

УДК 551.501.5

Возможности применения обертонового СО-лазера для дистанционного газоанализа атмосферы

А.А. Ионин¹, Ю.М. Климачев¹, А.Ю. Козлов¹, А.А. Котков¹, Г.Г. Матвиенко²,
О.А. Романовский^{2,3}, О.В. Харченко², С.В. Яковлев^{2,3*}

¹Физический институт им. П.Н. Лебедева РАН
119991, г. Москва, Ленинский просп., 53

²Институт оптики атмосферы им. В.Е. Зуева СО РАН
634021, г. Томск, пл. Академика Зуева, 1

³Национальный исследовательский Томский государственный университет
634050, г. Томск, пр. Ленина, 36

Поступила в редакцию 10.01.2012 г.

Исследованы возможности применения обертонового СО-лазера для лазерного дистанционного зондирования методом дифференциального поглощения газовых компонентов атмосферы. Найдены информативные длины волн зондирования малых газовых составляющих. Рассчитаны для вертикальных трасс зондирования пространственно- и спектрально-разрешенные лидарные эхосигналы в области выбранных длин волн зондирования. Проведены тестовые эксперименты по применению метода дифференциального поглощения для зондирования газов атмосферы с помощью обертонового СО-лазера.

Ключевые слова: газовый анализ, поглощение, обертоновый СО-лазер, атмосфера; gas analysis, absorption, overtone CO laser, atmosphere.

Введение

Спектральная область излучения обертонового СО-лазера в области 2,5–4,2 мкм весьма привлекательна для дистанционного газоанализа атмосферы, поскольку она совпадает, во-первых, с окном прозрачности атмосферы в диапазоне длин волн 3,3–4,2 мкм, во-вторых, с полосами поглощения целого ряда естественных и загрязняющих компонентов атмосферы, в том числе токсинов, взрывчатых и наркотических веществ, и, в-третьих, чувствительность фотоприемников на основе InSb имеет в этой области спектра рекордно высокие значения. Обертоновый СО-лазер, таким образом, является перспективным устройством для различных применений в дистанционном лазерном зондировании, спектроскопическом газоанализе, медицине и т.д., где он способен конкурировать с известными химическими HF/DF-лазерами [1, 2], СО- и СО₂-лазерами на основных и преобразованных частотах [3–5] и диодными лазерами [6].

В ряде работ [7–10] было продемонстрировано, что СО-лазер, действующий на основных колебательных переходах, можно с успехом применять при детектировании десятков различных веществ.

Однако гораздо больше веществ имеют резонансные линии поглощения в том спектральном диапазоне, который соответствует обертонным колебательным переходам молекулы СО. Например, в работе [11] было показано, что излучение обертонового СО-лазера наилучшим образом подходит для анализа многокомпонентных газовых смесей.

Источники лазерного излучения для газового анализа должны обладать достаточно узкими линиями излучения и перестраиваться в широком диапазоне длин волн. При этом для анализа многокомпонентных газовых смесей перестройку предпочтительно осуществлять по фиксированным частотам. Такими спектральными свойствами обладают молекулярные газовые лазеры и, в частности, лазер на окиси углерода, который зарекомендовал себя как эффективный источник лазерного излучения в среднем ИК-диапазоне [12, 13]. Эффективность преобразования энергии накачки в энергию излучения может превышать 40% для СО-лазера, работающего на основных переходах [14], и 15% для обертонового СО-лазера [15].

Как показали экспериментальные исследования, такой лазер может излучать более 1000 спектральных линий, из них примерно 400 линий на обертоновых переходах [16, 17], причем расстояние между линиями составляет в среднем 1,5 см⁻¹ для основных и 4 см⁻¹ для обертоновых переходов. При таком широком спектральном диапазоне и столь плотном расположении линий лазерного излучения значительно возрастает количество совпадений между линиями лазерного излучения и линиями поглощения различных газов, что позволяет обнаруживать малые

* Андрей Алексеевич Ионин (aion@sci.lebedev.ru); Юрий Михайлович Климачев (umk@sci.lebedev.ru); Андрей Юрьевич Козлов (akozlov@sci.lebedev.ru); Андрей Александрович Котков (aakche@sci.lebedev.ru); Геннадий Григорьевич Матвиенко (megg@iao.ru); Олег Анатольевич Романовский (roa@iao.ru); Ольга Викторовна Харченко (olya@iao.ru); Семен Владимирович Яковлев (ysv@iao.ru).

