

文章编号 1004-924X(2021)05-0933-07

近红外光学反馈线性腔增强吸收光谱技术

许 非^{1,2}, 周晓彬^{1,2}, 刘政波^{1,2}, 赵 刚^{1,2*}, 马维光^{1,2*}

(1. 山西大学 激光光谱研究所 量子光学与光量子器件国家重点实验室,
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)

摘要:腔增强吸收光谱技术(Cavity Enhanced Absorption Spectroscopy, CEAS)利用激光在腔镜之间的多次反射,增长光与气体介质的作用路径,从而提升探测灵敏度。CEAS的主要噪声来源于激光-腔耦合效率的低下和腔模幅度的起伏。光学反馈腔增强吸收光谱技术(OF-CEAS)基于光学反馈(Optical Feedback, OF)效应,将激光频率锁定到腔模频率上,提高了激光-腔的耦合效率。为了避免光学腔直接反射光引起光学反馈,传统的OF-CEAS大都采用三镜V型谐振腔。然而,实验发现当反馈相位控制恰当时,光学腔直接反射光并不会影响光学反馈,激光可以锁定到光学腔的谐振光上。因此,提出了基于线性F-P腔的OF-CEAS。利用透射腔模的对称性计算得到反馈相位控制的误差信号,实现了激光频率到连续101个腔模频率的锁定。最后对 32×10^{-6} 的甲烷标气进行检测,获得OF-CEAS吸收信号,评估得到的探测灵敏度可达 0.54×10^{-6} (1σ)。

关 键 词:激光光谱;腔增强吸收光谱技术;分布反馈式半导体激光器;光学反馈;线性F-P腔

中图分类号:O433.1 文献标识码:A doi:10.37188/OPE.2020.0657

Near-infrared optical-feedback linear cavity-enhanced absorption spectroscopy

XU Fei^{1,2}, ZHOU Xiao-bin^{1,2}, LIU Zheng-bo^{1,2}, ZHAO Gang^{1,2*}, MA Wei-guang^{1,2*}

(1. State Key Laboratory of Quantum Optics and Quantum Optics Devices, Institute of Laser Spectroscopy,
Shanxi University, Taiyuan 030006, China;

2. Collaborative Innovation Center of Extreme Optics, Shanxi University, Taiyuan 030006, China)

* Corresponding author, E-mail: gangzhao@sxu.edu.cn; mwg@sxu.edu.cn

Abstract: Cavity-enhanced absorption spectroscopy (CEAS) utilizes multiple reflections of light between two cavity mirrors to increase the interactions between a laser beam and gas, thus improving detection sensitivity. In CEAS, noise predominantly arises from a low laser-to-cavity coupling efficiency and fluctuations of the cavity mode amplitude. To address such noise, researchers have developed optical-feedback cavity-enhanced absorption spectroscopy technology (OF-CEAS), which locks the laser frequency to the

收稿日期:2020-12-15;修订日期:2021-01-16.

基金项目:国家重点研发计划资助项目(No. 2017YFA0304203);长江学者和创新团队发展计划资助项目(No. IRT_17R70);山西省1331重点学科建设计划资助项目;111计划资助项目(No. D18001);国家自然科学基金资助项目(No. 61675122, No. 61875107, No. 11704236, No. 61905136);中国科学院大气光学重点实验室开放课题基金项目资助(No. JJ-2018-02)

frequency of the cavity longitudinal mode. As a result, it narrows the laser linewidth and improves the laser-to-cavity coupling efficiency. To avoid direct reflections from the optical cavity for optical feedback, traditional OF-CEAS employs a three-mirror V-shaped resonator. However, based on experimental verification, we have found that when the feedback phase is properly controlled, light directly reflected by the optical cavity does not cause optical feedback, and the laser can be locked to the resonant cavity mode from the optical cavity. Therefore, we propose OF-CEAS based on a linear F - P cavity. The symmetry of the transmission cavity mode is used to generate the error signal for feedback phase control. Then, 101 consecutive cavity transmission modes with a stable amplitude and broad width were observed. Finally, we detected methane standard gas with a concentration of 32 ppm and obtained the OF-CEAS absorption signal. Based on the signal to noise ratio, the detection sensitivity down to 0.54 ppm (1σ) was estimated.

