

07

Исследование влияния явления конденсации спектра излучения на внутрирезонаторный лазерный спектральный анализ

© А.П. Савикин, В.Б. Цареградский

Нижегородский государственный университет им. Н.И. Лобачевского

Поступило в Редакцию 31 марта 1998 г.

Разработана модель конденсации спектра лазерного излучения (КСИ) в спектральной области линий поглощения исследуемого вещества на основе частотно-зависимой поглощающей внутрирезонаторной линзы, объясняющая большинство спектральных эффектов явления конденсации. Показано, что экспериментальное проявление КСИ заключается, в общем случае, в деформации контура провала в спектре излучения лазера. Рассмотрена возможность определения концентрации поглощающего вещества по измерению спектрального положения максимума конденсированной линии.

Введение

В широкополосном варианте метода ВРЛС информацию об исследуемом объекте получают, анализируя форму и интенсивность контура линий поглощения (провалов в спектре генерации лазера на месте линий поглощения). Высокая чувствительность спектра излучения к внесенным частотно-зависимым потерям, быстрота проведения анализа определили широкое применение внутрирезонаторного метода при исследовании слабо поглощающих сред. В период формирования метода экспериментально было зарегистрировано увеличение выходной интенсивности лазерного излучения в спектральных областях, соответствующих линиям поглощения газообразной среды, помещенной внутри резонатора широкополосного лазера [1]. В некоторых случаях спектр излучения лазера схлопывался до узких линий, спектральное положение которых с той или другой стороны относительно центра линии поглощения имело непредсказуемый характер.

Данное явление, привлекающее внимание многих исследователей, получило впоследствии название конденсации спектра излучения (КСИ).

Ранее [2] было показано, что одновременно наличие двух зависимостей показателя преломления: спектральной — вследствие селективного поглощения и геометрической — вследствие радиального градиента концентрации поглощающего вещества, обуславливает линзовость внутрирезонаторной поглощающей среды.

Таковыми свойствами обладают, например, газовый разряд в трубке He–Ne лазера ОКГ-13 с диаметром капилляра 1.8–2.0 mm и пары щелочных металлов в трубчатой печи графитового атомизатора, которые мы использовали в наших экспериментах.

Механизм конденсации был объяснен с точки зрения изменения потерь. Проведенный анализ устойчивости конфигурации двухзеркального резонатора с поперечной неоднородностью показателя преломления селективно поглощающей среды [3] показал, что причиной увеличения спектральной мощности выходного излучения является уменьшение суммарных потерь (за счет дифракционных) для мод резонатора, расположенных в спектральных областях линий поглощения, по сравнению с потерями мод пустого резонатора.

Разработанная модель конденсации на основе частотно-зависимой поглощающей внутрирезонансной линзы объясняет большинство спектральных эффектов КСИ, как в проведенных нами, так и в экспериментах других исследователей.

Зависимость спектра лазерного излучения от характеристик поглощающей среды вблизи резонансных линий предполагает возможность использования КСИ в спектральном анализе. В ряде случаев это может быть несколько предпочтительнее, чем изменение относительной глубины провалов внутрирезонаторным методом. Тем более это относится к интенсивным резонансным линиям, которые полностью гасят генерацию.

Эксперимент и обсуждение результатов

Эксперименты проводились с импульсным лазером на этанольных растворах органических красителей. Накачка осуществлялась импульсами второй гармоники YAG: Nd⁺³ лазера под углом в несколько градусов к продольной оси двухзеркального резонатора.

