

Оптимизация размеров пучка излучения импульсного лазера в оптико-акустических измерениях коэффициента аэрозольного поглощения

А.Б. Тихомиров, Б.А. Тихомиров*

*Институт оптики атмосферы им. В.Е. Зуева СО РАН
634021, г. Томск, пл. Академика Зуева, 1*

Поступила в редакцию 30.11.2010 г.

Установлено, что калибровку оптико-акустического спектрометра по известному молекулярному поглощению лазерных импульсов с энергией ≤ 30 мДж и длительностью ~ 50 нс атмосферным водяным паром и последующие измерения коэффициентов аэрозольного поглощения в атмосферном воздухе необходимо проводить при радиусе лазерного пучка не менее 1,5 мм. Результаты получены на основе численного моделирования и экспериментальных исследований формы сигнала давления, генерируемого в атмосферном воздухе, в зависимости от радиуса лазерного пучка, характера и длительности процесса тепловыделения.

Ключевые слова: атмосферный воздух, аэрозольное поглощение, оптико-акустический метод лазерной спектроскопии; atmospheric air, aerosol absorption, laser photoacoustic spectroscopy technique.

Введение

В настоящее время для измерения характеристик аэрозольного поглощения в атмосферном воздухе применяется метод резонансной [1] и импульсной [2] оптико-акустической (ОА) лазерной спектроскопии. Метод характеризуется высокой чувствительностью и широким динамическим диапазоном. Пороговая чувствительность по концентрации сажевого аэрозоля для ОА-спектрометров [1, 2] составляет около 10^{-8} г/м³ и оказывается вполне достаточной для измерения характеристик аэрозольного поглощения в приземной атмосфере [3, 4]. Главным достоинством ОА-метода является то, что в отличие от фильтровых методов измерений [5, 6] он позволяет измерять коэффициенты поглощения для аэрозольных частиц, взвешенных непосредственно в атмосферном воздухе [7].

К недостаткам ОА-метода следует отнести необходимость калибровки ОА-спектрометров, которая на практике осуществляется по известному молекулярному поглощению [1, 2]. Авторы работы [1] для калибровки ОА-спектрометра используют эталонные смеси двуокиси азота с воздухом, в работе [2] мы используем смесь водяного пара с воздухом.

Согласно [8, 9] амплитуда сигнала импульсного ОА-спектрометра определяется выражением

$$U_{\max} = \frac{\varepsilon_m v^{1/2}}{2\pi C_p T \varepsilon^{3/2} r^{1/2}} \alpha E = \varepsilon_m \alpha_{\text{ОА}} \alpha E = \varepsilon_m p_{\max}. \quad (1)$$

В формуле (1) приняты следующие обозначения:

$$\varepsilon = \left(\tau^2 + 2\omega_0^2 / v^2 \right)^{1/2}, \quad (2)$$

T — температура газа; C_p — удельная теплоемкость газа при постоянном давлении; v — скорость звука в газе; τ — длительность тепловыделения; ω_0 — радиус лазерного пучка; r — расстояние от центра лазерного пучка до микрофона; $\alpha_{\text{ОА}}$ — чувствительность ОА-метода; ε_m — чувствительность микрофона; α — коэффициент поглощения среды; E — энергия лазерного импульса; p_{\max} — амплитуда импульса сжатия в сигнале давления [8]. Формула (1) справедлива для лазерных пучков с гауссовым распределением интенсивности излучения.

Из формулы (1) видно, что для достижения меньшей пороговой чувствительности импульсного ОА-спектрометра необходимо уменьшать радиус лазерного пучка ω_0 и увеличивать энергию лазерного импульса E . Однако такой подход имеет свои ограничения, поскольку уменьшение радиуса пучка и увеличение энергии лазерного импульса связаны с увеличением интенсивности излучения, что, в конечном итоге, будет приводить к выгоранию аэрозольных частиц [10]. Кроме того, радиус лазерного пучка должен быть выбран таким, чтобы чувствительность ОА-метода оставалась постоянной как в калибровочных, так и аэрозольных измерениях. Согласно (1) это условие выполняется, если время распространения звука в поперечном сечении пучка ω_0/v будет много больше времени тепловыделения τ , т.е. времен релаксации возбужденных молекул H_2O и остывания нагретых аэрозольных частиц, или длительности лазерного импульса.

* Алексей Борисович Тихомиров (ra9hai@iao.ru); Борис Александрович Тихомиров (bat@iao.ru).

