ЖЭТФ, 2006, том 130, вып. 5 (11), стр. 816–819

РАСЧЕТ СЕЧЕНИЯ РЕАКЦИИ ПЕРЕЗАРЯДКИ ПРИ СТОЛКНОВЕНИИ ФУЛЛЕРЕНОВ

Г. С. Ирошников *

Московский физико-технический институт (государственный университет)
141700, Долгопрудный, Московская обл., Россия

Поступила в редакцию 19 июня 2006 г.

На основе инстантонного приближения к туннельному расщеплению уровней энергии выводится формула для сечения перезарядки при столкновении фуллеренов. Полученная формула, справедливая в адиабатическом приближении, хорошо описывает известные экспериментальные данные.

PACS: 71.20.Tx

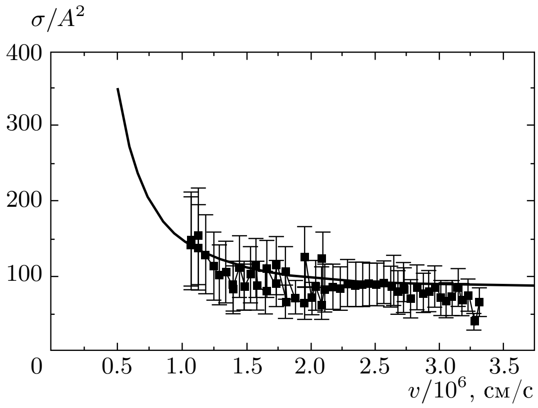
1. ВВЕДЕНИЕ

В последние годы интенсивно изучаются различные свойства фуллеренов, в том числе реакция перезарядки

$$C_{60}^{+} + C_{60} \to C_{60} + C_{60}^{+},$$

см. [1–4]. В интервале энергий от 0.2 до 2.1 кэВ в системе центра масс (что соответствует относительным скоростям столкновения, лежащим в интервале $(1\text{–}3.5)\cdot 10^6$ см/с) наблюдается рост сечения перезарядки при уменьшении скорости v. Простые модели [3–5], применявшиеся ранее при расчетах этого сечения, не приводят к достаточно хорошему описанию экспериментально измеренной зависимости сечения от скорости столкновения.

Целью данной работы является теоретический расчет сечения $\sigma(v)$, достаточно хорошо согласующийся с экспериментальными данными, представленными на рисунке. Наиболее важным для нас будет наблюдение того, что эффективный потенциал для π-электрона, переходящего в процессе столкновения с поверхности одной сферы C_{60} на поверхность второй сферы, может рассматриваться как симметричный двухъямный потенциал с барьером конечной высоты, зависящим от расстояния $R(t)$ между центрами обеих сфер [2]. Второе важное обстоятельство связано с тем, что характерные относительные орбитальные моменты



Сечение реакции перезарядки (20) как функция относительной скорости столкновения фуллеренов и соответствующие экспериментальные данные из работы [1]

$$l = \frac{Mvb}{\hbar}$$

для указанного интервала скоростей оказываются велики [2], $l \gg 1$, в силу большой приведенной массы M, что позволяет заменить сумму по $l = kb$ на интеграл по прицельному параметру b. Поскольку в условиях эксперимента скорость столкновения мала по сравнению с атомной, эффективный потенциал можно рассматривать как медленно меняющийся со

*E-mail: irosh@orc.ru

временем, т. е. использовать адиабатическое приближение.

2. РАСЧЕТ СЕЧЕНИЯ ПЕРЕЗАРЯДКИ

Для рассматриваемого процесса существенны периферические взаимодействия без фрагментации фуллеренов, что соответствует прицельным параметрам $b \geq 2\rho$, где ρ — радиус сферы C_{60}. Будем исходить из общей формулы для сечения неупругого канала:

$$\sigma = \frac{\pi}{k^2}\sum_l (2l+1)\,|S_{if}(l)|^2 \approx \approx \frac{\pi}{k^2}\int\limits_{l_{min}}^{\infty} 2l\,dl\,|S_{if}(l)|^2 = 2\pi \int\limits_{b_{min}=2\rho}^{\infty} b\,db\,W(b), \quad (1)$$

