

文章编号: 0253-2239(2001)03-0317-03

低频波长调制光谱的理论与实验研究*

李 倩 肖连团 李昌勇 贾锁堂 周国生
(山西大学电子系, 太原 030006)

摘要: 通过调制半导体激光外腔压电陶瓷的电压实现低频波长调制, 并慢扫描激光器的波长, 测量了 C_s 原子 D_2 线 [$6S_{1/2}(F=4) \rightarrow 6P_{3/2}$] 的吸收光谱, 利用锁相放大器处理了二次、四次、六次谐波信号, 实验结果与理论分析相吻合, 在实验过程中还发现高次谐波探测可以有效地提高探测信号的信噪比。

关键词: 谐波探测; 外腔式二极管激光器; 波长调制光谱; 信噪比

中图分类号: O433.1 文献标识码: A

1 引言

对可调谐二极管激光进行波长调制和諧波探测的实验技术被广泛应用于微弱吸收信号的测量^[1~6]。但是常用的电流调制法在高分辨、高灵敏的光谱学检测方面有一定的缺陷: 即单模调谐范围有限, 激光线宽较宽。而使用电压调制的外腔式连续可调谐半导体激光器作为光源则克服了以上缺点。在本文中, 使用低频波长调制可以保证半导体激光器有稳定的调制光输出, 并能有效抑制压电电压调制导致的干扰信号^[7~10]。

2 理论背景

对于 N 次諧波探测信号, 在调制系数非常小时, 其信号的幅度可用下式表示^[1~4]

$$S_N = I_0 L \frac{2^{1-N}}{N!} a^N n \sigma_{\text{abs}} g^{(N)}(\nu), \quad (1)$$

其中, I_0 为入射光的强度, L 为吸收介质的长度, a 为调制系数, n 为气体密度, σ_{abs} 为吸收截面, $g^{(N)}(\nu)$ 是线型函数的 N 阶导数。而在实际应用中更关心的是諧波信号的最大值、相应探测介质的吸收系数和最佳信噪比值。对于最佳的调制幅度, 必须考虑各自特殊的线型。

1) 对压力展宽占优势的情况, $g(\nu)$ 用洛伦兹函数来表示: 其中 $\Delta\nu_L = n\sigma_{\text{coll}}\nu$, σ_{coll} 为碰撞截面; ν 为分子碰撞期间的相对速度。

$$g_L(\nu) = \frac{\Delta\nu_L}{2\pi} \frac{1}{(\nu - \nu_0)^2 - (\Delta\nu_L/2)^2}, \quad (2)$$

$$\begin{aligned} \frac{d^N g_L(\nu)}{d\nu^N} = & \frac{\Delta\nu_L}{2\pi} \frac{(-1)^N}{[(\nu - \nu_0)^2 + (\Delta\nu_L/2)^2]^{N+1}} \times \\ & \sum_{k=0}^{[N]/2} (-1)^k \frac{(N+1)! N!}{(2k+1)(2k)!(N-2k)!} \times \\ & \left[\frac{\Delta\nu_L}{2} \right]^{2k} (\nu - \nu_0)^{N-2k}. \end{aligned} \quad (3)$$

(3) 式中如果 N 为奇数则 $[N] = N-1$, 如果 N 为偶数则 $[N] = N$ 。通过计算可以得出在线中心偶次諧波信号有最大值, 这时 N 次諧波信号

$$S_{LN} = (-1)^{N/2} I_0 L \frac{a^N}{\pi} \frac{2^{2-\sigma_{\text{abs}}}}{(\sigma_{\text{coll}}\nu)^{N+1}} \frac{1}{n} \quad (4)$$

