

5-825

ОБЪЕДИНЕННЫЙ ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ

На правах рукописи

УДК 519.632.4

БОРИСОВ Александр Сергеевич

МОДЕЛИРОВАНИЕ ВЗАИМОДЕЙСТВИЙ АТОМОВ
И МОЛЕКУЛ В БЫСТРЫХ МОЛЕКУЛЯРНЫХ ПУЧКАХ

Специальность: 05.13.16 – Применение вычислительной техники,
математического моделирования и ма-
тематических методов в научных
исследованиях

А в т о р е ф е р а т

диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Дубна 1991

Работа выполнена в Институте прикладной математики им. М.В. Келдыша АН СССР.

Научный руководитель – доктор физико-математических наук, профессор Калиткин Николай Николаевич

Официальные оппоненты – доктор физико-математических наук Пузынин Игорь Викторович
К. ф.-м. н. Смирнов Ю. М.

Ведущая организация – Институт химической физики Академии наук СССР.

Автореферат разослан " 11 " ноября 1991 г.

Защита состоится " 11 " октября 1991 г. на заседании специализированного Совета при лаборатории вычислительной техники и автоматизации ОИЯИ, г. Дубна.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке ОИЯИ.

Ученый секретарь специализированного Совета кандидат физико-математических наук

Иванченко Иванченко З.М.

Общая характеристика работы

Актуальность темы. Одной из центральных проблем, стоящих перед физикой атомных столкновений и ее многочисленными приложениями, является проблема определения потенциалов взаимодействия для широкого круга атом- атомных и атом- молекулярных систем. Заметная доля всей информации о потенциалах получается в настоящее время квантовохимическими расчетами. Сложности, возникающие в ходе таких расчетов, неизбежно требуют введения упрощающих предположений, что подчас приводит к более чем 100%-му расхождению теоретически рассчитанных потенциалов от экспериментальных данных. Такие эмпирические данные можно получить, решая обратную задачу рассеяния, по измерениям сечений рассеяния частиц исследуемой системы.

В настоящее время рядом организаций под руководством ИПМат АН СССР разрабатывается измерительно- вычислительный комплекс (ИВК) "Реагент", который позволит экспериментально изучать сечения взаимодействия для большого круга атом- атомных и атом-молекулярных систем в широком диапазоне относительных скоростей частиц. В экспериментах на ИВК " Реагент " планируется применять уникальные координато-чувствительные детекторы (КЧД), которые позволяют получать качественно новую информацию как об атом-атомных, так и об атом- молекулярных сечениях.

Так например, при изучении рассеяния быстрых ($v \sim 10^7$ см/сек) частиц на малые ($\theta \sim 1^\circ$) углы использование КЧД дает возможность исследовать дифракционные эффекты в дифференциальных сечениях упругого рассеяния. Такая дифракционная структура сечений содержит в себе информацию о короткодействующей ветви потенциальной кривой в диапазоне значений потенциала $0.1 < V < 5$ эВ. Указанная область потенциала интересна с точки зрения приложений в ряде задач физики сильно сжатого вещества. В настоящее время это единственный способ изучения межатомных сил в указанном диапазоне энергий взаимодействия частиц. Поэтому представляется весьма актуальной разработка алгоритма решения обратной задачи, на основе которого было бы возможно по измерениям дифракционной структуры сечений в области малых углов рассеяния определять межатомный потенциал.

В экспериментах по изучению сечений атом- молекулярного рассеяния КЧД дает возможность на разрабатываемом в " Реагенте " экспериментальном оборудовании определять сечения колебательных переходов в молекулах усредненные по вращательным состояниям частиц. Такая информация может служить основой для непосредственного определения поверхностей потенциальной энергии (ПЭУ) ответственных за $V - T$ об-

