

基于 NICE-OHMS 技术进行大气压气样直接检测的理论分析

周月婷^{1,2}, 赵刚^{1,2*}, 刘建鑫^{1,2}, 郭松杰^{1,2}, 马维光^{1,2*}, 薛书杭³,
董磊^{1,2}, 张雷^{1,2}, 尹王保^{1,2}, 肖连团^{1,2}, 贾锁堂^{1,2}

1. 山西大学量子光学与光量子器件国家重点实验室, 山西大学激光光谱研究所, 山西太原 030006
2. 山西大学极端光学协同创新中心, 山西太原 030006
3. 山西大学附属中学, 山西太原 030006

摘要 噪声免疫腔增强光外差分子光谱技术(NICE-OHMS)是目前世界上最灵敏的激光吸收光谱技术,其在低压环境中具有极高的探测灵敏度。然而当测量样品处于大气压时,NICE-OHMS系统的探测灵敏度会大幅下降。主要原因之一是大气压下获取最大 NICE-OHMS 信号幅度的条件与低气压下不同。通过对大气压 NICE-OHMS 理论进行分析,分析了影响信号幅度的参数,并通过数值模拟来寻找最佳的实验条件。本文着重讨论影响信号的主要参数包括光学腔腔长 L , 调制系数 β , 探测相位 θ 。其中,由于在 NICE-OHMS 中使用 DeVoe-Brewer 技术将调制频率 ν_m 锁定到 Fabry-Parot(FP)腔的自由光谱区(FSR)。因此 FP 腔的腔长决定了 ν_m , 同时还作用于信号幅度 S_m^{in} 。模拟结果显示,当腔长增大时,由于 ν_m 随之减小,载波和边带的光谱成分相互重叠部分增大,因此线型函数的幅度逐渐减小。而吸收信号幅度随着腔长的增加而逐渐增加,色散信号幅度先增大后减小,并且在腔长等于 8 cm 时达到最大值。调制系数 β 会影响频率调制后激光载波和边带的幅度大小,并且影响信号线型。随着腔长的增加,最大信号幅度对应的 β 值也随之增加。在相同腔长下,色散信号的最佳 β 值小于吸收信号,更容易使用电光调制器实现。最后分析了参数的可实现性,分析了不同种类激光器的频率调谐能力,压电陶瓷的扫描宽度等。以乙炔气体为例,大气压下 NICE-OHMS 的谱线半宽达到 ~ 3 GHz,而光谱覆盖范围大于 10 GHz。分布反馈式半导体激光器(DFB)与外腔二极管激光器(ECDL)的频率调谐范围可以达到 30 GHz 以上,但是由于激光线宽宽,得到的 PDH 锁定性能欠佳。回音壁模式激光器(WGM)和掺饵光纤激光器(EDFL)线宽为百 Hz 量级,是目前高灵敏 NICE-OHMS 系统中常用的光源。但是 WGM 目前可以实现了 5 GHz 的激光频率调谐范围,而 EDFL 的外部电压可控制的调谐范围仅为 3 GHz。使用精细度为 55 000 的腔进行模拟,调制系数 $\beta=1$,腔长大于 8 cm 时,可使用 WGM 激光器实现,腔长大于 25 cm 时,可以使用 EDFL 激光器实现。而对于在设计光学腔中常用的伸缩长度为 25 μm 的 PZT,随着腔长的增加,对应的腔模频移范围逐渐减小,在腔长为典型的 40 cm 时,扫描范围大于 12 GHz。

关键词 NICE-OHMS; 大气压样品; 理论模拟; 数值分析; Fabry-Perot 腔

中图分类号: O433.5 **文献标识码:** A **DOI:** 10.3964/j.issn.1000-0593(2020)03-0706-06

引言

噪声免疫腔增强光外差分子光谱(NICE-OHMS)是一种超灵敏可用于痕量气体检测的技术,其结合了频率调制光谱

(FMS)和腔增强吸收光谱(CEAS)两项技术,其中 FMS 能有效抑制探测系统低频噪声的影响,特别是残余强度噪声(RIN),CEAS 可有效增长光和气体间的相互作用长度^[1-4]。为了实现两种光谱技术的有效结合,需要使用 Pound-Drever-Hall(PDH)^[5]技术将激光频率锁定到 FP 腔腔模,同时将 FMS 的调制频率锁定到腔的自由光谱区(FSR),使得频率调