где

$$W(b) = |S_{if}(l = kb)|^2$$

— вероятность процесса перезарядки. Для медленно меняющегося потенциала применима известная формула для вероятности перезарядки [6, 7]

$$W(b) = \left|\sin\left\{\int\limits_{-\infty}^{\infty} dt\frac{\Delta E(b,t)}{2\hbar}\right\}\right|^2. \quad (2)$$

Здесь

$$\Delta E = E_- - E_+ = \Delta E\,(R(t), b)$$

— разность энергий четной и нечетной волновых функций частицы в двухъямном потенциале $V(R(t))$, где $R(t)$ — расстояние между центрами сфер C_{60}, причем

$$R^2(t) = b^2 + (vt)^2. \quad (3)$$

Для малых b, когда эффективное расстояние между ямами мало и барьер невелик, мы имеем в основном большое расщепление уровней ΔE.

Если

$$\frac{\Delta E T}{2\hbar} \gg 1,$$

где

$$T(E) = \frac{2\pi}{\omega(E)}$$

— период движения частицы в изолированной яме, то интеграл

$$\int\limits_{-\infty}^{t} dt\frac{\Delta E}{2\hbar}$$

сильно меняется при изменении t, поэтому при b, меньших некоторого b_0,

$$\left|\sin\left(\int\limits_{-\infty}^{\infty} dt\frac{\Delta E}{2\hbar}\right)\right|^2 \approx \frac{1}{2}, \quad (4)$$

$$W(b) = 1/2 \quad \text{при} \quad 2\rho \leq b \leq b_0. \quad (5)$$

В результате искомое сечение можно представить в виде

$$\sigma = \pi\int\limits_{2\rho}^{b_0} b\,db + 2\pi\int\limits_{b_0}^{\infty} b\,db\,W(b) \equiv \sigma_1 + \sigma_2, \quad (6)$$

где

$$\sigma_1 = \frac{\pi}{2}\left[b_0^2 - (2\rho)^2\right]. \quad (7)$$

Заметим, что выражение для константы σ_1 имеет такую же структуру, как получающиеся в результате оценок сечения, проведенных в работах [3, 4] на основе простых моделей.

Теперь вычислим σ_2. Будем считать, что для $b > b_0$ эффективный барьер между ямами малопроницаем, что позволяет применить квазиклассическое приближение для расчета расщепления уровней $\Delta E(R(t), b)$. Для наших целей для определения величины ΔE наиболее удобно воспользоваться инстантонным приближением, которое имеет ряд преимуществ по сравнению со стандартным ВКБ-приближением (по этому поводу см. [8, 9], а также приведенные там ссылки на более ранние работы). В этом приближении величина туннельного расщепления уровней энергии дается в замкнутом виде для произвольного двухъямного потенциала. Особенно простое выражение возникает для модельного потенциала вида

$$V(x) = \frac{m\omega^2(x^2 - a^2)^2}{8a^2}. \quad (8)$$

Тогда, согласно работам [9, 10], расщепление n-го уровня имеет вид

$$\Delta E_n = \frac{\hbar\omega 2^{n+1}}{\sqrt{\pi}\,n!}\left(\frac{2a}{\lambda}\right)^{2n+1}\exp\left(-\frac{2}{3}\left(\frac{a}{\lambda}\right)^2\right), \quad (9)$$

где $\lambda = \sqrt{\hbar/m\omega}$ — масштаб квантовых флуктуаций частицы массы m в одной изолированной яме. (В работе [9] были вычислены также ангармонические поправки, пропорциональные $\hbar^2$. Здесь мы не будем их учитывать.) Высота барьера между ямами

$$h = V(x = 0) = \frac{m\omega^2 a^2}{8} \quad (10)$$

убывает с уменьшением расстояния между ямами (равного $2a$), как и должно быть для реального потенциала. Конечно, реальный потенциал должен выходить на константу при $|x| \gg a$, что не выполняется для потенциала вида (8). Однако для процесса перехода частицы из одной ямы в другую важен барьер, разделяющий эти ямы, т. е. область $-a \le x \le a$, а не $|x| \gg a$. Поэтому мы считаем разумным использование в дальнейшем потенциала (8).

