

СПЕКТРОСКОПИЯ АТМОСФЕРНЫХ ГАЗОВ

УДК 551 : 510; 551.521; 621.375

Ю.Н. Пономарев

ПОГЛОЩЕНИЕ ЭНЕРГИИ ЛАЗЕРНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ ЧАСТИЦАМИ АЭРОЗОЛЯ В АТМОСФЕРЕ РЕЗОНАНСНО-ПОГЛОЩАЮЩЕГО ГАЗА

Рассмотрена задача о передаче энергии от колебательно-возбужденных молекул частицам атмосферного аэрозоля.

Сделаны оценки отношения передаваемой от молекул энергии к энергии, поглощаемой собственно аэрозольной частицей. Обсуждаются результаты оценок и предварительных экспериментов, которые указывают на возможность существования такого обмена в реальных атмосферных условиях.

При прохождении лазерного излучения через аэрозольно-газовую атмосферу энергия, диссирируемая отдельной аэрозольной частицей, может зависеть от характера поглощения излучения газовой средой.

Если частота линии излучения резонансна частоте колебательновращательного перехода в молекулах газа, то при интенсивности излучения I , приблизительно равной I_s — интенсивности насыщения, в газе появляется большое число возбужденных молекул. В случае, когда релаксация колебательной энергии при столкновениях молекул между собой медленна, значительная доля энергии колебательного возбуждения может быть передана аэрозольной компоненте за счет гетерогенной релаксации возбужденных молекул на поверхности аэрозольных частиц.

С учетом такой передачи полная энергия, поглощенная аэрозольной частицей, может быть записана в виде:

$$\Delta E = \Delta E_a + \Delta E_{m.a}, \quad (1)$$

где ΔE_a — энергия излучения поглощенная в материале аэрозольной частицы, а $E_{m.a}$ — энергия, полученная аэрозольной частицей за счет передачи ей колебательного кванта от молекул, сталкивающихся с ней.

Влияние 2-го слагаемого будет наиболее заметно на начальных отрезках времени $\Delta t \leq \tau_{VT}$, где τ_{VT} — время колебательно-поступательной релаксации в газе. Рассмотрим более детально оба слагаемых в (1).

Согласно [1] для оценки первого можно воспользоваться выражением

$$\Delta E_a \approx I \cdot \Delta t \cdot \alpha \cdot V_a, \quad (2)$$

где I — интенсивность лазерного излучения; Δt — время светового воздействия; α — коэффициент объемного поглощения вещества аэрозольной частицы, а $V_a = \frac{3}{4} \pi a^3$ — объем аэрозольной частицы радиуса a . Выражение (2) достаточно хорошо описывает поглощение небольших однородных аэрозольных частиц.

Величину $\Delta E_{m.a}$ можно оценить по формуле

$$\Delta E_{m.a} = \xi h v_{\text{кол}} \cdot v_{\text{ст}} \cdot \Delta t, \quad (3)$$

где $v_{\text{ст}} = n_m^* v_m \sigma_a = n_m^* v_m \pi a^2$ — частота столкновений аэрозольной частицы с колебательно-возбужденными молекулами, плотность которых n_m^* , а скорость v_m ; $h v_{\text{кол}}$ — энергия колебательного кванта, а ξ — коэффициент аккомодации, определяемый как вероятность дезактивации колебательного кванта при столкновении возбужденной молекулы с аэрозольной частицей поперечного сечения ($\sigma_a = \pi a^2$).

Для отношения (3) к (2) получим выражение

$$\Delta E_{\text{m,a}}/\Delta E_a = \frac{3}{4} \cdot \xi \cdot \frac{h\nu_{\text{кол}} \cdot n_m^* \cdot v_m}{I \cdot \alpha} \cdot \frac{1}{a}. \quad (4)$$

Величина $\Delta E_{\text{m,a}}/\Delta E_a$ имеет четко выраженный резонансный характер, т.к. $n_m^* \approx n_m^0 \sigma(v) \cdot I \cdot \tau_n = \kappa(v) \cdot W_n$ (n_m^0 — плотность частиц поглощающего газа в отсутствие лазерного излучения; $\sigma(v)$, $\kappa(v)$ — сечение и коэффициент резонансного поглощения соответственно; τ_n , W_n — длительность и плотность энергии в импульсе). Также следует отметить, что величина отношения $\Delta E_{\text{m,a}}/\Delta E_a$ возрастает при уменьшении размеров аэрозольных частиц, увеличении энергии колебательного кванта и в том случае, когда аэрозольные частицы находятся в газе из легких молекул.

