

文章编号: 0258-7025(2006)11-1496-05

调制转移光谱的最佳吸收程

曹云玖, 蒋燕义*, 毕志毅

(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 调制转移光外差光谱信号的信噪比(SNR)和中心斜率与吸收程等有关。采用吸收程微元叠加法——把吸收程分成 n 段, 计算出每一段产生的调制转移光谱信号元, 再对 n 求和得到总的调制转移光谱信号。利用该方法, 理论上研究了调制转移光谱信号相对强度及中心斜率随吸收程的变化, 得到最佳吸收程。实验上比较了碘池温度为 $-15\text{ }^{\circ}\text{C}$ 时一倍程(40 cm), 二倍程(80 cm), 三倍程(120 cm)和四倍程(160 cm)的光谱信号信噪比和谱线中心斜率, 得到三倍程时信号信噪比和谱线中心斜率为最大, 估算得到相应的激光稳频精度为 9×10^{-14} (1 s 积分时间)。通过吸收程优化过程获得的调制转移光谱信号用于激光频率稳定控制, 有望获得更高的稳频精度。

关键词 光谱学; 调制转移光谱; 优化吸收程; 多倍光程

中图分类号 O 433.5⁺4 **文献标识码** A

Absorption Length of Modulation Transfer Spectroscopy

CAO Yun-jiu, JIANG Yan-yi, BI Zhi-yi

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

Abstract Absorption length has an influence on signal to noise ratio (SNR) and slope of modulation transfer spectra. An equation of modulation transfer spectroscopy was derived by dividing absorption length into n units and integrating signal of every unit. Theoretically the relative signal intensity and central slope of spectrum with different absorption length were calculated according to the equation, from which optimal absorption length was obtained. Finally both SNR and slope of modulation transfer spectra of I_2 with different absorption length were compared experimentally while I_2 cell temperature was held at $-15\text{ }^{\circ}\text{C}$. The results of comparison showed that modulation transfer spectra was optimal at three-pass (120 cm). The frequency stability of 9×10^{-14} at 1 s integration time at three-pass was estimated. So it is promising for improvement of laser frequency stability when modulation transfer spectra with optimal absorption length are used in laser frequency control.

Key words spectroscopy; modulation transfer spectroscopy; optimizing absorption length; multi-pass

1 引言

调制转移光外差光谱技术具有高灵敏度、高分辨率和无多普勒背景等特点, 常被用于高精度激光稳频控制。目前, 国内外许多实验室都采用调制转移光外差光谱激光稳频技术建立了碘分子固体激光稳频系统^[1~4]。在这类激光稳频系统中, 提高光谱

信号的信噪比(SNR)和中心斜率是提高激光稳频控制精度的关键^[5]。通常采用降低碘吸收池温度并减小电光相位调制频率的方法来提高光谱线的中心斜率, 但是随着碘池温度的降低, 碘分子的吸收减小, 信号强度随之减小导致光谱信号信噪比降低。增加吸收程是提高信号强度和信噪比的有效方法。一些

收稿日期: 2006-02-13; 收到修改稿日期: 2006-05-31

基金项目: 国家自然科学基金(60490280)和上海市科学技术委员会(04JC14086, 04DZ14009)资助项目。

作者简介: 曹云玖(1978—), 男, 江苏溧阳人, 华东师范大学物理系硕士研究生, 主要从事精密激光光谱及激光稳频技术的研究。E-mail: caoyunjiu@163.com

导师简介: 毕志毅(1956—), 男, 上海人, 华东师范大学物理系教授, 主要从事精密激光光谱及激光稳频技术的研究。E-mail: zybi@phy.ecnu.edu.cn

* 通信联系人。E-mail: yyjiang@phy.ecnu.edu.cn

实验室已经采用增加碘池长度或使光束多次通过碘池的方法来提高谱线的中心斜率和信噪比,如美国实验室天体物理联合研究所就把碘吸收池长度增加到1.2 m^[6],中国计量科学研究院使光束二次和四次通过长度为45 cm的碘池来增加吸收程^[2]。由于碘池中调制光束和未调制光束的光强比为最佳值时非线性四波混频的效率最高,而随着吸收程的增加及光强的衰减,碘池中调制和未调制光束满足最佳光强比的吸收长度范围减小,这样就会导致信号强度降低和中心斜率减小,所以吸收程并不是越长越好。

