

Новые возможности использования широкополосного фемтосекундного ПГС при дистанционной диагностике многокомпонентных аэрозольно-газовых загрязнений атмосферы

В.М.Гордиенко, А.И.Холодных, В.И.Прялкин

Рассмотрена схема лидара на базе широкополосного импульсно-периодического параметрического генератора ИК диапазона для мониторинга многокомпонентных аэрозольно-газовых загрязнений атмосферы. Показано, что эффективная параметрическая генерация фемтосекундного ИК излучения достигается в схеме с использованием свойств групповых синхронизмов.

Ключевые слова: фемтосекундное ИК излучение, дистанционное зондирование, загрязняющие примеси.

Методы ИК спектromетрии поглощения и рассеяния являются перспективными активными аналитическими методами дистанционного контроля многокомпонентных аэрозольно-газовых загрязнений атмосферы. Задачи дистанционной диагностики химических загрязнений атмосферы заключаются в определении выбросов химических веществ в атмосферный воздух промышленными предприятиями, оперативном картировании загрязнений на больших площадях с целью выявления общей экологической обстановки или обнаружения облаков токсичных веществ. При этом выбросы могут быть как однокомпонентными, так и многокомпонентными, а также иметь априорно неизвестный состав.

Технически методы ИК спектromетрии реализуются в лидарах дифференциального поглощения (ДП-лидары), лидарах дифференциального поглощения рассеянного излучения (ДПР-лидары) и в ИК фурье-газоанализаторах (ФГ) [1, 2]. В ИК ФГ- и ДП-лидарах обратный сигнал формируется в результате отражения или рассеяния зондирующего излучения специальным ретрорефлектором, топографическим отражателем или подстилающей поверхностью при зондировании с летательного аппарата. В ДПР-лидарах обратный сигнал формируется за счет рассеяния на атмосферном аэрозоле, что позволяет проводить диагностику с пространственным разрешением по дальности.

Прошедшее атмосферную трассу излучение ДПР-лидара несет информацию о спектральных особенностях пропускания трассы, возникающих из-за селективного поглощения загрязняющими и фоновыми молекулярными компонентами атмосферы в области их характерных «отпечатков пальцев». Для идентификации каждого компонента смеси необходимо иметь излучение, как минимум, на двух характерных для данного компонента частотах.

Основной трудностью на современном этапе использования ДПР-лидаров для анализа многокомпонентных смесей является сложность как технической реализации,

так и одновременного спектрально-временного анализа многочастотного отклика исследуемой среды. По этой причине в настоящее время применяются в основном ДП-лидары [3, 4] и ИК ФГ-лидары [5], а ДПР-лидары адаптированы в основном для дистанционного обнаружения и определения концентрации одного-двух заранее выделенных компонентов в предположении, что другие возможные компоненты смеси не мешают диагностировать выделенные.

Для смесей многоатомных молекулярных соединений, обладающих сложными перекрывающимися спектрами поглощения, это предположение во многих случаях не выполняется, и для достоверной идентификации необходимо увеличивать число частот зондирования, что, естественно, приводит к дальнейшему усложнению лидаров. Наиболее перспективным для многокомпонентного анализа с пространственным разрешением в настоящее время является ДПР-лидар на основе химического HF(DF)-лазера, т.к. этот лазер может генерировать в области 2.7–4.2 мкм одновременно до 100 линий, перекрывающих трехмикронное окно прозрачности атмосферы и имеющих энергии излучения в линии до 1 Дж [6]. С помощью такого лидара за счет так называемых спектральных резонансов в обратном рассеянии [7] можно получать информацию с пространственным разрешением не только о газовых составляющих, но и о химическом составе аэрозольных загрязнителей.

Однако, несмотря на относительно большое число частот, значительный частотный интервал ($10-40\text{ см}^{-1}$) между линиями генерации и случайность их совпадения с полосами поглощения возможных загрязнителей атмосферы существенно ограничивают число диагностируемых молекул. В связи с этим в настоящее время практически задачу многокомпонентного анализа могут решать только дистанционные ИК ФГ, в которых в качестве зондирующего излучения используются тепловые источники, дающие излучение с непрерывным спектром. Однако такие газоанализаторы вследствие малой спектральной яркости теплового источника могут работать только в трассовом режиме с применением специальных, как уже отмечалось, ретрорефлекторов при длине зондирования не более нескольких сотен метров [8].

