电光调制器低频控制对受残余幅度调制影响的频率 调制光谱线型优化研究

张永智 李志新 闫晓娟 王 乐 胡志裕 马维光 张 雷 尹王保 贾锁堂 (山西大学激光光谱实验室量子光学与光量子器件国家重点实验室,山西 太原 030006)

摘要 频率调制(FM)光谱技术中由于激光偏振态变化产生的残余幅度调制(RAM)使其在微量气体检测中的应 用受到极大的限制。理论上详细分析了这一过程产生的原因,获得了存在 RAM 时 FM 光谱线型的表达式,同时给 出 N.C. Wong 和 J.L. Hall(W-H)方案抑制 RAM 后的 FM 光谱线型表达式;在实验上通过对乙炔气体的测量获得 了存在 RAM 时的光谱线型,同时采用 W-H 方案对 RAM 进行了抑制,并获得了优化的光谱线型;最后基于理论结 果对实验线型进行了拟合,两者差值小于信号峰峰值的 4%。

关键词 光谱学;频率调制光谱术;残余幅度调制;电光调制器;光谱线型 中图分类号 O433.1; TN247 **文献标识码** A **doi**: 10.3788/AOS201232.0330001

Optimization of Frequency Modulation Spectral Lineshape Influenced by the Residual Amplitude Modulation Based on the Low Frequency Control of Electro-Optic Modulator

Zhang Yongzhi Li Zhixin Yan Xiaojuan Wang Le Hu Zhiyu Ma Weiguang Zhang Lei Yin Wangbao Jia Suotang

(State Key Laboratory of Quantum Optics and Quantum Optics Devices, Laser Spectroscopy Laboratory of Shanxi University, Taiyuan, Shanxi 030006, China)

Abstract The residual amplitude modulation (RAM) induced by the polarized state changes of laser light in frequency modulation (FM) spectroscopy limits its application in the field of trace gas detection. The process is analyzed theoretically. The expression of the FM spectroscopic lineshape which contains the RAM is obtained. The expression of FM spectral lineshape is given when the RAM is restrained by N.C. Wong and J.L. Hall (W-H) method. The spectrum profile which contains the RAM is got by the measurement of the acetylene gases in the experiment. Then the W-H method is used to restrain the RAM and the optimized spectral lineshape is obtained. Finally, the results of the measured lineshape are fitted based on the theoretical method and the value difference between the two signals is less than 4% compared with the signal peak value.

Key words spectrosopy; frequency modulation spectroscopy; residual amplitude modulation; electro-optic modulator; spectral lineshape

OCIS codes 300.6190; 020.3690; 060.2340; 140.3518

1 引 言

随着世界各国工业化活动的加剧,大量如CO2、

CH₄ 和 N₂O 等温室气体的排放,使得地球温度逐渐升高,严重的威胁到了地球上人类的生存;在我国

收稿日期: 2011-08-30; 收到修改稿日期: 2011-10-12

基金项目:国家 973 计划(2012CB921603)、国家 863 计划(2009AA063006)、国家自然科学基金(61127017,61178009, 10934004,60908019,60808009)和山西省青年科学基金(2010021003-3)资助课题。

作者简介: 张永智(1983—),男,硕士研究生,主要从事高灵敏微量气体检测技术方面的研究。E-mail: zyz306@163.com 导师简介: 马维光(1976—),男,博士,副教授,主要从事激光技术、红外微量气体探测技术等方面的研究。

E-mail: mwg@sxu.edu.cn(通信联系人)

化工厂及电厂等排放的 SO₂、H₂S、NO 以及 NO₂ 等 大量有毒气体造成了环境大气的严重污染,对其治 理上升到了国家战略高度,而对相应污染气体进行 检测的前提是准确地确定出目标气体的浓度。目前 传统的测量方法主要包括电化学式^[1]、气相色谱 式^[2]、接触燃烧式^[3]、热导式^[4]以及红外宽带光源吸 收式^[5]等,然而这些技术需要采样,无法实现在线同 步检测。近年来发展的激光光谱技术具有高灵敏、 高选择性及可在线检测的优点被各国争相研究,成 为下一代气体检测的首要发展技术^[6~8]。

