

文章编号: 0258-7025(2005)05-0655-04

# 光学谐振腔增强碘分子调制转移光谱

陈艳萍, 蒋燕义, 毕志毅\*, 马龙生

(华东师范大学物理系光谱学与波谱学教育部重点实验室, 上海 200062)

**摘要** 提出了一种新的高灵敏激光光谱技术——激光双频相位调制环形腔增强调制转移光谱技术。该技术采用单一晶体实现激光双频相位调制, 在满足环形腔高精度锁定的同时, 又结合了调制转移光谱技术的高灵敏度、高分辨率、无多普勒背景的优点和环形谐振腔增强技术在提高谱线信噪比方面的优势; 由此, 实验观察到 $^{127}\text{I}_2$  分子在 532 nm 波段高信噪比的超精细结构光谱。与传统调制转移光谱技术相比, 该技术在提高微弱吸收光谱信号的探测灵敏度方面具有明显的优势, 在高灵敏、高分辨光谱检测和激光稳频方面将有很好的应用前景。

**关键词** 光谱学; 调制转移光谱; 腔内吸收增强; 双频相位调制

**中图分类号** O433.5<sup>+</sup>4 **文献标识码** A

## Modulation Transfer Spectroscopy of $\text{I}_2$ Enhanced by an External Optical Cavity

CHEN Yan-ping, JIANG Yan-yi, BI Zhi-yi, MA Long-sheng

(Key Laboratory of Optics and Magnetic Resonance Spectroscopy, Department of Physics,  
East China Normal University, Shanghai 200062, China)

**Abstract** A novel high sensitive laser spectroscopy technique, double-frequency phase modulation ring-cavity enhanced modulation transfer spectroscopy, is presented. Using ring-cavity absorption enhancement and double-frequency phase modulation with one crystal, this technique combines the advantages of high sensitivity, high resolution, Doppler-free with modulation transfer spectroscopy and high signal to noise ratio with ring-cavity enhancement technique. The hyperfine spectrum of molecular  $^{127}\text{I}_2$  with high signal to noise ratio was observed at 532 nm. The experimental results show that this new spectroscopy technique enhances detection sensitivity greatly compared with traditional modulation transfer spectroscopy. It is promising for improvements of ultrasensitive spectroscopy and laser frequency stabilization.

**Key words** spectroscopy; modulation transfer spectroscopy; cavity-enhanced absorption; double-frequency phase modulation

### 1 引 言

在许多光谱学研究和应用领域中, 都涉及到对微弱吸收信号的检测。将样品池放在激光腔内对微弱吸收信号有增强作用<sup>[1]</sup>, 但样品会与激光发生多种耦合作用, 许多参量难以控制, 限制了该技术的广泛应用。为此有必要将样品池从激光腔中分离出来, 建立一套外腔吸收增强系统。A. Kastler<sup>[2]</sup>曾提出用法布里-珀罗(F-P)腔作为外腔吸收增强系

统。P. Cerez 等<sup>[3]</sup>采用小功率 612 nm He-Ne 激光器, 成功地用法布里-珀罗腔探测到  $\text{I}_2$  分子的饱和吸收光谱。M. de Labachellerie 等<sup>[4~6]</sup>用法布里-珀罗腔增强技术在 1.5  $\mu\text{m}$  处探测了  $\text{C}_2\text{H}_2$  分子泛频振动能级的饱和吸收光谱。文献[7]将环形腔增强技术与光外差光谱技术相结合, 在 612 nm 处获得了  $\text{I}_2$  分子的超精细结构光谱。美国 JILA 实验室于 1995 年提出了一项新的法布里-珀罗腔噪声免疫光

收稿日期: 2004-01-15; 收到修改稿日期: 2004-04-02

基金项目: 国家自然科学基金(10274020)、上海市科学技术发展基金(01DJGK014, 022261033)、教育部科学技术重点研究项目(02106)和上海市重点学科建设资助项目。

作者简介: 陈艳萍(1978—), 女, 浙江宁波人, 华东师范大学硕士研究生, 主要从事精密激光光谱及激光稳频技术的研究。  
E-mail: helenchenyp@sohu.com

