

А.Н. Стародумов, А.В. Шипулин

НЕЛИНЕЙНЫЕ ИЗМЕНЕНИЯ ПОКАЗАТЕЛЯ ПРЕЛОМЛЕНИЯ ВОЗДУХА ПРИ ФОТОДИССОЦИАЦИИ ОЗОНА И ИХ ВЛИЯНИЕ НА УГЛОВОЙ СПЕКТР ИЗЛУЧЕНИЯ

Исследовано влияние изменения химического состава среды и тепловыделения при фотодиссоциации озона на реальную часть показателя преломления. Приведены результаты численных экспериментов по расчету искажений профиля пучка. Показана существенная роль концентрационной и тепловой нелинейностей в изменении углового спектра излучения при прохождении озонного слоя.

Взаимодействие оптического излучения с атмосферным озоном рассматривалось ранее лишь с точки зрения ослабления излучения озонным слоем. Большое число теоретических и экспериментальных работ [1–3] посвящено изучению спектров поглощения и продуктов диссоциации O_3 . Менее исследованными оказались вопросы распространения излучения УФ и видимого диапазона с учетом самовоздействия за счет фотораспада молекул O_3 . Теория распространения волн фотодиссоциации озона (волн самопросветления стратосферы) под действием мощных УФ импульсов подробно описана в [4, 5], а процессы влияния распада озона на изменение концентраций водородо-кислородно-азотных компонентов стратосферы — в [6]. Почти не исследовалось изменение углового спектра излучения, связанное с нелинейной рефракцией и процессами вынужденного температурного и концентрационного рассеяния. В данной статье впервые анализируется влияние изменения химического состава среды и тепловыделения при диссоциации O_3 на показатель преломления и, как следствие, возникновение нелинейной рефракции пучка.

Рассмотрим основные процессы, происходящие при воздействии излучения ближнего УФ и видимого диапазонов на атмосферный озон. Под действием излучения с энергией кванта $h\nu > 1,09$ эВ происходит фотодиссоциация озона на молекулярный и атомарный кислород:



Квантовый выход реакции (1) равен единице при $\lambda = 300$ нм, уменьшается до $\phi = 0,4$ при $\lambda = 308$ нм и практически равен нулю при $\lambda > 310$. Атомарный кислород в возбужденном состоянии (реакция (1)) достаточно быстро дезактивируется за счет реакций



Характерное время дезактивации $\tau \approx 10^{-7} \div 10^{-9}$ с [1].

Увеличение концентрации атомарного кислорода при диссоциации озона в канале лазерного пучка изменит динамику концентраций атмосферных газов, таких как OH , HO_2 и др. [1]. Однако эти процессы для рассматриваемых импульсов $t_{\text{и}} \leq 10^{-5}$ с не оказывают влияние на распространение излучения из-за малых концентраций реагирующих компонентов либо из-за малых скоростей реакций. Образование озона происходит лишь при тройных столкновениях



где под M подразумевается молекула озона или кислорода, принимающая при столкновении кинетическую энергию, эквивалентную 1,09 эВ. Константа реакции рекомбинации (4)

$$\kappa_1 = 8,2 \cdot 10^{-35} \exp\left(\frac{890}{KT}\right) \left[\frac{\text{см}^6}{\text{с}}\right].$$

Изменение концентраций O_3 , O_2 , $O(^1D)$, $O(^3P)$ в процессе фотохимических реакций описывается системой уравнений.

$$\frac{d[O_3]}{dt} = \kappa_1 [O_2] \cdot [M] \cdot [O] - \sigma(\lambda) \cdot \frac{I}{h\nu} [O_3]; \quad (5a)$$

$$\frac{d[O_2]}{dt} = -\kappa_1 \cdot [O_2] \cdot [M] \cdot [O] + \sigma(\lambda) \cdot \frac{I}{h\nu} \cdot [O_3]; \quad (56)$$

$$\frac{d[O(^1D)]}{dt} = -\kappa_2 \cdot [M] \cdot [O(^1D)] + \sigma(\lambda) \cdot \varphi(\lambda) \cdot \frac{I}{h\nu} \cdot [O_3]; \quad (56)$$

$$\frac{d[O(^3P)]}{dt} = -\kappa_1 \cdot [O_2] \cdot [M] \cdot [O(^3P)] + \kappa_2 \cdot [M] \cdot [O(^1D)] + \sigma(\lambda) \cdot \frac{I}{h\nu} \cdot [O_3] \cdot (1 - \varphi), \quad (52)$$

где $\kappa_2 = 10^{-10} \frac{\text{см}^3}{\text{с}}$ для $M = O_2$ и $\kappa_2 = 2,2 \cdot 10^{-11} \frac{\text{см}^3}{\text{с}}$ для $M = N_2$; I — интенсивность излучения [$\text{Вт}/\text{см}^2$]; σ — сечение процесса поглощения излучения молекулами O_3 .