本文采用微元叠加的方法——把吸收程分成 n 段,每一段取得足够短,使得其中光强可以视为均匀场强,并计算得到每一段产生的调制转移光谱信号元,最后对 n 求和得到总的调制转移光谱信号。利用该信号公式,主要研究了调制转移光谱信号相对强度和中心斜率随吸收程长度的变化,在光谱信号相对强度及中心斜率最大时得到最佳吸收程。实验上研究比较了不同吸收程的谱线信噪比和中心斜率,并估算了激光频率锁定精度。

2 理论分析

当一束经过光学相位调制器调制的光束 E_2 和未经调制的光束 E_1 如图 1 所示作用于非线性介质时,通过近简并四波混频过程,会在原先未调制光束 E_1 中产生新边带。当未调制光及其新边带被快速光电探测器探测时,得到光外差拍频信号,经平衡混

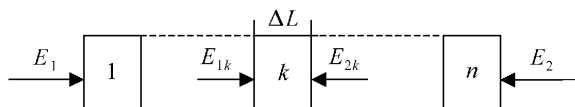


图 1 吸收长度等分 n 段

Fig. 1 Division of absorption length

频器解调获得无多普勒背景的调制转移光外差光谱信号^[7~12]。

未调制光场和调制光场可以分别表示为^[7]

$$E_1 = E_{10} \exp[i(\omega t + kz)] + c. c., \quad (1)$$

$$E_2 \approx E_{20} \{J_0(\beta) \exp[i(\omega t - kz)] + J_1(\beta) \exp[i(\omega + \delta)t - kz] - J_1(\beta) \exp[i(\omega - \delta)t - kz]\} + c. c., \quad (2)$$

式(2)为一阶近似结果,其中 δ 为电光调制器的调制频率, $J_0(\beta)$ 和 $J_1(\beta)$ 为 0 阶和 1 阶贝塞耳函数, β 为调制度。当两束光相向入射到非线性介质中时,由于光束在介质中存在吸收和散射,光强随入射程增加而衰减。将吸收程分成 n 段,每一段长度元为 ΔL ,如图 1 所示,且 ΔL 取得很短时,可以近似认为其中的光强是均匀的。光束每经过 ΔL 长度时,其幅度衰减因子为 $\exp(-\alpha \Delta L/2 \sqrt{1+S})$,其中 α 为吸收系数, S 为饱和度,可以表示为 $S = I/I_0$, I 为实际的光强, I_0 为饱和光强。到达第 k 段的未调制光和调制光的幅度衰减因子分别为 $\exp[-\alpha(k-1)\Delta L/2 \sqrt{1+S_p}]$ 和 $\exp[-\alpha(n-k)\Delta L/2 \sqrt{1+S_s}]$,其中 S_p 和 S_s 分别为未调制光和调制光的饱和度。从而得到第 k 段的未调制光场和调制光场分别为

$$E_{1k} = E_{10} \exp[-\alpha(k-1)\Delta L/2 \sqrt{1+S_p}] \times \exp[i(\omega t + kz)] + c. c., \quad (3)$$

$$E_{2k} \approx E_{20} \exp[-\alpha(n-k)\Delta L/2 \sqrt{1+S_s}] \times \{J_0(\beta) \exp[i(\omega t - kz)] + J_1(\beta) \exp[i(\omega + \delta)t - kz] - J_1(\beta) \exp[i(\omega - \delta)t - kz]\} + c. c., \quad (4)$$

调制光和未调制光在介质的三阶非线性极化作用下,通过四波混频过程,在原来未调制光 E_{1k} 中产生新的边带。根据密度矩阵运动方程,考虑二能级系统,采用微扰理论和旋波近似,得到调制转移边带光场元为

$$\Delta E_{rk}(\omega \pm \delta) = \frac{\pm i N \Delta L E_{10} \exp[-\alpha(k-1)\Delta L/2 \sqrt{1+S_p}] E_{20}^2 \exp[-\alpha(n-k)\Delta L/2 \sqrt{1+S_s}] J_0(\beta) J_1(\beta)}{4 \epsilon_0 u \hbar^3} \times \sum_{j=a,b} \frac{\mu_{ab}^4}{\gamma_j \pm i\delta} \left\{ \frac{1}{\gamma_{ab} + i[\Delta_{ab} \pm (\delta/2)]} + \frac{1}{\gamma_{ab} + i(\Delta_{ab} \pm \delta)} \right\} \times \exp\{i[(\omega \pm \delta)t + kz]\} + c. c., \quad (5)$$

