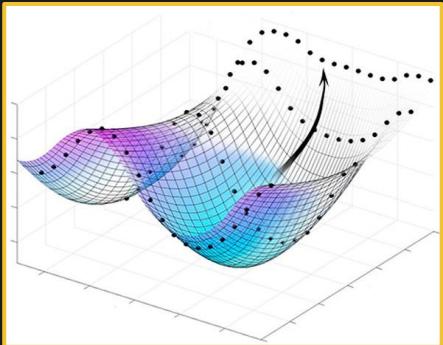


Моделирование индуцированных спектров поглощения смеси CO₂-CH₄

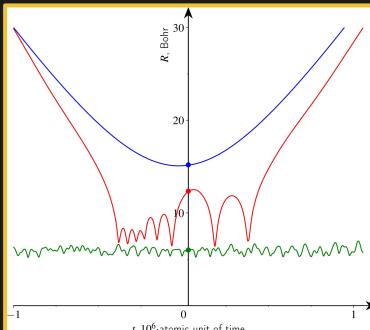
методом классических траекторий

Финенко А.А., Чистиков Д.Н., Вигасин А.А.

Институт физики атмосферы имени А. М. Обухова РАН, Москва Россия



1-60 млн.
траекторий



- Гладкие аппроксимации ППЭ и ПИДМ в широком диапазоне межмолекулярных расстояний



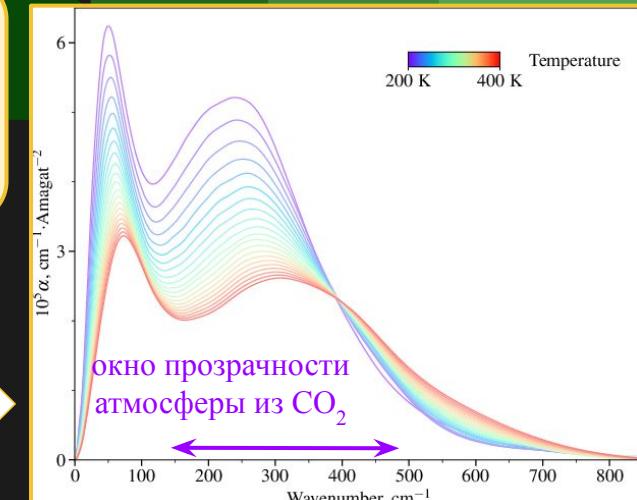
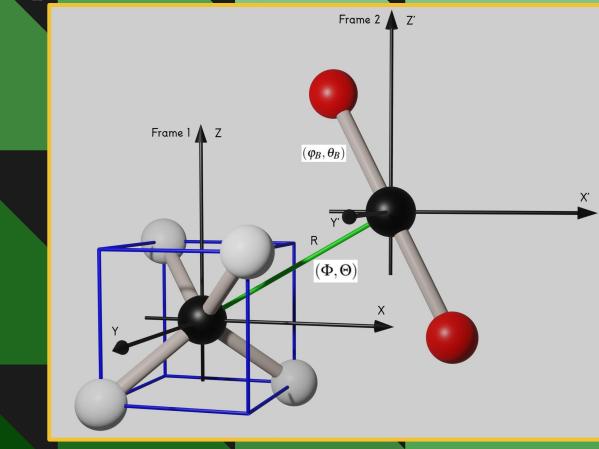
Временная эволюция траектории пары:

- Генерация начальных условий
- Решение уравнений Гамильтона
- Накопление временного ряда индуцированного дипольного момента