газовые составляющие (МГС) атмосферы даже в тех случаях, в которых спектры поглощения искомым газом частично совпадают с мешающими газами.

В настоящей статье рассмотрены возможности применения оберточного СО-лазера для дистанционного газоанализа атмосферы методом дифференциального поглощения (МДП) МГС атмосферы.

Численное моделирование лидарного зондирования МГС атмосферы

Оберточные частоты излучения СО-лазера достаточно плотно перекрывают спектральный диапазон 2,5–4,2 мкм, что показано на рис. 1, а, где приведена мощность излучения импульсного оберточного СО-лазера, действующего в частотно-селективном режиме, при перестройке длины волны излучения.

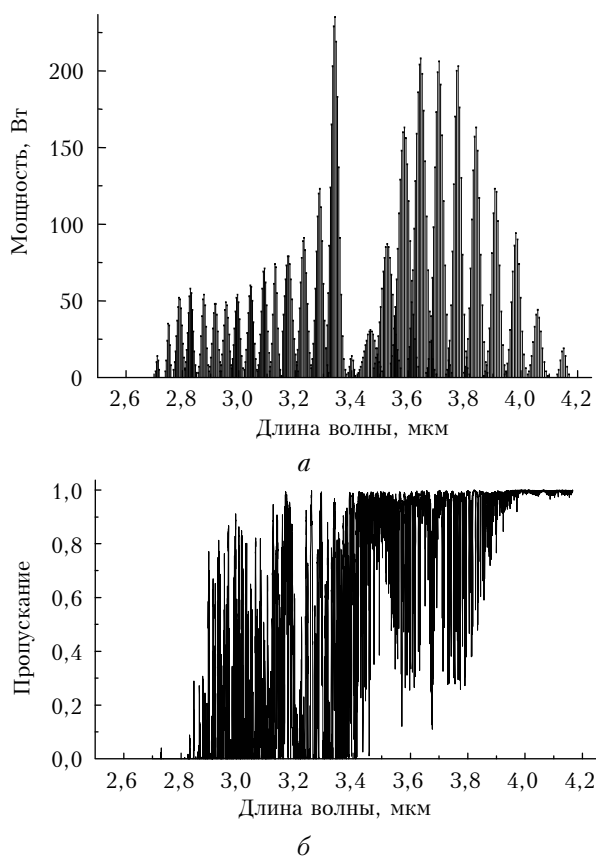


Рис. 1. Мощность излучения импульсного оберточного СО-лазера, действующего в частотно-селективном режиме, при перестройке длины волны излучения (а) и коэффициент пропускания такого излучения на трассе длиной 1 км (б)

Нами был рассчитан с разрешением $0,001 \text{ см}^{-1}$ для ширины линии лазерного излучения $0,01 \text{ см}^{-1}$ спектр пропускания атмосферы для приземной 1-км трассы зондирования и стандартной модели атмосферы лета средних широт [18] с учетом поглощения девяти основных поглощающих газовых компонентов атмосферы (азот, кислород, водяной пар, углекислый газ, озон, метан, окись углерода, двуокиси азота и серы). Расчет проводился по методу *line-by-line* с использованием данных о спектральных параметрах линий поглощения основных атмосферных газов [19]. Результаты приведены на рис. 1, б, из которого видно, что часть линий излучения оберточного лазера не может быть использована в трассовом газоанализе атмосферы вследствие мощного мешающего поглощения водяного пара.

Из сравнения рис. 1, а и 1, б следует, что в диапазоне генерации оберточных частот СО-лазера имеются, наряду с полностью поглощаемыми на 1-км трассе спектральными участками, микроокна прозрачности атмосферы, которые можно использовать для зондирования по методу дифференциального поглощения целого ряда газовых компонентов атмосферы.

Для поиска информативных длин волн зондирования МГС атмосферы по МДП в диапазоне генерации излучения оберточного СО-лазера нами была применена методика [20], разработанная на базе обобщенных критериев отбора линий и ускоренного алгоритма расчета.

Результаты поиска информативных длин волн, пригодных для зондирования МГС атмосферы, представлены в табл. 1.

