

УДК 530.145

ИССЛЕДОВАНИЕ СПЕКТРОВ МОЛЕКУЛ ТИПА СФЕРИЧЕСКОГО ВОЛЧКА
НА ПРИМЕРЕ GeH_4

Хань Тай

Научный руководитель: профессор, д.ф.-м.н. О.В. Громова

Национальный исследовательский Томский политехнический университет,

Россия, г. Томск, пр. Ленина, 30, 364050

E-mail: 2719616721@qq.comSTUDY OF SPECTRA OF SPHERICAL TOP-TYPE MOLECULES
BY THE EXAMPLE OF GeH_4

Han Tai

Scientific Supervisor: Prof., Dr. O.V. Gromova

Tomsk Polytechnic University, Russia, Tomsk, Lenin str., 30, 364050

E-mail: 2719616721@qq.com

Abstract. The infrared spectrum of GeH_4 (88.1% of $^{76}\text{GeH}_4$, 11.5% of $^{74}\text{GeH}_4$, and a minor amounts of three other stable isotopic species in the sample) was measured in the 700–1080 cm^{-1} region with a Bruker IFS 125HR Fourier transform interferometer (Nizhny Novgorod, Russia) and analyzed. 1922 transitions with $J_{\max} = 26$ were assigned to the ν_4 and ν_2 bands of $^{76}\text{GeH}_4$ (ν_2 is a symmetry forbidden absorption band, and its transitions appear in the spectrum only because of strong Coriolis interaction with the ν_4 band). Rotational, centrifugal distortion, tetrahedral splitting, and interaction parameters for the ground, (0100) and (0001) vibrational states were determined from the fit of experimental line positions. The obtained set of parameters reproduces the initial experimental data with an accuracy close to experimental uncertainties. The result of analogous analysis of the $^{74}\text{GeH}_4$ isotopologue (the number of assigned transitions is 788) is also presented.

Введение. До середины семидесятых годов в наших знаниях о составе атмосфер планет-гигантов Солнечной системы не было большого прогресса. Затем, благодаря быстрому развитию наземных инфракрасных технологий, было обнаружено большое количество молекулярных соединений с водородной связью в атмосферах планет Солнечной системы и среди всего этого многообразия была молекула GeH_4 [1]. Исследование колебательно-вращательных спектров молекулы германия и извлечение высокоточной спектроскопической информации о характеристиках спектральных линий из экспериментальных данных является актуальной задачей, которая решается в течение многих лет [2-6]. В настоящей работе проведено исследование спектра высокого разрешения молекулы $^M\text{GeH}_4$ ($M = 74, 76$) в диапазоне полос диады. А именно были проинтерпретированы полосы ν_4 и ν_2 . Использование изотопообогатенного образца позволило значительно снизить трудности при анализе спектра, связанные с необходимостью учета линий других изотопологов германия. Инфракрасный спектр GeH_4 был зарегистрирован и исследован в области 700-1080 cm^{-1} . Более 1900 переходов с $J^{\max} = 26$ были проанализированы в полосах ν_4 и ν_2 $^{76}\text{GeH}_4$ (ν_2 является запрещенной по симметрии полосой поглощения, и ее переходы проявляются в спектре

только из-за сильного кориолисова взаимодействия с полосой ν_4). Прделан, также, аналогичный анализ спектра изотополога $^{74}\text{GeH}_4$ (число проанализированных переходов - 788).

Экспериментальная часть. В настоящем исследовании использовался образец германа, содержащий $^{76}\text{GeH}_4$ (88,1 %), $^{74}\text{GeH}_4$ (11,5 %), $^{73}\text{GeH}_4$ (0,07 %), $^{72}\text{GeH}_4$ (0,17 %) и $^{70}\text{GeH}_4$ (0,12 %), в котором количество углеводородных, углекислых, ди- и тригермановых примесей в образце, обогащенном ^{76}Ge , составило менее 10^{-5} моль %, 10^{-4} моль %, 10^{-1} - 10^{-3} моль %, соответственно. Количество остальных примесей составляло менее 3×10^{-5} моль %. Спектры высокого разрешения GeH_4 были зарегистрированы при комнатной температуре в диапазоне волн 700 - 1080 см^{-1} на спектрометре Bruker IFS125HR (Институт химии высокочистых веществ, Нижний Новгород, Россия), оснащенном источником Globar, КВг-сплиттером и охлаждаемым жидким азотом ртутно-кадмиево-теллуридным детектором. Размер апертуры составлял $1,7\text{ мм}$. Разрешение из-за максимальной разницы оптических путей составляло $0,003\text{ см}^{-1}$, применялась функция аподизации Нортон-Бира (слабая). Оптическая ячейка спектрометра откачивалась механическим насосом до $0,02\text{ Торр}$ и оставалась при этом давлении в течение всего эксперимента. Экспериментальные спектры (см. рис. 1) были получены путем усреднения 1000 сканов. Эксперимент проводился при комнатной температуре с давлением образца $0,4\text{ Торр}$, оптическая длина поглощения составляла 20 см . Спектры были откалиброваны по 400 OCS пикам полос ν_1 и $2\nu_2$ (с центрами 860 см^{-1} и 1047 см^{-1} , соответственно) и калибровочным таблицам NIST [7], основанным на измерениях частоты гетеродина. После калибровки стандартное отклонение разницы между измеренными и табличными положениями пиков составило менее 10^{-4} см^{-1} .

