

ОБЗОРЫ АКТУАЛЬНЫХ ПРОБЛЕМ

Искусственная ионизованная область как источник озона в стратосфере

А.В. Гуревич, А.Г. Литвак, А.Л. Вихарев,
О.А. Иванов, Н.Д. Борисов, К.Ф. Сергейчев

Обсуждается комплекс физико-химических процессов в стратосферном сверхвысокочастотном (СВЧ) разряде наносекундной длительности. Одно из его важных проявлений — локальное воздействие на озоновый слой в искусственной ионизированной области (ИИО), которую предполагается создавать на высотах 18–20 км за счет СВЧ-пробоя воздуха пучками мощных электромагнитных волн, посыпаемых наземными источниками. Предлагается использовать ИИО для натурного физического эксперимента с целью активного зондирования озонового слоя (его состояния и комплекса плазмохимических и фотопроцессов) за счет контролируемой генерации в стратосфере значительного количества озона. Излагаются результаты обширного цикла лабораторных экспериментов в условиях, аналогичных стратосферным, а также теоретических исследований. Обнаружены и подробно изучены режимы разряда, соответствующие эффективному наращиванию концентрации озона. Показано, что производительность такого озонатора в стратосфере соответствует показателям лучших озонаторов, используемых на Земле. Установлено, что при низких давлениях и температурах $T \sim 200$ – 220 К, характерных для условий стратосферы, интенсивная генерация озона при СВЧ-пробое группами коротких наносекундных импульсов практически не сопровождается ростом концентрации оксидов азота, играющих важную роль в катализических реакциях разрушения озона. Экспериментально доказана также возможность эффективной генерации озона в допробойных электрических полях. Показано, что благодаря длительному времени жизни, ветрам и турбулентной диффузии озон, генерируемый в локальной области на высоте 18–20 км, может распространяться на значительные расстояния и создавать искусственное дополнительное озонирование в стратосфере.

PACS numbers: 82.40.We, 94.10.Fa

Содержание

1. Введение (1181).

2. Искусственная ионизованная область в атмосфере (1183).

2.1. Схема создания ИИО. 2.2. Импульсный СВЧ-пробой возду-

А.В. Гуревич. Физический институт им. П.Н. Лебедева РАН, 117924 Москва, Ленинский просп. 53, Российская Федерация Тел. (095) 132-64-14
E-mail: alex@lpi.ru

А.Г. Литвак, А.Л. Вихарев, О.А. Иванов.
Институт прикладной физики РАН, 603600 Нижний Новгород, ул. Ульянова 46, Российская Федерация Тел. (8312) 38-45-60. Факс (8312) 36-20-61
E-mail: val@appl.sci-nnov.ru

Н.Д. Борисов. Институт земного магнетизма, ионосфера и распространения радиоволн РАН, 142092 Троицк, Московская обл., Российская Федерация Тел. (095) 334-09-15. Факс (095) 334-01-24
E-mail: borisov@lpi.ru

К.Ф. Сергейчев. Институт общей физики РАН, 117942 Москва, ул. Вавилова 38, Российская Федерация Тел. (095) 132-82-39. Факс (095) 135-80-11
E-mail: sergeichev@fpl.gpi.ru

Статья поступила 25 июля 2000 г.

ха. 2.3. Релаксация ионизации. 2.4. Лабораторные исследования разряда в пересекающихся волновых пучках. 2.5. Оценки параметров ИИО в атмосфере.

3. Плазмохимические процессы в СВЧ-разрядах (1187).

3.1. Основные каналы образования озона и диссоциации кислорода. 3.2. Динамика малых составляющих атмосферы при импульсных СВЧ-разрядах. 3.3. Лабораторные исследования генерации озона и оксидов азота в СВЧ-разрядах в воздухе. 3.4. Энергетическая цена образования молекул озона.

4. Генерация озона в стратосфере с помощью ИИО (1194).

4.1. Образование и разрушение озона в натурных условиях. 4.2. Оптимальное расположение источника дополнительного озона. 4.3. Расчеты энергетической цены образования озона в ИИО. 4.4. Соотношение между $[O_3]$ и $[NO_x]$ в ионизованной области. 4.5. Дистанционная диагностика плазмохимических процессов в ИИО. 4.6. Формирование искусственного озонового слоя.

5. Заключение (1200).

Список литературы (1201).

1. Введение

Озон относится к малым нейтральным составляющим земной атмосферы. Несмотря на то что на соответствую-

щей высоте его максимальная концентрация примерно на 5 порядков меньше концентрации молекул воздуха, он защищает все живое на Земле от губительного действия ультрафиолетового (УФ) излучения Солнца. Озон распределен по высоте весьма неравномерно. На высотах 18–30 км существует явно выраженный максимум. Область высот вблизи максимума, где сосредоточена основная масса озона, называется озоновым слоем. Распределение озона в стратосфере формируется в результате химических процессов и под влиянием целого ряда факторов: УФ-излучения Солнца, крупномасштабной циркуляции воздуха в атмосфере, турбулентной диффузии, распределения температуры воздуха в стратосфере. Воздействие перечисленных факторов различно на разных широтах, что ведет к зависимости параметров озонового слоя от широты. Так, на низких широтах слой расположен выше ($H \sim 30$ км) и максимальная концентрация озона в нем больше ($[O_3]_{\max} \sim 5 \times 10^{12} \text{ см}^{-3}$), чем в авроральных областях, где типичная высота максимума $H = 18–20$ км и концентрация $[O_3]_{\max} \sim 3 \times 10^{12} \text{ см}^{-3}$ [1, 2].

Подчеркнем, что интегральное поглощение УФ-излучения Солнца озоном зависит от длины волны (оно максимально при $\lambda \sim 255$ нм) и при увеличении концентрации озона в слое возрастает экспоненциально. Поэтому даже незначительное уменьшение общего содержания озона может приводить к сильному изменению интенсивности УФ-излучения, достигающего поверхности Земли. Так, при уменьшении содержания озона всего на 10 % интенсивность излучения на Земле для $\lambda = 288$ нм возрастает в 50 раз, для $\lambda = 293$ нм — в 6 раз, для $\lambda = 302$ нм — всего в 1,6 раза [3]. Это и есть та чрезвычайно важная особенность, которая служит причиной повышенного внимания, уделяемого анализу состояния озонового слоя учеными и мировой общественностью.

Наблюдения за озоновым слоем показывают, что концентрация озона в слое меняется не только с широтой, но также от сезона к сезону и от года к году. Весной 1985 г. над Антарктидой было обнаружено значительное понижение концентрации озона, получившее условное название "озоновой дыры" [2–5]. Дальнейшие наблюдения в стратосфере Антарктиды выявили весьма сложную динамику поведения "озоновой дыры". В начальный период наблюдения (1985–1987 гг.) ее площадь непрерывно возрастила и длительность ее существования увеличивалась, что вызывало определенное беспокойство. В дальнейшем, однако, характер ее изменения стал гораздо менее определенным, полной ясности в динамике поведения "озоновой дыры" над Антарктидой нет и по сей день.

Считается, в частности, что заметный вклад в уменьшение концентрации озона вносит антропогенное воздействие. Такое воздействие может возрастать, и это вызывает естественное опасение за судьбу озонового слоя. Впервые его высказали в начале 70-х годов Г. Джонсон и П. Крутчен, обратившие внимание на выбросы оксидов азота при полетах стратосферной авиации [6, 7]. В дальнейшем кроме азотного были указаны еще хлорный (связанный с распадом фреонов) и водородный каталитические циклы, также приводящие к уничтожению озона. Это побудило мировое сообщество принять ряд мер по ограничению производства веществ, оказывающих негативное воздействие на

озоновый слой. В 1985 г. была принята Венская конвенция по защите озонового слоя, а в 1987 г. — Монреальский протокол, согласно которому страны, его подписавшие, обязываются резко сократить выпуск долгоживущих фреонов и других разрушающих озон веществ.

Однако ответ на вопрос о необходимости и достаточности этих действий остается и сегодня неясным. Дело в том, что наблюдение за состоянием озонового слоя с точки зрения антропогенного воздействия не имеет существенной предсказательной силы вследствие возможности многолетнего существования в атмосфере малых примесей каталитических веществ и плохого контроля за их попаданием в атмосферу. Теоретическое же описание влияния малых примесей на озоновый слой весьма затруднительно. Прежде всего необходимо рассматривать одновременно несколько сот уравнений, описывающих цепь химических реакций. При этом отнюдь не для всех реакций коэффициенты достаточно хорошо известны. Если добавить к этому влияние ультрафиолетового излучения Солнца, атмосферных ветров, турбулентности, а также стратосферных облаков, в которых протекают сложные гетерогенные реакции с участием азотных и хлорных соединений [2], то становится ясным, что чисто теоретические расчеты не могут служить источником сколько-нибудь надежных предсказаний поведения озонового слоя. Не случайно, в частности, не оправдались ни предсказания Джонстона и Крутчен о значительном понижении к концу 80-х годов концентрации озонового слоя, ни вытекающие из наблюдений Фармана [8] предсказания о катастрофических последствиях роста антарктической "озоновой дыры".

Вполне понятно, что для получения надежных представлений о воздействии малых примесей на поведение столь сложной системы необходимо проводить в стратосфере регулярные и контролируемые физические эксперименты. Современному состоянию проблемы осуществления таких экспериментов и посвящен настоящий обзор. Экспериментальное исследование предлагается проводить с использованием искусственной ионизированной области (ИИО), создаваемой в стратосфере с помощью импульсного СВЧ-пробоя в пересекающихся пучках мощных электромагнитных волн, посыпаемых наземными источниками. Расчет необходимых для создания ИИО параметров СВЧ-излучения может быть выполнен с использованием результатов исследований газового разряда в волновых пучках. Обширный цикл экспериментальных и теоретических исследований такого разряда, стимулированный успехами в разработке мощных источников СВЧ-излучения (гиротронов [9] и генераторов на релятивистских электронных пучках [10]), был выполнен в 80-е годы в СССР и США [11–18]. Идея создавать в атмосфере хорошо отражающую радиоволны ИИО (радиозеркало) и использовать ее для телевидения и радиосвязи была предложена еще в начале 80-х годов А.В. Гуревичем [19] и в дальнейшем развита в работах [20, 21]. Для поддержания радиозеркала в области пересечения двух волновых пучков предлагались следующие параметры СВЧ-излучения: длина волны 5–100 см, длительность импульсов 1–10 нс, частота следования импульсов $10^4–10^5$ Гц. Высокая частота повторения импульсов необходима, чтобы уменьшить плотность плазмы между импульсами за

счет деионизации было небольшим и поддерживалась высокая средняя электронная концентрация. Отметим, что в работах [22–25] широко дискутировались возможные экологические последствия создания и длительного поддержания радиозеркала. Результаты этой дискуссии послужили хорошей основой для проведенного нами анализа воздействия наносекундного СВЧ-разряда на концентрацию озона в стратосфере. Именно использование коротких наносекундных СВЧ-импульсов и низкая температура газа в стратосфере определяют отсутствие в нашем случае негативных экологических эффектов, обсуждаемых в этих работах.

Обзор имеет следующую структуру. Раздел 2 посвящен теории создания ИИО в стратосфере, изучению физических процессов, связанных с ее образованием, исследованию устойчивости ионизированной области, а также модельным лабораторным экспериментам по созданию и поддержанию ИИО в пересекающихся СВЧ-пучках. В следующем разделе изучаются плазмохимические процессы в условиях наносекундного СВЧ-разряда в воздухе. Изложены результаты численных расчетов, описывающих кинетику малых нейтральных составляющих в ИИО. Основная часть раздела посвящена результатам лабораторных экспериментов, в которых исследуется динамика изменения концентрации озона. Показано, что в зависимости от режима работы СВЧ-генератора и условий в разряде может нарастать концентрация как озона, так и оксидов азота NO , NO_2 , приводящих к его уничтожению. Обнаружен и подробно изучен режим, в котором наблюдается значительная наработка озона, в то время как концентрации компонентов NO , NO_2 остаются фактически на уровне фоновых значений. Обнаружено также явление эффективного увеличения концентрации озона в резонаторе в допроводных электрических полях. В разделе 4 на основе результатов выполненных лабораторных экспериментов и численных расчетов обсуждается возможность использования ИИО для натурного эксперимента в стратосфере по воздействию на озоновый слой. Рассматриваются методы дистанционной диагностики с Земли плазмохимических процессов в ИИО, связанных с динамикой малых нейтральных составляющих (в первую очередь, озона). Приводятся оценки энергетических затрат и оптимальных условий для эффективной наработки озона. Обсуждается вопрос о возможности заполнения искусственно создаваемым озоном достаточно обширной области в стратосфере.

2. Искусственная ионизованная область в атмосфере

2.1. Схема создания ИИО

Схема предположительного осуществления натурного эксперимента приведена на рис. 1. С помощью наземных антенн в атмосферу посыпаются два пучка мощных электромагнитных волн на частотах 10–40 ГГц. В области их пересечения на высотах $H = 20–30$ км, где электрическое поле особенно велико, возникает газовый разряд, т.е. образуется ИИО, которая так же, как и разряд в озонаторе, будет эффективным источником озона. В ИИО электроны плазмы получают энергию от электрического поля и производят диссоциацию молекул кислорода, а затем атомы кислорода конвертируют в

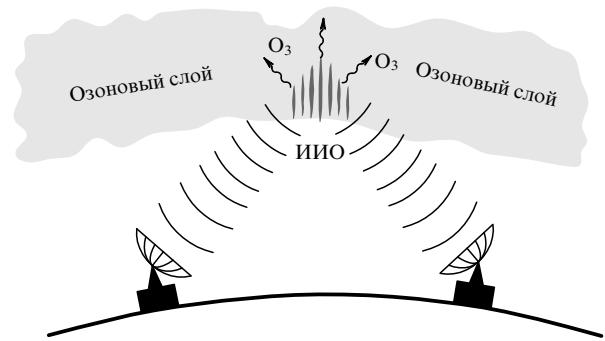


Рис. 1. Схема создания ИИО.

озон. Такой плазмохимический способ создания озона особенно эффективен при кратковременных импульсных электрических разрядах с большой частотой повторения [26].

В приведенной на рис. 1 схеме для ионизации воздуха за наносекундные промежутки времени необходимы высокие напряженности электрического поля в пучках. Оценки показывают, что в трехсантиметровом диапазоне длин волн для создания ИИО на высоте $H = 30$ км с помощью антенн диаметром 100 м, расположенных на расстоянии 30 км одна от другой, импульсная мощность в волновых пучках должна превышать значение $P = 4 \times 10^9$ Вт при длительности импульса $\tau = 50$ нс. Этот уровень мощности уже достигнут на современных СВЧ-генераторах в лабораторных экспериментах. Таким образом, создание атмосферного СВЧ-разряда оказывается вполне возможным при современном состоянии развития техники.

Заметим, что для создания ИИО на высотах порядка нескольких десятков километров пересекающиеся пучки более целесообразны, чем одиночный пучок электромагнитных волн. При умеренных параметрах передающей антennы (при диаметре антennы несколько десятков метров) угол сходимости одиночного пучка чрезвычайно мал ($\Theta = 10^{-3}$) и максимальная концентрация электронов N_{em} в разряде в одиночном пучке оказывается невысокой: $N_{\text{em}} = N_{\text{cr}} \Theta^2$ [16], где

$$N_{\text{cr}} = \frac{m(\omega^2 + v_c^2)}{4\pi e^2}$$

— критическая концентрация электронов для частоты падающего СВЧ-излучения ω . Величина N_{em} недостаточна для создания значительной концентрации атомарного кислорода в течение короткого СВЧ-импульса. В пересекающихся пучках могут быть в принципе достигнуты гораздо большие значения N_{e} и обеспечена возможность контролируемого изменения положения ИИО в пространстве. На рисунке 2а представлена общая схема пробоя в пересекающихся пучках, а на рис. 2б — область пересечения пучков, где жирные линии соответствуют пучностям, возникающим вследствие интерференции когерентных полей. В дальнейшем мы будем считать, что ИИО создается пересекающимися волновыми пучками.

2.2. Импульсный СВЧ-пробой воздуха

Под действием сильного высокочастотного электрического поля электроны приобретают значительную энер-

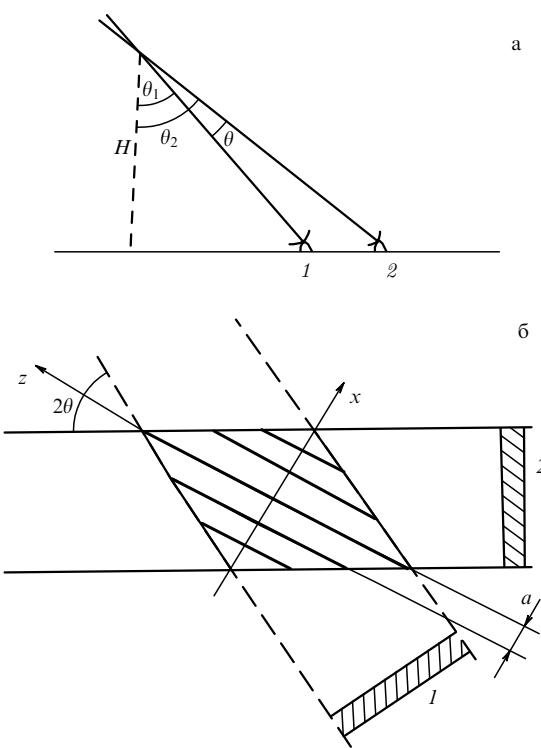


Рис. 2. Схема пробоя в пересекающихся пучках (а) и область пересечения пучков (б). Цифрами 1 и 2 отмечены импульсы, излучаемые передатчиками.