激光光谱技术是基于激光与分子相互作用机理 来获得目标气体浓度的一种方案,根据探测方式以 及结构的不同衍生出多种技术,其最小探测吸收可 以从10⁻³达到10⁻¹³,能够满足各种不同领域对测 量灵敏度的需求,然而其技术复杂程度却越来越高。 直接吸收光谱技术[9,10]是最简单的光谱技术也是各 种高灵敏激光测量技术的基础,其最小探测吸收约 为10⁻³,可以满足一般气体检测灵敏度要求,但其 灵敏度相对较低。要提高气体探测灵敏度主要有三 种途径:1)降低信号探测过程中的噪声;2)增加激光 与气体相互作用路径;3)选择较强的气体吸收线。 频率调制(FM)光谱技术[11,12] 通过将吸收信号加载 到高频段进行探测来降低探测噪声,其最小探测吸 收提高到 10⁻⁶。利用多通道池^[13]或者腔吸收池^[14] 等可以增加相互作用长度,其灵敏度可达到 10-9以 上;然而到目前为止探测灵敏度最高的激光光谱技 术是噪声免疫腔增强光外差分子吸收光谱技术 (NICE-OHMS)^[15],它结合了 FM 与腔增强两种高 灵敏的探测技术,最小探测吸收达到了10-13。

FM 光谱技术不仅是一种比直接吸收光谱技术 灵敏度高的测量技术,同时也是 NICE-OHMS 的关 键技术,为了提高其实用性,发展光路及光学器件光 纤化的全光纤 FM 光谱技术成了一种趋势,目前相 关光纤器件的出现使其成为了可能。FM 光谱是利 用电光调制器将线偏振激光进行调制后通过样品吸 收池入射到高频探测器,最后采用调制信号对探测 信号进行解调来获得 FM 信号,然而当线偏振激光 的偏振方向与电光调制器的调制方向(通常为竖直 方向即非寻常轴方向)不一致时,由于电光晶体在竖 直和水平两个特定方向的折射率不同,使得两个偏 振方向光具有不同的传输相位,从而在 FM 信号中 出现了一个依赖于两个折射率的直流偏置,同时 FM 光谱线型被扭曲,这种现象称为残余幅度调制 (RAM)。不论是单模光纤还是保偏光纤,线偏振激 光在传输过程中都会出现偏振态及偏振方向的变化,这就使得研究 FM 光谱中的 RAM 对线型的影响以及对其的抑制尤为重要。

N.C. Wong 和 J.L. Hall(W-H)^[16]在 80 年代 对非光纤 FM 光谱中的这一现象进行了研究,得出 了利用不经过吸收池的 FM 光谱信号反馈到电光调 制器(EOM)上来控制两方向相移使其相差 2π 的整 数倍来实现对 RAM 的抑制,但是没有分析方案对 光谱线型的影响:C.L. Bell 等[17] 也干 2009 年将这 一技术应用到了 NICE-OHMS 装置中实现了对 RAM 的抑制;针对 RAM 对光纤 FM 过程信号的影 响,A. Foltynowicz^[18]于 2008 年进行了简单解释, 认为是由于电光调制器前光纤对偏振态扰动造成了 FM 光谱信号的不稳定,未对线型进行分析。本研 究理论分析了当输出到 EOM 的线偏振光与调制方 向有夹角时 RAM 对 FM 光谱线型的影响,也研究 了 W-H 的 RAM 抑制方案对 FM 光谱线型的影响; 同时在实验上对其进行了测量,将测得的光谱线型 与理论结果进行了拟合。

2 RAM 理论分析

图 1 为 FM 光谱装置示意图。激光源输出的线 偏振激光其偏振方向与 EOM 中电光晶体的寻常光 轴(o 轴)存在一个夹角 θ (如图中虚线框中坐标所 示),激光场被 EOM 调制后通过气体样品池,而后 被高速探测器(*f*-PD)探测。射频源发出的信号分 为两路:一路作为调制信号输入到 EOM 的射频输 入端;另一路通过移相器与探测器的探测信号进行 混频,混频后的信号通过低通滤波器(LP)之后得到 FM 光谱信号。图中虚线方框中的坐标为 EOM 中 电光晶体寻常轴 o 和非寻常轴 e,坐标中点线为激 光线偏振方向, θ 为其与 o 轴夹角,Pol 为偏振片用 以模拟探测器窗口等的检偏效应^[18]。通常 EOM 的调制方向沿 e 轴方向,因此当 θ 为 90°的时候,对 应纯 FM 过程,获得的纯 FM 光谱信号为^[6,9]