важнейших исследований

БИБЛИОТЕКА

мён в системе атом-молекула. Построить такую эмпирическую ППЭ из данных о сечениях можно методом решения обратной задачи. До последнего времени в литературе, посвященной определению атом-молекулярных ППЭ, в основном уделялось внимание проблеме определения анизотропной составляющей поверхности из данных о сечениях вращательных переходов при рассеянии частиц с низкими энергиями поступательного движения, когда можно считать, что колебательное состояние "заморожено" в процессе соударения. Описание созданных методов суммировано в обзоре^{/1/}. Однако, в условиях, когда возможно возбуждение колебательных степеней свободы ядер молекулы эти методы не пригодны. В известной мере здесь имеется определенный пробел в теории. Отчасти ликвидировать указанный пробел могли бы работы^{/2-3/}, где предложены алгоритмы определения эффективных поверхностей, описывающих радиальное движение ядер в системе атом-молекула. Предложенный в этих работах алгоритм опирается на гипотезу о наличии радужных особенностей в "полных" (т.е. просуммированных по всем конечным колебательным состояниям частиц) дифференциальных сечениях рассеяния систем He-N₂, N₂-N₂, He-O₂ и т.д. Такие особенности действительно наблюдаются в эксперименте. Однако, в новой работе^{/4/} на примере измерений спектра энергопотерь в системах He-N₂, N₂-N₂ выявлен большой вклад в сечения процессов возбуждения электронных степеней свободы частиц и, следовательно, алгоритмы^{/2-3/} нуждаются по меньшей мере в модификации.

Целью работы, таким образом являлось:

I. Создание методов определения сферически-симметричных потенциалов взаимодействия (область значений потенциала $0.1 \leq V \leq 5$ эВ из данных о дифракционном рассеянии быстрых ($E \sim 1$ КэВ) атомов и молекул на малые углы ($\theta < 1^\circ$).

I. Buok U. Inversion of molecular scattering data//Computer Phys. Report.-1986, v.5-p.1-58

2. Леонас В.Б., Родионов И.Д. Исследования высокоэнергетического рассеяния атомов и молекул.// УФН-1985, т.146, вып.1-стр.7-34

3. Родионова И.П. Восстановление молекулярных поверхностей потенциальной энергии из асимптотик эффекта колебательной радуги: Препринт №1053 М.: ИКИ АН СССР, 1985

4. Калинин А.П., Леонас В.Б., Морозов В.А. Изучение упругого рассеяния и электронного возбуждения при столкновениях атомов и молекул: He-N₂, N₂-N₂: Препринт №362 М.: ИПМех. АН СССР, 1988

2. Разработка методов расчета сечений колебательного возбуждения молекул при их рассеянии на малые углы.

3. Разработка методов, алгоритмов и программ интерпретации экспериментальной информации о сечениях процессов колебательного возбуждения при рассеянии молекулярных частиц на атомарных мишенях в терминах поверхностей потенциальной энергии системы атом-двухатомная молекула.

Научная новизна работы заключается в том что:

I. Рассмотрен вопрос о возможности экспериментального изучения межатомных сил в диапазоне энергий взаимодействия частиц $0.1 < V < 5$ эВ. Указанная область до последнего времени не поддавалась изучению в эксперименте. Разработана методика определения короткодействующего потенциала в указанном диапазоне, использующая эффекты дифракционного рассеяния быстрых частиц ($v \sim 10^7$ см/сек) на малые ($\theta < 1^\circ$) углы.

2. Разработана методика численного расчета сечения колебательного возбуждения двухатомных молекул в быстрых молекулярных пучках при их рассеянии на малые углы. Для систем с не очень высокой степенью анизотропии в поверхности потенциальной энергии (ППЭ) предложены алгоритмы определения "среза" поверхности, ответственного за V-T обмен в системе атом-молекула, из экспериментальных данных о сечениях колебательных переходов. В настоящее время методики, позволяющие извлекать указанную информацию из данных о рассеянии быстрых молекулярных пучков на газовых мишенях, отсутствуют.

3. Ранее в ряде публикаций обсуждался способ прямого экспериментального изучения короткодействующих, аддитивных составляющих поверхности потенциальной энергии системы атом+димер из атомов благородных газов в экспериментах по рассеянию кластеров на малые углы. Показано, что аналогичный способ может применяться для исследований короткодействующей части ППЭ системы атом-двухатомная гомоядерная молекула на оборудовании создавшегося в настоящее время в ИПМат. АН СССР измерительно-вычислительного комплекса "Реагент". Разработаны методики, которые позволяют из данных о сечениях столкновительной диссоциации молекул в экспериментах с быстрыми молекулярными пучками извлекать информацию о короткодействующей части ППЭ системы атом-молекула.

Практическая значимость работы заключается в том что:

I. Обработаны результаты первых относительно надежных измерений дифракционной структуры в дифференциальных сечениях при рассеянии атомов He ($E \sim 1$ КэВ) на малые углы и из этих данных определен

парный потенциал системы He-He в области межатомных расстояний
 $1\text{Å} < R < 1.7\text{Å}$

2. Предложен способ диагностики функции распределения заселенностей молекул в пучке по колебательным состояниям, не требующий применения в эксперименте лазерного или электронного оборудования.

