

УДК 535.342

# Первые результаты измерения концентраций углекислого газа и метана методами диодной лазерной спектроскопии в различных регионах Российской Федерации с борта самолета-лаборатории Як-42Д «Росгидромет»

А.С. Кузьмичев<sup>1,2</sup>, А.И. Надеждинский<sup>2</sup>, Я.Я. Понуровский<sup>2</sup>,  
Д.Б. Ставровский<sup>2</sup>, Ю.П. Шаповалов<sup>2</sup>, В.У. Хаттатов<sup>1</sup>, В.В. Галактионов<sup>1\*</sup>

<sup>1</sup>Центральная аэрологическая обсерватория,  
141700, г. Долгопрудный, Московская обл., ул. Первомайская, 3

<sup>2</sup>Институт общей физики им. А.М. Прохорова РАН  
119991, г. Москва, ул. Вавилова, 38

Поступила в редакцию 14.10.2019 г.

Приведены первые результаты измерений высотных профилей концентраций углекислого газа и метана с борта самолета-лаборатории Як-42Д «Росгидромет». Анализируемые данные получены как в реальном режиме времени с помощью приборов, функционирующих на основе метода диодной лазерной спектроскопии, так и в лаборатории с помощью Фурье-спектрометра посредством обработки проб воздуха, собранного в специальные колбы в ходе исследовательских полетов. Особое внимание уделено конструкции прибора.

*Ключевые слова:* диодный лазер, дистанционное зондирование, многоходовая оптическая кювета, самолет-лаборатория, Арктика, метан, углекислый газ; diode laser, remote sounding, multipath optical cell, aircraft laboratory, the Arctic, methane, carbon dioxide.

## Введение

Наиболее функциональной площадкой для всестороннего мониторинга атмосферы являются летающие лаборатории, которые позволяют проводить газовый анализ на различных высотах [1–4]. Достоинством изучения свободной атмосферы с борта самолета-лаборатории является комплексность летных экспериментов, в частности возможность проведения измерений большинства физико-химических характеристик воздуха в реальном времени, что облегчает нахождение взаимных связей между ними. Важно отметить, что самолет-лаборатория позволяет наблюдать за изучаемым атмосферным явлением на расстоянии в тысячи километров и таким образом отслеживать изменение его характеристик. Сейчас в мире используются десятки самолетов-лабораторий многоцелевого и специального назначения [5].

Одна из актуальных практических задач — определение эмиссий парниковых газов от антропоген-

ных источников в региональных масштабах. Для этого, наряду с систематическими наземными наблюдениями, необходимы самолетные измерения концентраций парниковых газов по оптимально подобранным маршрутам (целевые наблюдения). Универсального метода измерений распределения концентраций газовых примесей в атмосфере нет, но есть ряд методов, с помощью которых можно эффективно определять концентрацию конкретных веществ [6, 7]. Наиболее выгодным с точки зрения долговечности оборудования и точности является метод на основе диодных лазеров, нашедший свою реализацию в многоканальных газовых анализаторах. На самолете-лаборатории Як-42Д «Росгидромет» в качестве штатного оборудования для измерения высотных профилей концентраций парниковых газов используются как отечественный прибор [8], так и зарубежные газоаналитические комплексы [9, 10]. Ниже дано подробное описание отечественного газоанализатора — диодного лазерного спектрометра (ДЛС).

Цель работы — получение данных о концентрациях короткоживущих климатических загрязнителей и газовых примесей атмосферы на различных высотах вдоль траектории полета самолета-лаборатории и возможность идентификации вероятных источников повышенных концентраций основных парниковых газов в приземном (до 2,5–3 км) слое атмосферы.

\* Александр Сергеевич Кузьмичев (askuzmichev@gmail.com); Александр Иванович Надеждинский (nadezhdinskii@gmail.com); Яков Яковлевич Понуровский (ponur1960@yandex.ru); Дмитрий Борисович Ставровский (stavrovskiy.dmitry@gmail.com); Юрий Павлович Шаповалов (shapovaloff.iurij@yandex.ru); Вячеслав Усенович Хаттатов (slava.khattatov@gmail.com); Валентин Васильевич Галактионов (vvgalaktionov@yahoo.com).