Key words: laser spectroscopy; cavity-enhanced absorption spectroscopy; Distributed Feedback-Diode Laser(DFB-DL); optical-feedback; linear F-P cavity

1 引言

痕量气体检测技术在大气污染、工业过程控制、先进制造、现代农业、深海高原科考以及基础科学研究等领域都具有非常重要的应用,一直以来备受国内外产业及科研工作者的重视^[1]。基于激光吸收光谱(Laser Absorption Spectroscopy, LAS)技术的痕量气体检测方法具有实时、在线、高灵敏等优点,逐渐成为痕量气体检测领域的重要研究方向。其中,应用最广泛的LAS技术当属可调谐半导体激光吸收光谱技术(Tunable Diode Laser Absorption Spectroscopy, TDLAS),包含直接吸收和波长调制技术,探测灵敏度通常在 $10^{-3}\sim 10^{-4} \text{ cm}^{-1}/\sqrt{\text{Hz}}$ 之间,远不能满足一些领域的需求^[2]。

为了进一步提升灵敏度,人们发展了腔增强吸收光谱(Cavity Enhanced Absorption Spectroscopy, CEAS)技术。该技术基于由高反镜组成的光学腔,当激光耦合进入光学腔后,光会在腔镜之间多次往返,从而增长光与气体介质的作用长度,等效光程可以达到km量级,从而大幅增强吸收信号^[3]。实现CEAS最简单的方式是测量腔模的幅度,该方法称为直接CEAS,然而随着腔镜反射率的提高,腔模线宽会变得非常窄,一般的数据采集采样率很难准确地捕捉到腔模的幅度;另外半导体激光器具有MHz量级的线宽,相对于线宽很窄的腔纵模(当光学腔长>20 cm、精细度>1 000时,线宽在kHz量级),在特定时刻只有少部分激光频率成分可以与光学腔达到共

振,因此腔模幅度较低^[4]。由于以上两个原因,直接CEAS不仅探测噪声大而且难以实现吸收光谱的高灵敏度测量。

为了解决宽线宽激光到光学腔耦合效率低下以及腔模宽度窄的问题,人们发展了光学反馈腔增强吸收光谱技术(Optical Feedback-Cavity Enhanced Absorption Spectroscopy, OF-CEAS)^[5]。腔内的共振光场通过腔前镜透射出来,原路返回注入半导体激光器,在合适的反馈率及反馈相位条件下,激光器频率会锁定到光学腔模频率上,大大抑制激光器的频率噪声,显著提高激光到腔的耦合效率,光学腔透射信号幅度增大并且稳定。2005年,Morville等人首次提出OF-CEAS,它基于三镜V型腔,使用光学反馈实现了高灵敏CEAS。随后大部分OF-CEAS都使用了相同的光学腔结构^[6],这是由于V型腔在空间上将反馈光束(即腔前镜透射出的腔内谐振场)从第一个腔前镜的直接反射光(即非谐振场)中分离出来,以避免谐振场与非谐振场之间的反馈竞争。但是相对于更加传统的线性法布里-珀罗(F-P)腔,V型腔多增加了一个腔镜,引入了更大的腔镜损耗,在相同腔镜反射率下,精细度相比于前者更低;此外,V型腔更易受振动的影响。2013年,Ritchie组发展了基于线性F-P腔的OF-CEAS,为了抑制非谐振场对光学反馈的影响,故意引入激光与腔的空间模式不匹配,造成反馈光中非谐振场和諧振场的光束大小不同,进而使用小孔光阑滤掉光束尺寸更大的非谐振场^[7-8]。但是这种方法利用激光与腔的模式失配,会导致部