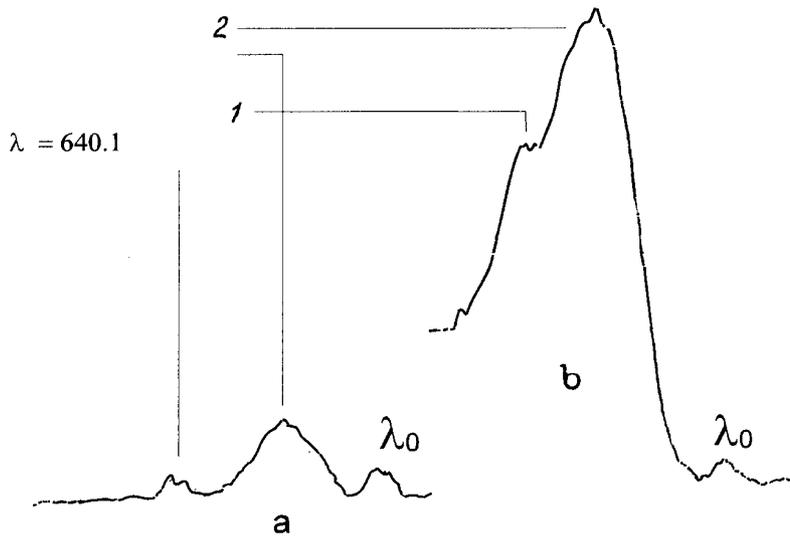


Рис. 1. Конденсация спектра излучения лазера на красителе в области поглощения Ne $\lambda_0 = 640.23$ nm ($\Delta\lambda_e = -0.057$ nm): *a* — периферия пучка; *b* — центр пучка; 1 — эмиссионная линия; 2 — конденсированная линия.

Как показал эксперимент, величина внутрирезонаторного поля не оказывает заметного влияния на спектральное положение линии конденсации. Конденсированная линия находится на одинаковом расстоянии от центра линии поглощения как на спектре выходного излучения, соответствующего оси пучка, так и на периферии пучка (рис. 1).

В ВРЛС анализе чувствительность (относительная глубина провалов в спектре генерации) сильно зависит от степени превышения величины накачки над пороговым значением [4].

Кроме того, как в [4], так и в наших экспериментах показано, что превышение ширины аппаратной функции монохроматора над шириной линии поглощения приводит к снижению чувствительности метода ВРЛС и к существенным ошибкам при количественных измерениях.

Это связано с тем, что при недостаточной разрешающей способности спектральной аппаратуры на фотоприемник попадает излучение как

совпадающих с линией поглощения спектральных участков $\Delta\nu_{abs}$, так и свободных $\Delta\nu_{las}$. Чем меньше разрешающая способность монохроматора, тем больше отношение $\Delta\nu_{las}/\Delta\nu_{abs}$, тем меньше относительная глубина провалов в спектре генерации при одинаковых количествах поглощающего вещества.

По полученным в эксперименте с помощью метода скрещенных дисперсий дифракционного монохроматора и интерферометра Фабри–Перо ВРЛ спектрам были сделаны оценки населенностей подуровней метастабильного состояния $1S$ Ne в газовом разряде, величина которых находится в хорошем соответствии с данными работы [5].

В таблице приведен ряд параметров для трех близко расположенных спектральных линий.

λ , nm	640.225	633.443	638.299
Переход	$1S_5 \rightarrow 2P_9$	$1S_5 \rightarrow 2P_8$	$1S_4 \rightarrow 2P_7$
f	0.37	0.08	0.17
Nf , cm^{-3}	$6 \cdot 10^{11}$	$1.3 \cdot 10^{11}$	$1 \cdot 10^{11}$
$\Delta\lambda_e$, nm	$0.03 \div 0.07$	0.014	0.01

Видно, что удаление максимума конденсированной линии от центра линии поглощения пропорционально интенсивности перехода Nf , поэтому представляется возможным определять концентрации вещества или вероятности перехода по измерению $\Delta\lambda_e$.

Спектрограф ДФС-8 позволяет проводить измерение длины волны с точностью не хуже $5 \cdot 10^{-3}$ nm, что обуславливает ошибку в измерении Nf около 1%.

В [6] было показано, что спектральная зависимость фокусного расстояния селективной газовой линзы определяется показателем преломления среды в области линии поглощения с длиной волны λ_0 :

$$F(\lambda) = \frac{a^2 \alpha}{8l} \frac{\Delta\lambda}{N_m f_{mn}} \frac{9n}{9m}, \quad (1)$$

где a — диаметр трубки, l — ее длина, $\alpha = \frac{4\pi mc^2}{l^2 \lambda_0^3}$, g_m , g_n — статистические веса нижнего и верхнего уровней перехода с силой осциллятора f_{mn} ; $\Delta\lambda = \lambda - \lambda_0$.