В ней указаны центры линий поглощения (в воздухе) атмосферных газов $\nu_{\text{погл}}$ и ближайшие к ним центры линий излучения (в воздухе) СО-лазера $\nu_{\text{изл}}$, а также величина отстройки $\Delta\nu$ между центрами линий поглощения и излучения. Представлены коэффициенты пропускания $T_{\text{МГС}}$ (концентрация $\text{CH}_4 - 1,7$, $\text{N}_2\text{O} - 1,5$, $\text{H}_2\text{CO} - 1$ и $\text{NO}_2 - 1 \text{ млн}^{-1}$) на приземной трассе 1 км при поглощении только исследуемым газом и коэффициент пропускания мешающих газов $T_{\text{меш.погл}}$, который рассчитывался по линиям поглощения, расположенным на расстоянии не более 10 см^{-1} от центра лазерной линии для концентраций основных мешающих газов, типичных для лета средних широт ($\text{H}_2\text{O} - 15600 \text{ млн}^{-1}$, $\text{CO}_2 - 338 \text{ млн}^{-1}$, озон — 30 млрд^{-1} , $\text{CH}_4 - 1,7 \text{ млн}^{-1}$, $\text{N}_2\text{O} - 0,3 \text{ млн}^{-1}$, $\text{H}_2\text{CO} - 2,5 \text{ млрд}^{-1}$ и $\text{NO}_2 - 3,7 \text{ млрд}^{-1}$).

Для оценки возможностей лидарного зондирования МГС атмосферы с помощью выбранных в результате проведенного поиска информативных длин волн был проведен расчет эхосигналов для вертикальной

Таблица 1

Информативные длины волн (волновые числа), наиболее пригодные для зондирования МГС излучением оберточного СО-лазера

Газ	$\lambda_{\text{изл}}$, МКМ	$\nu_{\text{изл}}$, см^{-1}	$\lambda_{\text{погл}}$, МКМ	$\nu_{\text{погл}}$, см^{-1}	$\Delta\nu$, см^{-1}	$T_{\text{МГС}}$	$T_{\text{меш.погл}}$
CH_4	3,44030	2906,723	3,44037	2906,664	0,059	0,80	0,93
N_2O	3,87790	2578,715	3,87789	2578,719	0,0042	0,70	0,96
H_2CO	3,56340	2806,309	3,56332	2806,371	0,062	0,60	0,98
NO_2	3,42820	2916,983	3,42823	2916,956	0,027	0,70	0,80

трассы. Учитывалось мешающее поглощение всех основных атмосферных газовых компонент, концентрация зондируемой газовой компоненты полагалась равной 1 млн^{-1} . В расчетах использовались атмосферные оптико-метеорологические модели McClatchey et al. [21], Зуева и Комарова [18]. Спектральные параметры линий поглощения атмосферных газов в основном заимствовались из атласа [19] без учета погрешностей спектральной информации. Используемые в расчетах коэффициенты рассеяния в направлении назад определялись с помощью статистических профилей лидарных отношений из модели Крекова и Рахимова [22]. Входные данные для

проведения численного моделирования лидарного зондирования МГС атмосферы с помощью обертоного СО-лазера представлены в табл. 2.

На рис. 2 представлены рассчитанные для вертикальных трасс пространственно- и спектрально-разрешенные лидарные эхосигналы в области выбранных длин волн зондирования некоторых рассматриваемых нами МГС атмосферы.

Видно, что во всем рассматриваемом диапазоне высот 0–6 км уровень лидарных эхосигналов для всех исследуемых газов превышает уровень эквивалентной мощности шума фотоприемника $NEP = 10^{-9} \text{ Вт}$.

Таблица 2

Входные данные для проведения численного моделирования лидарного зондирования МГС атмосферы с помощью обертоного СО-лазера

Параметр лидарной системы	Значение параметра
Площадь приемника $A_{\text{пр}}$ ($D = 0,3 \text{ м}$)	$700 \text{ см}^2 = 7 \cdot 10^{-7} \text{ км}^2$
Ширина аппаратной функции	$0,01 \text{ см}^{-1}$
Эффективность приемной системы	0,3
Пространственное разрешение Δr	1 км
Пиковая мощность лазера	$20 \cdot 10^3 \text{ Вт}$
Диапазон перестройки лазера	2,5–4,2 мкм ($2700\text{--}3400 \text{ см}^{-1}$)
Коэффициент обратного аэрозольного рассеяния $\beta_{\text{п}}$	$2,3 \cdot 10^{-3} \text{ км}^{-1}$
NEP фотодетектора	$1 \cdot 10^{-9} \text{ Вт}$