гию, достаточную для ионизации нейтральных молекул воздуха. В переменных электрических полях, амплитуда которых превышает критическое поле пробоя E_{cr} , концентрация электронов начинает лавинообразно нарастать со временем — возникает пробой. Исследование пробоя в воздухе посвящено большое число экспериментальных и теоретических работ. Мы приведем здесь результат современного теоретического расчета поля E_{cr} (кВ см⁻¹), хорошо согласующегося с данными наблюдений и основанного на кинетической теории поведения электронов в сильных электромагнитных полях [21]:

$$E_{\text{cr}} = 28,2C\left(\frac{v_c}{\omega}\right)\frac{N_m}{2,7 \times 10^{19} \text{ см}^{-3}} \left(1 + \frac{\omega^2}{v_c^2}\right)^{1/2}. \quad (1)$$

Здесь $v_c = 1,7(N_m/10^7 \text{ см}^{-3}) \text{ с}^{-1}$ — характерная частота соударений электронов с молекулами, N_m — концентрация молекул воздуха, см⁻³, $C(v_c/\omega)$ — коэффициент порядка единицы, ω — круговая частота СВЧ-поля.

Из (1) следует, что критическое поле высокочастотного пробоя быстро (пропорционально концентрации) убывает с высотой, пока частота соударений v_c не станет одного порядка с частотой волны ω . При дальнейшем увеличении высоты критическое поле остается постоянным $E_{\text{cr}} \approx 6,1(\omega/10^{12}) \text{ кВ см}^{-1}$.

В надкритических полях $E > E_{\text{cr}}$ рост концентрации электронов во времени характеризуется разностью частот ионизации v_i и прилипания электронов к молекулам кислорода v_{am} , где $v_{\text{am}} \approx 7,6(N_m/10^{13} \text{ см}^{-3}) \text{ с}^{-1}$ — максимальная частота диссоциативного прилипания во время импульса пробоя. Приближенная аналитическая формула для частоты ионизации воздуха согласно [21]

имеет вид

$$\frac{v_i}{v_{\text{am}}} = F\left(\frac{E}{E_{\text{cr}}}\right)\left(\frac{E}{E_{\text{cr}}}\right)^2 C_1\left(\frac{\omega}{v_c}\right) \exp\left\{-4,7\left[C_2\left(\frac{\omega}{v_c}\right)\frac{E_{\text{cr}}}{E} - 1\right]\right\}. \quad (2)$$

Здесь $F(x) = (2/3)[1 + 6,3 \exp(-2,6/x)]$, коэффициенты $C_1(\omega/v_c)$, $C_2(\omega/v_c)$ близки к единице и весьма слабо зависят от своих аргументов. В частности, коэффициент C_2 монотонно меняется от 1,0 при $\omega/v_c \ll 1$ до 1,1 при $\omega/v_c \gg 1$.

При сравнительно слабой надкритичности изменение частоты ионизации с полем (2) может быть аппроксимировано степенной зависимостью

$$v_i = v_{\text{am}}\left(\frac{E}{E_{\text{cr}}}\right)^\alpha, \quad (3)$$

где $\alpha \approx 5,3$ для интервала $1 \ll E/E_{\text{cr}} \leq 3$. Видно, что частота ионизации очень быстро растет с увеличением амплитуды поля. При больших полях ($E/E_{\text{cr}} \geq 4$) рост частоты ионизации замедляется ($\alpha \leq 2$). В пересекающихся пучках радиоволн благодаря интерференции полей наиболее значительная ионизация согласно (3) возможна лишь в узких слоях, соответствующих пучностям поля.

Представляет интерес определение оптимальных условий ионизации, когда при заданной энергии высокочастотного импульса число возникающих в воздухе свободных электронов достигает максимума. С одной стороны, энергия импульса W пропорциональна его длительности τ и квадрату амплитуды поля $|E|^2$:

$$W = C_0|E|^2\tau, \quad (4)$$

где C_0 — постоянная. С другой стороны, число образующихся под действием импульса свободных электронов при $E > E_{\text{cr}}$

$$N_e = N_{e0} \exp[v_i(E)\tau]. \quad (5)$$

Согласно (4), (5) энергия импульса W , необходимая для создания концентрации электронов N_e , определяется функцией $\chi(E/E_{\text{cr}})$ [21]:

$$\chi\left(\frac{E}{E_{\text{cr}}}\right) = \frac{v_i(E/E_{\text{cr}})}{v_{\text{am}}}\left(\frac{E_{\text{cr}}}{E}\right)^2. \quad (6)$$

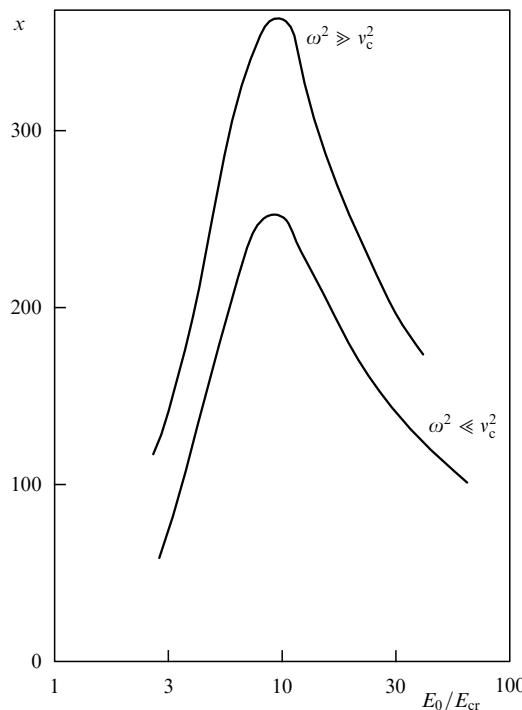
Оптимальным условиям для ионизации, т.е. минимуму затрачиваемой энергии, соответствует максимум функции $\chi(E/E_{\text{cr}})$, который достигается, если

$$E \approx (5-7)E_{\text{cr}}, \quad \omega \approx v_c. \quad (7)$$

На рисунке 3 представлено поведение функции $\chi(E/E_{\text{cr}})$ для двух предельных соотношений между частотой волны ω и частотой соударений v_c : $\omega/v_c \gg 1$ и $\omega/v_c \ll 1$. В обоих случаях имеется острый максимум, который соответствует оптимальным условиям. В таблице 1

Таблица 1

H , км	N_m , см ⁻³	v_c , см ⁻¹	λ_{op} , см	$E_{\text{cr}}^{\text{op}}$, кВ см ⁻¹
20	$1,8 \times 10^{18}$	$3,1 \times 10^{11}$	0,6	3,25
30	$3,7 \times 10^{17}$	$5,9 \times 10^{10}$	3,2	0,62

Рис. 3. Функция χ в зависимости от E/E_{cr} .

приведены значения критического поля E_{cr} для оптимальных условий $\omega = v_c$ на высотах 20 и 30 км.

2.3. Релаксация ионизации

В области пересечения волновых пучков во время действия СВЧ-импульса функция распределения электронов по скоростям сильно отличается от максвелловской. После окончания импульса распределение электронов релаксирует к равновесному и, кроме того, благодаря различным механизмам потерь (рекомбинация, прилипание, атмосферный ветер, диффузия) плотность плазмы в ИИО уменьшается.

В процессе релаксации функция распределения электронов вначале очень быстро (за времена $\Delta t \sim 10^{-11} - 10^{-12}$ с) симметризуется, т.е. становится зависящей лишь от времени и энергии. Затем происходит более медленная релаксация по энергии, причем характерное время релаксации оказывается различным для разных интервалов энергии ε . В низкоэнергетической области $\varepsilon \leq 1 - 2$ эВ, характеризуя среднюю энергию электронов, можно уже приближенно говорить об их температуре T_e . Время релаксации температуры электронов при низких энергиях

$$\tau_T = [\delta(T_e)v(T_e)]^{-1}, \quad (8)$$

где $v(T_e)$ — эффективная частота соударений электронов с молекулами, $\delta(T_e)$ — средняя доля энергии, теряемая электроном при соударении. Для энергий $\varepsilon \leq 1$ эВ можно полагать $\delta \simeq (1-2) \times 10^{-3}$. Полная релаксация температуры электронов для высот $H = 20 - 30$ км происходит за время $\tau_T = (0,6-3) \times 10^{-6}$ с.

В области энергий $2 < \varepsilon < 5$ эВ главную роль в процессе релаксации играют неупругие соударения электронов с нейтральными молекулами. Релаксация представляет собой постепенное смещение распределения

в область меньших энергий. Характерное время релаксации составляет $\tau_e \sim 10^{-9}(N_m/10^{17} \text{ см}^{-3})^{-1}$ с, т.е. $\tau_e = (0,6-3) \times 10^{-10}$ с для $H = 20-30$ км. В области больших энергий $6 < \varepsilon < 12$ эВ релаксация идет примерно с той же скоростью.

Время релаксации температуры очень мало — оно гораздо меньше времени релаксации ионизации. Поэтому на характерных временах, превышающих τ_T , можно считать температуру электронов близкой к температуре молекул и для описания релаксации ионизации использовать гидродинамическое приближение. Изменение концентрации электронов в этом случае может быть описано уравнением баланса

$$\frac{\partial N_e}{\partial t} = D_a \Delta N_e - \mathbf{v} \nabla N_e - N_e \sum_j \alpha_{ij} N_i^{(j)} - v_{aT} N_e. \quad (9)$$

Здесь D_a — коэффициент амбиполярной диффузии, \mathbf{v} — скорость атмосферного ветра, α_{ij} — коэффициенты рекомбинации для различных процессов, $N_i^{(j)}$ — концентрация ионов сорта j , v_{aT} — коэффициент прилипания при тройных соударениях. Для v_{aT} справедливо выражение [21]

$$v_{aT} = 8,3 \times 10^2 \left(\frac{N_m}{10^{17}} \right)^2 \left[\frac{300}{T} \exp \left[-\frac{2(1-T/300)}{T/300} \right] + 0,2 \right], \quad (10)$$

где T — температура воздуха в градусах Кельвина, а v_{aT} измеряется в единицах с^{-1} .

Относительная роль различных механизмов потерь при релаксации ионизации зависит от концентрации электронов в ионизованной области, размеров области и высоты, на которой она создается. При ионизации воздуха небольшой группой коротких импульсов для типичных размеров области L_z и L_x (табл. 2) и скорости ветра $v \geq 1 \text{ м с}^{-1}$ диффузией и выносом ионизации за период между двумя импульсами можно пренебречь. Рекомбинация может играть существенную роль лишь на начальной стадии релаксации в случае высокой максимальной концентрации плазмы. Поэтому в первом приближении время релаксации ионизации можно оценить как $\tau_r \approx v_{aT}^{-1}$.

Таблица 2

$H, \text{ км}$	$\lambda, \text{ см}$	$L_z, \text{ м}$	$L_x, \text{ м}$	$N_{\text{em}}, \text{ см}^{-3}$
20	0,8	4	3	5×10^{12}
	3	15	11	10^{12}
30	0,8	7	4	2×10^{12}
	3	27	13	2×10^{11}

2.4. Лабораторные исследования разряда в пересекающихся волновых пучках

В последние годы наряду с теоретическими исследованиями был выполнен цикл лабораторных экспериментов [27–29], в которых изучалась динамика и структура самостоятельного СВЧ-разряда в пересекающихся волновых пучках. В качестве источника излучения использовался гиротрон восьмимиллиметрового диапазона, обладающий достаточно высокими значениями импульсной мощности и длительности импульса, что позволило осуществить пробой и наблюдать ряд этапов послепробойной эволюции разряда в широком диапазоне

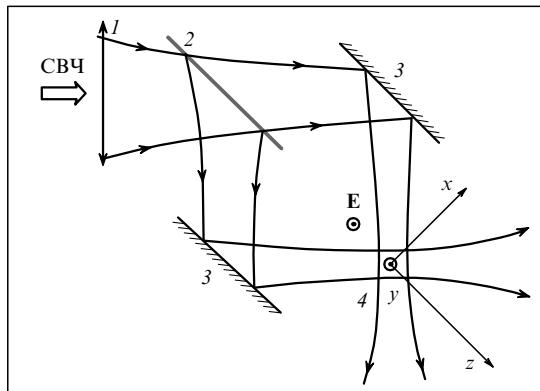


Рис. 4. Схема эксперимента: 1 — радиолинза, 2 — полупрозрачное зеркало, 3 — отражатели, 4 — область пересечения пучков.

зоне плотностей воздуха, соответствующих высотам 15–50 км.

Эксперименты были осуществлены по схеме, представленной на рис. 4. СВЧ-излучение гиротрона с помощью преобразователя трансформировалось в гауссов пучок электромагнитных волн линейной поляризации и направлялось внутрь безэховой вакуумной камеры. Волновой пучок после прохождения через диэлектрическую линзу расщеплялся на два пучка одинаковой мощности, которые после отражения от металлических зеркал пересекались в центральной области вакуумной камеры. Эксперименты выполнялись при следующих условиях: длина волны $\lambda = 8$ мм, длительность импульса $\tau = 4$ –55 мкс, импульсная мощность в каждом пучке $P = 100$ кВт, давление воздуха в вакуумной камере $p = 0,3$ –70 торр, угол между осями пучков $2\theta = 60^\circ$, диаметр пучков в области пересечения (по уровню спада интенсивности в e раз) $d = 3$ см, векторы электрического поля на осях обоих пучков параллельны. Пробойные условия выполнялись только в области пересечения пучков, где их поля складывались. Первые затравочные электроны, необходимые для пробоя, создавались УФ-излучением искрового разрядника, расположенного рядом с областью пробоя.

Разряд фотографировался в двух перпендикулярных проекциях: на плоскость, образованную волновыми векторами обоих пучков (плоскость H), и плоскость, делящую угол между ними пополам (плоскость E). Использовались два вида съемки: интегральная — с временем экспозиции, превышавшим время свечения разряда в каждом импульсе, и скоростная — с помощью приборов на основе электронно-оптических преобразователей в кадровом и хронографических режимах.

На основании анализа полученных данных структура и динамика разряда представляются следующими. В течение всего СВЧ-импульса разряд локализован в окрестности пучностей электрического поля (в максимумах интерференционной картины, возникающей в области наложения двух пучков). Иллюстрацией этому служит приведенная на рис. 5 интегральная фотография разряда в плоскости H . Интервал между яркими продольными полосами на ней соответствует расстоянию между пучностями $\lambda/2 \sin \theta = 8$ мм.

В каждом ионизованном слое, образуемом пучностью поля (в плоскости E), в зависимости от давления воздуха реализуется один из следующих трех видов

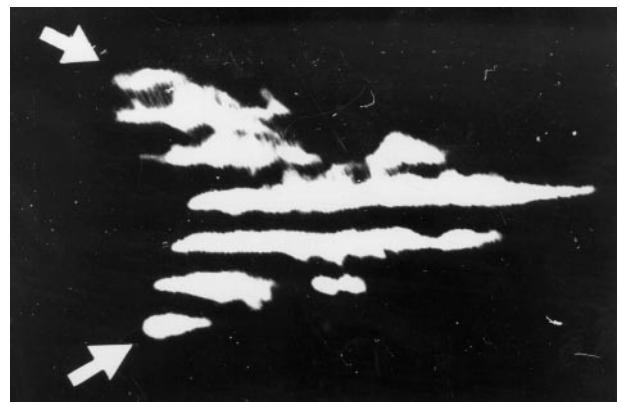


Рис. 5. Интегральная фотография разряда в плоскости пересечения двух пучков ($p = 30$ торр, стрелками показано направление падающего излучения).

структур разряда: 1) квазиоднородный (диффузный) разряд при низких давлениях 0,3–3 торр или при более высоких давлениях на начальной послепробойной стадии разряда, 2) разряд, раздробленный на слои, перпендикулярные вектору электрического поля, в области давлений 3–40 торр, 3) разряд, раздробленный на нити, параллельные вектору электрического поля, в области 40–70 торр. Характерные интегральные фотографии в плоскости E , соответствующие указанным трем структурам, приведены на рис. 6 (во избежание наложения свечения из различных пучностей, затрудняющих анализ исследуемых структур в плоскости E , при получении этих фотографий мощность излучения была снижена до уровня, обеспечивающего горение разряда лишь в одной пучности).

Как было установлено, оба наблюдаемых типа дробления разряда начинаются на первоначально квазиоднородном фоне (рис. 6а) и возникают в результате развития в разрядной плазме различных мелкомасштабных ионизационных неустойчивостей. Расслоение в направлении вектора электрического поля (рис. 6б) связано с плазменно-резонансной неустойчивостью [30], а образование нитевидных плазмоидов, вытянутых вдоль направления электрического поля (рис. 6в), объясняется развитием ионизационно-перегревной неустойчивости, которая играет преобладающую роль в области давлений, где $v \gg \omega$ [31].

