

衰荡腔复杂模拍效应的实验研究

陈红兵 高军毅 周金刚 成国胜 龚知本
(中国科学院安徽光学精密机械研究所, 合肥 230031)

摘 要 利用光参量振荡器产生的脉冲光研究了衰荡腔在不同条件下的衰减信号。实验表明, 衰荡腔的输出信号会呈现复杂的调制。这些现象, 有些可利用在谐振腔本征模理论上导出的公式来解释, 另外一些可能是由于像散和畸变引起腔的横模分裂, 从而导致复杂的模拍效应。对实验结果进行了分析和解释。

关键词 衰荡光谱, 模拍, 傅里叶变换极限脉冲。

1 引 言

衰荡光谱技术(Cavity Ring Down Spectroscopy 简称 CRDS)是一种新型的激光光谱技术。它适合于利用可调谐脉冲激光器测量原子、分子和自由基的吸收光谱。这种技术首先由 O'Keffe 和 Deacon^[1]在 1988 年提出并证实, 现已广泛应用于各种基质的吸收光谱测量。衰荡光谱技术具有如下特点: 1) 测量的灵敏度高。实验中已经达到了 10^{-9} cm^{-1} 的灵敏度^[2]; 2) 可以消除单脉冲能量起伏带来的测量误差。但由于腔的模拍效应的存在, 定量的衰荡光谱技术测量遇到一定的困难, 特别是人们希望利用傅里叶变换极限脉冲在衰荡腔中得到无多普勒畸变的分子吸收线型时。最近, Lehmann 等人^[3]和 Hodges 等人^[4]利用叠加原理和谐振腔理论解释了在衰荡腔中观察到的模拍效应, 并对衰荡腔的设计提出了若干建议。

为了对衰荡腔的模拍效应有更清晰的认识, 本实验研究不同长度的腔对光参量振荡器光脉冲的响应特性。在实验中, 观察到在衰荡腔呈指数衰减的信号上叠加了复杂的调制信号。这些调制现象中, 有一些可以用谐振腔模拍效应解释, 另外一些则期待更细致的理论描述。本文假设是由于像散和畸变, 谐振腔模分裂, 从而导致复杂的横模拍效应。

2 实验装置

实验所用光源为一台光参量振荡器(德国 LAMBDA 公司生产的 Model Scanmate Oppoe), 由 Nd:YAG 脉冲激光器(美国 Continuum 公司生产的 Model PL9010)泵浦。光参量振荡器单模工作时, 输出近傅里叶变换极限脉冲, 光脉冲宽度约为 4 ns(FWHM), 线宽小于 600 MHz (0.02 cm^{-1})。实验时, 光参量振荡器的闲频波工作在 $1.3 \mu\text{m}$ 波段, 脉冲能量约为

8 mJ; 与此相应的信号波波长在 485 nm 附近。利用一标准具监测信号波产生的干涉条纹, 以确定光参量振荡器是否在单模方式运转。

图 1 为实验装置。光参量振荡器输出的脉冲光通过一个小孔(可变孔径)进入衰荡腔。腔由两块相同的反射镜组成, 其曲率半径为 1 m, 镜面反射率在 1.3 μm 处大于 99.9%。镜子安装在精密微调架上。一个位置固定在光学平台上, 另外一个可在光轴方向作平移调节, 以改变腔长。腔暴露在空气中。腔的出射光经由另一个小孔(孔径可变)到达探测器。探测器能无畸变地探测 4 ns 宽的光参量振荡器光脉冲。探测器光敏面积为圆形, 直径 $d = 1.0 \text{ mm}$ 。实验时, 在可变孔径光阑后装一个会聚透镜, 将探测器放置在该透镜的焦点附近。先用 500 MHz 的示波器(Model 7904, Tektronix 公司)观察信号波形, 然后用 100 MHz 的数字示波器(Model TDS220, Tektronix 公司)记录信号, 通过 RS232 接口送到计算机处理。

