

05

Лидарная система комбинационного рассеяния света для зондирования молекул водорода в атмосфере

© В.Е. Привалов¹, В.Г. Шеманин^{2,3}

¹ Санкт-Петербургский политехнический университет Петра Великого, 195251 Санкт-Петербург, Россия

² Новороссийский филиал Белгородского государственного технологического университета им. В.Г. Шухова, 353919 Новороссийск, Россия

³ Новороссийский политехнический институт (филиал) Кубанского государственного технологического университета, 353900 Новороссийск, Россия

e-mail: vaevpriv@yandex.ru, shemanin-v-g@nb-bstu.ru

Поступила в редакцию 03.09.2021 г.

В окончательной редакции 14.11.2021 г.

Принята к публикации 14.11.2021 г.

Выполнено численное решение лидарного уравнения комбинационного рассеяния света для измерения концентрации молекул водорода на уровне 10^{13} см^{-3} и выше в атмосфере на расстояниях зондирования до 100 м в режиме синхронного счета фотонов и сделан выбор оптимальных параметров такого лидара. Показано, что для измерения концентрации молекул водорода $N(z) = 10^{13} \text{ см}^{-3}$ в диапазоне зондирования z от 5 до 100 м время измерения t лежит в диапазоне от 3.83 с до 26.5 мин, для измерения концентрации $N(z) = 10^{15} \text{ см}^{-3}$ — от 38 мс до 15.9 с и для измерения концентрации $N(z) = 10^{17} \text{ см}^{-3}$ — от 400 нс до 160 мкс.

Ключевые слова: лидар комбинационного рассеяния света, молекула водорода, концентрация, расстояние зондирования, длина волны лазерного излучения.

DOI: 10.21883/OS.2022.03.52168.2707-21

Введение

Большие перспективы использования водорода как нового вида чистого топлива [1] требуют создания систем для контроля его утечки из баллонов и трубопроводов, особенно в местах перекачки. В реальной атмосфере молярная доля молекул H_2 составляет $5 \cdot 10^{-7}$ [2] или около 0.5 ppm, что соответствует счетной концентрации $1.345 \cdot 10^{13} \text{ см}^{-3}$. Однако дистанционный контроль и измерение концентраций на таких уровнях представляет большую проблему [3].

Разработка новых лазерных систем и методов измерения концентрации молекул водорода на уровне концентраций порядка 10^{13} см^{-3} и выше в атмосфере на базе лидара комбинационного рассеяния света требует выбора оптической схемы и оптимального подбора параметров отдельных элементов такого лидара. Ранее в работе [4] в результате анализа методов лазерного зондирования молекул водорода в атмосфере было установлено, что лидар комбинационного рассеяния света может использоваться для дистанционного измерения концентрации молекул на таком уровне на расстояниях до сотен метров. В работе [5] было предложено лидарное уравнение для комбинационного рассеяния света газовыми молекулами в атмосфере с учетом конечной ширины линии генерации. Оказалось, что учет конечной ширины линии генерации реального лазера, соотношения ширины полос комбинационного рассеяния света и аппаратной

функции лидара позволяют уточнить решение такого лидарного уравнения [5].

Целями настоящей работы являются оценка возможности измерений лидаром комбинационного рассеяния света концентрации молекул водорода на уровне 10^{13} см^{-3} и выше в атмосфере на расстояниях зондирования до 100 м в режиме синхронного счета фотонов и выбор оптимальных параметров лидара.

Лидар комбинационного рассеяния света

Оптическая схема предлагаемого варианта лидара комбинационного рассеяния света биаксиальная, как в [2,3]; она приведена на рис. 1.

В качестве зондирующего излучения используется излучение третьей и второй гармоник YAG–Nd-лазера (с накачкой полупроводниковым лазером с длинами волн 355 и 532 нм) и полупроводникового лазера с длиной волны 405 нм, с длительностью импульсов 10 нс и энергией в импульсе до 1 мДж при частоте следования лазерных импульсов f до 100 кГц [2,3]. Излучение лазера I направлялось параллельно оси приемного телескопа на расстоянии 150 м, как и в [2], а излучение комбинационного рассеяния молекулами водорода в атмосфере в направлении назад собиралось приемным телескопом типа Ньютона со сферическим зеркалом 9 диаметром 200 мм и фокусировалось линзовым объ-