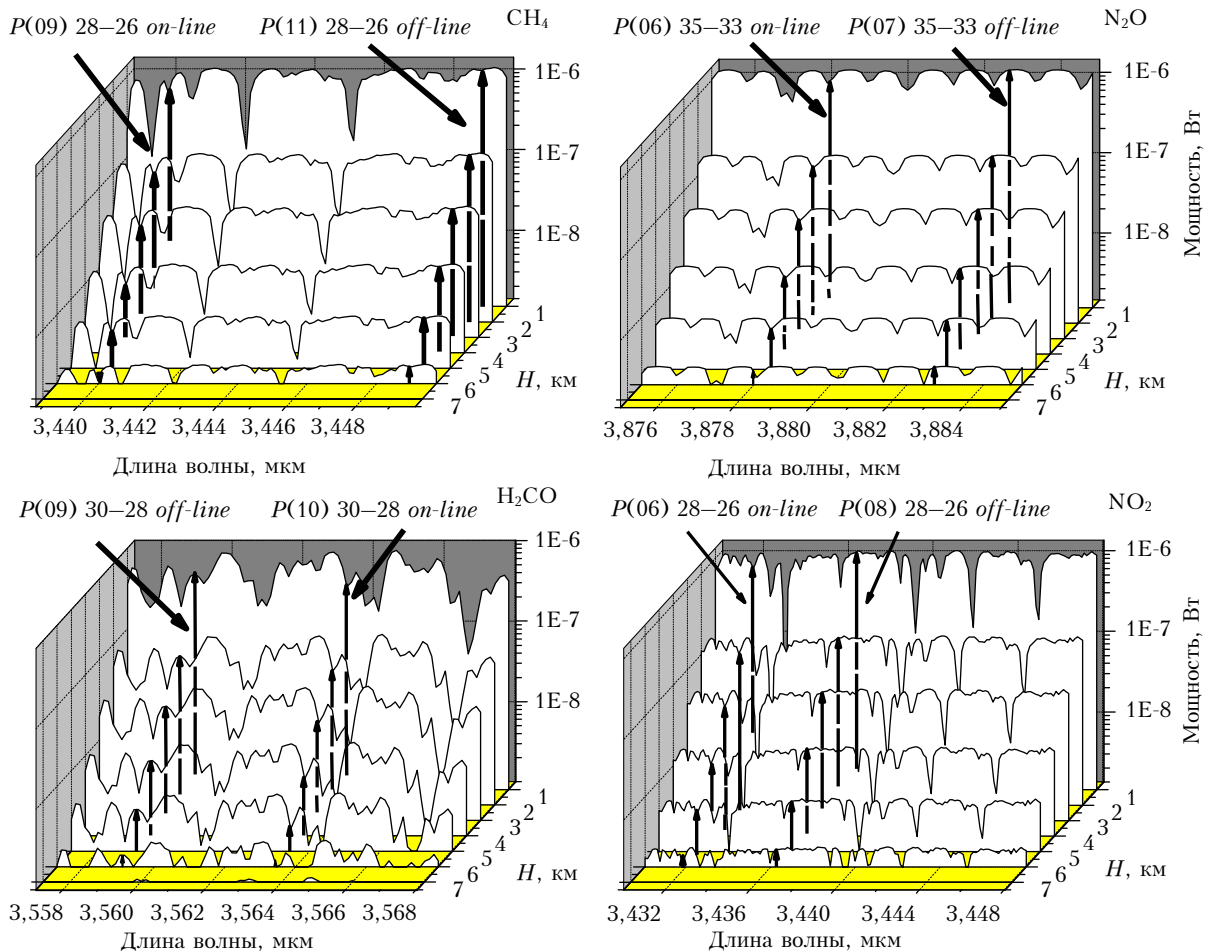


Рис. 2. Пространственно и спектрально разрешенные лидарные эхосигналы в области выбранных длин волн зондирования МГС атмосферы

Тестовые эксперименты по лазерному зондированию газового состава атмосферы обертоном СО-лазером

Для выбранных информативных длин волн зондирования (см. табл. 1) были проведены тестовые эксперименты по лазерному зондированию газового состава атмосферы с использованием обертоного СО-лазера. В наличии на момент проведения тестовых экспериментов имелись метан (CH_4) и закись азота (N_2O). Эксперименты проводились в 2 этапа:

1. Измерение поглощения исследуемыми газами лазерного излучения в поглощающей ячейке с помощью калориметров типа OPHIR.

