

М.К. Шайков, Э.А. Чаянова, Е.В. Иванов

НОВЫЙ МЕТОД И КОРРЕЛЯЦИОННЫЙ СПЕКТРОМЕТР ДЛЯ ДИСТАНЦИОННОГО ИЗМЕРЕНИЯ СОДЕРЖАНИЯ ДВУОКСИ АЗОТА В АТМОСФЕРЕ

Представлены новый дистанционный метод, портативный корреляционный спектрометр, результаты измерений по рассеянной солнечной радиации на расстояниях до 10 км в приземном воздухе концентраций двуокиси азота с чувствительностью до 0,5 ppb.

Перспективным средством дистанционного анализа малых газовых составляющих атмосферы являются оптические корреляционные спектрометры, в которых общее содержание газовой примеси, находящейся между источником излучения и корреляционным спектрометром, определяется по измерению взаимной корреляции спектра принимаемого излучения и спектра поглощения газовой примеси, моделируемого функцией пропускания оптического тракта корреляционного спектрометра [1].

Широкое использование техники корреляционной спектрометрии для экспресс-анализа концентраций газообразных примесей воздуха до настоящего времени сдерживалось необходимостью установки на известном расстоянии зеркального отражателя или автономного источника излучения, причем средняя концентрация примеси на трассе получается в результате деления измеренного корреляционным спектрометром значения общего содержания примеси на расстояние от источника излучения до корреляционного спектрометра. В настоящей работе представлен метод измерения, исключающий использование оптического отражателя, и корреляционный спектрометр на основе перестраиваемого интерференционно-поляризационного фильтра.

Рассмотрим солнечное и рассеянное излучение неба, освещающее приземную горизонтальную трассу, вдоль которой направлена линия визирования корреляционного спектрометра. Излучение, рассеянное вдоль горизонтальной трассы в объектив прибора, содержит информацию о концентрации двуокиси азота на трассе.

Выходной сигнал R корреляционного спектрометра, принимающего излучение неба, рассеянное в направлении линии горизонта, имеет вид

$$R = \frac{\sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^k (J_{ij}^{(1)} - J_{ij}^{(2)}) \cdot \Delta\lambda_j}{\sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^k J_{ij}^{(1)} \cdot \Delta\lambda_j}, \tag{1}$$

где $J_{ij}^{(1)(2)} = J_{ij0}^{(1)(2)} \cdot \exp\{-\rho\sigma_j^{(1)(2)}l_i - \alpha_i l_i\}$, $J_{ij0}^{(1)(2)}$ — интенсивность излучения неба, рассеянного по линии горизонта в объектив прибора с расстояния l_i в спектральных интервалах $\Delta\lambda_j$, совпадающих соответственно с соседними минимумами и максимумами спектра поглощения NO_2 , имеющими средние сечения поглощения $\sigma_j^{(1)}$ и $\sigma_j^{(2)}$; α_i — средний на участке l_i вдоль горизонтальной трассы показатель азрозольного и молекулярного ослабления. Полагая

$$\sigma_j^{(2)} \cdot \rho \cdot l_i \ll 1, \alpha_i = \alpha, J_{ij0}^{(1)} = J_{ij0}^{(2)} = J_0; \Delta\lambda_j = \Delta\lambda,$$

$$\frac{\sum_{j=1}^k (\sigma_j^{(2)} - \sigma_j^{(1)})}{k} = \frac{\sum_{j=1}^k \Delta\sigma_j}{k} = \overline{\Delta\sigma}, \tag{2}$$

получим

$$R = \rho \cdot \overline{\Delta\sigma} \cdot \alpha^{-1}$$

Таким образом, сигнал корреляционного спектрометра, принимающего рассеянное вдоль линии горизонта излучение неба, равен произведению концентрации измеряемого газа ρ на среднее дифференциальное сечение поглощения $\Delta\sigma$ и на эффективную длину трассы α^{-1} , которая определяется как обратный коэффициент аэрозольного и молекулярного ослабления на длине волны λ . На практике для рассеянного солнечного излучения условие $J_{ij0}^{(1)} = J_{ij0}^{(2)}$ не выполняется вследствие неравномерности в спектре излучения солнца и поглощения излучения измеряемым газом до момента рассеяния на горизонтальной трассе, поэтому сигнал корреляционного спектрометра имеет вид

