

# 基于 V 型电磁诱导透明效应的腔衰荡光谱研究

吉慕尧 段亚凡 钮月萍 龚尚庆

华东理工大学理学院, 上海 200237

**摘要** 理论分析了腔内电磁诱导透明效应(EIT)对腔衰荡光谱(CRDS)的影响,提出了利用 V 型三能级 EIT 中的光泵效应提高探测光透过率从而改善 CRDS 性能的方案。实验中采用铷 87 原子的  $D_2$  线构建了 V 型三能级 EIT,在适当的控制光强度下实现了 CRDS 衰荡时间及其灵敏度的改善,使灵敏度增强至原有灵敏度的 1.45 倍。

**关键词** 量子光学; 电磁诱导透明效应; 腔衰荡光谱; 衰荡时间; 光泵效应

**中图分类号** O433.5 **文献标识码** A

**doi:** 10.3788/AOS201636.1127001

## Cavity Ringdown Spectroscopy Based on V-Type Electromagnetically Induced Transparency

Ji Muyao Duan Yafan Niu Yueping Gong Shangqing

School of Science, East China University of Science and Technology, Shanghai 200237, China

**Abstract** The influence of electromagnetically induced transparency (EIT) on the cavity ringdown spectroscopy (CRDS) is analyzed theoretically. Utilizing the optical pumping effect of EIT in a three-level V-type structure which can increase the transmittance of the EIT medium, we propose a program to improve the CRDS performance. In the experiment, a V-type EIT is constructed with the  $D_2$  line of  $^{87}\text{Rb}$ , and the ring-down time and sensitivity of the CRDS system are improved under appropriate light intensity. Finally, the ringdown sensitivity is enhanced to 1.45 times of the original value.

**Key words** quantum optics; electromagnetically induced transparency; cavity ringdown spectroscopy; ringdown time; optical pumping effect

**OCIS codes** 270.1670; 280.4788; 300.1030

## 1 引言

腔衰荡光谱(CRDS)是一种灵敏度和分辨率极高的吸收光谱技术。该技术测量的是经过光学谐振腔的探测光光强衰减率,不受光源光强波动的影响。自 1988 年 O'Keefe 等<sup>[1]</sup>提出了 CRDS 的基本原理并使用脉冲激光器作为光源成功测量氧气的吸收光谱之后,国内外研究者进一步发展了腔衰荡光谱技术,将其应用于原子、分子、金属团簇等吸收光谱的测量<sup>[2-4]</sup>,谐振腔腔镜反射率的测量<sup>[5-6]</sup>,化学反应动力学的研究<sup>[7-8]</sup>,以及原子中电子碰撞激发截面等方面的研究<sup>[9]</sup>。

近十几年研究人员提出了许多针对 CRDS 的改进方案<sup>[10-13]</sup>,但是这些方案大多侧重于对信号探测端的改善,如采用差分技术提高信号信噪比等<sup>[11]</sup>,CRDS 技术中的谐振腔很少被关注。实际上通过改善腔的品质同样可以改善 CRDS,除了选用高反射率的腔镜组成高品质的腔外,在腔内构建电磁诱导透明效应(EIT)也能够有效提升腔的品质。EIT 是一种重要的量子相干效应<sup>[14-15]</sup>,在 EIT 中,控制场诱导原子处于相干叠加态,使介质对共振探测场的吸收减小,并同时伴随很强的正常色散,因此被广泛应用于光速减慢<sup>[16]</sup>和光存

