

Б.Г. Агеев, О.Ю. Никифорова, В.А. Сапожникова

О ЗАВИСИМОСТИ ЧУВСТВИТЕЛЬНОСТИ ОПТИКО-АКУСТИЧЕСКОГО ДЕТЕКТОРА ОТ ДАВЛЕНИЯ ИССЛЕДУЕМОГО ГАЗА

Оптико-акустические детекторы широко используются в лазерном газоанализе и спектроскопии. Как правило, их применяют при общих давлениях газов, близких к атмосферному, но иногда и при пониженных давлениях. В этих случаях появляется функциональная зависимость чувствительности оптико-акустического детектора (ОАД) от давления. В статье приведены результаты исследования такой зависимости для H_2O , CO_2 и их смесей с различными буферами в области генерации CO_2 -лазера с $\lambda = 10,6 \text{ мкм}$. Сравнение чувствительности ОАД для этих двух газов особенно интересно из-за специфики изменения их коэффициентов поглощения в зависимости от давления.

Известно, что амплитуда оптико-акустического сигнала (ОАС) описывается термодинамической моделью Керра и Этвуда [1], по которой слабопоглощающий газ можно представить неким твердым телом, в котором возник перепад температур из-за локального поглощения при прохождении возбуждающего лазерного излучения. Позднее Вейк и Амер [2], основываясь на методе Керра и Этвуда, предложили для описания величины сигнала при поглощении газом модулированного излучения следующее выражение, в котором учитывается зависимость чувствительности микрофона от давления:

$$U(P) = S(P, \bar{\gamma}, T) \kappa(P) \frac{PW}{4\pi kT} \sum_m \frac{D_m \exp(i\theta_m)}{\sqrt{1 + \omega^2 a^2 / D^2 \xi_m^2}}, \quad (1)$$

где W — мощность падающего излучения; κ — коэффициент поглощения; a — радиус кюветы ОАД; P, T — равновесные давление и температура внутри кюветы; ξ_m — m -й корень функции Бесселя нулевого порядка, k — коэффициент теплопроводности; D — коэффициент тепловой диффузии поглощающего газа или смеси; D_m — численно рассчитанный коэффициент, зависящий от радиуса луча; S — чувствительность микрофона; $\operatorname{tg}\theta_m = (\omega a^2 / D \xi_m^2)^{-1}$,

$$S(P, \bar{\gamma}, T) = S_0 \frac{1 + B}{1 + B(P \bar{\gamma} T_{\text{STP}} / \gamma_{\text{возд}} T P_{\text{атм}})}, \quad (2)$$

$B \sim 1$, $\bar{\gamma} = (\bar{C}_V + R) / \bar{C}_V$, $\bar{C}_V = x_i C_{pi} + (1 - x_i) C_{pj} - R$; x — молярная доля поглощающего газа i , C_{pi} , C_{pj} — теплоемкости поглощающего и буферного газов. Из (2) видно, что с увеличением давления чувствительность микрофона падает.

Выражение (1) можно представить в виде

$$U = \alpha \kappa W = S(P) \alpha'(P) \kappa(P) W, \quad (3)$$

где α — чувствительность ОАД, которая пропорциональна чувствительности микрофона. Величина

$$\alpha'(P) \approx \sum_m \frac{D_m \exp(i\theta_m)}{m \sqrt{1 + \omega^2 a^2 / D^2 \xi_m^2}} \quad (4)$$

описывающая процесс восстановления теплового равновесия в газе, не зависит от свойств микрофона и с увеличением давления стремится к постоянной, зависящей от радиуса пучка, а ее наклон при малых давлениях зависит от коэффициента диффузии поглощающего газа или смеси.

Авторы монографии [3] предложили близкую к [2] модель для описания чувствительности ОАД:

$$\alpha = \text{const } \beta(P) \gamma(P) \varepsilon(P),$$

где $\beta(P)$ описывает эффективность преобразования поглощенной энергии излучения в энергию поступательного движения частиц; $\gamma(P)$ связывает кинетическую энергию частиц с повышением давления в ячейке, а $\varepsilon(P)$ соответствует прогибу мембранны при возникновении акустического сигнала в ячейке и пропорциональна чувствительности микрофона. При этом

$$\beta(P) = \frac{1}{1 + \tau_{VT}^0 / \tau_d^0 P^2}, \quad \gamma(P) = \frac{P \tau_T}{T \rho C_V \sqrt{1 + (\omega \tau_T)^2}}, \quad \varepsilon(P) = \frac{\omega / a}{P + a / c_m},$$

где τ_{VT} и τ_d — времена колебательно-поступательной релаксации и дезактивации возбужденных молекул на стенах ячейки при единичном давлении; τ_t — время тепловой релаксации, T , ρ , C_V — температура, плотность и теплоемкость газа; ω — частота модулированного излучения; c_m — гибкость мембранны, a — постоянная, определяемая типом газа.

