

# 团簇碰撞中的相对转动研究\*

曾祥华 徐秀莲 姚小静 毕桥

(扬州大学物理科学与技术学院, 扬州大学复杂性科学中心 扬州 225002)

**摘要** 采用距离相关紧密束缚的分子动力学模型, 研究了在不同碰撞能量以及不同的碰撞参数下, 碱金属团簇碰撞过程中的转动行为. 研究表明, 团簇碰撞中存在着较大的转动. 对确定的能量, 存在极值的碰撞参数, 小于该碰撞参数时, 转动能量随碰撞参数增加而迅速增加; 大于该碰撞参数时, 转动能量随碰撞参数的增加迅速减小. 能量低时, 相对转动弛豫时间更长; 碰撞能量越大, 越过势垒的能力越强, 势场的相对影响就越小, 由此引起的相对转动也就越小.

**关键词** Na 团簇 紧束缚模型 转动

## 1 引言

作为特殊物质形态——团簇, 目前开展了广泛的研究<sup>[1-3]</sup>. 一方面由于量子技术的发展, 可以利用团簇来合成新材料, 构造量子器件; 另一方面由于团簇介于宏观和微观尺寸范围内, 因此对团簇的研究可以探索微观体系的量子行为, 即为原子核体系的研究提供信息. 比如一系列的研究表明, 团簇碰撞过程中会出现重离子碰撞中类似的反应机制, 如低能中心碰撞的聚合反应、近中心碰撞的深部非弹性碰撞(DIC), 以及能量较高时的非弹性碰撞等机制.

在团簇碰撞的研究中<sup>[4,5]</sup>, 得到大分子团簇的形成与初始团簇的几何构型有关, 与入射道的动力学(能量、不同的体系以及不同的碰撞距离)相关, 并且在碰撞过程中也观察到了与重离子碰撞相似的反应机制. 在重离子碰撞中, 有关集体流的研究得到广泛重视, 由此获得有关核物质状态方程的信息. 而团簇由于电磁作用的长程性, 在碰撞过程中会出现不同的现象. 本文将研究团簇碰撞过程的动力学行为, 通过跟踪各体系碰撞过程中的空间结构, 讨论碰撞过程中转动以及由转动引起的能量耗散现象. 在此先以碱金属团簇  $\text{Na}_{20}$  与  $\text{Na}_{20}$  碰撞体系为例, 来研

究碰撞中转动的一些知识.

描述团簇的理论模型有许多, 目前应用较广的有局域密度近似(Local density approximation LDA)的从头计算的密度泛函理论<sup>[6]</sup>. 这里使用的模型是在 Born-Oppenheimer 近似下人们发展的一个距离相关的紧密结合分子动力学模型(Tight-binding molecular dynamics DDTB-MD)<sup>[7]</sup>. 在计算中增加考虑了团簇的转动效应.

## 2 模型

紧束缚分子动力学模型计算中钠原子团簇的 Born-Oppenheimer 势能面是通过距离相关的紧密结合的哈密顿量来确定, 且对于基矢函数只取  $s$  轨道、 $p$  轨道作为微扰处理. 单电子哈密顿量本征值即

$$\hat{h} = \sum_{i,j} h_{ij} a_i^\dagger a_j, \quad (1)$$

$$h_{ii} = h_{ii}^{(0)} + h_{ii}^{(2)} = \sum_{k \neq i} \left\{ \rho_{ik}(R_{ik}) - \frac{t_{ik}^2(R_{ik})}{\epsilon_{3p} - \epsilon_{3s}} \right\},$$

$$h_{ij} = h_{ij}^{(0)} + h_{ij}^{(2)} = t_{ij}(R_{ij}) - \sum_{k \neq i,j} \frac{t_{ik}(R_{ik}) t_{jk}(R_{jk})}{\epsilon_{3p} - \epsilon_{3s}} \times \frac{\mathbf{R}_{ik} \cdot \mathbf{R}_{jk}}{|\mathbf{R}_{ik}| |\mathbf{R}_{jk}|}$$

2002-04-10 收稿

\* 国家自然科学基金(60072032, 79970121), 江苏省教委基金(00KJB140010)资助

其中  $a_i^+$  和  $a_j$  分别是  $s$  轨道上  $i$  基和  $j$  基的产生和湮灭算符. 矩阵元  $h_{ij}$  是通过用  $3s$  轨道做基并包括  $3p$  轨道微扰的距离相关的量. 3 个函数  $\rho_{ss}(R)$ ,  $t_{ss}(R)$  和  $t_{sp}(R)$  分别对应原子间距离为  $R$  时的离子-离子斥力,  $s$ - $s$  和  $s$ - $p$  的转换积分所用参数见文献[3]. 对  $\text{Na}_6$ , 其最低能量异构体具有两种对称性:  $D_{3h}$ ,  $C_{3v}$ , 为描述方便, 分别记为  $\text{Na}_6(2D)$  和  $\text{Na}_6(3D)$ .

