

АНАЛИЗ ГАЗОВЫХ ЗАГРЯЗНЕНИЙ АТМОСФЕРЫ С ПОМОЩЬЮ ФЕМТОСЕКУНДНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ ИК-ДИАПАЗОНА

Коцубинская Е.П., Гейко П.П., Тихомиров А.А.

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

Исследованы возможности использования для преобразования частоты излучения фемтосекундных импульсов смешанных четырехкомпонентных кристаллов для целей дистанционного газоанализа атмосферы. Основное внимание уделено получению перестраиваемого по частоте излучения в среднем ИК диапазонах путем параметрической генерации с накачкой излучением Ti:Sapphire, Cr:Forsterite лазеров. Рассчитаны условия фазового и группового синхронизмов и возможности их одновременного выполнения, спектральные и угловые ширины синхронизма, оценена потенциальная эффективность преобразователей частоты. Анализ условий синхронизма выполнен для всех возможных типов взаимодействий, как в главных плоскостях, так и в произвольном направлении. Установлено, что данные кристаллы являются подходящими как для создания фемтосекундных параметрических генераторов света, излучающих в ближнем и среднем ИК диапазонах.

Проблема мониторинга окружающей среды, в частности загрязнения атмосферы регулярными и аварийными промышленными выбросами с каждым годом становится все более актуальной. Для аппаратной реализации средств дистанционного мониторинга атмосферы требуются преобразователи частоты излучения лазеров, являющихся составной частью лидарных комплексов. Использование лазеров излучающих импульсы фемтосекундного диапазона длительностей, спектральная ширина которых, может составлять доли микрометров, открывает новые перспективы в дистанционном анализе газо-аэрозольного состава атмосферы [1]. Применение для этих целей и $\text{Ti}^{3+}:\text{Al}_2\text{O}_3$ (0,75-1,0 мкм) и $\text{Cr}^{3+}:\text{MgSiO}_4$ (1,2-1,32 мкм) лазеров, перспективно при использовании преобразователей их частоты в другие участки спектра. К настоящему времени по заданию МЧС России уже разработан лидар на основе $\text{Ti}^{3+}:\text{Al}_2\text{O}_3$ лазера с преобразователями частоты в видимый и УФ диапазоны спектра [2].

Задача выбора кристалла и типа преобразования частоты, позволяющих получать фемтосекундные импульсы с заданной шириной линии излучения в среднем ИК диапазоне, где расположены спектры поглощения большинства загрязняющих атмосферу газов, остается нерешенной. Поиск подходящих материалов для преобразования частоты следует вести среди двуосных нелинейных кристаллов, поскольку в них возможности отыскать направления, в которых одновременно реализуются условия фазового и группового синхронизмов гораздо шире, чем в одноосных кристаллах.

Целью данной работы является исследование возможностей использования сверхширокополосных преобразователей частоты фемтосекундных лазеров с одновременным выполнением условий фазового и группового синхронизма для создания ИК газоанализаторов. Современные лидары дифференциального поглощения, как правило, позволяют контролировать лишь несколько газовых компонент атмосферы. При этом одновременный спектрально-временной анализ многочастотного отклика атмосферы в принципе невозможен из-за необходимости перестройки частоты излучения. Этого недостатка лишены ИК Фурье – газоанализаторы, однако в их составе используются лишь маломощные тепловые источники излучения. Они позволяют проводить лишь интегральные измерения с длиной измерительных трасс до нескольких сот метров с использованием специальных отражателей. В смешанных четырехкомпонентных кристаллах [3] имеется возможность получения необходимых спектральных зависимостей синхронизма и других параметров преобразователей частоты варьированием отношения смещения x . Для произвольных трехчастотных взаимодействий надо рассматривать три типа синхронизма: ss-f; sf-f; fs-f, в вырожденном случае (генерация второй гармоники) остаются два типа (ss-f и sf-f). На рис.1. для плоскости XZ приведены рассчитанные кривые фазового синхронизма для невырожденных трехчастотных взаимодействий, со-

стоящие из двух ветвей. Как видно, существует возможность преобразования частоты (генерация суммарных и разностных частот, параметрическое усиление) во всей области прозрачности кристаллов LiGaS_2 и LiGaSe_2 , однако эффективный нелинейный коэффициент d_{ef} растет с ростом угла θ .

