

基于噪声免疫腔增强光外差分子光谱技术实现光纤激光器到 1530.58 nm NH₃ 亚多普勒饱和光谱的频率锁定

贾梦源 赵刚 周月婷 刘建鑫 郭松杰 吴永前 马维光 张雷 董磊 尹王保 肖连团 贾锁堂

Frequency locking of fiber laser to 1530.58 nm NH₃ sub-Doppler saturation spectrum based on noise-immune cavity-enhanced optical heterodyne molecular spectroscopy technique

Jia Meng-Yuan Zhao Gang Zhou Yue-Ting Liu Jian-Xin Guo Song-Jie Wu Yong-Qian Ma Wei-Guang Zhang Lei Dong Lei Yin Wang-Bao Xiao Lian-Tuan Jia Suo-Tang

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 67, 104207 (2018) DOI: 10.7498/aps.67.20172541

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.67.20172541>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2018/V67/I10>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

[基于高精度光腔锁频激光的分子吸收光谱测量](#)

Measurement of molecular absorption spectrum with a laser locked on a high-finesse cavity

物理学报.2018, 67(10): 104206 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.67.20172532>

[2.0 μm 附近模拟呼吸气体中 ¹³CO₂/¹²CO₂ 同位素丰度的高精度实时在线测量](#)

Highly precise and real-time measurements of ¹³CO₂/¹²CO₂ isotopic ratio in breath using a 2 μm diode laser

物理学报.2018, 67(6): 064206 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.67.20171861>

[基于 TDLAS 技术的水汽低温吸收光谱参数测量](#)

Measuring spectral parameters of water vapor at low temperature based on tunable diode laser absorption spectroscopy

物理学报.2017, 66(20): 204204 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.204204>

[广义平面应变锂离子电池柱形梯度材料颗粒电极中扩散诱导应力分析](#)

Stress analysis of a cylindrical composition-gradient electrode of lithium-ion battery in generalized plane strain condition

物理学报.2016, 65(10): 100201 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.100201>

[广义非线性薛定谔方程描述的波坍缩及其演变](#)

Collapse and evolution of wave field based on a generalized nonlinear Schrödinger equation

物理学报.2016, 65(4): 040201 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.040201>

基于噪声免疫腔增强光外差分子光谱技术实现 光纤激光器到1530.58 nm NH₃亚多普勒 饱和光谱的频率锁定*

贾梦源¹⁾²⁾ 赵刚¹⁾²⁾ 周月婷¹⁾²⁾ 刘建鑫¹⁾²⁾ 郭松杰¹⁾²⁾ 吴永前³⁾
马维光^{1)2)†} 张雷¹⁾²⁾ 董磊¹⁾²⁾ 尹王保¹⁾²⁾ 肖连团¹⁾²⁾ 贾锁堂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, 太原 030006)

2) (山西大学, 极端光学协同创新中心, 太原 030006)

3) (中国科学院光电技术研究所, 成都 610209)

(2017年12月28日收到; 2018年3月16日收到修改稿)

噪声免疫腔增强光外差分子光谱技术 (NICE-OHMS) 由于结合了频率调制光谱与腔增强光谱两种技术, 不仅可以将激光耦合到高精度度谐振腔大幅提高腔内功率, 还可以实现低气压样品气体的高灵敏测量, 因此基于该技术可以实现分子吸收线的饱和, 获得亚多普勒光谱, 从而能作为激光频率锁定的参考. 本文基于光纤激光器的 NICE-OHMS 技术, 将光纤激光器频率锁定到 NH₃ 的亚多普勒吸收线上. 首先分析了基于 Pound-Drever-Hall 和 DeVoe-Brewer 技术实现激光到腔模和调制频率到腔自由光谱区频率锁定的性能, 之后在腔内气压为 70 mTorr 条件下, 测量了半高全宽为 2.05 MHz 的 NH₃ 亚多普勒信号, 最后将 1.53 μm 的光纤激光器频率锁定到该亚多普勒吸收线上, 相对频率偏差为 16.3 kHz, 阿伦方差结果显示, 136 s 积分时间下频率稳定度达到 1.6×10^{-12} .

关键词: 噪声免疫腔增强光外差分子光谱技术, 光纤激光器, 亚多普勒吸收线, 频率稳定度

PACS: 42.62.Fi, 42.60.-v, 06.30.Ft

DOI: 10.7498/aps.67.20172541

1 引言

绝对频率稳定的激光源在精密测量如时间计量、频率定标等基本物理量确定以及光谱分析、光通讯、引力波探测、激光雷达等应用领域具有非常重要的意义^[1-7]. 由于原子、分子或离子的吸收线位置稳定, 人们常以它们的跃迁谱线为标准来锁定激光频率, 为了减小被测介质的速度引起的多普勒展宽, 通常利用饱和吸收光谱技术或偏振光吸收光谱技术获取亚多普勒信号作为鉴频信号, 以此获得

高稳定频率的激光源^[8,9]. 在饱和吸收光谱技术中, 激光被分束为探测光与抽运光, 相向与同一簇原子相互作用, 大功率的抽运光使原子的吸收饱和, 反向探测光可探测到亚多普勒信号, 以此作为频率参考进行激光器的频率稳定. 该方法原理简单, 易于操作, 可以获得绝对稳定的激光频率, 但是气体分子的吸收较弱, 饱和功率强, 需要较高的激光功率来产生吸收饱和. 另一种方法是将激光器锁定在一个超稳高精度度法布里-珀罗 (F-P) 腔的纵模上, 以 kHz 量级的腔模作为参考信号, 利用反馈控制稳定激光频率^[10,11]. 这种方法可以适用任意激光频

* 国家重点研发计划项目 (批准号: 2017YFA03044200)、长江学者和创新团队发展计划 (批准号: IRT13076)、国家自然科学基金 (批准号: 11434007, 61475093, 61378047, 61675122, 61622503, 61575113, 11704236)、山西省青年科学基金 (批准号: 2015021105)、山西省回国留学人员科研资助项目 (批准号: 2017-016) 和山西省高等学校重点学科建设项目资助的课题.