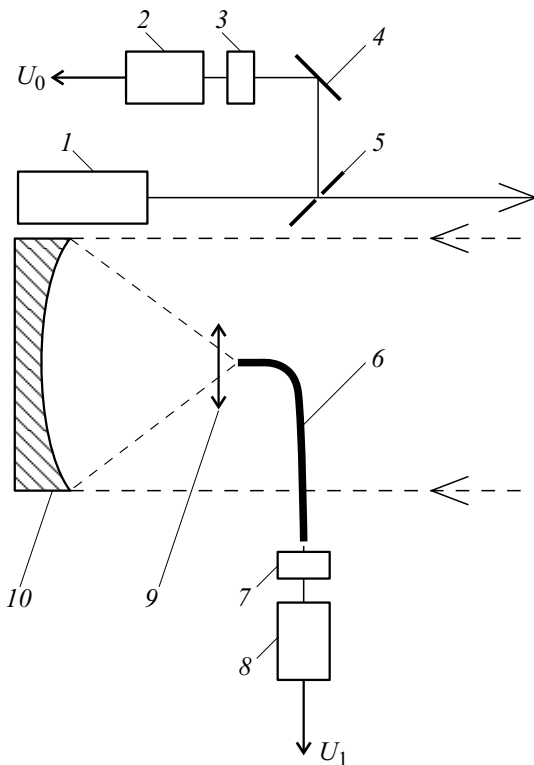


Рис. 1. Оптическая схема лидара комбинационного рассеяния света: 1 — лазер, 2, 8 — фотоприемники, 3, 7 — интерференционные светофильтры, 4 — глухое зеркало, 5 — стеклянная пластина, 6 — волоконный световод, 9 — линзовый объектив, 10 — сферическое зеркало приемного телескопа.

активом 8 в волоконный световод 6 и направлялось через интерференционный светофильтр 7 на фотоприемник 8. Выход фотоприемника соединен со входом синхронного детектора, сигнал U_1 с которого подается на вход аналого-цифрового преобразователя и затем микроконтроллера.

Часть лазерного излучения направлялась стеклянной пластиной 5 и глухим зеркалом 4 через интерференционный светофильтр 3 на фотоприемник 2, напряжение U_0 с которого записывалось платой сбора данных в ПК для контроля энергии лазерного импульса и формирования начала отсчета времени измерения.

Лидарное уравнение для комбинационного рассеяния света

Лазер лидара будем характеризовать числом фотонов n_0 в импульсе посылаемого в атмосферу лазерного излучения длительностью τ_0 , а линию генерации лазера будем считать гауссовой с максимумом на частоте ν_0 и полушириной Γ_0 . Тогда число фотонов $n(\nu, z)$ излучения комбинационного рассеяния света исследуемыми молекулами водорода с концентрацией $N(z)$ на фотоприемнике лидара можно получить из лидарного уравнения в направлении назад в режиме счета фотонов в виде

интеграла в интервале от $(\nu_0 - \Gamma_0)$ до $(\nu_R - \Gamma_R)$ [5]:

$$n(\nu, z) = n_0 c \tau_1 G(z) f t S_0 N(z) (d\sigma/d\Omega) \int_{\nu_0 - \Gamma_0}^{\nu_R + \Gamma_R} T_0(\nu_0, z) \times T(\nu_R, z) \Phi(\nu) A(\nu) d\nu / 2z^2, \quad (1)$$

где $n(\nu, z)$ — число фотонов, зарегистрированных фотоприемником лидара на частоте ν_R комбинационного рассеяния света с расстояния зондирования z , n_0 — число фотонов на частоте ν_0 лазерного излучения. Кроме того, S_0 — площадь приемной апертуры телескопа, $G(z)$ — геометрический фактор лидара [2,3]. Этот фактор определяется параметрами оптической схемы лидара [2,3] и лежит в пределах $0 < G(z) < 1$. Далее, $N(z)$ — концентрация исследуемых молекул, t — время измерения или накопления сигнала, $(d\sigma/d\Omega)$ — дифференциальное сечение комбинационного рассеяния света исследуемыми молекулами. Два других множителя — пропускание атмосферы (как и в [2,3]) — равны соответственно