**收稿日期:** 2016-04-29; **收到修改稿日期:** 2016-06-12

**基金项目:** 国家自然科学基金(61405059)、上海市自然科学基金(14ZR1410300)、中央高校基本科研业务费专项资金(WM1313003)

**作者简介:** 吉慕尧(1991—),男,硕士研究生,主要从事量子相干调控方面的研究。E-mail: 1061698377@qq.com

**导师简介:** 龚尚庆(1963—),男,教授,博士生导师,主要从事量子相干调控、极端非线性光学、强场激光物理学等方面的研究。E-mail: sqgong@ecust.edu.cn(通信联系人)

储<sup>[17]</sup>等领域。当腔内发生 EIT 时, EIT 介质对探测光的正常色散很强, 吸收很小, 因此探测光在腔内的有效光程得到了极大的提高, 同时其强度几乎没有损耗, 因此腔的品质会得到明显的改善<sup>[18-19]</sup>。在之前的工作中, 通过在腔中构建  $\Lambda$  型 EIT 提高了腔的品质, 实现了 CRDS 衰荡时间灵敏度的改善。本文在之前工作的基础上, 利用 V 型系统 EIT 中光泵效应对探测光残余吸收的抑制<sup>[20-21]</sup>, 采用铷原子构建 V 型 EIT, 进一步研究其对 CRDS 的改善作用。

## 2 实验原理

腔衰荡光谱技术通过测量探测光经过谐振腔后的强度衰减率来确定腔内的损耗, 从而确定腔内待测样品的吸收情况。当一个探测光脉冲耦合进入存在 EIT 介质的光学谐振腔时, 光脉冲会在两块高反射率的腔镜之间来回反射形成振荡, 每完成一次循环, 光的强度会因为腔镜的透射、衍射、待测样品的吸收和 EIT 介质的残余吸收而减小。由于腔的横向尺寸通常远大于腔内基模尺寸, 腔内光束的衍射损耗可以忽略。第一次透射出腔的光强可以由比尔-朗伯定律表示为

$$I_0 = I_{\text{laser}} T^2 \exp(-\alpha_s l_s - \alpha_e l_e), \quad (1)$$

式中  $I_{\text{laser}}$  为入射光强,  $T$  为腔镜的透射率,  $\alpha_s$  和  $l_s$  分别为待测样品的吸收系数和长度,  $\alpha_e$  和  $l_e$  分别为 EIT 介质残余吸收系数和长度。第二次透射的光强可以表示为

$$I_1 = I_0 R^2 \exp[2(-\alpha_s l_s - \alpha_e l_e)], \quad (2)$$

式中  $R$  为腔镜反射率。探测光在腔内经过  $n$  次循环后的透射光强为

$$I_n = I_0 R^{2n} \exp[2n(-\alpha_s l_s - \alpha_e l_e)], \quad (3)$$

式中  $R^{2n}$  可以写为  $\exp(2n \ln R)$ 。因为 CRDS 中采用的腔镜反射率都非常高, 一般大于 0.99, 所以  $\ln R$  可以近似为  $-(1-R)$ , 则(3)式可以改写为

$$I_n = I_0 \exp\{-2n[(1-R) + \alpha_s l_s + \alpha_e l_e]\}. \quad (4)$$

另一方面, 探测光脉冲在腔内循环  $n$  次所需的时间可以表示为

$$t = 2n \left( \frac{L - l_e}{c} + \frac{l_e}{v_g} \right), \quad (5)$$

式中  $L$  为共焦腔的长度,  $c$  为真空中的光速,  $v_g$  为光在 EIT 介质中的群速度。用连续变量  $t$  替换(4)式中的分立变量  $n$ , 可以得到透射光强随时间的变化为

$$I(t) = I_0 \exp\left\{ \frac{-t[(1-R) + \alpha_s l_s + \alpha_e l_e]}{(L - l_e)/c + l_e/v_g} \right\}. \quad (6)$$

根据 CRDS 中衰荡时间的定义, 即光强衰减到原光强的  $1/e$  所需的时间, 可以得到腔内存在 EIT 时的衰荡时间表达式为

$$\tau = \frac{(L - l_e)/c + l_e/v_g}{(1-R) + \alpha_s l_s + \alpha_e l_e}. \quad (7)$$

