А.П., О влиянии крутизны отталкивательного потенциала взаимодействия атомных частиц на ход упругого дифференциального сечения рассеяния на малые углы, Журнал технической физики, т.52, вып. 3, с. 549-552, 1982
48. Калинин А.П., Экспериментальное исследование столкновений и определение сил взаимодействия атомных частиц в газах, Диссертация на соискание ученой степени кандидата физ.- мат. наук, Москва, Институт космических исследований АН СССР, 1972
49. Калинин А.П., Леонас В.Б., Рассеяние и дезактивация метастабильных молекул N<sub>2</sub>(A<sup>3</sup>Σ), Письма ЖЭТФ, т. 14, 481-484, 1971
50. Калинин А. П., Леонас В. Б., Экспериментальное исследование столкновений атомов He в основном и метастабильном (2<sup>3</sup>S) состояниях, ДАН СССР, т.210, № 2, 316-318, 1973
51. Зубков Б.В., Сермягин А.В., Уманский С.В., Хромов В.Н., Высокочувствительный прибор для измерения малых давлений газов, Препринт № 239 Института космических исследований АН СССР, 12с., 1975
52. Зубков Б.В., Калинин А.П., Леонас В.В., Разработка и реализация системы коллективного пользования для автоматизации экспериментов по атом-молекулярным столкновениям, Петрозаводский университет, курс лекций «Общие проблемы физики столкновений атомных частиц», Петрозаводск, с.38-43, 1984
53. Калинин А.П., Леонас В.Б., Родионов И.Д., Родионова И.П. Короткодействующие потенциалы и сжимаемость благородных газов, Доклады АН СССР, т.300, № 4, 845-849, 1988
54. Калинин А.П., Морозов В.А., Родионова И.П., О возможности интерпретации особенностей на дифференциальных сечениях и спектрах энергетических

- потерь при высокоэнергетическом рассеянии атом-молекулярных систем, Препринт ИПМ АН СССР № 453, 23 с, 1990
55. Грунтман М.А., Козочкина А.А., Леонас В.Б., Исследование статистики вторичной электронной эмиссии тонких фольг, ПТЭ, № 3, 157-160, 1989
  56. Грунтман М.А., Координатно-чувствительные детекторы на основе микроканальных пластин, ПТЭ, № 1, 14-30, 1984
  57. Gao R.S., Jonson L.K., Nitz D.E., Smith K.A., Stebbings R.F., Absolute differential cross sections for small-angle elastic scattering in helium - rare-gas collisions at keV energies, Phys. Rev 36A, № 7, 3077- 3082, 1987
  58. Howard W.M., Density field for rarefied flow through an orifice, Phys. Fluids, v. 4, № 4, 521-524, 1961
  59. Камнев А.Б., Изучение отталкивательного взаимодействия атомов благородных газов, Диссертация на соискание ученой степени кандидата физ. – мат. наук, Москва, МГУ им. М.В.Ломоносова, 1965
  60. Kusch P., Notes on resolution in scattering measurements, Chem. Phys., v.40, № 1, 1-4, 1964
  61. Busch F., Winkelauf-losungsvermogens auf die Messung totaler atomarer strenqueschnitte, Physica, 193, № 3, 412-425, 1966
  62. Inouye H., Kita S., Experimental determination of repulsive potentials between alkali ions ( $\text{Li}^+$ ,  $\text{K}^+$  and  $\text{Cs}^+$ ) and hydrogen molecules ( $\text{H}_2$  and  $\text{D}_2$ ), J. Chem. Phys., v.59, №12, 6656-6661, 1983
  63. Buck U., Inversion of molecular scattering data , Rev. Mol. Phys. ,v. 46, № 2, 369-389, 1974
  64. Smith F.I., The numerical evaluation of the classical angle of deflection and JWKB phase shift, Physica, v.30, 497, 1964
  65. Kalinin A.P., Leonas V.B., Measurements of differential He-He, Ar-CO scattering: a test of repulsive interaction potentials, Chem. Phys. Lett., v.114, № 5,6, 557-560, 1985
  66. Сермягин А.В., Экспериментальное определение межмолекулярных сил, Диссертация на соискание степени кандидата физ.-мат. наук, М., ИКИ РАН, 139 с., 1973.