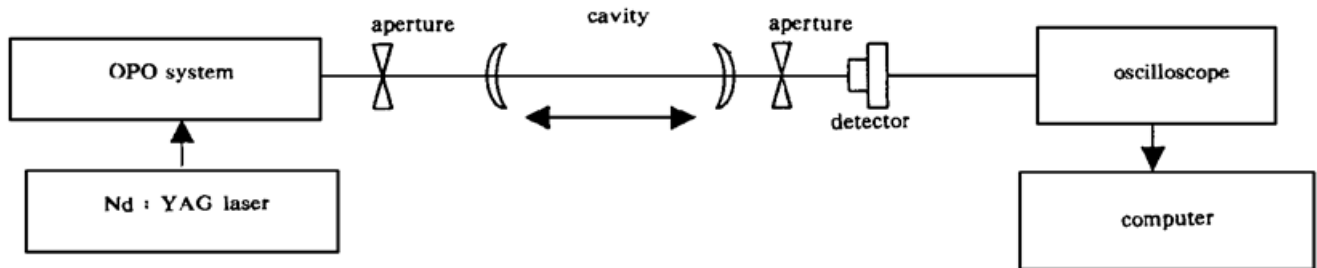


Fig. 1 Schematic of the experimental setup

3 实验结果

Hodges 等人^[4]根据激光线宽和腔纵模的比值($\eta = 2\sigma_{\text{eff}}/\omega$)不同将衰荡腔分为三种: 短腔($\eta \ll 1$)、长腔($\eta > 1$)和中等腔(η 介于两者之间)。据此, 分别让腔长在 10 cm、50 cm、100 cm 附近变化, 研究不同长度的腔产生的模拍效应。

图 2 所示, 是在中等腔情况, 腔长分别为 41 cm、43 cm 和 50 cm 时, 由数字示波器采集的衰减信号。此时, 光参量振荡器单模运转, 输出近傅里叶变换极限光脉冲。探测器前的小孔孔径为 1 mm, 入射小孔孔径为 3 mm。当腔长 $L = 43 \text{ cm}$ 时, 由图 2(b) 可见, 衰荡信号呈现出非常清晰的两种周期的拍调制, 快调制的拍周期约为 10 ns, 慢调制的拍周期为 37 ns。实验观察发现, 越靠近 50 cm, 慢拍周期越长; 当 $L = 50 \text{ cm}$ 时, 慢拍消失, 而 10 ns 周期的拍仍然存在, 如图 2(c) 所示。

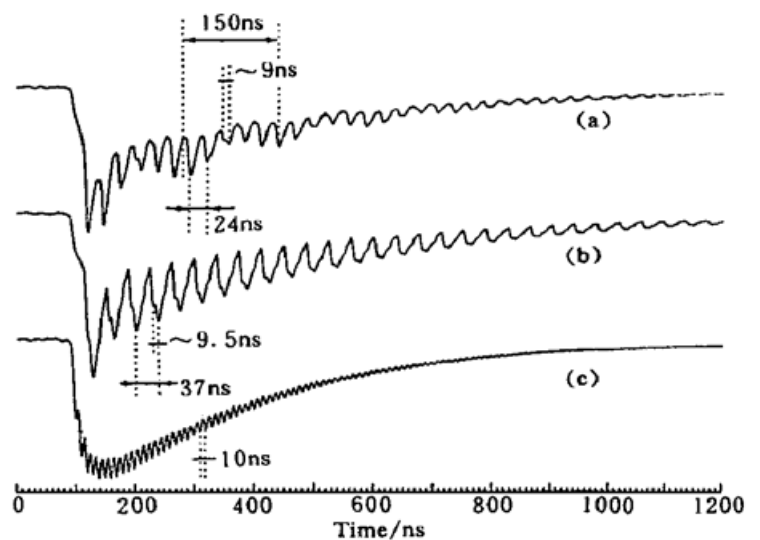


Fig. 2 Mode beatings with different periods for different cavity lengths around 500 nm. Cavity length: (a) 41 cm, (b) 43 cm, (c) 50 cm