当用于构建 EIT 的能级选定且探测场和控制场的强度及频率确定时, (7)式中 EIT 的残余吸收  $\alpha_e l_e$  和 EIT 介质中的探测光群速度  $v_g$  都不随时间变化, 因此腔内存在 EIT 时, CRDS 的衰荡时间灵敏度可以表示为

$$\frac{d\tau}{dl_s} = -\alpha_s \frac{(L - l_e)/c + l_e/v_g}{[(1-R) + \alpha_s l_s + \alpha_e l_e]^2}. \quad (8)$$

从(7)式和(8)式可以看出, 减小探测光在 EIT 介质内的群速度  $v_g$ , 或是减少 EIT 介质的残余吸收  $\alpha_e l_e$ , 都能够提高衰荡时间的灵敏度。之前的工作中主要研究利用  $\Lambda$  型 EIT 减小群速度  $v_g$ , 从而实现灵敏度的增强。本文主要利用 V 型电磁诱导透明系统中光泵效应可以抑制 EIT 介质的残余吸收这一特性<sup>[20-21]</sup>, 进行相关的实验以期进一步改善衰荡光谱的灵敏度。

## 3 实验装置

实验中所采用的装置如图 1 所示, 实验环境温度为  $20^\circ\text{C}$ 。探测光经过前腔镜耦合进入谐振腔内并与控制光在 EIT 介质气室中相互作用, 再经过待测样品气室到达后腔镜。扫描腔长可得到腔透射谱, 再进行数

据处理可以获取腔的衰荡时间及其灵敏度。控制光通过偏振分光棱镜 PBS1 反射进入 EIT 介质气室,再通过 PBS2 反射出谐振腔。由于实验中 PBS 不能实现对控制光的完全反射,为了避免少量透射通过 PBS 的控制光在腔内循环对待测样品造成影响,使控制光与探测光小角度相交(相交角度约  $0.2^\circ$ )。探测光和控制光都由 Toptica 公司生产的 DLpro 超稳定窄线宽可调谐激光器产生,线宽约为 500 kHz。探测光与控制光在 EIT 介质气室处的光斑直径分别约为 0.4 mm 和 0.6 mm,选用的光功率  $P_p$  和  $P_c$  分别为  $40 \mu\text{W}$  和  $4 \text{ mW}$ 。

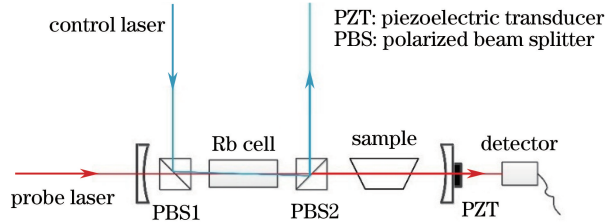


图 1 存在 EIT 的 CRDS 实验装置示意图

Fig. 1 Diagram of CRDS setup with EIT

光学谐振腔是由两块焦距为 200 mm 的凹面镜组成的共焦腔系统,腔镜面镀有反射率约为 99.5% 的低损耗高反射薄膜,腔长为 400 mm。谐振腔后腔镜与一块环形压电陶瓷(PZT)连接,对 PZT 附加一个频率为 30 Hz 的三角波扫描信号来实现对腔长的扫描,扫描幅度为  $0 \sim 3 \mu\text{m}$ 。当腔内放置两块 PBS 时,经测量腔的精细度约为 22,在腔内加入待测样品气室和 EIT 介质气室且打开控制光后,精细度降低至 11。

EIT 介质气室和待测样品气室选用两个内部含有自然丰度的铷蒸气的气室,自然丰度的铷蒸气由 72.15% 的铷 85 原子和 27.85% 的铷 87 原子组成,两个气室都不含缓冲气体。EIT 介质气室的长度为 7.5 cm,两个端面镀有增透膜用以减少光在端面的损耗。待测样品气室具有布儒斯特角结构,可以增加特定偏振方向光的透射率,气室最长处为 12 cm,最短处为 5 cm。