  67. Feltgen R., Kirst H., Kohler K.A., Pauly H., Unique Determination of the He Ground State Potential from Experiment by Use of a Reliable Potential Model, J. Chem. Phys., v.76, № 5, 2360-2378, 1982
  68. Aziz R.A., Mc.Court F.R., Wong C.C.K., A new determination of the ground state interaction potential for He, Molecular Physics, v.61, № 6, 1487-1511, 1987
  69. Aziz R.A., Janzen A.R., Moldover M.R., Ab initio calculations for helium. A standard for transport property measurements, Phys. Rev. Letters, v.74, № 9 , 1586-1589, 1995
  70. Гордеев О.А., Калинин А.П., Комов А.Л., Люстерник В.Е., Самуйлов Е.В., Соколова И.А., Фокин Л.Р., Потенциалы взаимодействия, упругие сечения, интегралы столкновений компонентов воздуха для температур до 20000 К, Обзоры по теплофизическим свойствам вещества, ТФЦ-М. , ИВТАН, Т 5(55), 100 с, 1985
  71. Герасимов Г.Я., Калинин А.П., Люстерник В.Е., Самуйлов Е.В., Соколова И.А., Фокин Л.Р., Цителаури Н.Н., Шевелева Н.А., Интегралы столкновений, потенциалы атомно-молекулярных и ионно-молекулярных взаимодействий компонентов воздуха до 20000 К, Обзоры по теплофизическим свойствам вещества, ТФЦ-М., ИВТАН, № 5(67), 160 с, 1987

72. Kalinin A.P., Leonas V.B., Khromov V.N., Study of differential scattering by nonspherical intermolecular shortrange forces, Systems He, Ar-N<sub>2</sub>, CO, NO, CO<sub>2</sub>, Molecular Physics, v.47, № 4, 811-822, 1982
73. Калинин А.Р., Леонас В.Б., Интегралы столкновений для компонент диссоциированных планетных атмосфер, Теплофизика высоких температур, т.5, 1066-1068, 1971
74. Калинин А.П., Леонас В.Б., Определение потенциалов межмолекулярного взаимодействия в области малых расстояний для CO<sub>2</sub> и N<sub>2</sub>O по данным упругого рассеяния пучков, ДАН, т.2, №1, 53-56, 1971
75. Фирсов О.Б., Определение сил, действующих между атомами, при помощи дифференциального эффективного упругого рассеяния, ЖЭТФ, т.24, 279, 1953
76. Шадан К., Сабатье Р. Обратные задачи в квантовой теории рассеяния, М., Мир, 1970
77. Родионова И.П., Моделирование и экспериментальное исследование рассеяния молекул на быстрых пучках, Диссертация на соискание ученой степени кандидата физ.-мат. наук, Институт химической физики АН СССР, 1990
78. Леонас В.Б., Сермягин А.В., Измерения дифференциального упругого рассеяния атомов He и определение потенциалов отталкивательного взаимодействия, Препринт № 261, М., ИКИ АН СССР, 1976
79. Ross M., Young D., Helium at High Density, Phys. Lett. A. v.118, №9, 463-466, 1986
80. Aziz R.A., Nain V.P.S., An accurate intermolecular potential for helium, J. Chem. Phys., v.70, № 9, 4330-4342, 1979
81. Aziz R.A., Slaman M.J., An examination of ab initio results for the helium potential energy curves, J. Chem. Phys., v.94, № 12, 8047-8053, 1981
82. Aziz R.A., Krantz A., Slaman M.J., A modification of the Tang-Toennies potential model to produce a more realistic repulsive wall: application to He. Z. Phys.D-Atoms, Molecules and Clusters, v. 21, 251-257, 1991
83. Senff U.E., Burton P.G., A CEPA2 investigation of the He-He and He-Li potential functions, Molec. Phys., v.58, N3, 637-645, 1986
84. Nyeland C., Toennies J.P., Modelling of repulsive potentials from atom charge density distributions: interactions of inert gas atoms, Chem. Phys. Letters, V.127, № 2, 172-177, 1986
85. Starykh V.V., Kapyshev V.K., Interaction between two ground - state helium atoms, J.Chem.Phys.,v.72, № 4, 2713-2718, 1980
86. Ronald A., Aziz R.A., Slaman M.J., The Ne-Ne interatomic potential J. Chem. Phys., v.130, 187-194, 1989
87. Aziz R.A., Slaman M.J., On the Xe-Xe Potential Energy Curve and Related Properties, Molec.Phys., v.57, № 4, 825-840, 1986
88. Amdur I., Methods Exp. Phys., 7, 341, 1968 (см. также обзор экспериментальных данных по He-He в работе Foreman et al., 1974)
89. Bohm H.J., Ahlrichs R., A study of short-range repulsions, J. Chem. Phys., v.77, № 4, 2028-2034, 1982
90. Amdur I., Mason E.A., Scattering of high velocity neutral particles. V. Ne-Ne, J. Chem. Phys., v.23, n.3, 415-416, 1955
91. Aziz R.A., Inert Gases, Chemical Physics Series, v.34, edited by Klein M.L.(Springer), 1984

92. Amdur I., Mason E.A., Scattering of high velocity neutral particles. VII. Xe-Xe, J. Chem. Phys., v.25, 624-625, 1956
93. Калинин А.П., Леонас В.Б., Родионова И.П., О возможности расчета высокотемпературных коэффициентов переноса на основе эффективного потенциала взаимодействия атомных частиц, Теплофизика высоких температур, т.29, № 1, 66- 71, 1991.