Так как $[O_2(t=0)] \gg [O_3(t=0)]$, $[O(t=0)]$, то в дальнейшем концентрация O_2 считается постоянной. Незначительные изменения молекулярного кислорода $\left(\frac{\Delta[O_2]}{[O_2(t=0)]} \sim 10^{-6}\right)$ будут учтены при анализе концентрационных эффектов с помощью соотношения $\Delta[O_2] = -\Delta[O_3]$.

Рассматривается распространение излучения на длине волны $\lambda = 308$ нм. В этом случае пренебрежением изменением концентрации $O(^1D)$ можно для импульсов с длительностью $t_n \approx 10^{-7}$ с. Тогда тепловыделение в канале пучка определяется экзотермической реакцией (1). Примем, что при диссоциации одной молекулы O_3 в тепло мгновенно ($v_{\text{ст}}^{-1} \sim 10^{-9} \div 10^{-8}$ с, $v_{\text{ст}}$ — частота столкновений) переходит энергия $h\nu - E_d$, а при рекомбинации забирается энергия E_d . Для удельной мощности тепловыделения $\frac{\partial Q}{\partial t}$ получим соотношение

$$\frac{\partial Q}{\partial t} = (h\nu - E_d) \frac{\sigma I}{h\nu} [O_3] - E_d \kappa_1 [O_2] \cdot [M] [O].$$

Нагрев воздуха приводит к изменению плотности газа и, соответственно, к изменению показателя преломления δn_r . Второй механизм нелинейного изменения показателя преломления связан с различными поляризуемостями молекул озона и продуктов его диссоциации. Поляризуемость молекулы озона α_{O_3} оказывается выше суммарной поляризуемости молекулярного α_{O_2} и атомарного α_O кислорода. А так как изменение концентрации O_3 зависит от интенсивности излучения, то возникает дополнительное нелинейное изменение показателя преломления δn_k :

$$\delta n_k(t) = (\alpha_{O_2} + \alpha_O - \alpha_{O_3}) ([O_3(t)] - [O_3(t=0)]).$$

Для численного исследования влияния концентрационной и тепловой нелинейности на угловую расходимость лазерного пучка была создана программа, в которой решалась система кинетических уравнений (5) и параболическое уравнение для комплексной амплитуды поля E с нелинейными добавками δn_k и δn_r к показателю преломления:

$$\left(2ik \frac{\partial}{\partial z} + \Delta_{\perp} + \frac{2\kappa^2}{n_0} \delta n_{k,r}\right) E = 0, \quad n_0 \simeq 1. \quad (6)$$

Данные по зависимости начальных концентраций O , O_2 и O_3 от высоты были взяты из [1]. Распределение интенсивности по апертуре в зависимости от радиуса задавалось соотношением ($a = 15$ см)

$$I(x) = I_0 \exp\left[-\left(\frac{x}{a}\right)^2\right].$$

Уравнение (6) решалось с использованием 6-точечной явно-неявной схемы с Бесом $1/2$, что обеспечивало сходимость $\sim O(h_x^2 + h_t^2)$, где h_x и h_t — шаги по координате и времени. Исследовалась нелинейная рефракция пучка в озонном слое.

На рис. 1, 2 представлены результаты расчета изменения профиля пучка в зависимости от пройденного расстояния для случая концентрационной и тепловой нелинейности соответственно. В зависимости от длительности импульса основной вклад в нелинейные изменения показателя преломления вносят либо концентрационная нелинейность ($t_n < 10^{-5}$ с), либо тепловая $t_n \approx 10^{-5}$ с. Для двух типов нелинейности исследовались режимы, при которых нелинейная рефракция начинает существенно искажать профиль пучка. Оказалось, что эффект играет заметную роль лишь при плотностях энергии ≈ 1 Дж/см². Отме-

тим, что превышение интенсивности над интенсивностью насыщения $I_{\text{нас}} = \frac{I\nu}{\tau_p \sigma}$, где τ_p — время ре-

комбинации озона, приводит к подавлению нелинейного расплывания и относительной стабилизации осевой части пучка. На рис. 1, 2 показаны изменения исходного профиля пучка на входе (штрихпунктирная линия) и после наклонного распространения в озонном слое (сплошная линия) на расстояние $z = 0,3L_d$, где L_d — дифракционная длина. Плотность энергии составляла $1,3 \text{ Дж/см}^2$. Из-за влияния концентрационной нелинейности радиус пучка увеличился в 1,5 раза. После прохождения озонного слоя пучок продолжает уширяться за счет искажений фазового фронта, набранных в озоносфере. Еще более существенными оказываются нелинейные искажения, вызванные тепловой нелинейностью в случае длинных импульсов $t_n \approx 10^{-5} \text{ с}$ (рис. 2). Расчеты проводились при той же плотности энергии и длине трассы, что и в случае концентрационной нелинейности. Видно, что часть энергии перешла в боковые крылья, на оси пучка образовался глубокий провал.