 $I_{\mathrm{FM}} = I_{\scriptscriptstyle 0} \mathrm{J}_{\scriptscriptstyle 0}(\beta) \mathrm{J}_{\scriptscriptstyle 1}(\beta) \exp(-2\delta_{\scriptscriptstyle 0}) \, imes$

 $[(\delta_{-1} - \delta_1)\sin \varphi + (\phi_1 + \phi_{-1} - 2\phi_0)\cos \varphi], (1)$ 式中 *I*₀ 为初始光强, *J*_{0,1} 为零阶和一阶贝塞耳函数, β为调制系数, δ_i 和 ϕ_i 分别表示第 *i* 阶边带对应光 场的幅度衰减和光学相移, φ 为探测相位。

然而当激光器输出线偏振光的偏振方向不能完 全沿 EOM 的调制方向即 e 轴入射,就会在 FM 光 谱的色散信号中产生一个受调制方向和垂直方向折 射率影响的直流偏置,这一偏置会影响 FM 光谱信 号的稳定性,从而影响对气体的探测灵敏度,这个过 激光: 程称为 RAM,具体理论分析如下:

如图 1 所示,角频率为 ω_{c} ,幅度为 E_{0} 的单频



图 1 FM 光谱装置示意图



当激光偏振方向与 e 轴夹角 θ 不为 0°或 90°时, 光场进入 EOM 后就会沿特征轴 o 轴和 e 轴分解, 两光场可以分别表示为

$$\int E_{o} = E_{0} \cos \theta \exp[i(\omega_{c}t + \phi_{o})],$$

$$E_{e} = E_{o} \sin \theta \exp[i(\omega_{c}t + \phi_{e} + \phi_{lf} + \beta \sin \omega_{m}t)]$$

式中 E_o 和 E_e 为 o 轴和 e 轴方向的激光电场幅度, \$o.e为自然双折射引起的 o 光和 e 光的相位变化,\$\mu\$_i 为 EOM 低频控制端输出信号引起的相位变化,\$\mu\$_j FM 系数,\$\mu\$_m,`为调制角频率。

经过气体样品池和偏振片的调制激光场,利用 贝塞尔函数展开且略去高阶项后其电场幅度为

$$E_{2} = E_{0} \{ T_{0} [\cos \theta \cos \gamma + \sin \theta \sin \gamma J_{0}(\beta) \exp(-i\Delta \phi)] + \sin \theta \sin \gamma \{ T_{1} J_{1}(\beta) \exp[i(\omega_{m}t - \Delta \phi)] - T_{-1} J_{1}(\beta) \exp[-i(\omega_{m}t + \Delta \phi)] \} \} \exp[i(\omega_{c}t + \phi_{o})],$$

$$(4)$$

式中 $T_i = \exp(-\delta_i - i\phi_i)$ 为气体样品的传递函数, $\Delta \phi = \phi_o - \phi_e - \phi_{li}$, δ_i 和 ϕ_i 分别表示第 *i* 阶边带频率的幅 度衰减以及光学相移, γ 为 EOM o 轴方向与偏振片透振方向的夹角。

高速探测器探测到的信号为光强信号即: $I \propto |E_2|^2$,探测器输出的信号与被移相的调制信号进行混频,通过低通滤波器后滤掉高频信号得到的一般 FM 光谱信号为

$$I_{\text{RAM}} = |E_0|^2 J_0 J_1 \exp(-2\delta_0) \sin^2 \theta \sin^2 \gamma [(\delta_{-1} - \delta_1) \sin \varphi - (\phi_1 + \phi_{-1} - 2\phi_0) \cos \varphi] + 0.5 |E_0|^2 J_1 \exp(-2\delta_0) \sin 2\theta \sin 2\gamma \{ [(\delta_{-1} - \delta_1) \cos \Delta \phi + (\phi_{-1} - \phi_1) \sin \Delta \phi] \sin \varphi - [(2 + 2\delta_0 - \delta_1 - \delta_{-1}) \sin \Delta \phi + (\phi_1 + \phi_{-1} - 2\phi_0) \cos \Delta \phi] \cos \varphi \}.$$
(5)