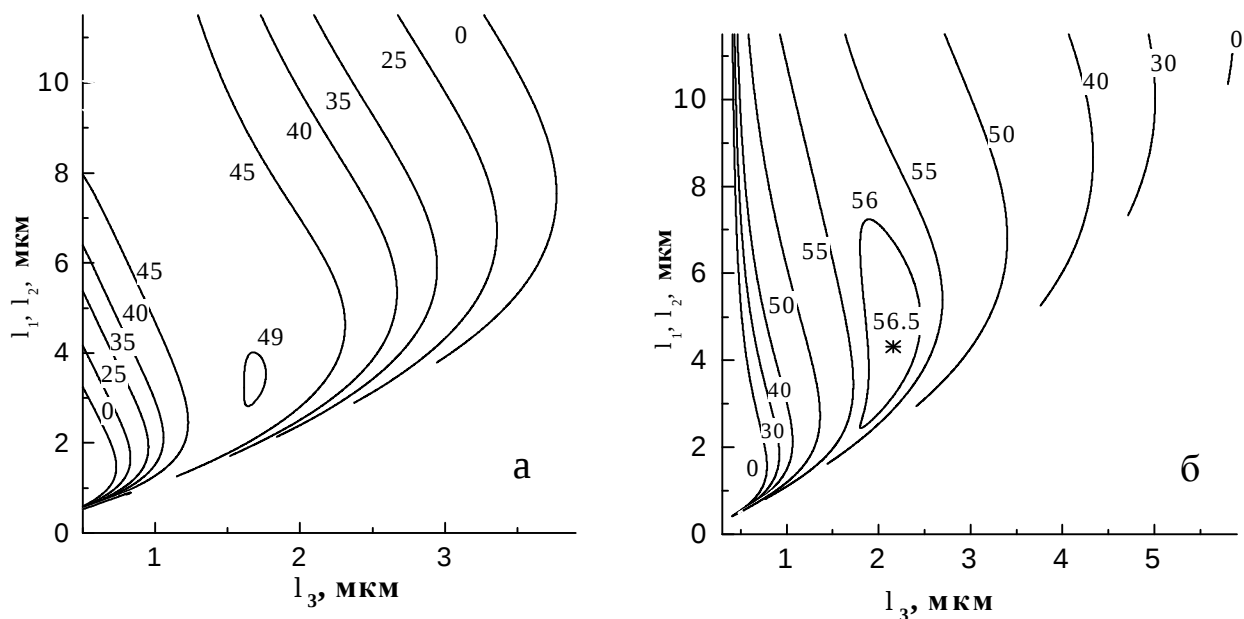


Рис. 1. Диаграммы фазового синхронизма трехчастотных взаимодействий ss-f типа в плоскости XZ в нелинейном кристалле $\text{LiGa}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ $x=0.0$ (а) и $x=1.0$ (б).

Выражения для эффективного нелинейного коэффициента для исходных и смешанных кристаллов совпадают и имеют вид $d_{\text{ef}} = -(d_{24}\sin^2\phi + d_{15}\cos^2\theta)$ в плоскости XY, $d_{\text{ef}} = -d_{24}\sin\theta$ в плоскости YZ, $d_{\text{ef}}(\text{ss-f}) = -d_{31}\sin\theta$ и $d_{\text{ef}}(\text{sf-f}, \text{fs-f}) = d_{15}\sin\theta$ в плоскости XZ, соответственно. С увеличением угла синхронизма также возрастает спектральная ширина синхронизма, что крайне важно при преобразовании частоты сверхкоротких импульсов.