\* 通信联系人。E-mail: zybi@phy.ecnu.edu.cn

谱技术(NICE OHMS),并成功地应用到分子高阶泛频振动光谱和激光稳频技术<sup>[8~11]</sup>的研究上。

在调制转移光谱技术中,由于激光调制频率与分子吸收自然线宽  $\Gamma$  的比值对调制转移光谱信号幅度及谱线中心斜率的影响很大,最佳调制频率约为  $0.7\Gamma$ <sup>[12,13]</sup>;但若采用同一调制频率实现光学谐振腔的锁定,则很难满足激光与腔之间的高精度锁定。在噪声免疫腔增强光外差光谱技术中,使用了两个射频信号源分别驱动两个电光调制器;而且要求锁腔的调制频率严格等于谐振腔的自由光谱程,频率高达数百到上千兆赫兹,因而技术难度和成本都较高。此外,该技术采用的是驻波腔而非环形腔,因而用它所研制的稳频激光器都具有频率调制,从而限制了它的应用范围。

本文采用一种新的高灵敏激光光谱技术——双频相位调制环形光学谐振腔增强调制转移光谱技术,利用单一晶体实现双频相位调制,结合调制转移光谱技术的高灵敏度、高分辨率和无多普勒背景的优点和环形谐振腔增强技术在提高谱线信噪比方面的优势,得到了  $I_2$  分子在 532 nm 波段的超精细结构光谱。与传统调制转移光谱技术相比,它具有显著的信号增强作用。

## 2 理论分析

由比尔-朗伯(吸收)定律(Beer-Lambert law)可知,在直接探测中,功率为  $P_{in}$  的光经过长为  $L$  的样品池后,透射光为

$$P_{out} = P_{in} \exp(-\alpha L) \approx P_{in} (1 - \alpha L),$$

吸收信号为  $P_{in} \alpha L$ ,其中  $\alpha$  为样品分子的吸收系数。而散粒噪声取决于输出光的功率,在弱吸收的情况下有  $P_{out} \approx P_{in}$  成立,所以直接探测时的信噪比为

$$\left(\frac{S}{N}\right)_{dir} \propto \frac{P_{in} \alpha L}{\sqrt{P_{in}}} = \sqrt{P_{in}} (\alpha L). \quad (1)$$

为了提高信噪比,采用环形光学谐振腔。环形腔的精细度  $F_{cav}$ ,透射率  $T_{cav}$  和腔内功率增强因子  $E_{cav}$  分别表示为<sup>[14]</sup>

$$F_{cav} = \pi / (T + l + \alpha L), \quad (2)$$

$$T_{cav} = [T / (T + l + \alpha L)]^2, \quad (3)$$

$$E_{cav} = T / (T + l + \alpha L)^2, \quad (4)$$

这里  $T$  为环形腔的输入(输出)耦合镜的透射率, $l$  为腔镜和样品池窗片的总损耗, $\alpha L$  为样品分子的单程吸收。把样品池放入该环形腔中,探测光学谐振腔的透射光(功率为  $P_t$ ),其信噪比为<sup>[15]</sup>

$$\left(\frac{S}{N}\right)_{cav} \propto \sqrt{P_t} \frac{2F_{cav}}{\pi} (\alpha L) = \sqrt{T_{cav} P_{in}} \frac{2F_{cav}}{\pi} (\alpha L). \quad (5)$$

若假设样品分子的单程吸收  $\alpha L$  为 0.04,腔镜和样品池窗片的总损耗  $l$  为 0.01,并取  $T = l + \alpha L$ ,则使用环形腔后信噪比的增强因子约为 10。

将样品放入具有适当精细度的环形光学谐振腔内并结合调制转移光谱技术用于探测微弱吸收光谱信号,其优点主要表现在:1) 由于光束在法布里-珀罗腔内的多次反射,腔内样品的有效吸收长度可增加  $2F_{cav}/\pi$  倍,从而直接增强了吸收信号;2) 由于法布里-珀罗腔具有储能作用,腔内激光功率也增强了  $F_{cav}/2\pi$  倍(当  $T = \alpha L + l$  时)。因而可使用小功率的激光源探测那些需要高功率才能饱和的微弱跃迁信号,同时入射到探测器上的透射光功率也不至于过大,使探测系统有较低的噪声;3) 由于环形腔对腔内两个方向传播的光束有很好的准直和波阵面匹配的特性,因而可减少谱线中心的位移,提高光谱测量的精度和稳定度;4) 由于环形腔是行波腔,用调制转移光谱技术可实现抽运光与探测光的完全分离,通过调整两者的光强比可获得光谱信号最大信噪比。

