

## СПЕКТРОСКОПИЯ ОКРУЖАЮЩЕЙ СРЕДЫ

УДК 537.563.5, 535-15, 535.341

# Поглощение лазерного излучения в атмосфере Титана

О.П. Ромашенко, А.С. Корнев, Б.А. Зон\*

Воронежский государственный университет  
394018, г. Воронеж, пл. Университетская, 1

Поступила в редакцию 11.03.2020 г.

Получены общие формулы для коэффициента затухания лазерного излучения в атмосфере, учитывающие нелинейные эффекты и существенно отличающиеся от результатов, следующих из линейной оптики. Конкретные вычисления проведены для атмосферы Титана. Показано, что учет реальной зависимости концентрации атмосферных газов от высоты приводит к заметному отличию высотной зависимости коэффициента затухания от результатов, получаемых с помощью барометрической формулы. Также приведены оценки коэффициента затухания в атмосфере Тритона.

*Ключевые слова:* атмосфера Титана, лазерное излучение, коэффициент затухания, туннельная ионизация; atmosphere of Titan, laser radiation, extinction coefficient, tunnel ionization.

### Введение

Активное изучение планет Солнечной системы и их спутников в последние годы позволило получить много ценной информации. В частности, в [1] изложены результаты первого послойного исследования атмосферы Титана, проведенного радиозондом межпланетного аппарата «Вояджер-1» с минимального расстояния 3900 км. Результаты исследования атмосферы и климата Титана изложены также в [2]. ИК-поглощение органическими молекулами в стратосфере Титана изучено с использованием аппарата Кассини [3]. В стадии разработки находится проект Dragonfly [4], который предполагает исследование атмосферы Титана с помощью специального вертолета и входит в программу НАСА «Новые рубежи» (NASA, New Frontiers). Таким образом, можно констатировать, что арсенал средств экспериментального изучения планет Солнечной системы и их спутников приближается к арсеналу экспериментальных средств исследования Земли.

Для зондирования атмосферы Земли достаточно успешно используется сильное лазерное излучение (см., например, [5]). Цель настоящей работы – исследование поглощения сильного лазерного излучения в атмосфере Титана на различных высотах от его поверхности.

Везде, где не оговорено особо, используется атомная система единиц ( $\hbar = m_e = e = 1$ ).

### 1. Основные формулы

Поскольку атмосфера Титана состоит из азота, обычное линейное поглощение, обусловленное однофотонной ионизацией молекул, происходит только для УФ-излучения. Кроме того, ослабление излуче-

ния (экстинкция) возможно и из-за молекулярного рассеяния. Однако если лазерное излучение (ЛИ) достаточно сильное, возможно поглощение более длинноволнового излучения вследствие туннельной ионизации молекул азота. Соответствующие результаты, учитывающие также случаи нахождения молекул в возбужденных колебательных состояниях и отрыва электрона из двух верхних оболочек, энергии которых для молекулы  $N_2$  различаются незначительно, получены в [6, 7].

Для реализации туннельного режима ионизации атома или молекулы монохроматическим ЛИ с частотой  $\omega$  необходимо выполнение следующих условий [8]. Во-первых, наличие потенциального барьера и соответствующее ограничение на амплитуду ЛИ:

$$F \lesssim I_p^2/4,$$

где  $I_p$  – потенциал ионизации атома (молекулы). Во-вторых, соотношение между частотой и потенциалом ионизации  $\omega \ll I_D$ , при выполнении которого в [8] были получены квазиклассические формулы для вероятности туннельной ионизации методом перевала. В-третьих, параметры ЛИ и атома (молекулы) должны подчиняться условию Келдыша [8]:

$$\frac{\omega}{F} \sqrt{2I_p} \leq 1.$$

Перейдем к вычислению коэффициента поглощения. Диэлектрическая проницаемость разреженного газа с хаотически распределенными молекулами определяется хорошо известной формулой

$$\epsilon(\omega) = 1 + 4\pi N \bar{\alpha}(\omega), \quad (1)$$

где  $N$  – концентрация молекул;  $\bar{\alpha}(\omega)$  – усредненная по ориентациям молекулы поляризуемость. Однако для сильного ЛИ компоненты тензора поляризуемости  $\hat{\alpha}(\omega)$  начинают зависеть от интенсивности

\* Олеся Павловна Ромашенко (cornelia\_1998@mail.ru); Алексей Станиславович Корнев (a-kornev@yandex.ru); Борис Абрамович Зон (zon@niif.vsu.ru).