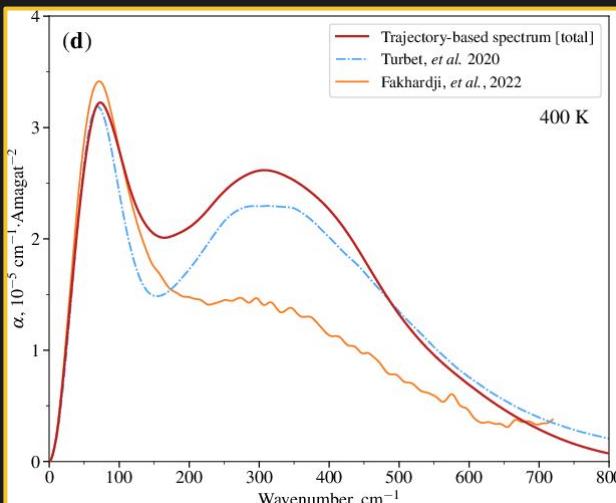
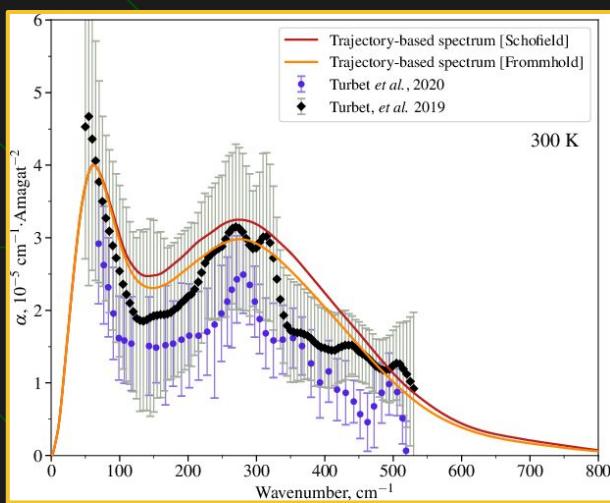
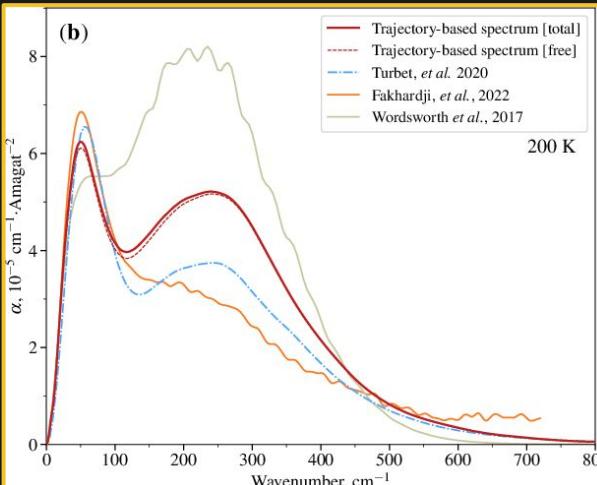
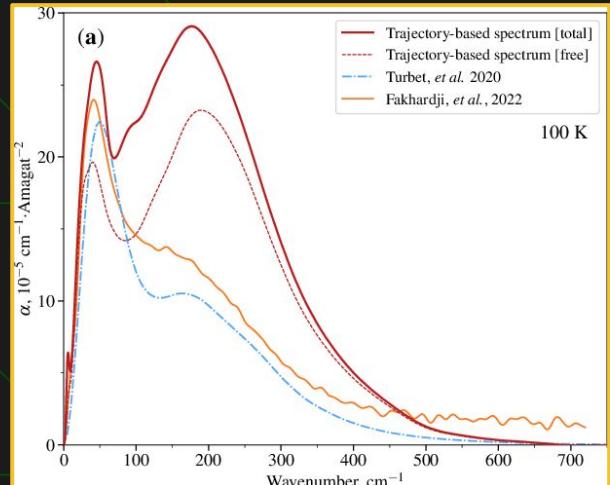


Спектр СИП по ансамблю траекторий:

- Накопление оценки Монте Карло корреляционной/спектральной функции
- Расчет коэффициента поглощения
- Десимметризация спектрального профиля