94. Калинин А.П., Леонас В.Б., Родионов И.Д., Исследование эффекта колебательной радуги при рассеянии быстрых молекулярных пучков, Химическая физика, т. 4, 464-469, 1985
95. Калинин А.П., Леонас В.Б., Морозов В.А. , Изучение упругого рассеяния и электронного возбуждения при столкновении атомов и молекул He-N<sub>2</sub>, N<sub>2</sub> - N<sub>2</sub>, Препринт ИПМ АН СССР № 362, 22 с, 1988
96. Jianturco F.A., Palma A., Angular distributions for He-N<sub>2</sub> and He-O<sub>2</sub> collisions at 27 meV: a comparison with experiments, Phys. B: At. Mol. Phys., v.18, 519-524, 1985
97. Habitz P., Tang K.T., Toennies J.P., The anisotropic Van der Waals potential for He-N, Chem. Phys. Letters, v.85, № 4, 461-466, 1982
98. Jianturco F.A., et al., Multyproperty analysis of He-N<sub>2</sub> PES. Chem. Phys., v.109, № 219, 417, 1986
99. Bowers M.S., Tang K.T., Toennies J.P., The anisotropic potentials of He-N, Ne-N and Ar-N, J. Chem. Phys., v.88, № 9, 5465- 5474, 1988
100. Nyeland C., Toennies J.P. Modelling of repulsive potentials from charge density distributions, Chem.Phys., v.122, 337-346, 1988
101. Le Sar R., Shaw M.S., An electron-gas plus damped-dispersion calculation of N<sub>2</sub> -N<sub>2</sub> interaction, J. Chem.Phys., v.84, №10, 5479-5485., 1986
102. Hay P.J., Pack R.T., Martin R.L. , Electron correlation effects on the N<sub>2</sub> -N<sub>2</sub> interaction, J. Chem. Phys., v.81, № 3, 1360- 1372, 1984
103. Brocks J., Avoird A., Infrared spectra of the Van der Waals molecule (N<sub>2</sub>), Mol. Phys., v.55, № 1, 11-32, 1985
104. Amdur I., Mason E.A., Jordan J.E., Scattering of high velocity neutral particles. X. He-N<sub>2</sub>, Ar-N<sub>2</sub> . The N<sub>2</sub>-N<sub>2</sub> interaction, J. Chem. Phys., v.27, 527-531, 1957
105. Гайдаенко В.И., Расчет межмолекулярных потенциалов на основе статистической теории, ЖТФ, т.46, № 4, 852-856, 1976
106. Klein M., Tables of collision integrals and second virial coefficients for the (m,6,8) intermolecular potential functions, NSRDS-NBS 47.-Wah., 151, 1974
107. Norman M.J.,Watts R.O.,Buck U.A., Spherical potential for hydrogen from solid state and scattering data, J. Chem. Phys. v.81, № 8, 3500, 1984
108. Ross M.,Ree F.H.,Young D.A., The equation of state of molecular hydrogen at very high density, J. Chem. Phys., v.79, № 3, 1487-1497, 1983
109. Starr T.L., Williams D.E., Comparison of models for H<sub>2</sub>-H<sub>2</sub> and H<sub>2</sub>-He anisotropic intermolecular repulsion, J. Chem. Phys. V.60, n.5, 2054-2057, 1977
110. Leonas V.B., Sermygin A.V., Kamyshev N.V., Chem. Phys. Lett., 8, 282, 1971
111. Калинин А.П., Леонас В.Б., Сермягин А.В., Короткодействующие силы отталкивания между атомами и молекулами атмосферных газов, в сб. Межпланетная среда, М., Наука, 196-209, 1972.