Результаты. В результате был проделан анализ спектра высокого разрешения молекулы $^M\text{GeH}_4$ ($M=74,76$) в области диады, ν_2/ν_4 . Получено более 2700 переходов со значением $J^{\max} = 26$ для изотопологов $^{76}\text{GeH}_4$ и $^{74}\text{GeH}_4$. Анализ переходов проводился с использованием программы XTDS (Dijon). На основе полученной экспериментальной информации определен набор из 36 спектроскопических параметров, который воспроизводит положения 1922 линий $^{76}\text{GeH}_4$ с $d_{\text{rms}} = 1.81 \times 10^{-4}\text{ см}^{-1}$. Аналогично, определен набор из 11 спектроскопических параметров воспроизводящий 788 положений линий для $^{74}\text{GeH}_4$ с $d_{\text{rms}} = 2.05 \times 10^{-4}\text{ см}^{-1}$.

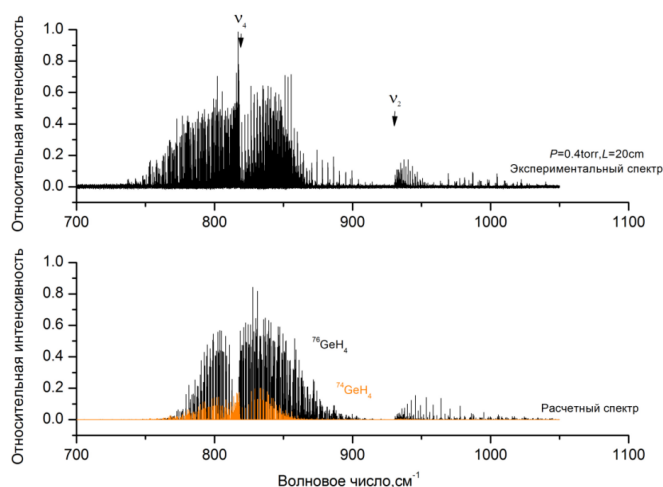


Рис. 1. Экспериментальный и расчетный спектры диады изотопологов $^{76}\text{GeH}_4$ и $^{74}\text{GeH}_4$

Заключение. Проанализировано более 2700 колебательно-вращательных переходов для диады изотопологов $^{76}\text{GeH}_4$ и $^{74}\text{GeH}_4$. Параметры вращательного, центробежного искажения, тетраэдрического расщепления и взаимодействия для (0100) и (0001) колебательных состояний были получены в результате решения обратной спектроскопической задачи. Полученный набор параметров воспроизводит исходные экспериментальные данные с точностью, близкой к экспериментальной погрешности. Полученные результаты будут направлены для пополнения спектроскопической базы данных HITRAN и помогут в уточнении поверхности потенциальной энергии молекулы GeH_4 .

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Atreya S.K. Atmospheres and Ionospheres of the Outer Planets and Their Satellites. – Springer-Verlag, Springer, 1986. – 224 p.
2. Zhu, Q.-S., Qian, H.-B., Thrush, B.A. Rotational analysis of the (2000) and (3000) bands and vibration-rotation interaction in germane local mode states // Chemical Physics Letters. – 1991. – Vol. 186(4-5). – P. 436-440.
3. Campargue, A., Vetterhoffer, J., Chenevier, M. Rotationally resolved overtone transitions of $^{70}\text{GeH}_4$ in the visible and near-infrared // Chemical Physics Letters. – 1992. – Vol. 192(4). – P. 353-356.
4. Ulenikov, O.N., Gromova, O.V., Bekhtereva, E.S., Raspopova, N.I., Sennikov, P.G., Koshelev, M.A., [et al] High resolution study of MGeH_4 ($\text{M}=^{76}, ^{74}$) in the dyad region // Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer. – 2014. – Vol. 144. – P. 11-26.
5. Boudon, V., Grigoryan, T., Philipot, F., Richard, C., Tchana, F.K., Manceron, L., Rizopoulos, A., Auwera, J.V., Encrenaz, T. Line positions and intensities for the ν_3 band of 5 isotopologues of germane for planetary applications // Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer. – 2018. – Vol. 205. – P. 174-183.
6. Ulenikov, O.N., Gromova, O.V., Bekhtereva, E.S., Raspopova N., Koshelev, M.A., Velmuzhova, I.A., Sennikov, P.G. First high-resolution comprehensive analysis of $^{72}\text{GeH}_4$ spectra in the Dyad and Pentad regions // Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer. – 2019. – Vol. 225. – P. 206-213.
7. Maki, A.G., Wells, J.S., Wavenumber calibration tables from heterodyne frequency measurements (version 1.3), Gaithersburg, MD: NIST. 1998, from <http://www.nist.gov/pml/data/wavenum/spectra.cfm>.