在 DIDTB-MD 模型计算中<sup>[13-6]</sup>, 对初态团簇中的每一个钠原子, 坐标空间的位置和其具有最低能量的基态位置相同. 初始时, 入射弹团簇和碰撞靶团簇相距大约  $40a_0$  ( $a_0 = 0.529\text{\AA}$  为 Bohr 半径), 两者之间无相互作用. 对动量空间, 初始时每一个团簇给一个热激发, 原子随时间演化满足哈密顿方程:

$$m_i \ddot{r}_i = -\nabla_{r_i} E_p, \quad (4)$$

其中  $E_p$  是 Born-Oppenheimer 势能面,  $m_i$  和  $r_i$  分别是第  $i$  个原子的质量和坐标. 能量方程由 Hellmann-Feynman 定理给出, 即

$$\nabla_{r_i} E_p = \sum \langle \phi_i | \nabla_{r_i} \hat{h} | \phi_i \rangle. \quad (5)$$

在碰撞过程中, 时间步长为  $1\text{fs}$  ( $1\text{fs} = 10^{-15}\text{s}$ ), 热化时间取为  $2000\text{fs}$ . 而体系的总能量  $E_t$ 、势能  $E_p$  和动能  $E_k$  有下列关系:

$$E_t = E_p + E_k, \quad E_k = \sum_{1 \leq i < j \leq n} \frac{p_i^2}{2m}, \quad (6)$$

动能  $E_k$  由相对动能  $E_{rel}$  和热能  $E_{th}$  组成:

$$E_k = E_{rel} + E_{th}, \quad E_{rel} = \frac{1}{4m} \left( \sum_{i \in \text{弹}} p_i - \sum_{j \in \text{靶}} p_j \right)^2 \quad (7)$$

定义团簇之间相对于无穷远分离的相互作用势能

$$E(D_{cm}) = E_p(D_{cm}) - E_p(\infty), \quad (8)$$

这里  $D_{cm}$  是弹、靶团簇质心的距离. 团簇之间相对转动能量为

$$E_{rot} = E_{rot\text{弹}} + E_{rot\text{靶}} = \frac{J_{\text{弹}}^2}{2I_{\text{弹}}} + \frac{J_{\text{靶}}^2}{2I_{\text{靶}}}. \quad (9)$$

这里  $J_{\text{弹}}$ ,  $J_{\text{靶}}$  和  $I_{\text{弹}}$ ,  $I_{\text{靶}}$  分别是弹、靶团簇的角动量和转动惯量, 它们分别定义为

$$J_{\text{弹}} = \sum_{i=1}^{N_{\text{弹}}} \mathbf{R}_i \times (\mathbf{p}_i - \mathbf{p}_{\text{弹}}), \quad (10)$$

$$J_{\text{靶}} = \sum_{i=1}^{N_{\text{靶}}} \mathbf{R}_i \times (\mathbf{p}_i - \mathbf{p}_{\text{靶}}),$$

$$I_{\text{弹}} = \sum_{i=1}^{N_{\text{弹}}} mR_i^2, \quad I_{\text{靶}} = \sum_{i=1}^{N_{\text{靶}}} mR_i^2, \quad (11)$$

式中  $\mathbf{R}_i$ ,  $\mathbf{p}_i$  分别是弹、靶中各原子到体系质心的距离, 以及各原子的动量,  $\mathbf{p}_{\text{弹}}$ ,  $\mathbf{p}_{\text{靶}}$  分别是弹、靶质心的动量, 减去  $\mathbf{p}_{\text{弹}}$ ,  $\mathbf{p}_{\text{靶}}$  是为了扣除弹、靶中各原子的平动部分.