Рассмотрим случай прохождения излучения импульсного CO₂-лазера через слой приземной атмосферы. Для импульсного излучения с длиной волны $\lambda = 10,6$ мкм при $\tau_n \sim 10^{-6}$ с ($\tau_n < \tau_{VT} \sim 10^{-5}$ с · атм [2]) коэффициент поглощения углекислым газом в линии P20 полосы 10° 0—00°1 составляет $0,75 \cdot 10^{-6} \text{ см}^{-1}$ [3]. При плотности энергии в импульсе $\sim 1 \text{ Дж}/\text{см}^2$, $\xi \sim 1$, $a \sim 1 \text{ мкм}$ за промежуток времени $\Delta t \sim \tau_{VT} \sim 10^{-5}$ с аэрозольная частица получит от молекул газа энергию $\Delta E_{\text{m,a}} \sim 9 \cdot 10^{-15} \text{ Дж}$. Энергия, поглощенная в материале частицы при коэффициенте поглощения $10^{-2} \dots 10^{-3} \text{ см}^{-1}$, будет равна $\sim 4 \cdot (10^{-14} \dots 10^{-15}) \text{ Дж}$; соответственно $\Delta E_{\text{m,a}}/\Delta E_a \sim (0,2 \dots 2,0)$, и при уменьшении a быстро возрастает.

Аналогичная ситуация может наблюдаться при поглощении излучения 2-й гармоники CO₂-лазера в колебательно-вращательной полосе атмосферного водяного пара.

Для той же плотности энергии в импульсе $1 \text{ Дж}/\text{см}^2$ и длительности импульса $\sim 10^{-7}$ с (меньшей, чем время VT-релаксации колебания v₂ H₂O в смеси с воздухом) отношение $\Delta E_{\text{m,a}}/\Delta E_a$ для сравнительно прозрачных аэрозольных частиц ($\alpha \sim 10^{-3} \text{ см}^{-1}$, $a \sim 1 \text{ мкм}$) и концентрации возбужденных молекул H₂O $\sim 5 \cdot 10^{13} \text{ см}^{-3}$ (что соответствует поглощению в слабой линии $\kappa \sim 10^{-6} \text{ см}^{-1}$) будет равно $\sim 0,1$.

Если учесть, что эта энергия выделяется в поверхностном слое аэрозольной частицы за короткие $\sim 10^{-5} \dots 10^{-7}$ с промежутки времени, то вопрос сохранения оптических характеристик аэрозольных частиц (например, сечения рассеяния) становится проблематичным.

При изменении длины волны излучения в лидарах дифференциального поглощения и рассеяния, где одна из длин волн совпадает с линией поглощения исследуемого газа, а другая находится далеко от резонанса, а в качестве трассера используется аэрозоль, может возникать систематическая погрешность, связанная с обсуждавшейся выше дополнительной передачей энергии от возбужденных излучением молекул газа аэрозольным частицам.

В силу этих же причин при распространении в атмосфере интенсивного лазерного излучения, резонансного молекулярному переходу, выражение для пропускания атмосферного канала [4] с содержанием аэрозоля, которое традиционно записывается в виде $T = T_m T_a$ (T_m — пропускание молекулярной компоненты, а T_a — аэрозольной компоненты), вряд ли применимо.

Во всяком случае как в прямых, так и в обратных задачах оптики атмосферы энергетический обмен между молекулами и аэрозольными частицами должен быть оценен.

Влияние присутствия аэрозольных частиц на поглощение интенсивного резонансного излучения молекулярным газом, особенно с медленной VT-релаксацией, может быть заметным при регистрации эффекта насыщения поглощения.

