

КРАТКИЕ СООБЩЕНИЯ

ХАРАКТЕР ИЗМЕНЕНИЯ КОНТУРА ФОЙГТА ЛИНИИ СЛАБОГО ПОГЛОЩЕНИЯ В ЛАЗЕРНОМ СПЕКТРОМЕТРЕ С АНАЛИТИЧЕСКИМ РЕЗОНАТОРОМ

О. М. Вохник*, П. В. Короленко

УДК 543.422

Московский государственный университет имени М. В. Ломоносова, Москва, Россия;
e-mail: vokhnik@rambler.ru

(Поступила 16 марта 2023)

Исследовано изменение контура свертки Фойгта в спектрометре для измерения слабого поглощения, состоящего из перестраиваемого по частоте лазера и внешнего аналитического резонатора. Установлено, каким образом характеристики свертки и параметры резонатора влияют на воспроизведение формы и ширины линии поглощения. Обсуждено влияние насыщения поглощения на точность измерения коэффициента слабого поглощения.

Ключевые слова: контур Фойгта, оптический резонатор, спектрометр, лазер с перестраиваемой частотой, насыщение поглощения, качество спектральных измерений.

The variation of the Voigt convolution contour in a spectrometer for measuring of weak absorption consisting of a frequency-tunable laser and an external analytical resonator is studied. It is established how the characteristics of the convolution and the parameters of the resonator affect the reproduction of the shape and width of the absorption line. The effect of absorption saturation on the accuracy of measuring the weak absorption coefficient is discussed.

Keywords: Voigt contour, optical resonator, spectrometer, frequency-tunable laser, absorption saturation, quality of spectral measurements.

Высококчувствительная абсорбционная спектроскопия, позволяющая регистрировать присутствие в различных средах веществ в малой концентрации, востребована во многих областях современной жизни: медицине, экологии, системах безопасности и в научных приложениях [1—3]. Одной из реализаций схем лазерного спектрометра для измерения слабого поглощения является совместное действие перестраиваемого диодного или квантово-каскадного лазера и внешнего аналитического резонатора, в котором размещена исследуемая среда. Детектирование временного сигнала после прохождения резонатора позволяет записывать спектр поглощения без традиционного спектрального прибора. Такая схема, получившая название ICOS (integrated cavity output spectroscopy), и ее модификации исследовались во многих работах (см., например, [4—7]), тем не менее ряд особенностей регистрации оптических спектров требуют уточнения. В частности, в процессе регистрации спектра под воздействием различных физических факторов может изменяться форма регистрируемой линии поглощения. Изменение включает в себя как уширение линии, так и искажение контура спектральной линии. Ранее [8] было показано, что для гауссова форм-фактора линии проявляются оба фактора, в то время как лоренцев контур сохраняет свою форму. При этом его уширение значительно, чем уширение гауссовой линии при других равных условиях. Для случая, когда форм-фактор линии поглощения представляет собой свертку Фойгта гауссова и лоренцева контуров, изменение формы линии при проходе излучения через аналитический резонатор не рассматривалось, хотя подобная форма характерна для многих сред.

PATTERNS OF CHANGE IN VOIGT CONTOURS OF THE WEAK ABSORPTION LINE IN A LASER SPECTROMETER WITH AN ANALYTICAL CAVITY

О. М. Vokhnik*, P. V. Korolenko (Lomonosov Moscow State University, Moscow, Russia; e-mail: vokhnik@rambler.ru)

Цель данной работы — выявление на основе численного моделирования закономерностей изменения контуров Фойгта после прохождения зондирующим излучением аналитического резонатора с размещенной внутри поглощающей средой. Основное внимание уделено случаю, когда ширина огибающего гауссова контура сопоставима с шириной лоренцевых контуров, входящих в свертку. Такие контуры мало рассмотрены в литературе, хотя подобная форма спектральной линии свойственна часто применяемым на практике средам.