Наряду с расчетом чувствительности микрофона $\epsilon(P)$ в [3] предложен метод экспериментальной регистрации этой зависимости — метод электростатической активации. В этом случае сила давления, действующая на мембрану микрофона вследствие оптико-акустического эффекта, имитируется силой электростатического притяжения. Применение этого метода к различным поглощающим газам, также как и (2), показало, что чувствительность микрофона падает с увеличением давления.

Нам известно ограниченное число работ, где детально исследуется чувствительность ОАД и ее зависимость от давления газовой смеси, сорта буферного газа, характеристик микрофона. В данном сообщении приведены результаты исследования чувствительности ОАД от давления поглощающих газов H_2O и CO_2 и их смесей с буфером в области генерации CO_2 -лазера с $\lambda = 10,6 \text{ мкм}$ и сравнение их с выводами в [2, 3]. Исследования проведены на основе экспериментов (спектроскопических и модельных) и расчетов для газов, значения коэффициентов которых в зависимости от собственного давления и давления буферных газов хорошо известны [4, 5].

Экспериментальные исследования выполнены с помощью ОА-спектрометра на базе непрерывного CO_2 -лазера с перестройкой длины волн излучения. Спектрометр собран по стандартной схеме (см., например, [6]). Модулированное по амплитуде (с частотой $\sim 90 \text{ Гц}$) излучение лазера направлялось через диафрагму диаметром 2 мм в ячейку ОА детектора, за которой размещался несерийный ОА измеритель мощности [7]. В боковую стенку ячейки ($\varnothing = 10 \text{ мм}$, $l = 250 \text{ мм}$) вмонтирован конденсаторный микрофон собственного изготовления. Микрофон имел дополнительный электрод-активатор [3], служащий для определения влияния давления газа в ячейке на механический импеданс подвижной системы микрофона. Электрический сигнал с микрофона через предварительный и селективный (В6—4) усилители поступал на преобразователь напряжения В9—2, на выходе которого с помощью самописца КСП-4 регистрировалась его амплитуда. Аналогичный канал регистрации использовался для амплитуды электрического сигнала ОА измерителя мощности. ОА ячейка соединялась с вакуумным постом, который позволял менять состав и давление газа. Исследования проводились с использованием лазерного источника излучения, а также при имитации нагрева газа за счет поглощения лазерного излучения нагревом тонкой струны, натянутой в центре ячейки. Амплитуда возникающего при этом ОА сигнала регистрировалась так же, как с лазером.

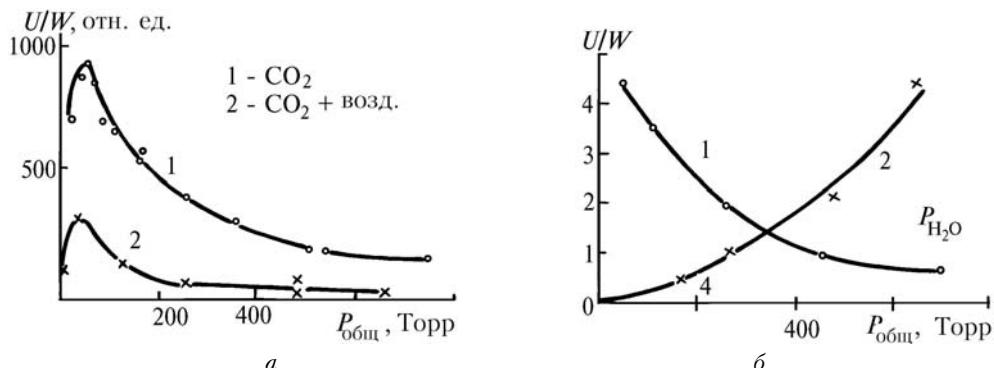


Рис. 1. Зависимость оптико-акустического сигнала от давления исследуемых газов, *a* — 1 — чистый CO_2 ; 2 — смесь $CO_2 +$ воздух, $P_{CO_2} = 3 \text{ Торр}$; *б* — 1 — смесь $H_2O + N_2$, $P_{H_2O} = 9,5 \text{ Торр}$, 2 — пары H_2O

Особое внимание при проведении измерений уделялось достоверности получаемых данных. Во всех экспериментах использовался один и тот же ОАД, чтобы исключить влияние на формирование ОА сигнала геометрии ячейки и характеристик микрофона при их замене.

