

文章编号: 0258-7025(2008)10-1563-04

连续波腔衰荡光谱技术中的标准具效应

谭中奇 龙兴武 黄云 吴素勇

(国防科技大学光电科学与工程学院, 湖南长沙 410073)

摘要 建立了一套高灵敏度调谐式连续波腔衰荡光谱测量系统,该系统以分布反馈式(DFB)半导体激光器作为光源,利用其电流调制及调谐的特征进行衰荡和腔损耗谱测量,系统重复测量精度约为 0.65×10^{-6} 。对实验中出现的标准具效应进行了实验和理论分析,证实了这种效应来自衰荡腔的外部弱反射,并通过分析找出了系统中主要的反射面源。提出了标准具效应的软、硬件消除方法,实验结果表明,软件处理中数据拟合的标准误差约为 0.4×10^{-6} ,硬件改进后腔损耗谱振荡起伏标准差由原来的 9.2068×10^{-6} 减少为 0.4561×10^{-6} 。

关键词 光谱学;衰荡光谱;标准具效应;分布反馈激光器;弱反射

中图分类号 O 433.5 **文献标识码** A **doi**: 10.3788/CJL20083510.1563

Etaloning Effects in Continuous-Wave Cavity Ring down Spectroscopy

Tan Zhongqi Long Xingwu Huang Yun Wu Suyong

(College of Optical Science and Engineering, National University of Defense Technology, Changsha, Hunan 410073, China)

Abstract Using a distributed-feedback (DFB) diode laser as light source, a high sensitivity system of continuous wave (CW) cavity ring down spectroscopy was built. With the diode laser's feature of current modulation and tuning, the ring-down transient and spectrum of cavity loss can be observed easily, and the repeated measurement error of system is about 0.65×10^{-6} . The etaloning effects found in experiment were theoretically analyzed and experimentally researched in detail, then the external weak reflection of cavity was confirmed as the source of the effects. And the main reflection face was found through analyzing. Ways of software and hardware to eliminate the effects were put forward and testified. The results show that the fitting error of software is about 0.4×10^{-6} , and after hardware improving, the standard error of cavity loss spectrum's fluctuation decreases from 9.2068×10^{-6} to 0.4561×10^{-6} .

Key words spectroscopy; ring down spectroscopy; etaloning effects; distributed-feedback laser; weak reflection

1 引言

腔衰荡技术的最初目的是为了解决高反射率的测量问题^[1,2],自 1988 年被应用于气体吸收谱测量领域以来^[3],它已在物质光谱测量、大气污染监测等方面得到了充分发展和应用^[4~8]。作为一种高灵敏度、高分辨率的新型激光光谱技术,腔衰荡光谱技术通过测量腔出射光信号的衰减时间求得腔内损耗值。相对于传统的激光光谱技术,如激光内腔吸收光谱、长程吸收光谱^[9]等,腔衰荡光谱技术能在短的腔体内获得很长的吸收路径,其测量结果无需复杂标定且不受入射光强起伏的影响。

根据选用的激光光源类型,腔衰荡光谱技术可分为脉冲法和连续光波法^[10]。在连续光波法中,实验发现,腔损耗谱的测量结果受衰荡腔外部光学面的弱反射影响极为明显,即使很弱的光反馈也将给测量结果带来很大的影响,使原本平坦的光谱出现类似正弦的周期振荡,这种起伏振荡增加了数据的后续处理难度,严重影响了系统的测量精度和灵敏度。这种被称为标准具效应(Etaloning effects)的现象在以前的报道^[4~7,11]中都曾提及,但未见深入探讨。因此,本文以分布反馈(DFB)激光器为光源,建立了一套高灵敏度近红外连续波腔衰荡光谱测量系统,并利用 DFB 激光器的电流调制和调谐的特点

收稿日期:2008-01-28;收到修改稿日期:2008-03-25

作者简介:谭中奇(1978—),男,湖南人,博士研究生,主要从事光电检测方面的研究。E-mail:tzq780904@163.com

导师简介:龙兴武(1958—),男,湖南人,教授,博士生导师,主要从事激光与光电子技术等方面的研究。

E-mail:xwlong110@sina.com

进行衰荡和腔损耗谱测量,对该效应进行了研究。

2 实验装置

如图 1 所示,DFB 激光器(温度 25 °C,注入电流为 80 mA 时,中心波长为 1517.52 nm,光功率约为 15 mW)在高精度温控(优于 0.01 °C)和电流驱动电路(噪声小于 40 μ A)的控制下工作,通过光纤与光隔离器相连,经过光准直器出射后(光斑 ϕ 1.5 mm,高斯光腰位于出射镜面处),激光射入被测无源腔内。衰荡腔腔体选用 ϕ 25 mm 的石英玻璃管,长 360 mm。两腔镜为球面镜,厚度为 8 mm,曲率半径为 10 m,利用极低损耗离子溅射镀膜技术,自镀近红外高反膜,中心波长为 1548 nm,经 Lambda-950 分光光度计测量得到 1517 nm 处腔镜的反射率大于 99.95%。用十字成像法将两腔镜调节至理想状态,用钢封方式将其固定在腔体两端,此时,调节激光入射点位置及入射角就可使得外部入射光在衰荡腔内形成稳定谐振。

