

# 应用强度差压缩光进行微弱 吸收光谱学测量\*

王 海 谢常德 郗江瑞 彭堃堃

(山西大学光电研究所, 太原 030006)

**摘 要** 提出一种应用强度差压缩态光场进行高灵敏度吸收光谱分析的方案, 并通过半经典理论分析证明, 该方案的测量灵敏度不受真空起伏限制, 最小可测吸收系数低于光波场的散粒噪声极限。

**关键词** 弱吸收光谱, 孪生光束, 散粒噪声极限。

## 1 引 言

高灵敏度吸收光谱测量技术可广泛应用于火焰和等离子体监测、环境污染控制及材料鉴别等领域<sup>[1]</sup>。提高吸收光谱测量的灵敏度是科技界一贯追寻的目标。为避免激光器(自身技术)噪声对吸收光谱测量的干扰, 有人使用频率调制技术, 将分子特征吸收光谱的测量灵敏度提高到量子极限。然而在某些情况下吸收光谱信号十分微弱, 往往被淹没在相干态光场的真空起伏之中。这就要求探寻新的测量系统与检测光源, 使测量灵敏度突破量子极限的限制<sup>[1~3]</sup>。1992年 Kimble 研究小组, 将频率可调谐的正交压缩真空态光场应用于铯原子光谱测量, 测量灵敏度较量子极限提高 3.1dB<sup>[4]</sup>。本文设计了另一种类型的超高精度吸收光谱测量系统, 通过应用量子相关孪生光子对之间的强度差压缩特性<sup>[5]</sup>, 使测量灵敏度高于量子极限, 从而可以分析小于真空起伏的微弱吸收谱。与可调谐正交压缩真空态光场相比较, 高压缩度的强度差压缩态光场更易于获得<sup>[5,6]</sup>, 同时通过调谐运转于阈值以上的光学参量振荡腔, 也很容易产生可调谐强度差压缩态光场。因此, 该方案可能在超高分辨吸收光谱测量中获得较为广泛的应用。

## 2 测量系统设计

如图(1)所示, 光学参量振荡(OPO)腔被频率为  $2\omega_0$  的相干光泵浦, 通过二类相位匹配晶体(如 KTP)经阈值以上的非简并参量下转换过程产生偏振相互垂直, 频率为  $\omega_1$  和  $\omega_2$  的亚谐波场(Subharmonic Waves)  $E_1$  和  $E_2$ , 此时

$$2\omega_0 = \omega_1 + \omega_2 \quad (1)$$

\* 国家自然科学基金重点课题资助项目, 山西省自然科学基金资助项目。

收稿日期: 1995年10月8日; 收到修改稿日期: 1996年3月15日

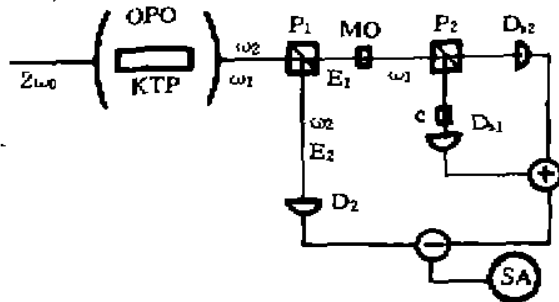


Fig. 1 Scheme for absorption spectroscopy measurement with twin beams

假设光场  $E_1, E_2$  的正频分量为

$$e_i(t) = [(p_i(t) + iq_i(t)/2)]e^{-i\omega_i t} (i = 1, 2) \quad (2)$$

$p_i(t)$  与  $q_i(t)$  分别为光场的振幅和位相分量,  $\varphi_i$  为光场初位相, 于是其振幅与强度的平均值和光强起伏分别为

$$\langle p_i(t) \rangle = p_i; \quad \langle q_i(t) \rangle = 0, \quad (3a)$$

$$\langle |e_i(t)| \rangle = \langle |e_i^*(t)| \rangle = p_i/2 \quad (3b)$$

$$\langle I_i \rangle = p_i^2/4, \quad \delta I_i = (p_i/2)\delta p_i(t) \quad (4)$$