Как отмечалось выше, нами исследовались CO_2 , H_2O , а также их смеси с воздухом и азотом. Процедура измерений заключалась в определении амплитуды выходного сигнала ОА детектора U , соответствующей определенному коэффициенту поглощения газа κ при прохождении через него излучения мощностью W . По (3) находилась чувствительность ОА детектора α при вариациях давления газа.

На рис. 1 приведены результаты измерений оптико-акустического сигнала с давлением для исследуемых газов (здесь под ОД сигналом понимается отношение U/W). Полученные результаты можно интерпретировать таким же образом, как сделано в [2] для смеси CH_4 — буферный газ: 1) при низких давлениях рост ОА сигнала происходит за счет увеличения общего давления P ; 2) после максимума кривых для CO_2 величина $\omega^2 a^4 / D^2 \xi_1^4 \gg 1$ и зависимость $D \sim 1/P$ компенсирует рост сигнала за счет увеличения давления.

При расчетах и обработке экспериментальных данных учитывалось влияние общего давления на чувствительность микрофона, т.е. изменение упругих свойств мембранны и окружающего ее газа с из-

менением общего давления. Эта зависимость определялась по методике [3]. Для этого на электрод-активатор подавалось синусоидальное напряжение с частотой, равной частоте модуляции лазерного излучения. Амплитуда напряжения активации подбиралась таким образом, чтобы амплитуда выходного сигнала ОАП при фиксированном давлении равнялась амплитуде выходного сигнала при поглощении лазерного излучения исследуемым газом. Для регистрации колебаний мембранны использовалась та же схема, что и в экспериментах с излучением. Зависимость чувствительности микрофона от давления определялась во всем диапазоне давлений исследуемых газов (рис. 2). Для сравнения на этом же рисунке приведены результаты расчета $S(P)$ по формуле (2). Эти результаты использовались для определения чувствительности оптикоакустического детектора $\alpha' = \alpha / \varepsilon$, где ε — чувствительность микрофона в соответствии [3].

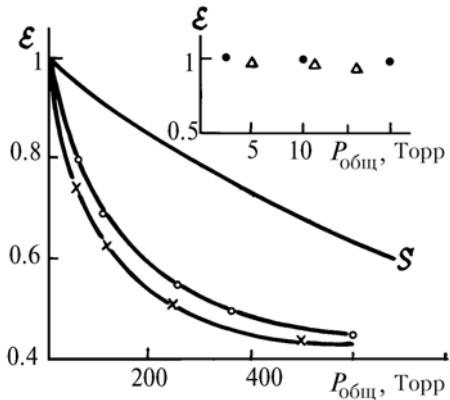


Рис. 2. Экспериментальные зависимости чувствительности микрофона $\varepsilon(P)$ для Δ — H_2O : темные кружки — $H_2O + N_2$; светлые — CO_2 ; крестики — $CO_2 +$ воздух в сравнении с чувствительностью $S(P)$

На рис. 3, *a*, *b* приведены экспериментальные и расчетные зависимости $\alpha'(P)$, нормированные на максимум. Расчет $\alpha'(P)$ проводился по формуле (4) с учетом наших экспериментальных условий. Были сделаны также попытки учесть возможное влияние релаксационных процессов в газе в соответствии с [3], а также акустических свойств ячейки, но к существенным изменениям в ходе зависимости $\alpha'(P)$ это не привело.