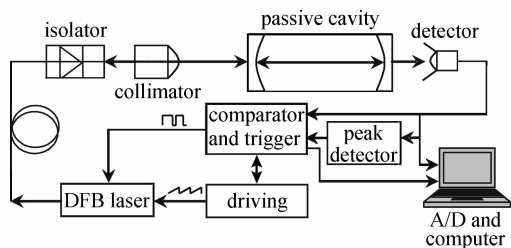


图 1 实验系统示意图

Fig. 1 Schematic chart of experimental system

由于 DFB 激光器(2 MHz)及被测无源腔的线宽都很窄,如不采取措施,难以保证有激光能透射出无源腔。实验系统通过小范围内调制 DFB 激光器注入电流,利用半导体激光器的电流调谐特点,使得激光器频率围绕一个腔纵模来回扫描,实现两者之间的频率匹配(频率扫描范围不超过腔的纵模间隔)。从图 1 可见,系统相对于传统的连续波腔衰荡光谱测量系统最大的不同点在于,它利用衰荡腔体的结构设计及峰值探测电路节省了模式匹配镜;利用 DFB 激光器的电流调制特点节省了昂贵的光开关器件;利用 DFB 激光器的电流调谐特点减少了系统制动部分,由此减少了系统体积和成本,提高了测量结果的稳定性。系统测量过程如下:小范围调制激光频率使得入射光在腔内谐振,系统中的峰值探测电路获取透射光强最大值信息,并以此为基础设定衰荡阈值,当下一次激光器调谐过程中谐振腔的透射光信号大于阈值时,控制电路在约 40 ns 内关断

DFB 激光器注入电流进行衰荡测量,并同时触发高速数据采集卡记录衰荡信号。计算机以单指数衰减函数为目标函数拟合衰荡信号,求得衰减时间常数 τ 及无源腔腔损耗值 δ ,改变入射光中心频率进行下一次测量,得到下一个腔纵模处的腔损耗值,如此循环,从而绘制出无源腔的腔损耗谱曲线。若腔内存在吸收气体,则通过对比腔内有无被测气体时的腔损耗谱测得气体吸收谱。

3 实验结果与分析

将 DFB 激光器工作温度设定为 23 °C,其注入电流从 27.5 mA 扫描至 61.5 mA(产生的激光频率变化为 6591.04 ~ 6591.72 cm^{-1}),应用实验系统对常温常压(21 °C, 10⁵ Pa)时的不同腔内介质情况下腔损耗谱进行测量,测量结果如图 2 所示。图 2(a)为某腔纵模处 10 次衰荡信号叠加平均后的曲线及其拟合曲线,对系统的 100 次重复测量表明腔损耗值测量的标准误差约为 0.6494 $\times 10^{-6}$,可知如果增加衰荡信号的采样平均次数,误差将会进一步减少;图 2(b)中的虚线为腔内充满在此波段不存在吸收的高纯度氮气(体积分数 $\varphi \geq 99.99\%$)时测得的腔损耗谱,实线为腔内充满 N₂O 与 N₂ 的混合气体(N₂O 的体积分数约为 400 $\times 10^{-6}$)时的腔损耗谱,由于 N₂O 分子在 6591.437 cm^{-1} 处存在泛频吸收,所以在腔损耗谱中隐约可见一个吸收峰。从图 2(b)可见,系统测得的衰荡腔损耗值随着入射光频率的微小变化而呈周期性起伏振荡,且这种变化不因腔内介质的吸收状态变化而变化,是系统固有的。由于腔损耗谱测量过程中光路固定不变,因此这一现象表面上很难从腔本身的损耗^[12~14]来解释。