选用铷 87 原子的  $D_2$  线构建 V 型 EIT,具体的能级结构如图 2 所示。其中能级  $|2\rangle$  为基态,能级  $|1\rangle$  和  $|3\rangle$  为激发态,频率为  $\omega_p$  和  $\omega_c$  的探测光和控制光通过饱和吸收光谱鉴频,并通过激光器的 DC110 锁频模块精确锁定在对应的原子跃迁,即  $5S_{1/2}, F=2 \rightarrow 5P_{3/2}, F'=3$  和  $5S_{1/2}, F=2 \rightarrow 5P_{3/2}, F'=2$  上,形成 V 型三能级系统的 EIT。

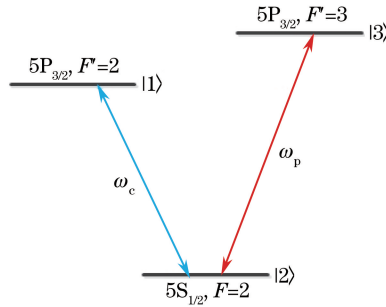


图 2 V 型电磁诱导透明效应能级简图

Fig. 2 Diagram of V-type EIT

## 4 结果与讨论

实验目的是希望通过减少 EIT 介质的残余吸收进一步改善 CRDS 衰荡时间及其灵敏度,因此选用了光泵效应能够抑制残余吸收的 V 型三能级结构。为了优化控制场强度,测量探测光光功率  $P_p = 40 \mu\text{W}$ , EIT 介质气室长度为 7.5 cm 时, V 型系统 EIT 的残余吸收  $\alpha_c l_c$  随控制光光功率  $P_c$  曲线的变化,结果如图 3 所示,图中每个点经过 5 次测量取平均得到。随着控制光强度的增大, EIT 的残余吸收  $\alpha_c l_c$  会因光泵效应的抑制而减小,但当减小到约 0.015 后不再减小。这个值比采用  $\Lambda$  系统时减小了约  $2/3$ ,此时对应的控制光光功率为  $4 \text{ mW}$ 。

实验中采用连续光作为光源,由于实验条件限制,没有相应的阈值探测系统,所以得到的腔透射谱在上

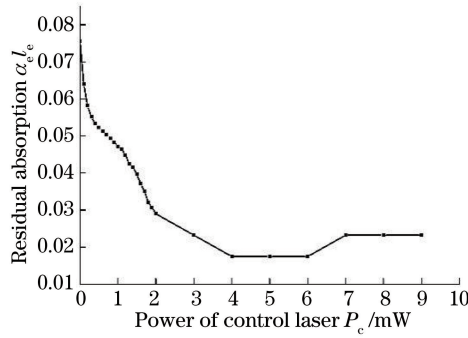


图 3 V 型 EIT 的残余吸收随控制光功率的变化

Fig. 3 Residual absorption in the V-type EIT versus the power of the control laser

升沿和下降沿过程中都存在探测光耦合进入谐振腔的现象,因此不能直接将透射峰下降沿用于拟合得到衰荡时间。为了得到腔的衰荡时间,对腔透射谱进行数据处理以消除探测光持续耦合进腔对下降沿的影响,图 4(a)所示为实验测得的腔透射峰,以透射峰峰值位置为轴,作出该透射峰上升沿的对称曲线,再用峰的下降沿减去上升沿的对称曲线,可以得到体现腔内光子衰荡特性的新曲线,如图 4(b)所示。图中曲线前段上升部分表示腔内存在的光子,理想情况下应是竖直的;曲线的下降沿体现了腔内光子因腔内样品吸收和腔镜透射而不断减少的衰荡过程。用一个指数方程对曲线下沿进行拟合,图 4(b)中红色实线为拟合曲线,拟合方程为  $y = y_0 + A \exp(Rx)$ 。根据拟合曲线确定强度衰减到初始强度的  $1/e$  时所需的时间,即腔衰荡时间  $\tau$ 。