$$T_0(\nu_0, z) = \exp \left[- \int_0^z \alpha(\nu_0, r) dr \right],$$

$$T(\nu_R, z) = \exp \left[- \int_0^z \alpha(\nu_R, r) dr \right],$$

где $\alpha(\nu_0, r)$ и $\alpha(\nu_R, r)$ — коэффициенты ослабления на частотах лазерного излучения и комбинационного рассеяния света молекулами водорода:

$$n(\nu, z) = n_0 \frac{c \tau_0}{2z^2} G(z) f t S_0 N(z) \frac{d\sigma}{d\Omega} \times \int_{\nu_0 - \Gamma_0}^{\nu_R + \Gamma_R} \exp \left[- \int_0^z \{ \alpha(\nu_0, r) + \alpha(\nu_R, r) \} dr \right] \Phi(\nu') A(\nu') d\nu', \quad (2)$$

где $\Phi(\nu)$ — функция распределения фотонов лазерного излучения в линии генерации [6]; в нашем случае она гауссова и может быть записана как

$$\Phi(\nu) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\Gamma_0} \exp \left[- \frac{(\nu - \nu_0)^2}{2\Gamma_0^2} \right]. \quad (3)$$

Кроме того, будем считать, что аппаратная функция (или спектральный коэффициент пропускания приемной системы лидара $A(\nu)$ [2,3,5]) имеет лоренцеву форму и настроена точно на частоту ν_R полосы комбинационного рассеяния света молекулами водорода с полушириной Γ_a , которая больше, чем Γ_R и Γ_0 ,

$$A(\nu) = \frac{K_1 \xi(\nu_R)}{\pi} \frac{\Gamma_a}{(\nu - \nu_R)^2 + \Gamma_a^2}, \quad (4)$$

где K_1 — лидарная константа на частоте ν_0 лазерного излучения, измеренная экспериментально в [3],

Длины волн и частоты лазерного излучения и полос комбинационного рассеяния света молекулами водорода, дифференциальные сечения колебательного комбинационного рассеяния света (КРС) для этих полос, коэффициенты ослабления в атмосфере на этих длинах волн и относительная спектральная чувствительность фотоприемника

Длина волны, λ , nm	Частота, ν , GHz	Дифференциальное сечение КРС ($d\sigma/d\Omega$), 10^{30} cm ²	Коэффициент ослабления $\alpha(\nu_0, r)$, km ⁻¹	Коэффициент ослабления $\alpha(\nu_R, r)$, km ⁻¹	Относительная спектральная чувствительность фотоприемника $\xi(\nu)$
355	845.1	21.7	0.31		
389.3	809.5			0.28	0.52
532	563.9	4.3 ± 0.9 — 21%	0.17		
683.2	439.1			0.14	0.86.25 ФЭУ
405	740.7	12.8	0.24		
487.1	615.9			0.19	0.89

$\alpha(\nu_R)$ — относительная спектральная чувствительность фотоприемника на частоте ν_R излучения комбинационного рассеяния света. Положим, что $\Phi(\nu) = 1$, когда полуширина линии генерации много меньше, чем полуширина аппаратной функции лидара [5]. Перепишем уравнение (2) в виде

$$n(\nu, z) = \frac{B}{z^2} N(z) I(\nu, z), \tag{5}$$

в этом выражении введены константа B ,

$$B = \frac{c\tau_1}{2} S_0 f \tag{6}$$

и функция $I(\nu, z)$,

$$I(\nu, z) = n_0 G(z) \frac{d\sigma}{d\Omega} \times \int_{\nu_0 - \Gamma_0}^{\nu_R + \Gamma_R} \exp \left[- \int_0^z \{ \alpha(\nu_0, r) + \alpha(\nu_R, r) \} dr \right] A(\nu') d\nu'. \tag{7}$$

Далее, полагая коэффициенты ослабления на частотах лазерного излучения и комбинационного рассеяния света молекулами водорода, $\alpha(\nu_0, r)$ и $\alpha(\nu_R, r)$, мало зависящими от частоты, перепишем функцию (7) в виде

$$I(\nu, z) = n_0 G(z) \frac{d\sigma}{d\Omega} \exp \left[- \int_0^z \{ \alpha(\nu_0, r) + \alpha(\nu_R, r) \} dr \right] \times \int_{\nu_0 - \Gamma_0}^{\nu_R + \Gamma_R} A(\nu') d\nu', \tag{8}$$