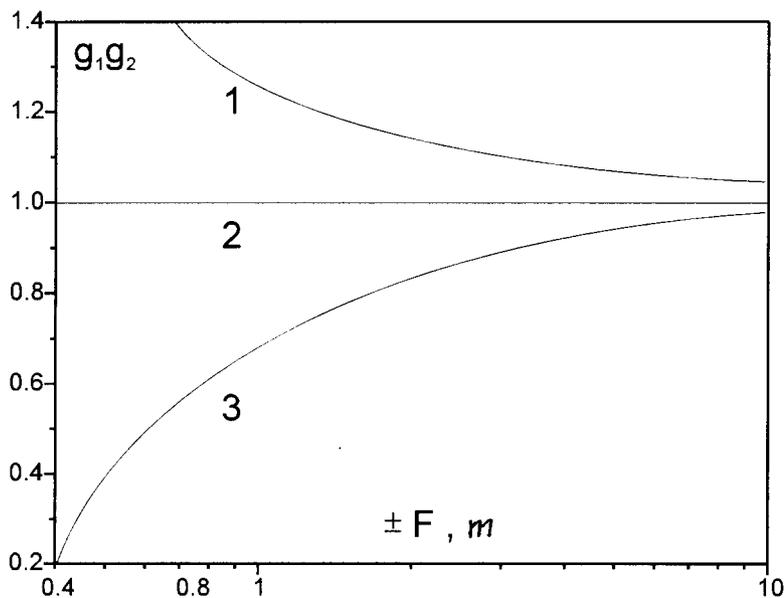


Рис. 2. Зависимость $g_1g_2(F)$ для резонатора с плоскими зеркалами. $L = 0.3$ м, $l = 0.04$ м, $l_1 = 0.1$ м, $l_2 = 0.26$ м. Фокусное расстояние внутрирезонаторной линзы: 1 — $F < 0$; 2 — $F = \infty$; 3 — $F > 0$.

Главные плоскости системы совпадают с центром поглощающей ячейки. Оптическая сила линзы пропорциональна $N_m f$ перехода и с удалением от центра линии поглощения уменьшается. Измерив в эксперименте спектральное положение конденсированной линии и проведя оценку зависимости конфигурационных параметров от оптической силы ВР линзы, можно найти параметры перехода.

По этой методике были сделаны оценки концентрации паров натрия в графитовом атомизаторе.

Резонатор лазера на этанольном растворе родамина-6Ж был образован плоскими клиновидными зеркалами. Незаполненный резонатор ($r_{1,2} = \infty$) находится на границе устойчивости. Параметры g_1g_2 для

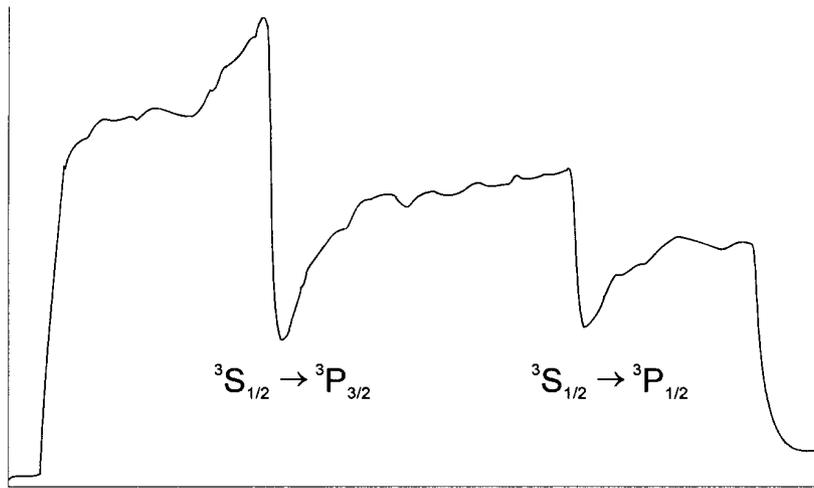


Рис. 3. Конденсация спектра излучения родаминового лазера в области линий поглощения атомарного натрия.

резонатора с ВР линзой имеют вид [6]

$$g_1 = 1 - \frac{l_2}{F} - \frac{l}{2F} = 1 - \frac{2l_2 + l}{2F},$$

$$g_2 = 1 - \frac{2l_1 + l}{2F}. \quad (2)$$

Для оценки устойчивости резонатора зададимся следующими параметрами: длина резонатора $L = 0.3$ м; длина графитового стержня атомизатора $l = 0.04$ м; расстояние между торцами стержня и глухим и выходным зеркалами $l_1 = 0.1$ м, $l_2 = 0.26$ м соответственно:

$$g_1 g_2 = (1 - 0.28/F)(1 - 0.12/F). \quad (3)$$

Графическая зависимость $g_1 g_2(F)$ приведена на рис. 2. Положительная линза при всех реальных значениях F переводит резонатор в область устойчивости, постепенно ($F \rightarrow \infty$) приближаясь к границе $g_1 g_2 = 1$. Дифракционные потери при этом уменьшаются. Отрицательная линза

выводит резонатор в область $g_1g_2 > 1$ с большими дифракционными потерями. Следовательно, конденсация в осесимметричном съюстированном резонаторе должна наблюдаться лишь с одного крыла линии поглощения.