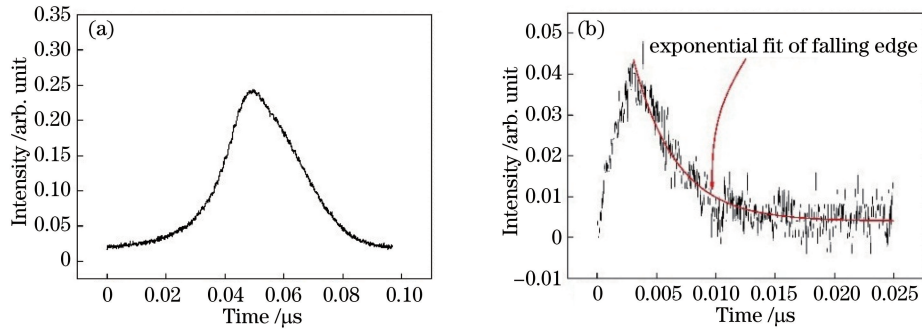


图 4 (a)测量得到的腔透射峰;(b)经过数据处理后的新曲线及其拟合曲线

Fig. 4 (a) Measured cavity transmission peak; (b) new curve after processing and its fitted curve

实验中通过水平移动具有布儒斯特角的待测样品气室,改变待测样品在谐振腔内的长度  $l_s$ ,测量不同样品长度下,存在和不存在 EIT 时的腔透射谱。测量不存在 EIT 时的腔透射谱时,关闭控制光的同时还移开了 EIT 介质气室,这是为了避免没有控制光入射时 EIT 介质气室中的铷 87 原子被当作待测样品对探测光造成较强吸收。将测量得到的腔透射谱按上述方法进行数据处理得到相应的衰荡时间  $\tau$ ,结果如图 5 所示。由于实验温度保持在  $20^\circ\text{C}$ ,气室中的铷原子浓度保持不变,因此改变待测样品在腔内的长度  $l_s$  可以看作改

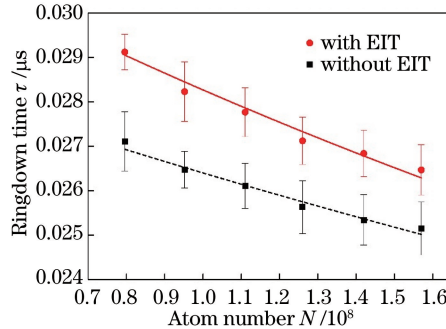


图 5 衰荡时间随待测样品原子数的变化

Fig. 5 Ringdown time versus the atom number of sample



变探测光经过的样品原子数  $N$ 。将样品长度  $l_s$  换算为样品原子数  $N$  以便体现样品吸收与衰荡时间之间的关系,经过估算<sup>[22]</sup> 原子数  $N$  与长度  $l_s$  之间的系数为  $1.48 \times 10^9 \text{ m}^{-1}$ 。

图 5 中红色圆点表示腔内存在 EIT 时的腔衰荡时间  $\tau$ , 黑色方块表示不存在 EIT 时的腔衰荡时间  $\tau_0$ 。存在 EIT 时, 腔的衰荡时间  $\tau$  延长。图中红色实线和黑色虚线是衰荡时间  $\tau$  随探测光经过样品原子数  $N$  变化的拟合曲线, 曲线斜率表示衰荡时间的灵敏度。计算发现, 在图中所测量的样品原子数范围内, 腔内存在 EIT 时衰荡时间的灵敏度约为不存在 EIT 时的 1.45 倍。

上述实验是基于 V 型 EIT 中光泵效应减弱残余吸收的物理机理并优化控制光场功率而得到的结果, 与利用  $\Lambda$  型系统 EIT 得到的结果相比, 该增强效果略差, 可能导致这种情况的原因分析如下。首先根据(8)式可以得到存在 EIT 时, 衰荡时间灵敏度增强的表达式为

$$\frac{d\tau}{dl_s} \bigg/ \frac{d\tau_0}{dl_s} = \frac{(L - l_e)/c + l_e/v_g}{[(1-R) + \alpha_s l_s + \alpha_e l_e]^2} \bigg/ \frac{L/c}{[(1-R) + \alpha_s l_s]^2} = \frac{(L - l_e)/c + l_e/v_g}{L/c} \left[ 1 - \frac{\alpha_e l_e}{(1-R) + \alpha_s l_s + \alpha_e l_e} \right]^2, \quad (9)$$