Таким образом, для эффективной дистанционной ди-

агностики многокомпонентных загрязнений атмосферы необходимо соединить в одном устройстве спектральные возможности ИК ФГ и возможности пространственной локализации источников загрязнений, свойственных импульсным лидарам, работающим в режиме приема и анализа излучения, рассеянного атмосферным аэрозолем как распределенным ретрорефлектором.

В настоящей работе исследуются возможности создания ИК лидаров нового класса – фемтосекундных спектроскопических ИК лидаров на основе сверхширокополосных параметрических генераторов света (ПГС), в которых генерация происходит с использованием свойств групповых синхронизмов [9] и для накачки которых применяется излучение мощного фемтосекундного импульсно-периодического лазера. Такой лидар, на наш взгляд, позволит существенно расширить возможности осуществления дистанционного анализа многокомпонентных смесей, приближаясь к спектроскопическим возможностям ИК ФГ при высокой спектральной яркости генерируемого когерентного ИК излучения.

Отметим, что использование широкополосных пикосекундных импульсов применительно к задачам абсорбционной спектроскопии рассматривалось ранее в [10], а возможности применения мощных фемтосекундных лазерных систем для зондирования параметров атмосферы были недавно продемонстрированы в [11].

1. Спектрально-энергетические характеристики ИК излучения на основе эффективной параметрической генерации с использованием свойств групповых синхронизмов

В настоящее время базовыми фемтосекундными лазерами являются твердотельные лазеры на титанате сапфира (Ti:S) с длительностью импульсов, лежащей в диапазоне десятков фемтосекунд. Параллельно проводятся работы, направленные на развитие лазеров такого же класса и на хром-форстерите (Cr:F) [12]. Уникальные спектроскопические и оптико-физические свойства монокристаллов Ti:S и Cr:F, а также современные технологии получения лазерных активных элементов открыли широкие возможности для реализации генерации излучения сверхкороткой длительности, перестраиваемого в диапазонах 0.75–1.0 мкм (Ti:S) и 1.2–1.32 мкм (Cr:F). Мы полагаем, что для исследователей, занимающихся задачами ИК спектроскопии, представляют значительный интерес и открывают новые возможности фемтосекундные параметрические генераторы с накачкой Ti:S- и Cr:F-лазерных систем, использующие свойства групповых синхронизмов [9]. Очевидно, что групповая длина или групповая расстройка однозначно связана со спектральной шириной нелинейного преобразования, которая в режиме группового синхронизма максимальна.

При невырожденном трехчастотном взаимодействии равенство групповых скоростей возможно только для пары взаимодействующих импульсов. Однако в схеме параметрической генерации при использовании в качестве накачки фемтосекундных импульсов и наличии «затравочного» длинного (нано- или субнаносекундного) импульса на частоте коротковолновой параметрически генерируемой компоненты излучения может быть реализован групповой синхронизм (равенство нулю групповой расстройки) для импульсов излучения накачки и длинно-

волновой компоненты параметрического излучения. В таком режиме возможно высокоэффективное преобразование излучения накачки в излучение длинноволновой ИК компоненты при максимальной спектральной ширине последней.

Как показывают наши расчеты, выбор соответствующего нелинейного кристалла и типа параметрического взаимодействия при заданном источнике накачки позволяет предложить схему параметрической генерации излучения заданной спектральной ширины в требуемом спектральном диапазоне. Расчеты проводились для коллинеарного параметрического взаимодействия на основе дисперсионных уравнений Селмейера [13]. Для заданной длины волны излучения накачки рассчитывались угловые перестроечные кривые ($k_p = k_s + k_i$), и для каждой точки определялась разность групповых скоростей импульсов излучения накачки и длинноволнового параметрического излучения

$$\Delta u_{gr} = \left(\frac{\partial k_p}{\partial \omega_p} \right)^{-1} - \left(\frac{\partial k_i}{\partial \omega_i} \right)^{-1}.$$

Рассчитывалась также эффективная нелинейность кристалла.

