

НЕЛИНЕЙНЫЕ КРИСТАЛЛЫ С РЕГУЛЯРНОЙ ДОМЕННОЙ СТРУКТУРОЙ ДЛЯ ДИСТАНЦИОННОГО ГАЗОАНАЛИЗА

Анфимова Е.А.¹, Гейко П.П.², Шандаров С.М.¹

¹Томский университет систем управления и радиоэлектроники,
634050, Томск, пр. Ленина, 40, ep@fet.tusur.ru

²Институт мониторинга климатических и экологических систем СО РАН,
Томск, 634055, пр. Академический 10/3, ppg@imces.ru

Нелинейные кристаллы с регулярной доменной структурой (РДС-кристаллы), в которых реализуется режим квазисинхронизма позволяют эффективно получать перестраиваемое по частоте излучение в видимой и ИК областях. Ключевым свойством РДС-кристаллов является снятие любых ограничений на поляризации взаимодействующих волн, т.е. в них возможны все типы взаимодействия, в частности, шесть типов для одноосных кристаллов: oo-o, oo-e, oe-e, eo-e, ee-o, ee-e и шесть типов для двуосных: ss-s, sf-s, sf-f, ss-f, ff-f, ff-s. Кроме того, возможна реализация квазисинхронизма в любом направлении относительно оптических осей кристалла, что позволяет осуществить максимизацию эффективной нелинейности и при необходимости подстроить длину домена под оптимальное значение. Представлены результаты расчетов по реализации квазисинхронного взаимодействия волн в кристаллах GaAs, LiNbO₃, KnbO₃, CsTiOAsO₄ LiTaO₃, проведены расчеты периодов модуляции нелинейной восприимчивости.

Мониторинг атмосферы традиционно осуществляется с помощью контактных и дистанционных методов [1]. Несмотря на широкую распространенность контактных методов, они принципиально неспособны в полной мере, удовлетворять потребностям экологического мониторинга 21 века, ввиду крайней сложности получения общей картины загрязнения воздуха на обширных территориях с высоким временным и пространственным разрешением.

Дистанционные методы, как правило, используют в качестве зондирующего излучения излучение оптического диапазона, прежде всего, лазерное излучение [2]. Такие методы называют лидарными (аббревиатура от Light Detection and Ranging). Лидарные методы позволяют измерять метеорологические параметры, а также загрязнение атмосферы газовыми и аэрозольными выбросами. Наиболее распространенным методом лидарного зондирования атмосферы остается метод дифференциального поглощения. При использовании этого метода информация о концентрации исследуемого газа атмосферы извлекается из сравнения двух регистрируемых лазерных сигналов в узком спектральном диапазоне длин волн, одна из которых расположена в линии (полосе) поглощения газа, а вторая лежит в области слабого или полного отсутствия поглощения. В основе метода дифференциального поглощения лежит взаимодействие оптического излучения с молекулами атмосферных газов - резонансное поглощение, что и определяет его основные достоинства: высокую чувствительность в масштабе реального времени и возможность проведения пространственно разрешенных дистанционных измерений. В зависимости от поставленной задачи регистрируются эхо сигналы, зеркально отраженные специальными отражателями или отраженные диффузно топографическими объектами: деревьями, зданиями и т.д. В ДПР (дифференциальное поглощение и рассеяние) методе используется упругое рассеяние от атмосферных аэрозолей. Метод ДПР позволяет проводить пространственно-разрешенные измерения газов атмосферы на значительном расстоянии (до 10 км) от лидара (рис.1).

Пусть измерения проводятся на двух длинах волн: λ_1 - в центре линии поглощения, λ_2 - вне линии поглощения. Мощность пришедшего на приемник обратно рассеянного лазерного излучения на двух длинах волн можно представить следующими выражениями:

$$P(\lambda_1, R) = K(\lambda_1)P_0(\lambda_1) \exp\left\{-2\int_0^R \kappa_c(\lambda_1, z)dz - 2\int_0^R \varepsilon(\lambda_1, z)dz\right\} \quad (1)$$

$$P(\lambda_2, R) = K(\lambda_2)P_0(\lambda_2) \exp\left\{-2\int_0^R \kappa_c(\lambda_2, z)dz - 2\int_0^R \varepsilon(\lambda_2, z)dz\right\}$$

Здесь $P_0(\lambda)$ - мощность излучаемая лазерным источником; $K(\lambda)$ - общая эффективность рассматриваемой системы зондирования для метода ДПР (когда отражение лазерного излучения к приемной системе происходит на аэрозольных частицах атмосферы); $\varepsilon(\lambda, z)$ - показатель «фонового» ослабления, характеризующий ослабление излучения за счет других источников ослабления (рассеяние на молекулах и аэрозолях, поглощение другими газами и аэрозолями), кроме ослабления за счет интересующего нас газа, описываемого показателем поглощения $\kappa_c(\lambda, z)$; R - расстояние от лидара до рассеивающего объема атмосферы.