(5)式在 θ 为 90°时就可以变化到(1)式,另当 sin Δφ= 0 时,上式具有和(1)式相同的线型,过渡为纯 FM 光 谱信号。当气体样品池内无样品时,(5)式可表示为

 $I_{\text{RAM}}^{\circ} = -J_1 |E_0|^2 \sin 2\theta \sin 2\gamma \sin \Delta\phi \cos \varphi. \quad (6)$

由(6)式可知 Δφ 在 π 的整数倍附近 I_{RAM} 满足 误差函数特点,可以通过其反馈到 EOM 通过控制 ϕ_{II} 使 sin Δφ=0。这即是 W-H 提出的抑制 RAM 的 实验方案,但是他们没有对无反馈及有反馈时的线 型进行分析,下面通过实验对有无反馈时的实验线 型与理论进行拟合,验证其可行程度以及理论计算 的正确性。

3 实验装置及过程

图 2 为抑制 FM 光谱中 RAM 的实验装置图。函 数发生器(Agilent 33120A,美国)产生的频率为 10 Hz, 峰峰值为 150 mV 的三角波信号输出到分布反馈 (DFB)激光器(NTT Electronics,NLK1S5GAAA,日本) 控制器(ILX lightwave,LDC-3724C,美国),用以实现激 光波长在 6544.4419 cm⁻¹附近扫描,这一频率对应乙 炔 $\nu_1 + \nu_3$ 带 P5(*e*)支吸收线,其吸收强度为9.475× 10⁻²¹ cm⁻¹/(molecule•cm⁻²)^[19],由单模光纤输出的 激光经过 $\lambda/2$ 波片和偏振片实现输出激光偏振方向 的控制,然后耦合进光纤 EOM(Photline MPX-LN-

$$E_1 = E_0 \exp(i\omega_c t). \tag{2}$$

0.5,法国,调制带宽 DC-500 MHz),输出的激光一路经过法布里-珀罗(F-P)腔(宇光公司 FP100,中国,腔长 10.4 cm,自由光谱区 772 MHz)获得时间频率转换函数用于定标吸收线型的横坐标;另一路通过乙炔吸收池,高速探测器 *f*-PD1(NEW FOCUS 1611,美国,带宽1 GHz)探测到的信号被功率放大器放大后与移相后的调制信号混频,然后通过低通滤波器获得最终的 FM 光谱信号,气体吸收池购置于美国 THORLABS 公司,池长度为 5.5 cm,气压

为 6.666×10³ Pa。第三路直接被高速探测器探测, 探测到的信号与移相的射频信号混频输入到 PID 控 制器(SRS SIM960,美国),经过规整的误差信号反馈 到光纤 EOM 低频控制端,用来提供 FM 的射频源为 美国 NEW FOCUS 公司生产的 3363 型射频信号发 生器,调制频率为 384 MHz,调制系数约为 0.2,最终 实验数据的采集是采用了 NI 公司生产的 PCI-MIO-16E-1 数据采集卡。



图 2 抑制 FM 光谱中 RAM 的实验装置图 Fig. 2 Experimental setup for the restraint of the RAM in FM spectroscopy

实现对实验数据与理论的拟合首先需要对其进 行数据处理,由于在激光扫描时激光频率的变化为 时间的函数,采集到的原始信号如图3所示,其中 图 3(a)为乙炔吸收的 FM 光谱信号,图 3(b)为 F-P 腔透射信号,图 3(a)中虚线为没有进行频率转换的 原始信号,其横坐标对应下轴时间;实线为进行频率 转换后的光谱信号,其横坐标对应上轴频率,可见频 率扫描范围大约6 GHz。由时间坐标向频率坐标转 换需要采用 F-P 腔的透射信号作为标准,具体转换 过程为:1)找出每个 F-P 腔透射峰对应的时间坐 标,以第一峰作为基准,以每个峰和第一峰间隔与时 间坐标作图;2)对其利用一阶或高阶多项式进行拟 合,获得频率随时间变化的函数;3)利用这一函数将 FM 光谱中的时间转换为频率,这一转换过的频率 是相对激光频率而非绝对频率。由于通常情况下频 率与时间的非线性关系,因此图 3(a)中的光谱信号 经过转换后有些移动。





