

## НЕЛИНЕЙНЫЕ ОПТИЧЕСКИЕ ЯВЛЕНИЯ В АТМОСФЕРЕ

УДК 551.521:621.375

Б.Г. Агеев, А.А. Землянов, А.М. Кабанов, Ю.Н. Пономарев

### ОПТИКО-АКУСТИЧЕСКИЕ ИССЛЕДОВАНИЯ ПОГЛОЩАТЕЛЬНОЙ СПОСОБНОСТИ ГАЗОВО-АЭРОЗОЛЬНЫХ СРЕД

Представлены результаты экспериментальных исследований поглощения оптического излучения ИК-диапазона газово-аэрозольными смесями, выполненные оптико-акустическим методом. Дано описание разработанной аппаратуры. Получены зависимости поглощательной способности газово-аэрозольных сред от интенсивности излучения. Проведены измерения коэффициента поглощения водного аэрозоля в смесях с  $N_2$  и  $CO_2$  на длине волны генерации непрерывного  $CO_2$ -лазера.

Поглощение оптического излучения в приземном слое атмосферы обусловлено молекулярной и аэрозольной компонентами. В отличие от молекулярного количественные характеристики аэрозольного поглощения изучены еще недостаточно. Методически сложно исследовать поглощение аэрозоля в естественном взвешенном состоянии. Для измерений оптических характеристик аэрозольных частиц используются, как правило, косвенные методы (например, метод таблеток [1] — прессование аэрозольных частиц с непоглощающим излучение наполнителем). Естественно, этот метод имеет ограничения, особенно при исследованиях жидкокапельного аэрозоля.

Оптико-акустический (ОА) метод [2] позволяет измерять амплитуду акустического сигнала (импульса давления), генерируемого средой, помещенной в замкнутый объем и взаимодействующей с излучением, которая пропорциональна коэффициенту поглощения исследуемого вещества. Высокая чувствительность метода дает возможность исследовать поглощение в малых объемах (несколько кубических сантиметров), что особенно удобно при работе с газами и газово-аэрозольными средами, так как в малом объеме удобно контролировать и менять состав и характеристики исследуемой среды.

Известны отдельные немногочисленные работы, упомянутые в обзоре [2], посвященные исследованию поглощения твердых аэрозольных частиц ОА методом.

В настоящем сообщении представлены результаты разработки комплекса аппаратуры для исследования поглощения газово-аэрозольных сред и предварительные, данные исследований, выполненных на нем.

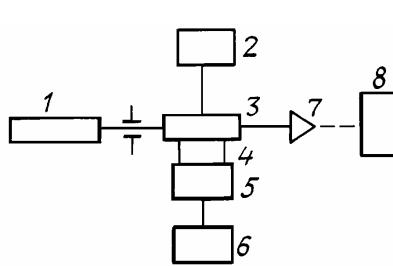


Рис. 1. Схема установки: 1 –  $CO_2$ -лазер; 2 – система приготовления и напуска газово-аэрозольных сред; 3 – ОА ячейка; 4 – микрофон; 5 – предусилитель; 6 – осциллограф; 7 – калориметр; 8 – спектроанализатор

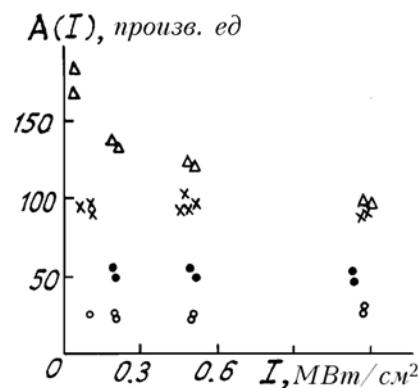


Рис. 2. Зависимость поглощательной способности среды от интенсивности излучения (при общем давлении ~ 1 атм): светлые кружочки — воздух; темные — воздух+водный аэрозоль; крестики — воздух+дымя; треугольники — воздух+ $CO_2$

Схема измерительной установки приведена на рис. 1. Источником излучения служили  $CO_2$ -лазеры: импульсный, электроионизационный и непрерывный, газоразрядный. Энергетические характеристики лазерного излучения измерялись калориметрами: ИМО-2 или оптико-акустическим калориметром собственного изготовления, а спектральный состав — панорамным анализатором спектра [3]. Излучение через диафрагму направлялось в ячейку ОА приемника, содержащую исследуемую