2. Измерение поглощения и суммарного ослабления рассеянного от топографической мишени излучения, прошедшего через среду с исследуемым газом, с помощью криогенных фоторезисторов типа «СВОД».

Оптическая схема экспериментов по измерению поглощения излучения обертоного СО-лазера в метане CH_4 и закиси азота N_2O представлена на рис. 3.

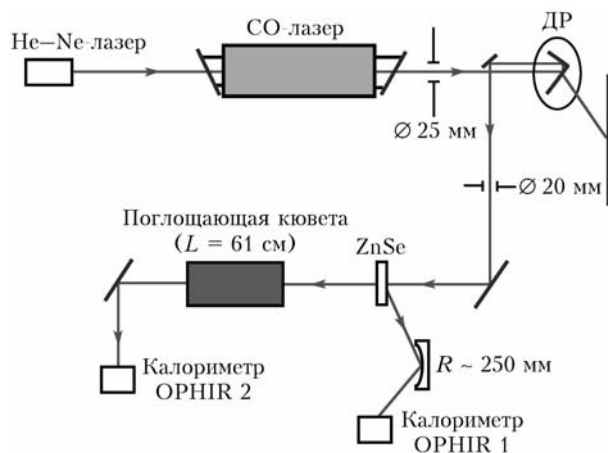


Рис. 3. Схема экспериментальной установки для измерения поглощения исследуемыми газами лазерного излучения в поглощающей ячейке

Лазерный резонатор обертоного СО-лазера был образован сферическим зеркалом и дифракционной решеткой (ДР) (420 штр./мм), работающей в режиме автоколлимации в первом порядке дифракции и выводящей излучение в нулевой порядок. Апертура лазерного пучка определялась внутрирезонаторной диафрагмой диаметром 25 мм. Для юстировки лазерного резонатора применялся He-Ne-лазер. Изменение спектральной линии излучения лазера осуществлялось поворотом дифракционной решетки. Для измерения энергии лазерного импульса E_0 часть лазерного излучения, прошедшего диафрагму диаметром 20 мм, направлялась на калориметр (OPHIR 3A-SH) посредством отражения от плоскопараллельной пластины из ZnSe. Первый калориметр (OPHIR 3A-SH) измерял энергию лазерного луча E , прошедшего через поглощающую ячейку (кювету) длиной 61 см. В кювету напускалась смесь газов: исследуемые га-

зы с азотом в пропорции примерно 1:9. Поглощение излучения вычислялось в соответствии с законом Бугера–Ламберта–Бэра.

Результаты измерений поглощения закиси азота и метана на линиях излучения обертоного СО-лазера представлены на рис. 4.

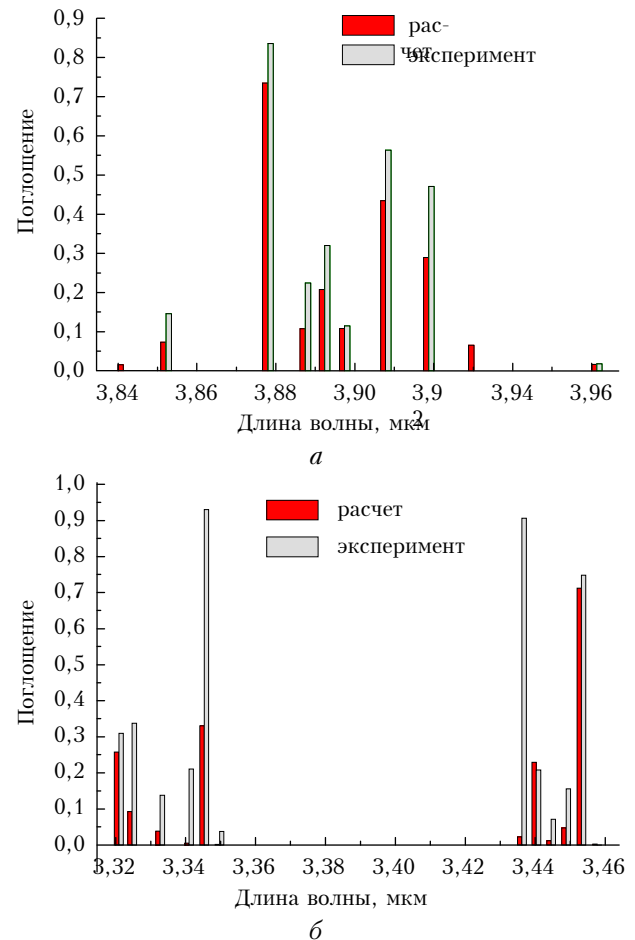


Рис. 4. Расчетные и экспериментальные значения поглощения излучения обертоного СО-лазера на линиях поглощения закиси азота (а) и метана (б)

