

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

Финенко Артем Андреевич

Лаборатория строения и квантовой механики молекул

Научные руководители: к.ф.-м.н., с.н.с. Петров С.В., м.н.с. Локштанов С.Е.

Столкновительно-индуцированное поглощение (СИП) в инфракрасной области имеет существенное значение для радиационного баланса некоторых планетных атмосфер. Спектры СИП применяются при уточнении существующих климатических моделей земной атмосферы и атмосфер экзопланет. Экспериментальные исследования спектров СИП проводились для набора систем при отдельных температурах, однако в приложениях востребованы данные о поглощении в широком диапазоне температуры и частот, в связи с чем возникает необходимость теоретического моделирования спектров СИП.

Квантово-механические расчеты спектров СИП с полным учетом анизотропии межмолекулярных взаимодействий доступны для ограниченного набора молекулярных систем, что вызвано их высокой вычислительной сложностью. Расчеты, применяющие классический формализм, позволяют моделировать континуальную составляющую спектрального профиля с использованием многократно меньших вычислительных ресурсов.

В данной работе развивается методика моделирования спектров СИП в области рототрансляционной полосы методом классических траекторий. В первой части работы рассмотрены теоретические основы взаимодействия излучения с молекулярными системами. Затем рассмотрена теория, используемая в литературе в расчетах спектров СИП методом классических траекторий. Во второй и третьей частях работы представлены основные элементы оригинальной методики траекторного расчета. Методика применяется, по мере усложнения, к двухатомной системе ($\text{He}-\text{Ar}$), системе, состоящей из атома и линейной молекулы ($\text{Ar}-\text{CO}_2$), и системе, состоящей из двух линейных молекул (N_2-N_2). Проведенные расчеты основываются на интегральном преобразовании, позволяющем получать спектр поглощения как среднее по полным траекториям рассеяния. Рассмотрение многоатомных молекулярных пар производится в подвижной системе осей, что позволяет напрямую использовать поверхности потенциальной энергии и индуцированного дипольного момента, полученные при аппроксимации квантово-химических данных высокого уровня. Классическая динамика столкновения рассматривается в гамильтоновом формализме с полным учетом анизотропии межмолекулярных взаимодействий. Ключевым элементом разработанной вычислительной процедуры, обеспечивающим масштабируемость методики при распространении на многоатомные системы, является расчет производных гамильтониана «на лету» с использованием лагранжиана и его производных, получение которых в значительной степени автоматизировано при помощи систем компьютерной алгебры.

Сравнение с экспериментальными данными и данными, полученными в результате квантово-механических и молекулярно-динамических расчетов, для систем N_2-N_2 и $\text{Ar}-\text{CO}_2$ показывает эффективность развиваемой траекторной методики. При помощи развиваемой методики могут быть рассчитаны спектры СИП систем с большим количеством вращательных степеней свободы, реализация квантовомеханических расчетов для которых не представляется возможной в настоящее время.