† 通信作者. E-mail: mwg@sxu.edu.cn

率的稳定,但是F-P腔易受环境影响,虽然短期内F-P腔透射峰窄线宽的特性可以保证激光器频率的压窄,但是长时间下F-P腔腔模会有较大漂移,欲获得长期稳定的激光频率就需要增加复杂外围系统进行温度控制、机械以及真空度稳定. 本文展示的频率稳定技术是一种基于腔增强的饱和吸收光谱技术——噪声免疫腔增强光外差分子光谱技术(NICE-OHMS)^[12-15]. 这项技术是将气体吸收介质置于高精细度的F-P腔内,高精细度谐振腔不仅无源放大了激光的功率,同时可以实现低气压气体的高灵敏测量,使一些较弱的吸收线也能获得饱和,产生亚多普勒信号,以此吸收线为参考信号,可以将激光锁定到分子、原子或离子的弱吸收线位置.

NICE-OHMS技术结合了频率调制光谱(FMS)与腔增强光谱(CEAS)两项技术^[12,14]. FMS技术将吸收信息移到高频段,可以有效地抑制噪声,特别是由于激光功率起伏引起的 $1/f$ 噪声,同时FMS探测是一种无背景的探测;CEAS技术利用耦合进入光学腔的激光在两个高反射镜之间多次反射,大幅度地增长了光与吸收介质的作用路径,从而增强了吸收信号^[16]. 同时由于腔内高功率激光场的建立,可以实现弱吸收的饱和,从而观测到亚多普勒信号,可作为参考信号实现激光频率的稳定. 在NICE-OHMS中,为了结合FMS与CEAS,在通过Pound-Drever-Hall (PDH)技术将激光载频锁定到高精细度腔TEM₀₀模的同时,需要通过DeVoe-Brewer (DVB)技术将FMS中的调制频率锁定到高精细度腔的自由光谱区上^[17]. 由于FMS中的载波和边带同时受到PDH锁定中频率噪声的影响,它们的拍频信号就不会受腔频率幅度噪声的影响,所以NICE-OHMS技术对该类噪声免疫,而这个噪声是限制CEAS探测灵敏度的主要因素. 这些因素使得NICE-OHMS技术成为世界上灵敏度最高的痕量气体检测技术之一,同时也是高效的激光频率稳定技术^[18,19].

NICE-OHMS技术最初是在1996年由美国JILA小组的Ye等^[12]提出的,他们使用了高稳定的Nd:YAG激光器和精细度为 10^5 的高精细度腔,将激光器锁定在1064 nm处C₂H₂的亚多普勒信号上,获得了 $1.8 \times 10^{-12} \text{ cm}^{-1}$ 的探测灵敏度和 1×10^{-11} 频率稳定度(1 s积分时间). 随后,为了提升NICE-OHMS技术的应用性,人们使用了不同的可调谐激光器,如外腔二极管激光器(ECDL)、

分布式反馈半导体激光器(DFB)、量子级联激光器(QCL)、光学参量振荡激光器(OPO)、回音壁腔半导体激光器(WGM)等测量了不同的气体分子吸收^[15,20-23]. 特别是2007年瑞典的Axner Ove小组提出了基于光纤激光器的NICE-OHMS系统,由于激光器及部分光学元件的光纤化,降低了该技术的复杂性,使整个实验系统变得更加紧凑,大幅提升了NICE-OHMS技术的实用性,同时受益于光纤激光器的线宽窄、输出功率稳定等优点,也获得了很高的探测灵敏度^[24]. 2015年他们基于此系统测量了C₂H₂在1531 nm的吸收线型,灵敏度达到 $9 \times 10^{-14} \text{ cm}^{-1}$,是目前基于多普勒线型测量的最低浓度探测极限. 此外,也出现了大量使用NICE-OHMS技术将可调谐激光器锁定到亚多普勒吸收线中心的工作. 2014年,He-manth等^[25]首次将ECDL稳定在H₂¹⁸O的 $\nu_1 + \nu_3$ 带 $4_{4,1} \rightarrow 4_{4,0}$ 的跃迁线上,在1 s的积分时间内,相对频率稳定度为 5×10^{-13} . 2016年,Shailendhar等^[26]使用一个精细度为170000的超高精细度腔,将ECDL频率锁定在了CO泛频跃迁吸收线上,1000 s积分时间下的频率稳定度可达到 3.5×10^{-14} ,进一步提升了ECDL锁定的频率稳定度. 2017年,Chen和Liu^[27]首次将量子点激光器锁定在N₂O在1.28 μm 位置的吸收线上,1 s积分时间锁定的稳定度为 6.4×10^{-11} . 但是,目前为止,还没有基于光纤激光器NICE-OHMS实现激光频率稳定工作的报道.

本文提出了一种基于光纤激光器的NICE-OHMS频率稳定系统,首先阐述了NICE-OHMS技术原理,结合实验装置介绍实验过程,展示了实验过程中涉及的锁定效果,分析PDH和DVB以及亚多普勒线锁定过程中的现象,给出了NH₃的多普勒以及亚多普勒线型,同时使用得到的亚多普勒信号作为鉴频信号反馈控制激光器的频率,使激光线宽在3 h内频率偏差为16.3 kHz,测量结果的阿伦方差分析显示,在136 s的积分时间下,频率偏差为0.32 kHz,对应的频率稳定度为 1.6×10^{-12} .