Для основного уровня ($n = 0$) имеем из (9)

$$\Delta E = 2\frac{\hbar\omega}{\sqrt{\pi}}\left(\frac{2a}{\lambda}\right)\exp\left(-\frac{1}{6}\left(\frac{2a}{\lambda}\right)^2\right). \tag{11}$$

Применительно к нашей задаче, где расстояние между ямами равно

$$2a(t) = R(t) - 2\rho, \quad R(t) = \left(b^2 + (vt)^2\right)^{t/2}, \tag{12}$$

получаем

$$\Delta E(b,t) = \frac{2\hbar\omega}{\sqrt{\pi}\,\lambda}\left[\sqrt{b^2+(vt)^2} - 2\rho\right] \times \\ \times \exp\left\{-\frac{1}{6\lambda^2}\left[\sqrt{b^2+(vt)^2} - 2\rho\right]^2\right\}. \tag{13}$$

В области $b \gg 2\rho$ выражение (13) можно упростить, записав

$$\Delta E(b,t) = \frac{2\hbar\omega}{\sqrt{\pi}\,\lambda}R(t)\exp\left(-\frac{R^2(t)}{6\lambda^2}\right) \equiv \\ \equiv \Delta E\left(R(t)\right). \tag{14}$$

Используя формулу (2) для вероятности перехода $W(b)$, получаем

$$\frac{1}{2\hbar}\int_{-\infty}^{\infty} dt\Delta E\left(R(t)\right) = \frac{\omega}{\sqrt{\pi}\,\lambda}\exp\left(-\frac{b^2}{6\lambda^2}\right) \times \\ \times \int_{-\infty}^{\infty} dt\sqrt{b^2+(vt)^2}\exp\left(-\frac{(vt)^2}{6\lambda^2}\right). \tag{15}$$

Применяя метод перевала, получаем

$$\frac{1}{2\hbar}\int_{-\infty}^{\infty} dt\,\Delta E\left(R(t)\right) \approx \\ \approx \sqrt{6}\left(\frac{\omega}{v}\right)\left(b + \frac{3\lambda^2}{2b}\right)\exp\left(-\frac{b^2}{6\lambda^2}\right) \equiv F(b), \tag{16}$$

причем для применимости инстантонного приближения необходимо, чтобы выполнялось условие $b^2 \gg \lambda^2$. Для достаточно больших b^2 в формуле (2) можно положить

$$W(b) = |\sin F(b)|^2 \approx |F(b)|^2,$$

что дает в главном порядке по b^2/λ^2

$$W(b) = \frac{6\omega^2}{v^2}(b^2 + 3\lambda^2)\exp\left(-\frac{b^2}{3\lambda^2}\right). \tag{17}$$

Отсюда получаем

$$\sigma_2 = 2\pi\int_{b_0}^{\infty} b\,db\,W(b) = \\ = 18\pi\left(\frac{\omega\lambda}{v}\right)^2(b_0^2 + 6\lambda^2)\exp\left(-\frac{b_0^2}{3\lambda^2}\right), \tag{18}$$

где также должно выполняться условие $b_0^2 \gg \lambda^2$.

Для последующей численной оценки величины (18) удобно переписать множитель $\omega\lambda/v$ в виде

$$\frac{\omega\lambda}{v} = \left(\frac{\Lambda}{\lambda}\right)\left(\frac{c}{v}\right), \tag{19}$$

где $\Lambda = \hbar/mc \approx 4\cdot10^{-3}$ Å — комптоновская длина волны электрона, c — скорость света. Окончательно для сечения перезарядки получаем выражение

$$\sigma(v) = \frac{\pi}{2}\left[b_0^2 - (2\rho)^2\right] + 18\pi\Lambda^2\left(\frac{c}{v}\right)^2 \times \\ \times \left(\frac{b_0^2}{\lambda^2} + 6\right)\exp\left(-\frac{b_0^2}{3\lambda^2}\right) \equiv \sigma_1 + \sigma_2, \tag{20}$$

где экспериментальное значение радиуса сферы C_{60} равно $\rho = 4.3$ Å.