3. Разработаны конкретные алгоритмы и программы расчета, которые могут использоваться в качестве математического обеспечения планируемых в настоящее время экспериментов по изучению неупругого рассеяния быстрых молекулярных пучков на газовых мишенях.

Публикации: по теме диссертации опубликовано 6 работ, перечень которых приведен в конце автореферата.

Апробация работы: результаты данной работы докладывались и обсуждались на конференции молодых ученых МТИ (Долгопрудный 1986г.), на II Всесоюзном совещании по физико-химическим свойствам вещества (Челябинск 1987 г.), на Рабочем совещании по уравнениям состояния (Москва 1988 г.), на X Всесоюзной конференции по электрон-атомным столкновениям (Ужгород 1988 г.), на Рабочем совещании по физико-химическим свойствам вещества (Звенигород 1989 г.), на семинаре академика Г.И.Петрова (ИКИ АН СССР 1986г.), на семинаре профессора Н.М.Кузнецова (ИХФ АН СССР 1988 г.), на семинаре академика А.А.Самарского (ИПМ АН СССР 1989 г.).

Структура и объем диссертации: диссертация состоит из введения, трех глав, заключения и приложений. Общий объем диссертации 142 страницы. Диссертация содержит 32 рисунка, 10 таблиц и список литературы (113 наименований).

КРАТКОЕ СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Во введении проведен краткий обзор состояния проблем, затронутых в диссертации, обоснована актуальность темы, новизна и практическая значимость работы.

Глава I посвящена разработке метода определения сферически-симметричного потенциала взаимодействия (область значений потенциала $0.1 < V < 5$ эВ) из данных о дифференциальном сечении дифракционного рассеяния быстрых (~1 КэВ) атомов и молекул на малые углы ($\theta \leq 1^\circ$).

В параграфе I содержатся результаты приближенного подхода к определению потенциалов взаимодействия на основе экспериментальных данных о дифференциальном сечении дифракционного рассеяния быстрых частиц на малые углы.

В пункте I.1.1 обоснована необходимость разработки методики определения сферически-симметричных потенциалов взаимодействия по данным о дифференциальных сечениях рассеяния быстрых молекулярных

пучков. Отмечается, что существующие в настоящее время методы определения сферически-симметричных потенциалов, основанные на обращении эмпирических данных пучковых экспериментов, развиты для определения V , если $5 < V < 20$ эВ (метод совместных измерений интегральных и дифференциальных сечений рассеяния) и для определения V в области $V \leq 0.1$ эВ (эксперименты с пучками тепловых энергий). Диапазон же значений потенциала $0.1 \leq V \leq 5$ эВ остается практически не перекрыт экспериментом. В тоже время информация о потенциалах в этой области энергий взаимодействия содержится, например, в дифференциальных сечениях рассеяния быстрых частиц при их рассеянии на углы $\theta \leq 1^\circ$. Отмечается что, рассеяние таких частиц на углы $\theta \leq 0.5^\circ$ описывается законами квантовой механики, что проявляется в характерных осцилляциях дифференциальных сечений в зависимости от угла θ . Указано что, эти особенности поведения сечений на малых углах могут быть использованы в конкретных процедурах обращения экспериментальных данных.

В пункте I.1.2 проводится краткий обзор методов, используемых в настоящее время для определения потенциалов из данных о рассеянии молекулярных пучков.

В пункте I.1.3 анализируется проблема определения потенциала в условиях применимости эйконального приближения ($k\alpha \gg 1$, где α -характерный радиус действия потенциала, k - волновое число налетающей частицы). Отмечается, что если диапазон углов рассеяния, в котором известно относительное (т.е. в произвольных единицах) дифференциальное сечение рассеяния, ограничен углами $\theta \in [\theta_{\max}; \theta_{\min}]$, то применение широко используемого на практике метода решения обратной задачи, предложенного О.Б.Фирсовым⁵⁷ приводит к двупараметрическому семейству потенциалов $V = V(r, C_1, C_2)$, где C_1, C_2 - неизвестные константы.

В пункте I.1.4 предложен способ приближенного аналитического определения параметров C_1, C_2 , использующий эффект появления на малых углах рассеяния дифракционных минимумов в дифференциальном сечении рассеяния. Суть предложенного подхода поясняется аналогией с дифракцией света на абсолютно поглощающем шарике радиуса α . Из оптики известно, что радиусом шарика определяется не только угловое положение минимумов в сечении, но и амплитуда дифракционных пиков. Используя эту экспериментальную информацию, константы C_1, C_2 предлагается выбирать таким образом, чтобы правильно описать амплитуду и положение первого дифракционного пика в сечении. Пока-

зано, что корректное определение V требует априорных сведений о поведении потенциала взаимодействия при $R \gg a$.