излучения. В результате возникает анизотропия диэлектрической проницаемости.

Ограничимся рассмотрением линейно-поляризованного ЛИ. В этом случае анизотропия определяется направлением электрического вектора  $\mathbf{F}$ , и необходимо соответствующим образом изменить формулу (1). С этой целью рассмотрим сдвиг энергии ориентированной молекулы в переменном поле, усредненный по периоду внешнего поля и не ограниченный квадратичным эффектом Штарка [9–12]:

$$\Delta E = -\frac{1}{4} \alpha'(\omega, \mathbf{n}) F^2 - \frac{i}{2} \Gamma(\mathbf{F}). \quad (2)$$

Здесь  $\Gamma(\mathbf{F})$  – скорость туннельной ионизации ориентированной молекулы;  $\alpha'(\omega, \mathbf{n}) = \mathbf{n}^T \hat{\alpha}(\omega) \mathbf{n}$ ;  $\mathbf{F} = F \mathbf{n}$  – амплитуда электрического поля линейно-поляризованного ЛИ,  $\mathbf{n}$  – направление вектора  $\mathbf{F}$ . Усреднение в (2) по периоду внешнего поля допустимо при условии  $\Gamma(\mathbf{F}) \ll \omega$ , которое в ближнем ИК-диапазоне в туннельном режиме ионизации выполняется. Этот факт следует из приводимых далее вычислений, согласно которым величина  $\Gamma(\mathbf{F})$  изменяется в пределах  $(2,05 \cdot 10^{-8} \div 8,60 \cdot 10^{-3})$  а.е., тогда как использованная частота излучения  $\omega = 5,7 \cdot 10^{-2}$  а.е.

После перехода к комплексной поляризуемости сдвиг энергии приобретает вид

$$\Delta E = -\frac{1}{4} [\alpha'(\omega, \mathbf{n}) + i\alpha''(\omega, \mathbf{F})] F^2,$$

где

$$\alpha''(\omega, \mathbf{F}) = 2\Gamma(\mathbf{F})/F^2. \quad (3)$$

Мнимый сдвиг энергии в этой формуле учитывает вклад слагаемых высших порядков  $F$ . Поскольку в туннельном режиме  $\Gamma(\mathbf{F}) \sim \exp[-2F_a/3F]$ , где  $F_a =$

$$= (2I_p)^{3/2} - \text{внутримолекулярное поле, то } \frac{\lim_{F \rightarrow 0} \Gamma(\mathbf{F})}{F^2} = 0.$$

Комплексный показатель преломления разреженного газа хорошо известен:

$$\tilde{n}(\omega, \mathbf{F}) = n(\omega) + i\kappa(\omega, \mathbf{F}) \approx [1 + i\varepsilon''(\omega, \mathbf{F})]^{1/2}. \quad (4)$$

Здесь  $n(\omega, \mathbf{F}) \approx 1$  и  $\kappa(\omega, \mathbf{F})$  – его вещественная и мнимая части;  $\varepsilon''(\omega, \mathbf{F})$  – мнимая часть диэлектрической проницаемости. В соответствии с (1) и (3)

$$\varepsilon''(\omega, \mathbf{F}) = 4\pi N \alpha''(\omega, \mathbf{F}) = 8\pi N \Gamma(\mathbf{F})/F^2. \quad (5)$$

Для рассматриваемой далее атмосферы Титана  $\varepsilon''(\omega, \mathbf{F}) \ll 1$ , и мнимая часть показателя преломления (4) принимает вид  $\kappa(\omega, \mathbf{F}) \approx \frac{1}{2} \varepsilon''(\omega, \mathbf{F})$ . Из-за поглощения волновое число плоской монохроматической волны будет комплексным:

$$k(\omega, \mathbf{F}) = \tilde{n}(\omega, \mathbf{F}) \frac{\omega}{c} = k'(\omega) + ik''(\omega, \mathbf{F}). \quad (6)$$

Затухание интенсивности на расстоянии  $z$  происходит по закону Бугера–Ламберта–Бера:

$$I(\omega, \mathbf{F}; z) = I_0 e^{-q_\lambda(\mathbf{F})z}.$$

Коэффициент затухания  $q_\lambda(\mathbf{F})$  вычисляется из формул (3)–(6):

$$q_\lambda(\mathbf{F}) = 2k''(\omega, \mathbf{F}) \approx (4\pi)^2 N \frac{\Gamma(\mathbf{F})}{\lambda F^2},$$