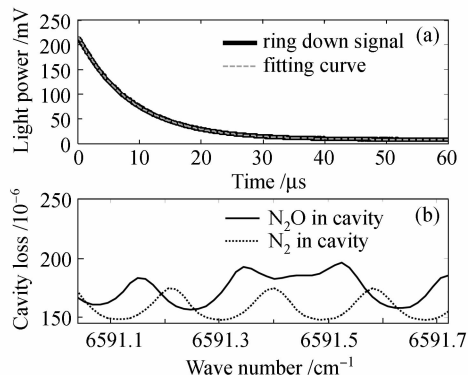


图 2 (a) 衰荡信号及其拟合曲线;(b) 腔损耗谱曲线图

Fig. 2 (a) Ring down signal and its fitting curve;

(b) spectrum of cavity loss

通常所用的高反膜是由高低折射率介质连续间

隔(各层光学厚度为 $\lambda/4$)、周期堆积而成的多层介质膜,它利用光波在介质层各界面的多光束干涉达到增强反射率的效果,利用矩阵计算方法^[15]可数值模拟中心波长为1548 nm的29层理想规整高反膜在不存在基底面反射前提下的透射损耗光谱。

然而,实际系统中存在很多面对高反膜构成可能的弱反射,包括腔镜基底面、光纤准直器透镜面及光纤端面、探测器感光面及其聚焦镜面等。当这些面平行于高反膜时,从衰荡腔内侧看来,这些反射面的存在等价于在原有的高反多层介质膜上增加了膜层数,从而改变了膜结构,使得高反膜的光谱性质发生变化。如图3所示,当考虑外部弱反射时,模拟的腔镜透射损耗谱开始出现周期振荡现象,这与实验现象完全吻合,因此可断定标准具效应来源于衰荡腔的外部弱反射。图3(a),(b)为仅考虑单个弱反射面存在的情况,(a)为不同基底厚度 d 时的腔镜透射损耗谱曲线,(b)为改变基底外介质的折射率,由此来模拟不同基底反射率 R 情况下的腔镜透射损耗谱曲线,可见,损耗谱的振荡频率随基底厚度增大而变大,其振荡峰值也随基底反射率的增大而增大。图3(c)为考虑两个弱反射面时(折射率 $n_0 = 1.5$; $R_1 = 4\%$, $d_1 = 10$ mm; $R_2 = 3.46\%$, $d_2 = 15$ mm)的腔镜透射损耗谱,可见,当反射面不止一个时,腔镜透射损耗谱振荡呈多周期性。

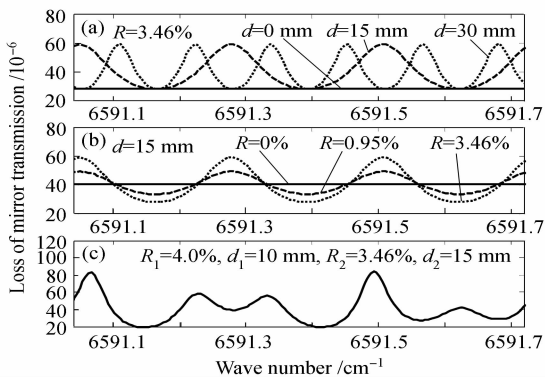


图3 不同情况下腔镜透射损耗谱的数值模拟

Fig. 3 Simulation of mirror's transmission loss spectra at different conditions

4 弱反射的主要来源及消除方法

由图2(b)中测得的腔损耗谱振荡周期单一,结合图3的分析结果,认为众多外部弱反射面中仅有一个是主要的。在此,应用排除法来寻找系统中的主要弱反射面。系统中光纤准直器及探测器聚焦采用相同的透镜,因此可将两者一并进行分析,该类型

透镜光学表面都镀有中心波长为1550 nm的增透膜,其透射率达99.99%以上,且其面形为凸面。从图3可见,这些面的反射存在对测量的影响相当小,因此可将此因素排除;高反片基底面的反射,可通过在石英基底上增加一个楔角来消除,实验中通过在高反片基底面上光胶一个同样材料带楔角的平面片来实现,此时腔损耗谱测量结果如图4(a)所示。可见,这种谱振荡并未消失,只是周期发生了稍许变化。分析认为,高反片基底的反射不是谱振荡的主导因素,这可能是由于高反片石英基片本身带有一定楔角,或者是外部激光偏离腔中心轴线入射,利用球面镜本身曲率产生了一个楔角。而实验结果中的腔镜光胶平面片以后振荡周期变化现象可以解释为石英片的加入增加了主导反射面与高反膜之间的光学厚度;系统中的光纤准直器及探测器位置相对于衰荡腔是可调的,可通过改变这些器件与腔镜之间的距离来分析这些反射面产生的影响。实验结果如图4(b),(c)所示,其中(b)为不同探测器位置 d_a 时测得的腔损耗谱变化,(c)为不同准直器位置 d_c 时的测量结果。由此可以确定,光隔离器光纤输出端面是造成这种腔损耗谱振荡的主要误差来源。