В смешанных кристаллах $\text{AgGaGe}_n\text{S}_{2(2n+1)}$ [4] имеется возможность получения необходимых спектральных зависимостей синхронизма и других параметров преобразователей частоты варьированием отношения смещения x . Групповая длина взаимодействия или групповая расстройка однозначно связана со спектральной шириной нелинейного преобразования, которая в режиме группового синхронизма максимальна. Особый интерес представляют сверхширокополосные фемтосекундные параметрические генераторы света (ПГС) с накачкой $\text{Ti}^{3+}:\text{Al}_2\text{O}_3$ и $\text{Cr}^{3+}:\text{MgSiO}_4$ лазерами, использующие свойства групповых синхронизмов. Рис.2. иллюстрирует возможности перестройки частоты параметрического генератора света в нелинейных кристаллах $\text{AgGaGe}_n\text{S}_{2(2n+1)}$ вырезанных в одной из главных плоскостей. Видно, что для получения широкополосного когерентного излучения со спектром, полностью перекрывающим основные окна прозрачности атмосферы, можно использовать параметрический генератор на любом из упомянутых кристаллов.

Групповая длина взаимодействия или групповая расстройка однозначно связана со спектральной шириной нелинейного преобразования, которая в режиме группового синхронизма максимальна. Зависимость групповой длины от длины волны накачки для двусосных кристаллов представляется поверхностью, а не кривой, как для одноосных кристаллов [5], кроме того, в двусосных кристаллах точный групповой синхронизм реализуется в некотором диапазоне длин волн в отличие от одноосных, в которых он достижим для фиксированной длины волны. В наших расчетах групповые скорости вычислялись вдоль направления фазового синхронизма. Поскольку оптическая индикатриса двусосных кристаллов не является фигурой вращения, то условие фазового синхронизма представляет функцию, зависящую как от полярного, так и от азимутального углов.

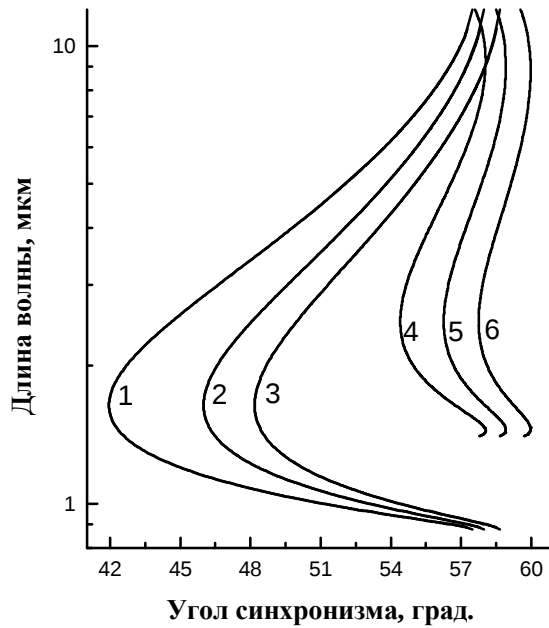


Рис.2. Кривые фазового синхронизма в плоскости XZ для ПГС с накачкой $\text{Ti}^{3+}:\text{Al}_2\text{O}_3$ и $\text{Cr}^{3+}:\text{MgSiO}_4$ лазерами в $\text{AgGaGe}_2\text{S}_6$ (1,4), $\text{AgGaGe}_3\text{S}_8$ (2,5), $\text{AgGaGe}_4\text{S}_{10}$ (3,6).

На рис. 3. представлены результаты расчетов дисперсии групповых синхронизмов в кристаллах $\text{AgGaGe}_3\text{S}_8$ и $\text{LiIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ при $x=0.0$ (б).