Результаты проведенных экспериментов в совокупности с имеющимися теоретическими представлениями [31–34] позволяют сделать прогноз, что в ИИО, создаваемой короткими (наносекундными) импульсами на высотах 15–50 км, мелкомасштабные ионизационные неустойчивости не успеют развиться и структура ИИО в различных плоскостях будет соответствовать интегральным фотографиям, представленным на рис. 5 и рис. 6а. В отличие от лабораторного эксперимента в натурных условиях волновые пучки будут значительно шире, поэтому число пучностей, занимаемых разрядом, будет составлять несколько сот.

2.5. Оценки параметров ИИО в атмосфере

Оценим характерные параметры ИИО и соответствующей системы на Земле для создания ИИО на высотах $H = 20$ и 30 км. Положим, что используются два

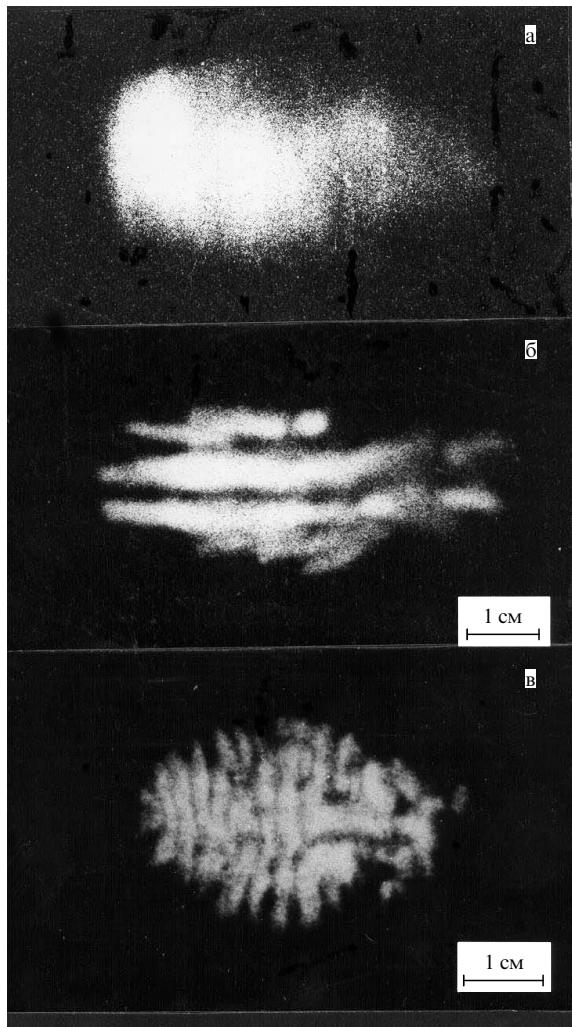


Рис. 6. Фотографии основных типов структур разряда в плоскости, перпендикулярной плоскости пересечения пучков: (а) $p = 1$ торр, (б) $p = 10$ торр, (в) $p = 70$ торр. Направление потока энергии слева направо, вектор электрического поля направлен вертикально.

когерентных пучка СВЧ-волн (см. рис. 2). Две наземные антенны находятся на расстоянии 30 км друг от друга. В таблице 2 приведены линейные размеры L_z , L_x ионизованной области и максимальная концентрация электронов N_{em} в центральном слое, определяемая согласно данным работ [28–33]. В таблице 3 даны характерные параметры наземной системы для создания ИИО: D — диаметр антенны, $\tau_0 = \ln(N_{em}/N_{e0})/v_i(E_0)$ — длительность импульса, необходимая для СВЧ-пробоя при оптимальном условии (7) $E = 5E_{cr}$, E_{cr} — критическое поле (1), E_0 — начальное электрическое поле в ИИО, P — мощность импульса в волновом пучке, W — энергия импульса, T_n — период повторения импульса или группы ионизующих импульсов. Расчеты проводились для двух длин волн $\lambda = 3$ и 0,8 см.

Таблица 3

H , км	D , м	τ_0 , нс	T_n , с	λ , см	E_{cr} , кВ см $^{-1}$	E_0 , кВ см $^{-1}$	P , ГВт	W , Дж
20	100	5	$1,2 \times 10^{-3}$	0,8	2,4	12	4	20
				3	1,9	9,5	38	190
30	100	24	$2,8 \times 10^{-2}$	0,8	1,5	7,5	3	70
				3	0,55	2,7	5,5	130

3. Плазмохимические процессы в СВЧ-разрядах

3.1. Основные каналы

образования озона и диссоциации кислорода

Рассмотрим основные процессы, приводящие к диссоциации молекул кислорода и образованию озона в воздухе, которые происходят под воздействием СВЧ-разряда. В результате СВЧ-разряда атомы кислорода могут образовываться в нескольких процессах: при диссоциации электронным ударом



при взаимодействии с электронно-возбужденными молекулами азота N_2^*



и при диссоциативном прилипании электронов к молекулам кислорода

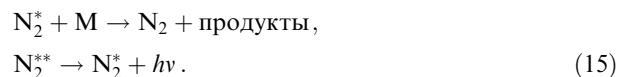


Как известно [1, 25], реакции (11) и (12) являются основными источниками атомарного кислорода. Напротив, реакция (13) дает относительно незначительный вклад в образование атомов кислорода [23].

Электронно-возбужденные молекулы азота образуются в разрядной плазме в реакциях возбуждения электронным ударом:



Число атомов кислорода, которое может быть образовано в реакциях (12), определяется как полным числом актов возбуждения (14), так и соотношением между процессами диссоциации кислорода при столкновении с возбужденными молекулами азота (12) и другими каналами релаксации возбуждения. Наряду с процессом (12) важными каналами убыли электронно-возбужденных молекул азота являются реакции их тушения при столкновении с молекулами, не приводящие к диссоциации кислорода, и спонтанное излучение:



Как показывают оценки, реакции взаимотушения метастабильного уровня $\text{A}^3\Sigma_u^+$ [35]



взаимодействия с атомарным кислородом



и тушения при столкновениях с электронами



вносят незначительный вклад в общие потери электронно-возбужденных молекул азота.

Отметим важную особенность реакций (12) и (15). Они все являются линейными по возбужденным молекулам азота. Следовательно, число атомов кислорода, образовавшихся в реакциях (12), может быть представлено как линейная комбинация числа образовавшихся в реакциях (14) возбужденных частиц. Полное число возбужденных частиц в свою очередь может быть найдено через скорость соответствующей реакции (14) интегрированием по времени СВЧ-импульса и по объему плазмы:

$$\sum N_j^* = \int_V k_j N_e [N_2] dt dv, \quad (19)$$

где $\sum N_j^*$ — полное число частиц j -го сорта, k_j — константа возбуждения в реакции (14), $[N_2]$ — концентрация молекул азота. С учетом процессов диссоциации (11) полное число атомов кислорода, образующихся под воздействием разряда, может быть получено из следующего соотношения:

$$\sum [O] = \int_V \left[\sum_j C_j \int k_j N_e [N_2] dt + 2 \int k_d N_e [O_2] dt \right] dv. \quad (20)$$

Здесь k_d — константа процесса (11), C_j — коэффициенты, которые могут быть определены из соотношения частот реакций (12) и (15).

Таким образом, видно, что количество молекул озона, образующихся в результате СВЧ-разряда, определяется полным числом атомов кислорода, которое в свою очередь зависит от скорости реакций диссоциации (11) и возбуждения (14) молекул электронным ударом. Константы этих реакций являются быстро растущими функциями параметра E_{eff}/N_m (где $E_{\text{eff}} = |E|/(1 + \omega^2/v_c^2)^{1/2}$ — эффективное электрическое поле). Следовательно, энергоцена образования одной молекулы озона определяется затратами энергии на диссоциацию кислорода и существенным образом зависит от динамики электрического поля и концентрации электронов в плазме.

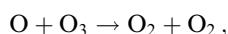
Рассмотренные выше кинетические процессы, приводящие к образованию атомарного кислорода в разрядной плазме, относятся к первой стадии всего процесса генерации озона в ИИО. На второй стадии происходит конверсия атомарного кислорода в озон в трехчастичном процессе



для которого константа реакции равна $k_1 = 6,2 \times 10^{-34} (300/T)^2 \text{ см}^6 \text{ с}^{-1}$ для $M = N_2$ и $k_1 = 6,9 \times 10^{-34} (300/T)^{1.25} \text{ см}^6 \text{ с}^{-1}$ для $M = O_2$. Другая часть атомов вновь соединяется в молекулы кислорода:



Одновременно атомы кислорода участвуют и в процессе разрушения озона в относительно медленной реакции



$$k_2 = 1,8 \times 10^{-11} \exp\left(-\frac{2300}{T}\right) \text{ см}^3 \text{ с}^{-1}. \quad (23)$$

Эта и другие обратные реакции разрушения озона зависят от того, насколько сильно изменились концентрации малых составляющих атмосферы в результате образования или поддержания ИИО.

3.2. Динамика малых составляющих атмосферы при импульсных СВЧ-разрядах

Динамика малых составляющих атмосферы изучалась в работе [23] численными методами для ИИО, создаваемой в импульсно-периодическом режиме, близком к поддержанию искусственного радиоотражающего зеркала. В расчетах использовалась схема, включающая в себя 166 реакций для 32 компонентов в основных и возбужденных состояниях. Учет столь большого количества процессов обусловлен тем, что концентрации различных компонентов, как правило, связаны между собой и в конечном счете влияют на динамику малых составляющих атмосферы. В уравнения баланса включены естественные источники частиц, учет которых позволял правильно описывать невозмущенное естественное состояние и процесс релаксации к нему. Для простоты рассмотрения неоднородностью электрического поля, нагревом нейтрального газа и выносом плазмы из ИИО пренебрегалось. Расчет был проведен для слабых пробойных импульсов с амплитудой электрического поля $E/E_{\text{cr}} = 3$, длительностью 6 нс и периодом повторения 33 мкс. При таких условиях концентрация электронов возрастала от импульса к импульсу и незначительно спадала в промежутке между ними. Результаты расчетов приведены на рис. 7. Из рисунка видно, что заметные изменения в концентрации малых составляющих возникают не сразу после первого импульса пробоя, а по прошествии 10^2 импульсов, когда становится заметной концентрация электронов в ИИО. Концентрация озона в момент окончания воздействия (отмечен на рисунке вертикальной прямой, отвечающей последовательности из 10^3 импульсов) примерно на порядок превышает начальное значение.

Расчеты показали, что к концу серии из 10^3 импульсов пробоя среда находится в сильно возмущенном состоянии. Концентрации различных малых составляющих (в том числе и оксидов азота) на порядки величины пре-

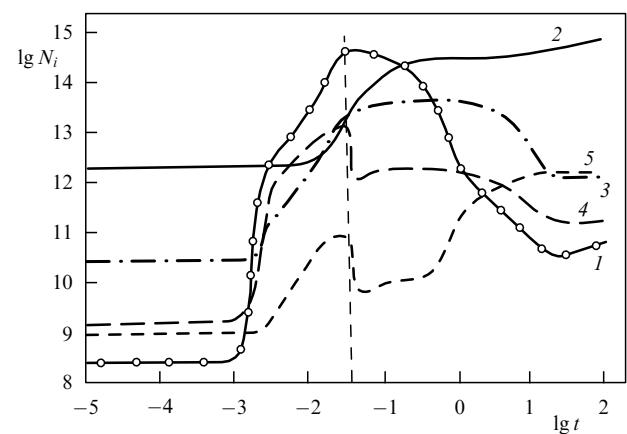


Рис. 7. Изменение концентрации малых нейтральных и возбужденных компонентов во время пробоя и релаксации на высоте 35 км: 1 — O, 2 — O₃, 3 — O₂(¹Δ_g), 4 — NO, 5 — NO₂. Вертикальная штриховая линия — момент окончания воздействия. Концентрация N_i — в единицах см⁻³, текущее время t — в секундах.

вышают свои равновесные значения. Наличие столь заметных возмущений концентрации малых компонентов при периодическом пробое означает, что процесс релаксации должен протекать весьма сложным образом. Из расчетов также следует, что для преимущественной генерации озона режим создания ИИО должен существенно отличаться от режима поддержания радиозеркала.

Действительно, как указывалось в разделе 3.1, процесс наработки озона в СВЧ-полях состоит из двух стадий. Вначале под действием энергичных электронов во время каждого СВЧ-импульса происходит диссоциация молекул кислорода (реакции (11)–(13)). Затем возникающий атомарный кислород является источником озона в тройных соударениях (реакция (21)). Характерное время переработки атомарного кислорода в озон и определяет период повторения СВЧ-импульса или группы ионизующих импульсов — период модуляции (в секундах), который с учетом численного значения константы реакции (21) имеет вид

$$T_n = \frac{1,6 \times 10^{33}}{N_m [O_2]} \left(\frac{T}{300} \right)^2, \quad (24)$$

где $[O_2]$ и N_m — концентрации молекул кислорода и воздуха (см^{-3}) на соответствующей высоте. Характерные величины T_n для высот 20–30 км приведены в табл. 3.

Отметим и другие важные обстоятельства. Во-первых, при существенно меньших периодах повторения импульсов в ИИО накапливается атомарный кислород, который разрушает озон в реакции (23). Поэтому при большой частоте повторения импульсов во избежание этого эффекта необходима смена местоположения ИИО. Во-вторых, указанный согласно (24) период повторения примерно на три порядка больше, нежели время релаксации ионизации. Наконец, чрезвычайно важен для создания атмосферного озонатора выбор режимов, при которых не накапливаются оксиды азота, приводящие к эффективному разрушению озона в каталитических реакциях.

Таким образом, теория указывает, что в зависимости от выбранного режима импульсного разряда в ИИО могут нарабатываться различные примесные составляющие: O , $O_2(^1\Delta_g)$, NO , NO_2 , O_3 . Все они представляют интерес для дальнейшего изучения динамики малых составляющих в реальных экспериментах в атмосфере. Разумеется, для определения оптимального режима генерации озона важную роль играют результаты лабораторных экспериментов, моделирующих плазмохимические процессы в ИИО, создаваемой с помощью наносекундных волновых пучков.

3.3. Лабораторные исследования генерации озона и оксидов азота в СВЧ-разрядах в воздухе

Моделирование плазмохимических процессов в ИИО проводилось в цикле лабораторных экспериментов [36–42]. В экспериментах использовались различные источники СВЧ-излучения. В первой серии экспериментов применялся релятивистский карсинotron 8-миллиметрового диапазона длин волн с импульсной мощностью $P = 10–25$ МВт, длительностью импульса $\tau \approx 5$ нс и частотой их следования $F = 1–10$ Гц. Вторая серия экспериментов была выполнена с использованием магнетрона 3-сантиметрового диапазона длин волн с им-

пульсной мощностью $P_1 = 50$ кВт, длительностью импульса $\tau_1 = 500$ нс и частотой следования импульсов $F = 10–1000$ Гц. Для исследования синтеза озона в более коротких импульсах в этих экспериментах применялось также устройство сжатия СВЧ-импульсов на основе сверхразмерного волноводного резонатора [41]. Устройство обеспечивало получение СВЧ-импульсов длительностью $\tau_2 = 6$ нс и мощностью $P_2 = 800$ кВт.

Схема одной из экспериментальных установок приведена на рис. 8. Излучение от СВЧ-генератора в виде гауссова волнового пучка направлялось на сферическое металлическое зеркало диаметром 24 см с радиусом кривизны $R = 30$ см. Зеркало формировало волновой пучок, который фокусировался в центр сферической кварцевой колбы объемом $\sim 900 \text{ см}^3$. Стенки колбы могли охлаждаться жидким азотом. Температура газа устанавливалась равной температуре стенок и изменялась в диапазоне $T = 200–300$ К. Разряд зажигался в фокусе зеркала и представлял собой набор плазмоидов, расположенных в пучностях стоячей волны, образованной падающей и отраженной от зеркала электромагнитными волнами.

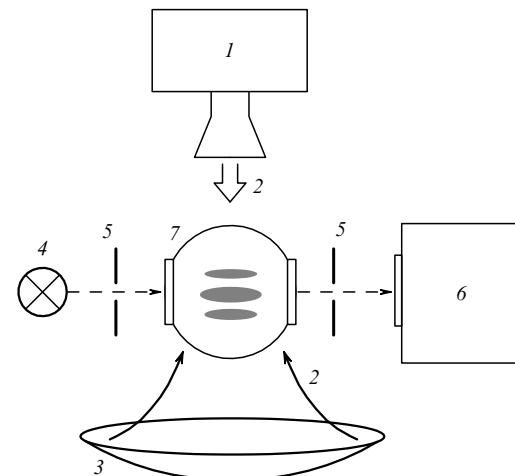


Рис. 8. Схема экспериментальной установки: 1 — генератор, 2 — СВЧ-излучение, 3 — сферическое зеркало, 4 — водородная лампа, 5 — диафрагмы, 6 — многоканальный анализатор спектра OVA-284, 7 — охлаждаемая жидким азотом колба.