## 1. Диодный лазерный спектрометр

ДЛС предназначен для измерения парниковых газов CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub> и изотопомеров паров H<sub>2</sub>O. Он состоит из трех каналов: 1,392 (H<sub>2</sub><sup>16</sup>O, HDO, H<sub>2</sub><sup>18</sup>O, H<sub>2</sub><sup>17</sup>O), 1,601 (CO<sub>2</sub>) и 1,652 мкм (CH<sub>4</sub>), каждый из которых включает в себя узлы, представленные на блок-схеме (рис. 1).

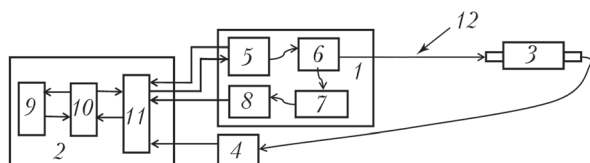


Рис. 1. Блок-схема канала ДЛС: 1 – блок лазерного излучения; 2 – блок управления, приема и обработки данных; 3 – аналитическая многопроходная кювета; 4 – детектор аналитического сигнала; 5 – модуль диодного лазера; 6 – волоконный разветвитель; 7 – интерферометр Фабри–Перо; 8 – детектор сигнала сравнения; 9 – цифровой программируемый модуль; 10 – модуль цифроаналоговых и аналогово-цифровых преобразователей (АЦП); 11 – модуль преобразователей аналоговых сигналов (ЦАП)

Модуль диодного лазера (ДЛ) представляет собой ДЛ с распределенной обратной связью с выходом излучения в одномодовое волокно, генерирующий в ближнем ИК-диапазоне длин волн излучение мощностью не менее 10 мВт. Детекторы аналитического сигнала 4 и сигнала сравнения 8 – это InGaAs p-i-n-фотодиоды с диаметром активной площадки 2 мм. Волоконно-оптический кабель 12 выполнен в виде кварцевого одномодового волоконного световода с потерями оптического излучения на длине волны 1,55 мкм не более 0,25 дБ/км. Цифровой программируемый модуль 9 и модуль ЦАП и АЦП 10 реализованы на базе контроллера PXI-8840 и многофункционального модуля ввода-вывода PXI-6363 (максимальная частота обновления – 2,68 мГц, разрядность – 16 бит) [11].

Использовалась аналитическая многопроходная кювета 3 матричного типа С.М. Чернина [12] с волоконным входом, длиной оптического пути 40 м и суммарными потерями не более 5 дБ. Ее длина – 25 см, вес – 6 кг, объем – 2,5 л. Кювета оснащена высокоточным датчиком давления фирмы Sensors DMP 331i [13]. Для поддержания постоянного давления газовой смеси в кювете на уровне 70 торр использовался стабилизатор. Воздух через аналитическую кювету прокачивался безмасляным спиральным насосом Anest Iwata ISP-90 [14]. Он обеспечивал предельный вакуум 50 мБар; скорость откачки составляла 90 л/мин.

Для организации пробоподготовки изготовлено воздухозаборное устройство, обеспечивающее течение воздуха без изменения его газового состава к телекоммуникационной стойке аппаратно-программного комплекса, в который входит ДЛС. Отбор воздуха производился за пределами пограничного слоя обтекания фюзеляжа самолета. «Запирание/отпирание» каналов осуществлялось на входе воздухозаборника. Работа воздухозаборника (переключение состояний «открыт/закрыт» и «на-

грев») контролировалась дистанционно из салона самолета как в автоматическом режиме (от дифференциального реле давления и температурного реле соответственно), так и вручную, принудительно. На рис. 2 приведены внешний вид ДЛС и схема его расположения на борту самолета.