## 3 实验装置及结果

### 3.1 实验装置

双频相位调制环形光学谐振腔增强的调制转移光谱的实验装置如图 1 所示。

实验中使用的 532 nm 激光源是自行研制的激光二极管抽运 Nd:YVO<sub>4</sub> 经 KTP 晶体腔内倍频的微型固体激光器<sup>[13]</sup>。从激光器输出的光束经过  $\lambda/2$  波片后被偏振分束棱镜 PBS1 分成偏振方向互相正交的两束光,旋转  $\lambda/2$  波片的光轴可以调节两个偏振方向的光强比。其中垂直偏振的抽运光通过电光相位调制器(EOM)调制后经反射镜  $M_0$  进入环形光学谐振腔,其反射光经分束棱镜 PBS2 进入探测器 det1,再由双平衡混频器 DBM1 解调获得环形腔的色散型谱线作为鉴频信号,通过伺服控制系统把环形腔的共振频率跟随锁定在激光频率上;未调制的水平偏振光作为探测光经  $M_0$  进入环形腔与抽运光反向同轴通过样品池。当腔的共振频率锁定在激光频率上时,抽运光和探测光由于腔的增强作用都得到增强。因此  $I_2$  蒸气中的四波混频作用也得到增强,从而在探测光中产生了新的边带,即发生了调制转移。考虑到新产生的边带与腔是近共振的,因此同样会得到增强。探测光

(连同其新边带)由  $M_0$  透射后经过分束棱镜 PBS3 进入探测器 det2, 通过双平衡混频器 DBM2 解调后获得  $I_2$  分子的调制转移超精细结构谱线。为了使绝大部

分入射能量耦合到腔的一个纵模上, 置于光路中的凹面镜  $M_1$  和  $M_2$  的曲率及位置必须满足入射光与环形腔的模式匹配条件。

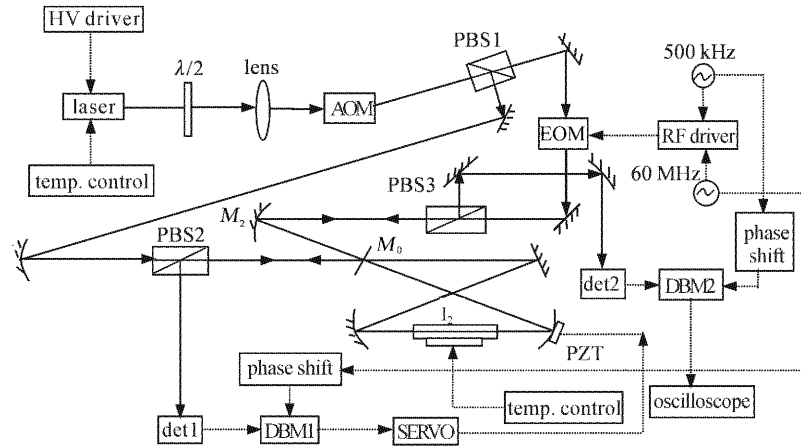


图 1 双频相位调制环形腔增强的调制转移光谱实验装置

Fig. 1 Setup of the modulation transfer spectroscopy of  $I_2$  enhanced by an external optical cavity

### 3.2 实验结果

实验中声光调制器 AOM 作为光隔离器, 其调制频率为 80 MHz。电光相位调制器 EOM 采用单个  $MgO:LiNbO_3$  晶体实现双频相位调制, 对应产生两组调制边带 60 MHz 和 500 kHz, 分别用于光学谐振腔相对激光频率的锁定及调制转移光谱信号的检测。 $I_2$  样品池长为 5 cm, 温度为  $-4^\circ C$ , 对应的压强为 2.6 Pa, 采用两个串接的半导体致冷片控制样品池的温度以间接控制  $I_2$  蒸气的压强。环形腔入射镜  $M_0$  的透射率  $T_0 = 5\%$ , 其他三个腔镜的反射率都约为 99%, 腔长为 50 cm, 自由光谱程为 600 MHz。在样品有共振吸收出现荧光时, 测得腔的精细度为 30, 腔的半峰全宽约为 20 MHz。进入环形腔的抽运光(调制光)和探测光(未调制光)的功率分

别为  $400 \mu W$  和  $100 \mu W$ 。图 2(a) 是由 DBM1 解调后的环形腔的色散型信号, 图 2(b) 是环形腔锁定后的误差信号。图 3 是实验获得的  $I_2$  分子调制转移光谱超精细结构谱线。其中图 3(a) 是本实验得到的腔增强调制转移光谱信号, 样品池长 5 cm, 温度  $-4^\circ C$ , 抽运光功率  $400 \mu W$ , 探测光功率  $100 \mu W$ , 调制频率 500 kHz, 带宽 10 kHz, 信噪比约为 50; 图 3(b) 是采用常规的调制转移光谱技术获得的信号<sup>[16]</sup>, 样品池长 40 cm, 温度  $-8^\circ C$ , 抽运光功率 1.07 mW, 探测光功率 0.13 mW, 调制频率 312.5 kHz, 带宽 10 kHz, 信噪比约为 15。