В пункте I.1.5 приводятся приближенные формулы, удобные для аналитических расчетов величин дифференциального и полного сечений рассеяния в условиях высокоэнергетического дифракционного рассеяния.

Параграф 2 посвящен разработке вариационной методики определения констант $C_1; C_2$.

В пункте I.2.1 рассмотрен возможный способ определения констант, исходя из определения минимума функционала следующего вида:

$$\Phi[V] = \int_{\vartheta_{\min}}^{\vartheta_{\max}} d\vartheta \left| \frac{\sigma_{\text{эксперим.}}(\vartheta) - \sigma_{\text{теор}}(\vartheta)}{\sigma_{\text{эксперим.}}(\vartheta_*) - \sigma_{\text{теор}}(\vartheta_*)} \right|^2 \frac{2}{\Delta(\vartheta)} \rightarrow \min \quad (I).$$

где $\vartheta_* \in [\vartheta_{\max}; \vartheta_{\min}]$, ϑ_* - угол, на котором производится нормировка сечений; $\Delta(\vartheta)$ - экспериментальная ошибка измерений; $\sigma(\vartheta)$ - дифференциальное сечение рассеяния.

Параграф 3 содержит результаты тестовых примеров восстановления потенциала упругого взаимодействия из данных о дифференциальном сечении дифракционного рассеяния быстрых частиц на малые углы. В этом параграфе приводится пример обработки экспериментальных данных по рассеянию быстрых атомов He ($E=500, 1500 \text{ эВ}$) на малые углы $[0.05^\circ; 0.2^\circ]$.

В пункте I.3.1 содержатся примеры определения сферически-симметричного потенциала взаимодействия на основе алгоритма, разработанного в параграфе I.1

В пункте I.3.2 содержатся примеры определения сферически-симметричного потенциала взаимодействия на основе алгоритма, разработанного в параграфе I.2

В пункте I.3.3 из новых экспериментальных данных о дифференциальном сечении дифракционного рассеяния атомов He ($E \sim 1 \text{ кеВ}$) на углы $\vartheta \in [0.05^\circ - 0.2^\circ]$ ^{6/} определен потенциал взаимодействия системы He-He, соответствующий представленным экспериментальным данным

6. Gao R.S., Johnson L.K., Nitz D.E., Smith K.A. and Stebbings R.F. Absolute differential cross sections for very-small-angle elastic scattering in He-He collisions at keV energies. // Phys. Rev. A-1987, v.35, n.11-p.4541

(область межатомных расстояний $1.0a \leq R \leq 1.7a$). Полученный потенциал взаимодействия находится в хорошем соответствии с вариационными расчетами^{7/}. Проведен анализ точности полученного результата. Отмечается, что в диапазоне малых углов рассеяния ($\vartheta < 2 \cdot 10^{-3}$ рад.) данные^{6/} содержат достаточно большие (больше чем величина ошибок приводимых авторами эксперимента) аппаратные эффекты $\sim 7 \cdot 10^{-4}$ рад. Указано, что такие ошибки могут приводить к завышению в величине потенциала взаимодействия. В связи с этим отмечается что отличие величины парного потенциала системы He-He, предложенного в данной работе от эффективного потенциала, полученного из ударно-волновых экспериментов с конденсированным He^{8/} не может трактоваться как проявление эффектов неаддитивности в "чистом виде" в указанном диапазоне межатомных расстояний. Показано, что широко используемый в настоящее время потенциал^{9/} является завышенным в диапазоне межатомных расстояний $R > 1.2a$.

Глава II посвящена разработке методов расчета сечений колебательного возбуждения двухатомных молекул при их рассеянии на малые углы.

Параграф 2.1 посвящен выводу формул, на которых основаны результаты, изложенные в главе II.