Использовалась схема расчета характеристик излучения, прошедшего аналитический резонатор, основанная на сложении на его выходе амплитуд парциальных пучков, многократно отраженных от зеркал [9]. Анализ проведен в самом общем виде — в приближении плоских волн с использованием безразмерных величин, что дает возможность выявления наиболее общих факторов, определяющих результат измерений. Сложение амплитуд парциальных волн в соответствии с формулой геометрической прогрессии дает для амплитуды поля S на выходе из резонатора выражение:

$$S(k) = \frac{AT_1T_2e^{i[\delta(k)d+\Phi]}p(k)}{1 - R_1R_2e^{2i[\delta(k)d+\Phi]}p(k)^2}, \quad (1)$$

где k — дискретное время с интервалом дискретизации d ; A — амплитуда входной волны; Φ — ее фаза; T_1, T_2 — коэффициенты пропускания зеркал резонатора по амплитуде; R_1, R_2 — их амплитудные коэффициенты отражения (потери в зеркалах пренебрегаем; $T_{1,2} = \sqrt{1 - R_{1,2}^2}$; $\delta = 2\pi\nu$ — скорость изменения фазы за один проход резонатора длиной l ; $\nu = df/dk$ — скорость перестройки частоты f лазера. Скорость приращения фазы полагается пропорциональной времени (как правило, частота изменяется по линейному закону), что позволяет записать $\delta = xk$, где x — скорость изменения частоты. Поглощение среды задается в (1) коэффициентом передачи $p(k) = \exp[-p'(k)\alpha - i\varphi_n(k)]$, который зависит от форм-фактора $p'(k)$ линии поглощения, коэффициента поглощения α в центре линии и дополнительного фазового набега $\varphi_n(k)$. Фазовый набег $\varphi_n(k)$ обусловлен изменением показателя преломления n в области линии поглощения: при небольших коэффициентах поглощения пренебрежимо мал и в дальнейшем не учитывается. В расчетах использованы четыре различных форм-фактора $p'(k)$ линии поглощения. Они представляют собой контуры Фойгта, различающиеся соотношением $\Delta L/\Delta G$ между шириной ΔG огибающего гауссова контура $p_G'(k) = \exp\left(-\frac{(k - k_0)^2}{\Delta^2}\right)$ и шириной ΔL входящих в

свертку лоренцевых составляющих $p_L'(k) = \frac{(\Delta\sqrt{\ln 2})}{(k - k_0)^2 + (\Delta\sqrt{\ln 2})^2}$. Здесь k_0 — момент прохождения

частоты лазера через центр линии, Δ характеризует ширину.

Форм-факторы $p_V'(k)$ профилей Фойгта рассчитаны в соответствии с выражением [10]:

$$p_V'(k) = \int_{\xi_1}^{\xi_2} p_L'(\xi, k) p_G'(\xi, k_0) d\xi. \quad (2)$$

Ширина ΔG гауссовой огибающей полагалась фиксированной, отношение ширины ΔL лоренцевых контуров к ΔG принимало значения $\Delta L/\Delta G = 2.0$ (лоренцев контур в 2 раза шире гауссовой огибающей), 1.0 (ширина лоренцева и гауссова контуров одинакова), 0.5 и 0.2 (ширина лоренцева контура в 2 и 5 раз меньше ширины гауссова).

На рис. 1 приведены форм-факторы $p_V'(k)$ профилей Фойгта. Ширина ΔV и форма сверток Фойгта существенно зависят от отношения $\Delta L/\Delta G$. Когда ширина лоренцева контура в свертке значительно меньше ширины гауссовой огибающей (кривая 4), форма сверток и ее ширина очень близки к гауссовой огибающей. По мере увеличения отношения $\Delta L/\Delta G$ ширина сверток ΔV возрастает, а ее контур значительно отличается от гауссова (кривые 2 и 3) и при $\Delta L/\Delta G = 2.0$ форма сверток практически лоренцева, а ее ширина ΔV в ~2.5 раза больше ширины гауссовой огибающей. Выражение [11], приближенно описывающее соотношение между ширинами профилей Фойгта ΔV , гауссовым ΔG и лоренцевым ΔL :

$$\Delta V \approx 0.5346\Delta L + \sqrt{(\Delta G)^2 + 0.2166(\Delta L)^2} \quad (3)$$

для рассчитанных профилей выполняется с точностью 0.1 %.