Видно, что измеренные и рассчитанные значения поглощения согласуются во всем спектральном интервале проведенных измерений, кроме нескольких неинформативных линий излучения в области полосы поглощения метана, где возможно влияние остаточного мешающего поглощения водяного пара в измерительной кювете.

Оптическая схема экспериментов по измерению коэффициента ослабления излучения обертоного СО-лазера в метане CH_4 и закиси азота N_2O представлена на рис. 5.

Первый калориметр (OPHIR 3A-SH) регистрировал энергию лазерного излучения E_0 до прохождения луча через поглощающую ячейку длиной 10 см. После прохождения лазерного луча через поглощающую ячейку часть лазерного излучения направлялась на второй калориметр (OPHIR 3A-SH)/ИКС посредством отражения от плоскопараллельной пластины CaF_2 .

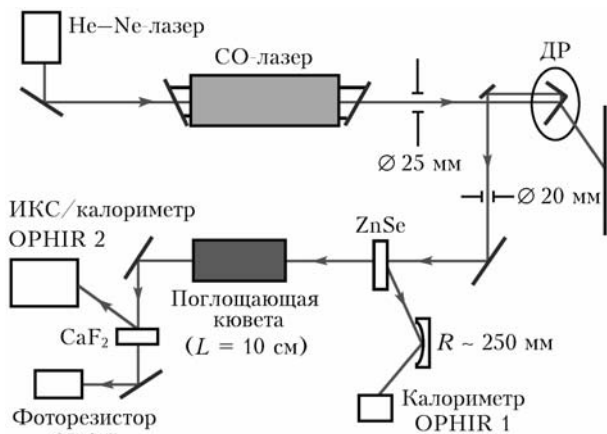


Рис. 5. Схема экспериментальной установки для измерения ослабления рассеянного от топографической мишени излучения, прошедшего через среду с исследуемым газом

Второй калориметр измерял энергию лазерного луча E , прошедшего через поглощающую ячейку. Поглощение излучения рассчитывалось в соответствии с законом Бугера–Ламберта–Бэра. Другая часть лазерного излучения направлялась на топоцель, расположенную вслед за пластиной CaF_2 .

В качестве топоцели использовался диффузно-рассеивающий отражатель с альбедо 0,8. Фоторезистором «СВОД» регистрировались энергия излучения, прошедшего через среду с исследуемым газом, и потерявшаяся часть излучения при отражении от топоцели.

Результаты измерений ослабления для закиси азота и метана представлены на рис. 6.

Видно, что измеренные (поглощение и ослабление) и рассчитанные (поглощение) значения согласуются во всем спектральном интервале, в котором произведены измерения. Некоторые расхождения расчета и измерений поглощения метана также можно объяснить влиянием остаточного мешающего поглощения водяного пара в измерительной кювете.

Таким образом, проведены тестовые эксперименты по применению метода дифференциального поглощения для зондирования атмосферы с помощью обертонового СО-лазера. Экспериментальные данные согласуются с результатами расчетов, что позволяет применять такую методику при дистанционном зондировании атмосферы на линиях обертонового СО-лазера.

Заклучение

В целом, проведенные расчеты и первые тестовые эксперименты подтверждают перспективность применения излучения обертонового СО-лазера для газоанализа атмосферы. Причем следует отметить, что приведенный в работе список газов не является окончательным, так как предварительные оценки по литературным данным говорят о возможности зондирования в перекрываемой СО-лазером области спектра целого ряда других газовых компонентов атмосферы.