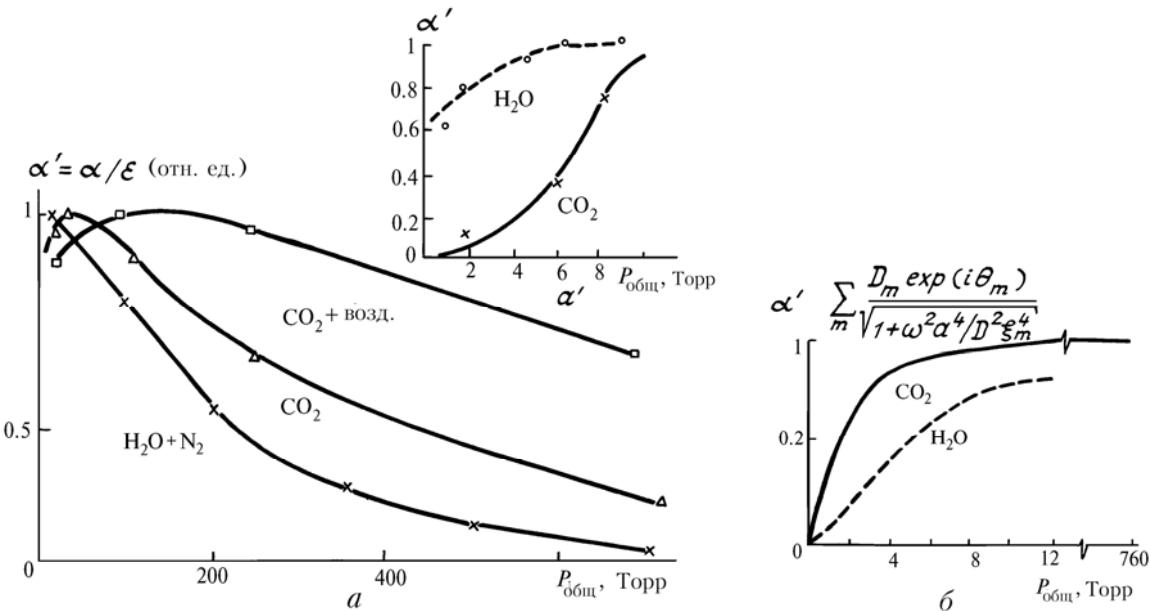


Рис. 3. Экспериментальные (*a*, *a'*) и расчетные (*b*) зависимости чувствительности ОАД для газов и смесей

Из рис. 3, *a* видно существенное расхождение экспериментальных кривых для разных газов, особенно в области больших давлений (хотя теплоемкости этих газов и смесей приблизительно одинаковы). Кроме того, на экспериментальные зависимости $\alpha'(P)$ сильное влияние оказывает сорт буферного газа. Подобная информация встречается в [2, 3], но спад чувствительности приписывается исключительно влиянию $\kappa(P)$ и $\varepsilon(P)$. В наших экспериментах использовались газы с различным поведением коэффициентов поглощения при вариациях давления (рис. 4) и во всех случаях наблюдается спад сигнала (и чувствительности) с ростом давления. Особенно отчетливо это проявляется для CO_2 , ко-

эффициент поглощения которого остается постоянным, начиная с давлений ≈ 60 Торр. Сравнение экспериментального хода кривых $\alpha' = f(P)$ с расчетными (рис. 3, a' , b) показывает также несоответствие для H_2O , возможно из-за специфического, в области малых давлений, поведения коэффициента поглощения в области генерации CO_2 -лазера.

Для выяснения роли тепловых процессов в формировании ОА сигналов был проведен модельный эксперимент, где нагрев среды лазерным излучением имитировался нагревом тонкой струны, па которую подавалось полусинусоидальное напряжение от звукового генератора с частотой 90 Гц. Амплитуда напряжения нагрева так же, как и в случае электростатической активации, подбиралась таким образом, чтобы значения выходных сигналов ОАД для струны и лазерного поглощения совпадали. Для получения величины, аналогичной $\alpha'(P)$, при фиксированных значениях давления газов бралось отношение амплитуды выходного сигнала $U(P)$ ОАД к амплитуде нагрева U_n . При этом учитывалось изменение $U(P)$ в соответствии с ранее определенной зависимостью $\varepsilon(P)$. Полученные кривые представлены на рис. 5. Нужно признать, что модельная ситуация, видимо, не всегда адекватно отражает процесс поглощения лазерного излучения в ОА ячейке. Тем не менее отчетливо наблюдается падение $\alpha'(P)$ с ростом давления.