Пункт 2.1.1 Введение. Обосновывается возможность использования информации о сечениях колебательного возбуждения малоатомных молекул для непосредственного определения из экспериментальных данных части ПЭ системы атом-молекула, ответственной за возбуждение колебательных степеней свободы частиц. Отмечается, что в настоящее время уровень развития экспериментальной техники достаточен, чтобы методами времяпролетного анализа изучать количественную информацию о сечениях колебательного возбуждения при рассеянии быстрых ($E \sim 1 \text{ кеВ}$) молекул на малые углы. Такие сечения содержат сведения об усредненной по ориентациям частиц ПЭ, т.к. в экспериментах не представляется

7. Ceperly D.M. and Partridge // Journ. Chem. Phys. -1986, v.84-p.820

8. Nellis W.J. et al. Shock compression of liquid Helium to 56 GPa (560 kbar). // Phys. Rev. Letters-1984, v.53, n.13-p.1248

9. Foreman P.B. et al // J. Chem. Phys. D-1974, v.61-p.1658

возможным фиксировать вращательные состояния молекул. Указано, что в соответствующих разделах теории атом-молекулярного рассеяния методика, позволяющая использовать информацию о сечениях для определения атом-молекулярных ППЭ отсутствует. Отмечается, что задача определения ППЭ из данных о сечениях относится к классу обратных задач теории рассеяния. Обратные задачи некорректны. Чтобы избежать трудностей, связанных с некорректностью поставленной задачи, предлагается разработать достаточно простые способы расчета сечений, в рамках которых задача обращения экспериментальных данных в потенциал решалась бы в квадратурах и, следовательно, обладала бы устойчивостью по отношению к экспериментальным погрешностям. Отмечается, что основой для этого могут служить различные модификации полуклассических приближений, когда одна часть степеней свободы в системе атом-молекула описывается классической механикой, а другая квантовой. Кратко изложены основные результаты главы II.

Пункт 2.1.2. Указано, что при рассеянии быстрых молекул на малые углы расчет сечений колебательных переходов сводится к расчету эйкональных интегралов, в подинтегральное выражение которых входят элементы S-матрицы рассеяния, вычисляемые решением задачи Коши для системы обыкновенных дифференциальных уравнений. В координатном представлении указанная система представляет из себя нестационарное уравнение Шредингера, определяющее внутримолекулярную динамику при заданном движении центра масс системы по классической траектории. Используя вариационный принцип для действия, получен упрощенный вариант этого уравнения, в котором радиальное движение ядер молекулы описывается волновой функцией, а вращательное движение молекулы как целого определяется законами классической механики (полуклассическое приближение). Предложено использовать полученные уравнения для расчета сечений колебательного возбуждения молекул усредненные по их вращательным состояниям.

2.2 посвящен решению уравнений полуклассического приближения для усредненной по ориентациям молекул поверхности потенциальной энергии.

В пункте 2.2.1 на основе волновой функции для гармонического осциллятора с зависящей от времени частотой и подверженного действию внешней силы, найденной в работе /10/, проведено решение предложенных в пункте 2.1.2 уравнений для потенциала "дышащей сферы"

$$V(R, r) = V_0(R) + B(R) \cdot (r - r_e) + C(R) \cdot (r - r_e)^2 \quad (2)$$

Обсуждаются: а) функция отклонения $\tau(b) = \delta(b)E$ в приближении прямолинейных траекторий; б) энергопотеря в процессе соударения; в) вероятности колебательных переходов. Проведено сравнение функции отклонения в полуклассическом приближении настоящей работы и классического приближения работы /11/. Найденно, что

1. Если в потенциале взаимодействия в (2) положить $C(R) = \text{const}$, то усредненная по фазе ϕ_0 функция отклонения $\langle \tau(b, \phi_0) \rangle$, вычисленная в классическом приближении /11/, полностью совпадает с функцией отклонения $\tau(b)$ в ПП. Отличие указанных величин проявляется (в членах первого порядка по $\Delta\omega/\omega$), если рассматриваются потенциалы взаимодействия с $C(R) = \text{const}$.

2. Для вычисления дифференциального сечения рассеяния в области углов классического рассеяния, усредненного по всем конечным колебательным состояниям в рамках приближения работ /2, 11/, достаточно воспользоваться формулой: $\rho = \tau b (d\tau/db)$, а под τ понимать $\langle \tau(b, \phi_0) \rangle$.

В пункте 2.2.2 используя метод стационарной фазы для вычисления эйкональных интегралов, получены простые аналитические формулы для расчета сечений колебательных переходов в рамках ППЭ системы атом-молекула вида

$$V(R, r) = V_0(R) + B(R) \cdot (r - r_e) + (\pi\omega^2/2) \cdot (r - r_e)^2 \quad (3)$$

Обсуждаются условия применимости этих формул. Проведено сравнение результатов расчетов сечений колебательных переходов по предложенным формулам с расчетами эйкональных интегралов на ЭМ. Найденно хорошее соответствие в результатах, если углы рассеяния не малы. Отмечается неплохое согласие в величинах сечений, вычисленных в рамках обсуждаемого в данной работе подхода с расчетами сечений на основе обобщенно-эйконального метода.

