

ВЛИЯНИЕ СКОРОСТИ ПЕРЕСТРОЙКИ ЧАСТОТЫ ДИОДНОГО ЛАЗЕРА НА ФОРМУ КОНТУРА ЛИНИИ ПОГЛОЩЕНИЯ ПРИ ИЗМЕРЕНИИ МАЛЫХ КОНЦЕНТРАЦИЙ ВО ВНЕШНЕМ РЕЗОНАТОРЕ С НЕОСЕВЫМ ВВОДОМ ИЗЛУЧЕНИЯ

В. В. Лагунов*, И. В. Николаев, В. Н. Очкин

УДК 535.34;621.373.8

Физический институт им. П. Н. Лебедева Российской АН,
119991, Москва, ГСП-1, Россия; e-mail: lagunoww@yandex.ru

(Поступила 1 февраля 2021)

Исследована асимметрия регистрируемых контуров линий поглощения паров воды в кварцевой трубке при комнатной температуре при давлениях 0.03—1.00 Торр. Измерения проводились методом диодной лазерной спектроскопии с внешним оптическим резонатором. С целью качественного прописывания узких контуров линий поглощения использовалась неосевая юстировка резонатора. Измерения проводились с разной скоростью перестройки частоты лазера 0.1—0.8 см⁻¹/мс с зеркалами с коэффициентами отражения 99 и 99.98 % и разными направлениями перестройки частоты лазера. Асимметрия линий возникает из-за временной задержки излучения внутри резонатора. Результаты моделирования измерений с учетом заполнения резонатора лазерным излучением и его затухания во времени на выходе из резонатора хорошо согласуются с экспериментальными данными.

Ключевые слова: лазерная спектроскопия, перестройка частоты, оптический резонатор, спектроскопия поглощения, измерение концентрации воды.

The asymmetry of the recorded contours of the absorption lines of water vapor in a quartz tube at room temperature at pressures of 0.03–1 Torr was investigated. The measurements were carried out using the method of diode laser spectroscopy with an external optical cavity. In order to accurately define narrow contours of absorption lines off-axis alignment of the resonator was used. The measurements were carried out with different laser frequency tuning rates of 0.1–0.8 cm⁻¹/ms with mirrors with 99 and 99.98% reflectivity and different directions of laser frequency tuning. Line asymmetry occurs due to the time delay of radiation inside the cavity. The results of numerical modeling taking into account the filling of the cavity with laser radiation and its decaying in time at the cavity output are in good agreement with the experimental data.

Keywords: laser spectroscopy, frequency tuning, optical resonator, absorption spectroscopy, water concentration measurement.

Введение. В настоящее время чувствительные измерения концентраций газов на основе лазерной спектроскопии применяются в климатологии [1], геологии [2], медицине [3], ядерной энергетике [4] и других областях науки и технологий. Особое место занимает диодная лазерная спектроскопия с внешней многопроходной ячейкой (резонатором). Достоинства этого метода — высокие чувствительность и скорость определения концентраций, неинвазивность, простота в юстировке при компактности схемы; разновидности включают в себя частотно-модуляционную спектроскопию [5], спектроскопию затухания во времени (CRDS, cavity ringdown spectroscopy) [6], интегральную спектроскопию (ICOS, integrated cavity output spectroscopy) [7] и др. Метод ICOS позволяет совмещать узкополосные непрерывные лазеры с внешними оптическими резонаторами в простых и эффективных

INFLUENCE OF THE FREQUENCY TUNING RATE OF A DIODE LASER ON THE SHAPE OF THE ABSORPTION LINE CONTOUR WHEN MEASURING LOW CONCENTRATIONS IN AN EXTERNAL CAVITY WITH OFF-AXIS ALIGNMENT

V. V. Lagunov*, I. V. Nikolaev, V. N. Ochkin (P. N. Lebedev Physical Institute of the Russian Academy of Sciences, Moscow, 119991 GSP-1, Russia; e-mail: lagunoww@yandex.ru)

установках. Сигнал поглощения получается в результате временного интегрирования лазерного излучения, прошедшего сквозь резонатор. Концентрация поглотителя определяется из выходного сигнала, который является функцией отражения зеркал и потерь на рассеяние и поглощение излучения внутри резонатора. Модификация этого метода с вводом излучения в резонатор со смещением относительно его оси (OA-ICOS, OA — off-axis) позволяет значительно увеличить плотность мод резонатора и получать огибающие линий поглощения с гораздо большим разрешением, чем в обычном ICOS, что особенно важно при измерениях в средах с низким давлением [8, 9].