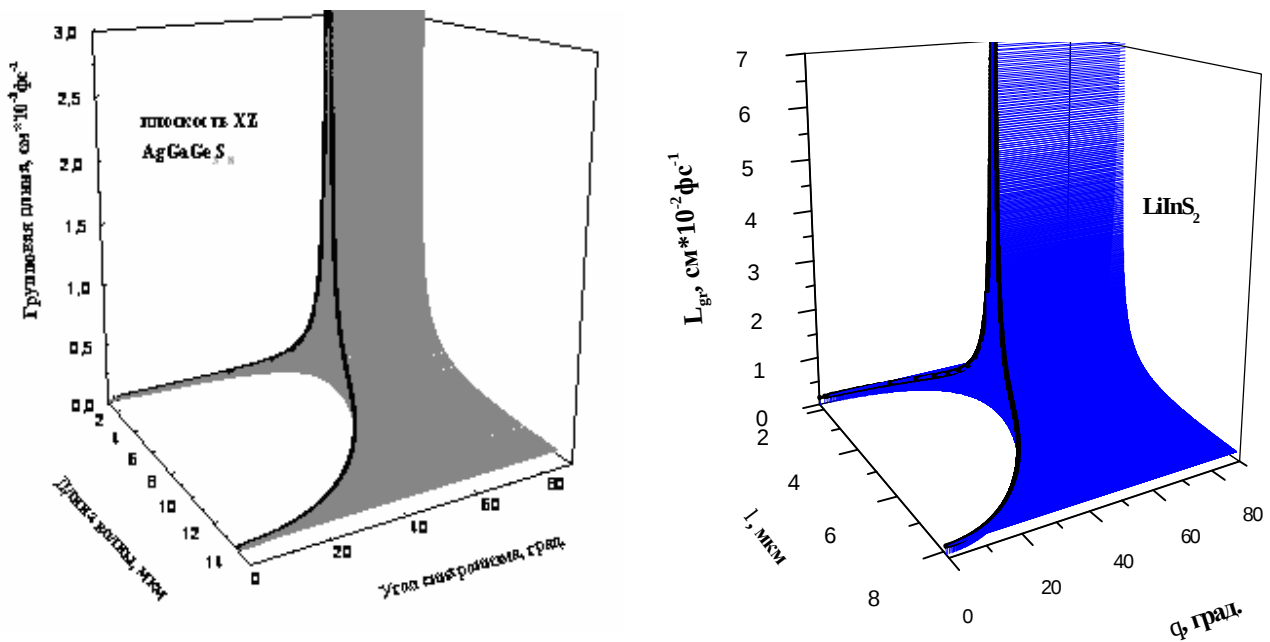


Рис. 3. Дисперсия групповых синхронизмов для генерации второй гармоники в $\text{AgGaGe}_3\text{S}_8$ (а) и $\text{LiIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ при $x=0.0$ (б)

Для эффективного преобразования частоты сверхкоротких импульсов одно из основных требований, предъявляемых к нелинейным кристаллам, является наличие некритичного спектрального синхронизма. Более мягкое требование – превышение спектральной ширины синхронизма для конкретного типа взаимодействия над шириной спектра излучения накачки. Это требование аналогично условию группового синхронизма для первого типа взаимодействия и условию режима преобразования с компрессией длительности импульса для второго типа взаимодействия [6]. Групповая длина волны определяется как $L_{gr} = t_p / |\Delta u_{ij}^{-1}|$, где

$i, j = 1, 2, 3$, $\Delta u_{ij}^{-1} = u_i^{-1} - u_j^{-1}$ - расстройка групповых скоростей, t_p - длительность импульса накачки. Ее увеличение пропорционально уменьшению групповой расстройки участвующих во взаимодействии импульсов. Групповые скорости u_i^{-1} и u_j^{-1} вычислялись с использованием дисперсионных уравнений Сельмейера [4]. На рис. 4 приведены результаты расчетов дисперсии расстроек групповых скоростей пар импульсов Δ_{ij} для параметрической генерации с накачкой излучением с $l_3 = 820$ нм для смешанных четырехкомпонентных кристаллов в двух главных плоскостях при различных отношениях смешения. Из рисунка 5 следует, что минимальная расстройка групповых скоростей Δ_{32} реализуется между импульсами накачки и холостой волны, однако во всей области прозрачности кристалла расстройки групповых скоростей не превышает 1300 фс/мм, что позволяет использовать кристаллы длиной до 1 см при длительности импульса накачки порядка 100 фс. Интересно отметить, что на рисунке 4 а групповая расстройка Δ_{31} между импульсами накачки и сигнальной волнами минимальна на длине волны 3,9 мкм.

