### С.М. КУХТИН

# ИЗМЕРЕНИЕ ПОТЕРЬ В ГАЗАХ МЕТОДОМ МОДУЛЯЦИОННОЙ ЛАЗЕРНОЙ СПЕКТРОСКОПИИ С ПРЯМЫМ ПРЕОБРАЗОВАНИЕМ ФУРЬЕ

### Введение

Метод модуляционной лазерной спектроскопии (ММЛС) хорошо известен в технике стабилизации оптической частоты по естественным частотным реперам. Эффективность этого метода позволяет решать задачи по измерению малых концентраций поглощающих газов в лабораторных условиях или в естественных условиях окружающей атмосферы [1-6].

При реализации данного метода для каждого нового условия его применения необходимо выбирать основные параметры модуляции. В случае применении ММЛС для измерения концентрации газов требуется, во-первых, знание их спектров поглощения и возможного их изменения в зависимости от давления и температуры, а во-вторых, установление связи между параметрами формы линии поглощения (шириной резонансной кривой на уровне половинной мощности и ее зависимостью от давления и температуры) и амплитудой девиации оптической частоты лазерного излучения.

В работе [3] проанализирован частный случай использования метода модуляционной лазерной спектроскопии для измерения малых потерь в газе. Получены приближенные соотношения (для случая  $\alpha = \alpha_0(v)CL < 1$ ), связывающие коэффициент затухания  $\alpha_0(v)$ , концентрацию газа C и оптическую длину измерительной ячейки L с амплитудами первых трех гармоник спектральной характеристики сигнала.

Цель работы — определение области применимости полученных приближенных аналитических выражений для расчета концентрации газа, коэффициента поглощения  $\alpha_0(\nu)$  либо оптической длины измерительной ячейки L для сильно поглощающей среды  $(\alpha=\alpha_0(\nu)CL\cong 1).$ 

## Основные теоретические предпосылки

Интенсивность ИК излучения на частоте  $\nu$ , прошедшая через поглощающую среду, с коэффициентом поглощения  $\alpha_0(\nu)$ , концентрацией C, толщиной L описывается законом Бугера – Ламберта – Бера:

$$W = W_0 \exp(-\alpha) = W_0 \exp[-\alpha_0(v)CL], \qquad (1)$$

где  $W_0$  – мощность излучения на входе в поглощающую среду; W – мощность излучения на выходе слоя поглощающей среды;  $\alpha$  – коэффициент потерь,  $\alpha_0(\nu)$  – коэффициент поглощения газа; C – концентрация (парциальное давление) газа; L – длина оптического пути взаимодействия излучения с газом.

В общем случае коэффициент  $\alpha$  зависит от температуры среды T и давления P в ней. Поглощение смеси, содержащей селективно поглощающий газ, кроме указанных параметров также зависит от парциального давления [4]. Этот закон, как правило, используется в условиях поглощения излучения, когда частота лазерного излучения  $\nu$  не совпадает с частотой линий поглощений.

Выражение (1) строго справедливо только для монохроматического излучения. В условиях использования излучения в конечном спектральном диапазоне коэффициент поглощения усредняется по используемому спектральному диапазону.

В настоящей работе рассматривается вариант, связанный с распространением лазерного излучения в среде, имеющей селективно поглощающую составляющую. Практический интерес представляет случай, когда частота лазерного излучения близка к частоте линии погло-

щения. В таких условиях необходимо учитывать форму линии поглощения. В большинстве практических случаев достаточно точным приближением линии поглощения является лоренцевская кривая [3]:

$$\alpha_0(v) = \alpha_{pe3} \gamma^2 / [(v - v_0)^2 + \gamma^2],$$
 (2)

где  $\nu$  — частота лазерного излучения;  $\nu_0$  — частота линии поглощения, соответствующая максимуму поглощения;  $\alpha_{pes}$  — коэффициент поглощения на центральной частоте;  $\gamma$  — полуширина линии поглощения на половинном уровне мощности

Эффект селективного поглощения лазерного оптического излучения можно зарегистрировать методом частотной модуляции. При использовании данного метода частота лазерного излучения описывается выражением

$$v = v_1 + v_m \cos(\Omega t), \tag{3}$$

где  $v_1$  — невозбужденная частота излучения лазера;  $v_m$  — амплитуда девиации частоты излучения лазера;  $\Omega$  — частота модуляции.

