

Восстановление формы сигнала давления из микрофонного импульсного сигнала

Б.А. Тихомиров*

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

Поступила в редакцию 19.03.2013 г.

Предложена методика компьютерного восстановления формы сигнала давления из импульсного сигнала микрофона. Показано, что на ее основе с помощью импульсного оптико-акустического спектрометра с временным разрешением сигналов можно измерять время столкновительной релаксации молекул из возбужденного колебательного состояния в основное.

Ключевые слова: импульсный оптико-акустический сигнал, лазерная спектроскопия молекул, столкновительная релаксация; pulse photoacoustic signal, laser molecular spectroscopy, collisional relaxation.

Введение

Оптико-акустический (ОА) метод лазерной спектроскопии [1, 2] широко используется в исследованиях линейного и нелинейного поглощения лазерного излучения в газах и атмосферном воздухе [1–7], в газоанализе [1, 3], в том числе в анализе газовых проб, выделяемых биологическими объектами [8]. Другими приложениями ОА-метода являются диагностика параметров лазерных пучков (см., например, [9]), изучение кинетики возбужденных молекул [1, 2, 10–15] и аэрозольных частиц [16]. ОА-метод эффективно работает как с непрерывными, так и с импульсными лазерами [1, 2].

На практике константы релаксации колебательно возбужденных молекул определяются из зависимостей фазы [10–13] или амплитуды [14, 15] сигнала ОА-детектора, т.е. электрического сигнала, генерируемого в результате воздействия на диафрагму микрофона сигнала давления, от давления исследуемого газа в области низких значений (0,1–100 мм рт. ст.). Изменение давления газа в кювете ОА-детектора приводит к изменению скорости релаксации возбужденных молекул и к соответствующему изменению формы микрофонного сигнала, а также к инструментальным эффектам, связанным с зависимостью частотной характеристики микрофона от давления и приводящим к систематическим погрешностям измерений констант релаксации в несколько десятков процентов и более [11, 12]. Влияние инструментального сдвига фазы исключается путем дополнительных измерений с быстро релаксирующим газом [11], либо инструментальный сдвиг фазы дополнительно

измеряется методом электростатической активации [12, 14, 15], либо инструментальным эффектом просто пренебрегают [13].

В экспериментах [13] влияние инструментального эффекта можно исключить, если оперировать с зависимостью параметров сигнала давления от давления газа. Для этого из электрического сигнала микрофона необходимо восстановить форму сигнала давления.

Цель работы – разработка методики восстановления формы сигнала давления из импульсного микрофонного сигнала.

Форма импульсных ОА-сигналов

Генерация и распространение импульса давления $p(r, t)$, генерируемого в газе со спектральным коэффициентом поглощения α в результате поглощения лазерного импульса, описывается линеаризованным волновым уравнением [1]:

$$\frac{\partial^2 p(r, t)}{\partial t^2} - v^2 \nabla^2 p(r, t) = (\gamma - 1) \frac{\partial I(r, t)}{\partial t}, \quad (1)$$

где v – скорость звука в газе; γ – адиабатическая постоянная; $I(r, t)$ – скорость тепловыделения в единице объема. Данное волновое уравнение получается после преобразований системы уравнений газодинамики [1] при условии малых отклонений температуры и давления относительно их начальных значений. Для гауссова в поперечном сечении пучка и процесса тепловыделения в виде функции $f(t)$ функция $I(r, t)$ имеет вид

$$I(r, t) = W \exp\left(\frac{2r^2}{w_0^2}\right) f(t), \quad (2)$$

* Борис Александрович Тихомиров (bat@iao.ru).

где $W \sim \alpha$ – плотность энергии, выделившейся в центре лазерного пучка; r – расстояние от центра пучка до точки наблюдения; w_0 – радиус пучка, при котором W уменьшается в e^2 раз.