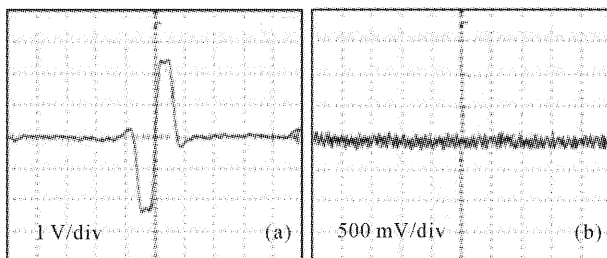


图 2 环形腔的 (a) 色散型信号和 (b) 锁定误差信号 (调制频率 60 MHz, 检测系统带宽 10 kHz)

Fig. 2 (a) The dispersion signal of the ring cavity, (b) the error servo signal of the ring cavity (the modulation frequency was 60 MHz, the bandwidth of detection system was 10 kHz)

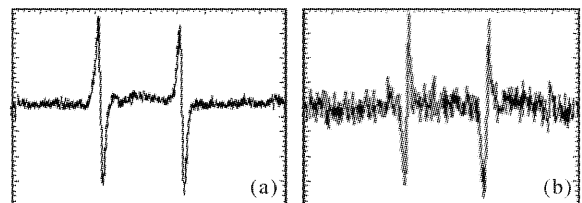


图 3  $I_2$  分子的调制转移光谱

(a) 腔增强调制转移光谱信号, (b) 无增强的调制转移光谱信号

Fig. 3 Modulation transfer spectroscopy (MTS) of molecular iodine.

(a) MTS enhanced by cavity, (b) MTS without cavity

## 4 讨 论

比较图 3(a) 和 (b) 及相应的实验条件可以看出, 由于采用了光学谐振腔增强技术, 尽管 (a) 中的样品池的长度只有 (b) 中的 1/8, 而且抽运光和探测

光的功率也较(b)小,但是其信噪比却较(b)有明显的提高。由此可见,光学谐振腔对信号的增强作用是十分明显的。本实验中环形谐振腔的精细度只有30,而谐振腔的精细度反比于腔内损耗,若进一步减小腔内损耗,提高腔的精细度,合理选择环形光学谐振腔各镜片的参量和 I<sub>2</sub> 样品池的温度,可望进一步提高光谱信号的信噪比。

为了提高光学谐振腔的锁定精度,需增大频率调制(FM)光谱色散信号的斜率<sup>[17]</sup>

$$\left. \frac{\partial I}{\partial x} \right|_{x=0} = 4J_0(m_{\text{opt}})J_1(m_{\text{opt}})/(\omega_m/\Delta_{1/2}), \quad (6)$$

其中 J<sub>0</sub> 和 J<sub>1</sub> 是零阶和一阶贝塞尔函数,ω<sub>m</sub> 是频率调制光谱的调制频率,Δ<sub>1/2</sub> 是光学谐振腔透射谱的半峰半线宽,m<sub>opt</sub> 是最佳调制度,当 ω<sub>m</sub>/Δ<sub>1/2</sub> ≥ 1 时,m<sub>opt</sub> = 1.2。由此可见,在腔的参量已定的情况下,适当减小 ω<sub>m</sub> 可增大频率调制光谱色散信号斜率。但是,为了避免频率调制光谱的边带对环形腔内样品调制转移信号(调制频率为500 kHz)的影响,又不能让其耦合进入腔内,因此,我们选用的 ω<sub>m</sub> = 60 MHz恰好落在腔的透射谱边缘,解决了这个矛盾。

## 5 结 论

采用双频相位调制环形光学谐振腔增强调制转移光谱技术得到了 I<sub>2</sub> 分子在 532 nm 波段的超精细结构光谱。通过对实验结果的对比可以看出,光学谐振腔增强调制转移光谱技术与传统的调制转移光谱技术相比,在提高探测灵敏度方面具有明显的优势;同时腔增强技术使得用小的输入光功率得到高的信噪比成为可能,这在精密光谱测量、激光稳频技术和高灵敏探测方面将有很好的应用前景。

