

ИНФРАКРАСНОЕ ПОГЛОЩЕНИЕ В ПЛОТНЫХ ПАРАХ НАТРИЯ

А. Г. Леонов^{a*}, А. А. Руденко^a, А. Н. Старостин^b,
М. Д. Таран^b, Д. И. Чехов^a, И. И. Якунин^b

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

^b Государственный научный центр РФ «Троицкий институт инновационных и термоядерных исследований»
142190, Троицк, Московская обл., Россия

Поступила в редакцию 27 февраля 2002 г.

Экспериментально исследованы спектры поглощения плотной резонансной среды на примере термически нагретых плотных паров натрия и рассмотрен ряд механизмов, которые могут приводить к значительному поглощению и повышенной интенсивности излучения в ИК-области спектра, $\lambda > 0.9$ мкм. Впервые проведено детальное исследование зависимости структуры спектров поглощения паров натрия в указанном диапазоне длин волн от сорта и давления буферного газа, характеристики которого, как было обнаружено, существенно влияют на величину коэффициента поглощения паров. Показано, что присутствие молекулярной компоненты паров натрия (димеров и тримеров) не может объяснить зарегистрированные в эксперименте зависимости поглощения в инфракрасной области спектра. Рассмотрено возможное влияние на оптические свойства паров микрочастиц, которые образуются в результате конденсации конвективных потоков паров натрия в нагреваемых кюветках и могут вносить некоторый вклад в наблюдаемое поглощение, хотя и не в состоянии объяснить зарегистрированную ранее значительную интенсивность свечения паров. Обсуждается возможное влияние многочастичных эффектов на поглощение на далеком крыле спектральной линии. На примере функции распределения ионных микрополей в плотной плазме методами молекулярной динамики впервые показано, что такие эффекты в принципе могут существенно поднять контур линии и увеличить поглощение в области больших отстроек от резонанса по сравнению с простой квазистатической моделью в рамках приближения ближайшего соседа.

PACS: 36.40.Vz, 36.40.Mr, 51.70.+f

1. ВВЕДЕНИЕ

Актуальность исследования механизмов формирования спектральных линий атомов и ионов и проблемы переноса резонансного излучения в плотных газах и плазме связана, в первую очередь, с необходимостью корректной интерпретации спектров излучения и поглощения плотных плазменных и газовых объектов, в том числе лазерной плазмы, плазмы Z- и X-пинчей и др., плазмы газоразрядных ламп высокого давления и т. д. В случае плотной среды, как было показано ранее [1–4], полная интенсивность ее излучения в значительной мере будет определяться формой контуров далеких крыльев спектральных линий при больших отстройках от резонанса

$\Delta\omega \sim \omega_0$ ($\Delta\omega = \omega - \omega_0$, где ω — текущая частота, а ω_0 — частота резонансного перехода). Одной из проблем, возникающих при исследовании далеких крыльев линий, является активно обсуждающийся в настоящее время вопрос о происхождении интенсивного свечения и значительного поглощения в ближней инфракрасной области спектра, неоднократно наблюдавшихся в смесях плотных паров щелочных металлов с буферными газами атмосферного и более высокого давления (за пределами полос поглощения димеров Na_2 , K_2 и др., на длинах волн $\lambda > 0.9$ мкм), в том числе и авторами данной работы [3–12]. Развитая ранее теоретическая модель формирования профиля далекого крыла спектральных линий [1–4], основанная на больцмановском спектральном распределении населенности резонансного уровня, с точностью до порядка величины описыва-

*E-mail: leonov@ape.relam.ru

ла результаты экспериментов в парах натрия [3, 4] в отличие от стандартной теории переноса излучения [13, 14], расхождение которой с опытными данными при больших отстройках превышало 4-5 порядков.

Как было строго показано в [1, 2, 4], спектральная интенсивность спонтанного излучения ε_ω в двухуровневом приближении может быть описана следующим выражением:

$$\varepsilon_\omega = \frac{1}{4\pi} \hbar \omega A_0 \left(\frac{\omega}{\omega_0} \right)^3 \tilde{N}_2(\omega), \quad (1)$$

где A_0 — вероятность спонтанного излучения, $\tilde{N}_2(\omega)$ — эффективная спектральная населенность верхнего уровня (подробнее см. [1, 2, 4]):

$$\tilde{N}_2(\omega) = \tilde{N}_2 a(\omega) \exp[-\hbar(\omega - \omega_0)/kT]. \quad (2)$$

В выражении (2) T — температура, k — постоянная Больцмана, $a(\omega)$ — формфактор контура линии ($\int a(\omega) d\omega = 1$), а \tilde{N}_2 — эффективная населенность верхнего уровня. В состоянии равновесия будем иметь спектральное больцмановское распределение (g_1, g_2 — статистические веса уровней, N_1 — полная населенность нижнего уровня):

$$\tilde{N}_2(\omega) = \frac{g_2}{g_1} N_1 a(\omega) \exp\left(-\frac{\hbar\omega}{kT}\right) \quad (3)$$

(в отсутствие равновесия эффективная населенность \tilde{N}_2 может быть найдена из уравнений кинетики, приведенных в [1, 2]). Из (3) следует, что, строго говоря, даже в состоянии равновесия полная населенность, равная интегралу по частоте от $\tilde{N}_2(\omega)$, не будет удовлетворять соотношению Больцмана и будет совпадать с истинной только в случае узкой линии $\hbar\Gamma \ll kT$ (где Γ — ширина линии), тогда как эффективная населенность \tilde{N}_2 соотношению Больцмана удовлетворяет. Следует отметить, что ранее выражения, подобные (1), (2), но с некорректной нормировкой контура линии, были получены из простых физических соображений в работах [15, 16].

В случае же широкой линии (подробнее см. [2–4]) интенсивность ее далекого крыла из-за наличия экспоненциального множителя может значительно превышать интенсивность, рассчитанную по стандартной теории [13, 14], причем большая часть излучаемой в линии энергии может принадлежать именно ее нерезонансному «красному крылу», а не центральной околорезонансной части (при этом даже возможно возникновение дополнительного низкочастотного максимума в спектре

свечения [3, 4]), что качественно и объясняет полученные в [3, 4] результаты измерений интенсивного теплового излучения паров натрия в области длин волн 2–3 мкм.

Однако теоретическая модель [4], описывавшая свечение паров натрия при больших отстройках, создавалась в предположении, что контур линии формируется квазистатическим уширением буферным газом в приближении ближайшего соседа, а справедливость такого описания в области больших отстроек неочевидна. Более того, в ряде экспериментальных работ (см., например, [17–20]) было показано, что при длинах волн λ больших 0.64–0.70 мкм (в зависимости от типа уширяющего газа) интенсивность D -линий натрия в области «красного» квазистатического крыла начинает экспоненциально уменьшаться, что вполне удовлетворительно согласуется с результатами расчетов потенциалов взаимодействия атомов натрия с атомами различных буферных газов — аргона, ксенона и других. Учет этого эффекта в значительной мере компенсирует влияние больцмановского экспоненциального множителя в (1)–(3) и приводит в рамках модели [4] к существенному отрыву расчетных данных от экспериментально измеренной интенсивности свечения паров натрия при $\lambda > 0.70$ мкм. Следует, однако, отметить, что теория формирования контура спектральной линии при больших отстройках $\Delta\omega \sim \omega_0$ в настоящее время практически не развита.

Таким образом, вопрос о природе интенсивного свечения и значительного поглощения в инфракрасном диапазоне спектра в плотных парах щелочных металлов остается открытым. Анализ имеющихся в литературе данных и совокупности полученных нами ранее экспериментальных результатов показал, что, помимо бинарного квазистатического уширения D -линий натрия буферным газом, наблюдаемые особенности в инфракрасных спектрах излучения и поглощения смесей плотных паров щелочных металлов с буферными газами могут быть вызваны поглощением и излучением кластерной компонентой паров, в том числе поглощением и излучением на инфракрасных переходах димеров, тримеров и более сложных полимеров натрия, а также поглощением и излучением на микроскопических каплях жидкого щелочного металла. Последние в виде тумана неоднократно наблюдались в экспериментах, в частности, при использовании для создания паров щелочного металла нагреваемых кювет типа «тепловой трубы» [7–10, 21, 22]. Однако влияние кластеров и микрокапель на оптические свойства паров в кюветах ранее не исследовалось, как не исследовались и

закономерности возникновения таких микрочастиц, хотя их присутствие априори и выдвигалось в виде причины наблюдавшихся особенностей в спектрах излучения и поглощения. Отметим, что этот вопрос интересен и сам по себе, поскольку кюветы такого типа широко используются в экспериментальной практике [23, 24].