Напряженность поля E в фокусе определялась по времени пробоя воздуха τ_{br} из соотношения $v_i(E_{eff}/p) = -\ln(N_{em}/N_{e0})/\tau_{br}$, где $v_i(E_{eff}/p)$ — частота ионизации, зависящая от эффективного электрического поля E_{eff} , N_{em} и N_{e0} — конечная и начальная концентрации электронов. Измеренная таким образом напряженность электрического поля составляла величину $E = 20–25 \text{ кВ см}^{-1}$.

Эксперименты проводились в сухом воздухе, в диапазоне давлений $p = 10–90$ торр. Давление и температура соответствовали условиям в атмосфере на высотах $H = 15–30$ км. Удаленность разряда от стенок колбы обеспечивала протекание химических реакций в объеме, так как время диффузии молекул на стенку при исследуемых давлениях существенно превышало характерное время протекания основных химических реакций, определяющих синтез озона. Отметим также, что в данной постановке эксперимента реализовывался режим нако-

пления продуктов химических реакций и моделировались условия, когда частицы газа за время серии импульсов не успевают покинуть область, занятую разрядом.

Измерения концентрации озона O_3 и диоксида азота NO_2 проводились по поглощению УФ-излучения водородной лампы на длинах волн соответственно $\lambda \approx 260$ и 360 нм на основании известного соотношения

$$I(\lambda) = I_0(\lambda) \exp(-\sigma_a N_a L), \quad (25)$$

где $I(\lambda)$ и $I_0(\lambda)$ — интенсивности прошедшего и падающего диагностического излучения на длине волны λ , L — длина оптического пути, σ_a — сечение поглощения, N_a — концентрация поглощающего компонента. При обработке результатов использовались сечения поглощения, приведенные в [43, 44].

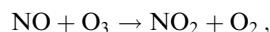
Приемником излучения служил многоканальный оптический анализатор (OVA-284). Анализатор спектра OVA-284 представлял собой спектральную линейку с разрешением 0,05 нм, сопряженную с компьютером. Обработка данных и их вывод на экран дисплея производились непосредственно во время эксперимента. Динамика спектра поглощения во времени измерялась в узком спектральном диапазоне (~ 2 нм) вблизи выбранной длины волны. Число выбранных спектральных интервалов, в которых одновременно производились измерения, могло изменяться от 1 до 9. Спектр поглощения интегрировался внутри каждого спектрального интервала и усреднялся за время ~ 200 мс. Флуктуации интенсивности диагностического излучения контролировались в области спектра, где отсутствовало поглощение излучения продуктами плазмохимических реакций, и автоматически учитывались при обработке результатов измерений. Описанная выше процедура обработки существенно повышала точность измерений и позволяла регистрировать изменения интенсивности прошедшего через разрядную область света $\Delta I/I_0 \sim 10^{-3} - 10^{-4}$. Погрешность метода составляла $\Delta [O_3] \approx 10^{12} \text{ см}^{-3}$ и $\Delta [NO_2] \approx 2 \times 10^{13} \text{ см}^{-3}$ соответственно.

В первой серии экспериментов (при $T = 300$ К) были выявлены следующие закономерности образования озона в воздухе. В течение первых импульсов концентрация озона линейно нарастает (рис. 9), достигает максимума и затем плавно спадает до низкого уровня. С увеличением давления газа концентрация O_3 в максимуме возрастает, а спад наступает позже. Концентрация

NO_2 превышает порог регистрации в момент, когда концентрация озона проходит через максимум. Затем по мере уменьшения O_3 концентрация NO_2 возрастает, достигает максимума и спадает до некоторого уровня.

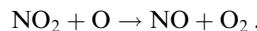
При использовании небольшой группы импульсов ($N = 3 - 30$ импульсов) озон после окончания серии импульсов распадается тем быстрее, чем больше импульсов было в группе. После распада озона его концентрация стабилизируется на некотором уровне. В разряде в кислороде спад концентрации O_3 не наблюдается.

Подобная динамика изменения концентрации озона может быть объяснена [39] образованием и накоплением в вакуумной камере стабильных химических продуктов, разрушающих озон. Из анализа характерного времени распада O_3 было установлено, что основной причиной разрушения озона является реакция



$$k_3 = 4,3 \times 10^{-12} \exp\left(-\frac{1560}{T}\right) \text{ см}^3 \text{ с}^{-1}. \quad (26)$$

В результате этой реакции накапливается диоксид азота, который при достаточно больших концентрациях выводит атомарный кислород из процесса образования озона в реакции [44]



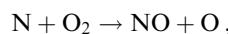
$$k_4 = 6,5 \times 10^{-12} \exp\left(-\frac{120}{T}\right) \text{ см}^3 \text{ с}^{-1}. \quad (27)$$

Из реакций (21) и (27) можно определить значение пороговой концентрации NO_2 , при которой процесс (27) становится определяющим для гибели атомов кислорода (при $T = 300$ К):

$$[NO_2^*] \geq [O_2][M] \frac{k_1}{k_4} \simeq 1,5 \times 10^{10} p^2. \quad (28)$$

Здесь p — давление, торр. Когда концентрация диоксида азота достигает этой величины $[NO_2^*]$, образование озона прекращается, процесс (26) приводит к уменьшению уже наработанной концентрации O_3 (см. рис. 9), а число разрушенных молекул NO_2 близко к числу образующихся в одном импульсе атомов кислорода. Из (28) следует также, что концентрация NO_2 , при которой происходит ограничение роста озона, существенно возрастает при повышении давления воздуха. Наблюдаемые в эксперименте перед спадом O_3 концентрации NO_2 достаточно хорошо согласуются с оценкой (28). Так, измерения показали, что при $p = 90$ торр и $T = 300$ К в серии из 10^2 импульсов образуется $\sim 5 \times 10^{13} \text{ см}^{-3}$ диоксида азота.

Первоначально NO может образовываться в различных реакциях, среди которых наиболее существенна при низких энерговкладах реакция с участием атомов азота [44]:



$$k_5 = 4,4 \times 10^{-12} \exp\left(-\frac{3220}{T}\right) \text{ см}^3 \text{ с}^{-1}. \quad (29)$$

Однако из-за большой скорости обратная реакция [45]

$$NO + N \rightarrow N_2 + O, \quad k_6 = 1,05 \times 10^{-12} T^{0.5} \text{ см}^3 \text{ с}^{-1} \quad (30)$$

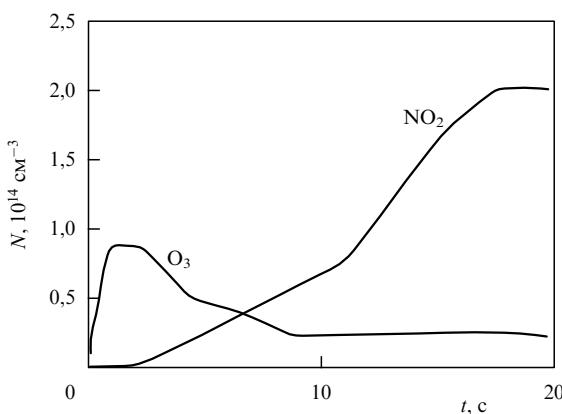
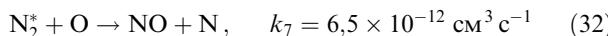


Рис. 9. Зависимость от времени концентрации озона и диоксида азота при $T = 300$ К, $p = 75$ торр, $F = 3$ Гц.

ограничивает образование оксидов азота. Когда наработка NO определяется, в основном, реакцией (29), из (29), (30) можно оценить стационарную концентрацию NO при длительном воздействии:

$$[\text{NO}] \approx [\text{O}_2] \frac{k_5}{k_6} \approx \frac{10^{17}}{T^{0.5}} p \exp\left(-\frac{3220}{T}\right). \quad (31)$$

Из (31) следует, что концентрация NO не может превышать величины $[\text{NO}] \sim 4 \times 10^9 p \text{ см}^{-3}$ при $T = 300 \text{ K}$. С ростом энерговклада появляются другие каналы образования NO, например реакции с участием колебательно-возбужденного азота N_2^*



и метастабильных молекул (17), приводящие к увеличению концентрации оксида азота.

Измерение колебательной температуры азота по относительной заселенности уровней $v = 0-3$ состояния $\text{C}^3\Pi_u$ (по методике [46]) дало величину $T_v \approx 0.25 \text{ эВ}$. Такая колебательная температура является пороговой [44] для реакции (32), поэтому вклад этой реакции в наших условиях может быть весьма заметным. Отметим также, что согласно [45, 47] константа процесса (32) при $T \leq 1000 \text{ K}$ слабо зависит от температуры газа.

Таким образом, проведенные лабораторные исследования указывают на возможность значительной наработки в импульсных разрядах в воздухе как озона, так и оксидов азота. При этом получение максимально возможной концентрации озона и минимального количества оксидов азота в ионизованной области при комнатной температуре воздуха ($T \sim 300 \text{ K}$) возможно только при кратковременном поддержании разряда, т.е. при небольшом числе СВЧ-импульсов в серии. Время поддержания зависит от частоты повторения импульсов и энергии в импульсе. В этом случае не происходит накопления оксидов азота до концентрации, ограничивающей образование озона.

Чрезвычайно важно, что большинство приведенных выше реакций сильно зависит от температуры газа T . Поэтому в условиях реальной стратосферы при низкой температуре $T = 200-220 \text{ K}$ соотношения между основными процессами образования O_3 могут очень сильно изменяться. Для прогноза воздействия СВЧ-разряда на стратосферу была исследована динамика изменения концентрации O_3 при низких температурах газа.

На рисунке 10 приведена зависимость концентрации O_3 от времени для $p = 30 \text{ торр}$ при понижении температуры газа. Наработка NO_2 в этих экспериментах не превышала уровня чувствительности метода измерений $\sim 10^{13} \text{ см}^{-3}$. Из рисунка видно, что при понижении температуры до 215 K концентрация озона при всех давлениях возрастала более чем на порядок, а спад $[\text{O}_3]$ не наблюдался даже при длительном воздействии. На рисунке 11 приведена зависимость концентрации озона от времени при фиксированной концентрации нейтральных частиц $N_m = 2 \times 10^{18} \text{ см}^{-3}$ (соответствующей высоте $H = 20 \text{ км}$) для различных температур газа. Максимальная концентрация озона при исследуемых давлениях возрастала пропорционально давлению воздуха.

Анализ показывает, что уменьшение температуры газа приводит к увеличению скорости образования озона в реакции (21) и одновременно сильно снижает

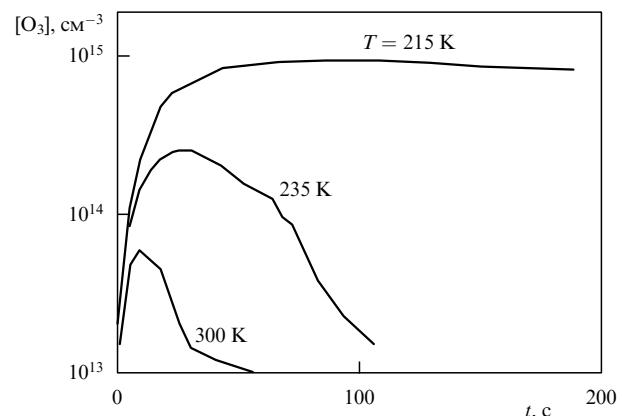


Рис. 10. Зависимость концентрации озона от времени при различных температурах воздуха ($p = 30 \text{ торр}$ и $F = 3 \text{ Гц}$).

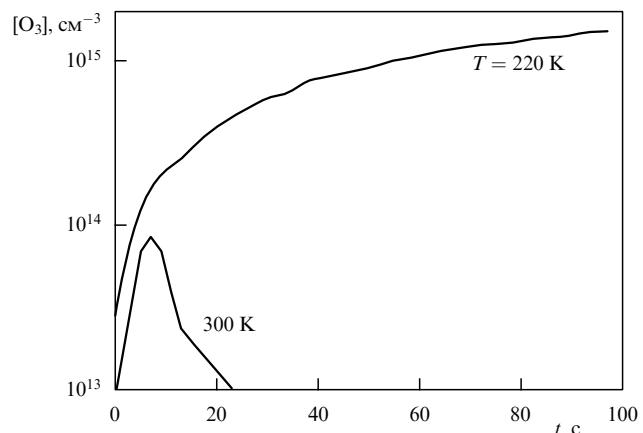


Рис. 11. Зависимость концентрации озона от времени при заданной концентрации нейтральных частиц $N_m = 2 \times 10^{18} \text{ см}^{-3}$, $F = 3 \text{ Гц}$ и различных температурах воздуха.

эффективность образования оксидов азота в реакции (29). Согласно оценкам, концентрация образовавшегося в разряде за один импульс озона при давлении $p = 90 \text{ торр}$ составляла $(2-3) \times 10^{12} \text{ см}^{-3}$, в то время как концентрация диоксида азота не превышала 10^{10} см^{-3} .

Таким образом, при создании СВЧ-разряда в атмосфере возможно достижение условий, когда концентрация диоксида азота не будет превышать естественный уровень [1], а концентрация O_3 будет соответствовать или даже заметно превышать концентрацию в максимуме озонового слоя.

3.4. Энергетическая цена образования молекул озона

Важная характеристика, необходимая для определения перспектив создания атмосферного озонатора, — его энергетическая эффективность. Экспериментальные исследования показали, что эффективность образования озона существенным образом зависит от электродинамической системы, создающей разряд. В частности, для систем типа стоячей волны или пересекающихся волновых пучков эффективность оказывается более высокой, чем при создании разряда сходящейся цилиндрической TE-волной [48].

В экспериментах разряд зажигался в двух принципиально различных электродинамических системах, изоб-

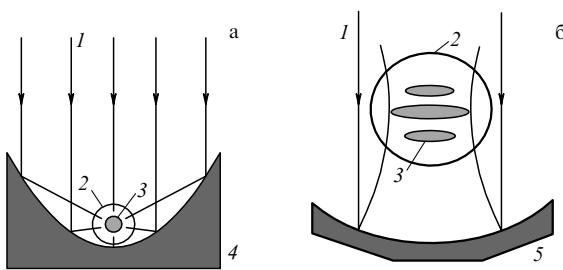


Рис. 12. Схемы создания разряда с помощью параболического цилиндра (а) и сферического зеркала (б): 1 — СВЧ-излучение, 2 — кварцевая колба, 3 — разрядная плазма, 4 — зеркало в виде параболического цилиндра, 5 — сферическое зеркало.

раженных на рис. 12а, б. В первом случае (рис. 12а) СВЧ-излучение фокусировалось глубоким зеркалом в виде параболического цилиндра, так что электромагнитное поле в области пробоя было близко к стоячей цилиндрической TE -волне (вектор электрического поля \mathbf{E} направлен вдоль фокальной оси зеркала). Разряд имел форму цилиндра диаметром несколько миллиметров и длиной приблизительно 30 см. Во втором случае (рис. 12б) с помощью сферического зеркала в его фокальной области формировалась почти плоская стоячая электромагнитная волна и разряд представлял собой набор плазмоидов диаметром около 3 см, локализованных в пучностях стоячей волны. Цилиндрическая геометрия в силу большей протяженности разряда облегчала измерения концентрации озона, а плоская более соответствовала режимам создания разряда в верхней атмосфере Земли с помощью пересекающихся волновых пучков.

Энергоцена образования одной молекулы озона измерялась на стадии линейного роста концентрации озона (когда мала плотность его разрушителей) и определялась как отношение излученной генератором СВЧ-энергии к полному числу образовавшихся молекул O_3 :

$$\eta = \frac{P\tau n_p}{[O_3]V}, \quad (33)$$

где n_p — число СВЧ-импульсов, $[O_3]$ — концентрация озона после n_p импульсов, V — объем колбы.

Заметим, что вычисления по формуле (33) дают завышенный результат энергоцены, так как не учитывают потери СВЧ-энергии, возникающие, в основном, по двум причинам. Во-первых, часть энергии отражалась стенками колбы. Во-вторых, из-за неоднородного пространственного распределения поля в пучке пробой газа возникал в его центральной области, тогда как на периферии электромагнитная энергия не поглощалась плазмой.

Зависимость энергоцены от плотности воздуха для двух указанных выше случаев приведена на рис. 13. Разброс экспериментальных точек объясняется нестабильностью импульсной мощности СВЧ-генератора, от которой, как будет показано ниже, энергоцена зависит достаточно сильно. Из рисунка 13 видно, что энергоцена образования озона уменьшается с ростом плотности, причем в квазиплоской геометрии энергоцена значительно меньше, чем в цилиндрической.