因  $\omega_1$  与  $\omega_2$  光场在参量下转换过程中同时产生, 具有极强的量子相关性, 当不考虑系统损耗的理想情况下, 可认为

$$\langle p_1(t) \rangle = \langle p_2(t) \rangle = p, \quad \langle I_1 \rangle = \langle I_2 \rangle = p^2/4 \quad (5)$$

而且其强度差噪声起伏低于散粒噪声 (shot noise)  $S_0^{[6,5]}$ 。  $P_1$  和  $P_2$  是偏振分束镜, MO 是磁光偏振调制器, C 是存放微弱吸收介质的样品池。  $D_{s1}, D_{s2}$  和  $D_2$  是光探测器。信号光  $E_1$  和闲置光  $E_2$  由偏振分束镜  $P_1$  分开, 闲置光直接入射到  $D_2$  上, 信号光  $E_1$  经 MO 后入射到  $P_2$  上。  $\theta$  表示  $E_1$  光经磁光调制器 MO 后的偏振旋转角。当  $\theta = 0$  时  $E_1$  与  $P_2$  偏振通光方向夹角为  $45^\circ$ , 如图 2 所示,  $\theta$  角由下式计算:

$$\theta = M \sin \omega_m t \quad (6)$$

其中  $M$  为调制系数,  $\omega_m$  为调制频率。调制后的信号光场  $E_1$  经偏振分束镜  $P_2$  分解为  $s_1$  与  $s_2$ , 其场强  $E_{s1}$  与  $E_{s2}$  分别为:

$$E_{s1} = E_1 \sin (45^\circ - M \sin \omega_m t), \quad E_{s2} = E_1 \cos (45^\circ - M \sin \omega_m t) \quad (7)$$

它们的平均光强为

$$\left. \begin{aligned} \langle I_{s1} \rangle &= \langle e_{s1}(t)e_{s1}^*(t) \rangle = \langle e_1(t)e_1^*(t) \rangle \sin^2(45^\circ - M \sin \omega_m t) \\ &\approx (p^2/4) (1 - M \sin \omega_m t)/2 \\ \langle I_{s2} \rangle &= \langle e_{s2}(t)e_{s2}^*(t) \rangle \approx (p^2/4) (1 + 2M \sin \omega_m t)/2 \end{aligned} \right\} \quad (8)$$

$s_1$  光通过待测样品后, 由于待测分子的吸收作用, 使光强衰减为  $I_{sc}$ ,

$$\langle I_{sc} \rangle = \langle I_{s1} \rangle \exp [-\delta(\omega_1)l] \quad (9)$$

式中  $\delta(\omega)$  为待测分子的吸收系数, 它为信号光频率的函数,  $l$  为样品池长度。由于所探测的是微弱吸收, 即  $\delta(\omega_1)l \ll 1$ , 此时, (9) 式可展开为

$$\langle I_{sc} \rangle \approx \langle I_{s1} \rangle [1 - \delta(\omega_1)l] \quad (10)$$

由(8)得

$$\langle I_{sc} \rangle = (p^2/4) [1 - \delta(\omega_1)l - 2M \sin \omega_m t + 2M\delta(\omega_1)l \sin \omega_m t] / 2 \quad (11)$$

探测器  $D_2, D_{s1}$  和  $D_{s2}$  输出的平均光电流信号为

$$\langle i_{s1} \rangle = e\eta_1 \langle I_{sc} \rangle, \quad \langle i_{s2} \rangle = e\eta_2 \langle I_{s2} \rangle, \quad \langle i_2 \rangle = e\eta_3 \langle I_2 \rangle \quad (12)$$

式中  $e$  为电子电荷,  $\eta_1, \eta_2$  和  $\eta_3$  为探测器的量子效率, 为保证测量精度, 各探测器量子效率应尽可能相等, 故取  $\eta_1 = \eta_2 = \eta_3 = \eta$ , 于是, 输入到谱仪中的平均光电流信号  $i_{sig}$  为

$$\langle i_{sig} \rangle = \langle i_{sc} \rangle + \langle i_{s2} \rangle - \langle i_2 \rangle = e\eta \langle I_{sc} \rangle \quad (13)$$