Другой возможной причиной наблюдаемых эффектов может быть многочастичное уширение резонансного уровня в совокупности с бoльцмановским характером спектрального распределения населенностей (3) на резонансном уровне. В этом случае, возможно, с большой вероятностью реализуются такие конфигурации излучающего и нескольких (быть может, многих) возмущающих атомов, при которых каждый возмущающий атом создает лишь небольшой сдвиг уровней энергии излучающего, в то время как совокупность возмущающих атомов создает значительный сдвиг, приводящий к интенсивному излучению на больших отстройках от резонанса. Эта проблема также ранее практически не исследовалась (хотя ее отдельные аспекты и затрагивались в ряде работ — см., например, [25]), в то же время такой механизм вполне может быть существен при больших давлениях паров натрия и буферного газа. В этой связи следует заметить, что в работах [17–20], посвященных измерению далеких крыльев резонансных линий натрия, также использовались большие давления буферных газов, при которых эффекты многочастичности могли быть уже заметны. Однако в этих работах по единичным точкам было отмечено только самое начало экспоненциального спада. Поведение на более далеких отстройках не изучалось, причем на столь значительных отстройках от резонансной длины волны ($\lambda_0 \sim 0.59$ мкм) точность экспериментов была весьма невелика. Кроме того, остается неясной справедливость и неясного использования в абсорбционно-флуоресцентных методах измерения контуров линий (часто применявшихся во многих работах и, в частности, в [17–20]) приближения полного перераспределения поглощенных и испущенных фотонов по частотам, применимость которого при больших отстройках во всяком случае неочевидна.

Ранее нами уже кратко сообщалось о возможной роли многочастичных столкновений и присутствия в парах кластерной и микрокапельной компонент [5, 26]. В данной работе более подробно изложены результаты экспериментов по исследованию спектров поглощения в широком спектральном диапазоне 0.35–1.10 мкм и теоретического моделирования обоих рассмотренных эффектов с целью анали-

за их влияния на инфракрасные спектры излучения и поглощения смесей плотных паров щелочных металлов с буферными газами.

2. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ УСТАНОВКА

Для исследования спектров поглощения и теплового свечения плотных паров натрия использовалась установка, основными узлами которой являются специально разработанные нагреваемые цилиндрические кюветы типа «тепловой трубы» с комплексом вакуумной откачки и напуска буферного газа, а также комплекс спектральной диагностики, предназначенный для измерений спектральной интенсивности излучения паров и измерения спектральных коэффициентов поглощения в них.

В данной работе использовалась кювета, аналогичная описанной в [4]. Внутренний радиус кюветы составлял $R_p = 10$ мм, а расстояние между водоохлаждаемыми фланцами составляло $2L_1 = 150$ мм. К водоохлаждаемым фланцам были пристыкованы патрубки длиной $L_2 = 7.5$ см, на концах которых вакуумно плотно монтировались сапфировые окна толщиной 2 мм. Их прозрачность варьировалась от 0.3 мкм вплоть до длин волн порядка 5 мкм и контролировалась инфракрасным спектрофотометром. Вакуумная система состояла из форвакуумного и диффузионного насосов и позволяла откачивать кювету до давления не менее чем 10^{-5} мм рт. ст. Перед откачкой кювета наполнялась металлическим натрием марки «ВЧ». После откачки кювета наполнялась инертным газом (гелием или аргоном) до давления 0.1–1.0 атм и нагревалась до требуемой температуры. Нагреватель кюветы был выполнен из нихромовых спиралей, помещенных в трубки из плавленого кварца, теплоизолированных слоем асбеста и углеродной ткани. Температура внешних стенок кюветы измерялась рядом хромель-алюмелевых термопар с точностью до 1 градуса. Распределение температуры по длине кювет $T(z)$ в нагреваемой области примерно соответствовало параболе четвертой степени с максимумом в центре трубы ($T(z = 0) = T_c$) и температурой на водоохлаждаемых фланцах $T(z = L_1) = T_0$, равной температуре охлаждающей воды ($T_0 \approx 293$ К):

$$T(z) = \begin{cases} T_c - \frac{T_c - T_0}{L_1^4} z^4, & 0 \leq |z| \leq L_1, \\ T_0, & L_1 < |z| \leq L_2. \end{cases} \quad (4)$$

Плотность N паров натрия в кювете определялась по кривой давления насыщенных паров [27] при

температуре, соответствующей температуре стенок кюветы. В области температур до 800 К интегральная вдоль оси кюветы плотность паров измерялась также методом крюков Рождественского [28] с использованием интерферометра Майкельсона и широкополосного лазера на красителе, причем оба метода в указанной области температур дали совпадающие в пределах 20 % значения. Это свидетельствует о том, что по крайней мере в горячей зоне кюветы, где величина N максимальна, плотность паров действительно определяется давлением насыщенных паров при температуре стенки кюветы.

Для измерений коэффициента поглощения в плотных парах натрия в качестве источника освещения трубы использовалось коллимированное излучение вольфрамовой лампы СИ-8-200. Измерения интенсивности ее излучения, прошедшего через пары натрия в приосевой части трубы, осуществлялись следующим образом. Излучение на выходе кюветы модулировалось механическим прерывателем с частотой около 800 Гц. Модулированный световой поток направлялся на входную щель монохроматора (с дифракционной решеткой 600 штрихов/мм и дисперсией 16 Å/мм). Поворот дифракционной решетки монохроматора для перестройки по длинам волн осуществлялся с помощью механической системы на основе электрического шагового двигателя. Калибровка спектра по длинам волн проводилась по спектру неоновой лампы (значения длин волн линий спектра неона брались из [29]). Спектральное разрешение измерений определялось по наблюдаемой ширине спектральных линий неона и составило 15 см^{-1} . В фокальной плоскости спектрографа сразу за выходной щелью устанавливался приемник излучения — фотоэлектронный умножитель ФЭУ-84 (с мультищелочным катодом для измерений в области 0.30–0.76 мкм) или ФЭУ-83 (с кислородно-серебряно-цезиевым катодом для измерений в области 0.76–1.10 мкм). Чувствительность обоих фотоумножителей калибровалась по спектру с помощью эталонного источника излучения — аналогичной вольфрамовой лампы СИ-8-200.

Сигнал с приемников подавался на узкополосный усилитель (селективный микровольтметр В6-9) и с его выхода поступал на вход синхронного детектора. Постоянное напряжение с выхода синхронного детектора подавалось на аналого-цифровой преобразователь (АЦП), сигнал с которого обрабатывался компьютером.

Для определения величины поглощения в нагретых парах в каждом измерении регистрировались интенсивность излучения I_0 , прошедшего через кю-

вету при комнатной температуре, т. е. в отсутствие паров, и интенсивность излучения, прошедшего через кювету с парами натрия различной температуры, $I = I_r - I_v$, где I_r — регистрируемая интенсивность излучения, а I_v — интенсивность собственного излучения паров (отметим, что величина I_v во всех экспериментах была пренебрежимо мала по сравнению с I_r). По всем полученным данным затем строились зависимости относительной доли поглощенной и рассеянной интенсивностей излучения $K = (I_0 - I)/I_0$ от параметров среды.

3. ИССЛЕДОВАНИЕ СПЕКТРОВ ПОГЛОЩЕНИЯ ПЛОТНЫХ ПАРОВ НАТРИЯ

На рис. 1 представлены спектры поглощения плотных паров натрия при различных температурах в области 0.35–1.10 мкм, а на рис. 2 — зависимости поглощенной и рассеянной интенсивностей излучения от температуры T_c на длинах волн 0.4 и 1.0 мкм. Отметим, что величины K в области 0.4 и 1.0 мкм почти во всем диапазоне температур (кроме самых малых) близки друг к другу.

Как видно из графиков на рис. 1, в спектре паров наблюдаются три хорошо выраженных области поглощения. Одна из них, с центром на длине волны

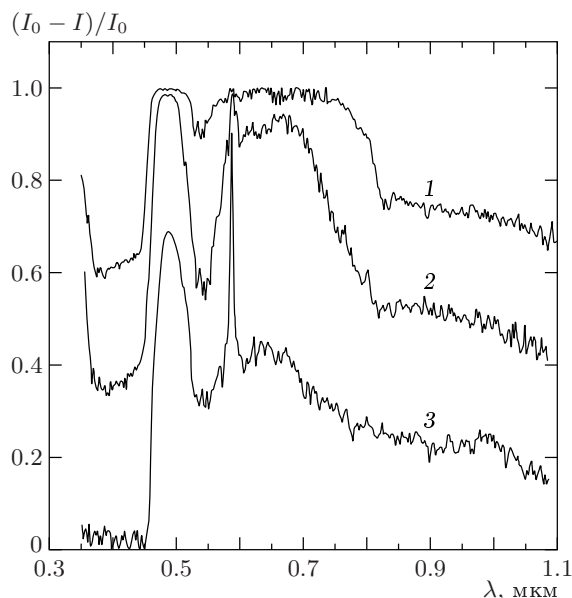


Рис. 1. Спектры поглощения паров натрия при различных температурах в центре кюветы. Буферный газ — аргон при давлении 1 атм; 1 — $T_c = 903$ (1), 806 (2), 709 К (3)

$\lambda = 0.59$ мкм, соответствует поглощению на атомарном резонансном переходе натрия $3S-3P$, другая — с центром на длине волны $\lambda = 0.49$ мкм — обусловлена, главным образом, поглощением на хорошо известном молекулярном переходе $X^1\Sigma_g^+-B^1\Pi_u$ димера натрия Na_2 [30], а также с сателлитами полос поглощения на переходах $X^1\Sigma_g^+-2^1\Sigma_u^+$ (0.452 мкм) и $a^3\Sigma_u^+-2^3\Pi_g$ (0.437 мкм) [21, 31]. Помимо них, в спектре проявляется широкая полоса поглощения в области 0.60–0.82 мкм, соответствующая переходу $A^1\Sigma_u^+-X^1\Sigma_g^+$ димера натрия [30] (длинноволновый край этой полосы особенно резко проявляется при $T > 800$ К, см. рис. 1). Кроме указанных полос на коротковолновом краю спектра при $\lambda < 0.38$ мкм наблюдается увеличение поглощения, связанное с сателлитами полос поглощения на переходах $X^1\Sigma_g^+-3^1\Sigma_u^+$ (0.38 мкм) и $X^1\Sigma_g^+-C^1\Pi_u$ (0.367 мкм) [21, 31], а также с близостью атомарного перехода $3S-4P$ ($\lambda = 0.330$ мкм).