分光无法耦合进入光学腔, 致使光学腔透射光强度的衰减。

本文提出了一种基于线性 F-P 腔的 OF-CEAS 方法。根据线性 F-P 腔的反射模型, 腔的反射光包括两部分, 即从腔前镜直接反射的光以及从腔前镜透射出的共振光, 当反馈相位控制恰当时, 只有共振光会产生光学反馈, 因此无需额外引入模式失配, 就可以实现基于线型 F-P 腔的 OF-CEAS^[9-12]。为了验证该技术, 本课题组使用分布反馈式半导体激光器(Distributed Feedback-Diode Laser, DFB-DL)作为光源, 利用光学反馈效应有效压窄了激光线宽, 实现了透射腔模的高效稳定输出。以甲烷(CH₄)作为目标测量气体, 因为CH₄不仅是易燃易爆的常规气体, 同时也是产生温室效应的重要气体^[2]。基于近红外光学反馈线性腔增强光谱技术对6 046. 964 cm⁻¹处CH₄分子的吸收谱线进行了测量, 并且评估了系统的探测灵敏度。

2 实验

基于线性 F-P 腔的 OF-CEAS 实验装置如图 1 所示。实验采用 DFB-DL(DFB-DL, Eblana, TTP190719243, TO 封装)作为光源, 其最大输出功率为 10.5 mW, 中心波长为 1 652.25 nm。为

了提高 DFB-DL 的散热效率, 将它放置在定制的散热底座内, 并固定在一个精密位移台上。精密位移台可以粗调激光器到 F-P 腔前镜的距离, 使得距离满足 F-P 腔长的整数倍。激光器的温度和电流控制采用二极管激光控制器(Newport, LDC-3724C), 激光频率的调谐由函数发生器(Tektronix, AFG3022C)输出的三角波扫描激光驱动电流来实现。激光器输出的光经过匹配透镜、一对反射镜、一个可调谐空间衰减器后射入 F-P 腔。其中, 一个反射镜固定在压电陶瓷(PZT, HPSt150/20-15/25, 标称位移为 25 μm, 最大位移为 32 μm)上, 通过使用高压放大器调谐 PZT 的长度, 从而实现对光程的精细调节。通过旋转空间衰减器可以实现对反馈率的控制。实验中, F-P 腔由一对高反镜组成, 反射率为 99.57%, 精细度约为 720, 腔模线宽约为 530 kHz。腔体材料为超低热膨胀系数的微晶玻璃, 腔长 39.4 cm, 对应的自由光谱区约为 380 MHz。当激光频率与光学腔达到共振时, 在腔内形成稳定的谐振。腔的透射光聚焦到铟镓砷雪崩光电探测器上(Thorlabs, APD110C/M), 探测器的输出信号通过数据采集卡(National Instruments, PCI-6115)送入计算机, 使用 LabView 程序记录并处理腔模信号。通过波纹管将腔、气压计和真空泵相连接, 实现腔内气压的精准控制。