При слабом поглощении, когда $\alpha L \ll 1$, где L – толщина поглощающего слоя газа, общим решением уравнения (1) будет интеграл

$$p(r, t) = (\gamma - 1) \int_{-\infty}^t dt' \int_0^{\infty} r' dr' \int_0^{\infty} k dk I(r', t') \times \cos[kv(t - t')] J_0(kr) J_0(kr'). \quad (3)$$

Здесь J_0 – функция Бесселя; k – волновое число. При $w_0 \ll r$ интеграл (3) преобразовывается к виду [17]:

$$p(r, t) = (\gamma - 1) W \int_{-\infty}^t f(t') dt' \int_0^{\infty} k^{1/2} dk \times \exp\left(-\frac{k^2 w_0^2}{2}\right) \cos\left[k(r - v(t - t')) - \frac{\pi}{4}\right]. \quad (4)$$

В общем случае интеграл (4) берется численно. Форма ОА-сигнала $U(t)/U_{\max}$, регистрируемого в эксперименте, представлена на рис. 1.

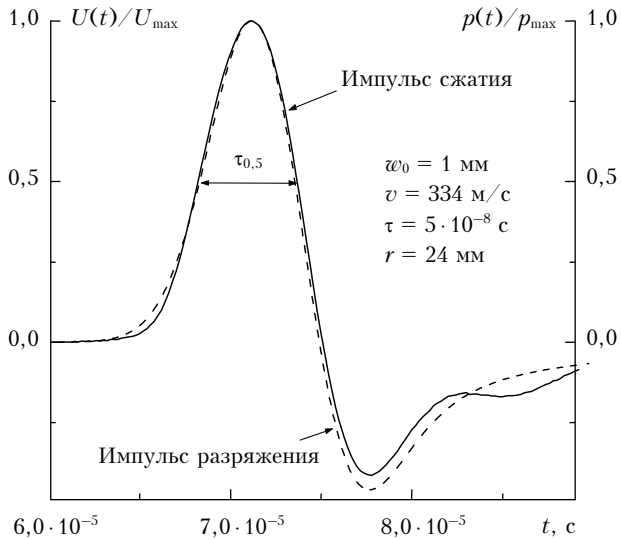


Рис. 1. Форма ОА-сигнала микрофона МК-301 $U(t)/U_{\max}$ (сплошная линия) и форма расчетного сигнала давления $p(t)/p_{\max}$ (штриховая) при атмосферном давлении воздуха

Измерения проводились с помощью ОА-спектрометра с временным разрешением сигналов [13]. Источником излучения служит перестраиваемый по частоте моноимпульсный лазер на рубине. Лазерные импульсы длительностью $\tau \approx 50$ нс и с гауссовым распределением интенсивности фокусируются длиннофокусной линзой в кювету диаметром 20 см и длиной 30 см. Измерения в кювете с такими размерами эквивалентны ОА-экспериментам в открытом про-

странстве, в которых наличие стенок и замкнутость объема необходимы для моделирования поглощающей среды с заданными характеристиками. В центре кюветы находится четвертьдюймовый конденсаторный микрофон МК-301. Частота собственных колебаний мембраны (диафрагмы) микрофона $f = \omega/2\pi \approx 70$ кГц. Сигнал ОА-детектора усиливается широкополосным усилителем с полосой пропускания $\Delta f = 300$ кГц и коэффициентом усиления $k_{yc} = 1000$ и поступает на вход цифрового осциллографа. Осциллограф через интерфейс связан с компьютером. В качестве поглощающего газа используется водяной пар, у которого несколько линий поглощения из полосы $\nu_1 + 3\nu_3$ попадают в область перестройки частоты рубинового лазера [4]. Давление газа в кювете контролируется вакуумметром DVR-5.

Сигнал давления $p(t)/p_{\max}$, рассчитанный для условий эксперимента, т.е. для гауссова процесса тепловыделения $f(t') = 1/\sqrt{2\pi}\tau \exp(-t'^2/2\tau^2)$, длительностью $\tau = 5 \cdot 10^{-8}$ с при $w_0 = 1$ мм, $r = 24$ мм и $v = 334$ м/с, путем численного интегрирования выражения (4) представлен на рис. 1 пунктиром. Видно, что расчетный и экспериментальный сигналы хорошо согласуются и включают в себя импульсы сжатия и разрядки [18]. Наибольшие отличия наблюдаются для импульса разрядки.