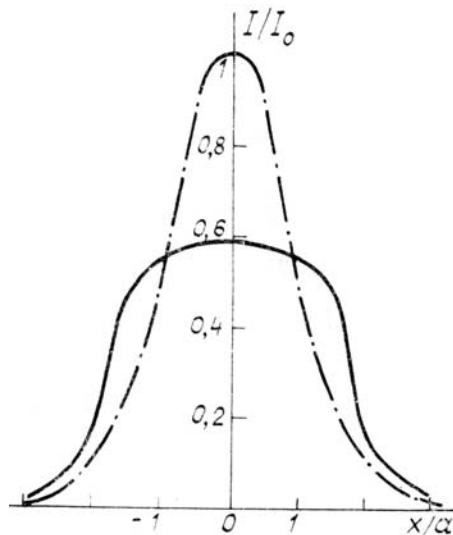


Рис. 1. Поперечный профиль интенсивности пучка на входе (штрихпунктирная) и после прохождения озонного слоя (сплошная линия). Концентрационная нелинейность $z = 0,3L_d$, $\epsilon = 1,3 \text{ Дж/см}^2$, $t_n = 10^{-7} \text{ с}$

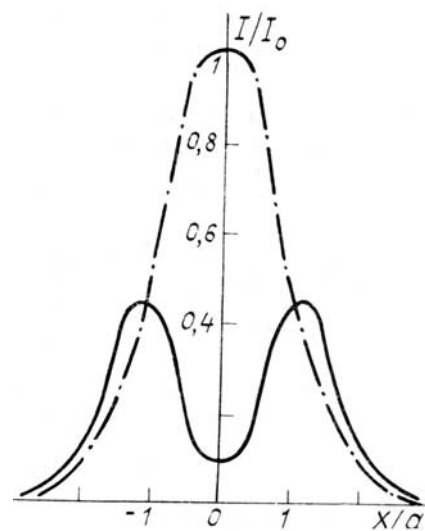


Рис. 2. Поперечный профиль интенсивности пучка на входе (штрихпунктирная) и после прохождения озонного слоя (сплошная линия). Тепловая нелинейность $z = 0,3L_d$, $\epsilon = 1,3 \text{ Дж/см}^2$, $t_n = 10^{-4} \text{ с}$

Следует отметить, что в работе не учитывалось влияние вращательной ВКР в атмосфере на угловой спектр излучения. При совместном действии вращательного ВКР и фотодиссоциации озона нелинейные искажения проявятся в еще большей степени. Таким образом, в данной работе теоретически предсказаны новые механизмы нелинейной рефракции лазерных пучков в атмосфере, которые приводят к существенному изменению углового спектра излучения.

1. Хргиан А. Х. Физика атмосферного озона. Л.: Гидрометеоздат, 1973. 289 с.
2. Griggs M. J. // Chem. Phys. 1968. V. 49. № 2. P. 857.
3. Brock J. C., Watson R. T. // Chem. Phys. 1980. V. 46. P. 477.
4. Копылова И. М., Сухоруков А. П. Изв. вузов. Сер. Физика. 1983. № 2. С. 111.
5. Сизова И. М., Сухоруков А. П. // Тр. Всесоюз. совещания по озону. Долгопрудный, 1977.
6. Сизова И. М., Сухоруков А. П. // Изв. АН СССР. Сер. ФАО. 1980. Т. 16. № 9. С. 917.

Институт общей физики АН СССР,
Москва

Поступила в редакцию
5 сентября 1989 г.

A. N. Starodumov, A. V. Shipulin. **Nonlinear Deviations of Air Refractive Index and Spatial Spectrum Distortions Induced by Ozone Photodissociation.**

Nonlinear deviations of refractive index induced by changing of atmospheric chemical components and heat liberation by ozone photodissociation are discussed. Results of computer simulations of beam profile distortions are presented. An essential role of concentrational and thermal nonlinearities in changing of spatial spectrum of irradiation propagating through ozone layer is shown.