где последний интеграл

$$\int_{\nu_0 - \Gamma_0}^{\nu_R + \Gamma_R} A(\nu') d\nu' = \frac{K_1 \xi(\nu_R) \Gamma_a}{\pi} \int_{\nu_0 - \Gamma_0}^{\nu_R + \Gamma_R} \frac{d\nu'}{(\nu' - \nu_R)^2 + \Gamma_a^2} = \frac{K_1 \xi(\nu_R) \Gamma_a}{\pi} \frac{\pi}{2\Gamma_a} = \frac{K_1 \xi(\nu_R)}{2}. \tag{9}$$

Тогда выражение (8) приобретает вид

$$I(\nu, z) = n_0 G(z) \frac{d\sigma}{d\Omega} \frac{K_1 \xi(\nu_R)}{2} \times \exp \left[- \int_0^z \{ \alpha(\nu_0, r) + \alpha(\nu_R, r) \} dr \right]. \tag{10}$$

Также полагаем, что дифференциальное сечение комбинационного рассеяния света можно считать постоянным внутри интервала интегрирования по частоте, как и коэффициенты ослабления на частотах лазерного излучения и комбинационного рассеяния света молекулами водорода [7]. Выразим из уравнения (2) время измерения t как меру эффективности лидарной системы и рассмотрим спектральную и концентрационную зависимости решения этого уравнения:

$$t = \frac{n(\nu, z) z^2}{B I(\nu, z) N(z)}. \tag{11}$$

Далее будем рассматривать однократное комбинационное рассеяние света и однородную атмосферу [2,3,7]. Значения максимума полосы валентных Н–Н-колебаний молекул водорода равно 4161 cm⁻¹ по данным [2–4,8], и для всех длин волн лазерного излучения были рассчитаны длины волн полос колебательного комбинационного рассеяния света молекулами водорода; они приведены в таблице.

Значения дифференциальных сечений комбинационного рассеяния света ($d\sigma/d\Omega$) для всех молекул и выбранных длин волн лазерного излучения (355, 532 и 405 nm) были определены по данным, экспериментально измеренным в [2,8] при комнатной температуре и нормальном давлении на длине волны излучения 532 nm, ($d\sigma/d\Omega$) = (4.3 ± 0.9) · 10⁻³⁰ cm²/sr, и для интересующих нас длин волн рассчитаны с учетом зависимости 1/λ⁴ [3]. Все эти значения приведены в таблице. Значения коэффициентов ослабления для этих частот $\alpha(\nu_0, z)$ и $\alpha(\nu, z)$ из [9] также собраны в таблице.

Поперечное сечение зеркала приемного телескопа лидара было 0.031 m^2 , а шаг по расстоянию — 7.5 m для времени одного измерения 50 ns .

Решение лидарного уравнения и обсуждение результатов

Численно решим уравнение (11), полагая, что $G(z)$ в нашем случае равно 1 и концентрация молекул водорода $N(z)$ лежит в диапазоне $10^{13} - 10^{17} \text{ cm}^{-3}$. Для нашей экспериментальной ситуации за время измерения t может быть зарегистрировано 200 фотонов [6].

Для этого случая решим уравнение (11) для трех значений длин волн лазерного излучения (355, 532 и 650 nm) при частоте следования лазерных импульсов 100 kHz , энергии в импульсе 1 mJ в диапазоне расстояний зондирования от 5 до 100 m . Результаты решения уравнения (11) для этого случая представлены на рис. 2 в виде зависимости времени измерения t от расстояния зондирования z .

На кривых рис. 2 видно увеличение времени измерения t в ряду длин волн лазерного излучения $405 - 532 - 355 \text{ nm}$ за счет спектральной зависимости величин, входящих в уравнение (11), при этом время измерения резко возрастает на первых 20 m примерно на порядок.

Далее рассмотрим численное решение уравнения (11) для диапазона концентрации молекул водорода $N(z)$ от 10^{13} до 10^{17} cm^{-3} . Для этого решим уравнение (11) для длины волны лазерного излучения 405 nm как наилучшего варианта по данным рис. 2. Результаты решения уравнения (11) представлены на рис. 3. Время измерения t для нашей экспериментальной ситуации убывает обратно пропорционально концентрации молекул водорода $N(z)$, как и следует из уравнения (11), и растет примерно на два порядка с увеличением расстояния зондирования z от 5 до 100 m .