В пункте 2.2.3 на основе предложенных в предыдущем пункте

II. Родионов И.Д. Теория эффекта колебательной радуги в рассеянии молекул высоких энергий: Препринт N°189 М.: ИПМат АН СССР, 1982

формулы построены алгоритмы определения потенциалов $V_0(R), B(R)$ из данных о сечениях колебательных переходов в молекулах при их рассеянии на малые углы. При этом для определения V_0 и B требуется решить систему из двух интегральных уравнений типа Абея. Решение указанной системы выписывается в квадратурах. Последнее позволяет избежать трудностей, связанных с некорректностью обратной задачи.

В пункте 2.2.4 рассматривается тестовый пример определения поверхности $V(R, r)$ из данных о сечениях. Обработкой измеренных в ^{/12/} сечений колебательных переходов для системы He^+-N_2 при рассеянии быстрых ($E \sim 100 \text{ эВ}$) ионов He^+ на малые ($\theta \sim 1^\circ$) углы проведена оценка $B(R)$ системы He^+-N_2 в области $R \sim 1.5 \text{ \AA}$. Отмечается неполнота сведений о сферически-симметричной части поверхности $V_0(R)$ для этой системы. Это существенно снижает надежность полученного результата. Отмечается, что для уточнения результатов данного пункта необходимы новые данные о $V_0(R)$ для He^+-N_2 в области $R \sim 1.5 \text{ \AA}$.

В пункте 2.2.5 разработана методика определения функции распределения ($\phi, p.$) заселенностей молекул в пучке по колебательным состояниям. Суть методики состоит в следующем. Предлагается измерять сечения колебательных переходов для некоторой атом-молекулярной системы. Причем, если молекулы помещены в газовую мишень, которая поддерживается при достаточно низкой температуре, то $\phi, p.$ молекул по колебательным состояниям известна — это δ_{on} (дельта-функция, т.к. все молекулы находятся в основном колебательном состоянии). Через функцию $\Gamma(\tau) = \rho_{01}(\tau) / \rho_{00}(\tau)$, измеренную для некоторого приведенного угла τ в этом случае определяются все сечения переходов в более высокие колебательные состояния. Если для той же атом-молекулярной системы измерить сечения переходов в случае когда молекулы находятся в пучке $\phi, p.$ которого неизвестна, то такие сечения выражаются через неизвестную $\phi, p.$ и через $\Gamma(\tau)$. В предположении, что $\phi, p.$ имеет пуассоновский вид, т.е. $F_n = (s^n / n!) \exp(-s)$, где s — неизвестная константа, получены формулы, позволяющие определять s по известной $\Gamma(\tau)$, из отношения сечений $\rho_{00}^{\Pi} / \rho_{00}^{\text{M}}$, где ρ_{00}^{Π} — сечение перехода из основного состояния в основное, когда молекулы находятся в пучке; ρ_{00}^{M} — то же, когда молекулы находятся в мишени.

В параграфе 2.3 изложена методика расчета сечений колебательного возбуждения на анизотропном потенциале.

В пункте 2.3.1 разработана методика расчета сечений

колебательного возбуждения молекул при их рассеянии на анизотропном потенциале. Расчет амплитуд переходов в этом случае сводится к вычислению эйкональных интегралов по прицельному параметру b , в подынтегральное выражение которых входят элементы S -матрицы. При рассеянии частиц с большими энергиями на малые углы оправдано использовать два следующих предположения. Во-первых, приближение прямолинейных траекторий, во-вторых, условие замороженности положения оси молекулы относительно траектории движения частиц. Оценивая интегралы по методу стационарной фазы и используя два упомянутых выше условия, получены достаточно простые расчетные формулы для сечений колебательных переходов в молекулах.

В пункте 2.3.2 на основе предложенных формул проведена проверка правильности предположения о возможности описания усредненных по вращательным состояниям сечений колебательных переходов в молекулах усредненными по вращательным переменным поверхностями потенциальной энергии. На примере расчета сечений ρ_{00}, ρ_{01} для ППЭ в которой анизотропные компоненты составляют $< 50\%$ от сферически-симметричных показана допустимость такого предположения для систем с малой анизотропией в поверхности.

Параграф 2.4 посвящен проблеме определения аддитивных составляющих ППЭ системы атом-молекула из данных о сечениях столкновительной диссоциации молекул в быстрых молекулярных пучках.