Индукционные спектры $\text{CH}_4\text{-CO}_2$ в широком интервале температур



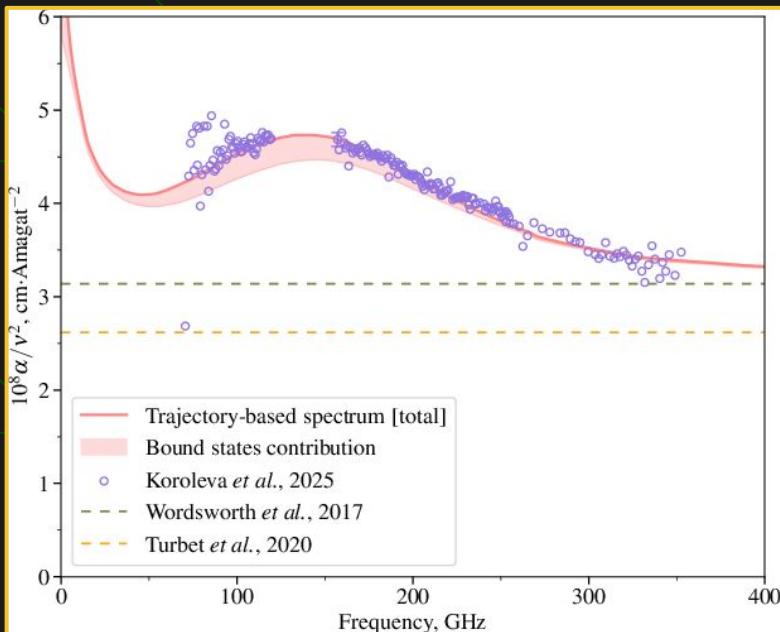
$$\alpha(\nu) = \frac{(2\pi)^4 N_L^2}{3hc} \nu \left[1 - \exp\left(-\frac{hc\nu}{k_B T}\right) \right] G(\nu)$$

Спектры СИП $\text{CH}_4\text{-CO}_2$ для ряда температур. Расчетные спектральные профили, полученные с использованием десимметризации Шефильда, показаны красным (сплошные и пунктирные линии соответствуют полному набору состояний и свободным состояниям соответственно). Оранжевая и синяя линия соответствуют теоретическим результатам Fakhardji et al. [1] и Turbet et al. [2]. Серой линией показан модельный спектр из Wordsworth et al. [3].

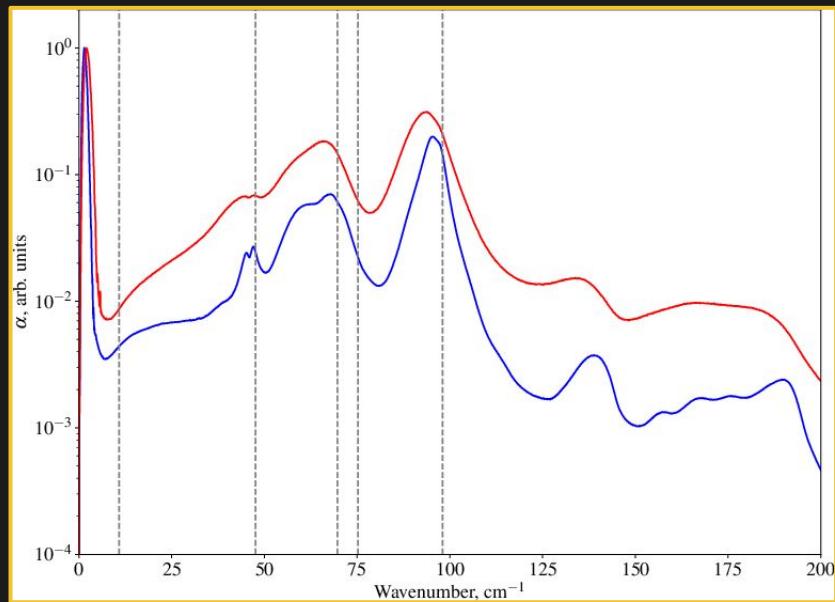
$$G_{\text{Sch}}(\nu) = G_{\text{cl}}(\nu) \exp\left(\frac{hc\nu}{k_B T}\right)$$

Для 300 К красная и оранжевая линии показывают расчетные траекторные спектры, полученные с использованием процедур десимметризации Шефильда и Фроммхольда соответственно. Чёрные и синие точки с погрешностями обозначают результаты экспериментальных измерений, выполненных в Turbet et al. [2] и Turbet et al. [4] соответственно.

Проявление димеров в индуцированном спектре



Приведенная спектральная функция $\text{CH}_4\text{-CO}_2$ при 300 К. Сплошная линия представляет спектральную функцию, соответствующую полной совокупности состояний, тогда как затененная область показывает вклад связанных состояний. Современные микроволновые данные показаны синим [5]. Зеленая и желтая пунктирные линии соответствуют теоретическим спектрам Wordsworth et al. [3] и Turbet et al. [4] соответственно.