其中, N 表示粒子数布居密度, γ_j 为第 j 能级的粒子数衰减概率, μ_{ab} 为能级 a 与 b 间的偶极跃迁矩阵元, γ_{ab} 为能级 a 与 b 之间的横向衰减概率, u 为粒子平均速度, \hbar 为普朗克常数, $\Delta_{ab} = \omega - \omega_{ab}$ 为激光频率与 a, b 能级间跃迁频率间的失谐量。同样,第 k 段产生

的调制转移边带信号元以及原来的未调制光信号经过一定长度的碘池后到探测器上时都经历了衰减,衰减因子分别为 $\exp[-\alpha(n-k)\Delta L/2]$ 和 $\exp[-\alpha(n-1)\Delta L/2 \sqrt{1+S_p}]$ 。每一段新产生的边带元与未调制光在探测器上拍频得到光电流元 $\Delta i(\delta)$,总的

拍频电流信号为 n 段产生的调制转移边带与未调制光场拍频信号元之和, 为

$$i(\delta) \propto \frac{N\Delta L J_0(\beta) J_1(\beta) E_{10}^2 E_{20}^2}{4\epsilon_0 u \hbar^3} \times \sum_{k=1}^n \exp[-\alpha(k-1)\Delta L/2 \sqrt{1+S_p}] \times \exp[-\alpha(n-k)\Delta L/\sqrt{1+S_s}] \times \exp[-\alpha(n-k)\Delta L/2] \times \exp[-\alpha(n-1)\Delta L/2 \sqrt{1+S_p}] \times \sum_{j=a,b} \frac{\mu_{ab}^4}{\gamma_j + i\delta} \left\{ \frac{1}{\gamma_{ab} + i[\Delta_{ab} + (\delta/2)]} - \frac{1}{\gamma_{ab} - i[\Delta_{ab} - (\delta/2)]} + \frac{1}{\gamma_{ab} - i(\Delta_{ab} - \delta)} - \frac{1}{\gamma_{ab} + i(\Delta_{ab} + \delta)} \right\} + c. c, \quad (6)$$

碘分子超精细结构谱线的线宽可表示为^[13]

$$\Gamma = (\Gamma_n + \Gamma_p + \Gamma_t + \Gamma_l) \frac{\sqrt{1+S_p} + \sqrt{1+S_s}}{2}, \quad (7)$$

其中, Γ_n 表示自然线宽, Γ_p 表示压力加宽, Γ_t 表示渡跃时间加宽, Γ_l 表示激光的线宽。碘分子在 532 nm 波段跃迁的自然线宽 Γ_n 约为 220 kHz。压力加宽可近似为: $\Gamma_p = P \cdot (120 \text{ kHz/Pa})$, 其中 P 为碘池中气体的压强。碘分子的渡跃时间加宽可近似为: $\Gamma_t = 22 \text{ kHz} \cdot \text{mm}/\omega_0$, 其中 ω_0 为激光的光斑半径, 实验中激光的光斑半径一般在 1~2 mm 左右, 计算时取 1 mm。Nd:YAG 激光器的线宽 Γ_l 为 5 kHz。为了减小谱线线宽的功率加宽, 光束的饱和度取值要小, 实验中饱和度一般取在 1~1.5 之间, 计算时未调制光和调制光的饱和度分别取 1 和 1.3。由公式(7)得到当碘池温度降到 -15 °C (气体压强为 0.79 Pa) 左右时, 温度引起的谱线加宽与自然线宽相比较可以忽略, 谱线线宽已接近自然线宽, 因此将碘池温度选在 -15 °C。

在 -15 °C 时按谱线线宽公式(7)计算得到碘分子超精细结构谱线宽约 535 kHz, 计算表明当激光相位调制频率选在谱线线宽的 0.7 倍左右时, 可以得到最大的信号幅度和中心斜率^[7], 由此得到最佳调制频率约为 374 kHz 左右, 碘的吸收系数 α 为 $0.0107 \text{ cm}^{-1}/\text{Pa}$ ^[13], 每段长度 ΔL 取 1 cm。把温度为 -15 °C 时对应的线宽、调制频率、吸收系数以及饱和参数和长度元 ΔL 值代入公式(6), 计算得到信号强度(相对值)随吸收程变化的关系, 再利用公式(6)对频率失谐量求导, 即计算得到调制转移谱线中心斜率(相对值)随吸收程变化的关系, 结果如图 2