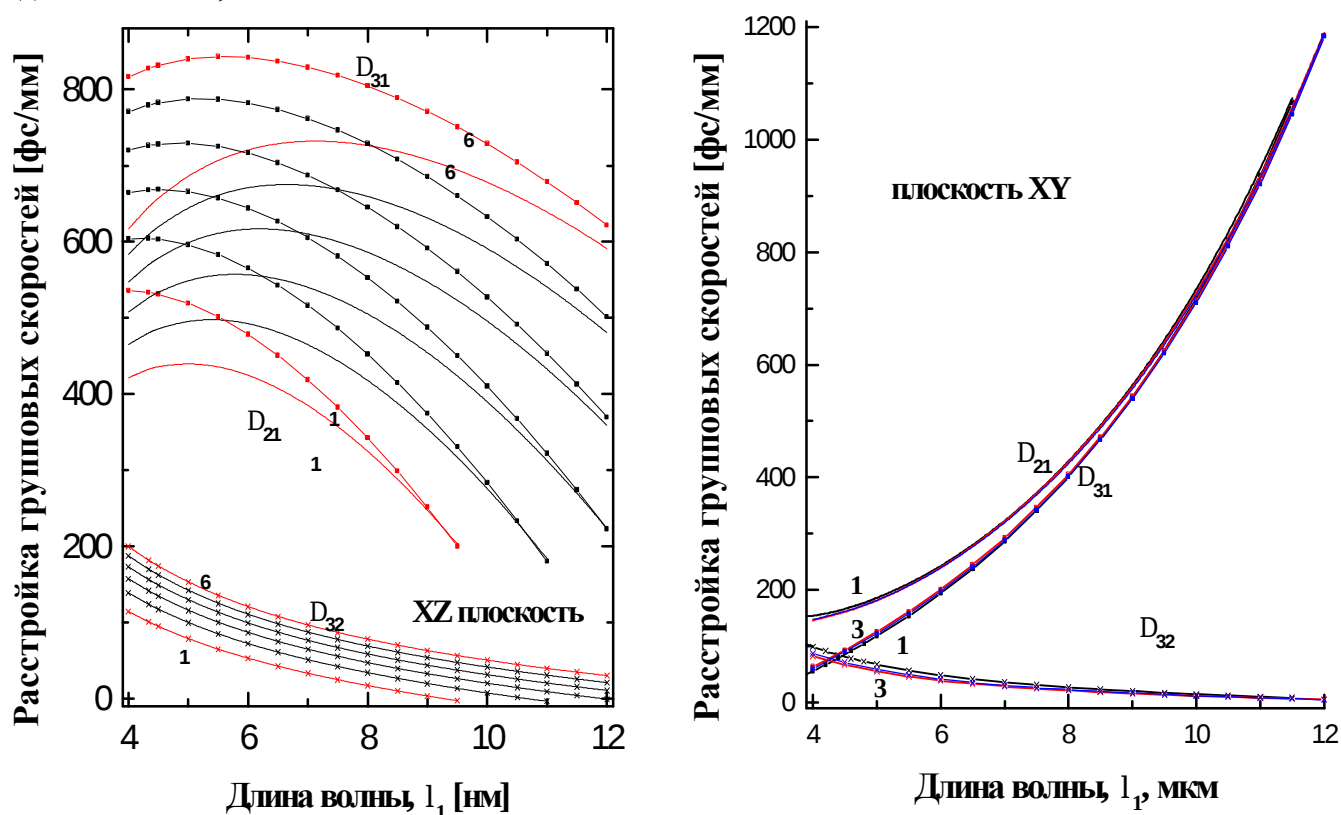


Рис. 4. Расстройка групповых скоростей в главных плоскостях в нелинейных кристаллах: XZ $\text{LiGa}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ $x=0.0$ (1), $x=1.0$ (6) (а) и XY $\text{AgGaGe}_2\text{S}_6$ (1), $\text{AgGaGe}_3\text{S}_8$ (2), $\text{AgGaGe}_4\text{S}_{10}$ (3) (б)

Одним из возможных режимов преобразования частоты фемтосекундных импульсов – режим, при котором разности групповых скоростей для двух пар взаимодействующих волн имеют противоположные знаки. При подходящем выборе предварительной временной задержки между импульсами на входе кристалла, интенсивностей импульсов и длины кристалла, можно достичь сжатия длительности импульса.

Оценить ширину спектра параметрически генерируемого ИК излучения можно используя выражение для коэффициента параметрического усиления, которое получено в приближении заданного поля [7]

$$K = \Gamma^2 Z^2 \sinh^2 \left(\Gamma^2 Z^2 - \frac{\Delta k^2 Z^2}{4} \right)^{1/2} \left(\Gamma^2 Z^2 - \frac{\Delta k^2 Z^2}{4} \right)^{-1},$$

здесь $\Gamma = s_1 s_2 |A_p|^2$; Δk - волновая расстройка; Z - длина нелинейной среды; $s_{1,2}$ - коэффициенты нелинейной связи; A_p - амплитуда излучения накачки.

Для того чтобы провести оценку дальности зондирования фемтосекундным лидаром - газоанализатором необходимо в уравнение локации [8] подставить характеристики приемного телескопа и фотоприемного устройства, минимальное значение детектируемой энергии, с заданным отношением сигнал/шум, параметры детектируемых молекул и атмосферного аэрозоля. Коэффициенты дифференциального поглощения контролируемого и мешающих