Вместе с тем, в наших измерениях было зафиксировано заметное поглощение в области 0.9–1.1 мкм, в которой, согласно теоретическим расчетам [10, 21, 32, 33], полосы поглощения молекулярного натрия отсутствуют. По данным этих расчетов на длине волны 0.9 мкм лежит длинноволновый край полосы поглощения и излучения, соответствующей свободно-связанному переходу $a^3\Sigma_u^+-c^3\Sigma_g^+$, и, следовательно, при больших длинах волн наблюдаемое поглощение не может быть связано с поглощением на переходах молекулярного натрия. Следует отметить, что в указанных работах достигнуто очень хорошее согласие экспериментальных данных с расчетами во всей исследованной области длин волн 0.3–1.0 мкм (особенно следует отметить работу [21], в которой проводилось очень тщательное измерение спектров поглощения и детальное сравнение их с теоретическими расчетами) и поэтому нет оснований полагать, что поглощение при $\lambda > 0.9$ мкм принадлежит каким-либо неидентифицированным переходам димера натрия. Атомарные линии поглощения в этой области также не могут проявиться вследствие исчезающе малой тепловой населенности резонансного и более высоко лежащих уровней при отсутствии внешнего возбуждения.

Как отмечалось во Введении, интенсивное инфракрасное излучение и поглощение ранее также были зарегистрированы в спектрах чисто теплового свечения плотных паров калия [7, 10] и натрия [3, 4, 8, 10, 11] в струе паров и в кюветах типа тепловой трубы, аналогичных использовавшейся в настоящей работе. Возникновение этих эффектов в

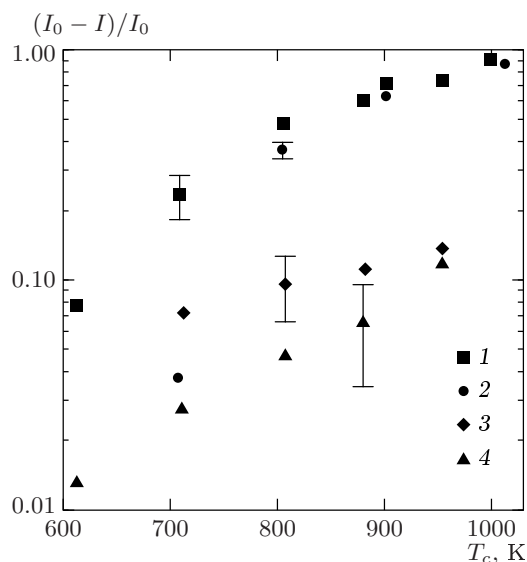


Рис. 2. Зависимость величины $K = (I_0 - I)/I_0$ от температуры центра кюветы T_c для длин волн излучения 1.0 (1, 3, 4) и 0.4 мкм (2) для аргона (1, 2, 4) и гелия (3). Давление буферного газа 1 атм (1–3) и 0.2 атм (4)

работах [7, 8, 10, 11] приписывалось возможному поглощению на тримерах и более сложных полимерах щелочного металла, а также возникновению тумана, т. е. микрокапель жидкого металла. Однако эти гипотезы практически ничем не были подтверждены в экспериментах или расчетах. Так, предпринятые в работах [7, 8] попытки измерить энергии активации поглощающих частиц по спектральным данным о коэффициентах поглощения в инфракрасной области и сравнить их с предполагаемой энергией активации тримеров натрия и калия дали весьма противоречивые результаты. Более того, интенсивное излучение в ближней инфракрасной области спектра уже давно обнаружено в хорошо изученных спектрах свечения газоразрядных натриевых ламп высокого давления [6, 34], широко используемых в приборах наружного освещения. Непроизводительные потери на инфракрасное излучение, доля которых в общем энергобалансе натриевых ламп может достигать 20–30 %, много лет назад были названы «таинственными» [6] и до настоящего времени не получили хотя бы качественного объяснения в рамках какой-либо теоретической модели.

Вместе с тем, следует отметить, что в однородно нагреваемой кювете в отсутствие буферного газа какого-либо заметного поглощения в области длин волн 0.92–1.075 мкм не наблюдалось [21]. В наших

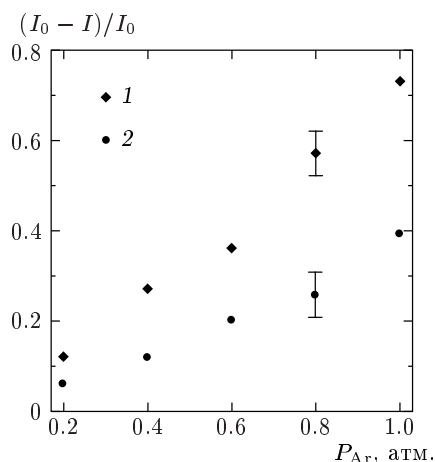


Рис. 3. Зависимость величины $K = (I_0 - I)/I_0$ для длины волны излучения 1 мкм от давления аргона P_{Ar} ; $T_c = 955$ (1) и 808 К (2)

же экспериментах впервые были получены данные по зависимостям ослабления излучения в области длин волн $\lambda = 1$ мкм от давления и типа буферного газа при различных температурах кюветы, которые показаны на рис. 2 и 3. Представленные на них данные свидетельствуют, что давление и тип буферного газа весьма сильно влияют на оптические свойства исследуемой среды. Поглощение увеличивается с ростом давления буферного газа и оказывается существенно большим для аргона по сравнению с гелием. Отметим, что ранее подобные зависимости наблюдались нами и при измерении интенсивности свечения плотных паров натрия в области длин волн 2–3 мкм [3, 4]. В этих экспериментах интенсивность свечения также была примерно пропорциональна давлению буферного газа и увеличивалась в несколько раз при замене гелия аргоном.

4. ОЦЕНКИ ВОЗМОЖНОГО ВЛИЯНИЯ ТРИМЕРОВ НАТРИЯ НА ПОГЛОЩЕНИЕ В ИК-ОБЛАСТИ

В ряде работ [7–9] значительное поглощение в инфракрасной области спектра $\lambda > 0.9$ мкм связывалось с присутствием в парах тримеров щелочных металлов. Эти молекулы в достаточно больших количествах могут присутствовать в горячих областях, где плотность паров наиболее велика. По этой причине в данной работе были проведены оценки сечения возможного поглощения σ_{tr} тримеров натрия Na_3 при разных температурах центра кюветы T_c в предположении, что все наблюдаемое поглощение обусловле-

но именно тримерами. Для оценок использовалось следующее уравнение:

$$\ln(I/I_0) = -2 \int_0^{L_1+L_2} \sigma_{tr}(T(z)) N_{tr}(T(z)) dz, \quad (5)$$

где N_{tr} — плотность тримерной компоненты. Из-за очень резкой зависимости N_{tr} от температуры (а, следовательно, и от z) величина интеграла в (5) определяется, главным образом, только центральной частью кюветы, а детали распределения плотности паров на периферии кюветы несущественны. При этом можно полагать, что $\sigma_{tr} \approx \sigma_{tr}(T_c)$ и вынести величину сечения из-под знака интеграла. В оценках использовались экспериментальные данные для величины $K = (I_0 - I)/I_0$ и результаты расчетов равновесной концентрации тримерной компоненты. Величина N_{tr} вычислялась с использованием теоретических данных о фундаментальных колебательных частотах, приведенных в недавней работе [35] ($\omega_1 = 295.3$ см $^{-1}$, $\omega_2 = 56.9$ см $^{-1}$, $\omega_3 = 102.9$ см $^{-1}$) и данных об энергии диссоциации, рассчитанной в работах [36–38] (приблизительно 3000 см $^{-1}$). Для вычисления моментов инерции молекулы использовались данные о ее геометрической структуре, приведенные в [39]. Отметим, что, согласно [39], молекула Na_3 имеет слабые полосы поглощения в ближней инфракрасной области спектра.

Как уже упоминалось выше, длинноволновый край поглощения димеров натрия Na_2 лежит, согласно многим измерениям и расчетам, в области длин волн, меньших 900 нм и, соответственно, эта компонента паров не может давать вклада в наблюдаемое поглощение на длинах волн, больших 0.9 мкм. Тем не менее были проведены аналогичные расчеты сечения возможного поглощения σ_d и для димерной компоненты Na_2 , при этом при расчете ее плотности N_d соответствующие спектроскопические константы брались из [27].