В рамках исследований компонентного состава плазмы тлеющего разряда [10—13] проведен ряд измерений малых концентраций изотопов воды в разряде. Измерения проводились модифицированным методом OA-ICOS. В [10, 11] обнаружена асимметрия регистрируемых линий поглощения. В настоящей работе эффект систематически экспериментально исследован для линий поглощения воды в диапазоне $7180\text{—}7182.5\text{ см}^{-1}$. Проведен анализ данного явления методами моделирования в условиях измерений.

Эксперимент. Схема установки представлена на рис. 1. В методе OA-ICOS использован резонатор длиной 45 см с зеркалами на торцах охлаждаемой водой кварцевой трубки с внутренним диаметром 20 мм. Давления паров воды в резонаторе контролировались датчиком (Thyracont VSM77DL) в системе напуска и откачки, подсоединенной к резонатору через краны I и O, и находились в пределах $0.1\text{—}1$ Торр. Откачка трубки проводилась с помощью вакуумного поста (Pfeiffer TDS-022), который располагался в системе напуска и откачки, остаточное давление $5 \cdot 10^{-5}$ Торр. Использованы две пары одинаковых зеркал M1, M2 резонатора с коэффициентами отражения 99.98 и 99 % и радиусами 100 см.

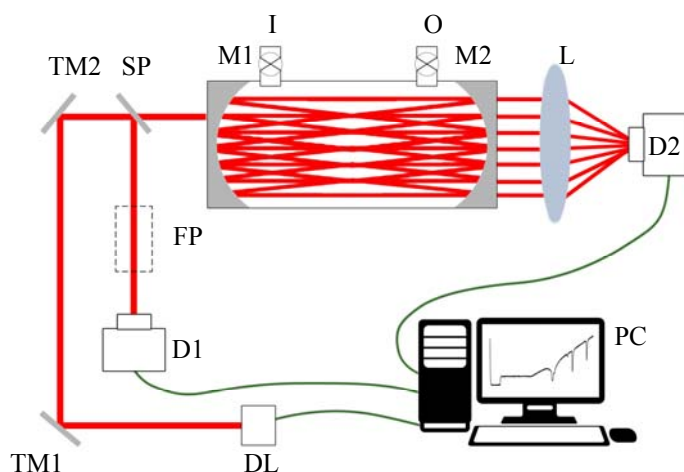


Рис. 1. Схема экспериментальной установки

Излучение диодного лазера DL (Eblana Photonics DM-1392) вводилось в резонатор неосевым способом с помощью поворотных зеркал TM1, TM2, разделялось светоделительной пластинкой SP на два луча, один из которых шел в резонатор, а второй попадал на детектор D1. Лазер перестраивался в диапазоне $7180\text{—}7182.4\text{ см}^{-1}$, имел ширину линии 2 МГц ($\sim 10^{-4}\text{ см}^{-1}$) и был термостабилизирован на температуре 303 К. Сигнал с детектора D1 позволял учесть поглощение излучения лазера в атмосфере и вычесть его из аналитического сигнала. В канал вводился эталон Фабри–Перо FP (кварц) для учета нелинейности скорости изменения частоты лазера при линейном изменении тока инжекции и калибровки частоты, причем при разной скорости перестройки степень нелинейности разная, в процессе расчета спектров проводилась соответствующая калибровка. С помощью спектра эталона осуществлялся перевод спектров из временного представления в частотное. После резонатора излучение собиралось линзой L на детекторе D2. Управление лазером, сбор и обработка данных проводились с помощью компьютера PC с универсальной платой ввода-вывода (National Instruments PCI-6120). Для управления установкой и сбора данных разработано специальное программное обеспечение в среде LabVIEW. Источником служил диодный лазер с диапазоном перестройки частоты $\approx 2.4\text{ см}^{-1}$ при заданном токе инжекции. Перестройка проводилась импульсами тока. Длительность импульса тока инжекции 5 мс при частоте оцифровки 800 кГц; участок импульса, на котором происходила пе-

перестройка частоты, составлял 60 % от общей длительности импульса, что соответствует скорости перестройки $0.8 \text{ см}^{-1}/\text{мс}$. При использовании цифро-аналогового преобразователя (ЦАП) сигнал тока перестройки представляет собой последовательный ступенчатый набор значений. При такой накачке результатом перестройки лазера является последовательный набор частот на определенных временных промежутках (1.25 мкс при частоте оцифровки 800 кГц). Спектральное разрешение системы может быть оценено следующим образом: на 2500 точек в спектре приходится участок $\approx 2.4 \text{ см}^{-1}$, т. е. расстояние между соседними точками в спектре $\sim 10^{-3} \text{ см}^{-1}$. При этом доплеровский контур поглощения регистрировался по ~ 100 точкам. Спектры усреднялись по 2500 циклам тока инжекции.