Для оценки ширины спектра параметрически генерируемого ИК излучения используем известное выражение для коэффициента параметрического усиления, полученное в приближении заданного поля [10]:

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

где $\Gamma = \sigma_1 \sigma_2 |A_p|^2$; Δk – волновая расстройка; Z – длина нелинейной среды; $\sigma_{1,2}$ – коэффициенты нелинейной связи; A_p – амплитуда излучения накачки. Результаты численного расчета представлены на рис.1, где приведены нормированные контуры параметрического усиления в условиях группового синхронизма для различных схем при $\Gamma Z = 10$.

При запасах по энергии зондирующего сигнала возможна неточная настройка на групповой синхронизм. Хотя это, с одной стороны, уменьшает эффективность

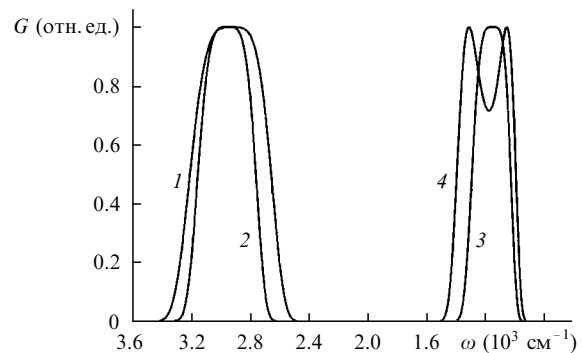


Рис.1. Контуры параметрического усиления G для коллинеарного взаимодействия при выполнении условий попутного синхронизма: параметрическое усиление (взаимодействие второго типа) в кристалле RTA ($\theta = 45.8^\circ$, $\varphi = 90^\circ$) с накачкой излучением Cr:F-лазера при длине волны сигнала инжекции 1.96 мкм (1); параметрическое усиление (взаимодействие первого типа) в кристалле СТА ($\theta = 49.9^\circ$, $\varphi = 45^\circ$) с накачкой излучением Ti:S-лазера при длине волны сигнала инжекции 1.048 мкм (2); параметрическое усиление (взаимодействие второго типа) в кристалле ZnGeP₂ ($\theta = 66.4^\circ$, $\varphi = 0$) с накачкой излучением с $\lambda = 2.96$ мкм при длине волны сигнала инжекции 4.5 мкм, $L_{gr} = \infty$ (3) и 0.5 см (4).

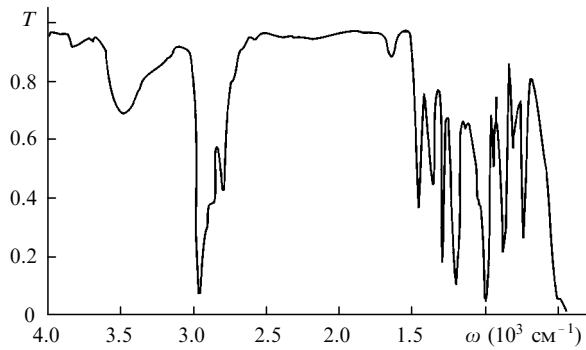


Рис.2. Спектр пропускания трибутиламина.

параметрического преобразования, но с другой – позволяет контролируемым образом изменять спектр зондирующего излучения, что в ряде случаев может оказаться полезным. В качестве примера на рис.1 (кривая 4) приведен контур параметрического усиления для схемы, представленной кривой 3, но при отстройке от направления группового синхронизма ($L_{gr} = 0.5$ см).

Таким образом, для получения широкополосного когерентного излучения со спектром, практически полностью перекрывающим трехмикронное окно прозрачности атмосферы, можно использовать ПГС на кристаллах RTA (источник излучения накачки – лазер на Sr:F, взаимодействие второго типа) и СТА (источник излучения накачки – лазер на Ti:S, взаимодействие первого типа), для которых условие группового синхронизма выполняется при генерации длинноволновой компоненты параметрического излучения в области 3000 см^{-1} .