Температурные зависимости расчетного молекулярного состава паров натрия и сечений поглощения димеров и тримеров натрия приведены на рис. 4, из которого следует, что равновесная плотность тримерной компоненты на 3–7 порядков ниже плотности атомарного натрия. Как видно из графиков, и для димерной, и для тримерной компонент паров оцененные величины σ_d и σ_{tr} сильно зависят от температуры и меняются на два-три порядка при изменении температуры всего лишь в два раза, в то же время реальные сечения поглощения не могут столь существенно зависеть от T .

Из-за малой плотности тримеров оцененная

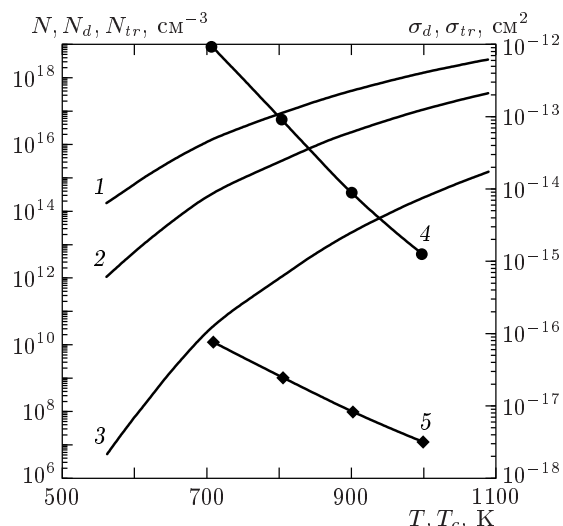


Рис. 4. Расчетные зависимости равновесных плотностей атомов (1), димеров (2) и тримеров (3) натрия от температуры. Зависимости сечений возможного поглощения σ_{tr} (4) и σ_d (5) от температуры в центре кюветы T_c (оцененных по данным экспериментов в предположении, что все поглощение обусловлено соответствующей компонентой)

величина σ_{tr} оказывается лежащей в области 10^{-12} – 10^{-15} см², более характерной для узких атомарных линий, чем для относительно широких молекулярных полос. Более того, согласно экспериментальным данным, приведенным в обзорах [40, 41], даже в максимуме поглощения в фиолетовой области спектра сечение поглощения тримера натрия не превышает величины $4 \cdot 10^{-16}$ см². Следовательно, вся совокупность данных свидетельствует о том, что наблюдаемое поглощение не может быть вызвано молекулами Na₂ и Na₃, достаточно высокая равновесная плотность которых может существовать только в центральной горячей и достаточно однородной области кюветы. Равновесные же концентрации более высоких полимеров натрия — Na₄ и т. д. — еще много меньше, чем концентрация тримеров, и они также не могут давать вклада в поглощение. Кроме того, как уже упоминалось ранее, интенсивность свечения и величина поглощения сильно зависят от типа и давления буферного газа, что также не согласуется с гипотезой о влиянии на оптические характеристики паров в длинноволновой области спектра $\lambda > 0.9$ мкм молекулярной компоненты.

5. ВЛИЯНИЕ НА ПОГЛОЩЕНИЕ КЛАСТЕРНОЙ И МИКРОКАПЕЛЬНОЙ КОМПОНЕНТ ПАРОВ

Как уже упоминалось ранее, поглощение в ближнем инфракрасном диапазоне спектра (вне области поглощения димеров натрия) может быть приписано также тяжелым кластерам натрия, а также микроскопическим каплям жидкого натрия, возникающим вследствие процессов конденсации в холодной зоне установок для создания плотных паров щелочных металлов. Следует отметить, что в настоящее время не установлено четкого разграничения по размерам между кластерами и микрокаплями (аэрозолями), и поэтому в дальнейшем для простоты и краткости будем и те, и другие называть микрочастицами.

В струе паров [10] предположение о возникновении микрочастиц в результате конденсации вполне обосновано из-за резкого расширения паровой среды [41–43]. В то же время в кюветах типа «тепловой трубы» (использовавшихся для создания плотных стационарных паров щелочных металлов в [3, 4, 7–9, 11] при большом давлении буферного газа P_{buf} и достаточно малом давлении паров P_v ($P_v/P_{buf} < 0.2$ – 0.1) неравновесность среды сравнительно мала, поэтому вопрос об образовании микрочастиц в таких условиях требует специального исследования.

Оценить степень влияния конденсата на оптические характеристики плотных паров щелочных металлов можно, опираясь на данные измерений спектральных зависимостей поглощения. Для оценок была использована модель сферической капли радиуса R (эффекты несферичности при достаточно высоких температурах пренебрежимо малы [43–45]). На основе экспериментальных данных [46] для спектральных зависимостей действительной и мнимой компонент комплексной диэлектрической проницаемости, ϵ_1 и ϵ_2 , для такой капли были проведены численные расчеты сечений экстинкции σ_{ext} по теории Ми [44, 47]. Следует отметить, что зависимость $\epsilon_1(\lambda)$ хорошо аппроксимируется плазменной моделью в рамках теории Друде–Зоммерфельда с поправками на эффективную массу электрона и поляризуемость ионного остова [44, 46] в широком диапазоне длин волн 0.3–2.0 мкм. Для мнимой же компоненты ϵ_2 наблюдаются существенные отличия в видимой и ближней ультрафиолетовой областях, связанные с наличием межзонных переходов. Поскольку в [46] данные получены при комнатной температуре, они пересчитывались в соответствии с отношением элек-

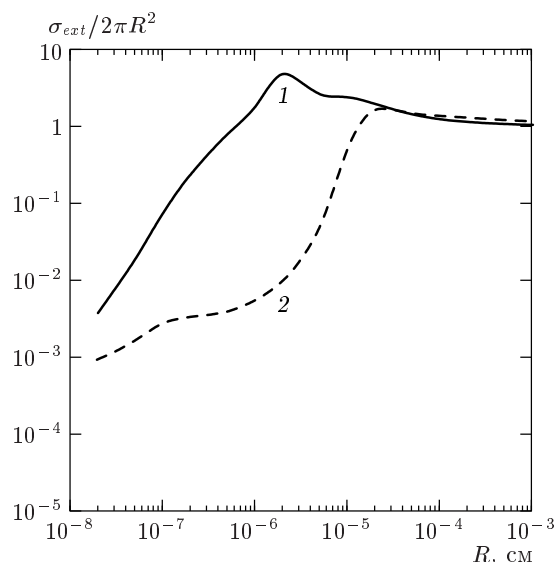


Рис. 5. Зависимости нормированного сечения экстинкции от диаметра микрочастицы R для длин волн 0.4 (1) и 1.0 мкм (2); $T = 1000$ К

тропроводностей натрия [27] при заданной температуре и $T = 293$ К. Кроме того, в расчетах учитывалось, что при малых размерах частицы в величине компонент диэлектрической проницаемости, а следовательно, и в сечении поглощения, значительную роль начинают играть размерные эффекты, связанные с тем, что частота столкновений ν в области малых R определяется столкновениями с границами микрочастицы и величина ν становится зависящей от ее размера: $\nu = \nu(R)$ [44].

Результаты расчетов для двух длин волн 0.4 и 1.0 мкм при температуре $T = 1000$ К представлены на рис. 5. Из приведенных на рисунке графиков следует, что при малых размерах кластера сечения экстинкции для двух длин волн отличаются в несколько раз и более, в то время как измеренные коэффициенты поглощения при указанной температуре практически совпадают (см. рис. 2). При этом расчетное значение σ_{ext} для длины волны 0.4 мкм превышает соответствующее сечение для $\lambda = 1$ мкм, в эксперименте же наблюдается обратное соотношение (отметим, что аналогичный результат получается и в результате расчетов величины σ_{ext} для других температур). Более того, согласно [39–44], микрочастицы натрия малых размеров должны иметь резонансный пик поглощения в ультрафиолетовом диапазоне для длины волны $\lambda \approx 0.4$ мкм, обусловленный возбуждением поверхностных плазмонов. В экспериментах же не наблюдалось никакого пика в

этой области спектра (см. рис. 1), который можно было бы связать с пиком плазмонного поглощения излучения, хотя, возможно, он скрыт в крыльях указанных выше сильных линий поглощения атомарного натрия и димеров натрия. Таким образом, малые кластеры не могут объяснить наблюдаемые зависимости поглощения.

Однако при больших размерах частицы $R > 0.1$ мкм (когда в разложении Ми существенную роль начинают играть мультипольные члены) расчетные сечения экстинкции сближаются и становятся равными (при $R \gg \lambda$ независимо от длины волны σ_{ext} стремится к величине $2\pi R^2$), что в целом согласуется с экспериментальными данными. Следовательно, для решения вопроса об их возможной роли следует выяснить, могут ли вообще такие микрочастицы образовываться в кюветах типа тепловой трубы и какова их концентрация.