式中  $\tau_0$  为腔内不存在 EIT 介质气室时的衰荡时间。从(9)式可以看出, 衰荡时间的灵敏度增强效果一方面与光在 EIT 介质内的群速度  $v_g$  有关, 另一方面也与 EIT 介质的残余吸收  $\alpha_e l_e$  和待测样品的吸收  $\alpha_s l_s$  有关。实验中虽然残余吸收  $\alpha_e l_e$  被光泵效应抑制而减少, 但是由于 V 型系统中采用的原子跃迁与  $\Lambda$  型系统中不同, 其对应的样品吸收系数  $\alpha_s$  略小于  $\Lambda$  型系统。在样品长度  $l_s$  相同的情况下, 样品吸收系数  $\alpha_s$  变小会削弱 EIT 介质的残余吸收减少带来的改善。另一方面, 实验中 V 型系统 EIT 的透明窗口宽度约为 60 MHz, 大于  $\Lambda$  型系统中的值, 说明 V 型系统 EIT 产生的色散小于  $\Lambda$  型系统, 相应的探测光在 EIT 介质中的群速度  $v_g$  比  $\Lambda$  型系统中大。综合上述两个方面的因素, 虽然 V 型 EIT 介质的残余吸收因光泵效应减小了 2/3, 但是最终衰荡时间的灵敏度增强效果却与  $\Lambda$  型 EIT 相差不多。

## 5 结 论

采用铷 87 原子构建了 V 型三能级系统的 EIT, 并利用光泵效应抑制 EIT 介质的残余吸收。通过改变待测样品在腔内的长度, 研究了 V 型 EIT 对腔衰荡时间及其灵敏度的作用。实验测得衰荡时间的延长并将衰荡光谱灵敏度增强至原有灵敏度的 1.45 倍。对比 V 型和  $\Lambda$  型两种 EIT 结构, 虽然 V 型系统中 EIT 介质的残余吸收被光泵效应抑制, 但因探测光对应的样品吸收系数减小, 弱化了改善效果, 同时其在介质内的群速度有所增大, 最终导致两种系统的 EIT 对 CRDS 的改善效果相差不多。如何实现色散强且残余吸收小的 EIT 将是今后的研究方向, 希望能为精密测量领域提供一些新的思路和方法。

## 参 考 文 献

- 1 O'Keefe A, Deacon D A G. Cavity ringdown optical spectrometer for absorption measurements using pulsed laser source [J]. Rev Sci Instrum, 1988, 59(12): 2544-2551.
- 2 Romanini D, Lehman K K. Ring-down cavity absorption spectroscopy of the very weak HCN overtone bands with six, seven, and eight stretching quanta [J]. J Chem Phys, 1993, 99: 6287-6301.
- 3 Sun Liqin, Chen Bing, Kan Ruifeng, *et al.* High-sensitivity rapidly swept cavity ringdown spectroscopy for monitoring ambient  $\text{CH}_4$  [J]. Acta Optica Sinica, 2015, 35(9): 0930002.  
孙丽琴, 陈 兵, 阚瑞峰, 等. 高灵敏度快速扫描光腔衰荡光谱方法探测大气  $\text{CH}_4$  含量 [J]. 光学学报, 2015, 35(9): 0930002.
- 4 O'Keefe A, Scherer J J, Cooksy A L, *et al.* Cavity ring down dye laser spectroscopy of jet-cooled metal cluster:  $\text{Cu}_2$  and  $\text{Cu}_3$  [J]. Chem Phys Lett, 1990, 172(3-4): 214-218.
- 5 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. 连续激光光腔衰荡法精确测量高反射率 [J]. 中国激光, 2006, 33(9): 1247-1250.
- 6 Li Zhigang, Zhang Yuchi, Zhang Pengfei, *et al.* Measurement of ultra-low loss mirrors by cavity ring-down technique with laser frequency sweeping [J]. Acta Optica Sinica, 2009, 29(3): 718-722.