газово-аэрозольную смесь. Ячейка цилиндрической формы ( $\varnothing = 30$  мм,  $l = 200$  мм) — из нержавеющей стали. Плоские окна из BaF<sub>2</sub>, толщиной 3 мм. ОА сигнал регистрировался несерийным плоским конденсаторным микрофоном, вмонтированным в стенку ячейки. Микрофон состоял из массивного металлического электрода и мембранны, изготовленной из алюминиевой фольги. Электрический сигнал с микрофона через предусилитель подавался на запоминающий осциллограф для регистрации. Для откачки и заполнения ОА ячейки использовался вакуумный пост. Моделирование жидкокапельной газово-аэрозольной среды осуществлялось при помощи генератора аэрозоля типа «Аэрозоль-У1», избыточное давление на форсунке создавалось не компрессором, а потоком газа из баллона высокого давления. Измерительная ОА ячейка заполнялась исследуемым газом (N<sub>2</sub> или CO<sub>2</sub>) без аэрозоля (при отключенном форсунке), либо газово-аэрозольной смесью (при подключении форсунки). Аэрозольный генератор вырабатывал частицы радиусом 1–3 мкм. В качестве твердого аэрозоля использовались частицы табачного дыма, попадающие в измерительную ОА ячейку при прокачке через нее задымленного воздуха.

Концентрация аэрозольных частиц на входе в ячейку измерялась по прозрачности среды на длине волны гелий-неонового лазера 0,63 мкм и составляла  $\sim 10^3 \div 10^4$  см<sup>-3</sup> на выходе форсунки. Определение концентрации аэрозольных частиц в объеме ОА ячейки удалось провести с невысокой точностью (~40÷50%) и оценить ее значение в 10<sup>2</sup>÷10<sup>3</sup> см<sup>-3</sup>. Информативным ОА сигналом является отношение

$$A = U / E = \alpha \cdot \kappa, \quad (1)$$

где  $U$  — измеренная амплитуда электрического сигнала, снимаемого с выхода датчика давления ОА ячейки — микрофона;  $E$  — измеренная калориметром энергия (или мощность) лазерного излучения;  $\alpha$  — чувствительность ОА приемника, а  $\kappa$  — коэффициент поглощения исследуемой смеси.

На первом этапе экспериментальных исследований изучались особенности генерации акустического сигнала в воздухе с добавкой аэрозольных частиц при возбуждении мощным лазерным импульсом в зависимости от интенсивности последнего. В качестве источника возбуждения использовался электроионизационный CO<sub>2</sub>-лазер с неселективным резонатором. Спектральный состав излучения состоял из 3–4 компонент вокруг линии IP (20), содержащей ~ 80% энергетики. Длительность импульса генерации ~ 3 мкс. В процессе измерений определялась зависимость параметра  $A$  от интенсивности лазерного излучения и состава исследуемой среды. Полученные результаты представлены на рис. 2. При заполнении ОА ячейки очищенным воздухом (посредством прогонки через стеклянный фильтр) и измерении величины  $A$  не обнаружено зависимости  $A$  от интенсивности лазерного излучения  $I_{\text{лаз}}$  при нарастании последней до величины ~ 1 МВт/см<sup>2</sup>. Для смеси водного аэрозоля с очищенным воздухом значение  $A$  возрастает вдвое, но также не зависит от  $I_{\text{лаз}}$ . При добавке к очищенному воздуху частиц твердого аэрозоля (дыма) величина  $A$  оказывается еще больше, но и в этом случае при  $I_{\text{лаз}} \sim 1$  МВт/см<sup>2</sup> зависимости  $A$  от  $I_{\text{лаз}}$  не наблюдается. Следует отметить, что  $I_{\text{лаз}} \sim 1$  МВт/см<sup>2</sup> ниже пороговых значений нелинейных эффектов в жидких и твердых аэрозолях (поверхностное и объемное испарение, горение, сублимация). Появление аэрозольных частиц в поглощающем лазерное излучение молекулярном газе влияет на поглощение в том случае, когда интенсивности излучения достаточно для насыщения молекулярного поглощения.