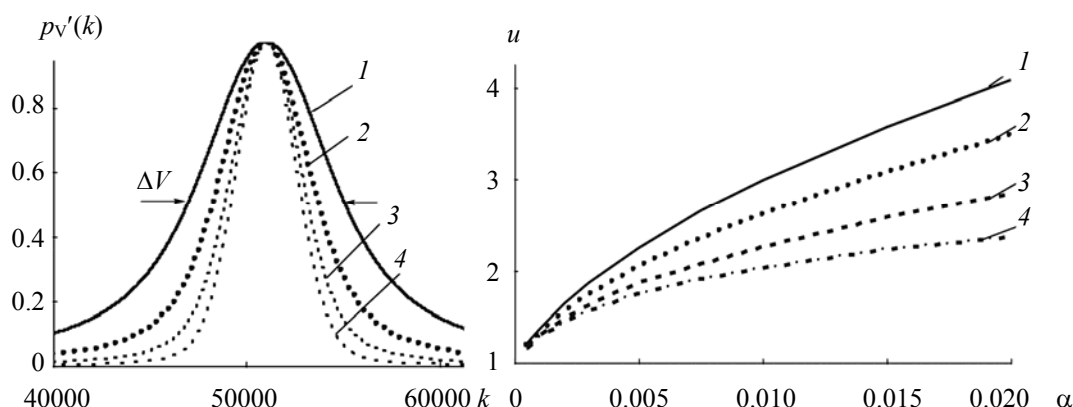


Рис. 1. Профили Фойгта, использованные в расчете: $\Delta L/\Delta G = 2.0, 1.0, 0.5$ и 0.2 ; амплитуды контуров приняты равными единице

Рис. 2. Увеличение ширины линии после прохода аналитического резонатора: 1 — практически лоренцева форма контура Фойгта ($\Delta L/\Delta G = 2.0$); 2, 3 — формы, промежуточные между лоренцевым и гауссовым контурами ($\Delta L/\Delta G = 1.0, \Delta L/\Delta G = 0.5$); 4 — почти гауссова форма профиля Фойгта ($\Delta L/\Delta G = 0.2$)

В расчетах амплитуда, ширина и форма линии излучения, прошедшего аналитический резонатор, определялись в зависимости от коэффициента поглощения α , который варьировался от 0.0005 до 0.02. Коэффициенты отражения R_1 и R_2 зеркал резонатора, определяющие добротность, полагались одинаковыми $R_1 = R_2 = R$ и равными 0.98, 0.99, 0.995 и 0.999, $T_1 = T_2 = \sqrt{1 - R^2}$. Входная амплитуда A зондирующего пучка равна единице.

При сканировании частоты задающего лазера на выходе резонатора формируется последовательность резонансных пиков, соответствующая его продольным модам. Вблизи центра линии поглощения амплитуды резонансных пиков $|S(k)|$ уменьшаются, трассировка их максимумов дает кривую, по которой можно судить о форме линии и коэффициенте поглощения. Разность Y между значениями $|S(k)|$ вдали от линии поглощения и в центре линии по существу является амплитудой измеряемого сигнала и характеризует чувствительность спектрометра. Ширина Δ' линии определялась на полувысоте кривой, получаемой в результате трассировки максимумов резонансных пиков. Уширение линии u оценивалось как отношение Δ' к ширине ΔV исходного форм-фактора $p_V'(k)$: $u = \Delta'/\Delta V$.

Как показывают расчеты, амплитудный контур линии поглощения, определяемый на выходе резонатора, изменяется: его ширина увеличивается, а форма становится отличной от исходной. Установлено, что уширение линии определяется такими факторами, как добротность резонатора, коэффициент поглощения α и форма контура свертки $p_V'(k)$, и оно тем больше, чем больше α и выше добротность резонатора. Влияние формы свертки на уширение линии представлено зависимостями $u(\alpha)$ при максимальной добротности резонатора ($R = 0.999$) (рис. 2). Как видно, наибольшее уширение у спектра поглощения, форм-фактор линии которого практически совпадает с лоренцевым (кривая 1), наименьшее — с гауссовым (кривая 4). В промежуточных случаях (кривые 2 и 3) уширение тем больше, чем ближе форма линии к лоренцевой. Схожие зависимости $u(\alpha)$ и после прохождения резонаторов с более низкой добротностью, однако значения $u(\alpha)$ в этом случае заметно меньше. Например, при $R = 0.999$ максимальная рассчитанная ширина линии больше ширины исходно заданной линии в 4.1 раза (кривая 1), в то время как при $R = 0.995$ для той же свертки имеет место двукратное увеличение, а при $R = 0.98$ ширина увеличивается в 1.3 раза.

После прохождения аналитического резонатора контур линии не только уширяется, но и искажается: форма рассчитанного контура заметно отличается от зависимости $p_V'(k)$. Искажение формы, как и уширение линии, проявляется тем сильнее, чем выше добротность резонатора и коэффициент поглощения α .