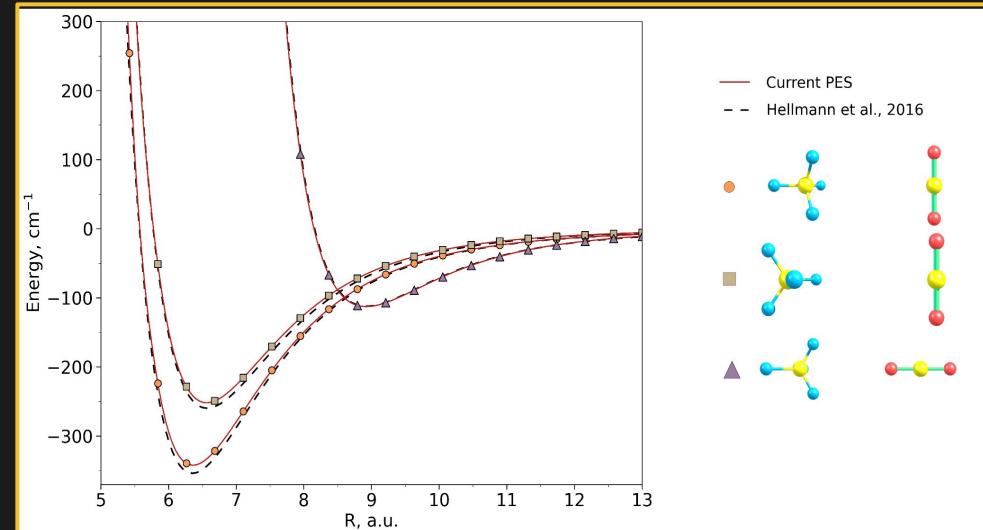
Нормированные расчетные димерные спектры $\text{CH}_4\text{-CO}_2$ при 5 К (синяя линия) и 10 К (красная линия). Вертикальные пунктирные линии обозначают пять гармонических колебательных частот, рассчитанных для димера в его равновесной геометрии.

Заключение

В настоящей работе проведены расчет спектров столкновительно-индукционного поглощения для пары $\text{CH}_4\text{-CO}_2$ в климатически значимом диапазоне температур от 70 до 400 К. Отдельно рассмотрена температурная вариация димерного вклада в индуцированный спектр. Существенной особенностью нашего подхода является использование высокоточных многомерных поверхностей потенциальной энергии и наведенного дипольного момента, построенных на основе результатов квантово-химических расчетов высокого уровня.

Достоверность полученных спектров подтверждена путем сравнения с независимыми теоретическими результатами [1-3] и экспериментальными измерениями [2,4,5]. Превосходное согласие с высокоточными микроволновыми измерениями [5], выполненными с помощью резонаторного спектрометра в ИПФ РАН, убедительно демонстрирует точность полученных результатов.

В отличие от результатов Fakhardji et al. [1], которые рекомендованы в последнем обновлении раздела СИП базы данных HITRAN [6], наши спектры демонстрируют второй пик в спектральном диапазоне 200–600 cm^{-1} , который формирует окно прозрачности для атмосфер с преобладанием CO_2 . Полученные данные могут быть использованы в радиационных моделях при описании парникового эффекта в условиях атмосфер с преобладанием CO_2 (например, в условиях палеоатмосферы Марса [7]).



Радиальные сечения ППЭ для пары $\text{CH}_4\text{-CO}_2$ при выбранных угловых ориентациях (обозначены различными символами).

Литература:

1. W. Fakhardji et al., *JQSRT* 283, 108148, 2022.
2. M. Turbet, C. Boulet, T. Karman, *Icarus* 346, 113762, 2020.
3. R. Wordsworth et al. *Geophys. Res. Lett.* 44(2), 665671, 2017.
4. M. Turbet et al. *Icarus* 321, 189199, 2019.
5. A. Koroleva et al. (to be submitted).
6. J. Terragni, et al. *JQSRT* 347, 109631, 2025.
7. R. M. Ramirez et al., *Nat. Geosci.* 7(1) 59, 2014.