При взаимодействии излучения CO<sub>2</sub>-лазера с углекислым газом в смеси с воздухом явление насыщения поглощения уверенно регистрируется (рис. 2) при умеренных значениях интенсивности излучения  $I_{\text{лаз}} \sim 0,2 \div 0,3$  МВт/см<sup>2</sup> [4].

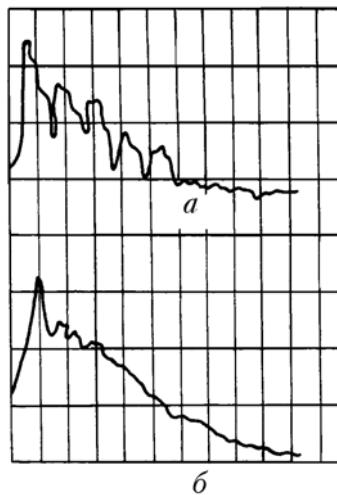


Рис. 3. Временная развертка ОА сигнала (1 дел = 5 мс): *а* — воздух; *б* — воздух+аэрозоль

При появлении в воздухе аэрозольных частиц (дыма, водный аэрозоль) с размерами ~ 1 мкм и плотностью, превышающей 10<sup>2</sup> см<sup>-3</sup>, эффект насыщения (нелинейная зависимость величины  $A$  от  $I_{\text{лаз}}$ )

исчезает. Такое поведение поглощательной способности газово-аэрозольной смеси согласуется с оценками [5], где показано, что при определенных концентрациях и размерах аэрозольных частиц гетерогенная релаксация колебательно-возбужденных молекул газа на поверхности аэрозоля может стать более быстрым процессом, чем колебательно-поступательная релаксация при столкновениях молекул между собой. Появление дополнительного канала релаксации колебательно-возбужденных молекул  $\text{CO}_2$  приводит к уменьшению характерного времени релаксации заселенности верхнего уровня  $T_1$  и возрастанию интенсивности, требуемой для достижения насыщения  $I_S$ , так как  $I_S \sim T_1^{-1}$ .

Появление в газовой среде аэрозольных частиц приводит к изменению вида временной развертки ОА сигнала. При заполнении измерительной ОА ячейки очищенным через фильтр воздухом регистрируемый сигнал  $U(t)$  имеет типичную форму (рис. 3, a), обусловленную суперпозицией акустического «теплового» и акустического «звукового» сигналов [2, 4]. При добавлении жидкокапельного водного аэрозоля или дыма форма сигнала меняется (рис. 3, б). Практически полностью исчезает периодическая структура, связанная со стоячей акустической волной. Существование такой резкой изменчивости формы временной развертки ОА сигнала при появлении в исследуемом объеме аэрозольных частиц может быть использовано для их регистрации и оценки концентрации.

Следующий этап эксперимента ставил целью измерение коэффициента поглощения водного аэрозоля, находящегося в смеси с  $\text{N}_2$  и  $\text{CO}_2$ . Измерения выполнены на длине волны 10,6 мкм (линия P20) непрерывного  $\text{CO}_2$ -лазера, интенсивность излучения которого модулировалась по амплитуде как последовательность прямоугольных импульсов ( $\tau_{\text{и}} = 5$  мс,  $E = 25$  мДж). В качестве модулятора использовался механический затвор, расположенный вне резонатора лазера. Процедура измерений заключалась в определении величины  $A$  последовательно в газе и в газово-аэрозольной смеси. Полученные данные представлены в таблице (погрешность определения величины  $A$  составляла около 10%).

Содержание ОА ячейки ( $P_{\text{общ}}=760$ Торр)	Значение информативной величины $A$ (произв. ед.)	Коэффициент поглощения $\kappa_a$ аэрозольной составляющей, $\text{см}^{-1}$	Среднее значение $\kappa_a$ , $\text{см}^{-1}$	Расчетное значение $\kappa_a$ , $\text{см}^{-1}$
$\text{N}_2$	0,056	—		
$\text{N}_2+\text{аэрозоль}$	0,1	$6,9 \cdot 10^{-6}$	$9 \cdot 10^{-6}$	$4,4 \cdot 10^{-6}$
$\text{CO}_2$	8,4	—		
$\text{CO}_2+\text{аэрозоль}$	8,45	$11 \cdot 10^{-6}$		