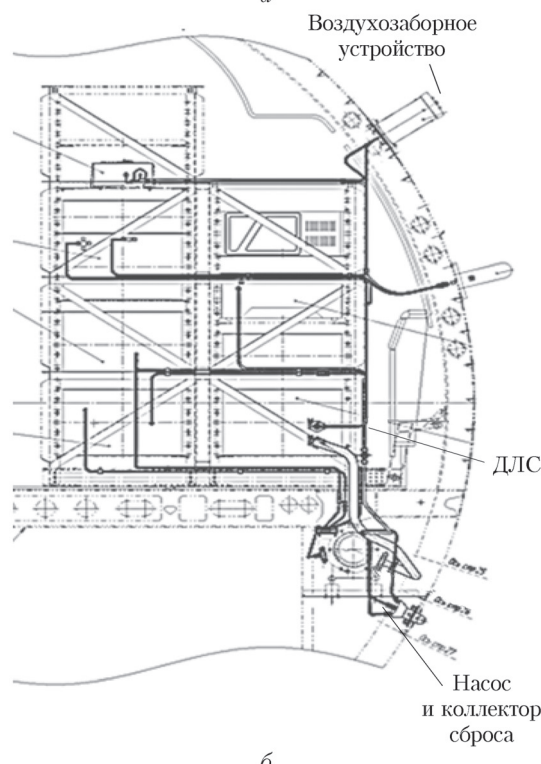


Рис. 2. Внешний вид ДЛС (а) и схема расположения его на борту самолета (б)

## 2. Алгоритм определения концентрации исследуемого газа при амплитудной модуляции тока накачки ДЛ

Для уменьшения влияния различных технических вибраций самолета, фликкерных шумов и обеспечения высокой чувствительности при измерении концентраций газов был использован алгоритм измерения, основанный на амплитудной модуляции тока накачки ДЛ [15, 16]. Сигнал, регистрируемый фотоприемником после прохождения излучения лазера через исследуемый газ, можно представить в виде

$$I = I_0 T(v) = I_0 \exp[-\sigma(v)P_0CL] = I_0 \exp[-K(v)], \quad (1)$$

где  $I_0$  — излучение лазера;  $T(\nu)$ ,  $K(\nu)$  — спектры пропускания и поглощения соответственно;  $\sigma$  — сечение поглощения;  $P_0 = 1$  атм — давление исследуемой газовой смеси;  $C$  — концентрация детектируемой молекулы;  $L$  — длина оптического пути в кювете с исследуемым газом. ДЛ возбуждается периодическими импульсами тока специальной формы. В этой модификации прибора используется трапециевидная форма импульса тока накачки. Длительность импульса тока накачки — 1–2 мс, частота повторения — 40 Гц. Изменение тока накачки во время импульса сопровождается изменением частоты его излучения. Импульс тока накачки ДЛ модулировался по амплитуде с частотой, равной частоте дискретизации платы «ввода/вывода». Частота оптимизировалась под полосу пропускания предусилителей фотоприемников аналитических каналов и составляла 83,3 кГц. Глубина модуляции подбиралась таким образом, чтобы обеспечить частотный сдвиг в моде на полуширину линий поглощения метана и получить максимальный контраст поглощения. Регистрируемый фотоприемником амплитудно-модулированный сигнал в дальнейшем обрабатывался по следующей схеме:

1) логарифмирование частотно-сдвинутых компонент сигналов;

2) автокорреляционная свертка производных реперного сигнала и кросскорреляционная свертка реперного сигнала с аналитическим (эта процедура обеспечивает дополнительную фильтрацию полезного сигнала, зашумленного помехой);

3) линейная регрессия кросскорреляционной функции по автокорреляционной и нахождение коэффициента совпадения функций  $\alpha$  из формулы

$$R_{xy} = \alpha R_{xx},$$

( $R_{xy}$  и  $R_{xx}$  — кросскорреляционная и автокорреляционная функции). Коэффициент совпадения  $\alpha$  пропорционален концентрации исследуемого газа, ppm,

$$C = \frac{\alpha P_R L_R}{P_A L_A} \cdot 10^6, \quad (2)$$

где  $P_R$ ,  $P_A$  — парциальное давление газа в канале сравнения и в аналитическом канале;  $L_R$ ,  $L_A$  — оптические длины в кювете сравнения и аналитической кювете. Представленная процедура вычисления концентрации существенно ограничивает различные низкочастотные (вибрационные, фликкерные) шумы приемно-регистрирующего тракта ДЛС. Калибровка концентрации производится по содержанию примеси в кювете сравнения; калибровка и проверка ДЛС на абсолютные измерения концентраций — с использованием поверочных смесей измеряемых газов. Концентрации выводятся в режиме online, «протокол измерений» сохраняется на жестком носителе PXI-8840. Время единичного измерения — 30 мс. Данные измерений синхронизированы с сервером бортового времени самолета-лаборатории,

записываются в память компьютера прибора и дублируются на сервер самолета-лаборатории. Отличительная особенность ДЛС — отсутствие необходимости его калибровки на борту самолета ввиду наличия реперных кювет как кювет сравнения и поддержания высокой долговременной стабильности частоты генерации диодных лазеров на уровне  $0,0002 \text{ см}^{-1}$ .