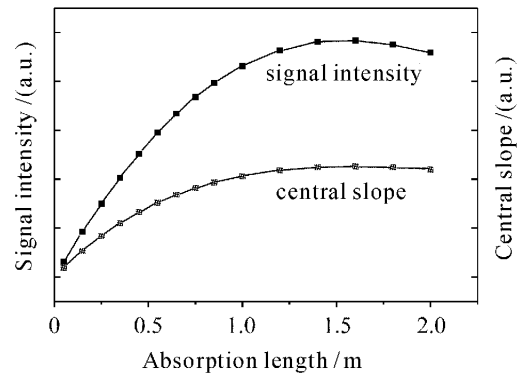


图 2 理论计算调制转移信号的幅度和中心斜率随吸收程的变化关系(-15 °C)

Fig. 2 Relative signal intensity and central slope versus absorption length (-15 °C)

所示。

从图 2 中可以看到信号相对强度和谱线中心斜率随吸收程的增加是先增加后减小。在鉴频信号的强度以及中心斜率最大时, 有利于提高激光稳频控制精度, 综合考虑信号强度与中心斜率的最大值, 得到吸收程在 1.5 m 左右时为最佳。实际情况由于碘池两端窗片存在反射作用, 对调制光、未调制光以及信号光多次往返通过时产生额外衰减, 因此考虑反射时的实际最佳吸收程比理论计算的值要短一些。

3 实验装置

实验装置如图 3 所示, Nd:YAG 激光器输出光经偏振分束棱镜(PBS₁)分为偏振方向相互垂直的两束光, 其中一束经过电光调制器(EOM)为调制光束, 声光调制器(AOM)作为光隔离器。另一束未调制光与调制光束反向进入碘池, 碘池温度由二级半导体制冷片控制。在 I₂ 非线性四波混频作用下实现边带由调制光束向未调制光束的转移。未调制光束和新产生的边带经偏振分束棱镜(PBS₂)导入光

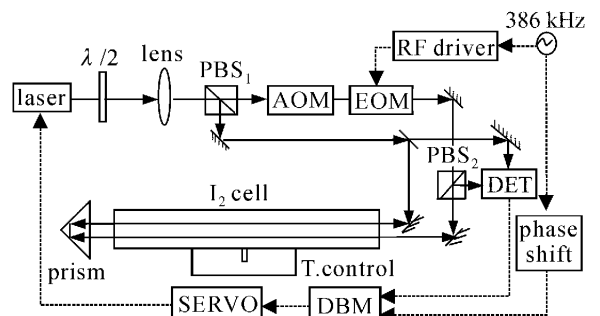


图 3 激光稳频系统实验原理图

Fig. 3 Schematic diagram of laser frequency-stabilized system

电差分探测器(DET),差分探测器能有效地克服激光幅度噪声对光谱信号的影响,通过双平衡混频器(DBM)解调,获得碘分子调制转移光外差光谱作为激光稳频控制的鉴频信号。稳频误差信号经伺服电路(SERVO)和高压放大器控制激光器腔体上的压电陶瓷,从而将 Nd:YAG 激光器频率锁定在碘分子吸收超精细结构谱线上。

4 实验结果和讨论

实验采用的碘池长度为 40 cm,采用多程通过碘池的方法来增加吸收程,碘池温度控制在 $-15\text{ }^{\circ}\text{C}$ (气体压强为 0.79 Pa),碘池入射调制光束功率为 2.6 mW,未调制光束功率为 0.56 mW,电光调制器的调制频率为 386 kHz。实验中分别记录了 I_2 在 532 nm 波段(line1110 R(56)32-0, a_{10}) 的单程、二倍程、三倍程和四倍程吸收调制转移光外差光谱超精细谱线,如图 4 所示,并实现了激光频率的锁定。

对应上述各吸收程测得的调制转移光外差光谱信号中心斜率、信噪比和锁定误差信号均方差值,以及估算的频率稳定度见表 1。频率稳定度的估算公式为

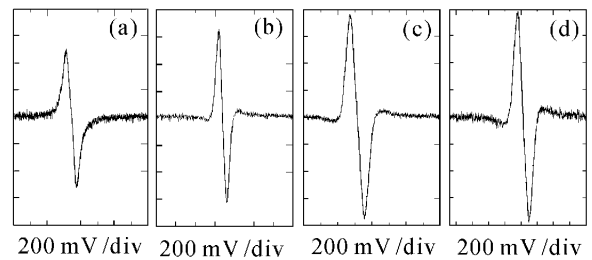


图 4 I_2 调制转移超精细结构光谱
(a) 一倍吸收程(信噪比 31);(b) 二倍吸收程(信噪比 86);
(c) 三倍吸收程(信噪比 90);(d) 四倍吸收程(信噪比 87)
检测系统带宽 10 kHz