По результатам проведенных модельных экспериментов можно сделать вывод о том, что эффективный

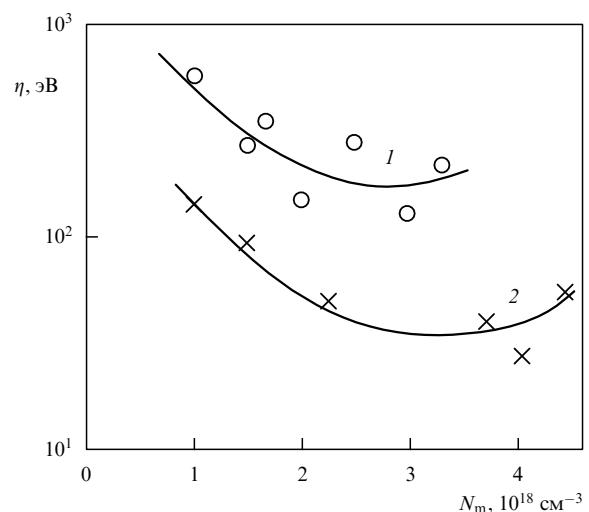


Рис. 13. Экспериментальная зависимость энергоцены образования одной молекулы озона от плотности воздуха в полях электромагнитных волн, близких к цилиндрической (1) и плоской (2) геометрии.

способ получения озона в атмосфере найден. Наносекундный СВЧ-разряд может эффективно генерировать озон. В лабораторных экспериментах получены довольно низкие энергетические затраты на образование одной молекулы озона ($\eta = 15-20$ эВ на молекулу). Такая энергоцена соответствует производству 100 г озона на 1 кВт · ч затрат электроэнергии.

В разрядах наносекундной длительности основная доля поглощенной в плазме СВЧ-энергии тратится на ионизацию, диссоциацию и возбуждение электронных уровней молекул O_2 и N_2 . Образование атомов кислорода O , конвертирующих затем в озон, происходит в основном в процессах диссоциации молекул O_2 электронным ударом (11) и при столкновении O_2 с метастабильными молекулами N_2 (реакция (12)). Константы скорости процессов (11) и (12) определяются функцией распределения электронов по энергиям и зависят от напряженности электрического поля в плазме. Значения константы скорости диссоциации кислорода в процессе (11) k_d достаточно хорошо известны для постоянного электрического поля [49, 50]. Воспользовавшись этими данными, оценим энергетические затраты на образование одной молекулы озона в СВЧ-разряде. Считаем, что весь атомарный кислород, образовавшийся в процессе диссоциации (11), вступает в реакцию синтеза озона (21). Оценку проведем на основании уравнения, описывающего наработку атомов кислорода в течение импульса,

$$\frac{d[O]}{dt} = 2k_d[O_2]N_e. \quad (34)$$

Из формулы (34) концентрация озона, произведенного за один СВЧ-импульс, может быть оценена как

$$[O_3] = [O] = 2k_d \frac{E_{\text{eff}}}{N_m} [O_2]N_e \tau. \quad (35)$$

Затраты энергии на образование одной молекулы озона получаем из отношения поглощенной в плазме СВЧ-энергии к концентрации озона [51]:

$$\eta = \frac{\sigma E^2 \tau}{2k_d [O_2] N_e \tau} = \alpha \frac{e^2}{m} \left(\frac{v_c}{N_m} \right)^{-1} \frac{(E_{\text{eff}}/N_m)^2}{k_d}, \quad (36)$$

где $\sigma = e^2 N_e v_c / m(v_c^2 + \omega^2)$ — удельная проводимость плазмы, $\alpha = 1/2$ и $5/2$ для кислорода и воздуха соответственно. Из (36) легко определить оптимальные условия, когда при заданной энергии СВЧ-импульса число возникающих в ионизованной области атомов О максимально. Величина $(E_{\text{eff}}/N_m)^2/k_d$ имеет минимум при значении приведенного эффективного электрического поля E_{eff}/N_m , определяемого выражением

$$\frac{E_{\text{eff}}}{N_m} = \frac{2k_d}{dk_d/d(E_{\text{eff}}/N_m)}. \quad (37)$$

В условиях оптимума (37) на диссоциацию молекул кислорода идет доля энергии СВЧ-импульса, максимальная из возможных. Заметим, что эти условия аналогичны оптимальным условиям максимальных затрат энергии на ионизацию (7) в наносекундном СВЧ-разряде.

На рисунке 14 представлена рассчитанная по формуле (36) зависимость η от приведенного электрического поля E_{eff}/N_m в кислороде (кривая 1). Как видно из графика, в условиях оптимума величина поля меньше или порядка порогового, необходимого для СВЧ-пробоя кислорода. Отметим, что низкая энергоцена образования молекулы озона для разряда в кислороде $\eta \sim 3$ эВ на молекулу была получена в эксперименте [52], в котором разряд создавался в объемном резонаторе. Образование плазмы приводило к смещению резонансной частоты резонатора, тем самым к понижению напряженности электрического поля и поддержанию импульсно-периодического разряда в допробойном поле.

использовались константы скорости прямой диссоциации O_2 в воздухе из работы [53]:

$$k_d = 10^{-[A+B/(E_{\text{eff}}/N_m)]}, \quad (38)$$

где A и B — числовые коэффициенты (см. [53]). Учитывалось, что диссоциация молекул кислорода в реакции (11) происходит с трех электронных уровней, поэтому при вычислении η бралась суммарная константа k_d .

На рисунке 14 представлены также экспериментальные данные, полученные для разряда, формируемого квазиплоской стоячей волной в кислороде и воздухе [41]. Величина эффективного поля E_{eff} определялась по напряженности электрического поля в разрядной области до начала пробоя (первый вариант) и рассчитывалась в плазме (второй вариант) для разряда в поле плоской стоячей волны [48]. При нахождении E_{eff} частота столкновений электронов (s^{-1}) принималась равной $v_c = 3,7 \times 10^9 p$ и $5,3 \times 10^9 p$ в кислороде и в воздухе соответственно [54].

Как видим из рисунка, экспериментальные величины η в воздухе меньше рассчитанных по формуле (36). Это свидетельствует о том, что канал диссоциации молекул O_2 , связанный с возбуждением электронных уровней молекул N_2 , играет существенную роль в плазме наносекундного СВЧ-разряда в воздухе. Известно, например, что в озонаторах, работающих на основе барьерного разряда, от 50 до 90 % актов диссоциации O_2 в воздухе осуществляется за счет непрямого канала [55]. Расчеты константы скорости диссоциации молекул O_2 с учетом процессов (12), (14), выполненные в [56] для СВЧ-разряда в воздухе, также свидетельствуют о том, что непрямой канал является основным каналом диссоциации O_2 . На рисунке 14 (кривая 3) приведены результаты расчета энергозатрат на образование озона с учетом вклада электронно-возбужденных состояний молекул азота, рассчитывавшихся в работе [56]. Видно, что они больше соответствуют результатам наблюдений.

Таким образом, в воздухе также существуют оптимальные условия диссоциации кислорода, однако в отличие от разряда в кислороде [51] их определение является более сложной задачей. Заметим, что приведенные выше оценки относились к нахождению оптимальных условий для образования атомов кислорода. Для разряда, создаваемого одиночными наносекундными СВЧ-импульсами (или малой серией СВЧ-импульсов), эти оценки справедливы и для озона, так как не успевают накопиться разрушающие озон частицы и не происходит существенного нагрева газа. При этом энергоцена образования озона определяется электродинамикой разряда и зависит от того, как будут быстро достигнуты и долго поддерживаться в разрядной плазме оптимальные условия диссоциации молекул кислорода.

Условия эффективной генерации озона (без нагрева газа и накопления разрушающих озон частиц в разрядной области) могут быть, по-видимому, достигнуты не только в наносекундном СВЧ-разряде [52]. Низкая энергоцена образования молекулы озона была получена в эксперименте, в котором разряд создавался в объемном СВЧ-резонаторе (рис. 15). Цилиндрический резонатор длиной 50 см и диаметром 7 см возбуждался на моде TE_{11p} . Эксперименты выполнялись при следующих условиях: длина волны 5 см, длительность импульса 2,5 мкс, импульсная мощность генератора 0,1–9 кВт, частота повторения импульсов 330 Гц, давление воздуха

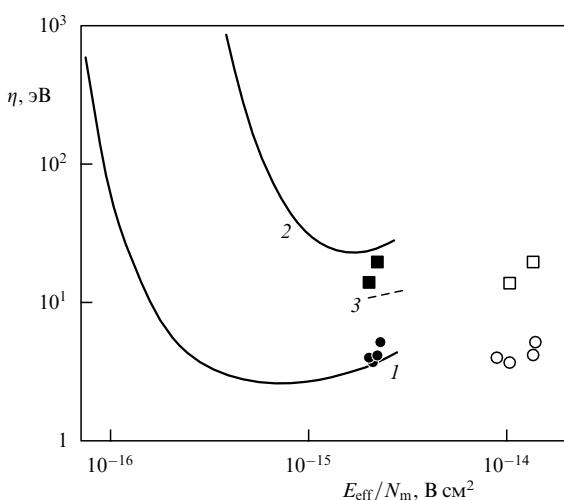


Рис. 14. Зависимость затрат энергии на образование одной молекулы озона от приведенного электрического поля в плазме. Расчет: 1 — кислород, 2, 3 — воздух; эксперимент ($\tau = 6$ нс): ○, ● — кислород, □, ■ — воздух. Величина эффективного поля E_{eff} определялась по напряженности электрического поля до начала пробоя (○, □) или рассчитывалась в плазме (●, ■).

В воздухе, как уже отмечалось, возможны два канала образования атомов О: путем прямой диссоциации молекул O_2 и непрямой канал за счет реакций (12) и (14). Учитывая только прямую диссоциацию, можно рассчитать зависимость энергозатрат на образование O_3 от приведенного электрического поля. На рисунке 14 (кривая 2) зависимость $\eta(E_{\text{eff}}/N_m)$ рассчитана по формуле (36) для СВЧ-разряда в воздухе. При расчете

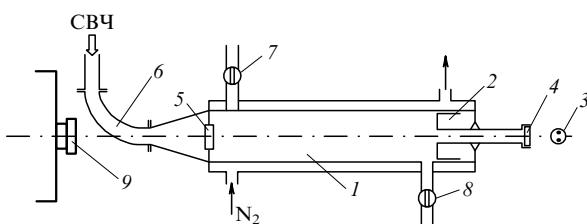


Рис. 15. Схема экспериментальной установки: 1 — волноводный резонатор на mode TE_{11p} с двойными стенками для охлаждения парами жидкого азота, 2 — поршень, 3 — ртутная лампа, 4 и 5 — входное и выходное кварцевые окна, 6 — волноводный тракт, 7 и 8 — выпускной и выпускной вентили для прокачки воздуха, 9 — манометр.

$p = 1\text{--}30$ торр. Нагруженная добротность резонатора равнялась ~ 300 . Эксперименты проводились при прокачке воздуха через резонатор с небольшой скоростью $0,5 \text{ л мин}^{-1}$. Стенки резонатора могли охлаждаться парами жидкого азота. Температура воздуха устанавливалась равной температуре стенок и изменялась в диапазоне $T = 250\text{--}300$ К.

В этом эксперименте были получены низкие затраты на образование одной молекулы озона $\eta = 5$ эВ на молекулу (рис. 16). Это, по-видимому, связано с тем, что средняя концентрация электронов в объеме резонатора была много меньше критической для частоты СВЧ-излучения и составляла $\sim 10^9 \text{ см}^{-3}$.

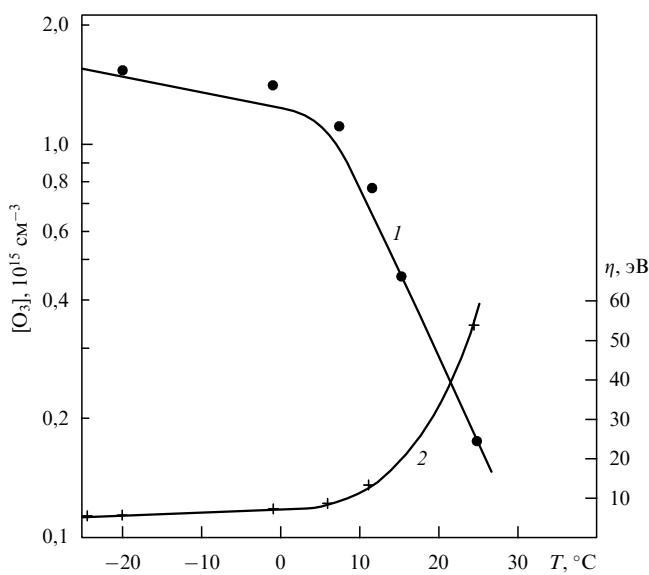


Рис. 16. Зависимость средней концентрации молекул озона (1) и энергетической цены образования молекулы озона (2) от температуры стенок резонатора.

Низкая электронная концентрация N_e поддерживалась за счет сильной обратной связи резонатора с СВЧ-генератором. В свою очередь, из-за низкой N_e существенного нагрева газа не происходило, так же как не происходило накопления разрушающих озон частиц благодаря прокачке газа через резонатор. Выполненный эксперимент свидетельствует о возможности дальнейшего снижения энергоценны образования молекул озона, полученной к настоящему времени в наносекундных СВЧ-разрядах.

4. Генерация озона в стратосфере с помощью ИИО

Проведенные лабораторные эксперименты и теоретические оценки показали, что в наносекундных СВЧ-разрядах при давлениях газа и температурах, существующих в стратосфере, возможна эффективная генерация озона с энергозатратой (100 г озона на 1 кВт·ч энергии), соответствующей лучшим современным озонаторам. Однако процессы в реальной атмосфере определяются множеством физико-химических процессов, которые трудно полностью воссоздать в лабораторных условиях. Возникают вопросы: какова будет судьба дополнительно генерируемых в атмосфере озона и других примесей? на каких высотах лучше всего проводить наработку озона? к каким изменениям в распределении озонаового слоя может приводить такой искусственный атмосферный озонатор? Ответы на эти и другие вопросы можно найти с помощью модельных численных расчетов.

4.1. Образование и разрушение озона в натуральных условиях

Образование и разрушение озона в атмосфере, в основном, имеет фотохимическую природу. Земная атмосфера хорошо поглощает солнечное излучение в УФ-области. Принято выделять три области спектра УФ-излучения: область ближнего ультрафиолета — от 320 до 400 нм (УФ-А), средний ультрафиолет — от 290 до 320 нм (УФ-В) и область дальнего ультрафиолета — от 190 до 200 нм (УФ-С). Именно на эти диапазоны длин волн приходится максимальная реакция биологических объектов (на единицу энергии излучения), часто превышающая изменения, вызываемые более жестким рентгеновским излучением.

Излучение с длиной волны меньше 200 нм очень эффективно поглощается молекулами кислорода, практически полностью исчезая на высотах 20–25 км. Поглощение в этой области спектра сопровождается распадом (фотодиссоциацией) поглощающих молекул на атомы:



Здесь $h\nu$ — квант света (фотон), энергия которого превышает энергию связи атомов в молекуле (для кислорода этому соответствует излучение с длиной волны $\lambda \leq 240$ нм).

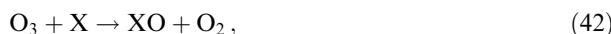
В отличие от С-области ультрафиолета в В-области УФ-излучение практически не поглощается основными газами атмосферы. Однако под воздействием более жесткого излучения меняется химический состав атмосферы. В результате фотодиссоциации молекул атмосферных газов образуются свободные радикалы и атомы, например атомы кислорода O и азота N, молекулы оксида азота NO и гидроксида OH. Отличительная черта этих частиц — высокая химическая активность, позволяющая им вступать в реакции даже с химически устойчивыми соединениями. Так, появляющиеся в результате фотодиссоциации атомы кислорода образуют молекулы озона O₃ в реакции (21). Именно реакции (39), (21)–(23), впервые рассмотренные известным английским геофизиком С. Чепменом в 1930 г., в значительной мере и определяют ту равновесную концентрацию озона, которая устанавливается в атмосфере [1]. Важная осо-

бенность молекулы озона состоит в том, что она весьма эффективно поглощает УФ-излучение как раз в В-области спектра. Фотодиссоциация озона под воздействием УФ-излучения в реакции



на больших высотах (в области малой плотности атмосферы) и отсутствие диссоциации кислорода на низких высотах, куда не проникает жесткое УФ-излучение, приводят к формированию в атмосфере озонового слоя. Слой озона достаточно тонок. Если представить себе, что этот озон полностью собран на поверхности Земли, то при нормальном давлении он покрыл бы ее слоем толщиной всего в 2–3 мм. Тем не менее именно этот слой и служит "волшебным щитом", который предохраняет Землю от губительного воздействия солнечной радиации.

Исследования показали, что существенную роль в процессах формирования озонового слоя и разрушения озона в атмосфере играют уже упоминавшиеся катализитические циклы. В результате действия этих циклов химические реакции ускоряются веществом-катализатором, многократно вступающим в промежуточные реакции и восстанавливаясь после образования конечных продуктов. Для процесса разрушения озона катализитический цикл может быть описан реакциями



Сравнивая левые и правые части реакций (42) и (43), легко видеть, что результатом действия цикла является гибель атома кислорода и молекулы озона, как и в реакции (23), при их непосредственном взаимодействии. В качестве катализатора X для озона могут выступать различные химические соединения и элементы: оксид азота NO, молекулы гидроксида OH, атомы хлора Cl. Соответственно различают азотный, водородный и хлорный катализитические циклы разрушения озона. В результате их действия происходит многократное (на несколько порядков) увеличение скорости реакции (23), приводящей к гибели озона.