Согласно проведенным исследованиям [6], тепловая линза, наводимая в лазерной среде под действием излучения накачки, вследствие инерционности процесса образования не успевает оказывать свое действие на конденсацию. В [3] было показано, что наличие пространственной неизотермичности в поперечном сечении трубчатой печи графитового атомизатора, поглощающие пары образуют селективную газовую линзу, являющуюся рассеивающей с длинноволнового крыла и собирающей на коротковолновом крыле линии поглощения. Вследствие этого КСИ чаще будет реализовываться на $\lambda = \lambda_0 - \Delta\lambda$.

На расстоянии $\Delta\lambda \simeq 0.12 \text{ nm}$ от центра линии поглощения перехода натрия $3^2S_{1/2} - 3^2P_{1/2}^0$ $f = 1.03$ на $\lambda = 588.995 \text{ nm}$ усиление интенсивности генерации уже не наблюдается (рис. 3). Из зависимости $g_1g_2(1/F)$ (2) видно, что при $F = 10 \text{ m}$ $g_1g_2 = 0.96$, т.е. почти сравнимо с $g_1g_2 = 1$. Используя выражение (1), получаем значение $Nf \simeq 5 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-3}$. Учитывая силу осциллятора перехода, получаем концентрацию $N \simeq 5 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-3}$. Эта концентрация соответствовала содержанию натрия в анализируемом объеме (объем внутренней полости трубчатой печи $V \simeq 0.5 \text{ cm}^3$, масса $m \simeq 10^{-9} \text{ g}$).

Заключение

Несмотря на то что приведенные оценки носят предварительный характер и требуют дополнительных измерений, подход к явлению конденсации с точки зрения потерь оказался плодотворным. Удалось не только объяснить увеличение спектральной мощности, но и выявить ряд дополнительных деталей в явлении КСИ. Оказалось, что этому явлению присуще не только увеличение, но и дополнительное к абсорбционному уменьшение интенсивности. Спектральная зависимость селективных дифракционных потерь вследствие соответствующей зависимости конфигурационных параметров резонатора с селективной газовой внутррезонаторной линзой представляет собой сочетание протяженных участков повышенной и пониженной интенсивности спектра генерации в области крыльев линий поглощения (рис. 3).

Таким образом, конденсация в общем случае проявляется в деформации контура провала в спектре излучения лазера. Повышение спектральной мощности излучения лазера при наличии конденсации может иметь различную величину и наблюдаться на достаточно широком спектральном участке. В нашем эксперименте [3] искажение контура линии поглощения, заключающееся в более крутом склоне провала и в более пологом (по сравнению с неискаженным контуром) противоположном склоне, наблюдалось до малых концентраций поглощающего вещества, вплоть до $10^{-9} \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$.

Поэтому при проведении количественного анализа методом ВРЛС необходимо оценивать спектральную зависимость конфигурационных параметров используемой лазерной системы, а также стремиться к ослаблению линзовости поглощающей среды.

Список литературы

- [1] *Runge P.K.* // Opt. Commun. 1971. V. 4. N 3. P. 195–198.
- [2] *Морозов О.С., Савикин А.П., Цареградский В.Б.* // Тезисы докладов. Нелинейные и когерентные эффекты в методе ВРЛС. Кировоград, 1988. С. 24.
- [3] *Morozov O.S., Savikin A.P., Tzaregradsky V.B.* // Laser Physics. 1995. V. 5. P. 899–909.
- [4] *Лукьяненко С.Ф., Макогон М.М., Симица Л.Н.* Внутррезонаторная лазерная спектроскопия. Основы метода и применение. Новосибирск: Наука, 1985. 121 с.
- [5] *Спектроскопия газоразрядной плазмы* / Под ред С.Э. Фриша. Л.: Наука, 1970. 362 с.
- [6] *Гурьев В.А., Малышев М.С., Савикин А.П.* // Голография: теоретические и прикладные вопросы. 1995. С. 200–209.