Учитывая, что вдоль оси кюветы существует значительный градиент температур и, соответственно, градиент давления насыщенных паров, можно сказать, что существенную роль в установлении стационарного распределения плотности паров будет играть диффузия атомов натрия в буферном газе из горячей центральной области кюветы к ее охлаждаемым концам. При этом на периферии кюветы плотность пара N может существенно превышать плотность насыщенных паров $N_s(T)$, определяемую температурой данной точки кюветы. В таких условиях гомогенная конденсация в принципе может приводить к образованию достаточно больших микрочастиц. Для выяснения роли конденсации были проведены численные расчеты процессов теплопроводности и диффузии в кювете для условий данного эксперимента. Граничные условия при этом ставились в соответствии с цилиндрической симметрией задачи и аппроксимацией (4) экспериментально определенной температурой стенки кюветы, при этом полагалось, что на стенках $N = N_s$. Расчетное распределение по оси кюветы температуры и плотности паров в отсутствие конденсации, а также соответствующее температуре распределение плотности насыщенных паров натрия, вычисленное с использованием таблиц [27], показано на рис. 6 (кривые 1–3). Как следует из графиков, в холодной области степень пересыщения $S = N/N_s$ может достигать значительных значений ($S \sim 10^6$), что и может являться причиной интенсивной конденсации и образования достаточного количества микрокапель значительного размера.

Учет конденсации проводился на основе классической теории гомогенной конденсации [48, 49], со-

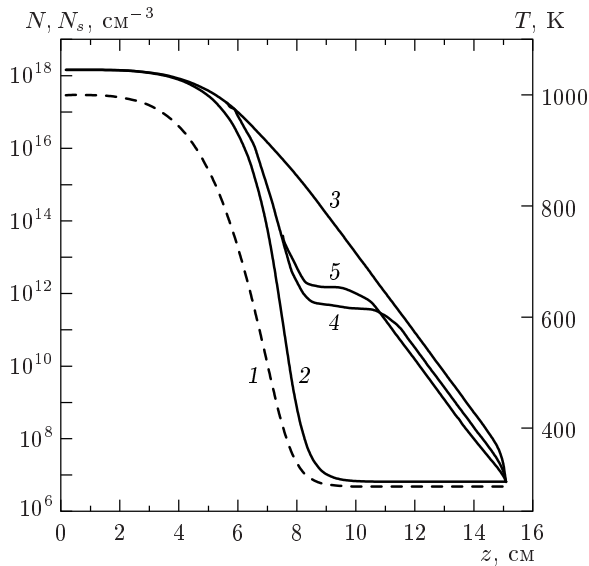


Рис. 6. Распределения температуры (1), плотности насыщенных паров N_s (2), плотности паров N в отсутствие конденсации (3), с учетом конденсации при диффузионном переносе паров (4) и с учетом конденсации при конвективном переносе (5) на оси кюветы; $T_c = 1000$ К, $P_{Ar} = 1$ атм

гласно которой в пересыщенном паре, главным образом, рождаются зародыши конденсации критического радиуса:

$$R_{cr} = \frac{2\sigma q}{kT \ln S}, \quad (6)$$

где $q = m_{Na}/\rho_{Na}$ — объем молекулы жидкого натрия, m_{Na} — масса атома натрия, ρ_{Na} — плотность жидкого натрия, σ — коэффициент поверхностного натяжения натрия. При этом кластеры или микрокапли меньшего размера испаряются, а большего — растут. Отметим, что число атомов в частице

$$n = (R/R_W)^3,$$

где

$$R_W = (3m_{Na}/4\pi\rho_{Na})^{1/3}$$

— радиус Вигнера–Зейтца [41], соответственно число атомов в микрочастице радиусом R_{cr} составляет

$$n_{cr} = (R_{cr}/R_W)^3.$$

Скорость рождения зародышей в классической теории определяется следующим выражением [48, 49]:

$$J_0 = \frac{1}{2} \alpha q N^2 v_T \sqrt{\frac{\sigma}{kT}} \exp\left(-\frac{4\pi\sigma R_{cr}^2}{3kT}\right), \quad (7)$$

где α — коэффициент аккомодации (доля молекул пара, прилипающих при столкновениях к поверхности капли, для чистых щелочных металлов $\alpha \approx 1$ [50]), $v_T = (8kT/\pi m_{Na})^{1/2}$ — тепловая скорость атомов натрия. Образовавшиеся микрочастицы с течением времени увеличиваются в размере и постепенно оседают под действием силы тяжести на внутреннюю поверхность кюветы, достигая максимального размера R_{max} (при этом $n_{max} = (R_{max}/R_W)^3$).

Пусть такая микрочастица образуется в момент времени $t = 0$ и исчезает, опустившись на дно кюветы, в момент времени τ . Тогда, очевидно, стационарная концентрация микрочастиц N_p будет определяться следующим выражением:

$$N_p = J_0 \tau.$$

В этом случае скорость исчезновения атомов в объеме за счет конденсации Q может быть определена следующим образом:

$$Q = \int_{n_{cr}}^{n_{max}} N_p W(n) F(n) dn, \quad (8)$$

где n_{cr} — число атомов в частице критического радиуса ($n_{cr} = (R_{cr}/R_W)^3$), $W(n)$ — скорость роста частицы, $F(n)$ — функция распределения частиц по размерам.

Рост микрочастицы в условиях данного эксперимента определяется, главным образом, прилипанием к ней атомов, поступающих из окружающего пара, а роль коагуляции, как можно легко показать, незначительна. Скорость роста за счет прилипания $W(n)$ существенно различна в случае малого размера частицы $R \ll \lambda_f$ (свободномолекулярный режим, λ_f — длина свободного пробега атомов натрия в буферном газе) и в случае большого размера $R \gg \lambda_f$ (диффузионный режим). Поэтому в данных расчетах использовалась интерполяционная формула, приведенная в [51], описывающая оба предельных случая:

$$W(n) = \frac{dn}{dt} = \frac{\alpha \pi n^{2/3} R_W^2 v_T}{1 + 3R_W n^{1/3} \alpha / (4\lambda_f v_T)} (N - N_s). \quad (9)$$

Поскольку конденсация происходит с выделением тепла, температура микрочастицы T_p , вообще говоря, повышается по сравнению с температурой среды T , что несколько уменьшает скорость ее роста по сравнению с (9). Однако в наших условиях, когда давление буферного газа много больше давления паров натрия, этот эффект пренебрежимо мал, что, в

частности, отмечалось в [52]. Кроме того, отметим, что плотность насыщенных паров вблизи микрочастицы зависит от кривизны ее поверхности [51], однако влияние кривизны существенно только для са-

мых малых частиц и далее этот эффект учитываться не будет.

Интегрируя (9), можно получить явную зависимость n от времени:

$$n = \left(-b^{-1} + \sqrt{b^{-2} + n_{cr}^{2/3} + 2b^{-1}n_{cr}^{1/3} + (8/9)\pi\lambda_f v_T R_W (N - N_s)t} \right)^3, \quad (10)$$

где $b = 3\alpha R_W / 4\lambda_f$.

Функцию распределения микрочастиц по размерам найдем из стационарного кинетического уравнения:

$$\frac{\partial}{\partial n} [W(n)F(n)] = 0, \quad \int_{n_{cr}}^{n_{max}} F(n) dn = 1. \quad (11)$$

Из (11) легко можно получить

$$F(n) = C \left(n^{-2/3} + bn^{-1/3} \right), \quad (12)$$

$$C = \left[3 \left(n_{max}^{1/3} - n_{cr}^{1/3} \right) + \frac{3}{2}b \left(n_{max}^{2/3} - n_{cr}^{2/3} \right) \right]^{-1}.$$

Интегрируя (8), с учетом (9), (10), (12) получим

$$Q = J_0(n_{max} - n_{cr}). \quad (13)$$

Таким образом, задача сводится к нахождению максимального размера микрочастицы, который, в свою очередь, определяется временем оседания частицы τ . Для определения τ воспользуемся интерполяционной формулой для стационарной скорости оседания в поле силы тяжести (см., например, [51]), справедливой как для свободномолекулярного, так и для диффузионного режимов:

$$v_{st} = \frac{dx}{dt} = \frac{C_c m_{Na} g}{6\pi\eta R_W} n^{2/3}, \quad (14)$$

где x — вертикальная координата ($0 < x < 2R_p$), $\eta = \eta(T)$ — динамическая вязкость буферного газа (данные о которой можно найти в таблицах ([27]),

g — ускорение свободного падения, а C_c — так называемая поправка Каннингема [51]:

$$C_c = 1 + \frac{\lambda_m}{R} \left[1.257 + 0.4 \exp \left(-\frac{1.1R}{\lambda_m} \right) \right] \quad (15)$$

(λ_m — длина свободного пробега атомов буферного газа). Из (14) можно получить уравнение для определения τ :

$$2R_p = \int_0^\tau v_{st} dt, \quad (16)$$

а затем найти из (10) $n_{max} = n(\tau)$ и, соответственно, вычислить Q .