### 3. Экспедиционные полеты

В рамках плановых испытаний экспериментального оборудования была проведена серия исследовательских полетов. Некоторые их результаты нашли свое отражение в настоящей работе. В первых полетах совместно функционировали газоанализатор Picarro (модель 2301-m, США) и ДЛС, однако затем Picarro вышел из строя и сравнительные измерения проводились приборами ДЛС и LGR (модель Carbonyl Sulfide Analyzer, производитель Los Gatos Research, США).

Экспедиционные полеты осуществлялись в районе арх. Новая Земля и п-ва Ямал. Основной задачей эксперимента было получение данных о концентрациях газовых примесей атмосферы на различных высотах вдоль траектории полета самолета-лаборатории. Типичная схема движения самолета во время проведения эксперимента при вылете из аэропорта г. Нарьян-Мар приведена на рис. 3, а. Пунктирными линиями обозначены точки, над которыми проводилось высотное зондирование атмосферы (высота от 200 до 9000 м).

На рис. 3, б приведена схема маршрута полетов в Московском регионе с целью идентификации вероятных источников повышенных концентраций основных парниковых газов в приземном (до 2,5–3 км) слое атмосферы. Отметим, что изотопомеры паров воды в наших экспериментальных полетах не измерялись.

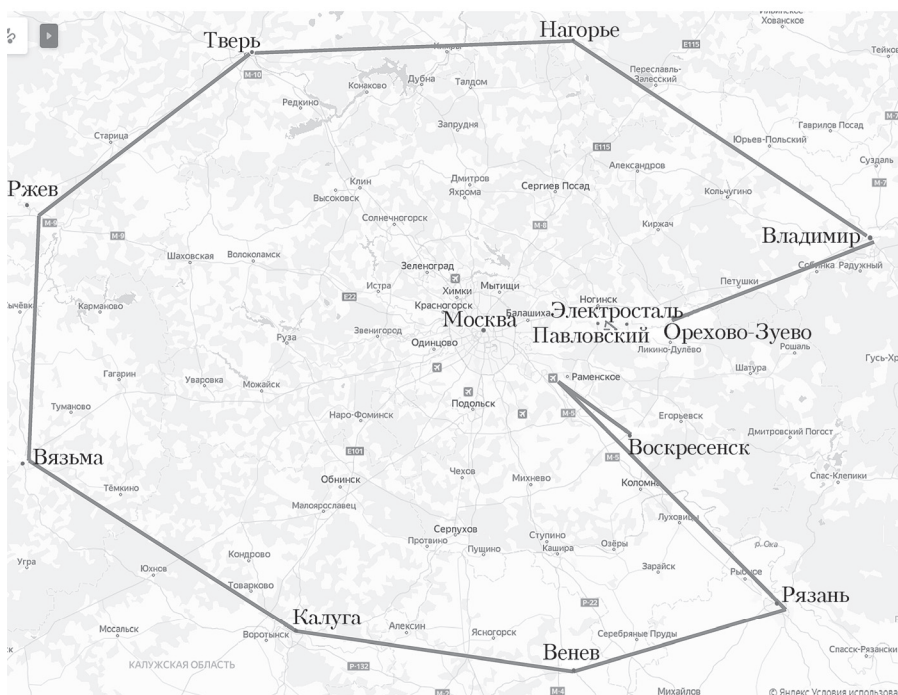
### 4. Результаты измерений высотных профилей концентраций $\text{CO}_2$ и $\text{CH}_4$

Высотные профили концентраций  $\text{CO}_2$  и  $\text{CH}_4$ , полученные в результате проведенных экспедиций на самолете-лаборатории по маршрутам Ямал–Новая Земля и в Московском регионе, показали устойчивую закономерность распределения последних как по широте региона измерения, так и по атмосферному столбу. На рис. 4, а показан вертикальный профиль распределения  $\text{CH}_4$ , а на рис. 4, б — вертикальный профиль распределения  $\text{CO}_2$  (арх. Новая Земля). Содержания  $\text{CH}_4$  существенно изменяется с высотой полета. До 12:00, во время набора высоты, концентрация  $\text{CH}_4$  падает с 2,3 до 1,8 ppm, после 12:00, при снижении самолета, снова наблюдается рост.