где  $\lambda$  – длина волны излучения. Отметим, что в туннельном режиме ионизации  $\Gamma(\mathbf{F})$  не зависит от  $\lambda$ . После усреднения по направлениям ориентации молекул, задаваемым углами  $\Omega_F$  относительно электрического вектора  $\mathbf{F}$ , получаем

$$\bar{q}_\lambda(F) = \frac{1}{4\pi} \int q_\lambda(\mathbf{F}) d\Omega_F \approx (4\pi)^2 N \frac{\bar{\Gamma}(F)}{\lambda F^2} \quad (7)$$

( $\bar{\Gamma}(F)$  – ширина уровня, усредненная по направлениям ориентации).

Формула (7) – основная в настоящей работе.

Что касается рассеяния излучения на флюктуациях плотности, то его вклад в экстинкцию определяется величиной [13]:

$$q_{\text{scatt}} = \frac{128\pi^5}{3\lambda^4} [N \bar{\alpha}'(\omega)]^2 \frac{k_B T}{p}, \quad (8)$$

где  $k_B$  – постоянная Больцмана;  $T$  – температура атмосферы;  $p$  – атмосферное давление;  $\bar{\alpha}'(\omega) = \frac{1}{3} S p \hat{\alpha}'(\omega)$  – изотропная компонента тензора поляризуемости молекулы.

## 2. Результаты вычислений и их обсуждение

Вычислим коэффициент затухания (7) в азотной атмосфере как функцию интенсивности монохроматического линейно-поляризованного ЛИ и высоты лазерного источника относительно поверхности небесного тела. Рассмотрим атмосферу Титана – единственного спутника планет Солнечной системы, обладающего значительной атмосферой. Атмосфера Титана (АТ), по данным [1], существенно отличается от земной. Во-первых, масса АТ в ~10 раз превышает массу атмосферы Земли, причем радиус Титана в 2,5 раза меньше радиуса Земли. Во-вторых, содержание азота в АТ превышает 95%. В-третьих, температура на поверхности Титана – 94 К, причем имеют место высотные инверсии температуры. В-четвертых, атмосферное давление на уровне поверхности – 1,5 атм. В таких условиях концентрация молекул  $N_2$  достигает  $1,2 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$ , что превышает концентрацию молекул атмосферных газов у поверхности Земли более чем в 4 раза.

Величина  $\bar{\Gamma}(F)$  вычислялась в рамках теории, развитой авторами [6, 7]. От существующих теорий туннельной ионизации молекул [14–16] она отличается

ется полностью квантовым, а не квазиклассическим учетом колебательной степени свободы. Наша теория также учитывает так называемые антистоксовые каналы ионизации с возбуждением колебаний иона  $N_2^+$  и зависимость колебательных параметров  $N_2$  и  $N_2^+$  от интенсивности ЛИ [17]. Параметры молекулы и иона брались из справочника [18]. Волновая функция туннелирующего электрона вычислялась в программе x2DHF [19], для нахождения поляризумостей и электронных интегралов перекрытия использовался квантово-химический пакет GAUSSIAN. Предполагалось, что молекулы состоят из единственного изотопа  $^{14}\text{N}$ .

Молекула  $N_2$  в основном электронном состоянии  $X^1\Sigma_g^-$  имеет две внешние орбитали –  $3\sigma_g$  и  $1\pi_u$ , причем потенциал ионизации молекулы из  $3\sigma_g$ -орбитали равен 15,58 эВ, а из  $1\pi_u$ -орбитали – 16,70 эВ, т.е. отличается на 7%. Однако различия их пространственной симметрии приводят к тому, что вклад  $1\pi_u$ -орбитали оказывается ~1% и в дальнейшем не учитывается.

Зависимость коэффициента затухания от высоты над поверхностью спутника  $h$  входит в формулу (7) через концентрацию  $N$ . Последняя табулирована в [1], причем значения, измеренные космическим аппаратом на подходе к Титану ( $N_{\text{ingress}}$ ), могут немного отличаться от полученных на этапе удаления космического аппарата ( $N_{\text{egress}}$ ). В настоящей работе исследован интервал высот до 60 км, поскольку выше атмосфера заполнена смесью газа и углеводородных конденсатов. В этом интервале разница между  $N_{\text{ingress}}$  и  $N_{\text{egress}}$  составляет ~0,1%. Поэтому в формуле (7) использовалось усредненное значение  $N = (N_{\text{egress}} - N_{\text{ingress}})/2$ .