2 实验原理

NICE-OHMS技术涉及两个频率调制过程^[12,28]. 如图1所示,黑线所示的洛伦兹线型表示腔相邻的三个纵模,红色箭头表示激光的载频和

边带频率成分, 箭头指向对应其电场的相对相位, 箭头指向相同表示相位相同, 箭头指向相反表示相位相差 180° . 激光的载频是 ν_c , 第一个调制频率 ν_{pdh} 远大于腔模线宽同时远小于腔的自由光谱区 (FSR), 第二个调制频率 ν_{fsr} 等于腔的 FSR. 同时施加两个调制频率后的激光场包含了 9 种频率成分, 分别是 $\nu_c, \nu_c \pm \nu_{\text{pdh}}, \nu_c \pm \nu_{\text{fsr}}, \nu_c \pm \nu_{\text{fsr}} \pm \nu_{\text{pdh}}$. PDH 锁频过程利用 $\nu_c \pm \nu_{\text{pdh}}$ 将激光的载频 ν_c 锁定在高精细度腔的第 N 个透射峰上, DVB 锁定过程利用 $\nu_c \pm \nu_{\text{fsr}} \pm \nu_{\text{pdh}}$ 将激光的调制边带 $\nu_c \pm \nu_{\text{fsr}}$ 分别锁定在 $N - 1$ 和 $N + 1$ 个透射峰上. 进行两次锁定

之后, 激光的载频 ν_c 与边带 $\nu_c \pm \nu_{\text{fsr}}$ 会以相同的方式耦合进入腔体. PDH 锁定中产生的频率噪声会对 FMS 的各个频率成分产生相同的影响, 这些影响在信号解调过程中抵消掉, 这就是 NICE-OHMS 技术噪声免疫特性的原理. 光在进入腔体后, 会在两个高反镜之间来回反射, 提高了腔内光场功率, 当进入腔内的激光功率为 P_0 (W) 时, 实际腔内的光功率为 $F/\pi \cdot P_0$, F (无量纲) 表示腔的精细度, 从而可以获得亚多普勒信号, 同时极大地增加了系统探测灵敏度.

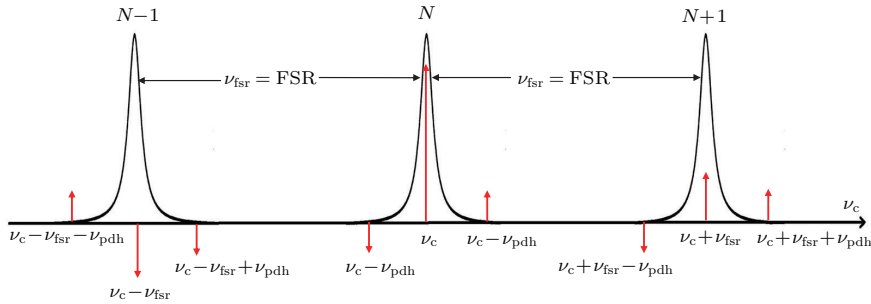


图 1 NICE-OHMS 技术 PDH 与 DVB 锁定的原理图

Fig. 1. Principle of PDH and DVB locking in NICE-OHMS technology.

光与腔内物质作用后由输出镜透射, 被高速探测器探测, 再使用频率为 ν_{fsr} 的参考信号进行解调就可以获得 NICE-OHMS 信号. 根据解调相位的不同, 可以分别获取 NICE-OHMS 的吸收和色散信号, 分别对应于由于气体引起的激光的幅度衰减和相位延迟. 由于腔内大功率光场的建立, 当激光频率扫描到气体吸收线中心时, 腔内传播方向相向的两束激光与轴向速度分量为零的分子作用, 在多普勒展宽的 NICE-OHMS 信号上会出现亚多普勒结构. 由载频贡献的 NICE-OHMS 色散信号可以表示为^[29]

$$\begin{aligned}
 & S_{00}^{\text{fm,disp}}(\Delta\nu, \theta_{\text{fm}}, G_0) \\
 = & -\eta_{\text{fm}} \frac{F}{\pi} J_0(\beta) J_1(\beta) P_0 S n_A L \times 2[\hat{\chi}_{00}^{+, \text{disp}}(\Delta\nu, G_0) \\
 & + \hat{\chi}_{00}^{-, \text{disp}}(\Delta\nu, G_0)] \sin \theta_{\text{fm}}, \quad (1)
 \end{aligned}$$

η_{fm} (无量纲) 是仪器因子, 包含了光电转换效率和电子增益; $\Delta\nu$ (Hz) 是激光的载频 ν_c 相对于气体吸收中心频率的失谐量; β 是 FMS 的调制系数; $J_i(\beta)$ 表示 i 阶贝塞尔函数; L 表示腔长 (cm); n_A 是分子数密度 (molecules/cm³); S 是分子的跃迁线强度 (cm·molecule⁻¹); $\hat{\chi}_{00}^{\pm, \text{disp}}$ 分别表示在腔的径向方

向, 以正向 (+) 和负向 (-) 对向传播的载频光的色散线型函数 (包含多普勒展宽和亚多普勒信号线型, 其中正向表示激光到腔的入射方向, 负向表示相反方向); θ_{fm} 是解调相位, 色散相位下取 $\pi/2$; G_0 表示载频光的饱和度.

3 实验装置

实验装置如图 2 所示, 光纤激光器 (Koheras Adjustik, E15PztS PM) 产生中心波长为 1530.58 nm 的激光, 激光线宽在 120 μs 积分时间内为 1 kHz, 扫描范围覆盖 NH₃ 的 $\nu_1 + \nu_3$ 带在 6533.4615 cm⁻¹ 位置的吸收线^[30]. 激光依次经过光纤耦合声光调制器 (FAOM, MT110-IIR20 Fio-PM0.5-J1-A)、光纤耦合电光调制器 (FEOM, phot-line, MPX-LN-0.5) 以及光纤准直器输出到自由空间. 出射的空间光经过光学隔离器 (OI, Thorlab, SM087RC)、匹配透镜 (ML), $\lambda/2$ 波片、偏振分束棱镜 (PBS), $\lambda/4$ 波片, 耦合进入高精度腔. 腔的反射光再次通过 $\lambda/4$ 波片和 PBS 射入探测器 1 (PD₁, NEW FOCUS, model 1611), 用于实现 PDH

和DVB的锁定. 腔的透射光经透镜2 (len₂) 会聚, 打到探测器2 (PD₂, New port, model 1611) 上, 用于获得NICE-OHMS信号. 为了避免Etalon噪声的产生及影响, 光学器件的光学平面都尽量倾斜, 位置的摆放都需要尽量符合Etalon免疫距离(EID) [31].