Следует отметить, что использование системы на основе форстеритового лазера предпочтительнее, поскольку групповой синхронизм для ИК импульса и импульса накачки осуществляется для взаимодействия второго типа, которое в кристаллах группы КТР на порядок эффективнее, чем взаимодействие первого типа. Добавление второго каскада параметрического преобразования на кристалле ZnGeP_2 или AgGaSe_2 , источником накачки которого является излучение ПГС с длиной волны в области трех микрон, а источником инжекции – излучение второй гармоники CO_2 -лазера, может позволить проводить зондирование в области десятимикронного окна прозрачности атмосферы. В качестве примера спектров, характерных для углеводородных загрязнителей атмосферы, на рис.2 приведен измеренный нами спектр трибутиламина ($(\text{C}_4\text{H}_9)_3\text{N}$). Здесь полоса поглощения в области $2800\text{--}3000\text{ см}^{-1}$ определяется валентными колебаниями метильных групп CH_3 и метиленовой группы CH_2 , а в области $1000\text{--}1400\text{ см}^{-1}$ – деформационными колебаниями этих групп, а также скелетными колебаниями связей C–C, C–N молекулы трибутиламина.

Как уже отмечалось, нелинейно-оптическое преобразование частоты сверхкоротких импульсов в условиях группового синхронизма позволяет достичь высокой энергетической эффективности преобразования. Так, из работы [9] следует, что эффективность преобразования в область 3 мкм может достигать 25%. Это дает энергию в одиночном импульсе фемтосекундного ПГС порядка 50 мкДж для вполне реалистичной лазерной системы на Sr:F со следующими характеристиками: энергия в импульсе порядка 200 мкДж, длительность импульса 70–100 фс. Важным является также и то, что такие системы работают с частотой повторения порядка 1 кГц. Послед-

нее позволяет проводить эффективное накопление сигнала в течение десятка секунд, т. е. в течение того времени, когда можно считать, что в атмосфере не произошло существенного смещения или деформации диагностируемого газового или аэрозольного облака.

2. Оценка возможной дальности зондирования фемтосекундным ИК лидаром

Оценку возможной дальности зондирования фемтосекундным ИК лидаром можно провести, подставляя в хорошо известное лидарное уравнение [1] характеристики телескопа и фотоприемного устройства, минимальную детектируемую с заданным отношением сигнал/шум энергию, параметры атмосферного аэрозоля детектируемых молекул и т. д. Весь этот алгоритм достаточно хорошо описан в [1]. Пороговая энергия лазера для ИК ДПР-лидара определяется при этом с помощью следующего соотношения:

$$E_L^{\min} \approx \frac{2R^2(S/N)_{\min}}{\beta(\lambda_0, R)\xi(R)U^*(\lambda_0)} \exp \left[2 \int_0^R k(\lambda_0, r) dr \right],$$

где U^* – модифицированный параметр системы, для случая твердотельного фотодетектора $U^*(\lambda_0) = A_0\xi(\lambda_0) \times cD^*/(A_d B)^{1/2}$; $k(\lambda_0, R)$ – коэффициент ослабления для зондируемых молекул; $\beta(\lambda_0, R)$ – коэффициент атмосферного объемного обратного рассеяния; $\xi(R)$ – основанная на геометрическом рассмотрении вероятность того, что излучение элемента площади объекта достигнет детектора; A_0 – площадь зеркала объектива; $\xi(\lambda_0)$ – спектральный коэффициент пропускания, который так же, как и $\xi(R)$, грубо равен единице [1]; D^* – обнаружительная способность фотодетектора; A_d – площадь приемной поверхности фотодетектора; $B = 1/(2\tau_d)$ – ширина полосы фотодетектирования; R – дальность зондирования.