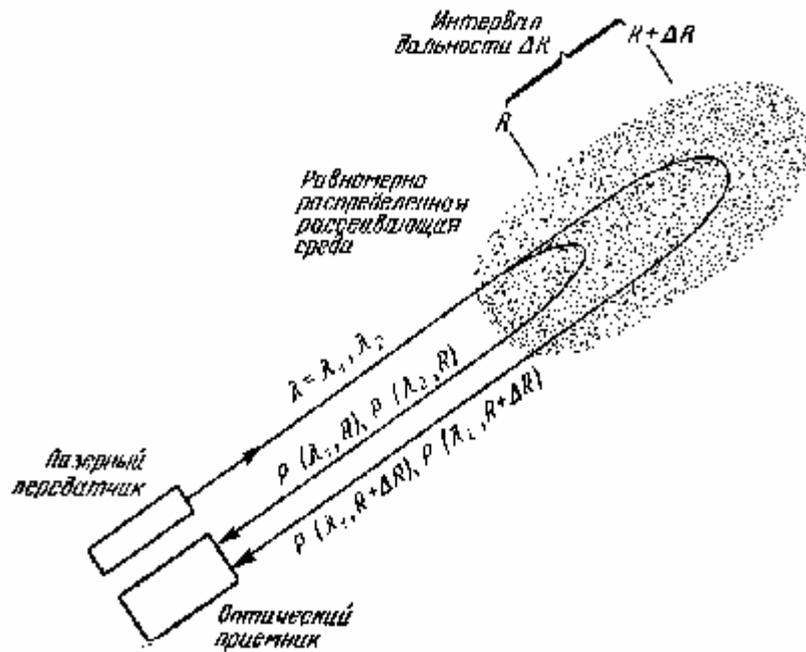


Рис.1. Схема лидарного метода дифференциального поглощения с использованием упругого рассеяния от атмосферных аэрозолей

Если выделить поглощение интересующими нас молекулами из суммарного ослабления, то можно записать следующее выражение:

$$\int_0^R N(z)[\sigma_n(\lambda_1) - \sigma_n(\lambda_2)]dz = \frac{1}{2} \ln \frac{P(\lambda_2, R)K(\lambda_1)P_0(\lambda_1)}{P(\lambda_1, R)K(\lambda_2)P_0(\lambda_2)} - \int_0^R [\varepsilon(\lambda_1, z) - \varepsilon(\lambda_2, z)]dz \quad (2)$$

Уравнение (2) в дифференциальной форме имеет вид:

$$N(R) = \frac{1}{2[\sigma_n(\lambda_1) - \sigma_n(\lambda_2)]} \left\{ \frac{d}{dR} \left[\ln \frac{P(\lambda_2, R)}{P(\lambda_1, R)} - \ln \frac{K(\lambda_2)}{K(\lambda_1)} \right] + [\varepsilon(\lambda_2, z) - \varepsilon(\lambda_1, z)] \right\} \quad (3)$$

где: $N(R)$ - концентрация молекул газового загрязнителя на расстоянии R от лидара.

Таким образом, определение концентрации загрязняющих атмосферу газов сводится к последовательному решению двух задач: переходу от принятого лидарного сигнала к показателю поглощения и переходу от этого оптического параметра к концентрации газовых загрязнений.