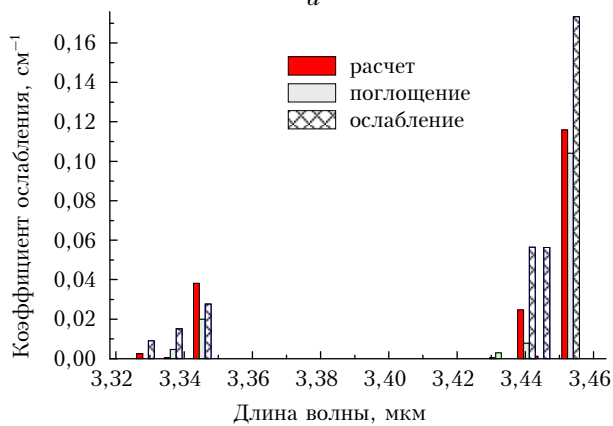
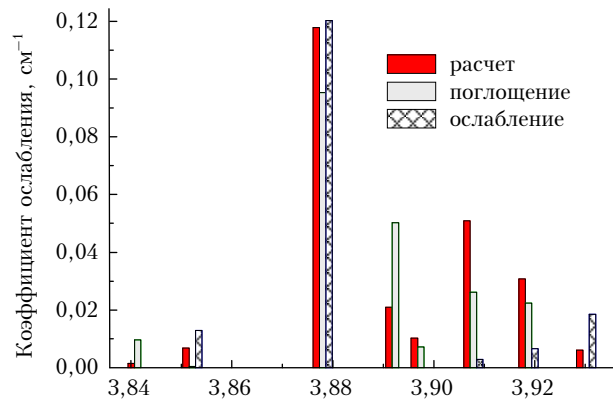


Рис. 6. Расчетные и экспериментальные значения ослабления рассеянного от топографической мишени излучения обертонового СО-лазера на линиях поглощения закиси азота (а) и метана (б)

Авторы выражают глубокую благодарность И.В. Пташнику за полезные консультации в ходе подготовки и обсуждения материалов данной статьи.

Работа выполнена при поддержке Минобрнауки РФ (государственные контракты № 02.740.11.0674, 14.740.11.0204, 16.518.11.7067 и 11.519.11.6033).

1. Agroskin V.Y., Bravy B.G., Chernyshev Y.A., Kirianov V.I., Makarov E.F., Papin V.G., Sotnichenko S.A., Vasiliev G.K. Multifrequency sounding with DF-laser-based lidar system: preliminary results // Proc. SPIE. 2004. V. 5416. P. 204–212.
2. Матвиенко Г.Г., Пташник И.В., Романовский О.А., Харченко О.В., Шаманаев В.С. Применимость DF-лазера для детектирования аэрозольно-газовых выбросов // Прикл. физ. 2002. № 1. С. 129–136.
3. Андреев Ю.М., Гейко П.П., Грибенюков А.И., Зуев В.В., Романовский О.А. ИК параметрические преобразователи частоты в задачах лазерной спектроскопии атмосферы // Оптика атмосф. 1988. Т. 1, № 3. С. 20–27.
4. Карапузников А.И., Пташник И.В., Романовский О.А., Харченко О.В., Шерстов И.В. Возможности применения вертолетного лидара на основе излучения перестраиваемого ТЕА СО₂-лазера для обнаружения утечек метана // Оптика атмосф. и океана. 1999. Т. 12, № 4. С. 364–371.
5. Андреев Ю.М., Гейко П.П., Самохвалов И.В. Зондирование газовых загрязнений атмосферы методом диф-