Если модулированное лазерное излучение взаимодействует с поглощающей средой, то коэффициент поглощения (2) с учетом соотношения (3) можно представить в виде

$$\alpha_0(\beta, \delta, \nu) = \alpha_{pe_3} / [(\beta + \delta \cos(\Omega t))^2 + 1] = \alpha_{pe_3} / [(\beta + \delta \cos x)^2 + 1],$$
 (4)

где 
$$\beta = (v_1 - v_0) / \gamma$$
;  $\delta = v_m / \gamma$ ;  $x = \Omega t$ .

Мощность лазерного излучения W, регистрируемая после прохождения исследуемой поглощающей среды, описывается выражением, содержащим гармоники частоты модуляции, и может быть представлена в виде разложения в ряд Фурье:

$$W(\beta, \delta, \nu) = W_0 \exp(-\alpha) = \frac{a_0}{2} + \sum_{n=1}^{\infty} a_n \cos(n\Omega t).$$
 (5)

По амплитудам  $a_n$  этих гармоник оценивают параметры селективно поглощающей среды, для этого достаточно знать амплитуды первых трех гармоник.

В случае слабо поглощающей среды ( $\alpha$  < 1) выражение (5) преобразуется к виду

$$W(\beta, \delta, \nu) = W_0(1-\alpha) = \frac{b_0}{2} + \sum_{n=1}^{\infty} b_n \cos(n\Omega t)$$
 (6)

Коэффициенты  $a_n$ ,  $b_n$  ряда Фурье вычисляются по формулам Эйлера — Фурье.

$$a_n = \frac{1}{\pi} \int_0^{2\pi} \exp[-\alpha(\beta, \delta, \nu)] \cos(nx) dx, \tag{7}$$

$$b_n = \frac{1}{\pi} \int_{0}^{2\pi} \left[ 1 - \alpha(\beta, \delta, \nu) \right] \cos(nx) dx.$$
 (8)

В случае малых потерь ( $\alpha = \alpha_0(v)CL < 1$ ) определение коэффициента поглощения  $\alpha$  (либо концентрации газа) может быть сведено к измерению отношения второй гармоники к нулевой и его определению по приближенной формуле (9) [3]:

$$\alpha = \frac{1}{K(\delta)} \frac{b_2}{b_0} = \frac{\delta^2 \sqrt{1 + \delta^2}}{2(2 + \delta^2 - \sqrt{1 + \delta^2})} \frac{b_2}{b_0},$$
(9)

где  $b_2$  и  $b_0$  — вторая и нулевая гармоники разложения (8), либо  $a_2$  и  $a_0$  разложения (7), значения коэффициента  $K(\delta)$  от величины девиации частоты  $\delta$  приведены в табл.1.

			Таблица 1
Λ	1.5	1.0	2.107

δ	1.0	1.5	1.8	2.197
$K(\delta)$	0.243	0.318	0.336	0.343

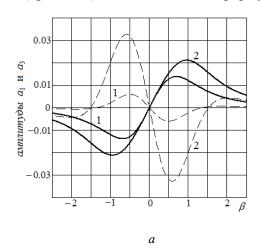
Было показано, что при настройке на максимум поглощения ( $\beta$  = 0 при  $\delta$  = 2,197), K = 0.343 и амплитуда второй гармоники принимает максимальное значение. Выражение (9) при этом не зависит от входной мощности и может быть использовано для приближенной оценки коэффициента поглощения.

# Математическое моделирование метода МЛС

В работе проведены расчеты коэффициентов ряда Фурье, выполненные по точным (5), (7) и приближенным (6), (8) соотношениям, и определены пределы допустимости приближенного выражения (9) в случае больших потерь ( $\alpha = \alpha_0(v)CL < 1$ ).

При проведении эксперимента принципиально важным является обеспечение максимально точного совпадения частоты линии поглощения газа с невозбужденной частотой генерации лазера. Как показано в работе [7], даже незначительная расстройка частоты относительно центральной частоты линии поглощения приводит к различию значений коэффициента поглощения  $\alpha_0$ , достигающему 80 % и больше. Критерием оценки совпадения частоты линии поглощения газа с невозбужденной частотой генерации лазера является равенство нулю нечетных гармоник  $a_1 = a_3 = 0$  [3].

На рис.1 и 2 приведены зависимости амплитуды первой (сплошные линии) и третьей гармоник (штриховые линии) от расстройки  $\beta$  при значениях коэффициента потерь  $\alpha = 0.05$  и  $\alpha = 1.0$  для различных значений относительной девиации частоты  $\delta$  <sub>1</sub>=1 (кривые 2) и  $\delta$  <sub>2</sub>=2.197 (кривые 1), вычисленные по формулам (5), (7).