Во время полета от 12:30 до 14:00 на высоте 8000 м наблюдается увеличение  $\text{CH}_4$ , по всей видимости, обусловленное глобальным переносом воздушных масс, а также сжиганием попутного



а



б

Рис. 3. Полеты самолета-лаборатории: а – экспедиционные полеты в районы арх. Новая Земля и п-ва Ямал; б – оперативные полеты в Московском регионе в 2014–2016 гг.

нефтяного газа в этих районах дальнего севера. Содержание  $\text{CO}_2$  достаточно стабильно держится на уровне 400 ppm, исключая «неоднородности» во время полета над областями сжигания попутного газа от нефтяных месторождений, как и в случае  $\text{CH}_4$ . Для проведения независимой сравнительной калибровки концентраций по вертикальному про-

филю во время полета осуществлялся дополнительный забор проб в специально откачанные флаги, газовый состав воздуха в которых анализировался в лаборатории ФГБУ «ГГО». По результатам калибровки газов было получено хорошее согласие с online измерениями на борту самолета с относительной ошибкой не более 7%.

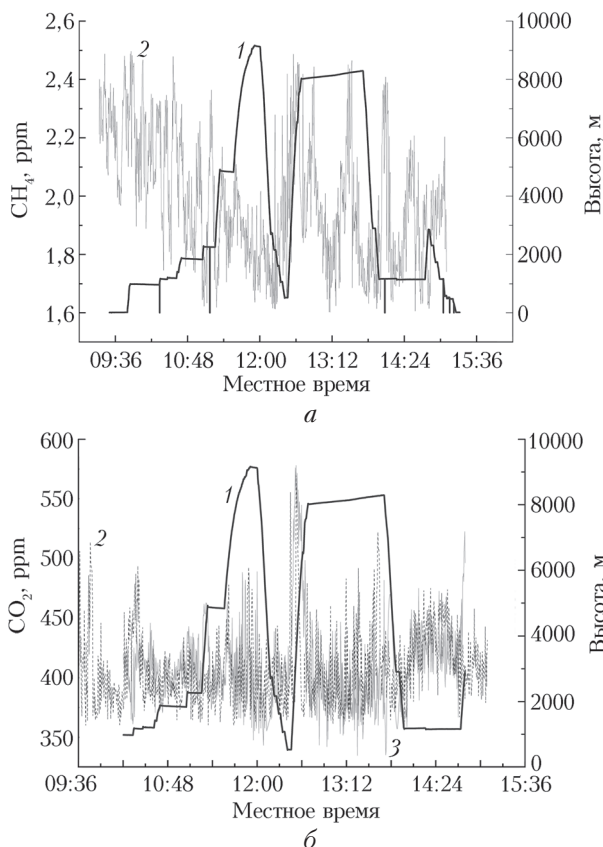


Рис. 4. Вертикальные профили распределения концентраций: а –  $\text{CH}_4$  (1 – высота полета; 2 – концентрация  $\text{CH}_4$ ); б –  $\text{CO}_2$  на арх. Новая Земля (1 – высота полета; 2 – концентрация  $\text{CO}_2$  из измерений ДЛС, 3 – абсорбционного спектрометра Li-7500a). Дата полета: 28.02.2015 г.

### Заклучение

Получены данные о концентрациях газовых примесей атмосферы на различных высотах вдоль траектории полета самолета-лаборатории и исследована возможность идентификации вероятных источников повышенных концентраций основных парниковых газов в приземном (до 2,5–3 км) слое атмосферы. Результаты показали устойчивую закономерность распределения исследуемых газов как по широте региона измерения, так и по вертикальному атмосферному столбу. Измерены концентрации метана и углекислого газа в пробах воздуха, взятых во время полета самолета-лаборатории Як-42Д. Получено их хорошее согласие с online измерениями. Отклонения в концентрациях по результатам калибровки составили менее 7%.