## 参 考 文 献

- 1 T. W. Hänsch, A. L. Schawlow, P. E. Toschek. Ultrasensitive response of a CW dye laser to selective extinction [J]. *IEEE J. Quantum Electron.*, 1972, **QE-8**(10): 802~805
- 2 A. Kastler. Atomes a l'interieur d'un interferometre Perot-Fabry [J]. *Appl. Opt.*, 1962, **1**(1): 17~24
- 3 P. Cerez, A. Brillat, C. N. Man-Pichot *et al.*. He-Ne lasers stabilized by saturated absorption in iodine at 612 nm[J]. *IEEE Trans. Instrum. & Meas.*, 1980, **29**(4): 352~354
- 4 M. de Labachellerie, K. Nakagawa, M. Ohtsu. Ultranarrow <sup>13</sup>C<sub>2</sub>H<sub>2</sub> saturated-absorption lines at 1.5 μm[J]. *Opt. Lett.*, 1994, **19**(11): 840~842
- 5 M. de Labachellerie, K. Nakagawa, Y. Awaji *et al.*. High-frequency-stability laser at 1.5 μm using Doppler-free molecular lines[J]. *Opt. Lett.*, 1995, **20**(6): 572~574
- 6 K. Nakagawa, M. de Labachellerie, Y. Awaji *et al.*. Accurate optical frequency atlas of the 1.5-μm bands of acetylene[J]. *J. Opt. Soc. Am. B*, 1996, **13**(12): 2708~2714
- 7 Ma Longsheng, J. L. Hall. Optical heterodyne spectroscopy enhanced by an external optical cavity: toward improved working standards[J]. *IEEE J. Quantum Electron.*, 1990, **26**(11): 2006~2012
- 8 Ye Jun, Ma Longsheng, J. L. Hall. Sub-Doppler optical frequency reference at 1.064 μm by means of ultrasensitive cavity-enhanced frequency modulation spectroscopy of C<sub>2</sub>HD overtone transition[J]. *Opt. Lett.*, 1996, **21**(13): 1000~1002
- 9 Ye Jun, Ma Longsheng, J. L. Hall. Ultrastable optical frequency reference at 1.064 μm using a C<sub>2</sub>HD molecular overtone transition [J]. *IEEE Trans. Instrum. & Meas.*, 1997, **46**(2): 178~182
- 10 Ye Jun, Ma Longsheng, J. L. Hall. Ultrasensitive detections in atomic and molecular physics: demonstration in molecular overtone spectroscopy[J]. *J. Opt. Soc. Am. B*, 1998, **15**(1): 6~15
- 11 Ma Longsheng, Ye Jun, P. Dube *et al.*. Ultrasensitive frequency-modulation spectroscopy enhanced by a high-finesse optical cavity: theory and application to overtone transitions of C<sub>2</sub>H<sub>2</sub> and C<sub>2</sub>HD [J]. *J. Opt. Soc. Am. B*, 1999, **16**(12): 2255~2268
- 12 Bi Zhiyi, Ding Liang'en, Ma Longsheng. Theoretical calculation for modulation transfer spectroscopy [J]. *Acta Physica Sinica*, 1993, **42**(4): 582~591  
毕志毅,丁良恩,马龙生. 调制转移光谱线型的理论计算[J]. *物理学报*, 1993, **42**(4): 582~591
- 13 Liu Tao, Li Liping, Yan Shubin *et al.*. Experimental investigation of modulation transfer spectrum of cesium D<sub>2</sub> line [J]. *Chinese J. Lasers*, 2003, **30**(9): 791~794  
刘涛,李利平,闫树斌等. 铯原子 D<sub>2</sub> 线调制转移光谱的实验研究[J]. *中国激光*, 2003, **30**(9): 791~794
- 14 C. Ishibashi, Ye Jun, J. L. Hall. Issues and applications in ultra-sensitive molecular spectroscopy[C]. *SPIE*, 2002, **4634**: 58~68
- 15 Ye Jun. Ultrasensitive high resolution laser spectroscopy and its application to optical frequency standards[D]. University of Colorado, U. S. A. 1997
- 16 Bi Zhiyi, Luo Ming, Ding Jinxin *et al.*. Modulation transfer spectrum using Nd:YVO<sub>4</sub> minilaser[J]. *Acta Optica Sinica*, 2000, **20**(12): 1699~1703  
毕志毅,罗明,丁晶新等. 微型 Nd:YVO<sub>4</sub> 激光器在碘分子调制转移光谱中的应用[J]. *光学学报*, 2000, **20**(12): 1699~1703
- 17 Dieter Hils, J. L. Hall. Response of a Fabry-Perot cavity to phase modulated light[J]. *Rev. Sci. Instrum.*, 1987, **58**(8): 1406~1412