收稿日期: 2018-05-28, 修订日期: 2019-01-05

基金项目: 国家重点研发计划项目(2017YFA0304203), 国家自然科学基金项目(61675122, 11704236, 61475093, 61775125), 山西省回国留学人员科研项目(2017-016)资助

作者简介: 周月婷,女,1994年生,山西大学量子光学与光量子器件国家重点实验室博士研究生 e-mail: yuetingran@163.com

* 通讯联系人 e-mail: zhaogang030006@126.com; mwg@sxu.edu.cn

制激光的载频和边带都与 FP 腔共振, 而 PDH 锁频中残余的频率噪声对载频和边带会产生相同的影响, 其拍频即 NICE-OHMS 信号不受该噪声的影响, 因此 NICE-OHMS 被称为“噪声免疫”^[1-3]。此外, 激光耦合进入 FP 腔后会在两个高反镜之间多次反射, 使腔内建立高强度光场, 因此 NICE-OHMS 可以同时测量多普勒 (DB) 以及亚多普勒 (sD) 光谱信号。以上所述的因素使得 NICE-OHMS 具有高灵敏、高分辨痕量气体检测的优势。

NICE-OHMS 是在 1995 年由美国 JILA 的 John Hall 等和华东师范大学的 Ma 等共同提出的, 其目的是用于获得高稳定的频率标准^[1-2]。该系统使用了调谐能力较弱的 Nd:YAG 激光器, 只能用于亚多普勒信号的测量。为了测量其他气体同时增加 NICE-OHMS 的实用性, 各国研究人员又搭建了基于不同类型可调谐激光器的 NICE-OHMS 系统, 包括钛宝石激光器、ECDL 激光器^[6]、量子级联激光器 (QCL)^[7]、光学参量振荡 (OPO)^[8]、DFB 激光器^[9] 等。其中, NICE-OHMS 最有成效的发展是基于 EDFL 激光器^[10-11]。2018 年, 我们与瑞典于默奥大学 Ove Axner 小组合作使用平衡探测技术将基于 EDFL 的 NICE-OHMS 系统的探测灵敏度提升至 $2.2 \times 10^{-14} \text{ cm}^{-1}$ ^[12], 是目前针对多普勒展宽光谱测量的世界最高灵敏度。然而由于 EDFL 的频率调谐能力受限于内部压电陶瓷 (PZT), 调谐范围小于 3 GHz, 因此其只能用于研究低气压下单一跃迁线的多普勒展宽光谱。2017 年, 我们合作提出了基于 WGM 激光器的 NICE-OHMS 系统^[13], 该类激光器不仅线宽窄, 同时具有宽调谐的优点, 受限于波长调谐端口的响应速率, 初步实现了 5 GHz 的频率扫描范围, 探测灵敏度达到了 $6.6 \times 10^{-14} \text{ cm}^{-1}$ 。然而长期以来只有新西兰 Andrew Wilson 小组进行了 300 Torr 以及瑞典 Ove Axner 小组进行了 200 Torr 样品的 NICE-OHMS 光谱测量, 其他的测量都是在几十 Torr 或更低的气压下进行的, 只能进行 DB 以及 sD 光谱信号的测量, 且两者的探测灵敏度都约为 $2 \times 10^{-10} \text{ cm}^{-1} \cdot \text{Hz}^{-1/2}$ ^[9, 14]。直到 2017 年, Curtis 等实现了大气压下 NICE-OHMS 信号的测量, 受限于系统性能, 得到的探测灵敏度仅为 10^{-10} cm^{-1} ^[15], 结果远差于低气压下的 NICE-OHMS 系统。然而对于大气压下痕量气体的超灵敏检测在众多领域都有重要需求, 例如大气污染物的浓度通常都在 ppb-ppm 量级, 特别是挥发性有机化合物 (VOCs); 在病理学检测中, 人类的呼吸中包含了多种痕量气体, 如乙醛、丙酮、甲烷、乙烷等, 浓度大多也在 ppb-ppm 量级, 通过检测人类呼出气的成分以及浓度可以推断人体生理状态以及疾病情况; 在生物活体研究中, 通过检测病毒细菌产生的气体, 可以用于研究其发育与繁殖规律。这些研究在大气压下进行检测, 可以有效避免降低压强所导致的灵敏度降低与耗费的时间, 且能实现活体实时在线的测量。

为了实现大气压下 NICE-OHMS 的直接测量, 获得大气压样品的超灵敏检测, 需要对大气压下气体的 NICE-OHMS 信号与 FP 腔腔长以及频率调制系数依赖关系进行分析; 同时对实现大气压 NICE-OHMS 信号测量的限制因素如激光源的调谐范围、FP 腔长度调谐 PZT 的变化范围进行讨论, 为实现大气压 NICE-OHMS 的测量提供理论支撑。