На степень искажения влияет и форм-фактор $p_V'(k)$: искажение тем больше, чем ближе форм-фактор $p_V'(k)$ к гауссову. На рис. 3, а показано отличие рассчитанного контура свертки после про-

хождения аналитического резонатора (кривая 2) от форм-фактора этой линии на входе в резонатор (кривая 1). Расчет выполнен для свертки Фойгта с соотношением $\Delta L/\Delta G = 0.2$, коэффициентов отражения $R = 0.999$ и поглощения $\alpha = 0.02$. Для удобства сравнения контуров линий исходный форм-фактор дан такой же ширины, как и прошедший. Видно, что после прохождения резонатора крылья контуров различаются, а центральная часть прошедшего контура становится шире исходного. Для форм-факторов свертки, близких к лоренцевым ($\Delta L/\Delta G \geq 2$), искажение формы линии отсутствует независимо от добротности резонатора и коэффициента поглощения.

Интересную особенность после прохождения аналитического резонатора имеют формы свертки, для которых соотношение $\Delta L/\Delta G$ очень мало (≤ 0.05) и форм-фактор $p\nu'(k)$ практически гауссов. При сравнении их с результатом прохода через такой же резонатор обычного гауссова контура (рис. 3, б) видно, что свертки Фойгта имеют небольшое, но хорошо различимое уширение на краях. Объяснить его можно тем, что на крыльях исходной свертки Фойгта всегда присутствуют лоренцевы контуры и именно их сильное уширение после прохода резонатора дает изменение формы по сравнению с гауссовой.

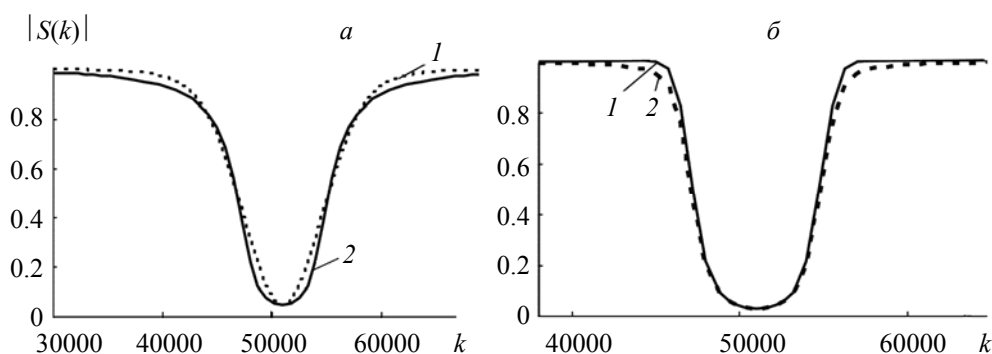


Рис. 3. Форм-факторы линии поглощения до (1) и после прохождения аналитического резонатора (2) (а), а также сравнение гауссова контура (1) и свертки Фойгта для $\Delta L/\Delta G = 0.02$ (2) после прохода резонатора (б)

Таким образом, как следует из расчетов, контуры $p\nu'(k)$ свертки Фойгта, которые близки к лоренцевым, не изменяют своей формы после прохода резонатора, но значительно увеличиваются по ширине. По мере изменения форм-фактора $p\nu'(k)$ и приближения его к гауссову, для которого характерно существенно меньшее уширение и заметное искажение [8], форма линии свертки имеет меньшее уширение и больше искажается.

В измерениях с помощью внешнего резонатора следует учитывать, что большое увеличение внутрирезонаторной мощности по сравнению с входной требует определенного соответствия между добротностью резонатора и измеряемым коэффициентом поглощения α . С одной стороны, для корректного измерения малых α необходимо, чтобы амплитуда сигнала была достаточна для ее достоверного измерения (это требует увеличения добротности резонатора), с другой — рост добротности сопровождается сокращением линейного диапазона изменения амплитуды сигнала, что искажает результаты измерений [8].

Описанные выше закономерности изменения формы регистрируемой спектральной линии установлены в приближении слабого сигнала без учета эффектов насыщения поглощения. Однако в ряде случаев при высокой интенсивности входного сигнала и внутрирезонаторного поля такие эффекты могут оказывать влияние на спектральные характеристики. Проведем качественную оценку этого влияния для лоренцевой линии. Как известно, контур линии однородного уширения при насыщении, оставаясь лоренцевым, увеличивается по ширине в $\sqrt{1 + (I/I_n)}$ раз, где I — интенсивность излучения; I_n — параметр насыщения, зависящий от характеристик исследуемого вещества [10]. При этом действительный коэффициент поглощения среды в резонаторе $\alpha_d = \alpha/(1 + I/I_n)$.