Цель настоящего исследования заключается в определении оптимального размера лазерного пучка, обеспечивающего необходимо высокую чувствительность импульсного ОА-спектрометра и позволяющего получать достоверные количественные данные о коэффициенте аэрозольного поглощения в атмосферном воздухе.

Эксперимент

В наших экспериментах [2] по исследованию аэрозольного поглощения излучения импульсных лазеров, генерирующих в видимом и ближнем ИК-диапазонах спектра, калибровка ОА-спектрометра проводится по известному поглощению излучения рубинового лазера водяным паром (полоса $\nu_1 + 3\nu_3$) в смесях с воздухом. Измеренное с помощью ПЗС-линейки распределение интенсивности излучения в поперечном сечении пучка $I(r)$ для используемого в эксперименте лазера на рубине близко к гауссову распределению (рис. 1).

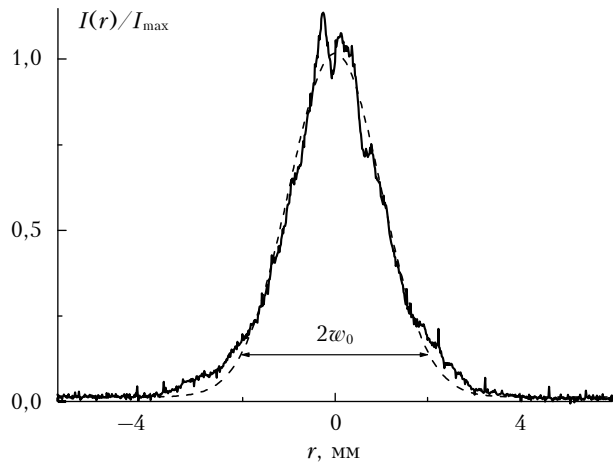


Рис. 1. Распределение интенсивности в поперечном сечении лазерного пучка. Сплошная линия — эксперимент, штриховая — аппроксимация функцией Гаусса

Детально устройство и функционирование ОА-спектрометра, методики измерений и калибровки представлены в [2, 11].

В настоящей статье, в отличие от экспериментов [2, 11], с целью увеличения временного разрешения измерений формы ОА-сигнала взамен полудюймового микрофона МК-221 (полоса частот 20 Гц — 20 кГц) в цилиндрической ячейке длиной 25 см и диаметром 20 см использовался четвертьдюймовый конденсаторный микрофон МК-301 (полоса частот 20 Гц — 100 кГц). Расстояние от лазерного пучка до микрофона 24 мм. Лазерный импульс с энергией $E \leq 30$ мДж и длительностью $\tau_n \approx 50$ нс фокусируется в ячейку линзой с фокусным расстоянием 70 см. Изменение радиуса лазерного пучка осуществляется смещением ОА-ячейки по оптической скамье.

Моделирование ОА-сигнала давления

Моделирование формы ОА-сигнала давления $p(r, t)$, генерируемого в ОА-ячейке при поглощении

импульсного излучения в атмосферном воздухе, производилось путем численного интегрирования решения линейаризованного волнового уравнения [12]:

$$\frac{\partial^2 p(r, t)}{\partial t^2} - v^2 \nabla^2 p(r, t) = (\gamma - 1) \frac{\partial I(r, t)}{\partial t}, \quad (3)$$

где γ — отношение теплоемкостей исследуемого воздуха при постоянном давлении и объеме. Для гауссова в поперечном сечении лазерного пучка, характерного для наших измерений, и процесса тепловыделения в виде функции $f(t)$ распределение интенсивности излучения $I(r, t)$ можно записать как

$$I(r, t) = I_0 \exp(2r^2/w_0^2) f(t).$$

Общее решение уравнения (3) имеет вид

$$p(r, t) = (\gamma - 1) \int_{-\infty}^t dt' \int_0^{\infty} r' dr' \int_0^{\infty} k dk I(r', t') \times \cos[kv(t - t')] J_0(kr) J_0(kr'), \quad (4)$$

где J_0 — функция Бесселя; I_0 — пиковая интенсивность; k — волновое число. При $w_0 \ll r$ интеграл (4) преобразовывается к виду [12]:

$$p(r, t) = (\gamma - 1) I_0 \int_0^t f(t') dt' \int_0^{\infty} r'^2 dk \exp\left(-\frac{k^2 w_0^2}{2}\right) \times \cos\left\{k\left[r - v(t - t')\right] - \frac{\pi}{4}\right\}. \quad (5)$$