$$R = \overline{\Delta\sigma} \cdot \rho \cdot \alpha^{-1} + R_0, \quad (3)$$

где R_0 — нулевой сигнал, который для вертикальной составляющей излучения, освещающего горизонтальную трассу, можно получить, направляя линию визирования прибора вертикально вверх или под другим меньшим углом, достаточным для падения сигнала R до R_0 . Поэтому в соответствии с геометрией эксперимента (рис. 1) во время измерений по рассеянной солнечной радиации для выделения компоненты излучения, соответствующей вертикальному освещению горизонтальной трассы, в корреляционном спектрометре используется составляющая излучения, имеющая горизонтальную поляризацию.

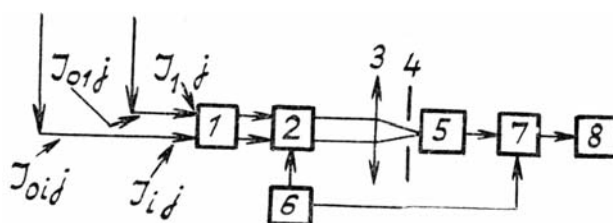


Рис. 1. Функциональная схема портативного корреляционного спектрометра

По этой причине пучки излучения, освещающие горизонтальную трассу сбоку, ослабляются. Они обусловлены многократным рассеянием, проходят большой неопределенный путь в приземном воздухе и испытывают сильное поглощение двуокисью азота. Предельная высота горизонтальной трассы над поверхностью земли определяется погрешностью расчета нулевого сигнала R_0 , которая возникает из-за подсветки трассы снизу излучением, рассеянным в атмосферном воздухе, отраженным от земной поверхности и испытывающим при этом распространении вниз—вверх заметное поглощение двуокисью азота. Погрешностью в определении R_0 можно, по-видимому, пренебречь для горизонтальных трасс, располагающихся на высотах, значительно меньших эффективной длины зондируемой трассы. В противном случае при увеличении высоты зондируемой горизонтальной трассы необходимо учитывать сигнал R_0 , который имеет вид

$$R_0 = \frac{R_0^{(1)} J^{(1)}(\lambda) + R_0^{(2)} J^{(2)}(\lambda)}{J^{(1)}(\lambda) + J^{(2)}(\lambda)}, \quad (4)$$

где $J^{(1)}(\lambda)$, $J^{(2)}(\lambda)$ — интенсивности излучения, падающего на трассу соответственно сверху и снизу, а $R_0^{(1)}$, $R_0^{(2)}$ — соответствующие им нулевые сигналы, полученные в направлении линии визирования корреляционного спектрометра вверх или вниз.

Таким образом, для высоких трасс требуется дополнительное измерение $J^{(1)}$, $J^{(2)}$ и $R_0^{(2)}$. Точность метода ограничивается пространственной неоднородностью интенсивности и спектральных характеристик излучения, освещающего различные участки горизонтальной трассы.

Показатель ослабления α можно вычислить из эмпирической формулы, учитывающей его связь с экспериментально полученными значениями метеорологической дальности видимости L [км]:

$$\alpha(\lambda) = \frac{3,91}{L} \left(\frac{\lambda}{0,55} \right)^{-n}, \quad (5)$$

где $n = 0,585L^{1/3}$.

Принимая во внимание тот факт, что полоса поглощения двуокиси азота имеет протяженную характерную структуру от 350 до 475 нм, а значение спектрального коэффициента ослабления на оптической трассе связано с длиной волны выражением (5), рассмотренный метод позволяет, регулируя положения полосы пропускания светофильтра 1 (рис. 1), изменять эффективную длину зондируемой трассы и, относя приращение полученного сигнала к изменению длины зондируемой трассы, получать не только средние по трассе, но и в определенном диапазоне дистанций локальные концентрации

двуокиси азота. В табл. 1 представлены возможные диапазоны изменения длины зондируемых горизонтальных трасс в зависимости от метеорологической дальности видимости, полученные за счет использования границ полос спектра поглощения некоторых газов. Полосы поглощения газов выбраны в областях спектра, в которых в атмосфере на приземном уровне присутствует рассеянное солнечное излучение.