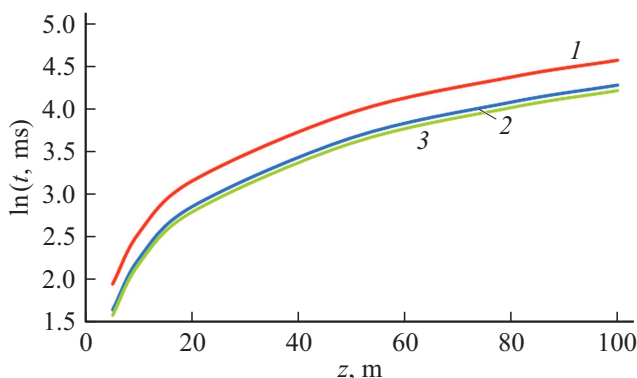


Рис. 2. Кривые рассчитанной по уравнению (11) зависимости времени измерения t для молекул водорода с концентрацией $N(z) = 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ (в логарифмическом масштабе, t в ms) от расстояния зондирования z (в m) для длин волн лазерного излучения 355 (1), 532 (2) и 405 nm (3) при зондировании атмосферы лидаром комбинационного рассеяния света.

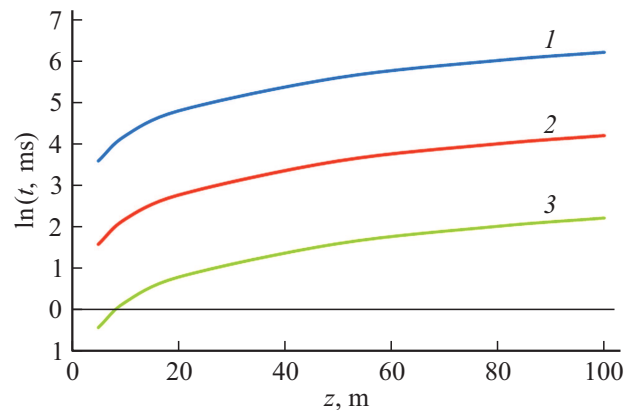


Рис. 3. Кривые рассчитанной по уравнению (11) зависимости времени измерения t (в логарифмическом масштабе, t в ms) для молекул водорода при их концентрациях $N(z) 10^{13}$ (1), 10^{15} (2) и 10^{17} cm^{-3} (3) от расстояния зондирования z (в m) для длины волны лазерного излучения 405 nm для той же экспериментальной ситуации.

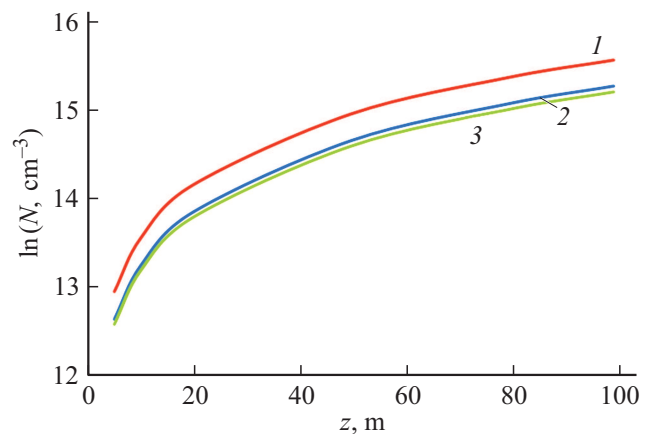


Рис. 4. Кривые рассчитанной по уравнению (12) зависимости концентрации молекул водорода $N(z)$ (в логарифмическом масштабе, в cm^{-3}) от расстояния зондирования z (в m) для одного и того же времени измерения $t = 10 \text{ s}$ для длин волн лазерного излучения 355 (1), 532 (2) и 405 nm (3) для той же экспериментальной ситуации.