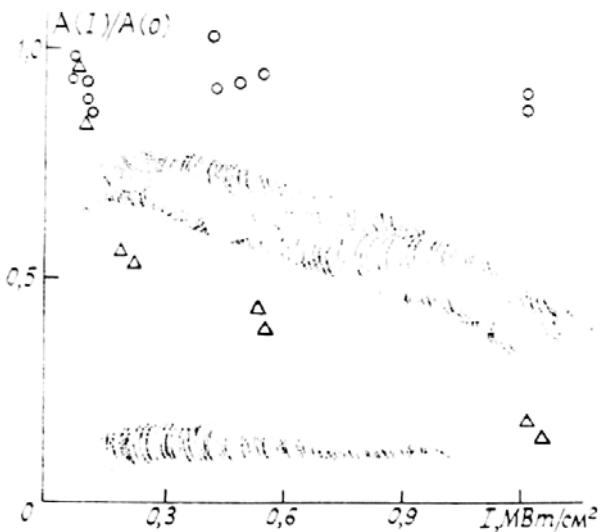


Рис. Зависимость амплитуды сигнала оптико-акустического детектора от интенсивности излучения CO₂-лазера (произведена нормировка на амплитуду сигнала в слабом поле, $I \rightarrow 0$): треугольники — воздух с добавкой CO₂ при общем давлении 760 мм рт. ст.; кружочки — то же с добавкой твердого аэрозоля (дыма, $N_a \geq 10^3 \text{ см}^{-3}$)

При определенной концентрации аэрозольных частиц $\gtrsim 10^3 \text{ см}^{-3}$ и размере частиц $\gtrsim (2\text{-}5) \text{ мкм}$ гетерогенная релаксация колебательно-возбужденных молекул на поверхности аэрозоля может стать более быстрым процессом, при VT -релаксация при столкновениях молекул между собой. Это увеличение скорости релаксации приведет к уменьшению насыщения, т. к. параметр насыщения колебательно-вращательного перехода $I_s \sim \frac{1}{2\sigma T_1}$, где T_1 — время релаксации заселенности.

На рисунке приведены результаты наблюдения эффекта насыщения в воздухе, обогащенном CO_2 , и исчезновения этого эффекта при добавке к воздуху твердого аэрозоля с концентрацией $\gtrsim 10^3 \text{ см}^{-3}$ (дым) [5]. Измерения выполнены оптико-акустическим способом с импульсным CO_2 -лазером; детали оптико-акустической регистрации насыщенного поглощения в газах описаны, например, в [2].

Эти предварительные результаты могут рассматриваться как косвенное подтверждение значимости энергетического обмена между возбужденными молекулами и аэрозольными частицами. Для количественных оценок требуется постановка прямых экспериментов по наблюдению изменения оптических характеристик мелкодисперсионного аэрозоля в атмосфере поглощающего и непоглощающего излучения газа.

Автор благодарит Б.Г. Агеева и А.М. Кабанова за предоставленный экспериментальный график и обсуждение вопроса.

1. Зуев В. Е., Кабанов М. В. Оптика атмосферного аэрозоля. Л.: Гидрометеоиздат, 1987. 254 с.
2. Агеев Б. Г., Пономарев Ю. Н., Тихомиров Б. А. Нелинейная оптико-акустическая спектроскопия атмосферных газов. Новосибирск: Наука, 1987. 128 с.
3. Арефьев В. Н. // Квантовая электроника. 1985. Т. 12. № 3. С. 631—634.
4. Кабанов М. В., Панченко М. В., Пхалагов Ю. А. и др. Оптические свойства прибрежных атмосферных дымок. Новосибирск: Наука, 1988. 201 с.
5. Агеев Б. Г., Антипов А. Б., Кабанов А. М. и др. // Всесоюзн. симпоз. по фотохимическим процессам в земной атмосфере. (Тезисы докл.). М.: Ин-т хим. физики АН СССР, 1987. С. 111.

Институт оптики атмосферы СО АН СССР,
Томск

Поступила в редакцию
11 декабря 1989 г.

Yu. N. Ponomarev. Absorption of the Laser Radiation Energy by Aerosol Particles Placed into the Resonantly Absorbing' Gas.

The problem on energy exchange between the vibrationally excited molecules and particles of the atmospheric aerosol is considered. The estimations of the ratio of the energy transferred from the molecules to the energy absorbed by the aerosol particles directly have been made. The estimations and the results of preliminary experiments that are indicative of this type of the energy exchange feasibility under the atmospheric conditions are discussed.