腔长在 10 cm 附近变化时, 观察不到模拍效应。而当腔长在小于 1 m 并在附近变化时, 同样可观察到快和慢两种拍调制。

在本实验中, 除观察到以上两种拍周期外, 还观察到更复杂的调制。典型情形如图 2(a) 所示, 此时, 腔长 $L = 41 \text{ cm}$, 观察条件同

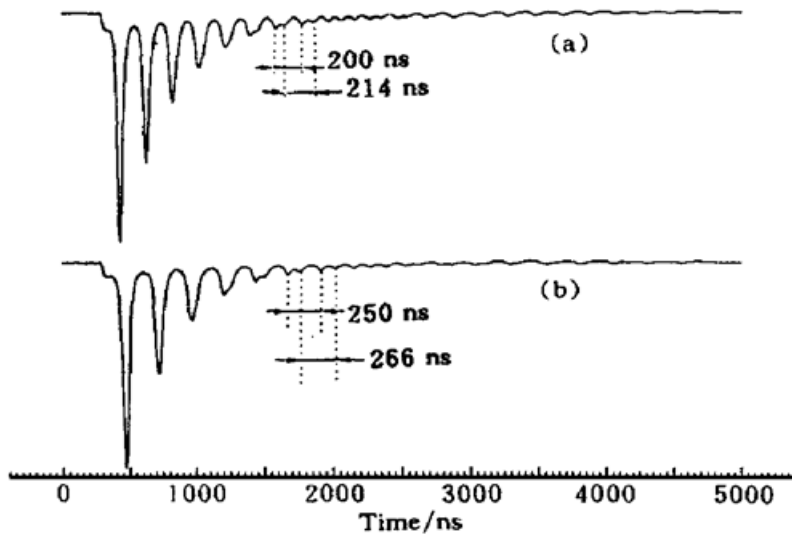


Fig. 3 Mode beatings with different periods for different cavity lengths around 96 cm. Cavity length: (a) 95 cm, (b) 96 cm

前。从图可看出,除 10 ns、24 ns 两种周期的模拍调制外,还存在一个更慢的拍调制,周期约为 150 ns。这种相对慢的调制,其周期同样随着腔长的变化而变化。

让衰荡腔的腔长在 96 cm 附近变化,可以观察到周期相差不多的两种拍调制,如图 3 所示。当腔长为 95 cm 时[图 3(a)],周期为 200 ns 的拍伴随着一个 214 ns 周期的拍;随着腔长变化,两种拍的周期同步变化;在 $L = 96$ cm 时,拍周期分别是 250 ns 和 266 ns[图 3(b)]。

4 模拍分析

Lehmann 等人^[3]和 Hodges 等人^[4]认为,和光学谐振腔一样,衰荡腔内存在一系列分立的本征模。当脉冲激光和衰荡腔耦合时,只有和本征模频率一致的光波才可能在腔内形成稳定振荡。在输出镜后探测到的衰荡信号为各个分立频率光波的叠加。

谐振腔空腔内本征频率为

$$\nu_{qmn} = \frac{\omega_{qmn}}{2\pi} = \frac{c}{2L} \left[q + \frac{2}{\pi} (m + n + 1) \arctan \left[\frac{L}{\sqrt{L(2R - L)}} \right] \right] \quad (1)$$

式中 q 为纵模指数, m 、 n 为横模指数, L 为腔长, R 为反射镜的曲率半径, c 为光速。对圆形镜腔,横模指数为 p 、 l , 上式中 $m + n$ 替换为 $2p + l$ 。