系统中的高精度腔是由一对反射率均为99.86%的平面镜和凹面镜(Layertec公司)组成的平凹腔, 其中凹面镜的曲率半径为1 m, 两个镜面之间的间隔为39.4 cm, 对应腔的FSR约

为380 MHz, 因此可以得到腔模的半高全宽是160 kHz. 两腔镜被分别固定在两个环形压电陶瓷(PZT, PiezomechanikHPSt, 150/20-15/25)上, 用于调节腔长, 环形压电陶瓷另一端固定在低膨胀微晶玻璃制成的腔体上, 其热膨胀系数 $5.4 \times 10^{-7} / ^\circ\text{C}$. 腔体中空, 通过波纹管与真空泵(Leybold公司, PT50)以及配气系统(莫尼特尔环境技术开发有限公司, BML-9550)连接, 用于实验中气体浓度配比以及气压控制.

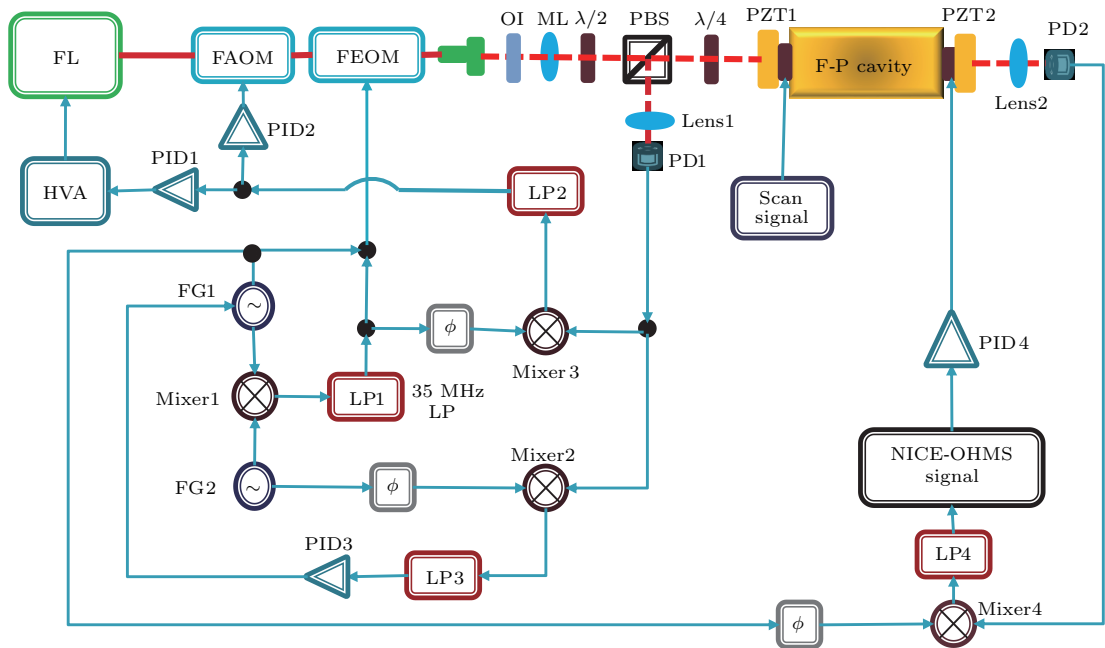


图2 实验装置图 FL, 光纤激光器; FAOM, 光纤声光调制器; FEOM, 光纤电光调制器; OI, 空间光隔离器; ML, 匹配透镜; $\lambda/2$, 二分之一波片; PBS, 偏振分束棱镜; $\lambda/4$, 四分之一波片; PZT, 压电陶瓷; Lens, 聚焦透镜; PD, 光电探测器; PID, 比例积分微分控制器; HVA, 高压放大器; FG, 函数发生器; Mixer, 混频器; LP, 低通滤波器; ϕ , 移相器

Fig. 2. Experimental setup: FL, fiber laser; FAOM, fiber coupled acousto-optic modulator; FEOM, fiber coupled electro-optic modulator; OI, spatial optical isolator; ML, matching lens; $\lambda/2$, half wave plate; PBS, polarizing beam splitter prism; $\lambda/4$, quarter wave plate; PZT, piezo-electric ceramics; lens, focusing lens; PD, photodetector; PID, proportional integral differential controller; HVA, high voltage amplifier; FG, function generator; Mixer, mixer; LP, low pass filter; ϕ , phase shifter.