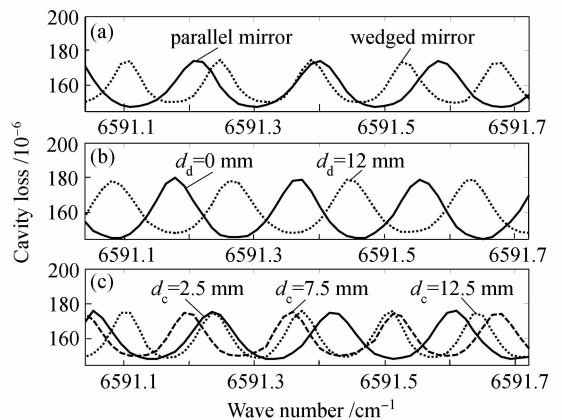


图4 不同系统情况下测得的腔损耗谱

Fig. 4 Spectra of cavity loss at different conditions of system

在气体吸收谱测量中,腔损耗谱周期振荡给数据的分析处理带来不便,严重影响了测量结果的精度,结合前面的分析和实验,可从软件和硬件两个方面来消除这种现象对测量的影响,即软件处理和硬件改进。软件处理主要是对腔损耗谱进行数据处理,通过大量实践,发现目标函数 $f(\nu)$ 对实验数据的拟合精度最高

$$f(\nu) = \frac{a}{1 + b \cos(c\nu + d)} + e, \quad (1)$$

式中 ν 为激光频率, a, b 为常数项,用来反映腔损耗

谱起伏峰峰值; c 为腔损耗谱起伏频率, d 为腔损耗谱周期振荡的初始相位, e 为腔损耗谱的平均偏值。当腔内存在吸收介质时,也可将(1)式作为基底函数拟合求解吸收谱线形。图5(a)为图2(b)中曲线数据采用非线性最小二乘法拟合后的结果,拟合结果令人满意,其中两次拟合得到腔损耗谱振荡周期分别为 0.18672 cm^{-1} , 0.18673 cm^{-1} ,两次拟合的标准误差分别为 0.3884×10^{-6} , 0.3453×10^{-6} 。

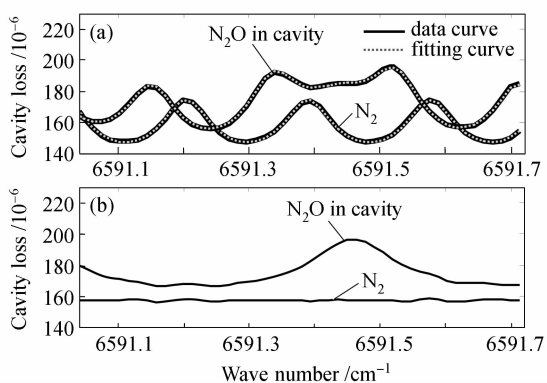


图5 (a)标准具效应消除前腔损耗谱曲线及其拟合曲线;(b)消除后腔损耗谱曲线

Fig. 5 Spectra of cavity loss and its fitting curve before (a) and after (b) eliminating etaloning effects

硬件改进可采用两种途径:一种是光纤端面镀制增透膜,或者采用圆形光纤接头/面呈 8° 角微凸球面研磨抛光(FC/APC)头消除光纤端面的反射;另一种是改变衰荡腔结构,如采用折叠腔结构,让入射光斜入射到高反镜,进入衰荡腔内。本文对第一种方案进行了实验,将光隔离器的光纤输出端由原来的平头改为斜头后,其他实验条件不变,对系统进行测试的结果如图5(b)所示,此时腔损耗谱中原有的起伏振荡基本消除,经计算谱线起伏的标准差由原来的 9.2068×10^{-6} 减少为 0.4561×10^{-6} 。

5 结 论

建立了一套以DFB激光器为光源的高灵敏度调谐式近红外连续波腔衰荡光谱测量系统,围绕实验过程中出现的标准具效应,进行了理论及实验研究。结果验证了连续波腔衰荡光谱技术测量结果的真实性及高灵敏度,腔衰荡谱峰峰值约为 30×10^{-6} 损耗的振荡现象就是最好的证明;证实了腔损耗谱起伏振荡现象主要来源于外部光学面的反射,通过理论分析和实验结果表明系统中主要的弱反射面为光隔离器光纤输出端面;提出了解决方案,其中软件处理数据拟合误差约为 0.4×10^{-6} ,硬件改进后腔损