这里

$$I_{sig} = I_{sc} + I_{s2} - I_2 \quad (14)$$

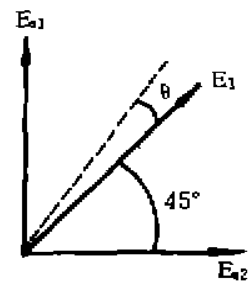


Fig. 2 The polarization orientation of  $E_1, E_{s2}$  and  $E_1$

为最后谱仪分析的信号光强度。由(11)、(8)和(5)式可得：

$$\langle I_{ny} \rangle = (p^2/4) [ M\delta(\omega_1)l \sin \omega_m t - \delta(\omega_1)l/2 ] \quad (15)$$

$$\langle i_{ny} \rangle = e\eta(p^2/4) [ M\delta(\omega_1)l \sin \omega_m t - \delta(\omega_1)l/2 ] \quad (16)$$

输入谱仪的平均信号中有一个与吸收系数  $\delta(\omega_1)$  成正比的频率为  $\omega_m$  的脉动信号。将光学参量振荡腔输出信号光场的频率  $\omega_1$  调谐至待测样品的特征吸收线,并将谱仪的分析频率取为调制频率  $\omega_m$ , 则能通过光电流强弱测定  $\delta(\omega_1)$ 。最小可测的吸收系数  $\delta(\omega_1)$  由输入到谱仪的噪声电流起伏限定。下面将通过噪声谱分析证明当信号光场  $\omega_1$  与闲置光场  $\omega_2$  的强度差噪声低于散粒噪声时,最小可测  $\delta(\omega_1)$  低于用普通非相关相干态光场所测得的最小值  $[\delta(\omega_1)]_{SNL}$ 。

### 3 噪声功率与最小可测吸收系数

被探测信号  $I_{ny}$  的强度起伏  $\delta I_{ny}$  限制最小可测吸收系数。这里

$$\delta I_{ny} = (\delta I_{s1} + \delta I_{s2}) - \delta I_2 \quad (17)$$

如图 3 所示,经过调制的信号光  $E_1$  被偏振分束镜  $P_2$  分成两束光  $E_{s1}$ 、和  $E_{s2}$ , 与  $E_1$  光偏振方向垂直的真空场  $E_v$  也将“暗”通道经过  $P_2$ , 迭加到场  $E_{s1}$  与  $E_{s2}$  上。 $E_{s1}$ 、 $E_{s2}$  与  $E_1$ 、 $E_v$  的关系为

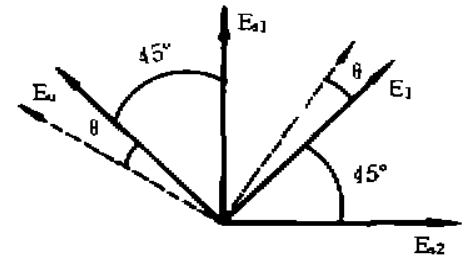


Fig. 3 The polarization orientation of  $E_{s1}$ 、 $E_{s2}$ 、 $E_1$  and  $E_v$

$$e_{s1}(t) = e_1(t) \sin(45^\circ - M \sin \omega_m t) + e_v(t) \cos(45^\circ - M \sin \omega_m t)$$

$$e_{s2}(t) = e_1(t) \cos(45^\circ - M \sin \omega_m t) - e_v(t) \sin(45^\circ - M \sin \omega_m t) \quad (18)$$

其中真空场复振幅正频分量为

$$e_v(t) = \{ [x(t) + iy(t)]/2 \} e^{-i\omega t}, \quad \langle x(t) \rangle = \langle y(t) \rangle = 0 \quad (19)$$

其振幅与位相分量的噪声谱为

$$\langle |\delta x(\omega)|^2 \rangle = \langle |\delta y(\omega)|^2 \rangle = 1 \quad (20)$$