1 理 论

调制激光场 N 阶边带的 NICE-OHMS 信号的理论表达式为^[16]

$$S^{\text{fm-no}}(\Delta\nu, \nu_m, \Gamma_c, \Gamma_D, \theta) = S_0^{\text{fm-no}} \bar{\chi}_{\text{NO}}(\Delta\nu, \nu_m, \Gamma_c, \Gamma_D, \theta) \quad (1)$$

其中

$$S^{\text{fm-no}} = \eta_{\text{fm}} P_0 \frac{F}{\pi} S_{\text{c-rel}} \rho L \quad (2)$$

$$\begin{aligned} \bar{\chi}_{\text{NO}}(\Delta\nu, \nu_m, \Gamma_c, \Gamma_D, \theta) = & \sum_{k=0}^N J_k(\beta) J_{k+1}(\beta) \cdot \\ & [(\chi_{k-1}^{\text{abs}} + \chi_k^{\text{abs}} - \chi_k^{\text{abs}} - \chi_{k+1}^{\text{abs}}) \sin\theta + \\ & (\chi_{k-1}^{\text{disp}} - \chi_k^{\text{disp}} - \chi_k^{\text{disp}} + \chi_{k+1}^{\text{disp}}) \cos\theta] \end{aligned} \quad (3)$$

式中, $\Delta\nu$ 为激光对于吸收线中心的频率失谐; ν_m 为调制频率; Γ_c 和 Γ_D 分别为碰撞和多普勒展宽的半高半宽; η_{fm} 为仪器因子, 包括探测器响应和放大器增益 ($\text{V} \cdot \text{W}^{-1}$); P_0 是入射到探测器上的光功率 (W); F 为 FP 腔的精细度; S 为目标吸收线强度 ($\text{cm}^{-2} \cdot \text{atm}^{-1}$); c_{rel} 是气体浓度; ρ 是气体总压强; L 是 FP 腔的长度; $\bar{\chi}_{\text{NO}}$ 为 NICE-OHMS 信号的线型函数; $J_k(\beta)$ 为 k 阶贝塞尔函数; 其中 β 为调制系数; χ_k^{abs} 和 χ_k^{disp} 分别为单谱线的吸收和色散线型函数; θ 为解调相位。当 θ 等于 $\pi/2$ 的奇数倍时, NICE-OHMS 信号只包含吸收项, 称此时的 θ 为吸收相位; 当 θ 等于 $\pi/2$ 的偶数倍时, 只包含色散项, 称该 θ 为色散相位。由式 (1) 可知, 只对 NICE-OHMS 信号的幅度产生影响, 数值模拟中设定为 1。由于 FP 腔 $\eta_{\text{fm}} P_0 F / \pi S_{\text{c-rel}} \rho$ 的 FSR 等于 $c/2nL$, 因此腔长 L 在对信号幅度影响的同时, 还会改变腔的 FSR, 从而影响调制频率 ν_m , 进而改变线型函数 $\bar{\chi}_{\text{NO}}(\Delta\nu, \nu_m, \Gamma_c, \Gamma_D, \theta)$ 的谱宽与幅度。

由式 (1) 可见影响 NICE-OHMS 信号 $S^{\text{fm-no}}$ 的主要因素包含 FP 腔长 L (或调制频率 ν_m), 调制系数 β , 碰撞展宽 Γ_c , 多普勒展宽 Γ_D 和解调相位 θ 。在一个大气压下, 混合气体浓度比固定, 目标吸收线的展宽是确定的, 因此 Γ_c 和 Γ_D 对信号的影响本文将不做讨论。

当气压较低时, 多普勒展宽 Γ_D 占主导, 谱线可以用高斯函数表示, 而随着气压的进一步增加, 碰撞展宽的贡献会逐渐增大, 需要 Voigt 函数来表示吸收线型, 该函数是高斯函数和洛伦兹函数的卷积^[17-18]。