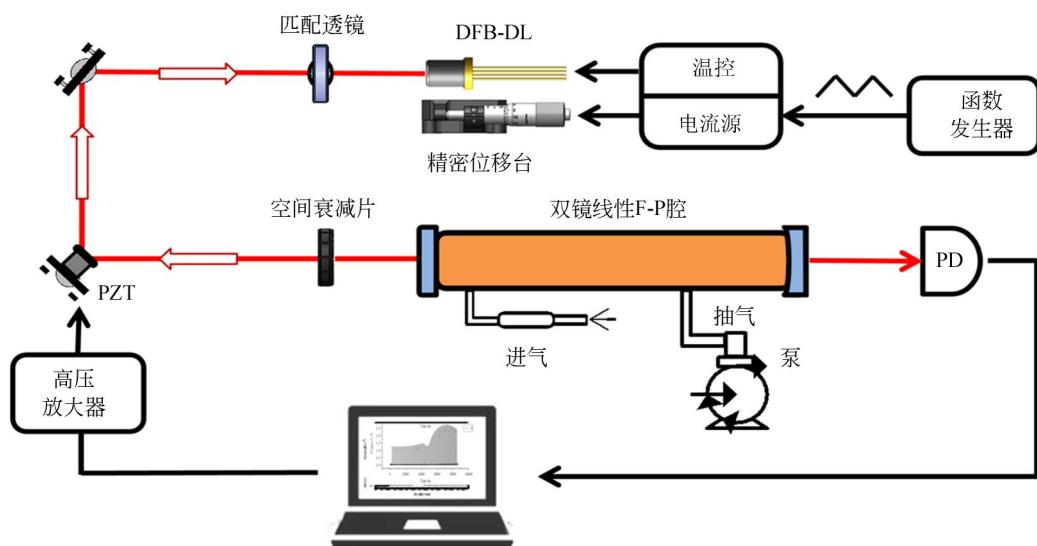


图 1 基于线性 F-P 腔的光学反馈腔增强吸收光谱实验装置

Fig. 1 Experimental setup of optical-feedback linear cavity-enhanced absorption spectroscopy

为了精确控制反馈相位,本文增加了一个动态伺服回路。通过判断透射腔模的对称性产生误差信号,再经过一个简单的比例运算产生校正电压信号,最后利用数据采集卡输送到高压放大器,对粘在反射镜上的 PZT 长度进行调谐,从而动态控制反馈相位,使激光-腔的相位时刻处于最优状态^[13]。最终,在不增加任何辅助电路的情况下实现了反馈相位的锁定。

3 实验结果与分析

图 2 所示为增加光学反馈前后透射探测器采集到的腔模信号,连续的腔模通过扫描激光频率获得。图 2(a)为无光学反馈时的腔模信号,为了获得该信号,在光路中放置一个光隔离器,有效抑制了光学反馈。由于 DFB 激光器的线宽比腔模线宽高 1 个数量级,激光到腔的耦合效率不高且起伏明显,测量得到的腔透射光腔模杂乱,如果采用这些腔模幅度来测量吸收,由于采样率的限制很难获得合适的腔增强吸收信号。去掉光隔离器后,反馈率接近 10^{-4} ,控制 PZT 长度使得

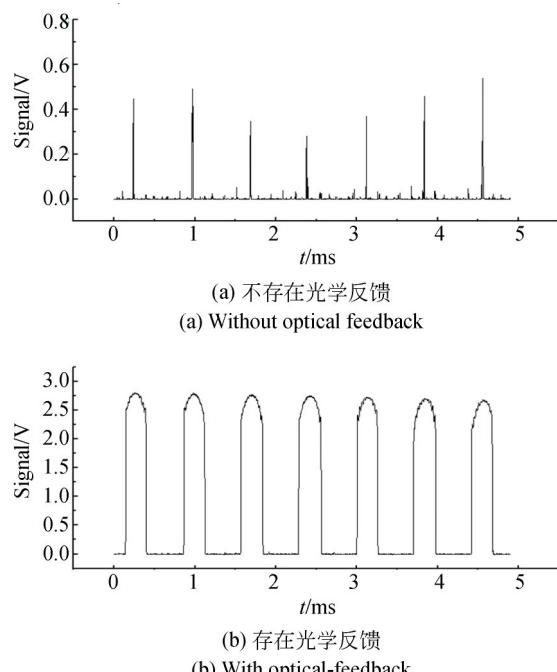


图 2 光学腔透射信号

Fig. 2 Optical cavity transmission signal

L_r 等于 L ,每当有激光频率成分与光学腔共振时,腔前镜内透射出的共振光对激光器产生光学反馈,抑制激光的频率噪声,使得激光频率在很宽的范围内锁定在一个纵向腔模,大大增加耦合效率,提升了腔模峰值的稳定性^[14]。如图 2(b)所示,腔模得到了加宽。同时,对于高阶横模,反馈相位不满足光学反馈要求,所以不会加宽,因此,对比图 2(a)可以看到纵模与高阶横模的比大大增加。