**Диапазон перестройки эффективной длины оптической трассы
корреляционного спектрометра (в километрах) при измерении различных газов
в зависимости от метеорологической дальности видимости**

$L, \text{ км}$	SO_2	CS_2	HCHO	J_2 (пары)	NO_2
	300—315	310—330	300—360	525—600	350—475
10	1,2—1,3	1,2—1,3	1,2—1,5	2,4—2,9	1,4—2,1
20	1,9—2,1	2,0—2,3	1,9—2,6	4,7—5,9	2,5—4,0
30	2,5—2,8	2,7—3,0	2,5—3,5	7,0—9,0	3,4—5,9
50	3,5—3,9	3,7—4,3	3,5—5,1	12—15	4,8—9,3

Области поглощения исследуемых газов приведены в нанометрах.

Если статистическая погрешность измерений составляет около 10%, то для газов двуокиси серы (SO_2) и сероуглерода (CS_2) между максимальной и минимальной длиной зондируемой трассы можно измерить не более одного, а для формальдегида (HCHO), паров иода (J_2) и двуокиси азота (NO_2) соответственно от единиц до нескольких десятков разрешенных по расстоянию значений локальных концентраций соответствующих газов. Предложенный здесь новый метод определения содержания газовых примесей в атмосфере пассивным радиометром представляет в ряде случаев хорошую альтернативу методу лидарного горизонтального зондирования атмосферы, так как тоже не содержит требования использования оптического отражателя. Эффективная длина зондируемой трассы α^{-1} , составляющая при различных метеоусловиях величину от единиц до десяти километров позволяют при чувствительности прибора 5 $\text{ppm} \cdot \text{м}$ измерять минимальную среднюю по трассе концентрацию двуокиси азота от единиц до 0,5 ppb .

На рис. 1 представлена функциональная схема портативного корреляционного спектрометра, предназначенного для измерения содержания двуокиси азота в воздухе на фоне рассеянной солнечной радиации или от автономного источника излучения. Прибор содержит светофильтр 1, перестраиваемый интерференционно-поляризационный фильтр 2, приемный объектив 3, диафрагму 4, фотоприемник 5, генератор 6, электронную схему регистрации 7 и цифровой индикатор 8. В параллельном пучке света, собираемом объективом 3, через диафрагму 4 на входе фотоприемника светофильтр 1 выделяет часть спектра, содержащую характерную структуру полосы поглощения NO_2 с центром $\lambda = 442 \text{ нм}$ и шириной 8 нм, а перестраиваемый интерференционно-поляризационный фильтр 2 периодически выделяет в ней участки спектра, соответствующие максимумам и минимумам поглощения NO_2 . Глубина модуляции выходного тока фотоприемника 5, пропорциональная общему содержанию NO_2 , детектируется электронной схемой регистрации 7 и выводится на цифровой индикатор 8.

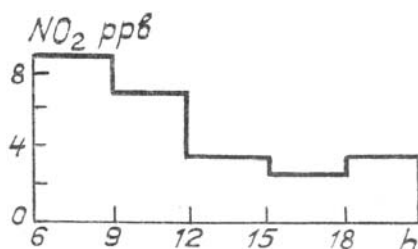


Рис. 2. Дневной ход содержания двуокиси азота в окрестности г. Рывьска

Генератор 6 управляет перестройкой интерференционно-поляризационного фильтра и работой схемы электронной регистрации 7. Диапазон измерений общего содержания NO_2 в пределах 5—1000 $\text{ppm} \cdot \text{м}$, время отдельного измерения 3 с, питание от источника тока 12 В, мощность 5 Вт. Масса прибора 2 кг. Градуировка прибора проводится по оптической кювете, заполненной газом двуокиси азота в известной концентрации. Методом, описанным выше, и реализующим его спектрометром измерен дневной ход содержания двуокиси азота, в июне 1989 г. в окрестности г. Рывьска Курской области, (рис. 2). Высота зондируемой трассы над поверхностью земли составляла 3 метра. Результаты

измерений, усредненные за семь дней наблюдений, показывают значительное (в 2,5 раза) падение концентрации двуокиси азота от утреннего к послеполуденному времени. Наибольший вклад в относительную ошибку измерений был обусловлен определением эффективной длины зондируемой трассы α^{-1} .