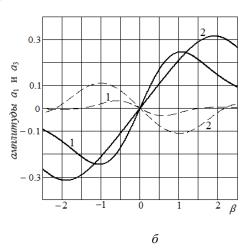
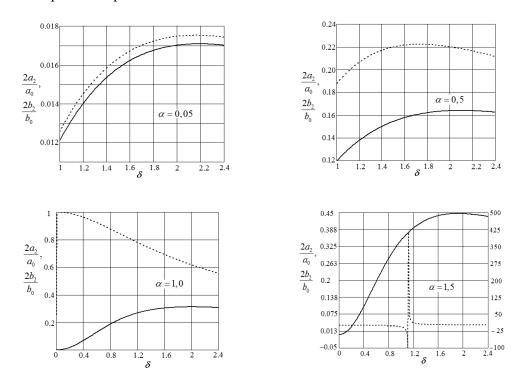


Рис. 1. Зависимости амплитуд первой и третьей гармоник при малых потерях: a -  $\alpha$  = 0.05,  $\delta$  -  $\alpha$  = 1 от расстройки  $\beta$ 

Как видно из графиков, амплитуды первой гармоники обращаются в нуль как при малых, так и больших потерях и частотах свипирования. При возрастании потерь крутизна кривых 2,4 возрастает, что упрощает настройку частоты лазера на максимум поглощения. Кроме того, максимум амплитуды первой и второй гармоник  $a_1$ ,  $a_2$  наблюдается при  $\delta = 2,197$ . При температурной перестройке частоты полупроводникового лазера током элемента Пельтье определяются два значения тока, при которых амплитуды первой гармоники

 $a_1$  имеют противоположные знаки. Требуемое для установки значение тока (для  $\beta = 0$ ), вычислялось методом секущей. Таким образом, основным критерием настройки резонатора на максимум линии поглощения газа может служить равенство нулю нечетных первой гармоники либо третьей гармоник.



Puc.2. Зависимости относительной величины второй гармоники от величины расстройки  $\delta$ 

Были приведены расчеты зависимости четырех гармоник  $a_i$ ,  $b_i$  (i = 0,1,2,3) и отношения второй гармоники к нулевой ( $2a_2$  /  $a_0$ ;  $2b_2$  /  $b_0$ ) от величины относительной девиации частоты  $\delta$  для значения потерь  $\alpha$  = 0.005; 0.05; 0.5; 1; 1.5 по приближенным (6) – (8) и точным (5) – (7) формулам. Результаты расчетов приведены на рис.2. Сплошной линией на графиках представлены зависимости  $2a_2$  /  $a_0$ , вычисленные по точной формуле (7), пунктирной – зависимости  $2b_2$  /  $b_0$ , полученные по приближенным соотношениям (8).

Установлено, что в случае очень малых потерь  $\alpha$  = 0.005, значения отношения второй гармоники к нулевой, вычисленные по точным и приближенным формулам, практически совпадают  $\zeta$   $\cong$  0% . Здесь  $\zeta = \left(\frac{b_2/b_0}{a_2/a_0}-1\right)\cdot 100\%$  . При увеличении потерь различие возрастает. Так для  $\delta$  = 2.197 и  $\alpha$  = 0.05  $\zeta$  составляет около 6%, при  $\alpha$  = 0.5 –  $\zeta$   $\cong$  32% и  $\alpha$  = 1.0 –  $\zeta$   $\cong$  87% . При дальнейшем увеличении потерь ( $\alpha$  = 1.5,  $\delta$   $\cong$  1.1) амплитуда нулевой гармоники  $b_0$  меняет знак и становится отрицательной, а отношение  $2b_2/b_0$  претерпевает разрыв второго рода и теряет физический смысл.

Для ряда значений потерь в заданном интервале  $\alpha = 0.005 - 1.5$  по точным (5), (7) и приближенным (6), (8) выражениям были определены отношения величин второй гармоники к нулевой  $2a_2/a_0$  и  $2b_2/b_0$ . Подставляя данные значения в уравнение (9), определяли расчетную величину потерь  $\alpha_{pacy}$  и погрешность  $\xi = (\alpha - \alpha_{pacy})/\alpha = 1 - \alpha_{pacy}/\alpha$  для различных значений относительной девиации частоты  $\delta$ . Результаты расчетов представлены в табл. 2.