Hodges 等人^[4]导出在腔输出镜处观察到的光强随时间变化为

$$\begin{aligned} \frac{dI(t)}{dt} = & 2 \sqrt{\epsilon_0/\mu_0} \sum_{qmn} \sum_{q'm'n'} a_i(\omega_{qmn} - \omega_c) a_i(\omega_{q'm'n'} - \omega_c) \Gamma_{qmn} \Gamma_{q'm'n'} \exp(-\Gamma_{qmn}t) \exp(-\Gamma_{q'm'n'}t) \times \\ & \cos[(\omega_{qmn} - \omega_{q'm'n'})t + \Phi_i(\omega_{qmn} - \omega_c) - \Phi_i(\omega_{q'm'n'} - \omega_c)] C_{mn} C_{m'n'}^* \times \\ & \iint \Psi_{mn}(x, y, L/2) \Psi_{m'n'}^*(x, y, L/2) dx dy \end{aligned} \quad (2)$$

式中 $I(t)$ 为光强, ϵ 、 μ 为介电常数和导磁系数, a_i 为单位频段中的场振幅, ω_c 为脉冲光的中心频率, Γ_{qmn} 为指定模在腔内的衰减系数, Φ 为初始位相, C 为耦合系数, Ψ 为本征模的本征函数。当横模本征函数的正交性被破坏时,便能在衰减信号中观察到拍调制。模拍的频率为本征模的频率差。

在实验中,腔在 50 cm 附近变化时,周期约 10 ns 的拍相对应的模间隔 $\Delta q = 0$ 、 $\Delta(2p + l) = 1$ (圆形镜腔); $\Delta q = 1$ 、 $\Delta(2p + l) = 3$ 对应的拍周期随腔长变化而显著改变,腔长为 41 cm 和 43 cm 时观察到周期为 24 ns、37 ns 的拍,即是归属于这种情况。腔长为 50 cm 时,为简并腔,在目前实验条件下,只能观察到周期为 10 ns 的拍。

图 3 中,同样容易估算: $\Delta q = 1$ 、 $\Delta(2p + l) = 2$ 、 $L = 95$ cm, 拍周期 ≈ 200 ns。 $\Delta q = 1$,

$\Delta(2p + l) = 2$, $L = 96 \text{ cm}$, 拍周期 $\approx 250 \text{ ns}$ 。

尽管这样, 图 2(a) 中 150 ns 周期的慢调制, 图 3(a)、图 3(b) 中 214 ns 、 265 ns 周期的伴生调制, 用上面的方法解释则遇到了困难。

拍现象是由于同方向传播的相近频率的光波叠加的结果。拍越复杂, 证明腔内存在越多的不同的频率间隔。由(1)式, 导不出图 2(a) 慢拍和图 3 的伴生拍, 所以有理由假设, 衰荡腔内存在模频的分裂。

现在知道, 腔 TEM_{mn} 模的波场函数表达式可以分离为两个分量的乘积, $U_m(x) \times U_n(y)$, $U_m(x)$ 可写为

$$U_m(x) = \frac{\sqrt[4]{2/\pi}}{\sqrt{2^m m!} w_x} H_m \left[\frac{\sqrt{2} x}{w_x} \right] \exp \left[-\frac{x^2}{w_x^2} - \frac{ikx^2}{2R_x} - \frac{i}{2} kz + i \left(m + \frac{1}{2} \right) \eta_x \right] \quad (3)$$

$k = \omega/c$ 为沿 z 轴传播的单色光的波矢, w_x 为横模的束腰尺寸, R_x 为等相面的曲率半径, η_x 为衍射相移。 $U_m(y)$ 有相同的表达式。在一般情况下, $U_m(x)$ 、 $U_n(y)$ 相对应的横模的束腰尺寸、等相面的曲率半径和衍射相移是一致的, 并不需用下标区分。这样, 利用驻波条件, 可以导出(1)式, 从而可以方便地计算模频的间隔。