На рис. 1 приведена зависимость коэффициента затухания от интенсивности монохроматического линейно-поляризованного ЛИ с  $\lambda = 800$  нм (ближний ИК-диапазон), вычисленного по формуле (7), при фиксированных значениях высоты (0, 30 и 60 км) над поверхностью Титана. Выбранная длина волны соответствует излучению наиболее широко используемого в настоящее время титан-сапфирового лазера. Значения интенсивности, при которых ионизация протекает в туннельном режиме, брались из интервала  $(0,44 \div 2,50) \cdot 10^{14} \text{ Вт}/\text{см}^2$ . Как и следовало ожидать, коэффициент затухания возрастает с интенсивностью и снижается с высотой за счет разрежения АТ. Неодинаковые расстояния между кривыми в логарифмическом масштабе указывают на отклонения табулированной зависимости  $N(h)$  от предсказаний барометрической формулы

$$N_{\text{bar}}(h) = N_0 e^{-h/h_0}, \quad (9)$$

где  $N_0$  – концентрация молекул азота вблизи поверхности;  $h_0 = k_B T / mg$ ,  $m$  – масса молекулы,  $g$  – ускорение свободного падения. У поверхности Титана ( $g = 1,352 \text{ м}/\text{с}^2$ )  $h_0 = 20,6 \text{ км}$ .

На рис. 2 представлена зависимость линейного коэффициента затухания от высоты над поверхностью Титана при фиксированных значениях интенсивности  $(0,5; 1,0; 1,5; 2,0) \cdot 10^{14} \text{ Вт}/\text{см}^2$ . Здесь тоже

прослеживаются тенденции, отмеченные на рис. 1. Отчетливо видно отклонение от результатов, полученных с помощью барометрической формулы (9), которое начинается на  $h = 30 \text{ км}$  и превышает 60% по мере приближения к  $h = 60 \text{ км}$ . Причина этого – существенные перепады и инверсии температуры с ростом высоты [1].

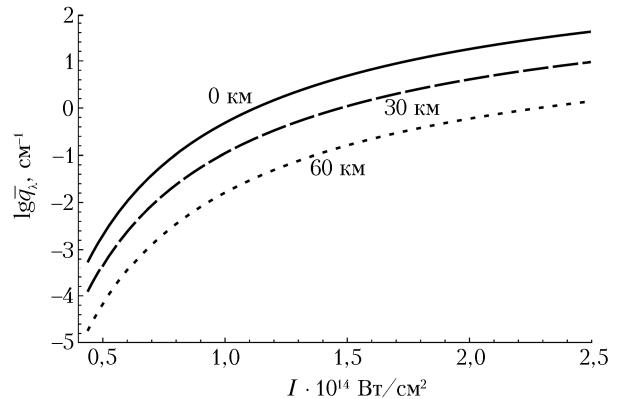


Рис. 1. Коэффициент затухания лазерного излучения с  $\lambda = 800$  нм, усредненный по направлениям случайной ориентации молекул  $N_2$  (в основном электронном состоянии  $X^1\Sigma_g^-$ ), в атмосфере Титана как функция интенсивности на заданных высотах

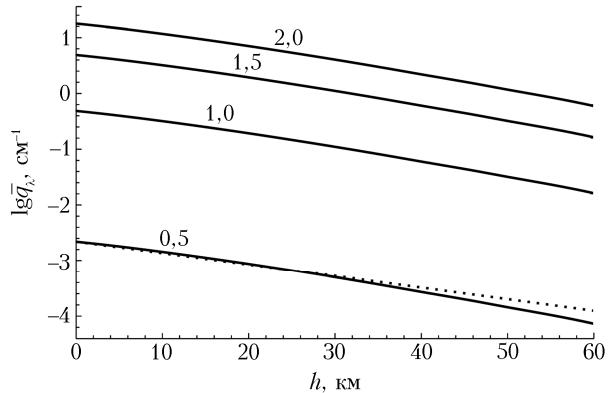


Рис. 2. Коэффициент затухания лазерного излучения с  $\lambda = 800$  нм, усредненный по направлениям случайной ориентации молекул  $N_2$ , в атмосфере Титана как функция высоты при заданных значениях интенсивности (цифры у кривых соответствуют  $I \cdot 10^{14} \text{ Вт}/\text{см}^2$ ); пунктирная линия – результат использования барометрической формулы (8) для вычисления концентрации  $N$  в формуле (7) при  $I = 5 \cdot 10^{13} \text{ Вт}/\text{см}^2$ ; для других интенсивностей эти отклонения в логарифмическом масштабе получаются параллельным переносом и поэтому не показаны