Необходимо отметить, что длительность импульса сжатия на полувысоте $\tau_{0,5} = 5,5$ мкс по величине в 2 раза превышает расчетное значение по формуле для гауссова импульса [18]:

$$\tau_{0,5} \approx 1,316 \left(\tau^2 + \frac{w_0^2}{2v^2} \right)^{1/2} \approx 0,931 w_0/v. \quad (5)$$

В соответствии с (5) для условий наших измерений мы должны были получить $\tau_{0,5} = 2,8$ мкс.

При атмосферном давлении воздуха время колебательно-поступательной релаксации молекул H_2O τ_{VT} составляет величину $\tau_{VT} < 10$ нс [13]. В этом случае справедливо соотношение $\tau_{VT} \ll \tau \ll \tau_{0,5}$, и форма сигналов, представленных на рис. 1, не зависит от процесса тепловыделения в газе, а определяется только размерами лазерного пучка и распределением интенсивности излучения.

Время колебательно-поступательной релаксации возбужденных молекул $\tau_{VT} \sim 1/P$ [1, 2], где P – давление газа. Поэтому если проводить измерения длительности импульсов сжатия ОА-сигналов, генерируемых в результате поглощения коротких лазерных импульсов водяным паром, при размерах лазерного пучка $w_0 = 0,1 \div 1$ мм в области низких давлений ($P = 0,1 \div 10$ мм рт. ст.), то время тепловыделения будет сравнимо по величине со временем распространения звука через освещенную область, т.е. $\tau_{VT} \sim 2w_0/v = 0,5 \div 5$ мкс. Тогда из зависимости длительности $\tau_{0,5}(P)$ можно будет определить величину τ_{VT} .

Осциллограммы микрофонных сигналов, записанных с временным разрешением 50 нс при давле-

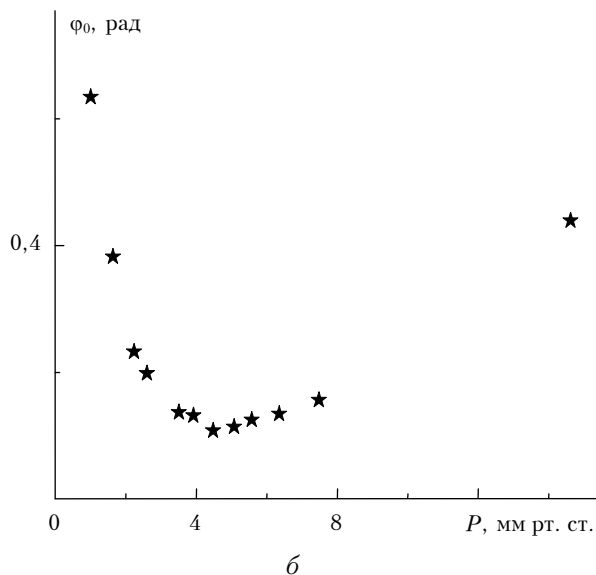
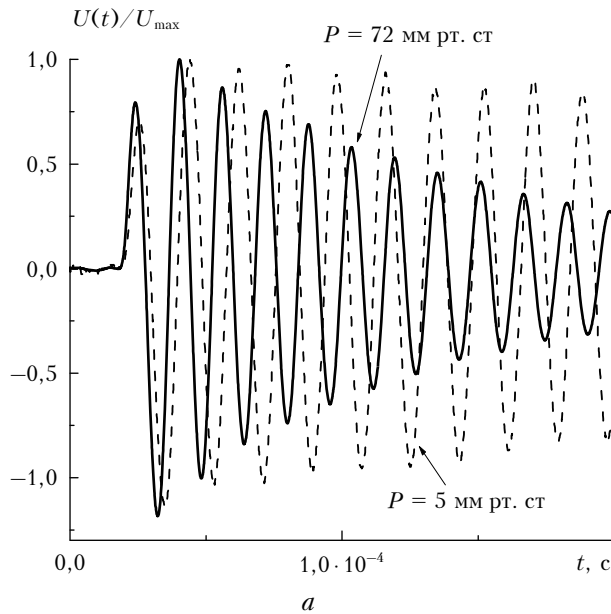


Рис. 2. Сигналы $U(t)/U_{\max}$ при давлении воздуха $P = 5$ и 72 мм рт. ст. (а); зависимость фазы φ_0 ОА-сигнала $U(t)$ от давления водяного пара P (б)