2 大气压样品条件下 NICE-OHMS 信号分析

图 1 以乙炔气体在 $6499.4737 \text{ cm}^{-1}$ 的吸收线为例, 数值模拟了 NICE-OHMS 典型实验装置条件下的吸收、色散与幅度最大相位时的 NICE-OHMS 信号, 采用的参数为: 吸收线强度为 $2.347 \times 10^{-22} \text{ cm} \cdot \text{molecule}^{-1}$, 气压为 1 atm, FP 腔长度为 40 cm, 调制频率等于 FP 腔的单倍 FSR, 即 375 MHz, 调制系数 β 为 1, 下文所有的模拟除了需要调节的参数外均使用与本图相同的参数。如图 1 所示, 其完整的单线光谱覆盖范围大于 10 GHz。在目前应用于 NICE-OHMS 的可调谐激光器中, EDFL 和 WGM 激光器线宽较窄, 可以获得高的探测灵敏度, 但是它们的波长调谐能力有限。在已完

成的实验中, 基于内部 PZT, EDFL 调谐范围仅为 3 GHz, 虽然 WGM 可通过温度控制方式调谐范围可达 50 GHz, 但其无跳模调谐范围只能达到 5 GHz。DFB 和 ECDL 虽然其调

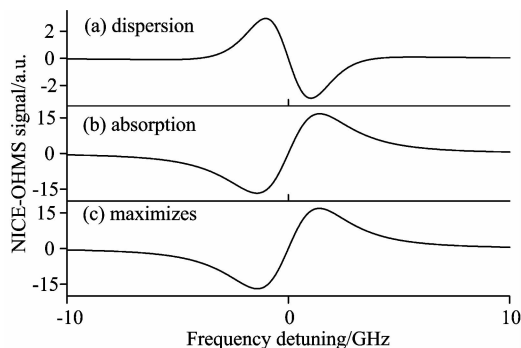


图 1 $L=40$ cm 时 NICE-OHMS 信号

Fig. 1 NICE-OHMS signal when the FP cavity length is 40 cm

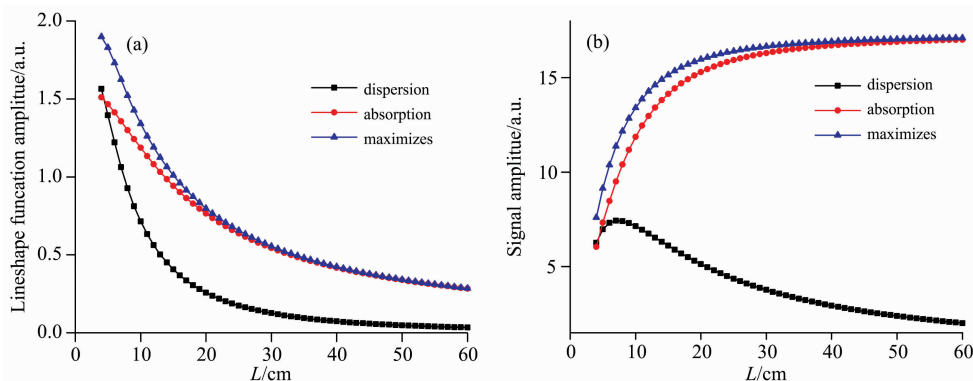


图 2 线型函数与信号幅度随腔长的变化

Fig. 2 Lineshape function and signal amplitude varies with cavity length

图 2(b)为模拟得到的 NICE-OHMS 信号幅度随腔长的变化。从图中可知随着腔长的增加, 色散信号幅度是先增加后减小, 并且在腔长等于 8 cm 时达到最大值。吸收信号与最大信号的幅度逐渐增大, 但增速逐渐变缓, 并且在腔长大于 30 cm 后基本不变。吸收和色散信号的表现不同主要是由于色散线型函数幅度随腔长的下降率大于吸收信号。当腔长等于 20 cm 时, 吸收信号的幅度是色散信号的 3.2 倍。

2.2 频率调制系数对 NICE-OHMS 信号的影响

图 3 是模拟得到的 FP 腔长 L 以及调制系数 β 对 NICE-OHMS 色散和吸收信号幅度的影响。从图 3(a)和(b)可见, 当采用一定的 β 时, 不同 L 对应的信号幅度变化趋势与图 2 所描述的相似, 而 NICE-OHMS 信号幅度对 β 的响应随着腔长而改变。当 L 增大时, 信号幅度最大时对应的 β 值也增大, 如图 3(a)和(b)中的黑色点线所示。图 3(c)和(d)分别表示 NICE-OHMS 色散和吸收信号幅度最大值随腔长 L 的变化, 其与图 2(b)的变化趋势相似, 即: 色散信号的最大幅度是先增加后减小, 吸收信号的最大幅度单调递增, 但增速逐渐变缓; 区别在于 L 变大时色散信号最大值变化趋势变缓, 在腔长为 20~40 cm 之间, 最大色散信号幅度几乎不变。在图 2(b)中, 腔长大于 20 cm 时, 吸收信号幅度达到饱和, 而图 3(d)中, 腔长大于 50 cm 时, 吸收信号最大幅度才趋于饱和。