4 实验结果

基于实验过程的描述,首先测量了没有经过反

馈时的 FM 光谱信号,通过设置光纤 EOM 前 $\lambda/2$ 波片与偏振片的角度,使得产生一个角度 θ,实验中 设置其约为 80°,γ角度约为 20°,测量的实验结果如 图 4(a)所示,其中点线为实验测量的每隔 15 个点 的显示结果,实线为利用(5)式采用最小二乘法拟合 的结果,其中图 4(b)为实验与理论的差值,可见拟 合效果非常好。这里拟合的变量主要有信号幅度、 探测 相位、中心频率以及偏置。另外 拟合后将 图 4(a)的横坐标进行了频率移动,使得光谱信号关 于线中心对称,拟合后获得的探测相位约为 7°,接 近色散相位,由于双折射引起的相位差 Δφ 约为 22°,同时存在一个约20 mV的直流偏置。图中出现 的直流偏置以及线型扭曲使得 FM 光谱在对目标气 体进行探测时,极大地影响探测浓度的准确性。













当在光纤 EOM 的低频控制端添加反馈后,实验中获得了非常理想的吸收和色散信号,分别如图 5和图 6所示。其中图 5,6(a)中的点线为实验数据,实线为利用(1)式进行拟合的结果,通过拟合可知图 5 的探测相位约为 90°,图 6 的探测相位约为 0°。这里的拟合参量主要是信号幅度、探测相位以及中心频率。理论与实验的差值控制在信号峰峰值的 4%以内,其中差值中的毛刺是实验中引起的噪声所致。

图 4 和图 6 同为接近色散信号,两者相比可以 发现,在光纤 EOM 的低频控制端添加反馈信号之 后,FM 光谱色散信号消除了 RAM 引起的直流偏 置和光谱线型扭曲,使得信号正负对称,同时信号幅 度略有变大,主要是由于(5)式中第二部分受 RAM 影响的部分在反馈后成为标准 FM 信号,且符号与 第一部分标准 FM 信号相同,从而增强了信号。 图 5接近吸收信号,可以看出在增加外部反馈后,线 型没有发生变化,与理论符合得很好。在本实验中 仅仅测量了具有 RAM 的一种接近色散相位的情 况,随着 θ , γ , $\Delta \phi$ 的不同,线型扭曲程度也有所不同, 对于扭曲程度较大的线型,要通过线型确定出目标 气体的浓度,只能通过理论拟合的办法来完成。

5 结 论

分析了输入到 EOM 线偏振光的振动方向没有 沿调制方向而产生 RAM 的机理,并在实验上进行 了验证,通过理论和实验分析了 RAM 存在以及抑 制后的 FM 光谱线型变化,两者拟合误差控制在信 号幅度的 4%以内。

参考文献

 Zhu Liang, Yan Long, Zou Bing *et al.*. Design of portable detection instrument for hydrogen sulfide [J]. *Instrument Technique and Sensor*, 2011, 3: 31~33 朱 亮, 严 龙, 邹 兵等. 便携式硫化氢检测仪[J]. 仪表技

术与传感器, 2011, 3: 31~33 2 Zhang Xiaoxing, Yao Yao, Tang Ju et al.. Actuality and

perspective of proximate analysis of SF6 decomposed products under partial discharge[J]. *High Voltage Engineering*, 2008, **34**(4): 664~669

张晓星,姚 尧,唐 炬 等.SF。放电分解气体组分分析的现状 和发展[J].高电压技术,2008,**34**(4):664~669

3 Song Xiaohui, Hai Zhongtian. The development of the contact combustion type of the gas sensor[J]. Measurement Technique, 2007, 8: 76~78

宋晓辉,海中天. 接触燃烧式气敏传感器的研制[J]. 计量技术, 2007,8:76~78

4 Du Binxian, Chen Jinrun, Yin Jun. The improvement of the working principle and detection method of the thermal conductivity type gas sensor [J]. Chemical Engineering & Equipment, 2010, 2: $64 \sim 66$

杜彬贤,陈今润,尹 军. 热导式气体传感器工作原理及检测方 法改进[J]. 化学工程与装备,2010,2:64~66

5 Zhang Jingchao, Liu Jin, Wang Yutian et al.. Study on a novel optical fiber CO gas sensor[J]. J. Optoelectronics • Laser, 2004, 15(4): 428~431

6 Qi Rubin. Research on Trace Gas Monitoring by Tunable Diode Laser Absorption Spectroscopy[D]. Tianjin: Tianjin University Master's Degree Thesis, 2008 齐汝宾. 基于调谐激光光谱技术的痕量气体检测技术研究[D].