В процессе нашего расчета использовался модельный потенциал, который содержал два свободных параметра: ω и a. В формуле (20) им соответствуют параметры b_0 и λ, которые могут быть определены из экспериментальных данных работы [1]:

$$\sigma(v = 1\cdot10^6 \text{ см/с}) = (150 \pm 70)\,\text{Å},$$
$$\sigma(v = 3\cdot10^6 \text{ см/с}) = (90 \pm 30)\,\text{Å}.$$

Приравнивая $\sigma(v)$ (20) этим двум значениям, находим следующие величины:

$$b_0 = 11.25\,\text{Å}, \quad \lambda = 1.79\,\text{Å}, \tag{21}$$

откуда

$$\varepsilon = \frac{\hbar\omega}{2} = \frac{\hbar^2}{2m\lambda^2} = 1.24 \text{ эВ}, \quad \sigma_1 = 82.5\,\text{Å}^2.$$

Отметим, что значения параметров (21) выглядят вполне естественно для молекулярной системы C_{60}. Отсюда, в частности, следует, что в условиях нашей задачи параметр адиабатичности

$$\zeta = \frac{v_0}{v} \approx \frac{\omega\lambda}{v} = \left(\frac{\Lambda}{\lambda}\right)\left(\frac{c}{v}\right) \gg 1.$$

Здесь $v_0 \approx \omega\lambda$ — характерная скорость колебаний частицы в изолированной яме. Это означает, что поскольку $v \ll v_0$, эффективный потенциал медленно меняется за период колебания T, что дополнительно подтверждает справедливость использованного выше адиабатического приближения.

Как видно из рисунка, полученная теоретическая кривая для $\sigma(v)$ (20) хорошо согласуется с экспериментальными данными.

Согласно формуле (6) параметр b_0 играет роль границы между следующими двумя режимами:

1) прицельным параметрам, лежащим в интервале $2\rho \le b \le b_0$, соответствуют быстрые осцилляции, где $W(b) \approx 1/2$;

2) для прицельных параметров, лежащих в интервале $b_0 \le b \le \infty$, характерны медленные переходы электрона из одной ямы в другую.

Действуя согласно формуле (6), мы пренебрегаем вкладом промежуточного режима, где $\Delta ET/2\hbar \approx 1$. Однако можно проверить, что для нашего граничного значения $b = b_0 = 11.25\,\text{Å}$ и $v = 1.5\cdot 10^6$ см/с, например, для величины $F(b)$ (16) имеет место следующее соотношение:

$$F(b)^2 \approx 0.6.$$

Это значение численно близко к $W(b) \approx 0.5$ для режима быстрых осцилляций. Это указывает на то, что при $b \to b_0$ выражение (16) частично учитывает этот промежуточный режим.

3. ВЫВОД

Таким образом, реакция

$$C_{60}^{+} + C_{60} \to C_{60} + C_{60}^{+}$$

достаточно хорошо описывается в рамках стандартной теории перезарядки [6, 7] с подходяще подобранным двухъямным симметричным потенциалом.

Автор благодарит В. П. Крайнова за то, что он обратил его внимание на данную проблему, и за полезные обсуждения, а также М. Г. Иванова за помощь в графическом оформлении результатов работы. Работа выполнена при финансовой поддержке Минвуза РФ (грант № 120.06).

ЛИТЕРАТУРА

1. F. Rohmund and E. Campbell, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **30**, 5293 (1997).

2. H. Brauning, R. Travel, A. Diehl et al., Phys. Rev. Lett. **91**, 168301 (2003).

3. H. Zettergren, H. T. Schmidt, H. Cederquist et al., Phys. Rev. A **66**, 032710 (2002).

4. H. Shen, P. Hvelplund, D. Mathur et al., Phys. Rev. A **52**, 3847 (1995).

5. D. Rapp and W. E. Francis, J. Chem. Phys. **37**, 2631 (1962).

6. О. Б. Фирсов, ЖЭТФ **21**, 1001 (1951).

7. А. Б. Мигдал, В. П. Крайнов, *Приближенные методы квантовой механики*, Наука, Москва (1966).

8. Г. С. Ирошников, Л. П. Суханов, Опт. и спектр. **93**, 555 (2002)

9. Г. С. Ирошников, Л. П. Суханов, Опт. и спектр. **97**, 760 (2004)

10. U. Weiss and W. Haeffner, Phys. Rev. D **27**, 2916 (1983).