Проведем сравнение приведенных численных значений коэффициента затухания вследствие ионизационных потерь  $\bar{q}_\lambda(F)$  с коэффициентом затухания излучения вследствие молекулярного рассеяния  $q_{\text{scatt}}$ . Последний рассчитывался с использованием формулы (8) и данных [1]. Значение статической изотропной поляризуемости азота  $\bar{\alpha}' = 12,2 a_0^3$  ( $a_0 = 0,529 \text{ \AA}$  – боровский радиус) было получено в [6]. В ближнем ИК-диапазоне вдали от резонансов оно

практически не отличается от динамического значения. Результаты расчета  $q_{\text{scatt}}$  приведены в таблице.

#### Коэффициенты затухания вследствие молекулярного рассеяния света в атмосфере Титана

$h$ , км	$q_{\text{scatt}}$ , см $^{-1}$	$\lg q_{\text{scatt}}$ , см $^{-1}$
0	$1,28 \cdot 10^{-7}$	-6,9
30	$2,84 \cdot 10^{-8}$	-7,5
60	$7,29 \cdot 10^{-10}$	-9,1

В соответствии с формулой (8) коэффициент  $q_{\text{scatt}}$  наиболее чувствителен к длине волны ( $\sim \lambda^{-4}$ ). Поэтому  $q_{\text{scatt}}$  оказывается столь малым по сравнению с  $\bar{q}_\lambda(F)$  для всех значений интенсивности, представленных на рис. 1. Температурная инверсия и снижение давления не могут преодолеть уменьшение  $q_{\text{scatt}}$  с высотой, обусловленное зависимостью от  $\sim N^2$ .

Таким образом, мы видим, что для достаточно сильного излучения ионизационные потери существенно превышают потери, связанные с молекулярным рассеянием. Иными словами, результаты, следующие из линейной оптики, в этом случае оказываются существенно меньше нелинейно-оптических эффектов, определяющих туннельную ионизацию.

Другим спутником планет Солнечной системы с азотной атмосферой является Тритон. Однако температура на его поверхности – 38 К, а давление –  $(4 \div 6,4) \cdot 10^{-5}$  атм [20]. Поэтому при одних и тех же значениях интенсивности коэффициент затухания в приповерхностном слое атмосферы Тритона будет в  $\sim 10^5$  раз меньше, чем в атмосфере Титана.

#### Заключение

Полученные результаты показывают, что коэффициент затухания сильного ЛИ существенно отличается от коэффициента затухания, следующего из классической оптики. Следует отметить также, что туннельная ионизация атмосферных газов является первой стадией развития в атмосфере процесса филаментации [21–25], который представляет определенный интерес для исследователей. Что касается конкретного небесного тела, то реальное распределение концентрации газов в его атмосфере также значительно оказывается на коэффициенте затухания.

Вычисление мнимой части динамических поляризумостей (величин  $\bar{\Gamma}(F)$ ) выполнено при финансовой поддержке РФФИ и ЧНФ (проект № 19-52-26006). Квантово-химические расчеты выполнены при финансовой поддержке РНФ (грант № 19-12-00095) с использованием высокопроизводительного компьютерного кластера Воронежского государственного университета.

1. Lindal G.F., Wood G.E., Hotz H.B., Sweetnam D.N., Eshleman V.R., Tyler G.L. The atmosphere of Titan: An analysis of the Voyager 1 radio occultation measurements // Icarus. 1983. V. 53, N 2. P. 348–363.