在传统的NICE-OHMS实验系统中, 需要信号发生器产生两个射频信号: ν_{pdh} 与 ν_{fsr} , 其中 ν_{pdh} 用于实现PDH锁定, ν_{fsr} 用于获得NICE-OHMS信号. 为了将 ν_{fsr} 锁定到腔的FSR上, 需要使用频率为 $\nu_{\text{dvb}} = \nu_{\text{fsr}} - \nu_{\text{pdh}}$ 的参考信号对腔的反射光进行解调获取误差信号用于实现DVB锁定. ν_{dvb} 是 ν_{fsr} 和 ν_{pdh} 通过混频器后再经过一个窄带带通滤波器获得, 但是由于 ν_{dvb} 和 ν_{fsr} 的频率差较小, 要求带通滤波器的通带很窄、 Q 值高, 致使设计难度很大. 为了避免带通滤波器的设计, 实验中我们使用两个信号发生器产生 ν_{fsr} 和 ν_{dvb} 射频频

率, 这两个信号混频后再通过一个低通滤波器产生 $\nu_{\text{pdh}} = \nu_{\text{fsr}} - \nu_{\text{dvb}}$, 以此获得 ν_{pdh} , ν_{fsr} 和 ν_{dvb} 这三种频率成分. 在本实验装置中, 信号发生器1(FG₁, Stanford, SG386)产生 $\nu_{\text{fsr}} = 380 \text{ MHz}$ 信号, 与信号发生器2(FG₂, FLUCK, 6061A)产生的 $\nu_{\text{dvb}} = 355 \text{ MHz}$ 拍频, 再通过一个35 MHz低通滤波器(LP₁, 自制), 获得 $\nu_{\text{pdh}} = 25 \text{ MHz}$. 380 MHz和25 MHz同时加在FEOM上, 对激光进行调制. 反射光被探测器1探测, 然后分成两束, 一束与25 MHz信号进行混频, 混频结果经过低通滤波器2(LP₂, Minicircuits, Model PLP-1.9)再送入比例微

分积分控制器1和2 (PID₁和PID₂, 自制), 分别用于反馈控制激光器的压电陶瓷和FAOM, 从而实现反馈带宽为100 kHz的频率锁定. 探测器1输出的另一束交流信号与355 MHz混频, 再经过低通滤波器3 (LP₃, Minicircuits, Model PLP-1.9) 送入比例微分积分控制器3 (PID₃, 自制), 反馈到FG₁的频率控制端口, 用于实现DVB的锁定. 锁定后的激光在腔内与气体(1000 ppm NH₃) 发生作用, 透射出腔体后被探测器2接收, 探测器2输出的交流信号与380 MHz混频, 然后经过低通滤波器4 (LP₄, 带宽1 kHz, 自制), 得到NICE-OHMS信号. 由于PID反馈控制的低频增益足够大, 通过扫描高精度腔上PZT₁的长度, 可以实现激光频率的连续扫描. 为了观测到吸收线中心的亚多普勒信号, 通过调节380 MHz射频源的相位, 得到NICE-OHMS的色散信号, 然后将亚多普勒信号作为误差信号, 送入比例微分积分控制器4 (PID₄, STANFORD, SIM960) 反馈控制高精度腔上的PZT₂, 从而将激光中心频率锁定到NH₃吸收线中心位置处.

4 实验过程及数据分析

为评估系统的稳定性, 首先对PDH以及DVB锁定性能进行分析. 图3描述的是PDH锁定效果.

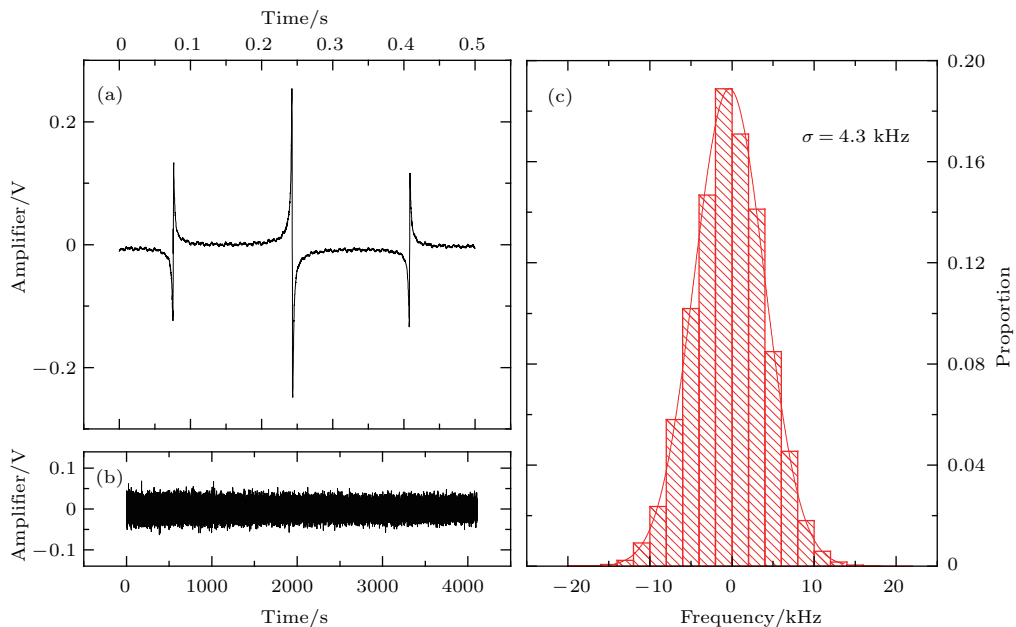


图3 PDH锁定结果 (a) 锁定前的PDH误差信号; (b) 锁定后的PDH误差信号; (c) 锁定后误差信号的频率分布的统计分析

Fig. 3. The PDH locking result: (a) PDH error signal before locking; (b) PDH error signal after locking; (c) statistical analysis of frequency distribution of error signal after locking.

图3(a)是没有锁定的情况下扫描腔长得到的PDH误差信号, 中间的线型特征对应的是激光载频与腔模达到了共振, 两边幅度较小的特征是调制频率 ν_{pdh} 对应的边带与腔模达到了共振. 通过调节 ν_{pdh} 的解调相位, 使得载频对应的线型幅度最大, 可为锁定提供足够的反馈增益, 信号关于中心位置平滑对称. 中间线型特征的峰-峰值是0.50 V, 对应的激光频率变化等于腔模的半高全宽, 因此可以得出误差信号的频率-幅度系数为160 kHz/0.50 V. 图3(b)显示的是锁定后的误差信号, 采样时间为4000 s, 激光锁定到腔模中心, 锁定后的误差信号均匀的分布在零点附近, 幅度远远小于锁定前的误差信号幅度, 说明激光频率相对于腔频率抖动很小. 为了评估PDH的锁定带宽, 使用测量的频率-幅度系数, 将锁定后的误差信号由电压变换为频率. 经过统计分析, 结果如图3(c)所示, 对结果进行正态分布拟合, 可以得出PDH锁定带宽是4.3 kHz^[18,32].