### 3 结果与分析

首先讨论  $\text{Na}_{20} + \text{Na}_{20}$  系统在碰撞距离为  $15\text{Bohr}$  时的情况. 通过对不同时间碰撞的研究发现碰撞中伴随着较大的转动. 图 1 是碱金属团簇  $\text{Na}_{20}$  与  $\text{Na}_{20}$  在碰撞参数  $b$  为  $15\text{Bohr}$ 、碰撞能量  $E_{\text{proj}}/A$  分别为  $0.7\text{eV}$ ,  $1.0\text{eV}$  时, 空间结构随时间的演化. 对图 1(a) 中的体系, 相对转动弛豫时间很长, 在  $6000\text{fs}$  的时间内, 相对转动超过了  $90^\circ$ , 而在随后的  $3200-4000\text{fs}$  时间过程中, 相对转动减弱. 经过长时间的弛豫, 体系逐渐趋于平衡, 这时相对转动逐渐停止. 由于体系具有的激发能比团簇间的势能要大, 使得体系最后分开. 对图 1(b) 中的体系, 能量增大, 相对转动弛豫时间变短, 但与重离子碰撞相比, 转动弛豫过程仍比较

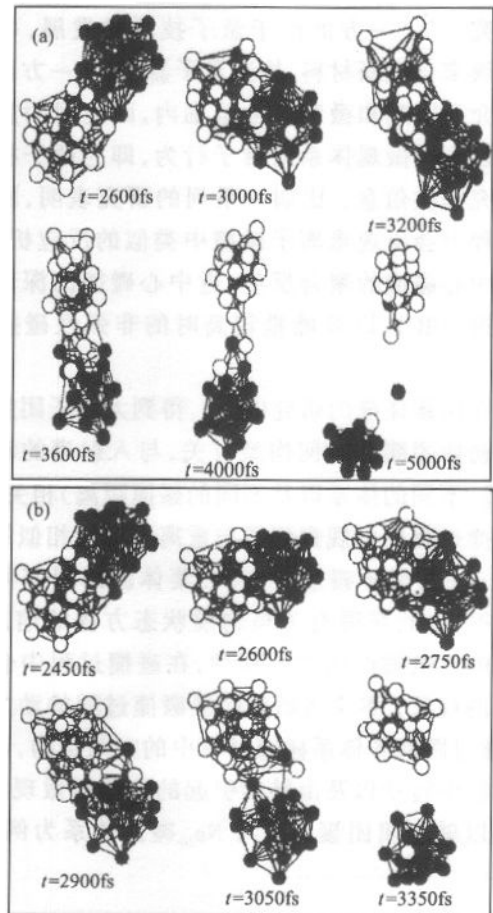


图 1  $\text{Na}_{20} + \text{Na}_{20}$  在  $b = 15a_0$ , (a)  $E_{\text{proj}}/A = 0.7\text{eV}$  时, (b)  $E_{\text{proj}}/A = 1.0\text{eV}$  时, 空间结构随时间的演化

长. 这里从几何图形可以发现相对转动的存在.

公式(9)给出了转动能量随时间的变化. 图2给出了  $\text{Na}_6(3D) + \text{Na}_6$  在入射能量为  $1.5\text{eV}/A$ ,  $b = 7\text{Bohr}$  和  $b = 13\text{Bohr}$  两种情况下体系所对应的转动能量  $E_{\text{rot}}$  随时间  $t$  的变化(见图2(a))和弹靶质心距离  $D_{\text{cm}}$  随时间  $t$  的变化(见图2(b)). 从图可以看出, 在  $2600\text{fs}$  时, 炮弹、靶子距离最近, 而转动能量最大. 对  $b = 7\text{Bohr}$ , 从前面讨论我们知道, 此时对应的是 DIC 过程, 炮弹、靶子作用比  $13\text{Bohr}$  时要强, 由集体运动产生的转动也更大, 因此转动能量要大, 这与最早提出的集体流与碰撞参数有关一致<sup>[8,9]</sup>. 随时间的演化, 体系温度降低, 而炮、靶复合体系的能量比它们的势垒要大, 导致体系各自独立的运动, 相对转动逐渐停止. 为讨论转动能量对碰撞参数的依赖, 图3给出了不同碰撞参数下转动能量最大时的结果. 中心碰撞时, 弹、靶体系的相互作用较强, 初