Результаты и их обсуждение. Для выяснения характера асимметрии проведено несколько экспериментов с разными парами зеркал 99.98 и 99 %, которые влияют на время затухания излучения в резонаторе. Для более высокоотражающих зеркал постоянная времени затухания $\tau_0(v, R)$ (где v — частота лазера, R — коэффициент отражения зеркал) измерена экспериментально. В расчетах использован коэффициент отражения, полученный из времени затухания и не противоречащий данным производителя ($>99.98 \%$). Для зеркал 99 % постоянная времени затухания $\tau_0(v, R)$ оценена в 0.17 мкс и не проверена экспериментально. Измерения с зеркалами 99 % не показали каких-либо заметных искажений контура линии. Причины отсутствия искажений при таком коэффициенте отражения обсуждаются ниже.

Изменение частоты дискретизации цифровой управляющей системы с 800 на 100 кГц во временном представлении означает изменение длительности единичного импульса тока с 1.25 на 10 мкс, длительность полного импульса тока накачки при этом возрастает пропорционально, от 5 до 40 мс, что соответствует скоростям перестройки 0.8 и $0.1 \text{ см}^{-1}/\text{мс}$. На рис. 2 представлены полученные контуры поглощения. Видно, что при снижении скорости перестройки асимметрия заметно уменьшается. Проведены также измерения с изменением направления перестройки частоты с зеркалами с отражением 99.98 % при скорости перестройки $0.8 \text{ см}^{-1}/\text{мс}$. При росте тока накачки частота излучения лазера уменьшается, при падении увеличивается. При изменении направления перестройки форма асимметрии во времени сохраняется, а при переходе от времени к частоте зеркально отображается.

Для интерпретации процессов, происходящих в системе и приводящих к искажению контура линии, разработана математическая модель. Моделирование и анализ нестационарной системы обработки сигналов произвольной формы, примером которой является оптический резонатор, в динамическом представлении базируются на разложении сигналов по единичным монохроматическим импульсам простейшей формы. При ступенчатом изменении тока инжекции лазерный сигнал можно представить в виде последовательности узких прямоугольных монохроматических импульсов одинаковой длительности Δt и с амплитудами, определяемыми величиной сигнала.

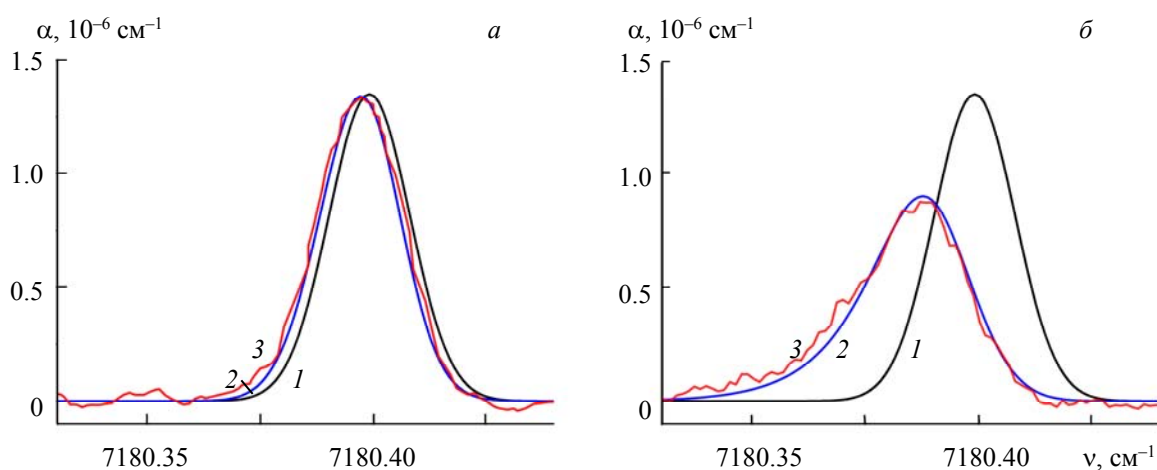


Рис. 2. Результаты эксперимента и расчетов для скоростей перестройки лазера 0.1 (а) и $0.8 \text{ см}^{-1}/\text{мс}$ (б): 1 — доплеровский профиль, 2 — теория, 3 — эксперимент; зеркала 99.98 %, $p = 0.035$ Торр; волновое число изменяется в сторону уменьшения