- ференциального поглощения в ИК-области спектра // Оптика атмосфер. и океана. 2003. Т. 16, № 9. С. 783–791.
6. Заславский В.Я., Надеждинский А.И., Понуровский Я.Я., Чернин С.М. Измерение концентрации формальдегида H_2CO в воздухе с помощью диодных лазеров с вертикальным резонатором // Квант. электрон. 2011. Т. 41, № 1. С. 81–85.
 7. Kreuzer L.B., Kenyon N.P., Patel C.K.N. Air Pollution: Sensitive Detection of Ten Pollutant Gases by Carbon Monoxide and Carbon Dioxide Lasers // Science. 1972. V. 177. P. 347–349.
 8. Zelinger Z. Continuous generation of trace amounts by means of permeation tubes // Chemické Listy. 1986. V. 80. P. 673–690.
 9. Luo X., Shi F.Y., Lin J.X. CO-laser photoacoustic detection of phosgene ($COCl_2$) // Int. J. Infrared Millimeter Waves. 1991. V. 12, N 12. P. 141–147.
 10. Bernegger S., Sigrist M.W. CO-laser photoacoustic spectroscopy of gases and vapours for trace gas analysis // Infrared Phys. 1990. V. 30, N 5. P. 375–429.
 11. Бузыкин О.Г., Иванов С.В., Ионин А.А., Котков А.А., Селезнев Л.В. Количественная спектроскопическая диагностика загрязнений атмосферы с помощью излучения СО-лазера на первом обертоном // Изв. РАН. Сер. физ. 2002. № 7. С. 962–967.
 12. Алейников В.С., Масычев В.И. Лазеры на окиси углерода. М.: Радио и связь, 1990. 356 с.
 13. Ионин А.А. Лазеры на окиси углерода с накачкой электрическим разрядом // Энциклопедия низкотемпературной плазмы. Сер. Б. Т. XI-4 / Под ред. С.И. Яковленко. М.: Физматлит, 2005. 740 с.
 14. Ветошкин С.В., Ионин А.А., Климачев Ю.М., Котков А.А., Рулев О.А., Селезнев Л.В., Синицын Д.В. Динамика коэффициента усиления в импульсном лазерном усилителе на газовых смесях $CO-He$, $CO-N_2$ и $CO-O_2$ // Квант. электрон. 2007. Т. 37, № 2. С. 111–118.
 15. Ионин А.А., Климачев Ю.М., Козлов А.Ю., Котков А.А., Курносков А.К., Напартович А.П., Рулев О.А., Селезнев Л.В., Синицын Д.В., Хагер Г.Д., Шнырев С.Л. Импульсный обертоновый СО-лазер с кпд 16% // Квант. электрон. 2006. Т. 36, № 12. С. 1153–1160.
 16. Basov N.G., Ionin A.A., Kotkov A.A., Kurnosov A.K., McCord J.E., Napartovich A.P., Seleznev L.V., Turkin N.G., Hager G.D. Pulsed laser operating on the first overtone of the CO molecule in the 2.5–4.2 μm range. I. Multifrequency lasing // Quant. Electron. 2000. V. 30, N 9. P. 771–782.
 17. Basov N.G., Ionin A.A., Kotkov A.A., Kurnosov A.K., McCord J.E., Napartovich A.P., Seleznev L.V., Turkin N.G., Hager G.D. Pulsed laser operating on the first overtone of the CO molecule in the 2.5–4.2 μm range. II. Frequency-selective regime // Quant. Electron. 2000. V. 30, N 10. P. 859–872.
 18. Зуев В.Е., Комаров В.С. Статистические модели температуры и газовых компонент атмосферы. Л.: Гидрометеониздат, 1986. 264 с.
 19. Rothman L.S., Jacquemart D., Chance K., Barbe A., Benner D.C., Devi V.M., Birk M., Wagner G., Brown L.R., Toth R.A., Carleer M.R., Auwera J. Vander, Chackerian C., Coudert L.H., Flaud J.-M., Hartmann J.-M., Ophal J., Perrin A., Dana V., Mandin J.-Y., Smith M.A.H., Gamache R.R., Goldman A., Jucks K.W., Maki A.G., Massie S.T., Rinsland C.P., Tennyson J., Tolchenov R.N., Varanasi P. The HITRAN 2004 molecular spectroscopic database // J. Quant. Spectrosc. and Radiat. Transfer. 2005. V. 96, N 2. P. 139–204.
 20. Романовский О.А. Методика и результаты поиска информативных длин волн зондирования газовых компонент атмосферы // Прикл. физ. 2009. № 1. С. 24–30.
 21. McClatchey R.A., Fenn R.W., Selby J.E.A. / Ed. by A. McIntyre. Optical properties of atmosphere: Report AFCRL-71-0297. Bedford, Mass. 1971. 86 p.
 22. Креков Г.М., Рахимов Р.Ф. Оптико-локационная модель континентального аэрозоля. Новосибирск: Наука, 1982. 199 с.

A.A. Ionin, Yu.M. Klimachev, A.Yu. Kozlov, A.A. Kotkov, G.G. Matvienko, O.A. Romanovskii, O.V. Kharchenko, S.V. Yakovlev. **Possibilities of the overtone CO laser application for remote gas analysis of the atmosphere.**

The possibility of the overtone CO laser for laser remote sensing of gaseous components of the atmosphere by differential absorption method are studied. The informative wavelength for sensing trace gases are found. For vertical sounding paths, the spatial and spectrally allowed lidar signals for selected wavelength are calculated. The test experiments on the application of differential absorption method for sensing the atmospheric gases with overtone CO laser are conducted.