Высокий уровень интенсивности излучения внутри резонатора наблюдается при большой добротности резонатора. Так, при $R = 0.999$ мощность излучения в резонаторе с учетом присутствия двух встречных волн на три порядка выше выходной мощности. Полагая, что при такой мощности $I/I_n = 1$,

можно установить, что при указанных α поправки, обусловленные учетом насыщения поглощения, незначительны ($\leq 10\%$). Это объясняется разнонаправленным действием факторов, связанных с уменьшением коэффициента поглощения и уширением линии.

Исследованы закономерности изменения характеристик излучения после его прохождения через аналитический резонатор спектрометра для измерения слабого поглощения. Форм-фактор линии поглощения представлен в виде свертки Фойгта гауссова и лоренцева контуров сопоставимой ширины. Установлено, что после прохода резонатора ширина регистрируемой линии увеличивается, а ее форма изменяется по сравнению с исходной тем сильнее, чем выше добротность резонатора и коэффициент поглощения исследуемой среды. Показано, что форма свертки Фойгта влияет на характер изменения: чем ближе ее контур к лоренцеву, тем больше ее уширение и меньше искажение формы. Если форма свертки близка к гауссовой огибающей, то уширение уменьшается, а искажение усиливается. Обнаружено, что задаваемый контур свертки Фойгта, практически совпадающий с гауссовым, после его регистрации имеет отличия от гауссова, обусловленные значительным уширением крайних лоренцевых составляющих, входящих в свертку.

- [1] **Е. В. Степанов.** Диодная лазерная спектроскопия и анализ молекул-биомаркеров, Москва, Физматлит (2009)
- [2] **В. Н. Очкин.** УФН, **192**, № 10 (2022) 1145—1178 [**V. N. Ochkin.** Physics Uspekhi, **65** (2022) 1071—1103]
- [3] **T. Zhang, G. Zhang, X. Liu, G. Gao, T. Cai.** Журн. прикл. спектр., **87**, № 4 (2020) 617—622 [**T. Zhang, G. Zhang, X. Liu, G. Gao, T. Cai.** J. Appl. Spectr., **87**, N 4 (2020) 674—679]
- [4] **D. S. Baer, J. B. Paul, M. Gupta, A. O'Keefe.** Appl. Phys. B, **75** (2002) 261—265
- [5] **A. O'Keefe, J. J. Scherer, J. B. Paul.** Chem. Phys. Lett., **307** (1999) 343—349
- [6] **П. В. Короленко, В. В. Лагунов, И. В. Николаев, В. Н. Очкин, С. Н. Цхай, А. Н. Яцкевич.** Квант. электрон., **46**, № 3 (2016) 255—258 [**P. V. Korolenko, V. V. Lagunov, I. V. Nikolaev, V. N. Ochkin, S. N. Tshai, A. N. Yatskevich.** Sov. J. Quantum Electron., **46**, N 3 (2016) 255—258]
- [7] **V. V. Lagunov, I. V. Nikolaev, V. N. Ochkin.** Spectrochim. Acta A: Mol. Biomol. Spectrosc., **246** (2021) 119060
- [8] **О. М. Вохник, П. В. Короленко, Р. Т. Кубанов.** Журн. прикл. спектр., **89**, № 1 (2022) 125—128 [**O. M. Vokhnik, P. V. Korolenko, R. T. Kubanov.** J. Appl. Spectr., **89**, N 1 (2022) 114—117]
- [9] **М. Борн, Э. Вольф.** Основы оптики, Москва, Наука (1973) [**M. Born, E. Wolf.** Principles of Optics, Cambridge University Press, 7th ed. (1999)]
- [10] **Р. Пантел, Г. Путхоф.** Основы квантовой электроники, Москва, Мир (1972) [**R. H. Pantell, H. E. Puthoff.** Fundamentals of Quantum Electronics, John Wiley, New York, London, Sydney, Toronto (1969)]
- [11] **J. J. Olivero, R. L. Longbothum.** J. Quant. Spectr. Rad. Transfer, **17**, N 2 (1977) 233—236