

Моделирование спектров столкновительно-индуцированного поглощения в дальней инфракрасной области методом классических траекторий

Финенко Артем Андреевич

Научные руководители: Петров С.В., Локштанов С.Е.

27 апреля 2019 г.

Столкновительно-индуцированное поглощение (СИП) в инфракрасной области имеет существенное значение для радиационного баланса планетных атмосфер. Моделирование столкновительно-индуцированных спектров имеет важное прикладное значение для уточнения существующих климатических моделей земной атмосферы и атмосфер экзопланет.

Полномерные квантово-механические расчеты спектров СИП оказываются вычислительно очень трудоемкими. Континуальная природа СИП открывает возможность теоретического моделирования с позиций классической механики. Подходы с применением классической механики можно подразделить на метод молекулярной динамики и метод классических траекторий. Последний представляется как наиболее простой метод с точки зрения вычислительной сложности. Кроме того, метод классических траекторий позволяет выделить вклады разных состояний молекулярных пар – свободных пар, связанных и метастабильных димеров – в суммарное поглощение, что позволяет в большей степени контролировать расчет и интерпретировать экспериментальные данные.

В данной работе предлагается формализм моделирования спектров СИП в области рототрансляционной полосы методом классических траекторий. В первой части работы рассмотрены теоретические основы взаимодействия излучения с молекулярными системами. Во второй части рассмотрено СИП в двухатомной системе, получено выражение для спектральной функции, позволяющее производить расчеты с полным учетом симметрии задачи. Построена методика расчета столкновительно-индуцированного спектра свободных и метастабильных состояний. В расчете используются аппроксимации *ab initio* поверхностей потенциальной энергии и индуцированного дипольного момента, построенных на квантово-химических данных высокого уровня. Эффективность траекторного расчета для двухатомных систем продемонстрирована на примере He–Ar. В третьей части работы рассматриваются молекулярные пары, состоящие из линейной молекулы и атома (на примере CO₂–Ar) и двух линейных молекул (на примере N₂–N₂). Для описания динамики столкновения используется подвижная система отсчета, позволяющая напрямую использовать аппроксимации квантово-химических поверхностей потенциальной энергии и индуцированного дипольного момента. В расчете используются точные классические гамильтонианы в подвижной системе отсчета, полученные методами компьютерной алгебры. Сравнение с квантовомеханическими данными для системы N₂–N₂ показало эффективность метода классических траекторий в задаче моделирования столкновительно-индуцированных спектров. Разработанный метод может быть обобщен на системы с большим количеством вращательных степеней свободы, реализация квантовомеханического расчета для которых не представляется возможной в настоящее время.