Максимум распределения по размерам для сажевых частиц в атмосферном воздухе приходится на область значений $r_c \sim 120$ нм [13]. В этом случае для времени тепловой релаксации сажевых частиц имеем [14]:

$$\tau_c = \rho_c r_c^2 C_c / 3k_b = 2,2 \cdot 10^{-7} \text{ с},$$

где k_b — теплопроводность воздуха; ρ_c , C_c , r_c — плотность, теплоемкость и радиус сажевой частицы. Для оценки использовались справочные данные [15]: $k_b = 0,0257$ Вт · м⁻¹ · К⁻¹, $\rho_c = 1,88 \cdot 10^6$ г · м⁻³, $C_c = 641$ Дж · кг⁻¹ · К⁻¹. Время колебательно-поступательной релаксации молекул воды из состояния ($\nu_1 + 3\nu_3$) в воздухе при атмосферном давлении составляет $\tau_{VT} \approx 10^{-8}$ с [16]. Длительность импульса излучения лазера $\tau_n = 5 \cdot 10^{-8}$ с. Таким образом, для наших измерений справедливо соотношение

$$\tau_c > \tau_n > \tau_{VT} \quad (6)$$

и функция $f(t)$ для калибровочных измерений должна соответствовать гауссовой форме лазерного импульса. В наших расчетах она бралась в виде $f(t) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\tau} \exp\left(-\frac{t^2}{2\tau^2}\right)$. В измерениях аэрозольного поглощения функция $f(t)$ должна соответствовать экспоненциальному закону остывания сажевых частиц $f(t) = \frac{1}{\tau} \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right)$.

Из соотношений (1), (2) и (6) видно, что амплитуда и длительность ОА-сигнала будут одинаковыми в калибровочных и аэрозольных измерениях при радиусе лазерного пучка $w_0 \geq 0,5$ мм.

Результаты и их обсуждение

Характерная форма ОА-сигнала, генерируемого в результате поглощения сажевым аэрозолем в воздухе лазерных импульсов с длительностью 50 нс и регистрируемая микрофоном МК-301, представлена на рис. 2.

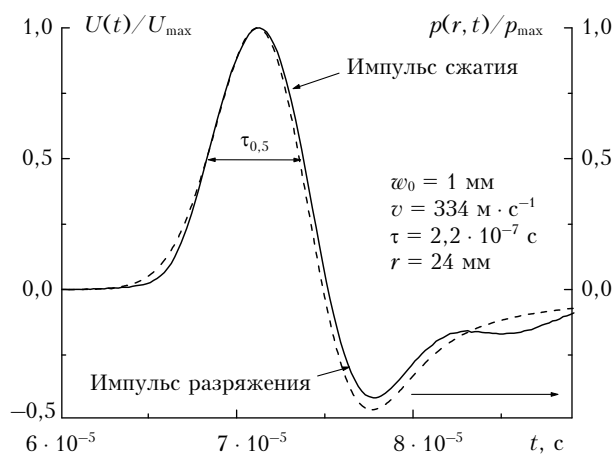


Рис. 2. Форма сигнала импульсного ОА-спектрометра. Сплошная линия — эксперимент, штриховая — расчет по формуле (5)

Видно, что ОА-сигнал давления запаздывает на время его распространения от лазерного пучка до микрофона и состоит из импульса сжатия и импульса разряжения [8].

Форма сигнала давления $p(r, t)$, рассчитанная путем численного интегрирования выражения (5) при параметрах $w_0 = 1$ мм, $r = 24$ мм, $\tau = 2,2 \cdot 10^{-7}$ с и $v = 334$ м \cdot с $^{-1}$, в случае экспоненциального процесса тепловыделения $f(t') = \frac{1}{\tau} \exp\left(-\frac{t'}{\tau}\right)$ представлена на рис. 2 штриховой линией. Из сравнения видно, что форма ОА-сигнала давления достаточно хорошо совпадает с формой электрического сигнала ОА-детектора. Длительность $\tau_{0,5}$, полученная из измерений, примерно на 5% превышает расчетное значение.