112. Калинин А.П., Леонас В.Б., Обнаружение аномального поведения короткодействующего межмолекулярного потенциала систем N<sub>2</sub> - N<sub>2</sub>, CO-CO, ДАН, т.261, № 5, 1113-1115, 1981

113. Калинин А.П., Леонас В.Б., Родионов И.Д. Обнаружение колебательной радуги для высокоэнергетического рассеяния, Доклады Академии наук СССР, т. 268, № 2, 347-350, 1982
114. Борисов А.С., Калинин А.П., Морозов В.Н., К вопросу о природе эффекта "колебательной радуги" в дифференциальных сечениях рассеяния атом-молекулярных систем в кэВ-диапазоне, Математическое моделирование, т.7, № 6, 75-84, 1995
115. Kelley J.D., Bearman G.H., Harris H.H., Levental J.J., Chem. Phys. Lett., v.50, 295, 1977
116. Benesch W., Vanderslice J.T., Tilford S.G., Wilkinson P.G., Frank-Condon factors for observed transition in N<sub>2</sub> above 6 eV., 236-252, 1965
117. Halmann M., Laulicht I., Astr. J., Suppl., v.XII, № 110, 307-322, 1966
118. Krupenie P.H., The spectrum of molecular oxygen, J. Phys. Ref. Data, v. 1, № 2, 423-534, 1972
119. Котова Л.П., Овчинникова М.Я., Теория аномалий дифференциальных сечений рассеяния атомов высоких энергий при наличии неупругого процесса, ЖЭТФ, т.60, вып.6, 2026-2039, 1966
120. Никитин Е.Е., Овчинникова М.Я., Интерференционные явления в атомном рассеянии, Успехи физических наук, 1971, т.104, вып.3, 379-412, 1971
121. Калинин А.П., Леонас В.Б., Родионов И.Д., Исследование эффекта колебательной радуги при рассеянии быстрых молекулярных пучков, Препринт ИКИ АН СССР № 876, 14 с, 1984
122. Mason E.A., Vanderslice J.T., Yos J.M., Transport properties of high-temperature multicomponent gas mixtures, The Physics of Fluids, v.2, № 6, p.688-694, 1959
123. Герцберг С., Спектры и строение двухатомных молекул, М.: Ин. лит., 1949
124. Capitelli M., Ficocelli E., Collision integrals of oxygen atoms in different electronic states, J. Phys. B.: Atom. Molec. Phys., v.5, 2066-2073, 1972.
125. Schaefer H.F., Harris F.E., Ab initio calculations on 62 low-lying states of the O molecule, J. Chem. Phys., v.48, p.4946-4955, 1968.
126. Porter R.N., Karplus M., Potential energy surface for H, J. Chem. Phys., v.40, p.1105-1115, 1964.
127. Holland P.M., Biolsi L., Transport properties of ground state oxygen atoms, J. Chem. Phys., v.89, p.3203-3210, 1988
128. Monchick L., Collision integrals for the exponential repulsive potential, Phys. Fluids, v.2, p.695-700, 1959.
129. Самуйлов Е.В., Цителаури Н.Н., Свойства переноса химически реагирующих газов, 1. Коэффициенты аппроксимирующих функций для эффективных сечений компонент газовой смеси, содержащей атомы Н, С, N, О и их соединений, Теплофизика высоких температур, т.8, 754-762, 1970.
130. Cable S.J., Mason S.A., Atom-molecule and molecule-molecule potential and transport collision integrals for high temperature air spaces, Phys. Fluids, v.18, 1109-1111, 1975.
131. Калинин А.П., Леонас В.Б., Сермягин А.В., Кинетические свойства газов при высоких температурах: определение интегралов столкновения, Горение и взрыв, Материалы третьего Всесоюзного симпозиума по горению и взрыву, М: Наука, 679-684, 1972
132. Reiter F.W., Zwischenmolekulare Krafte in Gasen/Ber. Busenges, Phys. Chemie, v.74, 562-568, 1970.

133. Riabov V.V., Approximate calculations of transport coefficients of Earth and Mars atmospheric dissociating gases, J. of thermophysical and heat transfer, v. 10, № 2, 209-213, 1996.
134. Калинин А.П., Дубровицкий Д.Ю., О возможности использования отталкивательных потенциалов взаимодействия для расчета высокотемпературных интегралов столкновения, Теплофизики высоких температур, т. 386 №6, 1-4, 2000.
135. Kalinin A.P., Leonas V.B., Rodionov I.D., Rodionova I.P., On the compressibility of condensed gases in the megabar pressure range, High pressure science and technology. Proceedings XIth AIRAPT International conference , Naukova Dumka, Kiev, v.3, 263-267, 1989.
136. Mao H.K., Hemley R.J., Wu Y., Jehcoat A.P., Finger L.W., Phys. Rev. Letters, 60, p, 2649, 1988
137. Hemley R.J., Jehcoat A.P., Zha C.S., Mao H.K., Finger L.W., Equation of state of solid neon from x-ray diffraction measurements to 110 GPa, Proceedings XIth AIRAPT International conference , Naukova Dumka, Kiev, 1989.