α	$\alpha^*_{pac4}$ $\delta = 2,197$	ξ, %	$\alpha_{pac4}$ $\delta = 2,197$	ξ, %	$\alpha_{pac4}$ $\delta = 1,5$	ξ, %	$\alpha_{pacu}$ $\delta = 1$	ξ, %
0.005	5.01·10 <sup>-3</sup>	0.24	5 · 10 - 3	0	4.99 ·10-3	0.012	4.99 ·10 <sup>-3</sup>	0.016
0.05	0.052	4	0.05	0	0.05	0	0.049	2
0.5	0.63	26	0.478	4.4	0.487	2.6	0.494	1.2
1.0	1.7	70	0.907	9.3	0.94	6	0.971	2.9
1.5	3.965	164	1.289	14	1.358	9.4	1.428	4.8

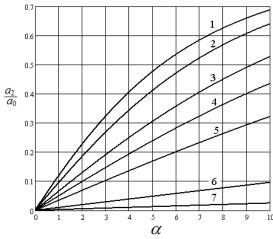


Рис.3. Зависимости отношения  $a_2/a_0 = C$  от коэффициента потерь  $\alpha$  при относительных амплитудах свипирующего напряжения  $\delta$  =1;0(кривая 1); 0.8 (2); 0.6(3); 0.5(4); 0.4(5); 0.2(6); 0.1(7)

В табл.2 обозначено:  $\alpha_{pacu}^*$  — значение потерь, вычисленное по приближенным значениям  $2b_2/b_0$  и формуле (9);  $\alpha_{pacu}$  — значение потерь, вычисленное по точным значениям  $2a_2/a_0$  и формуле (9).

Как видно из табл.2, при использовании коэффициентов Фурье  $2b_2/b_0$ , полученным по приближенным соотношениям (6) — (8), значения потерь  $\alpha_{pacy}^*$  имеют значительную погрешность ( $\zeta=70\%,\ \alpha=1$ ) и могут носить лишь оценочный характер. Для  $\alpha\geq 1$  результаты, полученные по расчетным соотношениям (6), (8), (9), теряют физический смысл, при этом величина  $\xi$  резко возрастает ( $\zeta=164\%,\ \alpha=1.5$ ).

Для коэффициентов Фурье  $2a_2/a_0$ , рассчитанным по соотношениям (5), (7), (9), получены достаточ-

но точные значения  $\alpha_{pac^q}$ . Так для малых потерь  $\alpha=0.005$  (приближение, для которого получено выражение (9) различие результатов не превышает  $\zeta=0.2\%$ . При больших потерях  $\alpha=1.5$  и  $\delta=2,197$   $\zeta$  составляет 14 % и снижается до 5 % при уменьшении значения относительной девиации частоты до  $\delta=1$ . В этом случае целесообразно воспользоваться точными номограммами, приведенными на рис.3

### Выводы

Анализ метода модуляционной лазерной спектроскопии показал, что в случае малых потерь  $\alpha=0.005$  значения  $\alpha_{pacu}$ , вычисленные по точным и приближенным соотношениям, практически совпадают. Для больших потерь ( $\alpha=1.5$ ;  $\delta=2.197$ ) различие составляет  $\zeta=14\%$  и снижается до 5 % при уменьшении значения относительной девиации частоты до  $\delta=1$ . При  $\alpha\geq 1.5$  целесообразно воспользоваться точными номограммами.

Список литературы: 1. Demtroder W. Laser spectroscopy. Experimental techniques. Berlin Heidelberg: Springer, 2008, P. 7-13. 2 Frequency-modulation spectroscopy: a new method for measuring weak absorptions and dispersions / Gary C. Bjorklund // Optics Letters. — 1980. — Vol. 5, Issue 1. — P. 15-17 3. Основные принципы построения волоконно-оптической системы регистрации метана в воздухе / Мачехин Ю.П. // Прикладная радиоэлектроника. — Т.4, №3. — С. 326-330. 4. Frequency modulation spectroscopy for trace species detection: theory and comparison among experimental methods / J. A. Silver // Appl. Opt. — 1992. — 31 N5. — P. 707—31. 5. Optical fiber sensors and transmission of data using optical fibers for environmentral monitoring in underground coal mines / Srivastava S.C., Kumar V. // Research and Indastry. — 1989. — Vol. 34, N 2. — P. 107-109. 6. Review of fibre optic gas sensor / Dakin J.P. // SPIE, Fiber Optic Sensor III. — 1988. — Vol. 1011. — P. 173-182. 7. Применение DF-лазера для анализа углеводородов в атмосфере / Великанов С.Д., Елутин А.С. и др. // Квантовая электроника. — 1997. — 24, №3.

Харьковский национальный университет радиоэлектроники

Поступила в редколлегию 09.10.2013