Если длины волн λ_1 и λ_2 выбраны достаточно близкими, так что спектральная зависимость «фонового» ослабления мала $\varepsilon(\lambda_1, z) \cong \varepsilon(\lambda_2, z)$ и $K(\lambda_1) \cong K(\lambda_2)$ (а эти условия обычно легко выполнить) то выражение (3) упрощается:

$$N(R) = \frac{1}{2[\sigma_n(\lambda_1) - \sigma_n(\lambda_2)]} \frac{d}{dR} \ln \frac{P(\lambda_2, R)}{P(\lambda_1, R)} \quad (4)$$

или если $\sigma_n(\lambda_1) \gg \sigma_n(\lambda_2)$, то

$$N(R) = \frac{1}{2\sigma_n(\lambda_1)} \frac{d}{dR} \ln \frac{P(\lambda_2, R)}{P(\lambda_1, R)} \quad (5)$$

Нелинейные кристаллы с регулярной доменной структурой (РДС), в которых реализуется режим квазисинхронизма, позволяют эффективно получать перестраиваемое по частоте излучение в областях спектра, где расположены характерные спектры поглощения молекул-загрязнителей.

В последние годы традиционно используются кристаллы с регулярной доменной структурой, такие как LiNbO_3 , KnbO_3 , CsTiOAsO_4 , LiTaO_3 и др. с целью получения перестраиваемого по частоте излучения в окне прозрачности атмосферы 3-5 мкм для решения задач спектроскопии и дистанционного газоанализа [3].

Идея использования периодической модуляции квадратичной восприимчивости для компенсации расстройки волновых векторов взаимодействующих волн принадлежит нобелевскому лауреату Н. Бломбергену, такого рода процессы впоследствии стали называть квазисинхронными. Принцип реализации квазисинхронизма наиболее ясен на примере анализа генерации второй гармоники. При наличии фазовой расстройки $\Delta k_2 = k_2 - 2k_1$ ($k_j = k(j\omega)$ - волновое число j -й гармоники) амплитуда второй гармоники в приближении заданного поля изменяется по закону

$$\frac{dA_2}{dz} = -ib' A_{10}^2 \exp(i\Delta k_2 z), \quad (6)$$

где b' - коэффициент нелинейной связи волн; A_{10} - комплексная амплитуда основной волны с частотой ω . Из (6) получаем

$$A_2(z) = -ib' A_{10}^2 \frac{\sin(\Delta k_2 z / 2)}{\Delta k_2 / 2} \exp(-i\Delta k_2 z / 2). \quad (7)$$

на длине $z = l_c$, где $l_c = p / |\Delta k_2|$ - когерентная длина, интенсивность второй гармоники $I^2 = |A_2|^2$ достигает максимального значения. При этом фазовый набег за счет волновой расстройки равен p . Если вслед за первым нелинейным кристаллом расположить второй нелинейный кристалл длиной l_c , имеющий в направлении распространения взаимодействующих волн такую же волновую расстройку Δk_2 , то амплитуда второй гармоники на выходе второго кристалла

$$A_2(z) = -(b' - b'') A_{10}^2 \frac{\sin(\Delta k_2 z / 2)}{\Delta k_2 / 2}. \quad (8)$$

Здесь b'' - коэффициент нелинейной связи волн для второго кристалла. Ясно видно, что наибольшая амплитуда второй гармоники получается, если $b' = -b''$. Таким образом, изменение знака нелинейности второго кристалла компенсирует деструктивный фазовый набег. Амплитуду и интенсивность второй гармоники при этом можно представить в виде

$$A_2 = -\frac{2}{p} b' (2l_c) A_{10}^2, \quad (9)$$

$$I_2 = \left[\frac{2}{p} b' (2l_c) \right]^2 I_{10}^2, \quad I_{10} = |A_{10}|^2. \quad (10)$$

Согласно уравнению (10) при квазисинхронном взаимодействии волн интенсивность второй гармоники изменяется, как в однородной среде с эффективным нелинейным коэффициентом $b_{eff} = 2b'/p$. Из сравнения (7) и (9) следует, что фаза второй гармоники изменяется от слоя к слою в отличие от однородной среды, где в отсутствие на входе второй гармоники фаза сразу принимает установившееся значение.