На рис. 3, а представлены зависимости чувствительности ОА-спектрометра $\epsilon_m \alpha_{ОА}$ от радиуса лазерного пучка w_0 , полученные на основе численного интегрирования выражения (5) в рассмотренных выше условиях (время и характер процесса тепловыделения для водяного пара и сажевых частиц, профиль лазерного пучка). На рис. 3, а представлены также экспериментальные данные, полученные в результате измерений с использованием водяного пара и сажевого аэрозоля. Аналогичные зависимости получены для длительности импульса сжатия $\tau_{0,5}$ (рис. 3, б).

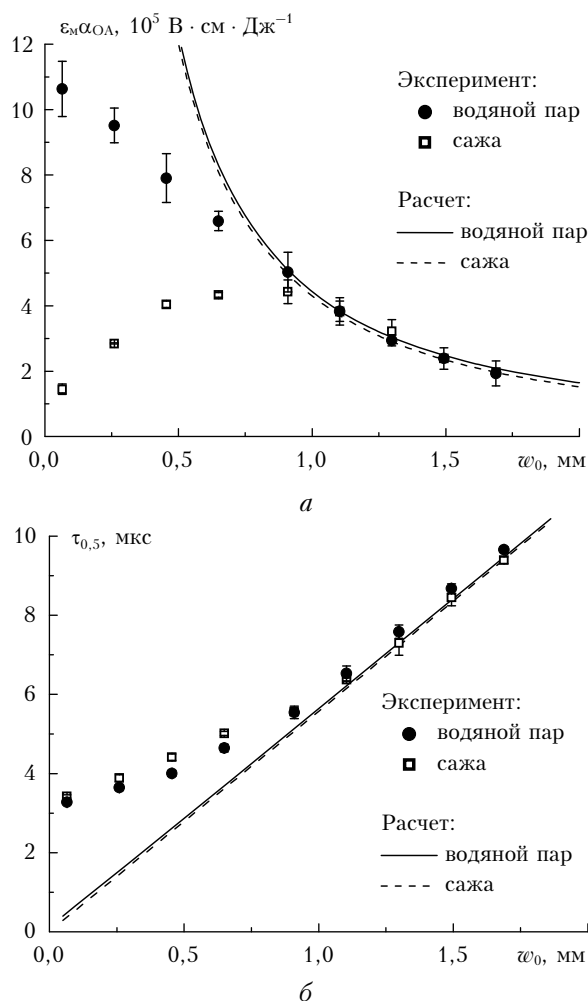


Рис. 3. Чувствительность импульсного ОА-спектрометра $\epsilon_m \alpha_{ОА}$ (а) и длительность импульса сжатия $\tau_{0,5}$ (б) в зависимости от радиуса лазерного пучка w_0 . Для наглядности расчетные кривые для водяного пара немного сдвинуты вверх

Различия между экспериментальными и теоретическими данными на рис. 3 для водяного пара и сажи при $w_0 \leq 1$ мм обусловлены следующими факторами. Во-первых, с уменьшением радиуса пучка микрофон перестает корректно воспроизводить форму генерируемого ОА-импульса давления из-за ухудшения частотной характеристики, что приводит к уменьшению амплитуды и увеличению длительности регистрируемых ОА-сигналов относительно расчетных. Во-вторых, при проведении измерений с сажевым аэрозолем в области малых радиусов увеличение плотности мощности лазерного излучения приводит к выгоранию аэрозольных частиц и, соответственно, к уменьшению эффективности передачи поглощенной энергии в акустический сигнал.

Таким образом, есть основания полагать, что калибровку импульсного ОА-спектрометра по известному поглощению излучения водяного пара и последующие измерения коэффициентов аэрозольного поглощения в атмосферном воздухе оптимально проводить при радиусе лазерного пучка $w_0 \approx 1,5$ мм. В этом случае чувствительность ОА-спектрометра остается

достаточно высокой и сохраняется постоянной при переходе от калибровки спектрометра по известному молекулярному поглощению к измерениям коэффициентов неизвестного аэрозольного поглощения.

