

РАССЕЯНИЕ И ДЕЗАКТИВАЦИЯ МЕТАСТАБИЛЬНЫХ МОЛЕКУЛ $N_2(A^3\Sigma_u^+)$

А. П. Калинин, В. Б. Леонас

В настоящей работе на основе измерений дифференциальных сечений рассеяния исследованы особенности взаимодействия в области малых расстояний сближения метастабильных молекул $N_2(A^3\Sigma_u^+)$ с $N_2(X^1\Sigma_g^+)$ и Ar.

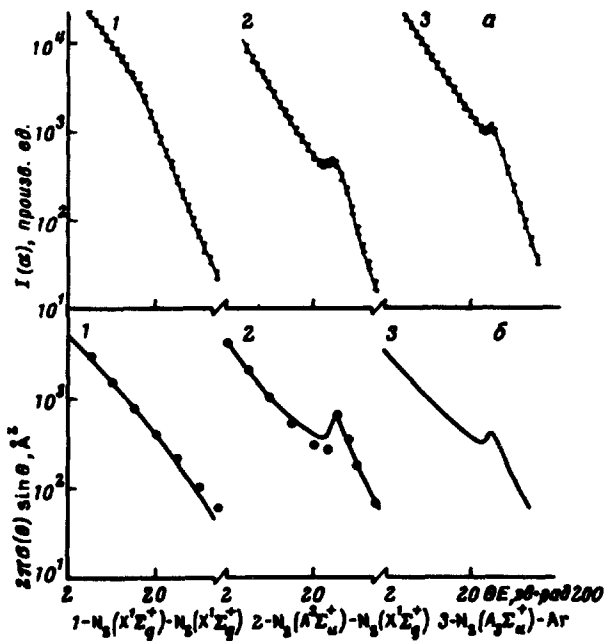
Измерения сечений проводились с помощью быстрых пучков ($E = 2000$ эв) в диапазоне приведенных углов $\theta E \sim 1 + 10^2$ рад·эв на модифицированной установке, описанной в [1]. Этот диапазон приведенных углов в силу $\theta E \sim V$ дает информацию о потенциале взаимодействия в области 1 – 100 эв.

Использование в качестве детектора вторично-электронного умножителя канального типа позволило резко повысить чувствительность и существенно улучшить разрешение детектора. Количественной характеристикой разрешения является аппаратная функция f_a , расчет которой описан в [2].

Пучок быстрых молекул $N_2(A^3\Sigma_u^+)$ получался путем перезарядки ионов N_2^+ в парах Cs. Случайный резонанс обеспечивает большие сечения перезарядки в триплетные состояния, спонтанно переходящие затем в метастабильное состояние $A^3\Sigma_u^+$ (см., например, [3]). В этих измерениях исследовались также сечения рассеяния для системы $N_2(X^1\Sigma_g^+) - N_2(X^1\Sigma_g^+)$.

Угловое распределение рассеянных частиц $I(\alpha)$ (α – угол отклонения детектора от оси пучка) связано с дифференциальным сечением рассеяния $\sigma(\theta)$ соотношением [2], позволяющим обратить при известной f_a измеренные и показанные на рис. а распределения $I(\alpha)$. Полученные путем обращения зависимости $\sigma(\theta)$ для исследованных систем показаны на рис. б (сплошная линия). Из рисунка видно, что рассеяние метастабильных молекул характеризуется резко выраженной особенностью.

Из относительного расположения $\sigma(\theta)$ для молекул в основном и метастабильном состояниях ясно, что обнаруженная особенность не связана с наличием в пучке $N_2(A^3\Sigma_u^+)$ примеси молекул основного состояния. Примесь может лишь ослаблять обнаруженный эффект, и есть основание считать ее влияние пренебрежимым.



Амплитуда, положение ($\theta E \sim V$, где V – потенциальная энергия взаимодействия в точке наибольшего сближения r_0 , равного прицельному параметру b) обнаруженного пика и наличие его в случае системы $N_2^* - Ar$ исключают возможность радужного рассеяния.

Достаточно очевидной причиной появления особенности следует считать наличие параллельного упругому каналу канала ударной дезактивации возбужденного состояния. В этом случае Δg_∞ энергия возбуждения (электронного и колебательного) переходит в энергию отдачи и при одинаковом прицельном расстоянии дезактивировавшие молекулы будут отклонены на больший угол по сравнению с упруго рассеянными молекулами. Измеряемое сечение будет являться суммой двух – упругого σ_y и неупругого σ_H сечений $\sigma(\theta) = (1 - p)\sigma_y(\theta) + p\sigma_H(\theta)$, где p – вероятность перехода (считаемая в дальнейшем независимой от ориентации).