图4(a)为在激光到腔模频率锁定后扫描 ν_{fsr} 频率得到的DVB误差信号, 信号关于零点位置上下对称, 峰-峰值为1.20 V, 对应的频率变化也等于腔模的半高全宽, 因此DVB误差信号的频率-幅度系数是160 kHz/1.20 V. 图4(b)是锁定后的误差

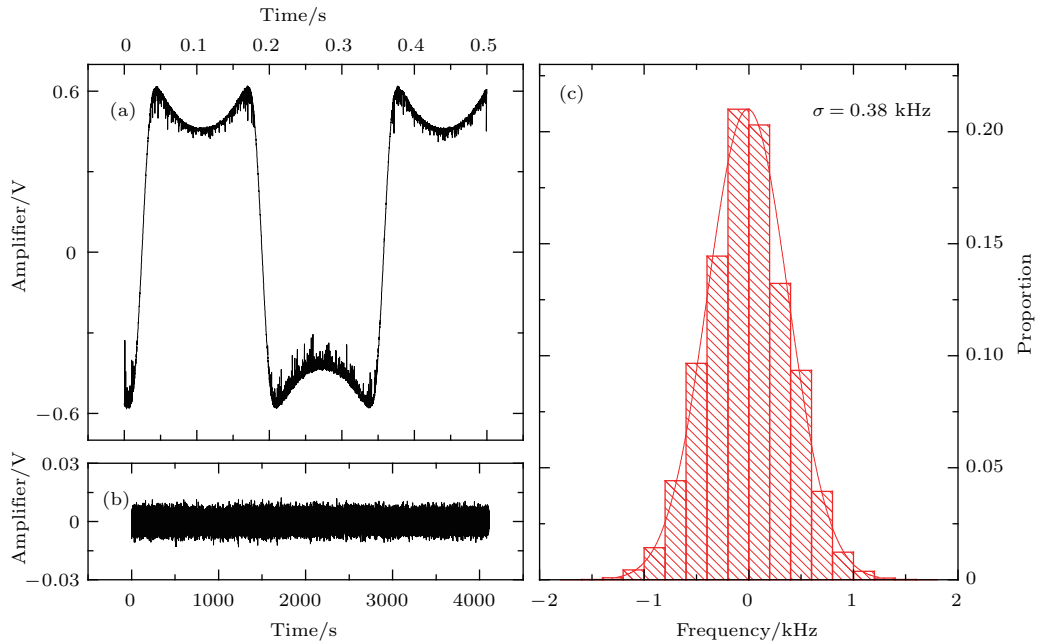


图4 DVB 锁定结果 (a) 锁定前的 DVB 误差信号; (b) 锁定后的 DVB 误差信号; (c) 锁定后误差信号的频率分布的统计分析

Fig. 4. The PDH locking result: (a) DVB error signal before locking; (b) DVB error signal after locking; (c) statistical analysis of frequency distribution of error signal after locking.

信号, 测量时间为 4000 s. 将图 4(b) 中的电压值通过频率-幅度系数进行变换后进行统计分布分析, 得到图 4(c) 的统计直方图, 对图中曲线进行正态分布拟合, 可以看出 FSR 锁定带宽是 0.38 kHz.

两个锁定完成之后, 腔内充入浓度为 1000 ppm 的 NH_3 , 气压保持 70 mTorr, 扫描激光频率可以获得气体的 NICE-OHMS 色散线型, 如图 5 所示. 图 5(a) 是测量得到的腔增强直接吸收信号, 图中的红线是拟合的高斯线型, 可以看到腔模信号与高斯线型拟合得很好, 吸收的透射腔模左右对称, 线型平滑, 说明扫描过程中保持了较好的锁定效果; 但是受频率-幅度噪声的影响, 拟合后噪声的标准偏差达到 0.046 V, 而信号的幅度是 0.067 V, 信噪比仅为 3.3 dB, 且观察不到亚多普勒信号. 图 5(b) 是色散相位下的 NICE-OHMS 信号, 信号幅度 14.3 V, 对 NICE-OHMS 线性变化处(图中绿色框图对应部分, 时间位于 0.3035 s 到 0.39 s 之间)进行线性拟合显示, 拟合后噪声的标准偏差为 0.076 V, 对应信噪比为 45.5 dB. 在吸收中心频率附近减小扫描范围, 得到的亚多普勒信号光谱如图 5(c) 所示, 对应图 5(b) 中的红色方框区域, 由亚多普勒信号幅度与多普勒信号的幅度比可知腔内载频光的饱和度 G_0 约 0.22, 图中的亚多普勒信号关于吸收线中心奇对称, 为吸收线的锁定提供了

必要条件 [29,33].

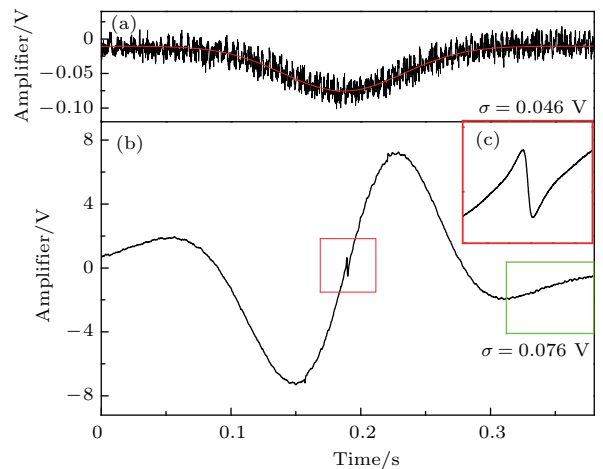


图5 实验测量的气体吸收信号 (a) 腔增强直接吸收信号; (b) 色散相位的 NICE-OHMS 信号; (c) 亚多普勒 NICE-OHMS 信号

Fig. 5. Measured gas absorption signals: (a) Cavity enhanced direct absorption signal; (b) NICE-OHMS signal with dispersive phase; (c) sub-Doppler signal of NICE-OHMS.