Fig. 4 Modulation transfer spectra of I_2
(a) one-pass absorption (SNR was 31); (b) two-pass absorption (SNR was 86); (c) three-pass absorption (SNR was 90); (d) four-pass absorption (SNR was 87). The bandwidth of detection system was 10 kHz

$$Q = \frac{\Delta N_e \times \frac{1}{S_i/\Delta\nu}}{\omega_0 \times \sqrt{B}}, \quad (8)$$

其中 ΔN_e 为锁定误差信号均方差值, $\Delta\nu$ 为谱线线宽, S_i 为谱线信号幅度, $S_i/\Delta\nu$ 为谱线斜率; ω_0 为激光频率 5.6×10^{14} Hz; B 为检测系统带宽, 实验中为 10 kHz。

表 1 不同吸收程的调制转移光外差信号以及稳频参数 ($-15\text{ }^{\circ}\text{C}$)

Table 1 Data of modulation transfer spectra with different absorption length and the estimated frequency stability ($-15\text{ }^{\circ}\text{C}$)

	Central slope /(mV/kHz)	SNR (bandwidth 10 kHz)	Square root of noise /mV	Frequency stability estimated (1 s integration time)
One-pass (40 cm)	1.1	31	25.6	4.1×10^{-13}
Two-pass (80 cm)	3.4	86	18.1	1.0×10^{-13}
Three-pass (120 cm)	3.6	90	19.8	0.9×10^{-13}
Four-pass (160 cm)	3.5	87	20.1	1.0×10^{-13}

比较实验结果可以看出:随着吸收程的增加,信号的信噪比和中心斜率先增加后减小,存在最佳值,估算得到三倍程的频率稳定度最好,这说明合理增加吸收程能有效提高信号信噪比和中心斜率。实验中由于碘池两端窗片仅外侧面镀有增透膜,光束每往返通过碘池窗片一次光强因反射而损失约 8%。在理论计算中考虑窗片反射对最佳吸收程的影响,则计算得到吸收长度最佳值为 1.1 m 左右,这个值比未考虑窗片影响的理论计算值要小,但与实验结果更接近。

理论计算得到 $-17\text{ }^{\circ}\text{C}$ 时最佳的吸收程为 1.8 m 左右,如图 5 所示,这比 $-15\text{ }^{\circ}\text{C}$ 时理论计算的最佳吸收程长。实验观察了温度为 $-17\text{ }^{\circ}\text{C}$ 时的二倍程、

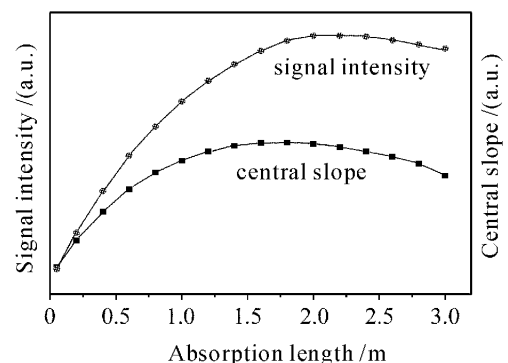


图 5 理论计算调制转移信号幅度和中心斜率随吸收程的变化关系 ($-17\text{ }^{\circ}\text{C}$)

Fig. 5 Relative signal intensity and central slope versus absorption length ($-17\text{ }^{\circ}\text{C}$)

三倍程和四倍程的调制转移光谱信号,如表 2 所示。计算结果表明,随着温度降低,最佳吸收程变长,谱线宽度随之减小,若相应减小电光调制频率,还可使谱线中心斜率略有提高。由于实验中并没有使电光调制频率随温度的降低作相应减小,使得 $-17\text{ }^{\circ}\text{C}$ 的谱线中心斜率没有提高,但最佳吸收程增加了。

表 2 不同吸收程的调制转移光外差信号参数($-17\text{ }^{\circ}\text{C}$)