газов, так же как и коэффициент континуального поглощения паров воды, находится с использованием банков данных параметров спектральных линий поглощения, например HITRAN-2004 [9]. Пороговая энергия лазера для лидара - газоанализатора находится с помощью следующего соотношения:

$$E_L^{\min} \approx \frac{2R^2 (S/N)_{\min}}{b(l_0, R) \chi(R) U^*(l_0)} \exp \left[2 \int_0^R k(l_0, r) dr \right],$$

где $U^*(l_0) = A_0 \chi(l_0) c D^* / (A_d B)^{1/2}$ для твердотельного фотодетектора; $k(l_0, R)$ - коэффициент ослабления для исследуемых молекул; $b(l_0, R)$ - коэффициент объемного обратного рассеяния; $\chi(R)$ - вероятность того, что излучение элемента площади объекта достигнет детектора; A_0 - площадь зеркала объектива; $\chi(l_0)$ - спектральный коэффициент пропускания, который тоже, как и $\chi(R)$, примерно равен единице; D^* - обнаружительная способность фотодетектора; A_d - площадь приемной поверхности фотодетектора; $B = 1/(2t_d)$ - ширина полосы фотодетектирования; R - дальность зондирования.

В оценках для окна прозрачности атмосферы 3-5 мкм взята дальность зондирования до 1 км, обнаружительная способность охлаждаемых матричных детекторов 10^{11} см Гц^{1/2}/Вт, и минимальное отношение сигнал/шум 1,5. При пространственном разрешении 100 м, требуемая минимальная энергия импульса при однократном измерении составляет менее 0,1 мДж. Но, здесь речь идет об энергии, приходящейся на один спектральный канал приемной системы, а полная энергия импульса должна быть выше в соответствующее число раз, равное числу измерительных спектральных каналов для того, чтобы сохранить заданное отношения сигнал/шум.