始运动的能量大部分转化为热能. 弹、靶距离的进一步增大, 参与直接相互作用的  $\text{Na}$  原子数减小, 靶团簇和炮弹团簇中原子所受力并不均匀, 参与作用的区域产生很大的集体流, 为保持体系的平衡, 出现较大的转动. 而随着碰撞参数  $b$  的增大, 两者之间的重叠部分逐渐变小, 参与作用的粒子数减少. 相互作用时间变短, 作用强度减弱, 集体流也减小, 弹和靶主要以各自的初始速度运动, 导致转动越弱. 从图也可以看出碰撞参数  $b$  越大, 转动持续时间反而越短. 由此得到, 中心碰撞时相对转动能量并不是最大; 存在一个极值碰撞参数( $7\text{Bohr}$ ), 小于极值碰撞参数时, 随着碰撞距离增加, 相对转动变强, 转动能量也增大; 大于极值碰撞参数时, 转动能量随  $b$  的增加迅速地减小, 到最后几乎没有相对转动.

### 4 碰撞能量对转动的影响

在重离子碰撞中相对转动对应的是 DIC 过程, 即中等能量(几十  $\text{MeV}/u$ ) 半中心碰撞. 对团簇的碰撞已经知道  $b$  对转动的依赖关系. 图4给出了体系  $\text{Na}_{20} + \text{Na}_{20}$  在碰撞参数  $b = 7\text{Bohr}$ , 碰撞能量  $E_{\text{proj}}/A$  分别为  $0.7, 1.1, 1.5\text{eV}$  时转动能量随时间的变化. 从图可以看出碰撞能量越大转动发生得越早, 这是由于碰撞能量  $E_{\text{proj}}/A$  越大, 相对运动速度越快, 开始时弹、靶团簇相互靠近的越快, 势场作用的越早, 同时相对运动速度越快, 弹、靶团簇靠近过后背离得也越快, 所以持续的时间短. 至于碰撞能量越大相对转动却越小, 这可以解释为, 碰撞能量越大, 越过势垒的能力越强, 势场的相对影响就越小, 势场引起的相对转动也就越小.

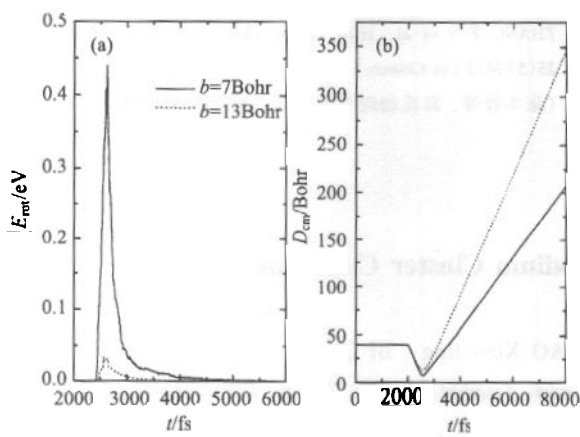


图2  $\text{Na}_6(3D) + \text{Na}_6$  在  $E_{\text{proj}} = 1.5\text{eV}/\text{atom}$ ,  $b = 7\text{Bohr}$ ,  $b = 13\text{Bohr}$  时, (a) 转动能量  $E_{\text{rot}}$  和 (b)  $D_{\text{cm}}$  随时间  $t$  的变化