В общем случае сигнал на выходе резонатора определяется его откликом на прямоугольный монохроматический импульс:

$$I_{\text{out}}(t, \Delta t) = C_p \sum_{i=0}^{t/\Delta t} I_{\text{in}}(t'_i) h(t, t'_i, \Delta t, R), \quad t'_i = i\Delta t, \quad (1)$$

где C_p — параметр ввода излучения в резонатор; t — момент времени, в который происходит измерение; Δt — длительность импульса; $h(t, t', \Delta t, R)$ — отклик системы на единичный прямоугольный импульс (нестационарная переходная функция) в момент времени t' ; $I_{\text{in}}(t')$ — интенсивность падающего излучения в момент времени t' ; $I_{\text{out}}(t, \Delta t)$ — интенсивность излучения на выходе системы в момент времени t .

Величина R_{eff} учитывает потери в резонаторе не только из-за пропускания зеркал, но и связанные с поглощением среды внутри резонатора:

$$R_{\text{eff}}(t, R) = R(1 - a(t)), \quad (2)$$

где $a(t)$ — потери на поглощение за однократный проход по резонатору, $a(t) \ll 1$; R — коэффициент отражения зеркал.

Используемый в эксперименте лазер обладает конечной длиной когерентности $l_c = c/\Delta\nu \approx 150$ м (c — скорость света, $\Delta\nu$ — ширина линии); эффективная длина оптического пути в резонаторе с зеркалами с коэффициентом отражения $>99.98\%$, оцененная по постоянной времени затухания, составляет 3.2 км, а спектры усредняются по 2500 циклам, поэтому интерференцией можно пренебречь и напрямую рассчитывать суммарные интенсивности на выходе из резонатора.

Резонатор в случае неосевого ввода излучения имеет функцию отклика на прямоугольный импульс монохроматического излучения, которая определяется выражениями, полученными из формул [9]:

$$h(t, t', \Delta t, R) = 0 \text{ до начала импульса,} \quad (3)$$

$$h(t, t', \Delta t, R) = \frac{(1 - \exp^{-(t-t')/\tau_0(t', R)}) T^2}{2(1 - R_{\text{eff}}(t', R))} \text{ во время импульса,} \quad (4)$$

$$h(t, t', \Delta t, R) = \frac{(1 - \exp^{-\Delta t/\tau_0(t', R)}) T^2}{2(1 - R_{\text{eff}}(t', R))} \exp^{-(t-t'-\Delta t)/\tau_0(t', R)} \text{ после окончания импульса,} \quad (5)$$

где t' — время начала импульса; $\tau_0(t', R)$ — постоянная времени затухания излучения в резонаторе; $T = 1 - R$ — пропускание зеркал без учета потерь.

В общем случае постоянная времени затухания резонатора зависит не только от коэффициента отражения зеркал, но и от поглощения среды в резонаторе:

$$\tau_0(t', R) = \frac{l}{c((1 - R) + \alpha(t')l)}, \quad (6)$$

где $\alpha(t)$ — коэффициент поглощения; l — расстояние между зеркалами резонатора.

Результирующий сигнал на выходе из резонатора представляет собой сумму (1), компоненты которой описываются формулами (2)–(6). Форма контура спектральной линии поглощения $\alpha(t)$ определяется доплеровским уширением:

$$\alpha(t) = \alpha_0 \exp \left[-4 \ln 2 \left(\frac{t - t_0}{\Delta\nu} \right)^2 \right], \quad (7)$$

где α_0 — показатель поглощения в центре линии; $\Delta\nu$ — ширина линии поглощения на половине амплитуды; t_0 — координата центра линии.

Вклад в интенсивность сигнала в данный момент времени от частот, на которых источник излучал в предыдущие моменты времени, определяется формулами (1), (3), (4), (5).

Показатель поглощения при $\alpha(t)l \ll 1$:

$$\alpha_{\text{out}}(t) = \frac{I_{0\text{out}}(t) - I_{\text{out}}(t)}{I_{\text{out}}(t)} \frac{1 - R}{Rl}, \quad (8)$$

где $I_{0\text{out}}(t)$ — интенсивность на выходе из пустого резонатора. Формула (8) выводится из формулы (6) работы [9].

Результаты эксперимента и расчета искажения линий при разных скоростях перестройки (длительностях единичного импульса) представлены на рис. 2.