Table 2 Data of modulation transfer spectra with different absorption length ($-17\text{ }^{\circ}\text{C}$)

	Central slope /(mV/kHz)	SNR (bandwidth 10 kHz)
Two-pass (80 cm)	3.0	66
Three-pass (120 cm)	3.1	86
Four-pass (160 cm)	3.3	88

采用多程吸收并选择最佳吸收程是提高谱线信噪比和中心斜率的有效方法。但是光束多次通过碘池两端的窗片时产生的反射杂散光会造成谱线信噪比下降和基线起伏。可以在碘池窗片镀耐 I_2 腐蚀的增透膜及两端加小孔光阑等方法来减小反射及杂散光对光信号的影响。

5 结 论

采用微元叠加方法,理论研究了吸收程对调制转移光外差光谱信号的影响。数值计算和实验结果表明,选择合适的吸收程能有效地提高光谱信号的信噪比和中心斜率。这一结果对提高调制转移光谱激光稳频性能有重要意义。

参 考 文 献

1 Feng-Lei Hong, Jun Ishikawa, Tai Hyun Yoon *et al.*. A portable I_2 -stabilized Nd:YAG laser for wavelength standards at 532 nm and 1064 nm [C]. *SPIE*, 1998, **3477**:1~10

2 Zuo Aibin, Li Wenbo, Peng Yuexiang *et al.*. Research on frequency stabilization of modulation transfer spectroscopy [J]. *Chinese J. Lasers*, 2005, **32**(2):164~166
左爱斌,李文博,彭月祥等. 调制转移光谱稳频的研究[J]. *中国激光*, 2005, **32**(2):164~166

3 L. Robertsson, L.-S. Ma, S. Picard. Improved iodine-stabilized Nd:YAG lasers [C]. *SPIE*, 2001, **4269**:268~271

4 S. Picard, L. Robertsson, L.-S. Ma *et al.*. Results from international comparisons at the BIPM providing a world-wide reference network of $^{127}\text{I}_2$ stabilized frequency-doubled Nd:YAG lasers [J]. *IEEE Trans. Instrum. Meas.*, 2003, **52**(2):236~239

5 Zheng Wenqiang, Bi Zhiyi, Luo Ming *et al.*. Application of $^{127}\text{I}_2$ doppler-broadened FM spectroscopy to frequency stabilization of mini-Nd:YVO₄ laser [J]. *Chinese J. Lasers*, 2002, **A29**(2):161~163
郑文强,毕志毅,罗明等. $^{127}\text{I}_2$ 频率调制光谱在微型 Nd:YVO₄ 激光稳频中的应用[J]. *中国激光*, 2002, **A29**(2):161~163

6 M. L. Eickhoff, J. L. Hall. Optical frequency standard at 532 nm [J]. *IEEE Trans. Instrum. Meas.*, 1995, **44**(2):155~158

7 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. 调制转移光谱的理论计算[J]. *物理学报*, 1993, **42**(4):582~591

8 G. Camy, Ch. J. Borde, M. Ducloy. Heterodyne saturation spectroscopy through frequency modulation of the saturating beam [J]. *Opt. Commun.*, 1982, **41**(5):325~329

9 J. H. Shirley. Modulation transfer processes in optical heterodyne saturation spectroscopy [J]. *Opt. Lett.*, 1982, **7**(11):537~539

10 G. C. Bjorklund, M. D. Levenson, W. Lenth *et al.*. Frequency modulation (FM) spectroscopy [J]. *Appl. Phys. B*, 1983, **32**(3):145~152

11 Bi Zhiyi. Studies on phase modulation optical heterodyne spectroscopy and its application [D]. East China Normal University, Shanghai, 1986. 1~49
毕志毅. 位相调制光外差光谱技术的研究及应用[D]. 上海:华东师范大学, 1986. 1~49

12 Luo Ming, Bi Zhiyi, Chen Yangqin *et al.*. Line-center shift of modulation transfer spectroscopy due to the asymmetry of sidebands [J]. *Acta Physica Sinica*, 1999, **48**(10):1845~1851
罗明,毕志毅,陈扬琴等. 边带非对称性对调制转移光谱中心斜率的影响[J]. *物理学报*, 1999, **48**(10):1845~1851

13 Chikako Ishibashi, Jun Ye, J. L. Hall. Issues and applications in ultra-sensitive molecular spectroscopy [C]. *SPIE*, 2002, **4634**:58~68