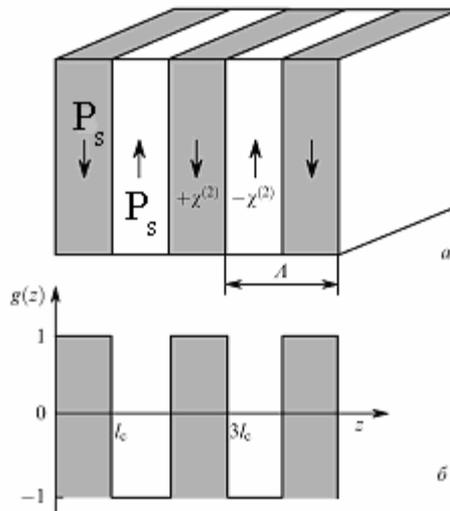


Рис. 2. Нелинейный кристалл с регулярной доменной структурой (а) и функция модуляции нелинейной восприимчивости (б), P_s - вектор поляризации, $\chi^{(2)}$ - нелинейная восприимчивость

Однако наиболее важным с практической точки зрения является то, что при квазисинхронных взаимодействиях можно использовать наиболее высокий коэффициент нелинейности, выбрав соответствующим образом поляризации взаимодействующих волн [4]. Например, в периодически поляризованном кристалле ниобата лития используют $ee-e$ - взаимодействие (все волны необыкновенные), за которое ответственна компонента нелинейной восприимчивости d_{33} , превышающая на порядок другие компоненты этого кристалла.

Принципиальным положительным свойством РДС-кристаллов является снятие любых ограничений на поляризации взаимодействующих волн, т. е. в них возможны все типы взаи-

модействия, в частности, шесть типов для одноосных кристаллов: $oo-o$, $oo-e$, $oe-e$, $eo-e$, $ee-o$, $ee-e$ и шесть типов для двуосных: $ss-s$, $sf-s$, $sf-f$, $ss-f$, $ff-f$, $ff-s$. Кроме того, в них достижима реализация квазисинхронизма в любом направлении относительно оптических осей кристалла, что позволяет осуществить максимизацию эффективной нелинейности и при необходимости подстроить длину домена под оптимальное значение. Так, для ниобата и танталата лития, обычно используемых в качестве нелинейных элементов, наибольший нелинейный элемент d_{33} не реализуется, и поэтому для преобразования в однородных элементах используются коэффициенты d_{13} или d_{15} . Однако при использовании доменных структур коэффициент d_{33} становится пригодным для фазового согласования, поскольку в этом случае $d_{ij\text{eff}} = k_m d_{ij}$, и коэффициент оптического преобразования возрастает в $\left(\frac{2d_{33}}{p \cdot d_{15}}\right)^2$ раз. Применение доменных структур также позволило снять большинство ограничений на частотный и температурный интервалы преобразования в высшие гармоники. В таблице 1 приведены сравнительные характеристики нелинейных свойств наиболее распространенных монодоменных и полидоменных кристаллов.

Таблица 1.

Компоненты тензора восприимчивости и нелинейные коэффициенты качества

Однородно нелинейные материалы			Периодические нелинейные материалы		
кристалл	d_{ij}	d^2/n^3	кристалл	d_{ij}	d^2/n^3
LiNbO ₃	$d_{15}=6$	3.4	LiNbO ₃	$d_{33}=30$	34
KTiOPO ₄	$d_{24}=4$	2.7	KTiOPO ₄	$d_{33}=17$	18
LiTaO ₃	$d_{31}=3$	2.6	LiTaO ₃	$d_{33}=19$	13

Однако, длинноволновая ИК область спектра 8-12 мкм недоступна для традиционных РДС кристаллов вследствие сильного многофотонного поглощения излучения. Арсенид галлия один из наиболее привлекательных нелинейных кристаллов, к сожалению непригоден для использования в качестве преобразователя частоты с традиционным, основанном на использовании двулучепреломления, синхронизме.