При типичной спектральной ширине излучения параметрического генератора света, равной 200-300 см⁻¹, и спектральной ширине канала 10 см⁻¹ число спектральных каналов должно составлять 20-30. Может также потребоваться накопление сигнала при усреднении достаточно большого числа импульсов при использовании ПГС с ограниченной энергией импульса излучения. При частоте повторения импульсов ПГС 1 кГц и заданном пространственном разрешении 100 м число импульсов усреднения может составлять 10^3 - 10^4 без существенной потери точности измерения параметров газоаэрозольного облака, движущегося со скоростью несколько метров в секунду. Это означает, что можно достигнуть повышения отношения сигнал/шум в 50-100 раз, что компенсирует распределение энергии импульса по 20-30 каналам.

Возможно также определение интегрального содержания загрязняющих примесей с борта летательного аппарата с отражением от подстилающей поверхности за один импульс излучения, поскольку при получении сигнала рассеяния от топографического отражателя, расположенного на расстоянии до 1000 м, сигнал рассеяния возрастает примерно в 10^3 - 10^4 раз.

Литература

1. Гордиенко В.М., Холодных А.И., Прялкин В.И. // Квантовая электроника 2000. Т. 30. № 9. С.839-842.
2. Андрущак Е.А., Иваненко О.И., Орлов Д.А. Т // Биомедицинская электроника. 2001. №1. С.58-67.
3. V. Badikov, G. Shevyrdyaeva, V. Chizhikov, et. al. // Appl. Phys. Lett. 2005, V. 87, P. 2431-2433.
4. Кабанов М.В., Андреев Ю.М., Бадиков В.В., Гейко П.П. // Известие вузов. сер. Физика. – 2003. – Т.46. - №8, - С.85 – 94.
5. Лукашев А.А., Магницкий С.А., Прялкин В.И. // Известия РАН. Сер. Физическая. – 1995. – Т.59. - №12. – С.123 – 129.
6. Гречин С.С., Прялкин В.И. // Квантовая электроника. – 2003. – Т.33. - №8. – С.737 – 741.
7. А. Пискарскаса Параметрические генераторы света и пикосекундная спектроскопия 1983, Вильнюс, Москлас.
8. Межерис Р. Лазерное дистанционное зондирование, 1987, М., Мир, с.559.
9. Rothman L.S., Jacquemart D., Barbe A. et. al. // Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer 2005. V. 96. P. 139-204.

GAS ANALYSIS OF ATMOSPHERIC POLLUTANTS WITH FEMTOSECOND RADIATION OF MIDDLE IR

Kotsubinskaya E.P., Geiko P.P., Tikhomirov A.A.

Femtosecond Lidars can be applied to multicomponent remote gas analysis of the atmosphere. The middle IR or so-called "fingerprint" region of atmospheric gases is most attractive for this purpose, but unfortunately, existing femtosecond lasers: Ti:sapphire, and Cr:forsterite are lasing at narrow spectral regions of near IR 0.7-1.1 and 1.25-1.32 mm, relatively. The mixed quaternary crystals $\text{LiGa}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$, $\text{AgGaGe}_2\text{S}_6$, $\text{AgGaGe}_3\text{S}_8$, $\text{AgGaGe}_4\text{S}_{10}$ и $\text{LiIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ were investigated as potential frequency converters of femtosecond laser pulses. The possibility to control the dispersion by the composition (x) to enable efficient frequency conversion of short pulses by reduction group velocity mismatch and increasing the interaction length. Main attention paid to generation of frequency tunable near and middle IR emission by optical parametric generation under the pumping by femtosecond (Ti:Sapphire, Cr:Forsterite) lasers. The investigation includes estimation of phase- and group-velocity matching conditions, phase-matching spectral and angular widths, and potential efficiencies. Analysis of phase matching is developed for all possible types of interactions both in main plains and in the crystals volume.