天津:天津大学硕士学位论文,2008

7 Kan Ruifeng, Liu Wengqing, Zhang Yujun *et al.*. Infrared absorption spectrometer of monitoring ambient methane[J]. Acta Optica Sinica, 2006, 26(1): 67~70

阚瑞峰,刘文清,张玉钧等.基于可调谐激光吸收光谱的大气甲 烷检测仪[J].光学学报,2006,**26**(1):67~70

8 Jia Dagong, Liu Kun, Jing Wencai *et al.*. Method of gas detection based on intra-cavity erbium-doped fiber laser [J]. *Chinese J. Lasers*, 2009, **36**(9): 2384~2387

贾大功,刘 琨,井文才等.基于环腔光纤激光器的气体检测方法[J].中国激光,2009,**36**(9):2384~2387

- 9 V. Nagali, S. I. Chou, D. S. Baer *et al.*. Tunable diode-laser absorption measurements of methane at elevated temperatures [J]. *Appl. Opt.*, 1996, **35**(21): 4026~4032
- 10 Chen Dong, Liu Wenqing, Zhang Yujun et al.. Tunable diode laser spectroscopy system for fire gases sensing[J]. Chinese J. Lasers, 2006, 33(11): 1552~1556
 陈 东,刘文清,张玉钧等.可调谐半导体激光光谱火灾气体探 测系统[J]. 中国激光, 2006, 33(11): 1552~1556
- 11 P. Kluczynski, J. Gustafsson, A. M. Lindberg *et al.*. Wavelength modulation absorption spectrometry—— an extensive scrutiny of the generation of signals[J]. *Spectrochim. Acta*, *Part* B, 2001, **56**(8): 1277~1354
- 12 G. C. Bjorklund, M. D. Levenson, W. Lenth *et al.*. Frequency modulation (FM) spectroscopy—theory of lineshapes and signal to noise analysis [J]. *Appl. Phys. B*, 1983, **32**(3): 145~152
- 13 Hong Guanglie, Zhang Yinchao, Tan Kun *et al.*. Optical parametric oscillator-based differential absorption lidar for detecting carbon dioxide in troposphere [J]. *Opto-Electron. Engng.*, 2005, **32**(3): 9~12 洪光烈,张寅超,谭 锟等. 基于参量振荡探测对流层 CO₂的差

洪光烈,张黄超,谭 锐寺.基士 変重振荡採測対流层 CO₂ 的差 分吸收雷达[J].光电エ程,2005,**32**(3):9~12

- 14 B. A. Paldus, A. A. Kachanov. An historical overview of cavity-enhanced methods [J]. Canad. J. Phys., 2005, 83: 975~999
- 15 J. Ye, L. S. Ma, J. L. Hall. Sub-Doppler optical frequency reference at 1.064 μm by means of ultrasensitive cavity-enhanced frequency modulation spectroscopy of a C₂ HD overtone transition [J]. Opt. Lett., 1996, **21**(13): 1000~1002
- 16 N. C. Wong, J. L. Hall. Servo control of amplitude modulation in frequency modulation spectroscopy: demonstration of shotnoise-limited detection[J]. J. Opt. Soc. Am. B, 1985, 2(9): 1527~1533
- 17 C. L. Bell, G. Hancock, R. Peverall *et al.*. Characterization of an external cavity diode laser based ring cavity NICE-OHMS system[J]. *Opt. Express*, 2009, **17**(12): 9834~9839
- 18 Aleksandra Foltynowicz, Weiguang Ma, Ove Axner. Characterization of fiber-laser-based sub-Doppler NICE-OHMS for quantitative trace gas detection [J]. Opt. Express, 2008, 16(19): 14689~14702
- 19 L. S. Rothman, I. E. Gordon, A. Barbe et al.. The HITRAN 2008 molecular spectroscopic database[J]. J. Quant. Spectrosc. Rad. Trans., 2009, 110(9-10): 533~572

栏目编辑:李文喆