图 3 所示为当反馈相位不满足 2π 整数倍时采集到的腔模信号。反馈相位的调谐是通过改变 PZT 的驱动电压实现的。图 3(a)和 3(b)分别对应于方向相反的相位变化。可以观察到,当反馈相位产生变化时,透射腔模不再是左右对称的,并且反馈相位继续增大(>1 rad),腔模不对称性会加剧,导致腔模幅度衰减,甚至消失,因此需要对反馈相位进行实时控制^[7,15]。本文通过判断腔模不对称性的方向和大小产生误差信号。LabView 程序根据腔模中心,将腔模分成左右两个部分,分别对两部分进行积分,利用两个积分差作为误差信号。误差信号通过一个比例运算

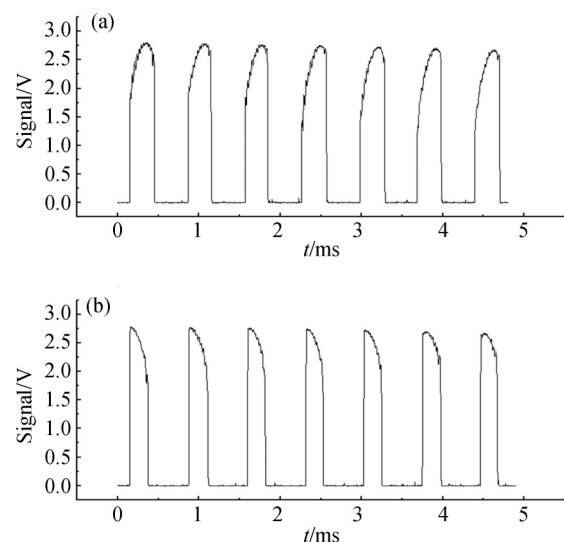


图 3 不同反馈相位值时采集到的腔模透射信号;(a)和(b)是不同方向上相位偏差的结果

Fig. 3 Cavity mode transmission signals at different feedback phase values; (a) and (b) are results based on phase deviations in different directions

输出控制 PZT 的伸缩长度。LabView 程序可以补偿的相位偏移区间为 $-1\sim1$ rad。对反馈相位补偿的频率是 6 Hz, 当两次补偿间(时间差等于 $1/6$ s)的相位偏移小于 2 rad 时, 程序可以实现有效反馈。而实验发现, 由于温度和振动等因素引起的反馈相位偏移量远小于 2 rad, 由于 PZT 的可调谐位移在 $0\sim32$ μm 之间, 能够补偿的最大相位偏移量为 40π , 因此 PZT 可以实现良好的相位动态控制, 使得腔模始终保持如图 2(b)所示的形状。

这里以甲烷位于 $6\ 046.96\ \text{cm}^{-1}$ 的 3 条叠加吸收线(线强度为 $1.455\times10^{-21}\ \text{cm}^{-1}/\text{mol}\cdot\text{cm}^{-2}$)为测量对象, 对其吸收光谱进行了测量。首先开启真空泵排空腔内气体测量得到无吸收的背景信号, 如图 4(a)所示。图中, 通过三角波扫描激光频率在 80 ms 的时间中产生 101 个腔模, 对应激光频率的扫描范围是 38 GHz。每个腔模宽度展宽、中心对称, 如图 2(b)所示。然后, 再向腔内充入 32×10^{-6} 的甲烷标准浓度样气, 控制压强为 93.22 kPa(太原本地大气压), 采集到的光学腔

