

РАСПРЕДЕЛЕНИЕ МОЛЕКУЛ H_2 ($X^1\Sigma$) ПО ВРАЩАТЕЛЬНЫМ СОСТОЯНИЯМ В ГАЗОРАЗРЯДНОЙ ПЛАЗМЕ

Б.У. Асанов, В.Н. Очкин, С.Ю. Савинов, Н.Н. Соболев, С.Н. Цхай

Методом КАРС измерены населенности вращательных уровней основного состояния молекулы H_2 ($X^1\Sigma$, $v=0$) в газоразрядной плазме. Проведено сопоставление распределений населенностей в состояниях $X^1\Sigma$ ($v=0$) и $d^3\Pi$ ($v=0$), обнаружено их сильное отличие.

Один из широко распространенных методов диагностики газоразрядной плазмы основан на изучении интенсивностей электронно-колебательно-вращательных эмиссионных спектров молекул. Корректное применение этого метода, в частности, для определения температуры нейтрального газа, связано с необходимостью изучения механизмов формирования распределения молекул по вращательным уровням в излучающем возбужденном электронном состоянии /1/. В условиях плазмы пониженной плотности, когда время жизни возбужденного электронного состояния меньше времени между газокинетическими столкновениями, формирование электронно-вращательных распределений определяется двумя факторами — распределением частиц в основном электронном состоянии, из которого происходит возбуждение, и изменением характера распределения в процессе возбуждения.

Среди элементарных процессов возбуждения молекул в газоразрядной плазме часто доминирует прямой электронный удар. В /2/ на примере H_2 в разряде, охлаждаемом жидким азотом, была показана возможность значительного изменения момента импульса ($\Delta K \sim 5 \div 6\hbar$) в таком процессе, что приводит к небульмановскому распределению электронно-возбужденных молекул по вращательным уровням. В условиях эксперимента /2/ величина вращательного кванта молекулы сопоставима со средней кинетической энергией. В силу этого в /3/ было предложено альтернативное объяснение вращательной неравновесности H_2 ($d^3\Pi$) за счет неравновесного распределения по вращательным уровням основного электронного состояния H_2 ($X^1\Sigma$). В подтверждение этой точки зрения в /4,5/ приведены расчеты, показывающие при некоторых предположениях о параметрах плазмы сильное отклонение от равновесия в H_2 ($X^1\Sigma$). Вместе с тем, оценки /6/ показали, что такое отклонение, напротив, невелико и не может влиять на интерпретацию результатов /2/.

Для разрешения возникшего противоречия были проведены прямые измерения распределений H_2 ($X^1\Sigma$) по вращательным уровням методом КАРС.

Условия проведения эксперимента аналогичны /2/. Исследовался разряд в кварцевой трубке длиной 30 см с внутренним диаметром 1,9 см, давление H_2 варьировалось в диапазоне 0,5—4 торр, ток разряда 40 мА, трубка охлаждалась жидким азотом. Для получения спектров КАРС использовалось излучение второй гармоники Nd:Yag лазера (~ 40 мДж) и лазера на красителе "Пиридин-1" (~ 3 мДж). Длительность импульсов — 10 нс, частота повторения — 20 Гц. Применялась коллинеарная схема сведения лазерных пучков с помощью линзы с фокусным расстоянием 15 см. Регистрация осуществлялась в режиме накопления импульсов с помощью ФЭУ и стробоскопического интегратора. Выделение сигнала из фонового излучения лазеров накачки осуществлялось при помощи 4-призмного монохроматора, описанного в /7/.

Распределение молекул H_2 ($X^1\Sigma$) по вращательным уровням исследовалось по Q-ветви ($\Delta K = 0$) комбинационно-активного колебательного перехода $v'' = 0$, $v' = 1$ в области спектра $\lambda = 435 \div 438$ нм. Заселенность K-го вращательного уровня $N_K \propto \sqrt{I}$, где I — интенсивность вращательной линии КАРС-спектра /8/. Искажения, вносимые нерезонансной составляющей восприимчивости χ_{nr} , не учитывались, т.к. ее вклад по сравнению с резонансной составляющей восприимчивости χ_r для молекул H_2 незначителен: $\chi_{nr}/\chi_r \sim 10^{-4}$ /9/.