光束  $s_1$  通过样品后,由于吸收作用,场强  $e_{s1}$  衰减为  $e_{sc}$ , 对于弱的吸收介质,  $\delta(\omega_1)$  的数量级在  $10^{-5} \sim 10^{-7}$  之间<sup>[1]</sup>, 因此在计算噪声时,可认为<sup>[6]</sup>  $e_{s1} \approx e_{sc}$ 。与  $s_2$  光的强度分别为

$$I_{sc} = e_{s1}(t)e_{s1}^*(t) = e_1(t)e_1^*(t) \sin^2(45^\circ - M \sin \omega_m t) + e_v(t)e_v^*(t) \cos^2(45^\circ - M \sin \omega_m t) + e_1(t)e_v^*(t) \sin(45^\circ - M \sin \omega_m t) \cos(45^\circ - M \sin \omega_m t) + C. C. \quad (21)$$

$$I_{s2} = e_{s2}(t)e_{s2}^*(t) = e_1(t)e_1^*(t) \cos^2(45^\circ - M \sin \omega_m t) + e_v(t)e_v^*(t) \sin^2(45^\circ - M \sin \omega_m t) - e_1(t)e_v^*(t) \cos(45^\circ - M \sin \omega_m t) \sin(45^\circ - M \sin \omega_m t) + C. C.$$

$s_1$  与  $s_2$  光的强度起伏分别为

$$\begin{aligned} \delta I_{sc} &= (p/2) \sin^2(45^\circ - M \sin \omega_m t) \delta p_1(t) + (p/2) \sin(45^\circ - M \sin \omega_m t) \cos(45^\circ - M \sin \omega_m t) \delta x(t) \\ \delta I_{s2} &= (p/2) \cos^2(45^\circ - M \sin \omega_m t) \delta p_2(t) - (p/2) \cos(45^\circ - M \sin \omega_m t) \sin(45^\circ - M \sin \omega_m t) \delta x(t) \end{aligned} \quad (22)$$

强度起伏之和为

$$\delta I_{sc} + \delta I_{s2} = (p/2) \delta p_1(t) \quad (23)$$

与(5)式对比,可知  $s_1$  与  $s_2$  光的强度起伏之和等于信号光  $E_1$  的强度起伏即  $\delta I_{sc} + \delta I_{s2} = \delta I_1$ , 故分析信号的强度起伏  $\delta I_{ny}$  为

$$\delta I_{sy} = \delta I_{s1} + \delta I_{s2} - \delta I_2 = (p/2)[\delta p_1(t) - \delta p_2(t)] \tag{24}$$

即分析信号的强度起伏等于孪生光束(Twin Beams)之间的强度差起伏。由文献[8]知,  $\delta I_{sy}$  噪声功率谱为  $S_{sy}(\Omega) = S_{st}(\Omega) = S_0 S_{sp}(\Omega)$ , 其中  $S_{sp}(\Omega)$  表示  $E_1$  和  $E_2$  振幅差的噪声谱

$$S_{sp}(\Omega) = \langle |[\delta p_1(\Omega) - \delta p_2(\Omega)] / \sqrt{2}|^2 \rangle \tag{25}$$