Локализация обнаруженного пика позволяет заключить о достаточно резком "включении" вероятности неупругого канала, что вполне объяснимо в рамках представления о квазипересечении поверхностей потенциальной энергии взаимодействия молекул основного $V^0(N_2 - N_2)$ и возбужденного состояния $V^*(N_2^* - N_2)$. С целью количественной интерпретации наблюдавшихся зависимостей $\sigma(\theta)$ мы провели на ЭВМ БЭСМ-4 расчет дифференциальных сечений рассеяния для одноканального (чисто упругого) и двухканального рассеяния; совмещение расчет-

ных и измеренных зависимостей позволяет решить обратную задачу — определить поверхность потенциальной энергии и вероятность неупругого канала. При этом в целях упрощения расчетов угол рассеяния с дезактивацией считался равным сумме угла при упругом рассеянии θ и добавки θ^* [$\theta^* \sim (\Delta q_\infty / E)$], определяемой величиной энергии отдачи Δq_∞ (практически принималось $\Delta q_\infty = 7,4 \text{ эв}$, $\theta^* = 1,35 \cdot 10^{-2}$).

Дифференциальные сечения рассеяния $\sigma(\theta)$ в классическом приближении находились путем использования выражения для функции отклонения $\theta(b)$ [4, 5] по очевидному для малых углов рассеяния выражению

$$\sigma(\theta) = \frac{b}{\sin \theta} \left| \frac{db}{d\theta} \right|.$$

Практически вычисление усредненной по ориентациям величины $\sigma(\theta)$

сводилось к расчету интеграла $\sigma(\theta) = \frac{1}{16\pi^2} \iint_{(\phi)} d^2 \phi_i \iint_{(\chi)} \left| \frac{\Delta b}{\theta \Delta \theta} \right|^2 d^2 \cos \chi_i$

при фиксированном $\Delta\theta$. Углы ϕ_i и χ_i описывают относительную ориентацию сближающихся молекул, силовое поле которых описывалось

потенциалом аддитивного типа $V(N_2 - N_2) = \sum_{i=1}^4 V_i(N - N)$ с взаимо-

действием атомов по экспоненциальному закону $V(N - N) = A \exp(-\gamma r)$. Упомянутое усреднение проводилось с использованием процедуры Монте-Карло и типичное число вычисленных траекторий для приводимых далее зависимостей $\sigma(\theta)$ достигало 10^4 .

Вычисленное по уточненным значениям параметров ($A^0 = 367 \text{ эв}$, $\gamma^0 = 3,27 \text{ \AA}^{-1}$) работы [5] сечение $\sigma(\theta)$ для системы $N_2(X^1\Sigma_g^+) - N_2(X^1\Sigma_g^+)$ показано на рис. 6 точками — согласие с измеренными значениями (сплошная линия) вполне удовлетворительное. Для системы $N_2(A^3\Sigma_u^+) - N_2(X^1\Sigma_g^+)$ при расчетах случайных траекторий "включение" неупругого канала осуществлялось для расстояний наибольшего сближения $r_0 = b$, обеспечивавших действительное пересечение по условию $V^0(b) \geq V^*(b) + \Delta q_\infty$, при этом принимается, что колебательное возбуждение молекулы $N_2(X^1\Sigma_g^+)$ не меняет параметров A^0 и γ^0 . Сравнение измеренных (сплошная линия) и вычисленных (темные точки) зависимостей для двухканального рассеяния (рис. 6) обнаруживает достаточно хорошее согласие, позволяющее считать значения параметров поверхности потенциальной энергии ($A^* = 230 \text{ эв}$, $\gamma^* = 3,8 \text{ \AA}^{-1}$ и вероятности $p = 0,4$) надежными. Некоторое расхождение в области пика, по-видимому, обусловлено грубостью расчета и, в частности, пренебрежением существования распределений величин Δq_∞ и θ^* , обусловленных реальной заселенностью колебательных уровней возбужденной и дезактивировавшейся молекулы.

В заключение резюмируем основные результаты.

1. Измерены дифференциальные сечения рассеяния молекул N_2 в основном и метастабильном состоянии. Впервые непосредственно наблюдались эффекты, связанные с ударной дезактивацией $N_2(A^3\Sigma_u^+)$.

2. Восстановлена поверхность потенциальной энергии взаимодействия $N_2(X^1\Sigma_g^+)$ с $N_2(A^3\Sigma_u^+)$ и найдено пересечение ее с поверхностью для молекул основного состояния.

3. Полученные данные позволяют оценить величину полного сечения ударной дезактивации $A^3\Sigma_u^+$ состояния $N_2 Q \approx 3,3 \text{ \AA}^2$; эта величина расходится с $Q \approx 1 \text{ \AA}^2$, полученной в [6].

Институт космических исследований
Академии наук СССР

Поступила в редакцию
30 августа 1971 г.

Литература

- [1] Ю.Н.Беляев, В.Б.Леонас, А.В.Сермягин. Сб. тезисов V I.С.Р.Е. А. С., Ленинград, Изд. Наука, 1967, стр. 643.
 - [2] А.П.Калинин, В.Б.Леонас, А.В.Сермягин. Вестник МГУ, сер. физ. №3, 245, 1971.
 - [3] A.Salop, D.C.Lorents, I.R.Peterson, J. Chem. Phys., 54, 1187, 1971.
 - [4] А.П.Калинин, В.Б.Леонас. ДАН СССР, 197, 393, 1971.
 - [5] V.V.Leonas, A.V.Sermyagin, N.V.Kamyshov. Chem. Phys. Lett., 8, 282, 1971.
 - [6] I.R.Sheridan, I.R.Peterson. J. Chem. Phys., 51, 3574, 1969.
-