谐范围大于 30 GHz, 但其线宽较宽, 大大限制了 NICE-OHMS 技术的探测灵敏度。

2.1 腔长对 NICE-OHMS 信号的影响

图 2(a)为模拟得到的不同解调相位下线型函数 $\bar{\chi}_{\text{NO}}$ 幅度与腔长的关系, 其中红色、黑色和蓝色点线分别对应吸收、色散和幅度最大解调相位时的信号, 数值模拟参数与图 1 一致。从图中可知, 随着腔长的增加, 线型函数的幅度呈下降趋势。这是因为随着腔长的增加, ν_m 减小, 吸收线型中 χ_1^{abs} 和 χ_1^{dis} 项相互靠近, 而两项相位相反, 相互抵消从而减小线型幅度; 而色散线型中 χ_1^{dis} 和 χ_1^{abs} 项逐渐靠近 $2\chi_0^{\text{dis}}$ 项, 并且相位与 $2\chi_0^{\text{dis}}$ 项相反, 从而造成线型幅度衰减。当腔长小于 7 cm 时, 吸收与色散线型幅度相近, 随着腔长的增加, 两个线型幅度衰减, 但是吸收相位幅度衰减较小; 当 $L=20$ cm 时, $\nu_m=750$ MHz, 吸收线型幅度是色散的 3 倍; 当腔长大于 20 cm 之后, 吸收线型与最大相位时的幅度近乎相等。

这是由于随着腔长的增加, 获得最大信号幅度的调制系数 β 也增大, β 的增大将导致信号幅度的增加。通过比较图 3(c)和(d), 吸收信号的最大幅度大于色散信号, 并且吸收信号的最大幅度随腔长的变化率更大。

2.3 大气压气样 NICE-OHMS 光谱测量的实验可行性

图 4(a)数值模拟了腔长 4~60 cm 时 NICE-OHMS 信号的峰峰频率间隔, 其中红色、黑色和蓝色点线分别对应吸收、色散和幅度最大解调相位时的信号, 黑色和蓝色实线分别对应了 3 和 5 GHz 的频率间隔。这两个特征频率间隔对应 EDFL 和 WGM 分别能达到的最大调谐范围。由图可知, 随着腔长的增加, 线型函数的峰峰频率间隔逐渐减小, 这是由于腔长越长, 调制频率 ν_m 越小, 边带与载频的间距也越小。色散信号的谱线宽度明显小于吸收信号, 是因为色散信号中线型函数的载频项与边带项相位相反, 使得色散信号的峰值向吸收线中心靠近。幅度最大相位时的峰峰间距随着腔长的变化趋势与色散和吸收相位相同, 且逐渐靠近吸收相位。我们以 NICE-OHMS 信号的峰峰间距作为测量的最小频率范围。当腔长大于 8 cm 时, 色散信号的峰峰间距小于 3 GHz, 光源可以采用 EDFL; 吸收与最大信号相位时的峰峰间距小于 5 GHz, 可以采用 WGM 激光源。当腔长大于 25 cm 时, 色散、吸收以及最大信号相位时的峰峰间距都会小于 3