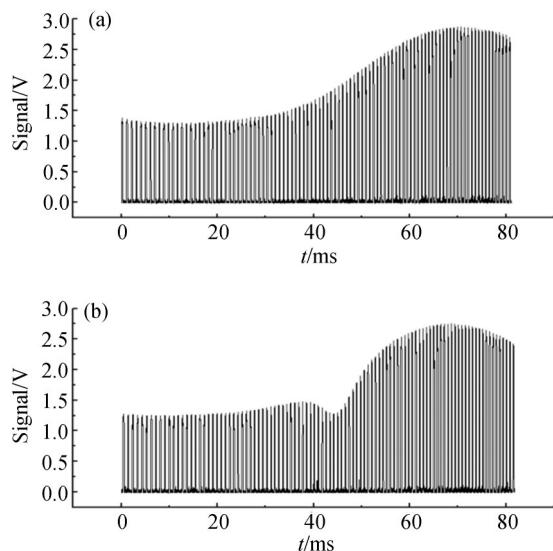


图 4 (a) 测量的空腔透射腔模, 空间衰减器衰减了反馈率, 以保证连续腔模的激发;(b) 93.219 kPa 下 CH₄ 气体的吸收光谱

Fig. 4 (a) Measured transmission cavity mode with empty cavity; (b) the absorption spectrum of CH₄ at 93.219 kPa

透射信号如图 4(b)所示。可以看到, 腔模序列中间位置有个由 CH₄ 吸收引起的幅度凹陷。虽然 DFB-DL 的电流扫描信号为一个三角波, 且光强变化接近线性变化, 然而图 4 中所示的无吸收背景信号呈现出正弦波变化的形式。这主要是由于腔前镜的两个端面形成了干涉效应(etalon), 从而造成了透射腔模幅度随正弦变化。通过提取图 4(a)和 4(b)的腔模幅度, 可以获得图 5 的信号。横坐标的相对频率是由腔模间隔定标获取的。

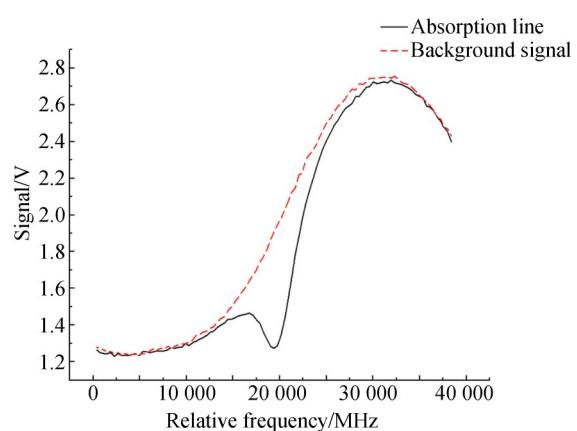


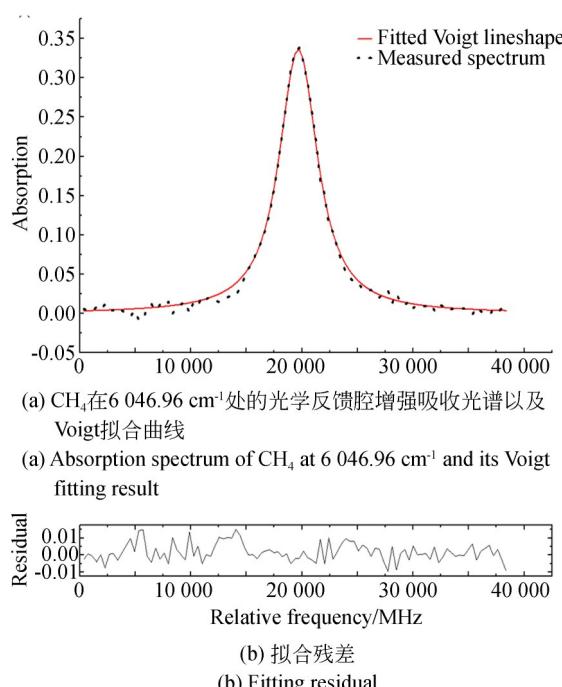
图 5 利用 LabView 程序采集每个透射腔模信号的峰值得到的无吸收背景信号及 CH₄ 吸收曲线