При известном  $\kappa$  для чистых газов по (1) проводилась калибровка ОА приемника, т. е. определялось значение  $\alpha$ , используемое затем в случае газово-аэрозольных смесей. Считалось, что при измерениях с  $\text{N}_2$  ОА сигнал был обусловлен фоновым поглощением в окнах ячейки, при этом эквивалентный коэффициент поглощения составлял величину  $\kappa_\phi \sim 8,8 \cdot 10^{-6} \text{ см}^{-1}$  [6]. В случае с  $\text{CO}_2$  использовалось расчетное значение коэффициента поглощения  $\kappa_{\text{CO}_2}$  ( $P = 760$  мм рт. ст.) =  $1,8 \cdot 10^{-3} \text{ см}^{-1}$ . Найденный из измерений с  $\text{N}_2$  коэффициент поглощения водного аэрозоля  $\kappa_a$  при концентрации, реализованной в ячейке ( $\sim 10^2 \text{ см}^{-3}$ ), составил величину  $\sim 7 \cdot 10^{-6} \text{ см}^{-1}$ . При измерениях с  $\text{CO}_2$  получено, что  $\kappa_a \sim 11 \cdot 10^{-6} \text{ см}^{-1}$ . Некоторое расхождение обусловлено, на наш взгляд, малыми неконтролируемыми примесями, содержащимися в газах и поглощающими излучение, например,  $\text{H}_2\text{O}$ . Для более точных измерений необходимо использовать химически чистые буферные газы. В таблице приведено также расчетное значение  $\kappa_a$ , полученное по данным [7] для условий нашего эксперимента и монодисперсного аэрозоля, состоящего из частиц радиусом 2 мкм. Таким образом имеется неплохое согласие расчетных и экспериментальных значений  $\kappa_a$ , которое может быть существенно улучшено при более точном определении плотности аэрозольных частиц внутри ОА ячейки.

Приведенные результаты показывают принципиальную возможность исследований газово-аэрозольных сред (причем содержащих как твердые, так и жидкокапельные частицы) ОА методом. Косвенным образом подтверждена возможность энергетического обмена между колебательно-возбужденными молекулами и частицами аэрозоля [5]. Развитие методики количественных измерений, включая измерения энергообмена между колебательно-возбужденными молекулами и частицами аэрозоля, предусматривает ряд дополнительных экспериментов, в том числе измерения поглощательной способности различных газов со слабопоглощающими аэрозольными частицами.

Надо отметить, что для данных исследований практически без изменений используется экспериментальная установка для ОА спектроскопии газов, что, несомненно, является удобством данного метода.

Авторы выражают благодарность К.М. Фирсову за предоставленный расчет коэффициента поглощения  $\text{CO}_2$ .

1. Volz F. E. // Appl. Optics. 1983. V. 22. № 3. P. 3690–3700.

2. Жаров В. П., Летохов В. С. Лазерная оптико-акустическая спектроскопия. М.: Наука, 1984. 320 с.

3. Козгунов С.В., Новгородов М.З., Шумская Л.И., Южакова И.П. //ПТЭ. 1989. № 3. С. 244.
4. Агеев Б.Г., Пономарев Ю.Н., Тихомиров Б.А. Нелинейная оптикоакустическая спектроскопия атмосферных газов. Новосибирск: Наука, 1987. 128 с.
5. Пономарев Ю.Н. //Оптика атмосферы. 1990. Т. 3. № 3. С. 262–265.
6. Жаров В.П. //Новые методы спектроскопии. Новосибирск: Наука, 1982. С. 126–202.
7. Зельманович И.Л., Шифрин К.С. Таблицы по светорассеянию. Л.: Гидрометеоиздат, 1968. Т. 3. 354 с.

Институт оптики атмосферы СО РАН,  
Томск

Поступила в редакцию  
26 ноября 1991 г.

B.G. Ageev, A.A. Zemlyanov, A.M. Kabanov, Yu.N. Ponomarev. **Investigation of the Absorptivity of Gas-Aerosol Media by an Optoacoustic Method.**

The results of experimental investigation of absorption of the IR optical radiation by gas-aerosol mixtures using an optoacoustic method as well as the description of the developed equipment are presented. The dependences of the absorptivity of the gas-aerosol media on the radiation intensity are determined. The measurements of the absorption coefficient of the mixtures of water aerosol with N<sub>2</sub> and CO<sub>2</sub> are made using a continuous-wave CO<sub>2</sub>-laser.