2. Hörl S.M. Titan's atmosphere and climate // J. Geophys. Res. Planets. 2017. V. 122, N 3. P. 432–482.
3. Cours T., Cordier D., Seignovert B., Maltagliati L., Biennier L. The 3.4 μm absorption in Titan's stratosphere: Contribution of ethane, propane, butane and complex hydrogenated organics // Icarus. 2020. V. 339. P. 113571.
4. Eyes on Titan: Dragonfly Team Shapes Science Instrument Payload [Electronic resource]. URL: <https://dragonfly.jhuapl.edu> (last access: 6.03.2020).
5. Babilotte P. Two color pump-probe dichroism and birefringence measurements in atmospheric molecules // Atmos. Ocean. Opt. 2018. V. 31, N 4. P. 346–357.
6. Kornev A.S., Zon B.A. Tunneling ionization of vibrationally excited nitrogen molecules // Phys. Rev. A. 2015. V. 92, N 3. P. 033420.
7. Kopytin I.V., Kornev A.S., Zon B.A. Tunnel ionization of diatomic atmospheric gases ( $N_2$ ,  $O_2$ ) by laser radiation // Laser Phys. 2019. V. 29, N 9. P. 095301.
8. Келдыши Л.В. Ионизация в поле сильной электромагнитной волны // ЖЭТФ. 1964. Т. 47, вып. 5. С. 1945–1957.
9. Демков Ю.Н., Друкарев Г.Ф. Распад и поляризумость отрицательного иона в электрическом поле // ЖЭТФ. 1964. Т. 47, вып. 3. С. 918–924.
10. Зельдович Я.Б., Манаков Н.Л., Рапопорт Л.П. Квазиэнергетические системы, подвергающиеся периодическому внешнему воздействию // Успехи физ. наук. 1975. Т. 117, № 11. С. 563–565.
11. Манаков Н.Л., Рапопорт Л.П. Частица с малой энергией связи в циркулярно поляризованном поле // ЖЭТФ. 1975. Т. 69, вып. 3. С. 842–852.
12. Манаков Н.Л., Файнштейн А.Г. Распад связанного уровня в монохроматическом поле // ЖЭТФ. 1980. Т. 79, вып. 3. С. 751–762.
13. Фабелинский И.Л. Молекулярное рассеяние света. М.: Наука, 1965. 512 с.
14. Tong X.M., Zhao Z.X., Lin C.D. Theory of molecular tunneling ionization // Phys. Rev. A. 2002. V. 66, N 3. P. 033402.
15. Madsen L.B., Tolstikhin O.I., Morishita T. Application of the weak-field asymptotic theory to the analysis of tunneling ionization of linear molecules // Phys. Rev. A. 2012. V. 85, N 5. P. 053404.
16. Tolstikhin O.I., Wörner H.J., Morishita T. Effect of nuclear motion on tunneling ionization rates of molecules // Phys. Rev. A. 2013. V. 87, N 4. P. 041401(R).
17. Zon B.A. Born–Oppenheimer approximation for molecules in a strong light field // Chem. Phys. Lett. 1996. V. 262. P. 744–746.
18. Радциг А.А., Смирнов Б.М. Справочник по атомной и молекулярной физике. М.: Атомиздат, 1980. 240 с.
19. Kobus J. A finite difference Hartree–Fock program for atoms and diatomic molecules // Comp. Phys. Commun. 2013. V. 184, N 3. P. 799–811.
20. Encyclopedia of the Solar System (2nd ed.) / McFadden L.-A., Weissman P.R., Johnson T.V. (eds.). Amsterdam, Boston: Academic Press, 2007. 992 p.
21. Théberge F., Aközbek N., Liu W., Becker A., Chin S.L. Tunable ultrashort laser pulses generated through filamentation in gases // Phys. Rev. Lett. 2006. V. 97. P. 023904.
22. Чекалин С.В., Кандидов В.П. От самофокусировки световых пучков – к филаментации лазерных импульсов // Успехи физ. наук. 2013. Т. 183. № 2. С. 133–152.
23. Steinmeyer G., Brée C. Extending filamentation // Nat. Photon. 2014. V. 8. P. 271–273.

24. Sheller M., Mills M.S., Miri M.-A., Cheng W., Moloney J.V., Kolesik M., Polynkin P., Christodoulides D.N. Externally refuelled optical filaments // Nat. Photon. 2014. V. 8. P. 297–301.
25. Vaiciaitis V., Butkus R., Balachnaiet O., Morgan U., Babuskin I. Diffraction-enhanced femtosecond white-light filaments in air // Appl. Phys. B. 2018. V. 124. P. 221.

**O.P. Romashenko, A.S. Kornev, B.A. Zon. Laser absorption in the atmosphere of Titan.**

We derive general formulas for the extinction coefficient (in the Beer–Lambert–Bouguer law) of laser radiation in the atmosphere taking into account nonlinear effects and significantly differing from the results of linear optics. We perform specific calculations for the atmosphere of Titan. We demonstrate that taking into account the close-to-real dependence of atmospheric gas concentration on altitude leads to a noticeable difference in the altitude dependence of the extinction coefficient from the results obtained using the barometric formula. We also give estimates of the extinction coefficient in the atmosphere of Triton.