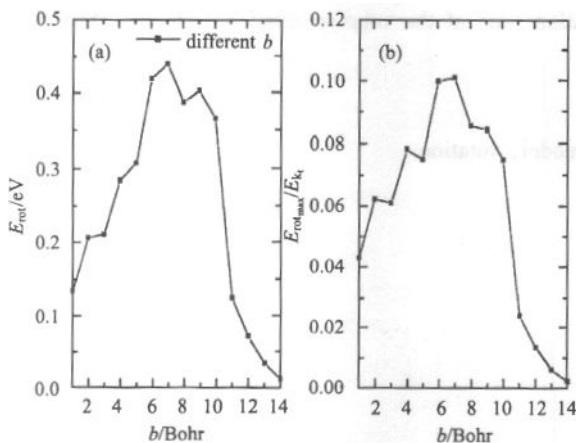


图3  $E_{\text{proj}} = 1.5\text{eV}/A$  最大转动能量以及最大转动能量与对应时刻总动能的比值随碰撞参数  $b$  的变化

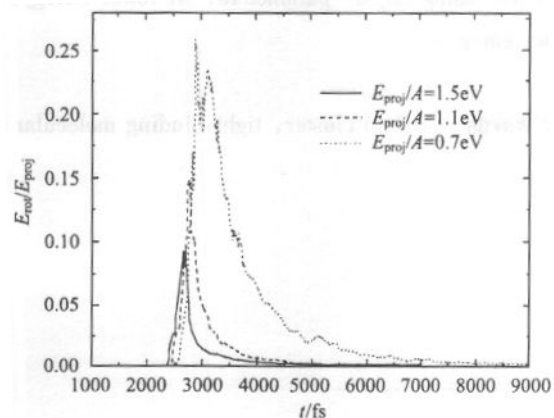


图4  $\text{Na}_{20} + \text{Na}_{20}$  体系在  $b = 15\text{Bohr}$  时, 不同碰撞能量下的转动能量与入射能量的比值随时间的变化

## 5 结论

根据对碱金属团簇的碰撞动力学我们得到,团簇碰撞过程中存在较强的转动,对于确定的人射能量,存在一个极值碰撞参数(7Bohr),小于极值碰撞参数时,随着碰撞距离增加,相对转动变强,转动能量也增大;大于极值碰撞参数时,转动能量随  $b$  的

增加迅速地减小,到最后几乎没有相对转动.碰撞能量越大转动发生得越早,相对运动速度也越快,开始时弹、靶团簇相互靠近得越快,势场作用得越早,同时相对运动速度越快,弹、靶团簇靠近过后背离得也越快,所以持续的时间短.碰撞能量越大,越过势垒的能力越强,势场的相对影响就越小,由此引起的相对转动也就越小.反之能量越低,相对转动弛豫时间更长,转动能量也更大.

## 参考文献 (References)

- 1 ZHANG F S, Suraud E, Spiegelmann F et al. *Z. Phys.*, 1995, **D35**: 131
- 2 ZHANG F S, Spiegelmann F, Suraud E et al. *Phys. Lett.*, 1994, **A193**:75
- 3 ZHANG F S, Suraud E, Calvo F et al. *Chem. Phys. Lett.*, 1999, **300**: 595
- 4 XU X L, ZENG X H, WANG F et al. *Acta Physica Sinica*, 2002, **51**: 31(in Chinese)  
(徐秀莲,曾祥华,王锋等.物理学报,2002,51:31)
- 5 ZENG X H, XU X L, WANG F et al. *ACTA Phys. Chim. Sinica*, 2002, **18**:26—29(in Chinese)  
(曾祥华,徐秀莲,王锋等.物理化学学报,2002,18:26—29)
- 6 ZHAO Y J, JIANG M, CAO P L. *Physics Progress*, 1998, **18**:47 (in Chinese)  
(赵宇军,姜明,曹培林.物理学进展,1998,18:47)
- 7 Goringe C M, Bowlert D R, Hernandez E., *Prog. Phys.*, 1997, **60**: 1447—1512
- 8 ZENG X H, GE L X, *Z. Phys.*, 1996, **A354**:317
- 9 ZHANG F S et al. *High Energy Phys. and Nucl. Phys.*, 2001, **25**(5):412 (in Chinese)  
(张丰收等.高能物理与核物理,2001,25(5):412)

## Studies of Relative Rotations for Sodium Cluster Collisions

ZENG Xiang-Hua XU Xiu-Lian YAO Xiao-Jing BI Qiao

(College of Physics Science and Technology and Complexity Science Center, Yangzhou University, Yangzhou 225002, China)

**Abstract** Using distance dependent tight-binding molecular dynamics model (DDTB-MD), the relative rotation processes in the sodium cluster collisions have been studied at the different incident energies and different impact parameters. It shows that for a given energy, there is a critical impact parameter. Under this impact parameter, the rotational energy increases rapidly with the increasing of the impact parameter, while above this parameter, the rotational energy decreases when increasing impact parameters. At lower energy, the relaxation time of the relative rotation is longer than that at higher energies.

**Key words** sodium cluster, tight-binding molecular dynamics model, rotation

Received 10 April 2002

\* Supported by the National Natural Science Foundation of China (60072032, 79970121), NFS of the Education Commission of Jiangsu Province of China (00KJB140010)