На рис. 1 представлены зависимости $\ln(N_K/g_K)$ от $K(K+1)$ (g_K — статистический вес K-го вращательного уровня) при давлениях 0,5 и 4 торр для молекулы H_2 ($X^1\Sigma$). Здесь также представлена аналогичная зависимость для ортоводорода H_2 ($d^3\Pi$) при давлении 0,5 торр (пунктир). Вращательная температура

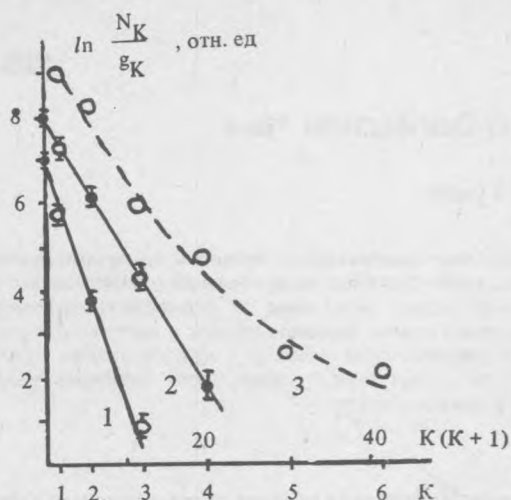


Рис. 1. Зависимость $\ln(N_K/g_K)$ от $K(K+1)$ для параводорода (●) и ортоводорода (○) при $i = 40$ мА: 1 – $H_2(X^1\Sigma)$, $p = 0,5$ торр; 2 – $H_2(X^1\Sigma)$, $p = 4$ торр; 3 – $H_2(d^3\Pi)$, $p = 0,5$ торр.

при $p = 0,5$ торр для парамодификации $H_2(X^1\Sigma)$ составляет $(155 \pm 10)K$, для ортомодификации – $(170 \pm 10)K$. Средняя вращательная температура по орто- и пара- $H_2(X^1\Sigma)$ составляет $(165 \pm 10)K$. Отношение плотностей орто- и пара- $H_2(X^1\Sigma)$ дает значение $2,3 \pm 0,03$, что соответствует температуре газа ~ 140 К. Температура, соответствующая относительному заселению уровней $K = 0$ и $K = 1$, составляет $(140 \pm 10)K$. Заметим, что измерения температуры, выполненные в аналогичных условиях [6], по распределению интенсивностей в полосах азота (малая добавка), с помощью термопары и по доплеровскому уширению линий водорода и гелия давали температуру $(145 \pm 20)K$.

Таким образом, при низких давлениях и температурах наблюдается слабая тенденция к нарушению бальмовского вращательного равновесия $H_2(X^1\Sigma)$ в пределах одной спиновой модификации. Отклонение отношения плотностей орто- и пара- $H_2(X^1\Sigma)$ от равновесного не наблюдается и в этих условиях.

Небольшое превышение вращательной температуры над газовой не может объяснить неравновесный характер распределения по вращательным уровням в возбужденном электронном состоянии. Если не учитывать передачу момента импульса в процессе возбуждения электронным ударом, то для объяснения распределения ортоводорода $H_2(d^3\Pi)$ по вращательным уровням с позиций работ [3–5] необходимо, чтобы интенсивность линии Q(3) КАРС-спектра в наших экспериментах была в 270 раз выше измеренной.

С повышением давления при неизменном токе разряда температура газа растет и исчезают указанные неравновесности вращательного распределения. Так при $p = 4$ торр обе модификации дают значение температуры $(290 \pm 10)K$. Этой же температуре соответствует и равновесное значение отношения плотностей орто- и пара- $H_2(X^1\Sigma)$, равное по измерениям 3.

ЛИТЕРАТУРА

1. Очкин В. Н., Савинов С. Ю., Соболев Н. Н. Труды ФИАН, 157, 6 (1985).
2. Оторбаев Д. К. и др. Письма в ЖЭТФ, 28, 424 (1978).
3. Лавров Б. П., Островский В. Н., Устимов В. И. Оптика и спектроскопия, 47, 55 (1979).
4. Лавров Б. П., Островский В. Н., Устимов В. И. ЖТФ, 50, 2072 (1980).
5. Лавров Б. П. В кн. Химия плазмы, вып. 11, под ред. Смирнова Б. М., Энергоатомиздат, 1984.
6. Брюховецкий А. П. и др. ЖЭТФ, 79, 1687 (1980).
7. Karlov N. V. et al. Opt. Comm. 21, 225 (1977).
8. Ниблер Дж., Найтен Г. В кн. Спектроскопия комбинационного рассеяния света в газах и жидкостях. Под ред. А. Вебера, М., Мир, 1982.
9. Lundeen T., Hou S.-Y., Nibler J. W. J. Chem. Phys. 79, 6301 (1983).

Поступила в редакцию 21 мая 1986 г.