В пунктах 2.4.1–2.4.3 обосновывается способ определения аддитивных составляющих ППЭ системы атом-двухатомная гомоядерная молекула из данных о сечениях столкновительной диссоциации молекул при их рассеянии на малые углы. Отмечается, что методика определения аддитивных составляющих поверхности была разработана в ^{/13/}, где предложен алгоритм определения потенциалов из данных о развале слабосвязанных кластеров. Отмечается, что в аналогичных условиях при развале молекул, энергия связи которых существенно больше, чем энергия связи в кластере, алгоритмы ^{/13/} нуждаются в модификации. Предложены формулы, которые позволяют учесть энергию связи в молекулах в рамках приближений работ ^{/13/}.

В пункте 2.4.4 показано, что необходимые для этого эксперименты могут быть выполнены на оборудовании создающегося в настоящее время в ИГиМат. АН СССР измерительно-вычислительного комплекса "Реагент".

ИЗ. Калинин А.П., Родионов И.Д. О возможности экспериментального изучения эффектов неаддитивности короткодействующих межатомных сил: Препринт №110 М.: ИГиМат АН СССР, 1985

12. Doweck D., Dhuciq D., Pommier J. et al. // Phys. Rev. Ser. A-1982 v.28 n.5 -p.2838

В пункте 2.4.5 сформулированы основные результаты, изложенные в главе II.

Глава III

Параграф 3.1 посвящен разработке методов численного расчета сечений рассеяния в молекулярных пучках.

Пункт 3.1.1 Введение. Отмечается, что для интерпретации данных в экспериментах с молекулярными пучками и в приложениях при определении транспортных коэффициентов требуется рассчитывать сечения рассеяния атом- атомных и атом- молекулярных систем в широком диапазоне энергий относительного движения частиц. Хотя вопрос о том, как следует вычислять такие сечения, уже давно решен, разработка эффективных алгоритмов численного счета тем не менее остается актуальной и по сей день, ибо, например, удачный выбор методики позволяет на 1-2 порядка снизить общее время вычислений.

В пунктах 3.1.2- 3.1.3 изложен алгоритм численного расчета сечений упругого рассеяния удобный для применения при невысоких энергиях относительного движения частиц. Указанный алгоритм был разработан ранее И.Д.Родионовым. В его основе лежит способ расчета амплитуды рассеяния суммированием парциальных волн, а вычисление фазовых сдвигов производится численным решением уравнения Шредингера для логарифмической производной радиальной части волновой функции частицы в поле $V(r)$.

В пунктах 3.1.4- 3.1.5 показано, что применение описанного выше алгоритма уже при энергиях частиц $E \sim 1$ eV отнимает слишком много расчетного времени. Указано, что если в этом случае вычислять амплитуду рассеяния суммой по парциальным волнам, а фазовый сдвиг в квазиклассическом приближении, то результаты расчетов сечений таким способом практически не отличаются от результатов, полученных в рамках алгоритма пунктов 3.1.2- 3.1.3. Разработаны эффективные при численном счете методики расчета квазиклассических фазовых сдвигов. Описана методика быстрого вычисления амплитуды рассеяния.

В пункте 3.1.6 приводятся результаты расчетов дифференциальных сечений рассеяния системы H^+ - He при энергиях частиц $E = 0.1; 5.4; 100$ eV. Программы, по которым проводились расчеты сечений, созданы по изложенным в пунктах 3.1.2- 3.1.5 алгоритмам. Представленные в этом пункте расчеты выполнены совместно с И.П.Родионовой.

В пункте 3.1.7 обсуждается методика численного расчета сечений возбуждения колебательных состояний в молекулах при их рассеянии на малые углы, в основе которой лежат результаты главы II.

Параграф 3.2 Дополнительные результаты.

Пункт 3.2.1 посвящен расчету колебательно- вращательного спектра для потенциалов вида:

$$V(r) = \epsilon \left(\left(\frac{a}{r} \right)^{2k} - 2 \left(\frac{a}{r} \right)^k \right) - \left(\frac{\beta}{r^2} \right), \quad (4)$$

здесь r -межъядерное расстояние в молекуле; $\epsilon; a; k; \beta$ -эмпирические константы. Отмечается, что проведение массовых расчетов термодинамических свойств вещества невозможно без информации о колебательно-вращательных статистических суммах простейших двухатомных молекул. В приложениях для расчета таких сумм как правило используют спектр-собственных значений в рамках потенциала ГЖР (гармонический осциллятор, жесткий ротатор). Такая модель не может удовлетворительно описать колебательно- вращательный спектр при очень высоких температурах, когда молекулы находятся вблизи порога диссоциации. Более реалистичными потенциалами, хорошо передающими структуру верхних уровней являются потенциалы типа Ленарда- Джонса. Для них не найдено точных формул решающих спектральную задачу. В данной части работы получены выражения, позволяющие аналитически с точностью близкой к квазиклассической, определять колебательно-вращательный спектр для потенциалов вида (4).