若  $E_1$  与  $E_2$  是两束非量子相关性的相干光<sup>[8]</sup>,  $S_{sp}(\Omega) = 1$ , 故有

$$S_{sy}(\Omega) = S_0 \tag{26}$$

若  $E_1$  与  $E_2$  是由参量下转换所产生的孪生光束时<sup>[8]</sup>

$$S_{sp}(\Omega) = \Omega^2 / (\Omega^2 + 4\lambda^2) \tag{27}$$

式中  $\Omega$  为分析频率,  $\lambda$  为 OPO 腔对信号模的衰减速率。

$$S_{sy}(\Omega) = S_0 \Omega^2 / (\Omega^2 + 4\lambda^2) \tag{28}$$

其中  $S_0$  是与孪生光束总强度相等的相干态光场的散粒噪声<sup>[8]</sup>。

$$S_0 = \langle I_1 \rangle + \langle I_2 \rangle = p^2/2 \tag{29}$$

故使用孪生光束测量微弱吸收系数, 可使分析信号的强度噪声谱较散粒噪声低  $\Omega^2 / (\Omega^2 + 4\lambda^2)$  倍。虽然在  $\Omega = 0$  时原则上噪声功率可降至零, 但零频附近, 激光器经典噪声极大, 而在几兆以上经典噪声趋近于零, 此时强度差噪声谱由(28)式决定。一般实际测量均在几兆至十几兆频率范围内进行。测量装置中元件的吸收、散射损耗以及探测器的量子效率都对孪生光束的强度差压缩谱有影响, 设测量装置中元件的总损耗率为  $\sigma$ , 探测器的量子效率为  $\eta$ , 则孪生光束之间的强度差噪声谱将由  $S_{st}(\Omega)$  变为<sup>[10]</sup>

$$S_{st}(\Omega) = S_0 R \tag{30}$$

$$R = (1 - \sigma)\eta S_{sp} + 1 - \eta + \eta\sigma = (1 - \sigma)\eta\Omega^2 / (\Omega^2 + 4\lambda^2) + 1 - \eta + \eta\sigma \tag{31}$$

相应的分析信号的强度噪声谱较散粒噪声低  $R$  倍, 由(16)式知输入到谱仪中频率为  $\omega_m$  的电流信号平均值:

$$i_{sy}(\omega_m) = e\eta\delta(\omega_1)IMp^2/4\sqrt{2} \tag{32}$$

最小可测吸收系数被光电流的噪声起伏所限制, 光电流的散粒噪声均方根值为<sup>[11]</sup>

$$(i_n)_{SNL} = [2e^2\eta B(\langle I_1 \rangle + \langle I_2 \rangle)]^{1/2} = (2e^2\eta BS_0)^{1/2} \tag{33}$$

功率信噪比(SNR)为

$$\Phi = [i_{sy}(\omega_m)]^2 / (i_n)^2 \tag{34}$$

当  $\Phi = 1$  时, 得到吸收系数的散粒噪声极限

$$[\delta(\omega_1)]_{SNL} = (2/MI)[2B/\eta(I_1)]^{1/2} \tag{35}$$

当用孪生光束测量吸收系数时, 选择合适的调制频率  $\omega_m$ , 使之等于实测强度差起伏谱最小时的分析频率  $\Omega_m$ , 这样就可以在频率  $\Omega_m$  处测量吸收系数, 由于此时噪声功率较散粒噪声降低  $R$  倍, 故最小可测的吸收系数也减小  $\sqrt{R}$  倍, 即

$$[\delta(\omega_1)]_{sy} = [\delta(\omega_1)]_{SNL} \sqrt{R} \tag{36}$$

通常, 可取  $\eta = 0.9$ ,  $\langle I_1 \rangle = 1 \text{ mW}$ . (相当于  $5.3 \times 10^{15}$  photon/s)  $S_{sp} = 0.15$ ,  $M = 0.1$ ,  $l =$

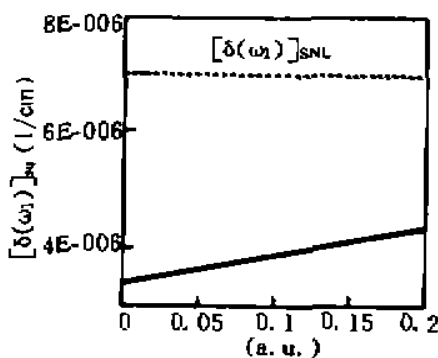


Fig. 4 The minimum detectable absorbance  $\delta(\omega_1)_{sy}$  as the function of the total loss  $\sigma$ , for  $\eta = 0.9$ ,  $S_{sp} = 0.15$ ,  $M = 0.1$ ,  $l = 10 \text{ cm}$ ,  $\langle I_1 \rangle = 1 \text{ mW}$ ,  $B = 30 \text{ kHz}$

10cm,  $B = 30$  kHz,  $\sigma = 0.05$ . 由(36)式可计算出散粒噪声极限  $[\delta(\omega_1)]_{SNL} = 7 \times 10^{-6}/\text{cm}$ .