ниях воздуха 5 и 72 мм рт. ст., представлены на рис. 2, а и воспроизводят колебания диафрагмы микрофона в результате воздействия на нее импульса давления $p(t)$. Передний фронт сигналов соответствует движению диафрагмы под действием вынуждающей силы $F(t) = p(t)S/m$, где S — площадь диафрагмы, m — эффективная масса диафрагмы и соприкасающегося с ней газа [2]. Начиная примерно со второго минимума, форма сигнала соответствует свободным колебаниям диафрагмы. Относительно лазерного импульса сигналы запаздывают на время распространения звука от оси лазерного пучка до микрофона. Амплитуда второго максимума превышает амплитуду первого максимума. Это связано с биполярностью вынуждающей силы $F(t)$.

С увеличением давления газа в кювете частота ω и декремент затухания β колебаний увеличиваются, а начальная фаза колебаний φ_0 , т.е. расчетная фаза колебаний в момент поглощения короткого лазерного импульса, ведет себя сложным образом.

Из рис. 2, б видно, что в области $P < 4$ мм рт. ст. наблюдается уменьшение φ_0 с ростом P , которое связано с уменьшением времени столкновительной релаксации возбужденных молекул H_2O . В [13] это уменьшение φ_0 с ростом P лежит в основе реализации метода измерений времени релаксации τ_{VT} молекул H_2O . В то же время в области давлений $P > 4$ мм рт. ст. φ_0 увеличивается из-за преобладающего влияния инструментального эффекта. Инструментальный сдвиг фазы сравним по величине с изменением фазы в области $P < 4$ мм рт. ст. Таким образом, следует полагать, что в измерениях [13] неучет инструментального эффекта приводит к существенному завышению данных о времени релаксации τ_{VT} .

Восстановление формы сигнала давления

Методика восстановления формы сигнала давления из микрофонного сигнала иллюстрируется рис. 3.

Исходной информацией является регистрируемый в эксперименте и переданный в компьютер ОА-сигнал микрофона $U(t)$ (рис. 3, б). Сигнал является решением дифференциального уравнения второго порядка [13]:

$$\frac{d^2U(t)}{dt^2} + \frac{2\beta dU(t)}{dt} + \omega^2 U(t) = \frac{\alpha_m p(t)S}{m}, \quad (6)$$

где α_m — чувствительность микрофона. Колебания диафрагмы микрофона полагаем свободными, начиная со второго минимума сигнала $U(t)$ (рис. 3, а). Используя выражение для свободных затухающих колебаний в виде

$$U(t) = U_c + U_0 e^{-2\beta t} \sin(\omega t + \varphi_0),$$

где U_c и U_0 — постоянная составляющая и амплитуда колебаний соответственно, после процедуры подгонки определяем параметры ω и β . Отметим, что искомые параметры ω и β восстанавливаются с относительной погрешностью не более 0,2%. Затем в цифровом виде находим первую и вторую производные от ОА-сигнала: $dU(t)/dt$ и $d^2U(t)/dt^2$ (рис. 3, в). Все полученные данные ($U(t)$, $dU(t)/dt$, $d^2U(t)/dt^2$, ω и β) подставляем в ставшее арифметическим уравнение (6), из которого автоматически восстанавливается форма оцифрованного сигнала давления $p(t)$ (рис. 3, в).