- 李志刚, 张玉驰, 张鹏飞, 等. 用扫描激光频率腔衰荡对超低损耗镜片的测量[J]. 光学学报, 2009, 29(3): 718-722.
- 7 Yu T, Lin M C. Kinetics of phenyl radical reaction studied by the cavity-ring-down method[J]. J Am Chem Soc, 1993, 115(10): 4371-4372.
- 8 Wang C, Srivastava N, Dibble T S. Observation and quantification of OH radicals in the far down stream part of an atmospheric microwave plasma jet using cavity ringdown spectroscopy[J]. Appl Phys Lett, 2009, 95: 051501.
- 9 Sahay P, Wang C. Absolute measurements of electron impact excitation cross-sections of atoms using cavity ringdown spectroscopy[J]. Radiat Phys Chem, 2015, 106: 165-169.
- 10 Nikolaev I V, Ochkin V N, Spiridonov M V, *et al.* Diode ring-down spectroscopy without intensity modulation in an off-axis multipass cavity[J]. Spectrochim Acta A, 2007, 66(4-5): 832-835.
- 11 Ye J, Hall J L. Cavity ringdown heterodyne spectroscopy: High sensitivity with microwatt light power[J]. Phys Rev A, 2000, 61: 061802.
- 12 Spence T G, Harb C C, Paldus B A, *et al.* A laser-locked cavity ring-down spectrometer employing an analog detection scheme[J]. Rev Sci Instrum, 2000, 71(2): 347-353.
- 13 Levenson M D, Paldus B A, Spence T G, *et al.* Frequency switched heterodyne cavity ringdown spectroscopy[J]. Opt Lett, 2000, 25(12): 920-922.
- 14 Boller K J, Imamoglu A, Harris S E. Observation of electromagnetically induced transparency[J]. Phys Rev Lett, 1991, 66(20): 2593-2596.
- 15 Wang Yebing, Cong Dongliang, Xu Peng, *et al.* Observation of atomic coherence in intercombination transition line of strontium atom[J]. Acta Optica Sinica, 2013, 33(4): 0427001.  
王叶兵, 丛东亮, 许 鹏, 等. 锶原子互组跃迁中原子相干谱的实验观测[J]. 光学学报, 2013, 33(4): 0427001.
- 16 Hau L V, Harris S E, Dutton Z, *et al.* Light speed reduction to 17 metres per second in an ultracold atomic gas[J]. Nature, 1999, 397: 594-598.
- 17 Heinze G, Hubrich C, Halfmann T. Stopped light and image storage by electromagnetically induced transparency up to the regime of one minute[J]. Phys Rev Lett, 2013, 111: 033601.
- 18 Wang H, Goorskey D J, Burrkett W H, *et al.* Cavity-linewidth narrowing by means of electromagnetically induced transparency[J]. Opt Lett, 2000, 25(23): 1732-1734.
- 19 Lauprêtre T, Proux C, Ghosh R, *et al.* Photon lifetime in a cavity containing a slow-light medium[J]. Opt Lett, 2011, 36(9): 1551-1553.
- 20 Fulton D J, Shepherd S, Moseley R R, *et al.* Continuous-wave electromagnetically induced transparency: A comparison of V,  $\Lambda$ , and cascade systems[J]. Phys Rev A, 1995, 52(3): 589-595.
- 21 Jiang W, Chen Q, Zhang Y, *et al.* Optical pumping-assisted electromagnetically induced transparency[J]. Phys Rev A, 2006, 73: 053804.
- 22 Steck D A. Rubidium 87 D line data[A/OL]. (2015-01-13)[2016-02-02]. <http://steck.us/alkalidata>.