Отметим, что в атмосфере большинство соединений, выступающих в качестве таких катализаторов, имеет антропогенное (связанное с результатами человеческой деятельности) происхождение. Так, оксиды азота и водородные радикалы содержатся в газовых выбросах многочисленных производств, тепловых электростанций и в отработанных газах различных транспортных средств, а источником хлора служат фреоны (хлорфтормоногидриды), широко используемые в холодильных установках, огнетушителях и аэрозольных баллончиках. Обладающие низкой химической активностью фреоны способны достигать высот озонового слоя, где они разрушаются под воздействием УФ-излучения, а освободившиеся в результате их диссоциации атомы хлора вступают в катализитические реакции с озоном [57]. Время жизни фреонов в атмосфере составляет десятки лет [58]. В силу многолетнего существования малых примесей в атмосфере и плохого контроля за их попаданием в атмосферу временной прогноз состояния озонового слоя затруднителен. Однако, как показано выше, при создании ИИО в атмосфере возможна как дополнительная генерация озона, так и генерация оксидов азота —

других малых компонентов, играющих важную роль в катализитических процессах. Изменение режима работы ИИО позволяет эффективно менять режимы генерации. Именно это обстоятельство может позволить, используя ИИО, эффективно зондировать состояние озонового слоя за счет контролируемой генерации дополнительного озона и в небольших количествах некоторых малых составляющих. Измеряя их концентрации в ИИО и наблюдая за установлением равновесных значений, можно определить состав атмосферы в ИИО и получить информацию о влиянии малых составляющих на озональный слой.

4.2. Оптимальное расположение источника озона

Для определения оптимальной высоты расположения источника дополнительного озона рассмотрим прежде всего наиболее простую модель, так называемую модель Чепмена [1]. В этой модели учитываются лишь кислородные компоненты воздуха, взаимодействующие между собой и с солнечным УФ-излучением. При этом, естественно, выделяется семейство нечетного кислорода O_x , включающее в себя озон и возбужденные атомы кислорода: $\text{O}_x = \text{O}_3 + \text{O}(^3\text{P}) + \text{O}(^1\text{D})$. Удобство введения понятия семейства заключается в том, что наиболее быстрые реакции ведут только к перераспределению внутри семейства. Поэтому в семействе возникает динамическое равновесие между компонентами O_3 , $\text{O}(^3\text{P})$, $\text{O}(^1\text{D})$. В условиях, когда концентрация озона значительно превосходит концентрацию атомарного кислорода, имеем $\text{O}_x \approx \text{O}_3$. Это означает, что реальное время жизни озона может существенно превышать его фотохимическое время жизни. Так, например, на высоте ~20 км фотохимическое время жизни озона составляет $\tau_{\text{O}_3} \approx 1$ ч, и время жизни семейства $\tau_{\text{O}_x} \approx 1$ год [59].

Нас будут интересовать времена релаксации начального возмущения озона τ_p к равновесному состоянию. В таблице 4 приведены рассчитанные в рамках модели Чепмена времена релаксации в сутках для высот $H = 20, 25, 30, 35$ км на различных широтах для трех месяцев (октябрь, ноябрь, декабрь) [59]. В расчетах учитывалась зависимость УФ-излучения от зенитного угла Солнца и использовалась модель CIRA-86 для температуры воздуха и концентраций его компонентов. Начальное возмущение концентрации озона $\delta[\text{O}_3]$ задавалось в виде

$$\delta[\text{O}_3] = \alpha[\text{O}_3^{(0)}] \exp\left[-\frac{(z - H)^2}{\Delta H^2}\right], \quad (44)$$

где $[\text{O}_3^{(0)}]$ — равновесная концентрация озона, ΔH — полуширина искусственного озонового слоя (ИОС), H — высота расположения его центра, α — относительное возмущение, которое варьировалось в пределах $0,5 \leq \alpha \leq 2$. В таблице 4 приведены времена релаксации

Таблица 4

H , км	Времена релаксации возмущения озона τ_p , сут					
	Широта 40° S			Широта 30° S		
	Октябрь	Ноябрь	Декабрь	Октябрь	Ноябрь	Декабрь
20	257	276	287	311	341	355
25	36	36	34	37	38	37
30	9	8	7	8	8	8
35	3	2	2	3	2	2

τ_p , соответствующие значению $\alpha = 1$. Видно резкое уменьшение времени релаксации τ_p с высотой. Гораздо менее существенно сказываются на времени релаксации вариации начального возмущения ($\alpha = 0,5$; $\alpha = 2$).

Из приведенных результатов следует, что наиболее выгодно создавать ИОС на достаточно низких высотах, так как время жизни слоя быстро растет с уменьшением высоты. Однако на малых высотах резко возрастают энергетические затраты на поддержание слоя. Поэтому можно ожидать, что наиболее целесообразно создавать ИОС на высотах вблизи максимума естественного озона нового слоя. Этот вывод подтверждается строгими численными расчетами, моделирующими условия реальной атмосферы [60]. На рисунке 17 приведены вертикальные профили изменения стационарной концентрации озона вследствие действия дополнительного источника озона, поочередно размещаемого в двухкилометровом высотном слое с центрами на высотах $H = 10, 14, 16, 18, 20$ и 22 км. Интенсивность источника молекул озона полагалась равной $Q_{O_3} = 6,8 \times 10^5 \text{ см}^{-3} \text{ с}^{-1}$, без конкретизации принципа действия озонатора. Максимальный прирост общего содержания озона составил 11 % при расположении такого дополнительного источника озона на высоте 18 км. При этом дополнительная наработка озона приводила к уменьшению в атмосфере содержания NO, NO₂, Cl, HCl и некоторому возрастанию концентраций HNO₃, H₂O, ClO, а дополнительный нагрев атмосферы не превышал 3 К.

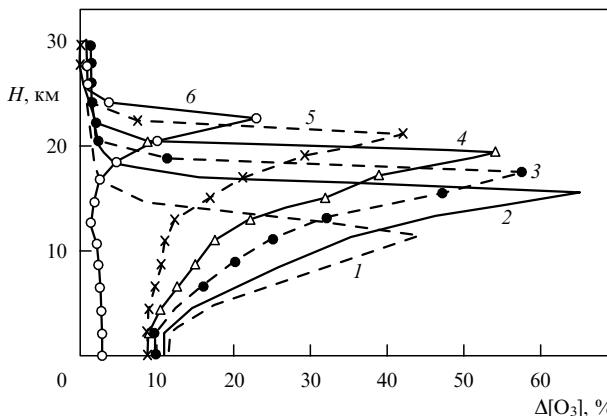


Рис. 17. Вертикальные профили изменения [60] стационарной концентрации среднеглобального среднегодового озона вследствие действия дополнительного источника озона интенсивностью 100 кт ч⁻¹, расположенного на высотах: 10 км (1), 14 км (2), 16 км (3), 18 км (4), 20 км (5) и 22 км (6).

Для сравнения оценим интенсивность генерации озона в ИИО. Воспользуемся уже приведенным выше уравнением (34), описывающим наработку атомов кислорода в течение СВЧ-импульса. Считаем, что весь возникающий в результате диссоциации молекул O₂ атомарный кислород превращается в озон. При периоде повторения СВЧ-импульсов T_n количество молекул озона, создаваемых в 1 см³ в 1 с в ИИО, равно

$$\bar{Q}_{O_3} = \frac{\tau}{T_n} 2k_d \left(\frac{E}{E_{cr}} \right) [O_2] N_e . \quad (45)$$

Константу реакции диссоциации молекул кислорода электронным ударом k_d можно определить из формулы

(38). При создании ИИО, например, на высоте $H = 20$ км при оптимальных условиях (7) и длительности импульса $\tau = 50$ нс (при $\tau/T_n = 4 \times 10^{-5}$) интенсивность источника озона составляет $\bar{Q}_{O_3} \approx 2 \times 10^{17} \text{ см}^{-3} \text{ с}^{-1}$. Как видим, ИИО является интенсивным источником озона, однако генерация озона происходит в небольшом объеме, где начальное электрическое поле E_0 заметно превышает критическое значение E_{cr} . Следует также учесть, что в реальной атмосфере существует еще один эффективный канал образования атомарного кислорода — реакция с электронно-возбужденными молекулами азота (реакция (12)). Помимо этого период повторения импульсов пробоя T_n может быть существенно сокращен при работе со сменой местоположения ИИО. Все это может привести к заметному увеличению мощности источника озона.

В ИИО во время каждого СВЧ-импульса нарабатывается не только атомарный кислород, но и атомарный азот, а также электронно-возбужденные молекулы азота и кислорода. Все эти частицы химически активны. Благодаря их взаимодействию с другими компонентами воздуха изменяются концентрации различных малых нейтральных составляющих. Под действием атмосферного ветра и турбулентной диффузии продукты реакций выносятся из разряда и, продолжая взаимодействовать, постепенно заполняют обширную область. В том случае, если в разряде преимущественно нарабатывается озон, можно говорить о формировании искусственного озона нового слоя. Важнейшим параметром, характеризующим ИОС, является его время релаксации. Этим временем определяются, в частности, размеры слоя и энергетические затраты на его создание. В рамках модели Чепмена время релаксации ИОС обсуждалось выше. В реальной атмосфере на время релаксации влияют концентрации других малых составляющих, в первую очередь оксидов азота. Вот почему важно подобрать такой режим создания ИИО, чтобы в основном нарабатывался озон, а концентрации оксидов азота оставались на уровне фоновых.

4.3. Расчеты энергетической цены образования озона в ИИО

Энергетическая цена образования озона в ИИО, создаваемой в стратосфере пересекающимися волновыми пучками, рассчитывалась в работе [48]. Отметим, что точный расчет динамики разряда в скрещенных пучках с большой апертурой ($\sim 100 \lambda$) даже в двумерном приближении весьма сложен и требует больших затрат машинного времени. Поэтому для оценок воспользуемся одномерной моделью, которая использовалась при описании динамики разряда в пересекающихся TE-пучках в работах [20, 21, 61]. Данная модель хотя и не дает полного описания пространственно-временной динамики разряда, но позволяет выявить основные закономерности его развития.

В этой модели распределение поля описывается уравнением

$$\frac{d^2 E}{dx^2} + k^2 \left[\sin^2 \theta - \frac{N_e}{N_{cr}} \left(1 + i \frac{v_c}{\omega} \right) \right] E = 0 , \quad (46)$$

где $k = \omega/c = 2\pi/\lambda$ — волновое число, N_{cr} — критическая концентрация электронов, 2θ — угол между осями пучков, ось X перпендикулярна биссектрисе

этого угла и лежит в плоскости, проходящей через оси пучков (см. рис. 2). Уравнение (46) решалось в [61] на отрезке $-L \leq x \leq +L$, где L — координата произвольной точки вне ИИО. На границе при $x = \pm L$ задавались граничные условия, соответствующие падению на разрядную область двух встречных волн.

Нетрудно видеть, что уравнение (46) эквивалентно одномерному уравнению Гельмгольца для комплексной амплитуды поля E с комплексной диэлектрической проницаемостью ϵ :

$$\frac{d^2 E}{dz^2} + \epsilon k^2 E = 0, \quad \epsilon = 1 - \frac{N_e}{N_{cr} \sin^2 \theta} \left(1 + i \frac{v_c}{\omega} \right), \\ z = x \sin \theta. \quad (47)$$

Учитывая симметрию исходной задачи относительно $x = 0$ и полагая $E(x = 0) = 0$ (четное число пучностей в ИИО), решение на отрезке $-L \leq x \leq +L$ можно заменить решением в области $0 \leq z \leq m\lambda$ со следующими граничными условиями. В точке $z = 0$ накладывается условие полного отражения:

$$E \Big|_{z=0} = 0. \quad (48)$$

В точке $z = m\lambda$ электрическое поле представляется в виде суммы падающей и отраженной волн:

$$E \Big|_{z=m\lambda} = [A \exp(i k z) + G_{ref} A \exp(-i k z)] \Big|_{z=m\lambda} = \\ = A(1 + G_{ref}), \quad (49)$$

$$\frac{dE}{dz} \Big|_{z=m\lambda} = ik [A \exp(i k z) - G_{ref} A \exp(-i k z)] \Big|_{z=m\lambda} = \\ = ik A(1 - G_{ref}), \quad (50)$$

где A — амплитуда падающей волны, полагавшаяся заданной величиной, G_{ref} — комплексная величина, определяемая суммой прошедшей волны, падающей слева, и отраженной волны, распространяющейся справа. Таким образом, упрощенная динамика разряда в пересекающихся TE -пучках может быть описана в рамках модели (47)–(50).

Для определенности будем полагать, что ИИО создается двумя наземными антеннами, находящимися на расстоянии 30 км, на высотах $H = 20, 25, 30$ км (в области озонаового слоя), которым соответствуют плотности воздуха $N_m = 1,9 \times 10^{18}, 7,7 \times 10^{17}$ и $3,6 \times 10^{17} \text{ см}^{-3}$. Расчеты проводились для двух длин волн $\lambda = 3$ см и 8 мм. При фокусировке СВЧ-излучения на этих высотах размеры фокальной области пучков достигают значений в диапазоне $(50-150)\lambda$. Выберем длительность СВЧ-импульса достаточно большой ($\tau \gg L/c$), чтобы можно было пренебречь конечной пространственной длиной СВЧ-импульса.

Результаты проведенных в этих предположениях вычислений зависимости энергоцены образования атома кислорода от начального электрического поля E_0 в ИИО представлены на рис. 18. Из расчетов видно, что наименьшая энергоцена (около 30–40 эВ) при умеренных полях достигается при $\lambda = 3$ см на высоте $H = 25$ км и начальном поле $E_0 = 4 \text{ кВ см}^{-1}$, а при $\lambda = 8$ мм на высоте $H = 20$ км и $E_0 = 8 \text{ кВ см}^{-1}$. Такие значения электрического поля могут быть достигнуты фокусировкой двух пучков электромагнитных волн антеннами диаметром

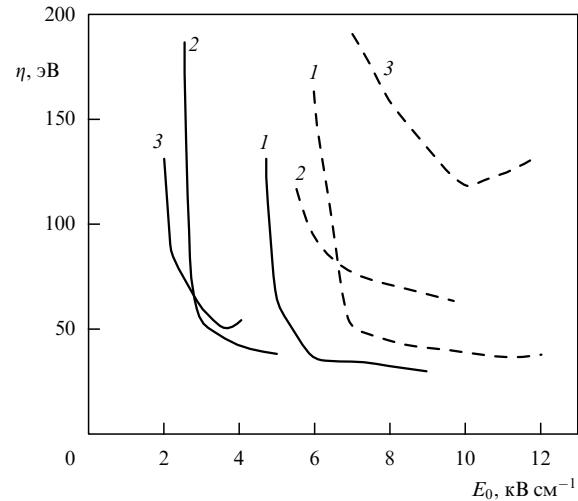


Рис. 18. Зависимость от начального электрического поля энергоцены образования атома кислорода в ИИО, создаваемой на высотах 20 км (1), 25 км (2), 30 км (3). СВЧ-излучение с длиной волны 3 см (сплошные линии) и 8 мм (штриховые линии) и длительностью импульса $\tau = 50$ нс.

около 100 м. Мощность излучения в каждом пучке должна составлять $P = 9 \text{ ГВт}$ при $\lambda = 3$ см и $P = 2 \text{ ГВт}$ при $\lambda = 8$ мм. Как видим, необходимые для эффективной диссоциации кислорода с помощью СВЧ-разряда в атмосфере антенные комплексы вполне могут быть созданы при современном уровне развития техники.

Заметим, что полученные значения электрического поля E_0 близки к необходимым для эффективного создания искусственного радиозеркала [19], когда наибольшая доля энергии СВЧ-импульса тратится на ионизацию (7): $E_0/E_{cr} = 5-7$ при длительности импульса $\tau_0 = \ln(N_{em}/N_{e0})/v_i(E_0)$, где E_{cr} — критическое поле (1), а v_i — частота ионизации (2), N_{e0} и N_{em} — начальная и конечная концентрации электронов. При этом для наработки максимального количества атомарного кислорода длительность СВЧ-импульсов должна быть в несколько раз больше, чем τ_0 . На рисунке 19 приведена рассчитанная зависимость энергоцены образования атома кисло-

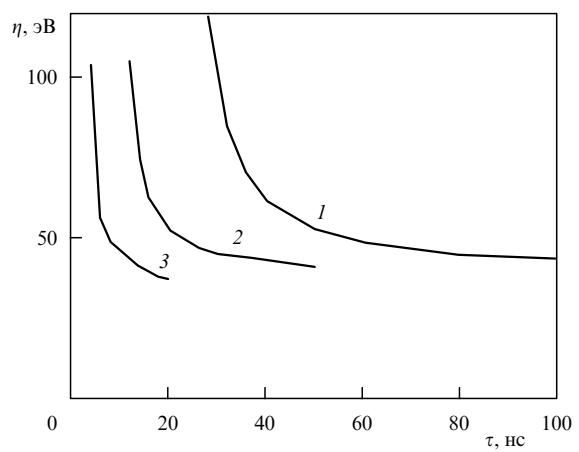


Рис. 19. Зависимость энергоцены образования атома кислорода от длительности СВЧ-импульса ($\lambda = 3$ см) при различном начальном электрическом поле в ИИО (1 — 3 кВ см⁻¹, 2 — 4 кВ см⁻¹, 3 — 6 кВ см⁻¹) на высоте $H = 25$ км ($N_m = 7,7 \times 10^{17} \text{ см}^{-3}$).