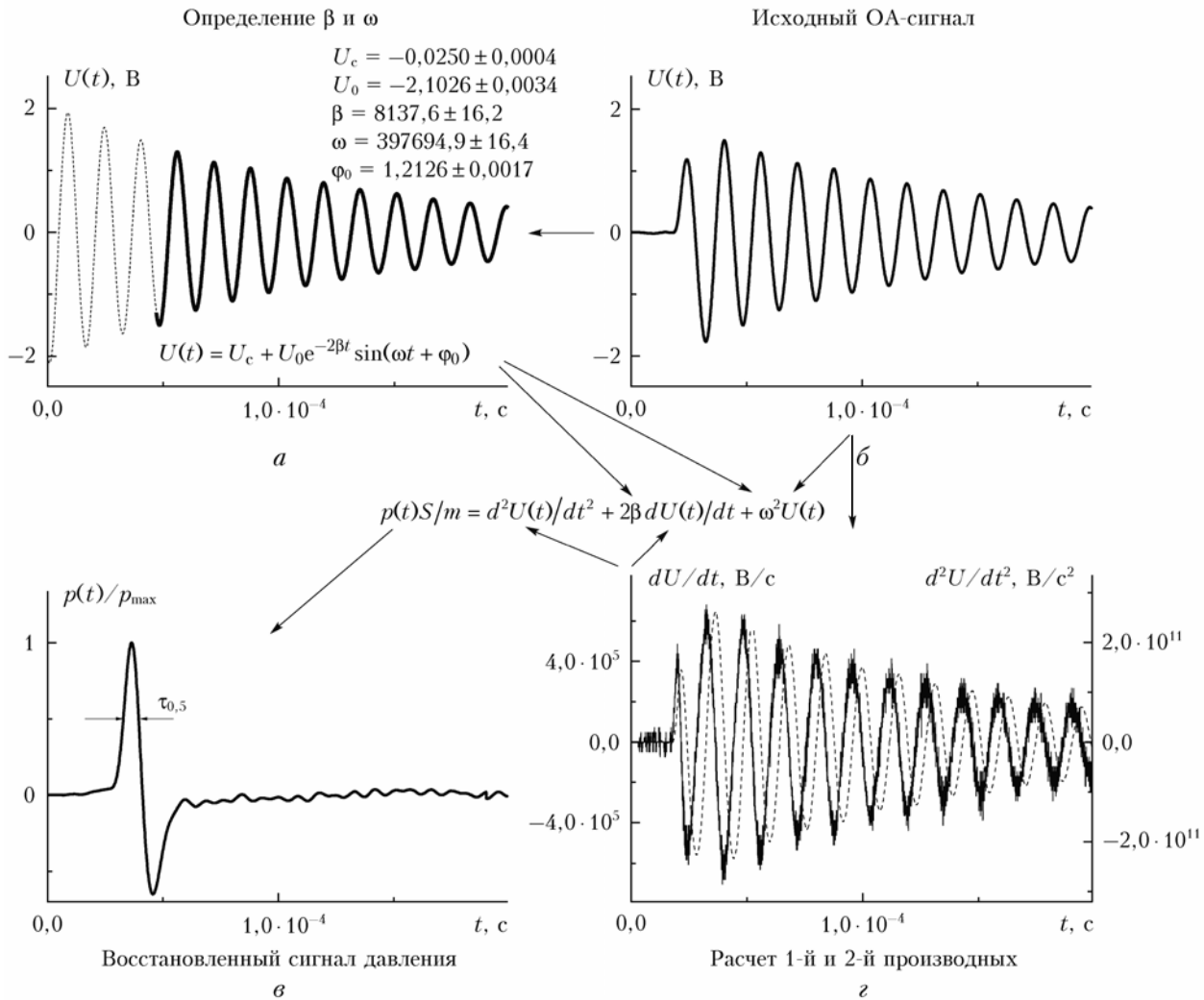


Рис. 3. Методика восстановления формы сигнала давления $p(t)$ из микрофонного сигнала $U(t)$

Результаты измерений времени релаксации молекул H_2O ($\nu_1 + 3\nu_3$) и их обсуждение

На рис. 4 представлены зависимости длительности импульса сжатия $\tau_{0,5}$ от давления водяного пара для двух значений радиуса лазерного пучка $w_0 \approx 0,5$ и 1 мм, полученные в результате восстановления формы импульсов давления $p(t)$ из экспериментальных ОА-сигналов $U(t)$. Размер лазерных пучков оценивался по ожогам на фотопластинке.