1. Moosmüller H., Arnott W.P., Rodgers C.F., Chow J.C., Frazier C.A., Sherman L.E., Dietrich D.L. Photoacoustic and filter measurements related to aerosol light absorption during the Northern Front Range Air Quality Study (Colorado 1996/1997) // *J. Geophys. Res. D*. 1998. V. 103, N 21. P. 28,149–28,157.
2. Tikhomirov A.B., Firsov K.M., Kozlov V.S., Panchenko M.V., Ponomarev Y.N., Tikhomirov B.A. Investigation of spectral dependence of short-wave radiation absorption by ambient aerosol using time-resolved photoacoustic technique // *Opt. Eng.* 2005. V. 44, N 7. P. 071203-1–071203-11.
3. Козлов В.С., Шмаргунов В.П., Панченко М.В. Сезонная изменчивость вертикальных профилей поглощающих характеристик субмикронного аэрозоля в тропосфере // *Оптика атмосфер. и океана*. 2009. Т. 22, № 7. С. 635–642.
4. Козлов В.С., Панченко М.В., Ягушева Е.П. Субмикронный аэрозоль и сажа приземного слоя в суточном ходе // *Оптика атмосфер. и океана*. 2010. Т. 23, № 7. С. 561–569.
5. Rosen H., Novakov T. Optical transmission through aerosol deposits on diffusely reflective filters – a method for measuring the absorbing component of aerosol particles // *Appl. Opt.* 1983. V. 22, N 1. P. 1265–1267.
6. Hansen A.D.A., Rosen H., Novakov T. The aethalometer – an instrument for the real-time measurement of optical absorption by aerosol particles // *Sci. Total Environ.* 1984. V. 36, N 1. P. 191–196.
7. Arking A. Absorption of solar energy in the atmosphere: discrepancy between model and observations // *Science*. 1996. V. 273, N 5276. P. 779–782.
8. Heritier J.-M. Electrostrictive limit and focusing effects in pulsed photoacoustic detection // *Opt. Commun.* 1983. V. 44, N 4. P. 267–272.
9. Diebold G.J. Application of the photoacoustic effects to studies of gas phase chemical kinetics // *Photoacoustic, photothermal and photochemical processes in gases (Topics in current Physics)* / Ed. by P. Hess. Berlin: Springer-Verlag, 1989. V. 46. P. 125–172.
10. Букатый В.И., Погодаев В.А., Чаноров Д.П. Динамика твердой частицы в поле импульсного лазерного излучения // *Прикл. мех. и теор. физ.* 1979. № 1. С. 30–34.
11. Тихомиров А.Б., Пташник И.В., Тихомиров Б.А. Измерения коэффициента континуального поглощения водяного пара в области 14400 см^{-1} ($0,69\text{ мкм}$) // *Оптика и спектроскопия*. 2006. Т. 101, № 1. С. 86–96.
12. Джиджоев Д.С., Попов В.К., Платоненко В.Т., Чугунов А.В. Зависимость параметров оптоакустического сигнала от радиуса возбуждаемой области // *Квант. электрон.* 1984. Т. 11, № 2. С. 414–416.
13. Kozlov V.S., Panchenko M.V., Kozlov A.S., Ankilov A.N., Baklanov A.M., Malyshkin S.B. Instrumental and technical approach to prompt field measurements of size distributions of aerosol absorbing and scattering characteristics // *Proc. 12-th Atmospheric Radiation Measurement (ARM) Science Team Meeting, St. Petersburg, FL / D. Carrothers, Ed. U.S. Department of Energy, Richland, WA. 2002. URL: http://www.arm.gov/publications/proceedings/conf12/extended_abs/kozlov2-vs.pdf*
14. Голубицкий Б.М., Тангаиев М.В. О применении оптико-акустического эффекта для исследования поглощения аэрозолем // *Изв. АН СССР. Физ. атмосфер. и океана*. 1976. Т. 12, № 4. С. 442–443.
15. Кошкин Н.И., Ширкевич М.Г. Справочник по элементарной физике. 9-е изд. М.: Наука, 1982. 208 с.
16. Kapitanov V.A., Tikhomirov B.A. Pulse photoacoustic technique for the study of vibrational relaxation in gases // *Appl. Opt.* 1995. V. 34, N 6. P. 969–972.

A.B. Tikhomirov, B.A. Tikhomirov. Optimization of beam size of the pulsed laser in the photoacoustic measurements of aerosol absorption coefficient.

It was determined that the calibration of the photoacoustic spectrometer using known molecular absorption of the laser pulses with an energy of 30 mJ and duration of ~ 50 ns by atmospheric water vapour and further measurements of aerosol absorption coefficient in the atmospheric air should be carried out at the laser beam radius not less than 1.5 mm. The obtained results are based on the numerical calculations and experimental study of the shape of pressure pulse generated in the atmospheric air depending on the laser beam radius, the nature and duration of the heat release process.