рода от длительности СВЧ-импульса при различном начальном поле E_0 в области пересечения пучков на высоте $H = 25$ км. В расчетах учитывалась лишь диссоциация молекул кислорода — первая стадия, необходимая для генерации озона. В действительности не все образовавшиеся в разряде атомы кислорода идут на образование озона в процессе (21), часть из них вступает в реакции с оксидами азота как содержащимися в атмосфере, так и нарабатываемыми в самом разряде. Однако при низкой температуре газа, характерной для области озонового слоя, с оксидами азота взаимодействует малая часть атомов кислорода [40]. Поэтому энергоцена образования озона будет близка к энергоцене образования атомов кислорода.

4.4. Соотношение между $[O_3]$ и $[NO_x]$ в ионизованной области

Вопрос о наличии побочных эффектов весьма важен для создания СВЧ-разряда в атмосфере. В первую очередь необходимо оценить наработку оксидов азота. Отношение $[O_3]$ к $[NO_x]$ существенным образом зависит от энерговклада в разрядную плазму [62]. На рисунке 20 представлены результаты расчетов отношения $[O_3]/([NO] + [NO_2])$ в зависимости от удельного энерговклада в разряд при начальном электрическом поле E_0 , в котором энергетическая цена образования озона минимальна (см. рис. 18). При расчетах энерговклад меняли, варьируя длительность СВЧ-импульса и оставляя неизменным начальное электрическое поле. Расчеты выполнены на основе модели, описанной в разделе 4.3, для СВЧ-излучения трехсантиметрового диапазона длин волн, направляемого в стратосферу двумя наземными антennами диаметром 100 м, расположенными на расстоянии 30 км друг от друга. Как видно из рисунка, максимальное отношение $[O_3]/([NO] + [NO_2])$, равное 10^3 , может быть достигнуто. Таким образом, имеется режим создания ИИО, при котором отношение концентраций озона и оксидов азота в ионизированной области будет такое же, как в невозмущенной естественной стратосфере [1].

Существование оптимальных энерговкладов в разрядную плазму, при которых отношение $[O_3]/[NO_x]$

максимально, объясняется следующим образом. При низких энерговкладах, когда наработка оксидов азота определяется, в основном, реакцией (29), процесс связывания атомарного азота в обратной реакции (30) приводит к возрастанию энергоцены образования оксидов азота [61]. С ростом энерговклада энергоцена образования NO_x падает за счет подключения других каналов образования NO_x (реакции (17) и (32)), в результате отношение $[O_3]/[NO_x]$ также уменьшается.

4.5. Дистанционная диагностика плазмохимических процессов в ИИО

Вполне естественно, что натурный эксперимент должен быть обеспечен различными диагностиками для измерения концентраций озона и других малых составляющих. Как известно, в настоящее время регулярно проводится мониторинг озонового слоя [63]. Озон в верхней атмосфере изучается с помощью приборов, измеряющих общее содержание озона, и лидарных озонометров [64]. Эти диагностики вполне подходят и для обсуждаемого эксперимента. Для диагностики озона целесообразно применять дистанционные методы и аппаратуру с использованием лазеров, обеспечивающих возможность получения оперативной информации с высоким пространственно-временным разрешением [65, 66]. Использование лазеров позволяет также определить концентрации некоторых малых составляющих атмосферы, которые не измеряются другими методами. Распределение концентрации озона в стратосфере с хорошим пространственным разрешением может быть получено с помощью УФ-лидара, в котором используется XeCl-лазер (например, с длинами волн 307,9 и 308,2 нм) [65]. Регистрация рассеянного излучения проводится в режиме счета фотонов.

Дистанционной диагностике малых составляющих атмосферы посвящена статья [67], в которой обсуждается метод измерения концентраций различных примесей в атмосфере с помощью ИИО. Процесс ионизации в ИИО сопровождается возбуждением атомов и молекул электронным ударом. Концентрация атомов сорта s в возбужденном электронном состоянии j может быть определена из следующих соотношений:

$$\frac{dN_{js}}{dt} = k_{js} N_e(t) N_s - \frac{N_{js}}{\tau_{js}}, \quad (51)$$

$$N_e(t) = N_{e0} \exp(v_i t), \quad (52)$$

где k_{js} — коэффициент возбуждения соответствующего атома ($k_{js} = f(f(v), \omega, P)$, τ_{js} — время жизни электронно-возбужденного уровня и $v_i = k_i N_m$ — частота ионизации, N_s и N_m — плотности примеси сорта s и воздуха на высоте ИИО соответственно. На основании этих уравнений находится число фотонов P_{js} , связанных с этим возбужденным состоянием. Фотоны принимаются телескопом площадью S , расположенным на расстоянии Z от области СВЧ-пробоя. За время СВЧ-импульса τ их число равно

$$P_{js} = \frac{k_{js}}{k_i} \frac{N_s}{N_m} \frac{S}{4\pi Z^2} N_{em} V, \quad (53)$$

где $N_{em} = N_e(t = \tau)$ — плотность электронов, созданная за время СВЧ-импульса, V — объем ИИО. Это уравнение может быть использовано для определения величины

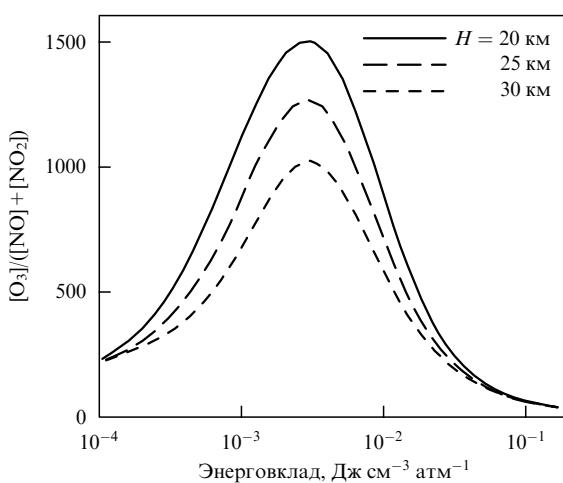


Рис. 20. Отношение концентраций озона и оксидов азота в зависимости от удельного энерговклада в ИИО, создаваемой одним СВЧ-импульсом.

N_s/N_m , потому что отношение k_{js}/k_i для случая $\omega > v$ — легко определяемая величина, зависящая только от осцилляторной энергии электронов ϵ_\sim и отношения поперечных сечений возбуждения и ионизации молекул электронным ударом σ_{js}/σ_i [15, 21, 67].

Два различных метода рассматривались в [67] для определения плотности активных частиц. Первый метод основан на пассивной спектроскопии и применим для определения плотности частиц, которые имеют разрешенные переходы в оптическом диапазоне. В результате измерения интенсивности оптического излучения могут быть определены концентрации атомов и молекул: Cl, ClO, CO, NO, H, N, O, F.

Во втором методе используется лидар с дифференциальным поглощением. Метод применим для определения плотности частиц, имеющих метастабильные электронные состояния, возбуждаемые электронным ударом. Количество метастабилей находится с использованием двух лазерных импульсов со слегка различной длиной волны путем сравнения их поглощения. Первая длина волны лазера выбирается соответствующей сильному поглощению между метастабильным переходом и разрешенным, расположенным выше метастабильного. Вторая длина волны лазера выбирается на крыле кривой поглощения. Этим методом можно измерить концентрации атомов и молекул CO, NO, OH, H. Выполненные в работе [67] расчеты показали, что при параметрах СВЧ-излучения $\lambda = 3$ см, $P = 4$ ГВт, $\tau = 100$ нс, $F = 1$ кГц и при диаметре антенны 34 м отношение N_s/N_m может быть определено:

1) первым методом на уровне $N_s/N_m \sim 10^{-11}$, для этого потребуется $\sim 10^3$ СВЧ-импульсов, что соответствует при частоте их повторения $F = 1$ кГц времени накопления 1 с,

2) вторым методом также на уровне $N_s/N_m \sim 10^{-11}$, но для этого потребуется $\sim 10^4 - 10^5$ СВЧ-импульсов, что соответствует при той же частоте их повторения времени накопления 10–100 с.

4.6. Формирование искусственного озонового слоя

При натурном эксперименте для наблюдения за искусственным озоновым слоем и для измерения концентрации озона необходимо заполнять озоном достаточно обширную область. Обсуждавшийся антенный комплекс (см. рис. 1) может, например, сканируя пучки, перемещать в пространстве область пересечения пучков над территорией 100 км².

При заполнении озоном обширной области в стратосфере существенную помощь может оказать атмосферный ветер и турбулентная диффузия. Влияние последних в модели Чепмена с учетом постоянного по величине и направлению ветра и диффузии в горизонтальной плоскости было проанализировано в работе [59]. Здесь мы обобщим полученные в этой работе результаты, включив в рассмотрение вертикальную диффузию и азотные компоненты.

Будем считать, что под влиянием СВЧ-разряда в атмосфере возникли небольшие изменения малых нейтральных составляющих по сравнению с их фоновыми значениями. Наша цель — описать медленные изменения во времени и пространстве искусственного возмущения концентрации озона. Проводя в уравнениях усреднение по времени на интервале в одни сутки и выражая концентрации различных компонентов через концентра-

цию озона, получим следующее приближенное уравнение (ср. [59]):

$$\left[\frac{\partial}{\partial t} + v \frac{\partial}{\partial x} - D_1 \left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} \right) - D_z \frac{\partial^2}{\partial z^2} \right] \delta[\text{O}_3] = - \frac{\delta[\text{O}_3]}{\tau_p} + Q_{\text{eff}}. \quad (54)$$

Здесь $\delta[\text{O}_3]$ — средняя по времени добавка к концентрации озона, v — скорость ветра, τ_p — время релаксации возмущения, D_1 , D_z — коэффициенты турбулентной диффузии в горизонтальной плоскости и по высоте, Q_{eff} — интенсивность эффективного источника озона. Координата x направлена вдоль скорости ветра, y — в горизонтальной плоскости ортогонально x , z — вертикально вверх. Отметим, что интенсивность эффективного источника Q_{eff} определяется в нашем случае не только скоростью наработки озона из атмосферного кислорода (со знаком плюс), но и влиянием азотного катализитического цикла (со знаком минус).

Решение уравнения (54) на большом удалении от сосредоточенного источника имеет вид

$$\delta[\text{O}_3] \approx \bar{Q}_{\text{eff}} \frac{1}{4\pi\sqrt{D_1 D_z} x} \times \exp \left\{ - \left[\frac{x}{v\tau_p} + \frac{v}{4D_1 x} \left(y^2 + z^2 \frac{D_1}{D_z} \right) \right] \right\},$$

$$\bar{Q}_{\text{eff}} = \int Q_{\text{eff}} d^3x. \quad (55)$$

Из (55) следует, что слой асимметричен: он сильно вытянут вдоль направления движения ветра. Характерные размеры слоя по осям x, y, z равны соответственно $L_x \approx v\tau_p$, $L_y \approx \sqrt{4D_1 \tau_p}$ и $L_z \approx \sqrt{4D_z \tau_p}$. Таким образом, наличие сильного ветра и турбулентной диффузии способствует тому, что возмущение разносится по обширной области пространства. Характерная полутолщина слоя $L_z/2 \approx \sqrt{D_z \tau_p}$ определяется коэффициентом вертикальной диффузии и временем жизни ИОС. Согласно [1] коэффициент D_z , по данным различных авторов, для высоты $H = 18 - 20$ км колеблется в широких пределах $2 \times 10^3 < D_z < 10^5$ см² с⁻¹. Принимая для времени жизни $\tau_p \approx 100$ сут, получим оценку полутолщины искусственного озонового слоя $0,27 < L_z/2 < 1,9$ км. Отсюда следует, что толщина искусственного озонового слоя даже с учетом вертикальной диффузии оказывается заметно меньше толщины естественного озонового слоя. Оценивая коэффициент горизонтальной диффузии $D_1 \sim \sim 10^9$ см² с⁻¹ и скорость ветра $v \sim 10$ м с⁻¹ из формулы (55) получаем, что за период ~ 100 сут площадь искусственного озонового слоя достигает $S \sim 10^7$ км², т.е. может покрывать даже область масштаба Антарктической озоновой дыры.

Возможность проведения натурного эксперимента зависит также от величины необходимых энергетических затрат. Оценим необходимую среднюю мощность для заполнения озоном локальной области. Озон над территорией площадью $S = 10^3$ км² может быть регенерирован одним СВЧ-комплексом, показанным на рис. 1. Энергетические затраты могут быть минимизированы, если генерировать минимально необходимое количество

озыва. Этот минимум может быть оценен как генерация озона с плотностью, равной естественному уровню $[O_3] = 2 \times 10^{12} \text{ см}^{-3}$ на высоте 18 км в слое $\Delta H = 2 \text{ км}$. Оценки показывают, что озоновый слой такой толщины уменьшает интенсивность УФ-излучения на длине волны 250 нм на два порядка.

Требуемая для генерации озона средняя мощность \bar{P} зависит от площади искусственного озонового слоя S и характерного времени разрушения озона τ_p :

$$\bar{P} = [O_3]\Delta H S \frac{\eta}{\tau_p}. \quad (56)$$

Время жизни регенерированного озона в локальной области зависит от скорости зонального ветра. В средних широтах на высоте 18–24 км всегда есть слой с низкой скоростью ветра порядка $0,1–1 \text{ м с}^{-1}$ [1, 68]. При такой скорости ветра и площади искусственного озонового слоя $S = 10^3 \text{ км}^2$ характерное время $\tau_p \approx 10 \text{ сут}$. Для локальной озоновой области величина мощности \bar{P} , которая определяется из уравнения (56) при $\eta = 20 \text{ эВ}$, $[O_3] = 2 \times 10^{12} \text{ см}^{-3}$, $\Delta H = 2 \text{ км}$, равна 10^7 Вт .

5. Заключение

К настоящему времени проведен цикл экспериментальных и теоретических исследований, посвященных разработке натурного физического эксперимента по воздействию на стратосферу пересекающимися пучками мощных электромагнитных волн с целью дополнительной генерации озона в области озонового слоя. Тем самым предлагается активное зондирование озонового слоя (его состояния, всего комплекса протекающих фотохимических процессов) за счет внесения контролируемого значительного количества дополнительного озона и создания локального искусственного озонового слоя. Возможности этого метода были проанализированы на специально созданных экспериментальных комплексах для лабораторного моделирования плазмохимических процессов в искусственной ионизованной области, создаваемой с помощью наносекундных волновых пучков. Эксперименты проведены при давлениях и температурах воздуха, соответствующих высотам озонового слоя. Впервые экспериментально продемонстрирована возможность использования наносекундного СВЧ-разряда в волновых пучках для генерации озона и других малых компонентов в стратосфере. С одной стороны, это обстоятельство может позволить эффективно использовать различные режимы работы ИИО для экспериментального зондирования и изучения влияния малых составляющих на озоновый слой.

С другой стороны, на основании результатов модельных экспериментов и численных расчетов можно сделать заключение о возможности эффективной искусственной генерации озона в локальных областях стратосферы. Для этого необходимо создавать ИИО на высоте примерно 20–25 км СВЧ-излучением трехсантиметрового диапазона длин волн с напряженностью электрического поля в области пересечения пучков $4–6 \text{ кВ см}^{-1}$ при длительности СВЧ-импульсов $30–50 \text{ нс}$.

Перечислим основные преимущества данной схемы.

1. При использовании коротких импульсов наносекундной длительности ($\tau = 30–50 \text{ нс}$) искусственный озонатор в стратосфере способен создавать 100 г озона на $1 \text{ кВт} \cdot \text{ч}$ затрат электроэнергии. Такая производи-

тельность атмосферного озонатора соответствует показателям лучших озонаторов, используемых в настоящее время для технологических целей.

2. Озон генерируется непосредственно в максимуме естественного озонового слоя. Его "доставка" туда не требует никаких энергетических затрат (радиоволны не весят!).

3. Простой способ локализации и целенаправленного перемещения области генерации озона в пространстве.

4. Замечательным подарком природы являются низкие температуры ($T \sim 200–220 \text{ К}$) в области действия озонатора. Благодаря этому в наносекундных импульсных разрядах генерируется исключительно малое количество оксидов азота, участвующих в каталитических процессах уничтожения озона. Это обстоятельство имеет решающее значение для обеспечения эффективности стратосферного озонатора. В этих условиях энергопена образования озона невысокая (15–20 эВ на молекулу в эксперименте и 30–40 эВ на молекулу в расчете).

5. Наибольшая эффективность генерации озона достигается при использовании СВЧ-импульсов, для которых стадия пробоя значительно короче длительности импульса, при условии, что круговая частота электромагнитного поля меньше частоты столкновений электронов с молекулами ($\omega < v_c$). В этом случае наибольшая доля энергии СВЧ-импульса поглощается в разрядной плазме. Не менее важно, что одновременно в широком диапазоне режимов достигаются значения удельных энерговкладов, при которых становится несущественной генерация оксидов азота, так как отношение $[O_3]/([NO] + [NO_2])$ равно или превосходит 10^3 .