Пунктиром на рис. 4 показаны результаты аппроксимации этих зависимостей функцией

$$\tau_{0,5} = 1,316 \left[(\tau_{VT}^{(0)}/P)^2 + 2(\omega/v)^2 \right]^{1/2}, \quad (7)$$

где изменение размера источника акустического сигнала из-за диффузии возбужденных молекул учитывалось в виде [19]:

$$\omega(t) = \sqrt{\omega_0^2 + 5,76D\tau_{диф}/P}. \quad (8)$$

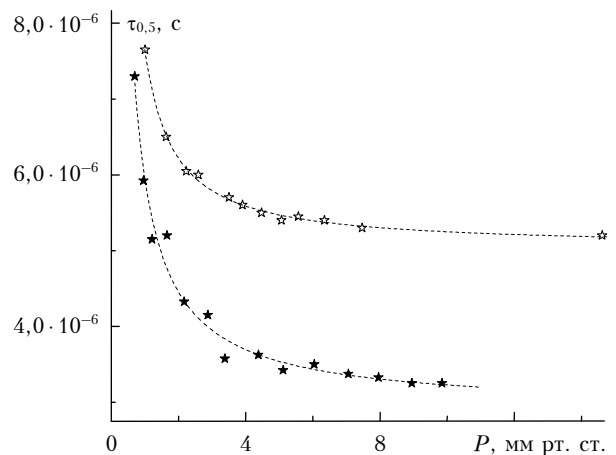


Рис. 4. Длительность импульса сжатия $\tau_{0,5}$ в зависимости от давления водяного пара при радиусе лазерного пучка $w_0 = 1$ (\star) и $0,5$ мм (\blackstar)

В выражениях (7) и (8) $\tau_{VT}^{(0)}$ — время колебательно-поступательной релаксации молекул воды; D — коэффициент диффузии возбужденных молекул H_2O

при давлении $P = 1$ мм рт. ст.; $\tau_{\text{диф}}$ — время диффузии; $v = 417$ м/с — скорость звука в чистом водяном паре при комнатной температуре. Параметры подгонки $\tau_{VT}^{(0)}$, w_0 , $D\tau_{\text{диф}}$, их среднеквадратические отклонения и значения коэффициента подгонки (R^2) представлены в таблице.

$\tau_{VT}^{(0)}$, мкс · мм рт. ст.	w_0 , мм	$D\tau_{\text{диф}}$, 10^{-3} см ²	R^2
2,2 (0,5)	0,65 (0,04)	1,6 (0,4)	0,98
2,7 (0,2)	1,13 (0,01)	1,7 (0,2)	0,99

Примечание. В скобках приведены среднеквадратические отклонения.

Из таблицы видно, что с наименьшей погрешностью подгонки ($\leq 7\%$) восстанавливаются значения радиуса лазерного пучка. Этому есть простое объяснение. С увеличением давления водяного пара вклады от первого слагаемого в (7) и второго слагаемого в (8) существенно уменьшаются. Длительность $\tau_{0,5}$ стремится к своему пределу, характеризующему время распространения звука через освещенную область и определяемому простым соотношением $\tau_{0,5} \approx 1,86w_0/v$. При определении w_0 в функциональной зависимости (7) наибольший вес имеют экспериментальные точки при больших значениях P . Следует также отметить, что восстановленные значения w_0 примерно на 20% превышают данные, полученные по ожогам на фотопластинке. Согласно [20] размер лазерного пучка, определяемый по ожогам на фотопластинках, меньше реального размера, поскольку фоточувствительный слой имеет порог разрушения по интенсивности излучения.

Значения $\tau_{VT}^{(0)} = 2,2(0,5)$ и $2,7(0,2)$ мкс · мм рт. ст., полученные для разных размеров лазерного пучка, в пределах погрешностей подгонки совпадают друг с другом. Как и следовало ожидать, эти значения меньше $\tau_{VT}^{(0)} = 3,8$ мкс · мм рт. ст. [13], при измерении которой не учитывался инструментальный сдвиг фазы ОА-сигнала. Полученные значения примерно в 2 раза превышают время релаксации населенности диады $\{v_1, v_3\}$ $\tau_{v_1, v_3} = 1,3$ мкс · мм рт. ст. [21], измеренное флуоресцентным методом. Отличие можно объяснить тем, что в [21] флуоресцентным методом измеряется время релаксации населенности связанных состояний v_1 и v_3 молекулы H_2O . В наших экспериментах ОА-методом измеряется время столкновительной релаксации энергии возбуждения молекулы H_2O с более высоко лежащего уровня энергии $v_1 + 3v_3$ в основное состояние.