假设由于像散和畸变, 使得 $U_m(x)$ 、 $U_n(y)$ 对应的束腰尺寸、衍射相移等不再一致, (1)式需重新写为

$$\nu_{qmn} = \frac{\omega_{qmn}}{2\pi} = \frac{c}{2L} \left[q + \frac{2}{\pi} \left(m + \frac{1}{2} \right) \eta_x + \frac{2}{\pi} \left(n + \frac{1}{2} \right) \eta_y \right] \quad (4)$$

对于圆形镜情况, 可同样假设对应 p 和 l , 有不同的相移系数。

(4) 式预见了在衰荡腔内存在着横模分裂现象。 $\Delta q = 1$, $\Delta(2p + l) = 3$ 时, 所对应的频率差分为两种情况, 即 $\Delta p = 1$ 、 $\Delta l = 1$ 和 $\Delta p = 0$ 、 $\Delta l = 3$ 。所以在 $L = 41 \text{ cm}$ 情形, 除观察到 9 ns 、 24 ns 的拍以外, 还观察到由于分裂的模相互叠加形成的周期为 150 ns 的慢调制。

图 3 的拍对应于 $\Delta q = 1$, $\Delta(2p + l) = 2$, 同样分为两种情况, 即 $\Delta p = 1$, $\Delta l = 0$ 和 $\Delta p = 0$, $\Delta l = 2$ 。两种周期相差不多的拍共同存在, 进一步说明了衰荡腔内存在着横模分裂现象。

在实验中发现, 即使探测器前的小孔全部打开, 探测器近似完全接收衰荡腔输出信号, 也容易观察到模拍调制。这也许是由于横模分裂, 破坏了模场分布函数的正交特性的缘故。

结 论 利用光参量振荡器输出的傅里叶变换受限脉冲光, 研究了衰荡腔的模拍效应。衰荡腔模拍效应的存在, 间接证明了谐振腔本征模理论可以应用到衰荡腔。在这种情况下, 无论采用何种腔长, 腔频率选择特性总是存在, 这给衰荡腔的设计带来了一定的困难。

在实验中观察到衰荡信号的复杂的调制现象。如果衰荡腔的本征模理论正确, 这实际上预示了腔的本征模频率的分裂。在文中讨论了这种情况, 对复杂的模拍作了一些定性的解释。但这种现象本身期待着更细致的理论描述。

参 考 文 献

- [1] O'Keefe A, Deacon D A G. Cavity ring-down optical spectrometer for absorption measurement using pulsed laser sources. *Rev. Sci. Instrum.*, 1988, **59**(12): 2544~ 2551

- [2] Romanini D, Lehmann K K. Ring-down cavity absorption spectroscopy of the weak HCN overtone bands with six, seven, and eight stretching quanta. *J. Chem. Phys.*, 1993, **99**(9) : 6287~ 6301
- [3] Lehmann K K, Romanini D. The superposition principle and cavity ring-down spectroscopy. *J. Chem. Phys.*, 1996, **105**(23) : 10263~ 10277
- [4] Hodges J T, Looney J P, van Zee R D. Response of a ring-down cavity to an arbitrary excitation. *J. Chem. Phys.*, 1996, **105**(23) : 10278~ 10288

Experimental Study on the Complicated Mode Beating Effects of Ring-Down Cavity

Chen Hongbing Gao Junyi Zhou Jingang
Cheng Guosheng Gong Zhiben

(Anhui Institute of Optics & Fine Mechanics, The Chinese Academy of Science, Hefei 230031)

(Received 5 March 1998; revised 20 April 1998)

Abstract The signals emitted from the ring-down cavities under different conditions were investigated using pulsed light from an optical parametric oscillator. The ring-down signals coupled with complicated modulations were observed in the experiment. Some of the mode frequencies can be explained by the formula deduced from the eigenmode theory of resonant cavity. It is proposed that the complicated mode beating was due to the slight splitting of the transverse mode owing to the astigmatism and aberration of the ring-down cavity optical system.

Key words cavity ring down spectroscopy, mode beating, Fourier-transform-limited pulse.