6. Оптимальным режимом воздействия на атмосферу является небольшая серия наносекундных импульсов при последующей смене местоположения ИИО путем сканирования волновыми пучками.

7. Благодаря атмосферным ветрам, диффузии и большому времени жизни молекул озона на высотах максимума озонового слоя и ниже (более 100 сут) озон, генерируемый в ИИО, разносится на большие расстояния и может создавать локальный искусственный озоновый слой значительных размеров.

8. Указанные выше свойства, а также возможность перемещать область создания озона в стратосфере на большие расстояния (несколько десятков километров) от генераторов мощных электромагнитных волн на Земле позволяют значительно ослабить экологические последствия мощного СВЧ-излучения, размещая "озонаторы" в специальных удаленных областях.

Анализ технической возможности реализации натурного эксперимента показывает, что в настоящее время необходимый уровень развития техники достигнут. Антенны диаметром 50–60 м имеются, и они являются наиболее дорогими узлами всего комплекса. Для проведения натурного эксперимента могут быть использованы не релятивистские СВЧ-генераторы, а широко применяемые в радиолокации относительно маломощные (и, соответственно, дешевые) источники СВЧ-излучения (магнетроны мощностью до 1 МВт), дополненные устройствами сжатия СВЧ-импульсов. В настоящее время компрессоры СВЧ-импульсов, способные давать на выходе импульсы мощностью порядка 100 МВт, интенсивно разрабатываются [69–72]. Следовательно, несколько таких источников (до 50) обеспечат необходимый уровень мощности в одном волновом пучке. Сред-

няя мощность такого СВЧ-комплекса будет составлять 0,1–1 МВт.

Таким образом, представленный здесь цикл теоретических исследований и лабораторных экспериментов демонстрирует принципиальную возможность генерации озона в стратосфере с помощью ИИО. Оценки показывают, что благодаря длительному времени жизни озона на стратосферных высотах (18–20 км), ветрам и турбулентной диффузии озона, генерируемый в локальных зонах, распространяется на большие расстояния и может создавать искусственное озонирование в областях глобального масштаба. Вместе с тем, нельзя не подчеркнуть, что трудности глобального изменения озонового слоя — энергетические, экономические, экологические и технические — очевидны. Их обсуждение в настоящее время представляется нам преждевременным, хотя отдельные попытки это сделать уже предпринимались [73]. Для прояснения картины необходимо проведение демонстрационного натурного эксперимента. Отметим, что обсуждаемый натурный эксперимент не приведет к каким-либо значительным возмущениям в глобальном масштабе, однако, несомненно, будет способствовать более глубокому пониманию сложных плазмохимических процессов в озоновом слое. Только после этого станет возможной сколько-нибудь реальная оценка глобальной программы.

Следует заметить, что в научной литературе обсуждается не только генерация озона с помощью ИИО в атмосфере. Создание ИИО в нижних слоях атмосферы (в тропосфере) для очистки атмосферы от фреонов было предложено в начале 90-х годов Г.А. Аскарьяном и др. [74, 75]. В этом проекте ИИО рассматривается, в основном, как источник электронов, поэтому предусматривается применение коротких наносекундных СВЧ-импульсов, при которых на ионизацию воздуха тратится основная доля СВЧ-энергии [19]. После СВЧ-импульса на стадии распада плазмы холодные электроны избирательно разрушают молекулы фреона за счет высокой скорости процесса диссоциативного прилипания, затем хлорсодержащие соединения выпадают на Землю с дождями. Сечения диссоциативного прилипания электронов, например, к молекулам фреона-11 (CFCl_3) и фреона-12 (CF_2Cl_2) обладают максимумами при малых энергиях электронов ($T_e \leq 0,06$ эВ) [76], тогда как для диссоциативного прилипания электронов к молекулам кислорода существует энергетический порог 4 эВ. Этот факт и обеспечивает избирательность воздействия холодных электронов на фреоны.

В тропосфере при низкой плотности фреонов ($\sim 10^9 \text{ см}^{-3}$) [1] и высоком давлении воздуха частота диссоциативного прилипания электронов к молекулам фреона оказывается много меньше частоты трехтельного прилипания электронов к молекулам кислорода, поэтому число разрушенных молекул фреона зависит от электронной концентрации в плазме к моменту окончания СВЧ-импульса и от скорости распада плазмы. В модели [74, 75] предполагался медленный рекомбинационный распад плазмы в воздухе, достигаемый при относительно высоких удельных энерговкладах в плазму [28]. Однако, как показали экспериментальные исследования распада плазмы наносекундного СВЧ-разряда в воздухе [77], значительная часть образованных электронов гибнет на начальной стадии распада вследствие трехтельного прилипания электронов к моле-

кулам кислорода. При наблюдаемом распаде плазмы эффективность разрушения фреона на высотах 18–20 км будет примерно на порядок ниже, чем при электронно-ионном рекомбинационном распаде. В принципе, скорости распада плазмы можно уменьшить за счет увеличения длительности импульсов (увеличения удельного энерговклада в плазму), однако это приведет к отрицательному экологическому эффекту — ИИО будет эффективным источником оксидов азота [22]. Поэтому для очистки атмосферы от фреонов при их низкой плотности СВЧ-метод требует дальнейшей проработки, но он перспективен для разрушения [78] или модификации [79] фреонов в производственных помещениях на Земле при высокой плотности молекул фреона в воздухе.

Данная работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект 96-02-19467).

Список литературы

1. Брасье Г, Соломон С *Аэррономия средней атмосферы* (Л.: Гидрометеоиздат, 1987)
2. Александров Э Л и др. *Озоновый щит Земли и его изменения* (СПб.: Гидрометеоиздат, 1992)
3. Данилов А Д, Кароль И Л *Атмосферный озон — сенсации и реальность* (Л.: Гидрометеоиздат, 1991)
4. Сталаарски Р С *В мире науки* (3) 6 (1988)
5. Тун О Б, Турко Р П *В мире науки* (8) 34 (1991)
6. Johnston H S *Science* **173** 517 (1971)
7. *Propulsion Effluents in Stratosphere* (CIAP. Monograph 2) (DOT-TST-75-52, Washington, DC, 1975)
8. Farman J C, Gardner B G, Shanklin J D *Nature* (London) **315** 207 (1985)
9. Flyagin V A et al. *IEEE Trans. Microwave Theory Techniques* **MTT-25** 514 (1977)
10. Гапонов-Грехов А В, Петелин М И *Вестник АН СССР* (4) 11 (1979)
11. Bollen W M et al. *J. Appl. Phys.* **54** 101 (1983)
12. Armstrong W T et al., in *Proc. 18th Intern. Conf. on Phenomena in Ionized Gases* Vol. 4 (Ed. W T Williams) (Swansea, UK: Adam Hilger, 1987) p. 850
13. Вихарев А Л и др. *ЖЭТФ* **94** 136 (1988)
14. Kuo S P, Zhang Y S *Phys. Fluids B* **2** 667 (1990)
15. Tsang K et al. *Radio Sci.* **26** 1345 (1991)
16. Вихарев А Л и др., в сб. *Высокочастотный разряд в волновых полях* (Под ред. А Г Литвака) (Горький: ИПФ АН СССР, 1988) с. 41
17. Кафидов Д М, Лукина Н А, Сергейчев К Ф *Физика плазмы* **7** 312 (1981)
18. Гуревич А В и др. *Геомагнетизм и аэррономия* **20** 953 (1980)
19. Гуревич А В *УФН* **132** 685 (1980)
20. Борисов Н Д, Гуревич А В, Милих Г М *Искусственная ионизованная область в атмосфере* (М.: ИЗМИРАН, 1986)
21. Gurevich A V, Borisov N D, Milikh G M *Physics of Microwave Discharges: Artificially Ionized Regions in the Atmosphere* (Amsterdam: Gordon and Breach, 1997)
22. Аскарьян Г А и др. *ДАН СССР* **302** 566 (1988); *Физика плазмы* **17** 85 (1991)
23. Борисов Н Д, Козлов С И, Смирнова Н В *Космические исследования* **31** (2) 63 (1993)
24. Milikh G M *J. Geophys. Res. D* **95** 16451 (1990)
25. Ларин В Ф *Письма в ЖТФ* **16** (8) 85 (1990)
26. Eliasson B, Kogelschatz U *IEEE Trans. Plasma Sci.* **19** 1063 (1991)
27. Вихарев А Л и др. *Физика плазмы* **10** 165 (1984)
28. Вихарев А Л, Иванов О А, Степанов А Н *Физика плазмы* **10** 792 (1984)
29. Вихарев А Л и др. *Изв. вузов. Сер. Радиофизика* **30** 317 (1987)
30. Гильденбург В Б, Ким А В *ЖЭТФ* **74** 141 (1978)
31. Гильденбург В Б, Ким А В *Физика плазмы* **6** 904 (1980)
32. Борисов Н Д, Гуревич А В *Геомагнетизм и аэррономия* **20** 841 (1980)
33. Борисов Н Д, Гельфонд О А, Гуревич А В *Физика плазмы* **9** 1047 (1983)
34. Борисов Н Д *Физика плазмы* **8** 712 (1982)

35. Kochelap V A, Izmailov I A, Mel'nikov L Yu *Chem. Phys. Lett.* **157** (1–2) 67 (1989)
36. Vikharev A L et al., in *Proc. 21st Intern. Conf. on Phenomena in Ionized Gases* Vol. 1 (Eds G Ecker, U Arendt, J Boseler) (Bochum: APP, 1993) p. 123
37. Vikharev A L et al. *Phys. Lett. A* **179** 122 (1993)
38. Vikharev A L et al. *J. Geophys. Res. D* **99** 21097 (1994)
39. Ахмеджанов Р А и др. *Письма в ЖТФ* **21** (9) 26 (1995)
40. Akhmedzhanov R A et al. *Phys. Lett. A* **207** 209 (1995)
41. Ахмеджанов Р А и др. *ЖТФ* **67** (3) 9 (1997)
42. Vikharev A L, Ivanov O A, Litvak A G *IEEE Trans. Plasma Sci.* **24** 460 (1996)
43. Baulch D L et al. *J. Phys. Chem. Ref. Data* **11** 327 (1982)
44. Atkinson R et al. *J. Phys. Chem. Ref. Data* **18** 881 (1989)
45. Кривоносова О Э и др., в сб. *Химия плазмы* Вып.14 (Под ред. Б М Смирнова) (М.: Энергоатомиздат, 1987) с. 3
46. Животов В К, Русанов В Д, Фридман А А *Диагностика неравновесной химически активной плазмы* (М.: Энергоатомиздат, 1985)
47. Животов В К, Русанов В Д, Фридман А А, в сб. *Химия плазмы* Вып. 11 (Под ред. Б М Смирнова) (М.: Энергоатомиздат, 1984) с. 200
48. Ахмеджанов Р А и др. *Физика плазмы* **23** 58 (1997)
49. Eliasson B, Hirth M, Kogelschatz U *J. Phys. D* **20** 1421 (1987)
50. Eliasson B, Kogelschatz U, Research Report KLR 86-11C (Baden: Brown Boveri, 1986)
51. Быков Ю В *Химия высоких энергий* **18** 347 (1984)
52. Gurevich A V et al. *Phys. Lett. A* **201** 234 (1995); Lukina N A, Sergeichev K F, Sychov I A, in *Proc. 21st Intern. Conf. on Phenomena in Ionized Gases* Vol. 1 (Eds G Ecker, U Arendt, J Boseler) (Bochum: APP, 1993) p. 83
53. Александров Н Л и др. *TBT* **19** 485 (1981)
54. Мак-Доналд А *Сверхвысокочастотный пробой в газах* (М.: Мир, 1969)
55. Самойлович В Г, Гибалов В И, Козлов К В *Физическая химия барьерного разряда* (М.: Изд-во МГУ, 1989)
56. Александров Н Л, Кончаков А М *Письма в ЖТФ* **16** (6) 4 (1990)
57. Molina M J, Rowland F S *Nature* (London) **249** 810 (1974)
58. Rowland F S, Molina M J *J. Phys. Chem.* **80** 2049 (1976)
59. Gurevich A V et al. *Phys. Lett. A* **207** 281 (1995)
60. Кароль И Л, Киселев А А, Фролькис В А *Изв. РАН. Физика атмосферы и океана* **31** 120 (1995)
61. Matveyev A A, Silakov V P *Phys. Rev. E* **54** 4121 (1996)
62. Vikharev A L, Ivanov O A, Litvak A G, in *Proc. of Workshop: Strong Microwaves in Plasmas* Vol. 1 (Ed. A G Litvak) (Nizhny Novgorod: IAP, 1997) p. 251
63. Margitan J J et al. *J. Geophys. Res. D* **100** 9193 (1995)
64. McGee T J et al. *J. Geophys. Res. D* **100** 9255 (1995)
65. Применение лазеров для определения состава атмосферы (Под ред. В М Захарова) (Л.: Гидрометеоиздат, 1983)
66. Межерис Р М *Лазерное дистанционное зондирование* (М.: Мир, 1987)
67. Papadopoulos K et al. *J. Geophys. Res. D* **99** 10387 (1994)
68. Miles T et al. *J. Atmospheric Sci.* **51** 677 (1994)
69. Диденко А Н, Юшков Ю Г *Мощные СВЧ-импульсы наносекундной длительности* (М.: Энергоатомиздат, 1984)
70. Диденко А Н и др. *ДАН СССР* **321** (3) 518 (1991)
71. Вихарев А Л, Ковалев Н Ф, Петелин М И *Письма в ЖТФ* **22** (19) 41 (1996)
72. Vikharev A L et al., in *Proc. of Int. Workshop: Strong Microwaves in Plasmas* Vol. 2 (Ed. A G Litvak) (Nizhny Novgorod: IAP, 2000) p. 896
73. Батанов Г М и др. *Физика плазмы* **22** 1046 (1996)
74. Аскарьян Г А и др. *Письма в ЖЭТФ* **55** 500 (1992); *Физика плазмы* **18** 1198 (1992)
75. Askaryan G A et al. *J. Phys. D* **27** 1311 (1994)
76. Christophorou L G, Pinnaduwage L A *IEEE Trans. Electrical Insulation* **25** (1) 55 (1990)
77. Вихарев А Л и др. *ЖТФ* **66** (7) 56 (1996)
78. Nusinovich G S, Milikh G M, Levush B *J. Appl. Phys.* **80** 4189 (1996)
79. Грицинин С И и др. *Физика плазмы* **23** 264 (1997)

Artificially ionized region as a source of ozone in the stratosphere

A.V. Gurevich

P.N. Lebedev Physics Institute, Russian Academy of Sciences
Leninskii prosp. 53, 117924 Moscow, Russian Federation
Tel. (7-095) 132-64 14. E-mail: alex@lpi.ru

A.G. Litvak, A.L. Vikharev, O.A. Ivanov

Institute of Applied Physics, Russian Academy of Sciences
ul. Ul'yanova 46, 603600 Nizhny Novgorod, Russian Federation
Tel. (7-8312) 38-45 60. Fax (7-8312) 36-20 61
E-mail: val@appl.sci-nnov.ru

N.D. Borisov

Institute of Terrestrial Magnetism, Ionosphere and Radiowave Propagation, Russian Academy of Sciences
142092 Troitsk, Moscow Region, Russian Federation
Tel. (7-095) 334-09 05. Fax (7-095) 334-01 24
E-mail: borisov@lpi.ru

K.F. Sergeichev

General Physics Institute, Russian Academy of Sciences,
ul. Vavilova 38, 117942 Moscow, Russian Federation
Tel. (7-095) 132-82 39. Fax (7-095) 135-80 11
E-mail: sergeichev@fpl.gpi.ru

Physical and chemical processes occurring in a microwave stratospheric discharge of nanosecond duration are discussed in connection with the effect they may have locally on the ozone layer in the artificially ionized region (AIR) in the stratosphere. The AIR, to be created at altitudes of 18–20 km by the microwave breakdown of air by high-power, ground-produced electromagnetic radiation beams, is planned to be used in the framework of a physical field experiment aimed at probing ozone layer properties (position and plasma-chemical and photo-chemical processes) by controllably generating a considerable amount of ozone. Results of relevant theoretical studies are presented, as are those of a large series of laboratory experiments performed under conditions similar to those prevailing in the stratosphere. Discharge regimes securing the efficient growth of ozone density are identified and studied in detail. It is shown that such an stratospheric ozonizer is about as efficient as the best ozonizers available down on earth. For typical stratospheric conditions (low pressures and temperatures $T \sim 200$ – 220 K), it is shown that the intense production of ozone in a pulse microwave breakdown does not virtually increase the density of nitrogen oxides — gases that play a central role in catalytic ozone-destructing reactions. The possibility of effectively producing ozone in sub-breakdown electric fields is demonstrated experimentally. It is shown that due to its long lifetime, ozone produced locally at altitudes of 18–20 km may spread widely under the action of winds and turbulent diffusion, thus leading to an additional — artificial — ozonization of the stratosphere..

PACS numbers: 82.40.We, 94.10.Fa

Bibliography — 79 references

Received 25 July 2000