Параметр $D\tau_{\text{диф}}$ восстанавливается с погрешностью $\leq 25\%$. Если положить $\tau_{\text{диф}} \sim \tau_{VT}^{(0)}$ и поделить значения $D\tau_{\text{диф}}$ из 3-й колонки таблицы на значения $\tau_{VT}^{(0)}$ из 1-й колонки, то получим значения коэффициента диффузии для возбужденных молекул H_2O : $D = 727$ и 630 см²/с, сравнимые по порядку величины с данными для коэффициента диффузии невозбужденных молекул $D = 210$ см²/с [22], но в 3 раза их превышающие. В то же время известно [23], что возбуждение молекул приводит к увеличению сечений столкновений и, как следствие, к умень-

шению коэффициентов диффузии. Несоответствие полученных данных о коэффициенте диффузии литературным данным можно объяснить тем, что в проводимых нами экспериментах молекулы H_2O возбуждаются на высокий уровень энергии ($E \approx 14\,400$ см⁻¹). Форма процесса тепловыделения при релаксации молекул с этого уровня в основное состояние через большое количество промежуточных состояний (10 по деформационной моде v_2) неизвестна. В этом случае выражение (7), полученное в [18] для гауссова процесса тепловыделения, работает неточно.

Заключение

Предложена методика восстановления формы сигнала давления $p(t)$ из импульсного сигнала микрофона $U(t)$, построенная на манипуляциях с оцифрованным сигналом $U(t)$ на компьютере (расчет производных $dU(t)/dt$ и $d^2U(t)/dt^2$, восстановление частоты колебаний ω и декремента затухания колебаний β , подстановка этих данных в уравнение для колебаний диафрагмы микрофона). По методике с использованием результатов экспериментальных измерений микрофонных сигналов от поглощения коротких лазерных импульсов рубинового лазера водяным паром в полосе $v_1 + 3v_3$ построены зависимости длительности импульса сжатия $\tau_{0,5}$ сигнала $p(t)$ от давления водяного пара P . Из зависимостей $\tau_{0,5}(P)$ для двух радиусов лазерного пучка определены значения времени релаксации колебательно возбужденных молекул H_2O из состояния $v_1 + 3v_3$ в основное состояние, в пределах погрешностей подгонки совпадающие друг с другом и согласующиеся с литературными данными.

Автор благодарит А.Б. Тихомирова за численные расчеты формы сигнала давления при атмосферном давлении воздуха.

1. Жаров В.П., Летохов В.С. Лазерная ОА-спектроскопия. М.: Наука, 1984. 320 с.
2. Антипов А.Б., Капитанов В.А., Пономарев Ю.Н., Сапожникова В.А. ОА-метод в лазерной спектроскопии молекулярных газов. Новосибирск: Наука, 1984. 128 с.
3. Air monitoring by spectroscopic techniques / Ed. by M.W. Sigrist. N.Y.: John Wiley & Sons, Inc., 1994. 531 p.
4. Tikhomirov A.B., Firsov K.M., Kozlov V.S., Panchenko M.V., Ponomarev Yu.N., Tikhomirov B.A. Investigation of spectral dependence of shortwave radiation absorption by ambient aerosol using time-resolved photoacoustic technique // Opt. Eng. 2005. V. 44, N 7. P. 071203-1–071203-11.
5. Kartashov D.V., Kirsanov A.V., Kiselev A.M., Stepanov A.N., Bochkarev N.N., Ponomarev Yu.N., Tikhomirov B.A. Nonlinear absorption of intense femtosecond laser radiation in air // Optics Express. 2006. V. 14, N 17. P. 7552–7558.
6. Kapitanov V.A., Osipov K.Yu., Protasevich A.E., Ponomarev Yu.N. Collisional parameters of N_2 broadened methane lines in the R9 multiplet of the $2v_3$ band. Multispectrum fittings of the overlapping spectral lines // J. Quant. Spectros. and Radiat. Transfer. 2012. V. 113, N 16. P. 1985–1992.
7. Макогон М.М., Пономарев Ю.Н., Тихомиров Б.А. Проблема поглощения водяного пара в УФ-области спектра