Результаты численного решения уравнения диффузии паров натрия в буферном газе с учетом стока атомов натрия за счет конденсации приведены на рис. 6 и 7. На рис. 6 (кривая 4) показано распределение плотности паров на оси кюветы с учетом конденсации, из которого следует, что этот процесс существенно понижает плотность паров в холодной части трубы, значительно уменьшая пересыщение. На рис. 7 представлены распределения вдоль оси кюветы плотности микрочастиц N_p , максимального числа атомов в микрочастице n_{max} и плотности атомов натрия, сосредоточенных в микрочастицах, N_t , рассчитанных для $T_c = 1000$ К и давления аргона в кювете 1 атм. На рис. 8, 9 показаны зависимости ослабления излучения с длиной волны 1 мкм на микрочастицах в зависимости от температуры и давления буферного газа, вычисленные с использованием обсуждавшихся выше расчетных значений сечения экстинкции (см. рис. 5):

$$K_p = \frac{I_0 - I}{I_0} = 1 - \exp \left(\int_{-(L_1+L_2)}^{(L_1+L_2)} N_p(z, r=0) \int_{R_{cr}(z, r=0)}^{R_{max}(z, r=0)} F(n, z, r=0) \sigma_{ext}(n, z, r=0) dn dz \right). \quad (17)$$

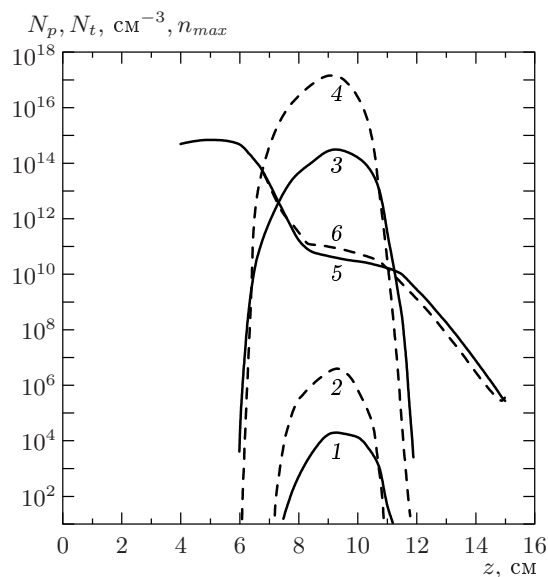


Рис. 7. Распределения плотности микрочастиц N_p (1, 2), плотности атомов, сосредоточенных в микрочастицах N_t (3, 4) и максимального числа атомов в микрочастице n_{max} (5, 6) при диффузионном переносе паров (1, 3, 5) и при конвективном переносе (2, 4, 6) на оси кюветы; $T_c = 1000$ К, $P_{Ar} = 1$ атм

Как видно из представленных графиков, расчетные значения величины K_p на 2-3 порядка меньше измеренных во всем диапазоне параметров среды. Кроме того, наблюдаемые в экспериментах зависимости поглощения и рассеяния излучения от давления и типа буферного газа противоречат расчетным.

Следует отметить, что в ряде работ поднимался вопрос о справедливости описания процессов конденсации выражением (7). В частности, Лоте и Паундом [53] при учете всех степеней свободы зародыша была введена поправка к (7), которая увеличивает классическую скорость нуклеации J_0 в 10^{17} раз. Однако в работе [54] показано, что реально поправка может варьироваться в диапазоне 10^{-2} - 10^6 (аналогичное заключение делается и в работе [55], причем там отмечено, что введение поправок изменяет параметры сконденсировавшихся микрочастиц всего на 5% при $J = (10^{-2}$ - $10^2)J_0$). Кроме того, в работе [56] автором было указано, что сильное влияние на скорость нуклеации может также оказывать размерная зависимость коэффициента поверхностного натяжения, что при больших значениях степени пересыщения S существенно увеличивает величину J_0 . Поэтому в наших расчетах было проведено моделирование конденсации с увеличением скорости нук-

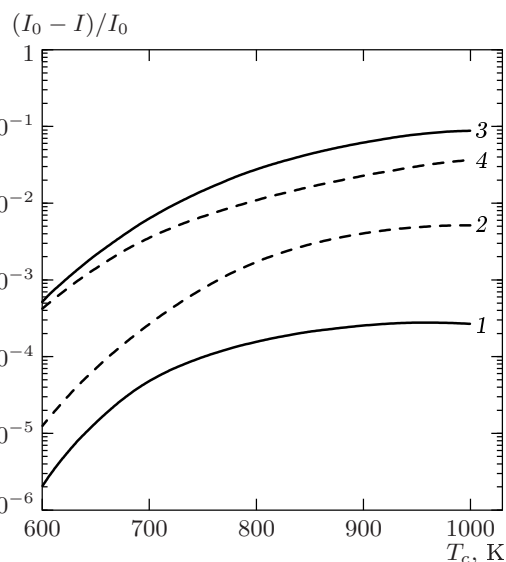


Рис. 8. Зависимости рассчитанной величины $K_p = (I_0 - I)/I_0$ от температуры центра кюветы T_c для длины волны излучения 1 мкм в диффузионном (1, 2) и конвективном (3, 4) режимах для аргона (1, 3) и гелия (2, 4) при давлении 1 атм

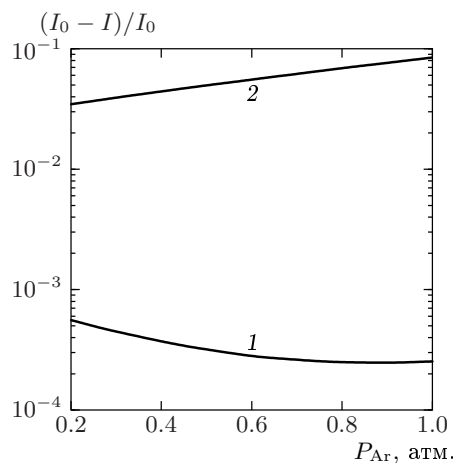


Рис. 9. Зависимости рассчитанной величины $K_p = (I_0 - I)/I_0$ от давления аргона P_{Ar} для длины волны излучения 1 мкм в диффузионном (1) и конвективном (2) режимах; $T_c = 1000$ К

леации вплоть до $J = 10^{10}J_0$. Расчеты показали, что даже такое увеличение J_0 не слишком существенно влияет на параметры микрочастиц и поглощение в парах. В этом случае количество микрочастиц в объеме кюветы и полное число атомов, сосредоточенных в микрочастицах, увеличиваются в несколько раз, но одновременно в несколько раз уменьшаются их средний размер. Так, в аргоне при давлении

1 атм и при температуре $T_c = 1000$ К концентрация микрочастиц и полное число атомов в микрочастицах увеличились соответственно всего в 4 и 1.5 раза, а их максимальный размер уменьшился в 1.6 раз, при этом величина K_p увеличилась всего в 1.7 раза (при $K_p \ll 1$ и при больших размерах микрочастиц $K_p \sim N_p \sigma_{ext} \sim 2\pi N_p R^2$). Такая ситуация складывается вследствие того, что при ограниченной скорости диффузионного потока увеличение скорости нуклеации быстро ограничивается исчерпанием в зоне конденсации атомарного пара. При этом существенно замедляется рост микрочастиц (пропорциональный разности $N - N_s$) и они оседают, не достигнув прежнего размера, поскольку время оседания, как нетрудно показать, пропорционально $(N - N_s)^{-1/2}$. Таким образом, даже при учете возможных поправок на скорость нуклеации чисто диффузионный поток не может обеспечить должного количества микрочастиц и их размера в объеме кюветы, чтобы объяснить опытные данные.

Однако, как показали расчеты поля температур, в кювете существуют небольшие перепады температуры ΔT между ее осевой частью и стенкой (не более 15 К в нагретой зоне трубы при $T = 1000$ К). По этой причине в кювете оказывается возможным конвективный перенос паров из пристеночных слоев в приосевую зону, а затем и из горячих областей кюветы в холодные. Процессы такой конвекции практически невозможно детально промоделировать, однако в первом приближении их можно описать с использованием эффективного коэффициента диффузии D_{eff} , который можно оценить, приравняв конвективный поток к диффузионному:

$$D_{eff} \nabla N = v_{cz} N, \quad (18)$$

где v_{cz} — скорость конвективного потока вдоль оси, которая предполагается порядка вертикальной (радиальной) конвективной скорости: $v_{cz} \sim v_{cr}$. Величину v_{cr} в свою очередь можно оценить из уравнения Буссинеска [57]:

$$(v_{cr} \nabla) v_{cr} = \nu \Delta v_{cr} - \beta g \Delta T, \quad (19)$$

где ν — кинематическая вязкость среды, β — температурный коэффициент расширения (для газов $\beta = 1/T$), g — ускорение свободного падения. Для наших условий член, обусловленный вязкостью, мал даже для небольших давлений буферного газа, тогда скорость конвекции можно оценить (полагая, что $(v_{cr} \nabla) v_{cr} \sim v_{cr}^2 / R_p$) как

$$v_{cr} \sim \sqrt{R_p g \frac{\Delta T}{T}}. \quad (20)$$

Отсюда получаем оценку для величины D_{eff} , считая, что градиент плотности паров устанавливается на длине горячей зоны кюветы и $\nabla N \sim N / L_1$:

$$D_{eff} \sim L_1 \sqrt{R_p g \frac{\Delta T}{T}}. \quad (21)$$

Отсюда следует, что величина D_{eff} не зависит от давления и типа буферного газа. Отметим, что в зависимости от температуры величина D_{eff} в десятки и сотни раз может превышать коэффициент обычной диффузии малой примеси паров натрия в буферном газе при атмосферном давлении.