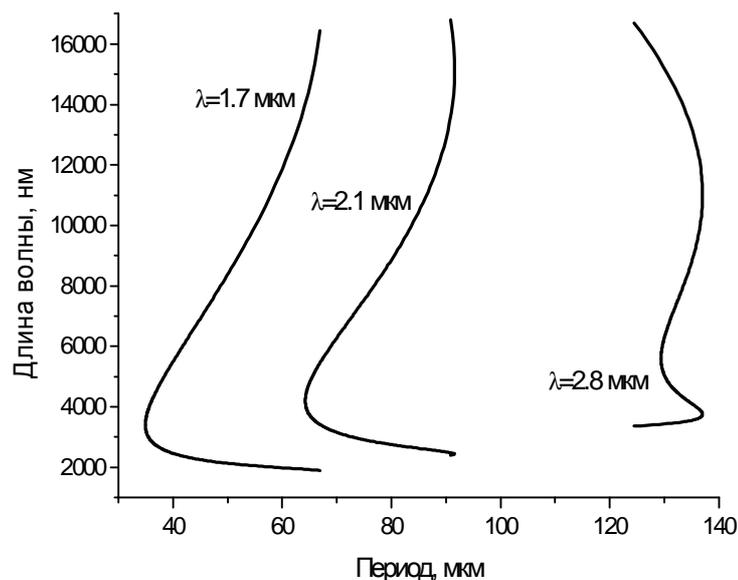


Рис. 3. Зависимость длины волны генерируемого излучения от периода доменов GaAs при различных длинах волн накачки

Область его прозрачности составляет 0,9 - 17 мкм, нелинейно-оптический коэффициент $d_{14} = 94$ пм/В, что превышает соответствующий коэффициент $d_{14} = 75$ пм/В для ZnGeP_2 - наиболее эффективного двулучепреломляющего кристалла среднего ИК диапазона. Большая теплопроводность в сочетании с высокими механическими свойствами делают GaAs привлекательным для преобразования частоты мощного лазерного излучения.

На рисунке 3 представлены зависимости длин волн сигнальной и холостой волн от периода структуры для параметрических генераторов с накачкой 1,7; 2,1; 2,8 мкм. Нами определены условия реализации квазисинхронного взаимодействия волн в кристаллах GaAs, проведены расчеты необходимых периодов модуляции нелинейной восприимчивости (период доменов). Так при накачке излучением Nd:YAG лазера при использовании квазисинхронизма первого порядка период должен изменяться от 15 до 21 мкм. Для случая параметрической генерации рассчитаны фотонные эффективности преобразования излучения накачки в область 3-12 мкм, они составляют десятки процентов, оценен порог генерации, при использовании импульсов накачки наносекундной длительности он составляет единицы мкДж.

Спектральные ширины синхронизма для кристалла длиной 1 см составляют 2-3 см⁻¹, а температурные ширины синхронизма $\approx 2,5$ К. Коэффициенты дифференциального поглощения контролируемого газа, например метана и мешающих газов, так же как и коэффициент континуального поглощения паров воды, находились с использованием банков данных параметров спектральных линий поглощения, например HITRAN-2004.

Литература

1. Козинцев В.И., Орлов В.М., Белов М.Л., Городничев В.А., Стрелков Б.В. Оптико-электронные системы экологического мониторинга природной среды М.: МГТУ им. Н.Э. Баумана 2002. 527 С.
2. Межерис Р. Лазерное дистанционное зондирование М.: Мир. 1987. 559 С.
3. Kulp T.J., Bisson S.E., Bambha R.P. et. al. The application of quasi-phase-matched parametric light sources to practical infrared chemical sensing systems. Appl. Phys. B 75, 2002, P. 317-327.
4. Чиркин А.С., Волков В.В., Лаптев Г.Д., Морозов Е.Ю. Последовательные трехчастотные волновые взаимодействия в нелинейной оптике периодически - неоднородных сред М.: Квантовая электроника № 10 2000. 958 С.

PERIODICALLY POLED NONLINEAR CRYSTALS FOR GAS REMOTE SENSING

E.A.Anfimova, P.P. Geiko, S.M.Shandarov

Periodically poled nonlinear crystal (PPNC crystals) with using quasi-phase-matching allow the generation of spectroscopically useful visible and infrared radiation in an efficient and broadly tunable format. An important peculiarity of PPNC crystals is a removing of any restrictions on type of polarizations of interacting wave i.e it is possible to realize all types of interaction, in particular, six types for single axis crystals: oo-o, oo-e, oe-e, eo-e, ee-o, ee-e, and six types for biaxial crystals: ss-s, sf-s, sf-f, ss-f, ff-f, ff-s. Besides, it is possible to realize a quasi-phase-matching in any direction relatively to crystal optical axes, that allows to reach the maximization efficient nonlinearity and if required adjust the domain period to optimal value. The result of calculations on realization of quasi-phase-matching wave interaction in GaAs, LiNbO₃, KnbO₃, CsTiOAsO₄ and LiTaO₃ crystals are presented. It was found the values of the modulation nonlinear susceptibility period. The possibilities of use the PPNC crystals in systems for remote sensing of atmosphere were analyzed.