С использованием приведенного выше соотношения в [1] сделана оценка минимальной энергии зондирующего импульса ДПР-лидара на DF-лазере, необходимой для обеспечения дальности зондирования 3 км при минимальном однократно измеренном отношении сигнал/шум $S/N = 1.5$. Требуемая минимальная энергия при этом равна 50 мДж для следующих параметров приемной системы (параметры взяты из работы [14]): $A_0 = 792\text{ см}^2$, $D^* = 10^{10}\text{ см}\cdot\text{Гц}^{1/2}/\text{Вт}$, $A_d = 0.01\text{ см}^2$, $\tau_d = 75\text{ нс}$, $\beta(\lambda_0 = 3.64\text{ мкм}) = 8 \cdot 10^{-9}\text{ см}^{-1}/\text{ср}$, $k(\lambda_0, R) = 5 \cdot 10^{-7}\text{ см}^{-1}$. Пространственное разрешение $\Delta R = 75\text{ м}$ определялось длительностью импульса лазера, равной 1 мкс.

В наших оценках для трехмикронного диапазона взята обнаружительная способность современных охлаждаемых многоэлементных детекторов $D^* \approx 10^{11}\text{ см}\cdot\text{Гц}^{1/2}/\text{Вт}$ [15], дальность зондирования $R_{\max} = 1\text{ км}$ и минимальное отношение сигнал/шум $S/N = 1.5$. При пространственном разрешении $\Delta R = 100\text{ м}$ (сопоставимом с приведенным выше), которому соответствует постоянная времени фотодетектора $\tau_d = 750\text{ нс}$, требуемая минимальная энергия импульса при однократном измерении $E_{\min} \approx 55\text{ мкДж}$. Однако следует отметить, что полученное E_{\min} является энергией, которая должна приходиться на один спектральный канал приемной системы, а реальная энергия светового импульса для сохранения заданного отношения сигнал/шум должна быть выше в число раз, равное числу организованных спектральных каналов. Исходя из оценки характерной спектральной ширины линии

поглощения многоатомных молекулярных загрязнителей ($10-20 \text{ см}^{-1}$), спектральную ширину отдельного канала при малом отношении сигнал/шум разумно сделать такой же. Как показано в недавних работах [16, 17], при дистанционной диагностике подобных многокомпонентных смесей с помощью ИК ФГ для минимизации вероятности ложной тревоги и повышения вероятности обнаружения облака токсичных веществ разумным компромиссом считалось спектральное разрешение 50 см^{-1} .

При спектральной ширине излучения ПГС (рис.1), равной $200-300 \text{ см}^{-1}$, и спектральной ширине канала 20 см^{-1} число спектральных каналов должно составлять 10–15. При ограниченной возможности увеличения энергии импульса излучения ПГС (поскольку измерения во всех спектральных каналах происходят одновременно), необходимо накопление сигнала при усреднении достаточно большого числа импульсов.

Предполагаемое пространственное разрешение лидарных измерений $\Delta R = 100 \text{ м}$ при средней скорости перемещения газоаэрозольного облака несколько метров в секунду позволяет проводить усреднение в течение нескольких секунд без существенной потери точности измерения параметров облака. При частоте повторения импульсов 1 кГц число импульсов усреднения составляет $10^3 - 10^4$. Это означает, что может быть достигнуто повышение отношения сигнал/шум в 30–100 раз, что с запасом компенсирует распределение энергии импульса по 10–15 каналам.

Итак, проведенные оценки показывают, что с помощью фемтосекундного спектроскопического ИК лидара возможно обнаружение и дистанционная диагностика газоаэрозольных облаков на расстояниях порядка 1 км с пространственным и спектральным разрешениями 100 м и 20 см^{-1} соответственно. Можно также показать, что при работе фемтосекундного спектроскопического ИК лидара в трассовом режиме при получении сигнала рассеяния от топографического отражателя, расположенного на расстоянии до 1 км, сигнал рассеяния возрастает примерно в $10^3 - 10^4$ раз и, следовательно, возможно определение интегрального содержания загрязняющих примесей на трассе зондирования за один импульс излучения с борта летательного аппарата с рассеянием от подстилающей поверхности.