Для оценок влияния конвекции на образование микрочастиц в кювете было проведено моделирование процессов диффузии и конденсации с использованием формулы (21). При этом полагалось, что по всей длине кюветы $\Delta T = 15$ К. Отметим, что при учете конвективной теплопроводности перепад температур может быть существенно меньше. Результаты расчетов также показаны на рис. 6–9. Из них следует, что в этом случае поглощение значительно больше, хотя и не достигает величин, зарегистрированных в экспериментах. Более того, полученные в расчетах зависимости поглощения от давления и сорта буферного газа качественно соответствуют наблюдаемым (ср. рис. 2 и 8, 3 и 9). Это объясняется тем, что, хотя эффективный коэффициент диффузии и не зависит от давления и типа буферного газа, скорость оседания существенно определяется ими. Как и в случае диффузионного переноса, увеличение скорости нуклеации на 10 порядков по сравнению с классической в условиях конвективного переноса не слишком существенно влияет на параметры микрочастиц и поглощение в парах. Отметим, что в обоих случаях обычной и конвективной диффузии узкие зоны конденсации (см. рис. 6 и 7), расположенные в области $z = 7$ –11 см (где температуры уже достаточно малы), практически совпадают.

Таким образом, микрочастицы, образующиеся в результате конденсации конвективных потоков паров натрия в кюветах могут в принципе (с учетом приближенности расчетов) вносить некоторый вклад в наблюдаемое в экспериментах ослабление интенсивности проходящего излучения в инфракрасной области спектра $\lambda > 0.9$ мкм в парах натрия. Тем не менее, если учитывать, что конденсация происходит в холодной зоне кюветы, температура микрочастиц оказывается невеликой. При этом, даже если считать, что микрочастицы излучают как поверхность черного тела на внутренней границе зоны конденсации, интенсивность их свечения будет мала. Так, например, при $T_c = 1000$ К

и $P_{buf} = 1$ атм внутренняя граница зоны конденсации соответствует $z \approx 7$ см. Температура в этой области $T(z = 7 \text{ см}, r = 0) \approx 510$ К. Интенсивность же излучения черного тела при этой температуре составляет около $2 \cdot 10^{-16}$ эрг/см² · ср. Однако в экспериментах [3, 4] зарегистрирована на много порядков большая интенсивность излучения паров натрия (порядка 10^{-11} эрг/(см² · ср)). Такого же порядка и интенсивность свечения неоднородно нагретого столба паров натрия в «красном» крыле резонансных D -линий, рассчитанная в приближении их квазистатического уширения буферным газом и при учете больцмановского спектрального распределения населенности резонансных уровней [4]. Следовательно, если процессы конденсации и могут давать реальный вклад в наблюдаемое поглощение в парах натрия, то объяснить величину измеренной интенсивности их свечения они не в состоянии.

6. МОДЕЛИРОВАНИЕ ВЛИЯНИЯ МНОГООЧАСТИЧНЫХ ЭФФЕКТОВ НА ФОРМУ ДАЛЕКОГО КРЫЛА СПЕКТРАЛЬНОЙ ЛИНИИ

Альтернативным механизмом, объясняющим значительное излучение и поглощение на далеком крыле спектральной линии в плотной среде, может быть, как уже упоминалось выше, уширение линии за счет многочастичного взаимодействия атомарных и молекулярных компонент среды. Такое взаимодействие в принципе может существенно модифицировать контур линий поглощения и излучения по сравнению с простой квазистатической моделью, предполагающей наличие только бинарных столкновений в рамках приближения ближайшего соседа. При этом несколько частиц, каждая из которых по отдельности лишь незначительно возмущает излучающий атом, вместе могут создать сдвиг частоты перехода, достаточный для интенсивного излучения и поглощения на далеком крыле линии $\Delta\omega \sim \omega_0$. Однако этот вопрос требует дополнительного исследования, поскольку в настоящее время отсутствуют аналитические расчеты влияния на контур спектральных линий многочастичных взаимодействий, которые могут проявляться при больших плотностях среды. Более того, такая задача на сегодняшний день не решена даже в приближении бинарного взаимодействия, когда каждая частица возмущает излучающий атом независимо от других. По существу эта же проблема возникает при описании «хвостов» плотности состояний носителей в сильнолегиро-

ванных полупроводниках [58], когда необходимо учитывать взаимодействие примесей, создающих флуктуирующее поле, действующее на электроны (дырки).

По этой причине для моделирования многочастичных эффектов необходимо применение численных методов (например, метода молекулярной динамики). Однако для расчетов многочастичного уширения при больших отстройках $\Delta\omega \sim \omega_0$ методом молекулярной динамики в нейтральном газе при квазистатическом механизме уширения, когда интенсивность (форма контура) спектральной линии убывает достаточно медленно ($a(\omega) \propto \Delta\omega^{-3/2}$), требуются значительные вычислительные мощности, трудно достижимые даже в настоящее время. По этой причине моделирование многочастичных эффектов с целью проверки справедливости применения приближения ближайшего соседа в области больших отстроек от резонанса было проведено на другом, более простом примере — численном расчете методом молекулярной динамики функции распределения ионных микрополей $P(E)$ в плотной плазме при асимптотически больших значениях микрополя. Как известно, интенсивность (контур) линии $a_{st}(\omega)$, обусловленная штарк-эффектом, в квазистатическом приближении пропорциональна $P(E)$ и в асимптотике ближайшего соседа $a_{st}(\omega) \propto \Delta\omega^{-5/2}$ [59].

Расчеты проводились для квазичастиц (ионов), движущихся в кубической ячейке с периодическими условиями на ее границах. В расчетах использовались ансамбли из 1500 частиц. Временной шаг интегрирования определялся необходимостью корректно описывать редкие сильные быстротекущие соударения частиц, формирующие статистику больших полей. При интегрировании контролировалось сохранение полной энергии системы. Тестовые расчеты показали хорошее согласие с известными результатами для функции распределения ионных микрополей, полученными методом Монте-Карло [60]. Расчеты проводились для изотермической ($T_e = T_i$) плазмы аргона ($Z = 17$) с плотностью 11.7 г/см³ при $N_e = 3 \cdot 10^{24}$ см⁻³ и $N_i = 1.76 \cdot 10^{23}$ см⁻³. При этом температура менялась таким образом, что параметр неидеальности

$$\Gamma = \frac{Z^2 e^2}{TR_e},$$

где R_e — среднее расстояние между электронами, варьировался в диапазоне 18–170. Моделирование показало (см. рис. 10), что формирование далекого хвоста функции распределения микрополей в силь-

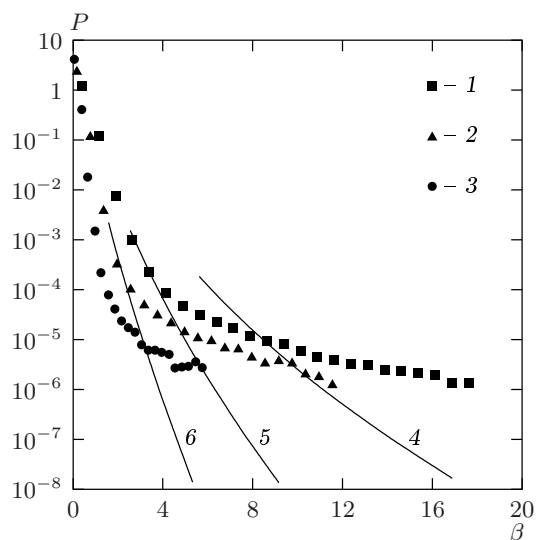


Рис. 10. Сравнение распределений относительного микрополя β ($\beta = E/E_0$, $E_0 = Ze/R_e^2$), рассчитанного методом молекулярной динамики (1–3) с асимптотиками приближения ближайшего соседа (4–6) для различных плазменных параметров $\Gamma = 18$ (1, 4), 36 (2, 5), 72 (3, 6)

но неидеальной плазме обеспечивается именно многочастичными (тройными и более) столкновениями. Другими словами, вероятность обнаружения конфигурации из двух и более ионов, создающих в месте нахождения излучателя данную результирующую напряженность, намного превышает вероятность найти один возмущающий ион, создающий то же поле, но при большем сближении с излучателем. Расчеты продемонстрировали, что при увеличении Γ отклонения от асимптотики ближайшего соседа [59, 61] наступают уже при небольших значениях относительного микрополя $\beta = E/E_0 > \beta_{crit} \sim 1.5$ (E_0 — характерное поле, равное Ze/R_e^2) и носят резко выраженный характер. Отметим, что при $\Gamma = 18 \beta_{crit} \sim 8$ и превышение функции распределения микрополя над асимптотическим могло достигать более двух порядков величины. Таким образом, впервые было показано, что многочастичные эффекты в формировании контура спектральной линии могут быть весьма существенны. В слабонеидеальной плазме приближение ближайшего соседа в области сильных полей вполне корректно.

7. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Таким образом, полученные в работе экспериментальные данные и результаты теоретических

расчетов показывают, что присутствие в парах кластерной и микрокапельной компонент не может объяснить значительного поглощения и теплового излучения, наблюдаемых в ближней инфракрасной области спектра $\lambda > 0.9$ мкм в смесях плотных паров натрия с различными буферными газами (хотя микрочастицы конденсата и могут давать некоторый вклад в наблюдаемое ослабление излучения, прошедшего через плотные пары). В этой связи возможной причиной наблюдаемых эффектов может быть многочастичное уширение резонансного уровня в совокупности с бальмановским характером спектрального распределения населенностей на резонансном уровне. Как показали результаты численного моделирования, выполненного методами молекулярной динамики на примере распределения ионных микрополей в плотной плазме, многочастичные эффекты действительно могут в принципе приводить к существенно более медленному уменьшению контура линии по сравнению с тем, которое получается в приближении ближайшего соседа, существенно увеличивая поглощение в плотной среде и, соответственно, ее излучение при больших отстройках. Однако применение методов молекулярной динамики к конкретному случаю уширения резонансных линий натрия буферным газом для описания имеющихся экспериментальных результатов требует дальнейшего развития вычислительных методов и применения существенно более мощной вычислительной техники, что остается делом будущего. Тем не менее, следует отметить, что полученный для распределения микрополей результат может оказаться весьма важным для корректной интерпретации спектров излучения и поглощения горячей плотной плазмы лазерной искры, плазмы Z- и X-пинчей и т. д.

Авторы глубоко благодарны Б. М. Смирнову и А. С. Иванову за полезные обсуждения кинетики кластеров натрия, а также Г. В. Симоновой за предоставление программы численного расчета сечений экстинкции малых сферических частиц. Настоящая работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (проекты 00-15-96539-л и 02-02-16758-а).

ЛИТЕРАТУРА

1. Ю. К. Земцов, А. Н. Старостин, ЖЭТФ **103**, 345 (1993).
2. Ю. К. Земцов, А. Ю. Сечин, А. Н. Старостин, ЖЭТФ **110**, 1654 (1996).

3. Ю. К. Земцов, А. Ю. Сечин, А. Н. Старостин и др., Письма в ЖЭТФ **65**, 807 (1997).
4. Ю. К. Земцов, А. Ю. Сечин, А. Н. Старостин и др., ЖЭТФ **114**, 135 (1998).
5. А. Г. Леонов, А. А. Руденко, А. Н. Старостин и др., Письма в ЖТФ **26**, 52 (2000).
6. D. O. Wharmby, IEE Proc. **127**, 165 (1980).
7. N. D. Bhaskar, E. Zouboulis, T. McClelland, and W. Happer, Phys. Rev. Lett. **42**, 640 (1979).
8. A. Vasilakis, N. D. Bhaskar, and W. Happer, J. Chem. Phys. **73**, 1490 (1980).
9. E. Zouboulis, N. D. Bhaskar, A. Vasilakis, and W. Happer, J. Chem. Phys. **72**, 2356 (1980).
10. J. Huennekens, S. Schaefer, M. Ligare, and W. Happer, J. Chem. Phys. **80**, 4794 (1984).
11. M. Palle, S. Milosevic, D. Veza, and G. Pichler, Opt. Com. **57**, 394 (1986).
12. M. Ligare and J. B. Edmonds, J. Chem. Phys. **95**, 3857 (1991).
13. Л. М. Биберман, В. С. Воробьев, И. Т. Якубов, Кинетика неравновесной низкотемпературной плазмы, Наука, Москва (1982).
14. Л. А. Апресян, Ю. А. Кравцов, Теория переноса излучения, Наука, Москва (1983).
15. A. Phelps, *Tunable Gas Laser Utilizing Ground State Dissociation*, JILA Rpt. 110, Univ. of Colorado, Boulder, Colorado (1972).
16. G. York and A. Gallagher, *Power Gas Laser on Alkali Dimers A-X Band Radiation*, JILA Rpt. 114, Univ. of Colorado, Boulder, Colorado (1974).
17. G. York, R. Scheps, and A. Gallagher, J. Chem. Phys. **63**, 1052 (1975).
18. W. P. West and A. Gallagher, Phys. Rev. A **17**, 1431 (1978).
19. M. J. Jongerius, J. Phys. B **20**, 3345 (1987).
20. K. J. Nieuwesteeg, T. Hollander, and C. Th. J. Alkemade, J. Phys. B **20**, 515 (1987).
21. J. Schlejen, C. J. Jalink, J. Korving et al., J. Phys. B **20**, 2691 (1987).
22. M. Shurgalin, W. H. Parkinson, K. Yoshino et al., Meas. Sci. Techol. **11**, 730 (2000).
23. C. R. Vidal and J. Cooper, J. Appl. Phys. **40**, 3370 (1969).
24. В. Демтредер, *Лазерная спектроскопия*, Наука, Москва (1985).
25. D. A. Evensky and K. M. Sando, Phys. Rev. A **31**, 772 (1985).
26. A. N. Starostin, I. I. Yakunin, A. G. Leonov et al., in *Spectral Line Shapes*, ed. by J. Seidel, 15th ICSLS, Melville, New York (2001), Vol. 11, p. 16.
27. *Физические величины*, Справочник, Энергоатомиздат, Москва (1986).
28. А. Н. Зайдель, Г. В. Островская, Ю. И. Островский, *Техника и практика спектроскопии*, Наука, Москва (1976).
29. *Таблицы спектральных линий*, Наука, Москва (1977).
30. А. Н. Ключарев, М. Л. Янсон, *Элементарные процессы в плазме щелочных металлов*, Энергоатомиздат, Москва (1988).
31. J. Schlejen, J. Mooibroek, J. Korving et al., Chem. Phys. Lett. **128**, 489 (1986).
32. J. P. Woerdman and J. J. De Groot, Chem. Phys. Lett. **80**, 220 (1981).
33. H.-K. Chung, K. Kirby, and J. F. Babb, Phys. Rev. A **63**, 032516 (2001).
34. J. J. de Groot and J. A. J. M. van Vliet, *The High-Pressure Sodium Lamp*, Philips Technical Library, Basingstoke: Macmillan Education (1986).
35. B. Kendrick, Phys. Rev. Lett. **79**, 2431 (1997).
36. R. L. Martin and E. R. Davidson. Mol. Phys. **35**, 1713 (1978).
37. J. L. Martins, R. Car, and J. Buttet, J. Chem. Phys. **78**, 5446 (1983).
38. T. C. Thompson, G. Izmiran, S. J. Lemon et al., J. Chem. Phys. **82**, 5597 (1985).
39. V. Bonavic-Koutecky, P. Fantucci, and J. Koutecky, Chem. Rev. **91**, 1035 (1991).
40. W. A. de Heer, Rev. Mod. Phys. **65**, 611 (1993).
41. Б. М. Смирнов, УФН **167**, 1169 (1997).
42. Ю. И. Петров, *Физика малых частиц*, Наука, Москва (1982).
43. Б. М. Смирнов, УФН **170**, 495 (2000).
44. U. Kreibig and M. Vollmer, *Optical Properties of Metal Clusters*, Springer, Berlin (1995).

45. J. M. Pacheco and W.-D. Schone, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 4986 (1997).
46. T. Inagaki, L. C. Emerson, E. T. Arakawa, and M. W. Williams, *Phys. Rev. B* **13**, 2305 (1976).
47. М. Борн, Э. Вольф, *Основы оптики*, Наука, Москва (1970).
48. Я. И. Френкель, *Кинетическая теория жидкостей*, Изд-во АН СССР, Москва (1946).
49. Я. Б. Зельдович, *ЖЭТФ* **12**, 525 (1942).
50. М. Н. Ивановский, В. П. Сорокин, В. И. Субботин, *Испарение и конденсация металлов*, Атомиздат, Москва (1976).
51. В. Н. Пискунов, *Теоретические модели кинетики формирования аэрозолей*, Изд-во ВНИИЭФ, Саров (2000).
52. М. В. Брыкин, К. Г. Гарнисов, *ТВТ* **32**, 267 (1994).
53. J. Lothe and G. M. Pound, *J. Chem. Phys.* **36**, 2080 (1962).
54. В. Г. Шукин, В. В. Марусин, *ЖФХ* **55**, 1105 (1981).
55. В. Г. Горбунов, У. Г. Пирумов, Ю. А. Рыжов, *Неравновесная конденсация в высокоскоростных потоках газа*, Машиностроение, Москва (1984).
56. Д. И. Жуховицкий, *ТВТ* **32**, 261 (1994).
57. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Гидродинамика*, Наука, Москва (1988).
58. И. М. Лифшиц, С. А. Гредескул, Л. А. Пастур, *Введение в теорию неупорядоченных систем*, Наука, Москва (1982).
59. Г. Грим, *Уширение спектральных линий в плазме*, Мир, Москва (1978).
60. С. Ф. Ноорег, Jr., *Phys. Rev.* **149**, 77 (1966).
61. Е. Х. Ахмедов, А. Л. Годунов, Ю. К. Махров и др., *ЖЭТФ* **89**, 470 (1985).