Приложения

В приложениях 1- 2 проведено вычисление матричных элементов $\langle m | x | n \rangle, \langle m | x^2 | n \rangle$ и энергопотери $\Delta \epsilon$ для волновой функции гармонического осциллятора с зависящей от времени частотой и подверженному действию внешней силы.

В приложении 3 вычислены интегралы вида

$$\int_{-\infty}^{+\infty} dy H_m(y) H_n(y - \beta) \exp(-ay^2 + by)$$

$H_n(y)$ полиномы Эрмита.

Приложение 4 посвящено расчету сечений возбуждения колебательных состояний в молекулах при их рассеянии на анизотропном потенциале.

В приложении 5 вычислен ряд

$$\sum_{n=0}^{\infty} \frac{\Delta_n^2}{n!} \Delta_n^2(x)$$

$\Delta_n(x)$ - полиномы Лагерра.

ОСНОВНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ ДИССЕРТАЦИИ

1. Разработана методика определения величины короткодействующей части межатомных потенциалов взаимодействия из данных о дифракционном рассеянии быстрых пучков на газовых мишенях.

2. Найден короткодействующий потенциал системы He-He в диапазоне межатомных расстояний $1.5 < R < 1.7 \text{ \AA}$.

3. Разработаны и программно реализованы методики расчета сечений колебательного возбуждения двухатомных молекул в быстрых молекулярных пучках при их рассеянии на малые углы.

4. Разработаны методики обращения информации о сечениях колебательного возбуждения двухатомных молекул, усредненных по вращательным состояниям молекул, в усредненные по ориентациям частиц поверхности потенциальной энергии (ППЭ). Предложенные методики целесообразно использовать для систем с невысокой степенью анизотропии в ППЭ. Предложен способ диагностики заселенностей молекул пучка по колебательным состояниям.

5. Разработана методика определения аддитивных короткодействующих составляющих ППЭ системы атом-двухатомная молекула из данных о сечениях столкновительной диссоциации молекул в экспериментах со скрещенными молекулярными пучками.

6. Предложен приближенный способ расчета колебательно-вращательного спектра для потенциалов со степенными при $r \rightarrow \infty$ асимптотиками.

ПЕРЕЧЕНЬ ПУБЛИКАЦИИ ВЫПОЛНЕННЫХ ПО ТЕМЕ ДИССЕРТАЦИИ

1. А.С.Борисов, И.Д.Родионов Обратная задача дифракционного рассеяния атомов высоких энергий на малые углы: Препринт N°39 М.: ИГиМ им.М.В.Келдыша АН СССР 1986

2. А.С.Борисов, И.Д.Родионов Полуклассическая модель рассеяния быстрого атома на двухатомной молекуле: Препринт N° 29 М.: ИГиМ им.М.В.Келдыша АН СССР 1986

3. А.С.Борисов, И.П.Родионова Алгоритмы расчета упругих сечений рассеяния атомных частиц в широком диапазоне энергий столкновения: Препринт N°29 М.: ИГиМ им.М.В.Келдыша АН СССР 1986

4. A.S.Borisov, I.D.Rodionov Determination of two ground state atoms He energy interaction from new data on a diffraction scattering of fast molecular beams: preprint N°29 P.: Inst. Appl. Math. Acad. Sci. USSR 1989

5. А.С.Борисов, И.Д.Родионов Обращение спектров колебательных энергопотерь при рассеянии быстрых пучков на газовой мишени // В сб.: Тезисы докл. X ВКЭАС, Ужгород, 1988г.

6. А.С.Борисов, И.Д.Родионов Определение энергии взаимодействия двух атомов He из новых данных о дифракционном рассеянии быстрых пучков // В сб.: Тезисы докл. X ВКЭАС, Ужгород, 1988г.

Размножено в ИГиРГИ

Подписано в печать 24/1 1991 г.
Формат 60x84 1/16. Печ. л. 1,0.
Тираж 100. Зак. 15