Таким образом, предлагаемая схема параметрической генерации фемтосекундного ИК излучения с использованием свойств групповых синхронизмов является новым подходом к созданию спектроскопических лидаров, позволяет получать широкополосное когерентное излучение в ИК диапазоне и более эффективно по сравнению с традиционными схемами [18] осуществлять дистанционный контроль атмосферных загрязнителей. Отметим, что техника параметрического преобразования частоты

вверх (ап-конверсия), применяемая для обнаружения слабых сигналов в ИК области спектра [19], оказывается весьма эффективной при использовании фемтосекундных импульсов. Она может обеспечить более высокую чувствительность приема по сравнению с прямым детектированием и радикально улучшить пространственное разрешение за счет возникающего при ней стробирования обратного сигнала, что принципиально важно для выявления локальных точечных источников загрязняющих выбросов типа трещин в трубопроводах.

Работа выполнена при частичной финансовой поддержке РФФИ (грант 00-02-17269).

1. Межерис Р. *Лазерное дистанционное зондирование* (М., Мир, 1987, с. 559).
2. Sigrist M.V. (ed.) *Air monitoring by spectroscopic technique (Chemical Analysis Series)* (N.Y., J.Wiley & Sons, 1994, v.127, p.320).
3. Зуев В.В., Зуев В.Е. *Лазерный экологический мониторинг газовых компонентов атмосферы* (Итоги науки и техники. Сер. Метеорология и климатология. М., ВИНТИ, 1992, т.20, с.187).
4. Холодных А.И., Быков И.В., Давыдов А.В., Житов А.Н. *Ж. аналитической химии*, **54**, 934 (1999).
5. Byer R. (ed.) *Remote sensing by fouries transform spectrometry (Chemical Analysis Series)* (N.Y., J.Wiley & Sons, 1992, v.120, p.240).
6. Agroskin V.Ya., Vasiliev G.K., Guziev V.I., Zhitov A.N. *Phys. Vibration*, **60**, 209 (1996).
7. Житов А.Н., Супрун И.П., Холодных А.И. *Тез. докл. V Междуна. научно-техн. конф. «Оптические методы исследования потоков»* (М., изд-е МЭИ, 1999, с.158).
8. Grant W.B., Kagan R.H., McClenny W.A. *J. Air Waste Manag. Assoc.*, **42**, 18 (1992).
9. Гордиенко В.М., Михеев П.М., Прялкин В.И. *Квантовая электроника*, **28**, 37 (1999).
10. *Параметрические генераторы света и пикосекундная спектроскопия*. Под ред. А.Пискарскаса (Вильнюс, Москлас, 1983).
11. Woste L., Wedekind C., Wille H. et al. *Proc. XI Intern. Conf. on Ultrafast Phenomena* (Berlin, Springer, 1998, v. 63, p.118).
12. Jonusauskas G., Oberle J., Rulliere C. *Optics Letts*, **23**, 1918 (1998).
13. Dmitriev V.G., Gurzadyan G.G., Nikogosyan D.N. *Handbook of nonlinear optical crystals* (Berlin, Springer, 1997).
14. Murray E.R. *Opt.Engng*, **16**, 284 (1992).
15. *Фотоприемники видимого и ИК диапазонов*. Под ред. Р.Кисс (М., Радио и связь, 1985).
16. Griffiths P.R. *Proc. SPIE*, **2089**, 2 (1994).
17. Flanigan D. *Appl. Optics*, **36**, 7027 (1997).
18. Edner H., Sandsten J., Saito Y., Svanberg S., Weibring P. *Techn. Digest of CLEO/Pacific Rim '99* (Seoul, Korea, 1999, v.2, p.577).
19. Цернике Ф., Мидвинтер Дж. *Прикладная нелинейная оптика* (М., Мир, 1976, с.261).

V.M.Gordienko, A.I.Kholodnykh, V.I.Pryalkin. New potentialities of a broadband femtosecond optical parametric oscillator for remote sensing multicomponent aerosol and gaseous atmospheric pollutions.

An analysis is made of a lidar designed on the basis of a broadband repetitively pulsed IR parametric oscillator for monitoring multicomponent aerosol and gaseous atmospheric pollutions. It is shown that efficient parametric generation of femtosecond IR radiation can be obtained in a scheme using the properties of group velocity matching.