2) 气体的压力减小, 压力展宽被忽略, 这时多普勒展宽占优势, 吸收系数用高斯函数来表示

$$g_G(\nu) = \frac{2}{\Delta\nu_D} \left[\frac{\ln 2}{\pi} \right]^{1/2} \exp \left[-\ln 2 \left| \frac{2(\nu - \nu_0)}{\Delta\nu_D} \right|^2 \right], \quad (5)$$

$$\begin{aligned} \frac{d^N g_G(\nu)}{d\nu^N} = & \frac{\exp[-(\nu - \nu_0)^2/\Delta\nu_D^2]}{\sqrt{\pi}} \frac{1}{(\Delta\nu_D)^{2N+1}} \times \\ & \sum_{k=0}^{[N]/2} (-1)^k \frac{N!}{(N-2k)!} \frac{(-2)^{N-2k}}{k!} \times \\ & (\Delta\nu_D)^{2k} (\nu - \nu_0)^{N-2k}, \end{aligned} \quad (6)$$

其中, $\Delta\nu_D = \frac{\Delta\nu_D}{\sqrt{4\ln 2}}$, $\Delta\nu_D = 2 \left[\frac{2kT \ln 2}{Mc^2} \right]^{1/2}$, ν_0 为多普勒线宽。如果在线中心, 则获得的信号幅度为

$$S_{GN}(\nu_0) = 2^{1-N} (-1)^{N/2} I_0 L a^N \sigma_{\text{abs}} n \frac{1}{\sqrt{\pi}} \frac{1}{\Delta\nu_D^{N+1}} \frac{1}{(N/2)!} \quad (7)$$

3) 在一般情况下, 吸收线型为佛克脱(Voigt)线型, 它是洛伦兹线型与多普勒线型的卷积。其线型

* 国家自然科学基金(19774039)、山西省自然科学基金(971026, 981003)资助项目。

函数为

$$g_V(V) = \frac{\Delta V_L}{\Delta V_D} \frac{\ln 2^{V/2}}{\pi^{3/2}} \int_0^{\infty} \frac{\exp[-\ln 2(2(V_m - V)/\Delta V_D)^2]}{(V - V_m)^2 + (\Delta V_D/2)^2} dV_m, \quad (8)$$

对于奇次谐波线型函数的 N 阶导数, 根据卷积微分的性质可得

$$\left. \frac{d^N g_V(V)}{dV^N} \right|_{V=V_0} = 0 \quad (9)$$

对于偶次谐波^[3], 其归一化的线型函数 $g_V(x)$ 为

$$\frac{\partial^N g_V(x)}{\partial x^N} = \textcircled{H}_y \left[\sum_{k=0}^{\lfloor N/2 \rfloor} C_{2k, N} y^{N-2k} \right], \quad (10)$$

其中, \textcircled{H}_y 为佛克脱算符^[3],

$$C_{2k, N} = \frac{(-1)^k N!}{(N-2k)! k!} 2^{N-2k},$$

可见 $S_{VN}(x) \propto I_0 L \frac{\partial g_V(x)}{\partial x}$. (11)

3 实验装置与技术

图 1 为用来测量铯原子的红外调制吸收光谱的实验装置示意图。外腔式连续可调谐半导体激光器(美国 New Focus 公司 6017)运转于恒定电流模式, 用一个低噪声控制器把外加电压信号放大 25 倍后加到压电陶瓷上。激光工作温度为 26 ℃, 恒定地注入电流 55 mA, 输出能量为 8.5 mW, 在空气中波长为 852.1 nm。输出光经一个装在直径 2 cm、长 3 cm 抽真空达 133.3×10^{-5} Pa 的石英样品池的铯盒后进入硅光电探测器, 从光电探测器接收到的调制信号用锁相放大器(SR830, SRS)来解调, PC 机从锁相放大器的输出通道 1 采集经解调的谐波信号。从锁相放大器引出一个正弦信号(峰值为 25 mV)作为调制信号。用函数发生器(33120A HP)产生一个频率为 1 Hz 的锯齿波, 实验中峰峰值为 40 mV, 与调制信号叠加后送入激光器的频率调制输入口, 实现对输出光的调制和扫描。锁相放大器存贮的数据由计算机处理和分析。