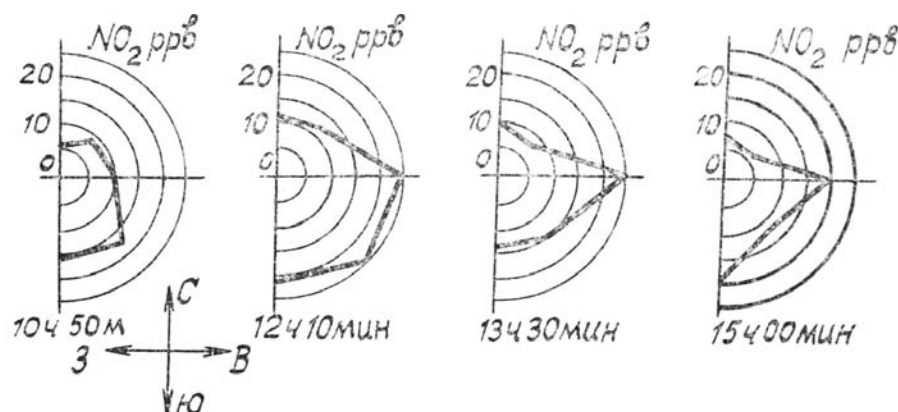


Рис. 3. Результаты измерений концентрации двуокиси азота в зависимости от азимутального угла в г. Долгопрудном 23.03.89 г.

Проведены испытания корреляционного спектрометра для определения содержания NO_2 в вертикальном столбе воздуха над Москвой. 27.07.89 г. в 12 час 30 мин по местному времени на автомобиле, направлявшемся из центральных районов города в ближайший пригород, был установлен прибор с вертикально направленной линией визирования. При этом по известной методике, описанной, например, Сандрони [2], регистрировалось на фоне рассеянной солнечной радиации изменение общего содержания NO_2 в вертикальном столбе воздуха. Отчетливо наблюдалось уменьшение общего содержания NO_2 на $40 \text{ ppm} \cdot \text{m}$. В начале маршрута в Москве по описанному выше методу было проведено измерение концентрации NO_2 на горизонтальном уровне. При этом эффективная длина трассы составила около 1 км, а концентрация NO_2 в воздухе на высоте 80 м над поверхностью земли в зависимости от азимута величину от 60 до 80 ppb. С высоты пятиэтажного здания, расположенного в г. Долгопрудном, в северном пригороде Москвы, проводились измерения концентрации двуокиси азота в зависимости от азимутального угла. На рис. 3 представлены некоторые результаты наблюдений в течение дня 23 марта 1989 г. Эффективная длина трассы, определенная из метеорологической дальности видимости, составляла 5 км. Отчетливо выделяются повышенные в 1,5–2 раза концентрации двуокиси азота в юго-восточном секторе наблюдений, в котором расположены промышленные районы Москвы и пригородной зоны, по сравнению с северным и северо-восточным направлениями наблюдений.

Представленный корреляционный спектрометр и новый дистанционный метод измерений позволяют проводить в автоматическом режиме в светлое время суток непрерывный контроль содержания двуокиси азота в воздухе в сельских и в городских районах, на горизонтальных трассах протяженностью до 10 км. Метод может быть распространен для определения содержания других газовых примесей тропосферы с наземных транспортных средств и с летательных аппаратов. Точность метода ограничена точностью определения коэффициента ослабления излучения на используемой для измерений длине волны, неоднородностью освещения трассы и распределения вдоль нее измеряемой газовой примеси.

1. Millan M. M., Hoff R. M. // *Appl. Optics*. 1977. V. 6. № 16. P. 1609–1618.
2. Sandroni S., et al. // *Atmos. Environ.* 1982. V. 16. №5. P. 1271–1272.

Центральная аэрологическая обсерватория
г. Долгопрудный

Поступила в редакцию
18 сентября 1989 г.

M. K. Shaykov, E. A. Chayanova, E. V. Ivanov. **New Technique and Correlation Spectrometer for remote Sensing of the NO_2 Content in the Atmosphere.**

New method for remote sensing and a portable correlation spectrometer are described in the paper along with the results of NO_2 measurements in the near-ground air with the sensitivity of 0.5 ppbv obtained at the distances up to 10 km, using scattered solar radiation.