*A.S. Kuzmichev, A.I. Nadezhdinskii, Ya.Ya. Ponurovskiy, D.B. Stavrovskii, Yu.P. Shapovalov, V.U. Khattatov, V.V. Galaktionov. The first results of measuring carbon dioxide and methane concentrations by diode laser spectroscopy in various regions of the Russian Federation from the board of the Yak-42D Roshydromet aircraft laboratory.*

The first results of comparative measurements of altitude profiles of concentrations of carbon dioxide and methane from the aircraft laboratory YAK-42D "Roshydromet" are presented. The data were obtained both in real time using devices operating on the basis of diode laser spectroscopy and in laboratory conditions with the use of a Fourier spectrometer by processing air samples collected in special flasks during research flights.

1. Galaktionov V.V., Khattatov V.U., Rudakov V.V. Aircraft observations of ozone in the Arctic troposphere in April 1994 // Atmos. Res. 1997. V. 44, N 1–2. P. 191–198.
2. Анохин Г.Г., Антохин П.Н., Аршинов М.Ю., Барсуку В.Е., Белан Б.Д., Белан С.Б., Давыдов Д.К., Йелев Г.А., Козлов А.В., Козлов В.С., Морозов М.В., Панченко М.В., Пеннер И.Э., Пестунов Д.А., Сигов Г.П., Симоненков Д.В., Симицын Д.С., Толмачев Г.Н., Филиппов Д.В., Фофанов А.В., Чернов Д.Г., Шаманаев В.С., Шмаргунов В.П. Самолет-лаборатория Ту-134 «Оптик» // Оптика атмосф. и океана. 2011. Т. 24, № 9. С. 805–816.
3. URL: <http://www.halo.dlr.de> (last access: 14.09.2019).
4. URL: <http://www.hiaper.ucar.edu/> (last access: 14.09.2019).
5. Белан Б.Д. Самолетное экологическое зондирование атмосферы // Оптика атмосф. и океана. 1993. Т. 6, № 2. С. 205–222.
6. Семенов В.М. Разработка системы изотопного анализа UF6 и мониторинга HF в атмосфере на основе полупроводниковых приборов: автореф. дис. ... канд. физ.-мат. наук. М., НИ Университет МЭИ, 2014. 20 с.
7. Кузьмичев А.С. Самолетный спектрометр на основе перестраиваемых диодных лазеров для измерения концентраций малых газовых примесей в тропосфере: автореф. дис. канд. тех. наук. М., Московский физико-технический институт, 2013. 24 с.
8. Nadezhdinsky A.I., Ponurovsky Ya.Ya., Shapovalov Y.P., Popov I.P., Stavrovsky D.B., Khattatov V.U., Galaktionov V.V., Kuzmichev A.S. Preliminary results of an aircraft system based on near-IR diode lasers for continuous measurements of the concentration of methane, carbon dioxide, water and its isotopes // Appl. Phys. B. 2012. V. 109. P. 505–510.
9. URL: <http://www.lgrinc.com/documents/LGR%20Eddy%20Covariance%20Package%20Datashet%20np.pdf> (дата обращения: 14.09.2019).
10. URL: [https://www.picarro.com/assets/docs/CO2\\_CH4\\_H2O\\_in\\_Air.pdf](https://www.picarro.com/assets/docs/CO2_CH4_H2O_in_Air.pdf) (дата обращения: 14.09.2019).
11. URL: <http://www.ni.com/ru-ru/shop/select/pxi-multifunction-io-module> (дата обращения: 14.09.2019)
12. Чернин С.М. Многоходовые системы в оптике и спектроскопии. М.: Физматлит, 2010. 240 с.
13. URL: [https://rusautomation.ru/datchiki\\_davleniya/dmp331](https://rusautomation.ru/datchiki_davleniya/dmp331) (дата обращения: 14.09.2019).
14. URL: <https://anestiwata.com/product/isp-90/> (дата обращения: 14.09.2019).
15. Zaslavskii V.Ya., Nadezhdinskii A.I., Ponurovskii Ya.Ya., Chernin S.M. Measurement of formaldehyde  $\text{H}_2\text{CO}$  concentration in air using diode vertical-cavity lasers // Quant. Electron. 2011. V. 41, N 1. P. 81–85.
16. Надеждинский А.И., Понуровский Я.Я. Работы по аналитическому использованию диодной лазерной спектроскопии в институте общей физики им. А.М. Прохорова РАН // Журн. аналитической химии. 2018. Т. 73, № 2. С. 153–158.