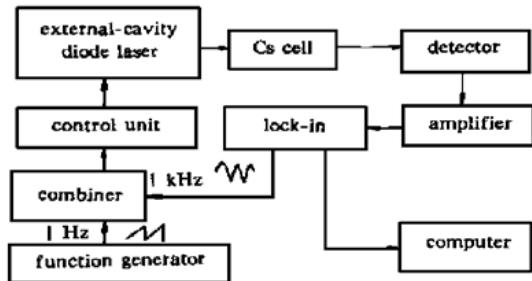


Fig. 1 Schematic diagram of experiment setup

4 实验结果与讨论

我们用外腔式二极管激光器获得了铯原子 D_2 线的二次、四次、六次谐波信号如图 2 所示。实验样品为低压下的铯饱和蒸气, 多普勒展宽占优势, 因此理论上谐波信号从(6)式和(1)式归一化后如图 3 所示。对于 $2f$ 、 $4f$ 、 $6f$ 信号, 当多普勒展宽占主导时, 理论上调制系数的最佳值^[4]分别为 2.1、3.6、5.2, 实验数据与理论曲线进行比较, 二者符合较好。考虑到随着调制系数的增加, 将导致信号的调制展宽, 它直接影响信号探测的分辨率^[6], 因此在实验中, 选择调制系数的值使二次谐波信号的值最大, 这时固定调制系数值 $a = 1.2$ GHz, 比较了 $2f$ 、 $4f$ 、 $6f$ 谐波信号。发现谐波探测的级次越高, 信号的信噪比越高。实验结果 $2f$ 的信噪比为 80, $4f$ 为 300, $6f$ 为 460, 在此实验条件下, 吸收灵敏度可达 10^{-6} ^[7]。

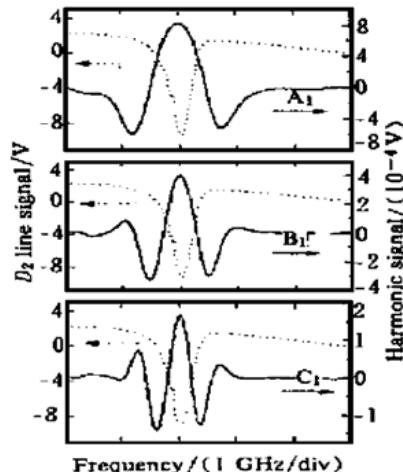


Fig. 2 Solid line A_1 , B_1 , C_1 are respectively experimental curves of $2f$, $4f$, $6f$ harmonic signals. The dashed lines are D_2 line of detection (linewidth approximate to 540 MHz)

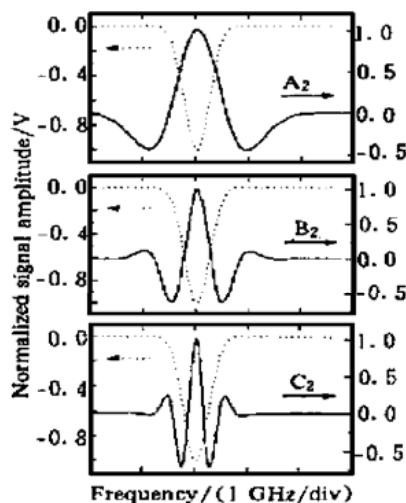


Fig. 3 Solid line A_2 , B_2 , C_2 are respectively theoretical curves of $2f$, $4f$, $6f$ harmonic signals. The dashed lines are Doppler lineshape (linewidth approximate to 540 MHz). All signals are normalized

对于激光器来说, 波长调制过程同时伴随着激光能量的调制, 所以在实验中对于所有的谐波信号, 锁相放大器的相位设置应保证 N 次谐波信号为最大。实验中设置锁相放大器的积分时间常数为 30 ms。由于激光器电压调制带宽的限制, 激光器调制频率被限制在 3.5 kHz 范围内, 通过实验比较, 得到调制频率的最佳值为 1 kHz。对于谐波信号探测, 选择合适的调制频率有利于获得最佳信噪比。如果采用平衡探测器, 能量调制的影响会降低, 谐波信号的探测灵敏度将会有进一步的改善。实验发现 δf 探测技术较好, 能量调制对于 δf 信号产生的寄生振幅调制导致的噪声很小, 因而信噪比最高。