Fig. 5 Amplitude of each cavity transmission mode with and without absorption by LabView programme

当存在气体吸收时, 腔透射功率的相对变化率可以表示为^[16]:

$$\frac{\Delta I}{I_0} = \frac{I_0 - I_t}{I_0} = 1 - \frac{(1-R)^2 \exp(-2\alpha(\nu))}{[1 - R \exp(-2\alpha(\nu))]^2}, \quad (1)$$

其中: I_0 为无吸收光强, I_t 为有吸收时光强, R 为腔镜反射率, α 为气体吸收系数, ν 为光学频率。基于式(1)可以反演得到吸收系数, 确定出目标气体浓度。图 6(a)中的点线表示透射光强的相对变化率, 实线为基于公式(1)的拟合结果。其中吸收线型为 Voigt 函数, 吸收线强度和压力展宽系数提取至 HITRAN 数据库。拟合获得的浓度值为 32.1×10^{-6} , 与标气浓度误差为 0.3%。图 6(b)所示为拟合残差, 其标准偏差为 $0.0056\ \text{cm}^{-1}$, 对应

图 6 CH_4 浓度探测结果Fig. 6 Detection result of CH_4 concentration

参考文献：

- [1] 袁峰, 高晶, 姚路, 等. 球载 CRDS 高灵敏度甲烷测量系统的研制[J]. 光学精密工程, 2020, 28(9):1881-1892.
YUAN F, GAO J, YAO L, et al. Development of highly sensitive balloon-borne methane measurement system based on cavity ringdown spectroscopy [J]. *Opt. Precision Eng.*, 2020, 28(9):1881-1892. (in Chinese)
- [2] 郑龙江, 李鹏, 秦瑞峰, 等. 气体浓度检测光学技术的研究现状和发展趋势[J]. 激光与光电子学进展, 2008(8):24-32.
ZHENG L J, LI P, QIN R F, et al. Research situation and developing tendency for optical measurement technology of gas density [J]. *Laser & Optoelectronics progress*, 2008(8):24-32. (in Chinese)
- [3] 陈霄, 隋青美, 苗飞, 等. 高灵敏度腔增强吸收式乙炔气体检测系统[J]. 光学精密工程, 2012, 20(1): 9-16.
CHEN X, SUI Q M, MIAO F, et al. High sensitivity acetylene detection system based on cavity enhanced absorption technique [J]. *Opt. Precision Eng.*, 2012, 20(1): 9-16. (in Chinese)
- [4] ZHAO G, TAN W, MA W G, et al. Intensity-stabilized fast-scanned direct absorption spectroscopy instrumentation based on a distributed feedback laser with detection sensitivity down to 4×10^{-6} [J]. *Sensors (Basel)*, 2016, 16(9): 1544.
- [5] MORVILLE J, KASSI S, CHENEVIER M, et al. Fast, low-noise, mode-by-mode, cavity-enhanced absorption spectroscopy by diode-laser self-locking [J]. *Applied Physics B*, 2005, 80(8): 1027-1038.
- [6] 王品一, 万福, 王建新, 等. 注入锁定腔增强拉曼光谱微量气体检测技术[J]. 光学精密工程, 2018, 26(8): 1917-1924.
WANG P Y, WAN F, WANG J X, et al. Trace gas detection using cavity-enhanced Raman spectroscopy with injection locking [J]. *Opt. Precision Eng.*, 2018, 26(8): 1917-1924. (in Chinese)
- [7] MANFRED K M, CIAFFONI L, RITCHIE G A D. Optical-feedback cavity-enhanced absorption spectroscopy in a linear cavity: model and experiments [J]. *Applied Physics B*, 2015, 120(2): 329-339.
- [8] BERGIN A G V, HANCOCK G, RITCHIE G A D, et al. Linear cavity optical-feedback cavity-en-