GHz, 可以使用 EDFL。

在 NICE-OHMS 装置中, 需将激光频率锁定到 FP 腔,

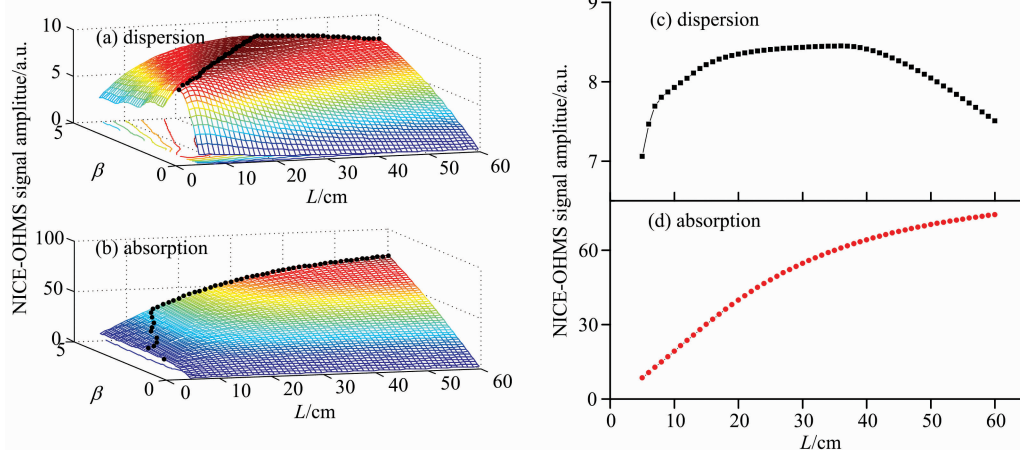


图 3 FP 腔长和调制系数与信号幅度的关系

Fig. 3 The relationship of FP cavity length, β , and signal amplitude

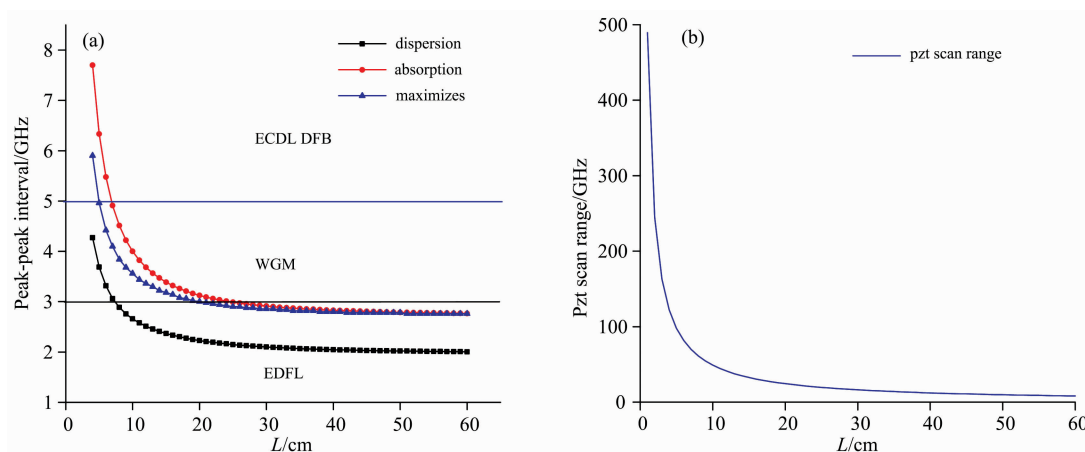


图 4 (a) 腔长与谱线宽度的关系, (b) 压电陶瓷的扫描范围与腔长的关系

Fig. 4 (a) The relationship between cavity length and spectral line width, (b) The relationship of PZT scan range and cavity length

PZT 的频率扫描范围与腔长变化的对应关系为: $\Delta\nu = c\Delta L / (L\lambda)$, 其中 c 为光速, L 为腔长, ΔL 为 PZT 的最大伸长长度, λ 为激光波长。目前典型的 NICE-OHMS 实验装置^[4, 11]均采用 Piezomechanik 公司的环形 PZT, 单个最大伸长长度约为 $25 \mu\text{m}$ 。图 4(b) 显示了在 1531 nm 波长处模拟的 PZT 的最大频率扫描范围与腔长的对应关系, 可见随着腔长的增加, 扫描范围迅速减小, 当大于 10 cm 时, 减小速度变缓。当腔长为 60 cm 时, PZT 的扫描范围大于 8 GHz ; 在腔长为典型的 40 cm 时, 扫描范围大于 12 GHz 。根据图 4(a) 所示的信号峰峰间距, 可发现 $25 \mu\text{m}$ 的 PZT 伸长长度足够探测大气压下的 NICE-OHMS 信号。

3 结 论

为了实现大气压气样的 NICE-OHMS 光谱测量, 本文从实验参数对光谱信号幅度的影响以及所需参数是否在实验中

通过控制腔上 PZT 的电压来实现激光频率的同步调谐, 因此该 PZT 的频率扫描范围也是限制光谱测量的因素之一。

可以实现两方面进行了分析。重点数值分析了 FP 腔长度 L 、调制频率 ν_m 、以及调制系数 β 等对压力展宽线型下的 NICE-OHMS 信号的影响, 光谱线型采用 Voigt 函数, 且调制频率 ν_m 等于 FP 腔的单倍 FSR。