由(31)式、(36)式可计算出强度差压缩光最小可测的吸收系数为  $[\delta(\omega_1)]_{s_1} = 3.5 \times 10^{-6}/\text{cm}$ .

图 4 表示最小可测的吸收系数  $[\delta(\omega_1)]_{s_1}$  与总损耗率  $\sigma$  的变化关系. 实际测量装置中的元件镀增透膜后, 容易使总损耗率  $\sigma$  小于 0.05, 从而对于吸收系数测量的灵敏度影响不大.

**小 结** 本文提出一种利用参量下转换所产生的强度差压缩态光场测量微弱吸收光谱的方案, 对信号光场进行电子学调制, 并用谱分析仪提取信号, 则能测定微弱吸收系数. 测量灵敏度依赖于参量振荡腔输出光场的强度差压缩度, 因此可在散粒噪声极限以下进行吸收光谱分析.

### 参 考 文 献

- [1] M. Gehrtz, G. C. Bjorklund, Quantum-limited laser frequency-modulation spectroscopy. *J. O. S. A. (B)*, 1985, **B2**(9): 1510~1525
- [2] G. C. Bjorklund, M. D. Levenson, Frequency modulation (FM) spectroscopy. *Appl. Phys. B*, 1983, **B32**(3): 145~152
- [3] N. C. Wong, J. L. Hall, Servo control of amplitude modulation in frequency-modulation spectroscopy: demonstration of shot-noise-limited detection. *J. O. S. A. (B)*, 1985, **B2**(9): 1527~1533
- [4] E. S. Polzik, J. Carri, H. J. Kimble, Spectroscopy with squeezed light. *Phys. Rev. Lett.*, 1987, **68**(20): 3020~3023
- [5] J. Mertz, T. Debuisschert, A. Heidmann *et al.*, Improvements in the observed intensity correlation of OPO twin beams. *Opt. Lett.*, 1991, **16**(16): 1234~1236
- [6] 张天才, 谢常德, 彭堃堃, 三模相互作用非经典性的理论研究. *中国科学*, 1993, **A23**(8): 831~838
- [7] C. Fabre, E. Giacobino, A. Heidmann *et al.*, Noise characteristics of a non-degenerate optical parametric oscillator. *J. de Physique*, 1989, **50**(8): 1209~1224
- [8] S. Reynaud, C. Fabre, E. Giacobino, Quantum fluctuations in a two-mode parametric oscillator. *J. O. S. A. (B)*, 1987, **B4**(10): 1520~1524
- [9] J. H. Shapiro, Quantum noise and excess noise in optical homodyne and heterodyne receivers. *IEEE Quant. Electron.*, 1985, **21**(3): 237~250
- [10] J. J. Snyder, E. Giacobino, C. Fabre, *et al.*, Sub-shot noise measurements using the beat note between quantum-correlated photon beams. *J. O. S. A. (B)*, 1990, **B7**(10): 2132~2136
- [11] Min Xiao, Ling-An Wu, H. J. Kimble, Precision measurement beyond the shot-noise limit. *Phys. Rev. Lett.*, 1987, **58**(3): 278~281

## The Measurement of Weak Absorption Spectroscopy Using Intensity Difference Squeezed Light

Wang Hai    Xie Changde    Gao Jiangrui    Peng Kunchi

(Institute of Opto-Electronic Researches, Shanxi University, Taiyuan 030006)

(Received 8 October 1995; revised 15 March 1996)

**Abstract** A method is propose in this paper for high-sensitive absorption spectrum analysis using intensity difference squeezed light. It has been evidence with a semiclassical theoretical calculation that the sensitivity of measurement can be beyond the limit set by vacaum fluctuation and the minimum detectable absorptance is below the SNL.

**Key words** absorption spectroscopy, twin beams, SNL.