Более наглядно зависимость концентрации молекул водорода $N(z)$ от расстояния зондирования z для одного и того же времени измерения $t = 10 \text{ s}$ для всех длин волн лазерного излучения можно представить, выразив из уравнения (11) величину $N(z)$:

$$N(z) = \frac{n(v, z)z^2}{BI(v, z)t}. \quad (12)$$

Далее выполним численное решение уравнения (12) для концентраций молекул водорода $N(z)$ от 10^{13} до 10^{17} cm^{-3} , времени измерения 10 s и всех длин волн лазерного излучения. Результаты решения уравнения (12) представлены на рис. 4.

Кривые на рис. 4 показывают, что для расстояний зондирования до 100 м и времени измерения 10 с диапазон изменения концентраций составляет около трех порядков от 10^{13} до 10^{17} cm^{-3} для всего диапазона расстояний зондирования z до 100 м.

Как следует из полученных результатов, для измерения концентрации молекул водорода $N(z) = 10^{13}$ cm^{-3} в диапазоне зондирования от 5 до 100 м время измерения t лежит в диапазоне от 3.83 с до 26.5 мин, для измерения концентрации $N(z) = 10^{15}$ cm^{-3} — от 38 мс до 15.9 с и для измерения концентрации $N(z) = 10^{17}$ cm^{-3} — от 0.4 μs до 160 μs .

Это значит, что в зависимости от ожидаемой реальной концентрации на заданном расстоянии зондирования можно будет по времени измерения выбрать параметры лазера, телескопа и фотоприемника для создания требуемой лидарной системы комбинационного рассеяния света молекулами водорода. Такой выбор определяется спектральной зависимостью дифференциальных сечений полосы колебательного комбинационного рассеяния света молекулами водорода, коэффициентов ослабления в атмосфере на этих длинах волн и относительной спектральной чувствительности фотоприемника.

Всюду в расчетах частота следования лазерных импульсов составляла 100 кГц и время одного измерения 50 нс или шага по расстоянию $\Delta z = 7.5$ м. Очевидно, что дальнейшее уменьшение концентрации исследуемых молекул возможно за счет увеличения частоты следования лазерных импульсов f или увеличения их энергии E_0 .

Заключение

Таким образом, полученные результаты позволяют выбрать оптимальные параметры лазера и лидара комбинационного рассеяния света для зондирования молекул водорода в атмосфере на расстояниях зондирования до 100 м. Причем они хорошо согласуются с результатами наших прежних работ [4]. Чтобы зондировать молекулы водорода с концентрациями $N(z)$ от 10^{13} до 10^{17} cm^{-3} в диапазоне зондирования от 5 до 100 м, достаточно времени измерения от 400 нс до 26.5 мин, что возможно реализовать в одном лидаре комбинационного рассеяния света в конкретных экспериментальных условиях [3,4]. Поэтому, подбирая время измерения за счет параметров того же варианта лидара, можно увеличить расстояние зондирования необходимых концентраций молекул водорода в атмосфере.

Финансирование работы

Работа выполнена при частичной финансовой поддержке грантов РФФИ, проекты № 19-42-230004 и № 19-45-230009.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] С.И. Козлов. *Водородная энергетика: современное состояние, проблемы, перспективы* (Газпром ВНИИГАЗ, М., 2009).
- [2] Р. Межерис. *Лазерное дистанционное зондирование* (Мир, М., 1987).
- [3] В.Е. Привалов, А.Э. Фотиади, В.Г. Шеманин. *Лазеры и экологический мониторинг атмосферы* (Лань, СПб., 2013).
- [4] В.Е. Привалов, В.Б. Смирнов, В.Г. Шеманин. *Расчет параметров лазерного зондирования молекулярного водорода*. (Препринт НИИ Российский центр лазерной физики, СПб., 1998).
- [5] V.E. Privalov, V.G. Shemanin. *Bulletin Russian Academy Sciences. Physics*, **79** (2), 149 (2015).
- [6] Г.Н. Глазов. *Статистические вопросы лидарного зондирования атмосферы* (Наука, Новосибирск, 1987).
- [7] В.А. Донченко, М.В. Кабанов, Б.В. Кауль, И.В. Самохвалов. *Атмосферная электрооптика* (Изд. НТЛ, Томск, 2010).
- [8] *Лазерный контроль атмосферы*, под ред. Э.Д. Хинкли (Мир, М., 1979).
- [9] *Справочник по лазерам*, под ред. А.М. Прохорова (Советское Радио, М., 1978), Т. I.