为评估 70 mTorr 气压下 NH_3 亚多普勒线型宽度, 用频率失锁后的 PDH 误差信号进行了定标. 图 6(a) 显示的是获得亚多普勒信号时的扫描电压. 图 6(b) 表示的是在这个扫描电压下, 关闭 DVB 锁定与 PDH 锁定后获得的 PDH 误差信号, 可以确定

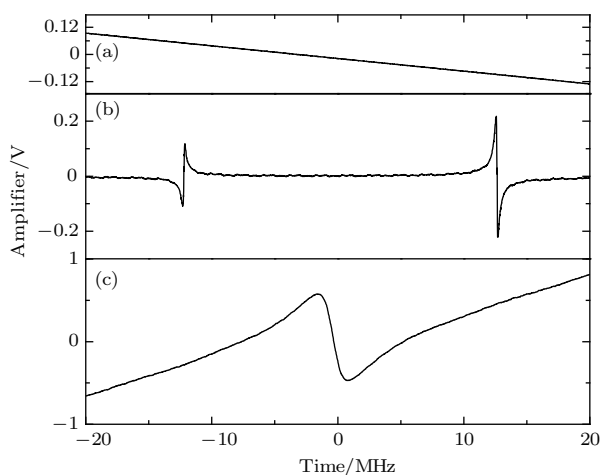


图6 亚多普勒信号定标过程 (a) 腔体压电陶瓷的扫描信号; (b) 未锁定的PDH误差信号; (c) 亚多普勒NICE-OHMS信号

Fig. 6. Sub-doppler signal scaling process: (a) Scanning signal of cavity piezoelectric ceramics; (b) PDH error signal before locking; (c) sub-Doppler signal of NICE-OHMS.

载频与单个边带引起的PDH误差信号峰值间对应的频率差是25 MHz, 载频与单个边带引起的PDH误差信号峰值对应在时间轴上的距离是0.24 s, 则频率间隔与扫描时间的关系是25 MHz/0.24 s. 图6(c)是在扫描电压不变情况下获得的亚多普勒信号, 线型的半高全宽对应的时间间隔是0.02 s, 利用图6(c)获得的频率间隔与扫描时间之间的关系

可以求出70 mTorr气压下亚多普勒NICE-OHMS信号半高全宽是2.05 MHz. 进一步可知亚多普勒结构的频率-幅度系数为2.05 MHz/1.04 V.

获得亚多普勒信号之后, 我们对腔长未锁定与锁定情况下的激光频率漂移进行了对比. 首先在实现PDH和DVB锁定而不使用亚多普勒信号锁定腔长的情况下, 让系统自由运转, 对解调后的NICE-OHMS信号进行了3 h的连续采集, 采样率30 Hz, 结果如图7(a)中的黑线所示. 可以看到激光频率会随着腔长的变化而产生长期单向漂移, NICE-OHMS信号会沿着吸收线轮廓变化. 并且NICE-OHMS信号在漂移过程中, 信号噪声越来越明显, 这是由于在图中随着激光频率的偏移, 对应的气体色散信号越大, 导致DVB锁定的位置会偏移FSR中心, 从而降低了NICE-OHMS的噪声免疫特性^[28]. 图7(a)中黑线显示, NICE-OHMS信号(频率锁定的误差信号)在3 h的测量时间内, 从0 V漂移至-3.26 V, 在解调相位不变的前提下, 信号的漂移会沿着图5(b)中色散相位下的NICE-OHMS线型, 已知图5(b)中的亚多普勒信号峰-峰间隔为2.05 MHz, 基于该间隔定标可以得到0—-3.26 V的频率范围约50 MHz. 然后将亚多普勒信号反馈给腔的压电陶瓷, 从而稳定腔长, 最终将激光器频率锁定在亚多普勒线中心. 图7(a)

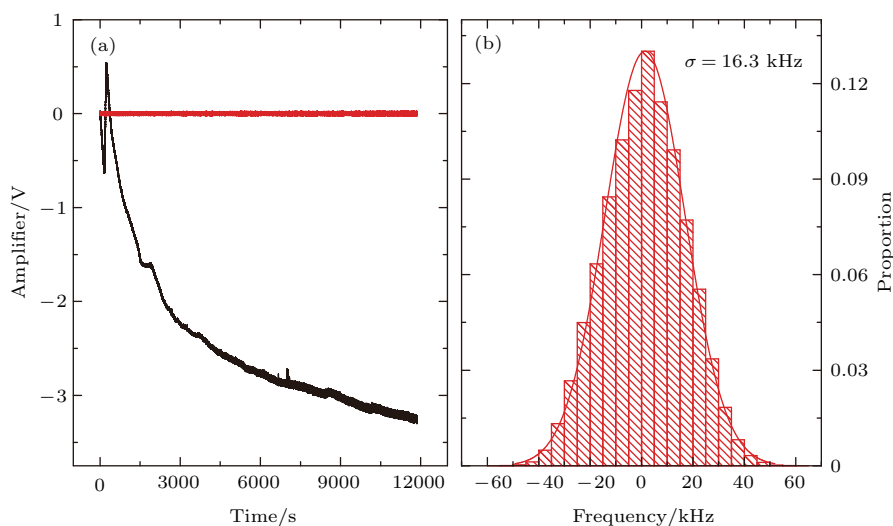


图7 腔长锁定性能的评估 (a) 黑线表示未锁定腔长时激光器的频率变化, 红线表示锁定腔长后激光器的频率变化; (b) 锁定后误差信号的频率分布统计分析

Fig. 7. Evaluation of cavity length locking performance: (a) The black line shows the frequency change of the laser when the cavity is not locking, the red line shows the frequency change of the laser after the cavity length is locked; (b) statistical analysis of frequency distribution of error signal after locked.