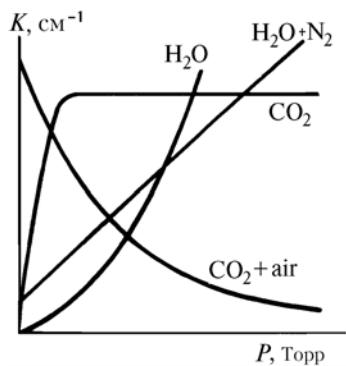


Рис. 4. Качественная картина поведения $\kappa = f(P)$ исследуемых газов для $P(20)$ линии генерации CO_2 -лазера

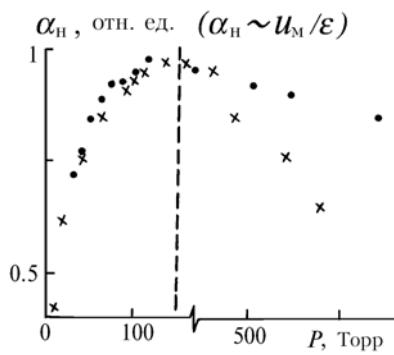


Рис. 5. Зависимости чувствительности ОАД при нагреве газов струной (крестики — CO_2 ; темные кружки — $\text{CO}_2 + \text{воздух}$; $P_{\text{CO}} = 3$ Торр)

Из сказанного можно сделать выводы:

1. Независимо от типа исследуемого газа с ростом его давления наблюдается спад чувствительности ОАД, который не может быть описан в рамках предложенных моделей расчета.
2. Наблюдаемый спад не зависит от характеристик используемого микрофона, а определяется теплофизическими свойствами газов. Полагаем, что при использовании тугопнатянутой мембранны этот эффект сильно маскируется.

3. Взаимодействие молекул газа с излучением определяет более сильную изменчивость хода $\alpha'(P)$ от типа газа, чем чисто тепловые процессы.

4. Существующие физические представления о процессах релаксации, диффузии молекул не позволяют адекватно описать формирование ОА сигнала в широком диапазоне давлений, вследствие чего для каждого типа ОА детектора требуется экспериментальная калибровка.

Вопрос о причинах несовпадения расчетных и экспериментальных значений чувствительности в диапазоне давлений исследуемых газов 1 ... 760 мм рт. ст. требует дополнительных исследований.

Авторы выражают благодарность Ю.Н. Пономареву за обсуждение работы.

1. Kegg E. L., Atwood J. G. //Appl. Opt. 1968. V. 7. № 5. P. 915–921.
2. Wake D. R., Amer N. M. //Appl. Phys. Lett. 1979. V. 34. № 6. P. 379–381.
3. Оптико-акустический метод в лазерной спектроскопии молекулярных газов./Антипов А.Б., Капитанов В.А., Пономарев Ю.Н., Сапожникова В.А. Новосибирск: Наука, 1984. 128 с.
4. Арефьев В. Н., Сизов Н. И., Погадаев Б. Н. //Квантовая электроника. 1983. Т. 10. № 3. С. 496–502.
5. Ачаков О. В., Лавинская Е. И., Фомин Н. А. Резонансное поглощение в углекислом газе. Ч. 2. Полоса $00^{\circ}1 - 10^{\circ}00$ (10,4 мкм). Минск, 1987. 48 с. (Препринт /Ин-т тепло- и массообмена АН БССР. № 8).
6. Жаров В. П., Летохов В. С. Лазерная оптико-акустическая спектроскопия. М.: Наука, 1984. 320 с.
7. Агеев Б. Г., Пономарев Ю. Н., Тихомиров Б. А. Нелинейная оптоакустическая спектроскопия молекулярных газов. Новосибирск: Наука, 1987. 128 с.

Институт оптики атмосферы СО РАН,
Томск

Поступила в редакцию
25 июня 1992 г.

B. G. Ageev, O. Yu. Nikiforova, V. A. Sapozhnikova. On the Dependence of Opto-Acoustic Detector Sensitivity on Pressure of a Gas under Study.

Opto-acoustic detectors (spectrophones) are the devices widely used in laser spectroscopy and analysis of gases at the atmospheric and lower pressures. Dependence of the spectrophone sensitivity on pressure of H_2O vapor and CO_2 as well as on their mixtures with N_2 and air when studied at 10.6 μm wavelength of a CO_2 -laser radiation is investigated.