经过数值模拟, 随腔长的增加, NICE-OHMS 线型函数的幅值单调递减, 而 NICE-OHMS 色散信号的幅度是先增加后减小, 吸收信号和最大信号单调增加, 增速逐渐变缓, 且吸收信号幅度远大于色散信号幅度。为了同时优化腔长和频率调制系数, 数值模拟了 NICE-OHMS 信号幅度随两者的变化关系, 幅度最大时的吸收和色散信号, 其最佳 β 值随腔长的增加增大。色散最大信号幅度随腔长的增加先增加后减小, 吸收最大信号幅度在腔长小于 60 cm 范围内单调递增, 最后增速变缓。为了分析实现大气压样品 NICE-OHMS 测量的可行性, 数值计算了信号峰峰间距随腔长的变化关系以及典型 FP 腔压电陶瓷伸缩量在不同腔长下的频率扫描范围。可见随着腔长的增加, NICE-OHMS 信号峰峰值的频率间隔

逐渐减小。当腔长大于 8 cm, 色散信号的谱线宽度小于 3 GHz, 可以使用 EDFL 进行实验, 吸收与最大信号的谱线宽度小于 5 GHz, 完全可以用 WGM 激光器实现。当腔长大于 25 cm 时, 色散、吸收和幅度最大相位信号的谱线宽度都会小于 3 GHz, 可以使用 EDFL 搭建 NICE-OHMS 装置。

综合考虑, 腔长为 40 cm 时, 色散最大信号可以获得最优幅度, 而吸收最大信号可达最优幅度的 75%, 是比较理想的实现大气压样品检测的腔长。此长度下 25 μm 的典型压电陶瓷伸缩量可以实现 12 GHz 的频率扫描。

References

- [1] Ye J, Ma L S, Hall J L. Journal of the Optical Society of America B-Optical Physics, 1998, 15(1): 6.
- [2] Ma L S, Ye J, Dube P, et al. Journal of the Optical Society of America B-Optical Physics, 1999, 16(12): 2255.
- [3] Ye J, Hall J L. Experimental Methods in the Physical Sciences, 2003, 40(3): 83.
- [4] Foltynowicz A, Schmidt F M, Ma W, et al. Applied Physics B, 2008, 92(3): 313.
- [5] Drever R W P, Hall J L, Kowalski F V, et al. Applied Physics B, 1983, 31(2): 97.
- [6] Hollberg L, Gianfrani L, Fox R W. Journal of the Optical Society of America B, 1999, 16(12): 2247.
- [7] Taubman M S, Williams R M, Myers T L, et al. Sub-Doppler NICE-OHMS Spectroscopy at 8.5 Microns Using a Quantum Cascade Laser. in Lasers and Electro-Optics. 2002. Long Beach, CA, USA, USA: IEEE.
- [8] Silander I, Hausmaninger T, Ma W, et al. Optics Letters, 2015, 40(4): 439.
- [9] Foltynowicz A, Wang J, Ehlers P, et al. Optics Express, 2010, 18(18): 18580.
- [10] Schmidt F M, Foltynowicz A, Axner O, et al. Optics Express, 2007, 15(17): 10822.
- [11] Foltynowicz A, Ma W, Schmidt F M, et al. Journal of the Optical Society of America B, 2008, 25(7): 1156.
- [12] Zhao G, Hausmaninger T, Ma W, et al. Optics Letters, 2018, 43(4): 715.
- [13] Zhao G, Hausmaninger T, Ma W, et al. Optics Letters, 2017, 42(16): 3109.
- [14] Leeuwen N J V, Wilson A C. Journal of the Optical Society of America B, 2004, 21(10): 1713.
- [15] Curtis E A, Barwood G P, Huang G, et al. Journal of the Optical Society of America B, 2017, 34(5): 950.
- [16] Ehlers P, Silander I, Axner O. Journal of the Optical Society of America B, 2014, 31(9): 2051.
- [17] Olivero J J, Longbothum R L. Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer, 1977, 17(2): 233.
- [18] Ma W, Foltynowicz A, Axner O. Journal of the Optical Society of America B, 2008, 25(27): 1144.

Theoretical Analysis of Direct Measurement of Atmospheric Samples Based on NICE-OHMS Technology

ZHOU Yue-ting^{1,2}, ZHAO Gang^{1,2*}, LIU Jian-xin^{1,2}, GOU Song-jie^{1,2}, MA Wei-guang^{1,2*}, XUE Shu-hang³, DONG Lei^{1,2}, ZHANG Lei^{1,2}, YIN Wang-bao^{1,2}, XIAO Lian-tuan^{1,2}, JIA Suo-tang^{1,2}