的信噪比为 60。受 F-P 腔精细度的限制并且为了满足反馈率的要求而将光强衰减, 评估得到系统的探测灵敏度为 0.54×10^{-6} (1σ)。

4 结 论

CEAS 作为一种对痕量气体的检测手段, 其探测灵敏度受到激光到光学腔耦合效率以及腔模宽度窄的影响, 难以实现吸收光谱的高灵敏度测量。为了避免光学腔的直接反射光对光学反馈的影响, 常规使用 V 型腔。本文通过实验验证了当反馈相位控制恰当时, 光学腔的直接反射光不会对光学反馈产生影响。基于此, 本文搭建了基于线性 F-P 腔的 OF-CEAS 系统, 在扫描激光频率的情况下, 实现了对 101 个腔模的展宽, 并对 32×10^{-6} 的 CH_4 进行了探测, 评估得到的探测灵敏度为 0.54×10^{-6} (1σ)。该方法大大提升了 CEAS 的灵敏度和适用性。

- hanced absorption spectroscopy with a quantum cascade laser[J]. *Optics Letters*, 2013, 38(14) : 2475-2477.
- [9] TKACH R, CHRAPLYVY A. Regimes of feedback effects in 1.5- μm distributed feedback lasers [J]. *Journal of Lightwave Technology*, 1986, 4 (11):1655-1661.
- [10] TROMBORG B, OSMUNDSEN J, OLESEN H. Stability analysis for a semiconductor laser in an external cavity [J]. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 1984, 20(9):1023-1032.
- [11] HABIG J C, NADOLNY J, MEINEN J, et al. Optical feedback cavity enhanced absorption spectroscopy: effective adjustment of the feedback-phase [J]. *Applied Physics B*, 2012, 106 (2) : 491-499.
- [12] MORVILLE J, ROMANINI D, CHENEVIER M, et al. Effects of laser phase noise on the injection of a high-finesse cavity [J]. *Applied Optics*, 2002, 41(33): 6980-6990.
- [13] MAISONS G, GORROTXATEGI CARBAJO P, CARRAS M, et al. Optical-feedback cavity-enhanced absorption spectroscopy with a quantum cascade laser [J]. *Optics Letters*, 2010, 35 (21) : 3607-3609.
- [14] SCHUNK N, PETERMANN K. Numerical analysis of the feedback regimes for a single-mode semiconductor laser with external feedback [J]. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 1988, 24 (7) : 1242-1247.
- [15] LANG R, KOBAYASHI K. External optical feedback effects on semiconductor injection laser properties[J]. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 1980, 16(3): 347-355.
- [16] FOLTYNOWICZ A, MA W G, AXNER O. Characterization of fiber-laser-based sub-Doppler NICE-OHMS for quantitative trace gas detection [J]. *Optics Express*, 2008, 16 (19) : 14689-14702.

作者简介:



许 非(1993—),男,山西忻州人,硕士研究生,2016年于天津大学仁爱学院获得学士学位,主要从事痕量气体检测技术方面的研究。E-mail: 49806033@qq.com

通讯作者:



赵 刚(1990—),男,山西太原人,讲师,2012年、2018年于山西大学分别获得学士、博士学位,主要从事超灵敏激光光谱技术的研究。E-mail: gangzhao@sxu.edu.cn

通讯作者:



马维光(1976—),男,山西大同人,教授,博士生导师,2000年、2005年于山西大学分别获得学士、博士学位,主要从事超灵敏激光光谱技术的研究。E-mail:mwg@sxu.edu.cn