结论 使用外腔式二极管激光器低频波长调制方法探测了铯原子的吸收光谱。与其他方法相比, 这种方法的优点是: 适合于通过调节激光外腔的压电电压实现二极管激光器的频率连续慢扫描的调制; 由于波长调制的频率较低, 系统仅需要低带宽的探测器, 因而不需要快速的光电探测器, 并且也便于获得高次谐波信号。探测技术的灵敏度不仅依赖于信号本身, 而且与能量调制产生的背景信号有很大关系, 只要能选择合适的实验参数, 就可获得较高的灵敏度。因高次谐波的信噪比较高, 且线宽窄, 可利用它对非常接近的弱吸收线进行探测, 从而为研究原子的精细结构提供了一种简单可靠的实验方法。这一技术也可以应用到环境检测和工业过程的控制中, 在气体传感器方面有着广阔的应用前景。

参 考 文 献

- [1] Reid J, Labrie D. Second harmonic detection with tunable diode lasers: comparison of experiment and theory. *Appl. Phys. (B)*, 1981, **26**(3): 203~ 210
- [2] Dharamsi A N, Lu Y. High resolution spectroscopy using high order derivative techniques. *Appl. Phys. Lett.*, 1994, **65**(18): 2257~ 2259
- [3] Dharamsi A N, Lu Y. Sensitive density - fluctuation measurements using wavelength modulation spectroscopy with high order harmonic detection. *Appl. Phys. (B)*, 1996, **62**(3): 273~ 278
- [4] Uehara K. Dependence of harmonic signals on sample gas parameters in wavelength modulation spectroscopy for precise absorption measurements. *Appl. Phys. (B)*, 1998, **67**(4): 517~ 523
- [5] Linnerud I, Kaspersen P, Jaeger T. Gas monitoring in the process industry using diode laser spectroscopy. *Appl. Phys. (B)*, 1998, **67**(3): 297~ 305
- [6] Dharamsi A N, Bullock A M. Applications of wavelength modulation spectroscopy in resolution of pressure and modulation broadened spectra. *Appl. Phys. (B)*, 1996, **63**(3): 283~ 292
- [7] Xiao Liantuan, Li ChangYong, Li Qian et al.. Low-frequency wavelength modulation spectroscopy with the D_2 transition of Cs atomic using external cavity diode laser. *Appl. Opt.*, 2000, **36**(6): 1049~ 1052
- [8] Harvey K C, Myatt C J. External cavity diode laser using a grazing incidence diffraction grating. *Opt. Lett.*, 1991, **16**(12): 910~ 912
- [9] Nguyen Q V, Dibble R W. High resolution oxygen absorption spectrum obtained with an external cavity continuously tunable diode laser. *Opt. Lett.*, 1994, **19**(24): 2134~ 2136
- [10] 肖连团, 李昌勇, 李倩等. 电压调制光谱中的残余幅度噪声的研究. 量子电子学报, 1999, **5**(4): 239~ 243

Theoretical and Experimental Investigation of Low Frequency Wavelength Modulation Spectroscopy

Li Qian Xiao Liantuan Li Changyong Jia Suotang Zhou Guosheng

(Department of Electronic and Information Technology, Shanxi University, Taiyuan 030006)

(Received 8 October 1999; revised 8 December 1999)

Abstract A series of experiments are carried out by modulating piezo voltage of an external cavity continuously tunable diode laser. Cesium atom D_2 line ($6S_{1/2} \rightarrow 6P_{3/2}$) absorption spectrum is measured by harmonic detection with a lock-in amplifier. The results about various harmonic signals in experiment are agreement with that in theory. The high-order harmonic detection may result in a significant improvement in signal-to-noise ratio (SNR).

Key words: harmonic detection; external cavity diode laser; wavelength modulation spectroscopy; signal-to-noise ratio