- // Оптика атмосф. и океана. 2012. Т. 25, № 7. С. 584–588.
8. Агеев Б.Г., Груздев А.Н., Матяшенко Г.В., Савчук Д.А., Сапожникова В.А., Пономарев Ю.Н. Вариации и тренды содержания CO₂ и H₂O в кольцах спилов хвойных деревьев // Оптика атмосф. и океана. 2012. Т. 25, № 11. С. 1007–1013.
 9. Бочкарев Н.Н., Кабанов А.М., Степанов А.Н. Пространственная локализация области филаментации вдоль трассы распространения сфокусированного фемтосекундного лазерного излучения в воздухе // Оптика атмосф. и океана 2007. Т. 20, № 10. С. 863–867.
 10. Слободская П.В. Определение скорости перехода колебательной энергии молекул в энергию поступательного движения с помощью спектрофона // Изв. АН СССР. 1948. Т. 12, № 5. С. 656–661.
 11. Слободская П.В., Гасилевич Е.С. Развитие метода определения времени релаксации с помощью спектрофона. II. Исключение приборных сдвигов фазы // Оптика и спектроскопия. 1960. Т. 8, № 5. С. 678–685.
 12. Zeninary V., Tikhomirov B.A., Ponomarev Yu.N., Courtois D. Photoacoustic measurements of the vibrational relaxation of the selectively excited ozone (v₃) molecule in pure ozone and its binary mixtures with O₂, N₂, and noble gases // J. Chem. Phys. 2000. V. 112, N 4. P. 1835–1843.
 13. Kapitanov V.A., Tikhomirov B.A. Pulse photoacoustic technique for the study of vibrational relaxation in gases // Appl. Opt. 1995. V. 34, N 6. P. 969–972.
 14. Антупов А.Б., Капитанов В.А., Пономарев Ю.Н. Измерение времени релаксации колебания 401 H₂O с помощью оптико-акустического лазерного спектрометра // Оптика и спектроскопия. 1981. Т. 50, N 3. С. 563–565.
 15. Агеев Б.Г., Никифорова О.Ю., Пономарев Ю.Н. Измерения времени релаксации колебания 103 H₂O на оптико-акустическом спектрометре с рубиновым лазером // Квант. электрон. 1983. Т. 10, № 3. С. 608–611.
 16. Тихомиров А.Б., Тихомиров Б.А. Оптимизация размеров пучка излучения импульсного лазера в оптико-акустических измерениях коэффициента аэрозольного поглощения // Оптика атмосф. и океана. 2011. Т. 24, № 4. С. 331–334.
 17. Джиджоев Д.С., Попов В.К., Платоненко В.Т., Чугунов А.В. Зависимость параметров оптоакустического сигнала от радиуса возбуждаемой области // Квант. электрон. 1984. Т. 11, № 2. С. 414–416.
 18. Heritier J.-M. Electrostrictive limit and focusing effects in pulsed photoacoustic detection // Opt. Commun. 1983. V. 44, N 4. P. 267–272.
 19. Margottin-Maclou M., Doyennette L., Henry L. Relaxation of vibrational energy in CO, HCl, CO₂, and NO₂ // Appl. Opt. 1971. V. 10, N 8. P. 1768–1780.
 20. Heard H.G. Laser parameter measurements handbook. N.Y.: John Wiley & Sons, Inc., 1968. 489 p.
 21. Finzi J., Hovis F.E., Panfilov V.N., Hess P., Moore C.B. Vibrational relaxation of water vapor // J. Chem. Phys. 1977. V. 67, N 9. P. 4053–4061.
 22. URL: http://www.chemway.ru/bd_chem/tbl_thermal_gas/w_tp_mixg_dif_0.php
 23. Simons J. Diffusion of optically pumped molecules as a tool for probing the interaction of excited species // Chem. Phys. Lett. 1972. V. 14, N 5. P. 586–591.

B.A. Tikhomirov. Reconstruction of the pressure signal shape from the pulse microphone signal.

A technique for computer reconstruction of the pressure signal shape from the pulse microphone signal is offered. It is shown that the time of collisional relaxation of molecules from the excited state to the ground one can be measured on its basis with the use of a time-resolved photoacoustic spectrometer.