Таким образом, на асимметрию линий поглощения влияют несколько факторов. Прежде всего асимметрия линий связана с тем, что заполнение резонатора излучением и затухание излучения на его выходе не являются мгновенными. При некоторых длительностях единичного импульса перестройки и давлениях газа (ширинах линий) эта временная задержка может существенно влиять на форму контура линии поглощения. Кроме того, увеличение длительности единичного импульса тока накачки лазера при фиксированном времени жизни фотона в резонаторе ведет к уменьшению асимметрии. Если зафиксировать длительность импульса на уровне минимального, доступного в нашей системе (1.25 мкс), и изменить время жизни фотона в резонаторе посредством замены зеркал, то при меньшем времени жизни фотона искажение формы линии будет меньше. Изменение направления перестройки частоты при этом зеркально отражает асимметрию в частотном представлении. Это связано с тем, что при изменении направления перестройки во временном представлении асимметрия остается прежней, однако при переходе от времен к частотам калибровочные кривые оказываются зеркально-симметричными.

Закключение. Экспериментально и теоретически исследована асимметрия линий поглощения при регистрации спектров в высокодобротном резонаторе при быстрой перестройке частоты лазера. Показано, что асимметрия не зависит от направления перестройки частоты, однако зависит от добротности резонатора и скорости перестройки частоты и хорошо согласуется с результатами математического моделирования. Асимметрия линии поглощения при неосевом вводе излучения в высокодобротный резонатор связана с тем, что при перестройке частоты требуется время на заполнение и опустошение резонатора излучением определенной частоты. Вследствие этого при прописывании контура линии поглощения в каждой его точке происходит наложение текущей интенсивности и незатухших интенсивностей предыдущих частот. Поэтому увеличение как скорости перестройки, так и добротности резонатора выше определенного предела ($0.1 \text{ см}^{-1}/\text{мс}$ с зеркалами 99.98 %) заметно искажает форму линии поглощения.

Работа выполнена за счет средств Российского научного фонда (грант № 19-12-00310).

- [1] G. Wang, S. Crumeyrolle, B. Hanoune, C. Coeur, H. Yi, E. Fertein, M. W. Sigrist, W. Chen. OSA Technical Digest, ET3A.3 (2018), <https://doi.org/10.1364/EE.2018.ET3A.3>
- [2] R. Harmon, K. Shughrue, J. Remus, M. Wise, L. East, R. Hark. Anal. Bioanal. Chem., **400** (2011) 3377—3382, <https://doi.org/10.1007/s00216-011-5015-2>
- [3] K. Parameswaran, D. Rosen, M. Allen, A. Ganz, T. Risby. Appl. Opt., **48** (2009) B73—B79, <https://doi.org/10.1364/ao.48.000b73>
- [4] P. Mauchien, A. Pailloux, T. Vercouter. Laser Spectroscopy for Sensing, Elsevier (2014) 522—543, <https://doi.org/10.1533/9780857098733.3.522>
- [5] G. C. Bjorklund. Opt. Lett., **5** (1980) 15—17, <https://doi.org/10.1364/OL.5.000015>
- [6] A. O’Keefe, J. J. Scherer, J. B. Paul. Chem. Phys. Lett., **307** (1999) 5—6, [https://doi.org/10.1016/S0009-2614\(99\)00547-3](https://doi.org/10.1016/S0009-2614(99)00547-3)
- [7] A. O’Keefe, D. A. G. Deacon. Rev. Sci. Instrum., **59**, N 12 (1988) 2544—2551, <https://doi.org/10.1063/1.1139895>
- [8] D. Baer, J. Paul, M. Gupta, A. O’Keefe. Appl. Phys. B, **75** (2002) 261, <https://doi.org/10.1007/s00340-002-0971-z>
- [9] J. B. Paul, L. Lapson, J. G. Anderson. Appl. Opt., **40** (2001) 4904—4910, <https://doi.org/10.1364/AO.40.004904>
- [10] A. V. Bernatskiy, V. V. Lagunov, V. N. Ochkin. Quantum Electron., **49**, N 2 (2019) 157—161, <https://doi.org/10.1070/QEL16819>
- [11] A. V. Bernatskiy, I. V. Kochetov, V. V. Lagunov, V. N. Ochkin. Phys. Plasm., **26**, N 8 (2019) 83511, <https://doi.org/10.1063/1.5118830>
- [12] A. V. Bernatskiy, V. V. Lagunov, V. N. Ochkin, S. N. Tskhai. Laser Phys. Lett., **13**, N 7 (2016) 75702, <https://doi.org/10.1088/1612-2011/13/7/075702>
- [13] A. V. Bernatskiy, I. V. Kochetov, V. N. Ochkin. Plasma Phys. Rep., **46**, N 9 (2020) 874—919, <https://doi.org/10.1134/S1063780X20090020>