耗谱振荡起伏标准差减少为 0.4561×10^{-6} 。

参 考 文 献

- 1 D. Z. Anderson, J. C. Frisch, C. S. Masser. Mirror reflectometer based on optical cavity decay time [J]. *Appl. Opt.*, 1984, **23**(8):1238~1245
- 2 Gong Yuan, Li Bincheng. Continuous-wave cavity ring-down technique for accurate measurement of high reflectivity [J]. *Chinese J. Lasers*, 2006, **33**(9):1247~1250
龚元,李斌成.连续激光腔衰荡法精确测量高反射率[J]. *中国激光*, 2006, **33**(9):1247~1250
- 3 A. O'Keefe, D. A. G. Deacon. Cavity ring-down optical spectrometer for absorption measurements using pulsed laser sources [J]. *Rev. Sci. Instrum.*, 1988, **59**(12):2544~2551
- 4 D. Romanini, A. A. Kachanov, N. Sadeghi *et al.*. CW cavity ring down spectroscopy [J]. *Chem. Phys. Lett.*, 1997, **264**:316~322
- 5 D. Romanini, A. A. Kachanov, E. Stoeckel. Cavity ring down spectroscopy: broad band absolute absorption measurements [J]. *Chem. Phys. Lett.*, 1997, **270**:546~550
- 6 P. Macko, D. Romanini, S. N. Mikhailenko *et al.*. High sensitivity CW-cavity ring down spectroscopy of water in the region of the $1.5\ \mu\text{m}$ atmospheric window [J]. *J. Mol. Spectrosc.*, 2004, **227**:90~108
- 7 Ed H. Wahl, Bernard Fidric, Chris W. Rella *et al.*. Applications of cavity ring-down spectroscopy to high precision isotope ratio measurement of $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$ in carbon dioxide [J]. *Isotopes in Environmental and Health Studies*, 2006, **42**(1):21~35
- 8 Wang Chunmei, Li Jiong, Gong Tianlin *et al.*. Determination of the absolute absorption cross section of oxygen forbidden transition by cavity ring down spectroscopy [J]. *Acta Optica Sinica*, 2007, **27**(11):2087~2090
王春梅,李炯,龚天林等.腔衰荡光谱技术测量O₂禁戒跃迁绝对吸收截面[J]. *光学学报*, 2007, **27**(11):2087~2090
- 9 Gao Xiaoming, Huang Wei, Deng Lunhua *et al.*. Measurement of self-broadening and N₂ broadening coefficients of water vapor molecule near $1.31\ \mu\text{m}$ [J]. *Acta Optica Sinica*, 2006, **26**(5):641~646
高晓明,黄伟,邓伦华等. $1.31\ \mu\text{m}$ 附近水汽分子的自加宽系数、氮气加宽系数的测量[J]. *光学学报*, 2006, **26**(5):641~646
- 10 G. Berden, R. Peeters, G. Meijer. Cavity ring-down spectroscopy: experimental schemes and applications [J]. *Int. Rev. Phys. Chem.*, 2000, **19**(4):565~607
- 11 Pei Shixin. The study of cavity enhanced absorption spectroscopy and its application [D]. Hefei: Hefei Institutes of Physical Science, Chinese Academy of Sciences, 2005. 92~94
裴世鑫.腔增强吸收光谱技术与应用研究[D].合肥:中国科学院合肥物质科学研究院,2005.92~94
- 12 Jin Linfa, Zhang Hongfen, Yang Benqi. Effect of film absorption on broadband mirrors [J]. *Acta Optica Sinica*, 1983, **3**(2):169~172
金林法,章宏芬,杨本祺.薄膜吸收对宽带反射镜的影响[J]. *光学学报*, 1983, **3**(2):169~172
- 13 Kong Mingdong, Li Ruijie, Zhou Jiulin *et al.*. An new method to design high reflectivity film [J]. *J. Optoelectronics · Laser*, 2002, **11**(1):62~64
孔明东,李瑞洁,周九林等.高反射率光学薄膜的一种新设计方法[J]. *光电子·激光*, 2002, **11**(1):62~64
- 14 Fan Shuhai. High sensitive weak absorption apparatus for optical coatings [D]. Shanghai: Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, 2005. 10~14
范树海.高灵敏度光学薄膜弱吸收测量仪的研制[D].上海:中国科学院上海光学精密机械研究所,2005.10~14
- 15 Sh. A. Furman, A. V. Tikhonravov. Basis of Optics of Multilayer Systems [M]. Singapore: Fong & Sons Printers Pte. Ltd., 1992. 21~26