

*О.В. ЕГОРОВ^{1,2}, А.К. ТРЕТЬЯКОВ¹***ВОЗБУЖДЕНИЕ ВРАЩАТЕЛЬНЫХ УРОВНЕЙ ЭНЕРГИИ МОЛЕКУЛЫ ОЗОНА O₃ ПРИ СТОЛКНОВЕНИЯХ С АТОМАМИ БЛАГОРОДНЫХ ГАЗОВ (Ar И He) ***

Проведены расчёты сечений рассеяния на вращательных уровнях энергии молекулы озона O₃ при столкновениях с атомами благородных газов (Ar и He) в рамках двухчастичной схемы с использованием программного пакета MOLSCAT2020. В рассмотрение включены все уровни O₃ до $J_{\max} = K_{\max} = 5$ и $J_{\max} = K_{\max} = 7$ включительно, что соответствует 18 и 32 уравнениям связанных каналов. Проанализированы зависимости сечений рассеяния от энергии налёта и определены наиболее вероятные возбуждённые вращательные состояния O₃. Вычислены скоростные коэффициенты при температурах из интервала 5–300 К. Обсуждается построение радиальной зависимости угловых коэффициентов потенциала взаимодействия.

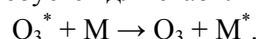
Ключевые слова: озон, аргон, гелий, сечения рассеяния, скоростные коэффициенты, вращательные уровни энергии, поверхность потенциальной энергии, столкновительная динамика, *ab initio*.

Введение

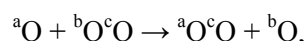
Изучение столкновительной динамики с участием молекулы озона (O₃) направлено, с одной стороны, на понимание процесса её образования и разрушения, а с другой, для получения заселённости уровней энергии в условиях нарушенного локального термодинамического равновесия (Non-LTE conditions). Считается, что формирование O₃ в верхних слоях атмосферы происходит по механизму Чепмена:



где M – третье тело, которое также требуется для стабилизации метастабильного O₃^{*}:



Теоретическое описание механизма Чепмена неоднократно проводилось на основе статистических моделей [1, 2], классических траекторий [3–7] и квантово-механическими методами [8–13]. Однако полученные значения констант скоростей реакций всё ещё не дают точного объяснения наблюдаемых зависимостей [14, 15]. Формирование O₃ сопровождается аномалией, при которой концентрация более тяжёлого изотопа ¹⁸O оказывается больше, чем ¹⁷O. Данное отклонение известно в литературе как MIF-эффект, который подтверждён измерениями концентрации изотопов озона как в атмосфере, так и в лабораторных условиях [16, 17]. Стабилизация O₃ сопряжена с процессом изотопического обмена:



скорость которого, как оказалось, существенным образом зависит от характера поверхности потенциальной энергии O₃ в направлении диссоциации. При использовании «без барьерных» вариантов поверхностей O₃ [18, 19] скорость обмена имеет отрицательную зависимость от температуры, что согласуется с экспериментальными данными [20–23].

Долгоживущие метастабильные состояния играют важную роль в реакции формирования, так как время жизни изотопомеров O₃^{*} напрямую влияет на итоговые концентрации озона в атмосфере. Заселение метастабильных состояний растёт и убывает по трём каналам диссоциации O₂+O. При этом скорость формирования во многом определяется различиями в энергиях нулевых колебаний (ZPE) ^bO^cO, а не в массах его изотопов [24, 25]. Высоковозбуждённые состояния O₃ характеризуются сильными резонансными связями, при которых велика вероятность обменного взаимодействия между тремя потенциальными ямами [26–30]. Точность предсказательных расчётов энергий O₃ во многом зависит от качества применяемой поверхности потенциальной энергии, которая должна корректно описывать спектры высокого разрешения в широкой области волновых чисел от положения равновесия до порога диссоциации [31–34].

Данная работа направлена на сравнительный анализ возбуждения вращательных уровней энергии основного изотопа озона O₃ (¹⁶O¹⁶O¹⁶O) при столкновениях с атомами благородных газов (Ar и He). Передача энергии в результате неупругих столкновений играет важную роль в форми-

* Данное научное исследование выполнено при поддержке гранта РФФИ № 19-12-00171.

Уважаемые читатели!

Доступ к полнотекстовой версии журнала
«Известия высших учебных заведений. Физика»
осуществляется на платформе
Научной электронной библиотеки eLIBRARY.RU
на платной основе:

<https://elibrary.ru/contents.asp?titleid=7725>