1. Institute of Laser Spectroscopy, State Key Laboratory of Quantum Optics and Quantum Optics Devices, Shanxi University, Taiyuan 030006, China
2. Collaborative Innovation Center of Extreme Optics, Shanxi University, Taiyuan 030006, China
3. Middle School Affiliated to Shanxi University, Taiyuan 030006, China

Abstract Noise-immune cavity-enhanced optical heterodyne molecular spectroscopy (NICE-OHMS) is the most sensitive laser absorption spectroscopy technology. It has obtained dozens of impressive detection sensitivities in a low pressure environment. However, when the measurement is taken at atmospheric pressure, its detection sensitivity becomes much worse. One of the dominant reasons is that the conditions for obtaining the maximum amplitude of NICE-OHMS signal at atmosphere are different from those under low pressure. In this paper, the theory of NICE-OHMS at atmospheric pressure is analyzed. The parameters that affect the amplitude of the signal, including cavity length (L), modulation factor (β), and detection phase (θ), have been analyzed in order to figure out the best experimental conditions. Among them, due to the use of DeVoe-Brewer technology in NICE-OHMS, the modulation frequency (ν_m) is locked to the free spectral region (FSR) of the Fabry-Parot (FP) cavity. As a result, the cavity length not only affects the NICE-OHMS signal amplitude, but also determines the value of ν_m . The results show that when the cavity length increases, the spectral components of the carrier and the sidebands overlap with each other due to the decrease of ν_m , which results in the decrease of the amplitude of lineshape functions. And the amplitude of the NICE-OHMS signal at absorption phase increases gradually with the increase of the cavity length. While the amplitude at dispersion

phase increases at the beginning, and reaches the maximum value when the cavity length is equal to 8 cm, then decreases with the cavity length. Modulation coefficient β affects the magnitude of laser carrier and sidebands, as consequence, affects the signal lineshape. As the cavity length increases, the β value for the maximum signal amplitude also increases. At the same cavity length, the β value for the maximum amplitude of the dispersion signal is smaller than that for absorption signal, which is easier to achieve by using an electro-optic modulator. Finally, the feasibility of the parameters has been analyzed. The half-width at half-maximum of spectrum at atmospheric is determined by the pressure broadening, which is around 3 GHz, and the spectral coverage is larger than 10 GHz. The frequency tuning range of the distributed feedback semiconductor laser (DFB) and external cavity diode laser (ECDL) can reach to 30 GHz, while their large laser line width deteriorates the PDH locking performance. The line width of whispering wall mode laser (WGM) and erbium-doped fiber laser (EDFL), the conventional light source in high-sensitive NICE-OHMS system, is in the order of 100 Hz. However, as so far, the frequency tuning range of NICE-OHMS system based on WGM is only 5 GHz, while that based on EDFL is only 3 GHz. When the cavity length is longer than 8 cm, a WGM laser can be used. When the cavity length is greater than 25 cm, an EDFL laser can be used. For a PZT with a flexible length of 25 μm , which is commonly used in the design of optical cavities, the frequency range of the corresponding cavity mode gradually decreases as the cavity length increases. At a typical cavity length of 40 cm, the frequency sweep range is greater than 12 GHz.

Keywords NICE-OHMS; Atmospheric Samples; Theoretical simulation; Numerical analysis; Fabry-Perot cavity

(Received May 28, 2018; accepted Jan. 5, 2019)

* Corresponding authors

关于《光谱学与光谱分析》调整审稿费收费标准的通知

尊敬的《光谱学与光谱分析》广大作者、读者：我刊自 2018 年 7 月 1 日以后登记的稿件向投稿作者收取审稿费 200 元/篇，在您投稿之前，为免受经济损失，请您必须考虑：

1. 没有创新的一般性稿件，请您不要投稿。
2. 没有国家级基金资助的稿件，请您不要投稿。
3. 不是光谱专业的稿件，请您不要投稿。
4. 与其他文章重合率超过 10% 的稿件，请您不要投稿。

所投稿件经初审通过后，作者会收到缴纳审稿费的通知。请作者及时从我刊网站 (<http://www.gpxygpfx.com>) 查询稿件是否处于交审稿费状态，在收到通知后，请及时缴纳审稿费；如在 10 天之内没有收到您的审稿费，被视为自动放弃，我刊不再受理。交费后我刊开据增值税电子普通发票，并传至作者提供的电子邮箱，作者可自行打印。

联系电话：010-62181070, 62182998

电子邮箱：chngpxygpfx@vip.sina.com

感谢您多年来对《光谱学与光谱分析》的支持和厚爱！

《光谱学与光谱分析》期刊社

2018 年 6 月 30 日