中的红线为连续采样 3 h 的结果. 可以看到激光器的频率基本保持在 NH_3 振转能级跃迁位置, 波数稳定在 $6533.4615 \text{ cm}^{-1}$ 附近. 图 7 (b) 是对激光器进行亚多普勒锁定后带宽的评估, 由已获得的 70 mTorr 气压下亚多普勒信号的频率-幅度系数, 将图 7 (a) 中红线表示的幅度信息进行频率换算, 得到对应的频率分布. 图 7 (b) 是长期锁定下测量的频率统计直方图, 图中曲线是对图像进行正态分布拟合的结果, 可以看出频率相对偏差是 16.3 kHz.

为进一步评估系统锁定稳定度, 对亚多普勒锁

定后的误差信号进行了阿伦方差分析, 将 3 h 测量的误差信号利用亚多普勒频率-幅度系数定标后获得的激光频率偏差如图 8 (a) 所示. 图 8 (b) 中黑线是图 8 (a) 对应数据的阿伦方差, 红线是 $1/\tau^{1/2}$ 拟合结果, 可以看出在 10 s 内, 阿伦方差值与 $1/\tau^{1/2}$ 一致, 说明在这段时间内白噪声为系统的主要噪声. 10 s 后, 阿伦方差值偏离了白噪声特征, 此时 $1/f$ 噪声、布朗噪声以及腔长漂移的作用逐渐显现. 阿伦方差最低点出现在 136 s, 此时相对频率偏移量是 0.32 kHz, 对应频率稳定度为 1.6×10^{-12} .

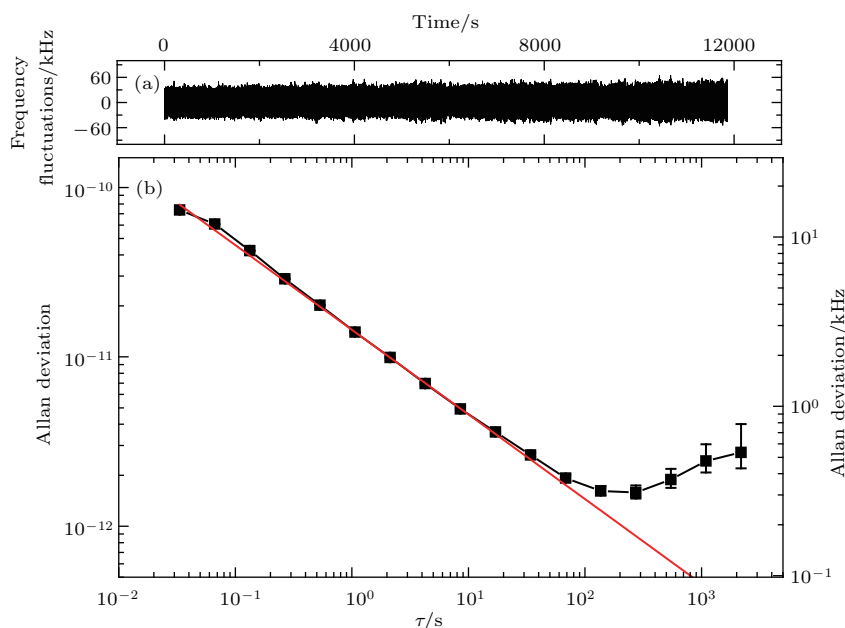


图 8 激光频率长期锁定的阿伦方差分析 (a) 激光频率锁定在 NH_3 亚多普勒吸收线上后 3 h 内激光频率相对亚多普勒吸收线中心的频率偏差; (b) 黑线表示激光频率锁定 NH_3 亚多普勒吸收线上后, 对频率偏差进行的阿伦方差分析, 红线是对黑色数据点拟合的 $1/\tau^{1/2}$ 线型

Fig. 8. Analysis of Allan deviation for long term lock-in of laser frequency: (a) Frequency deviation of laser frequency relative to sub-Doppler absorption line center within 3 hours after laser frequency locking in NH_3 sub-Doppler absorption line; (b) black line indicates Allan deviation analysis of frequency deviation after laser frequency locking on the sub-Doppler absorption line of NH_3 , the red line is $1/\tau^{1/2}$ line for fitting black data points.

5 结 论

本文介绍了一种基于 $1.53 \mu\text{m}$ 光纤激光器的 NICE-OHMS 实验装置, 为提高 DVB 锁定效果, 采用了混频产生 PDH 调制信号的方法. 锁定性能测量显示, PDH 锁定带宽 4.3 kHz, DVB 锁定带宽 0.38 kHz. 在此基础上, 腔内充入 1000 ppm 的 NH_3 , 保持气压 70 mTorr, 观测到了 NH_3 在 $6533.4615 \text{ cm}^{-1}$ 吸收线位置的亚多普勒信号, 对应吸收线强度 $4.436 \times 10^{-22} \text{ cm} \cdot \text{molecule}^{-1}$ [30]. 之

后将激光频率锁定在 NH_3 的亚多普勒吸收线上, 锁定带宽 16.3 kHz. 阿伦方差结果显示, 136 s 积分时间下稳定度达到 1.6×10^{-12} .

参考文献

- [1] Matthey R, Affolderbach C, Mileti G 2011 *Opt. Lett.* **36** 3311
- [2] Hall John L 2006 *Rev. Mod. Phys.* **78** 1279
- [3] Cancio Pastor P, Consolino L, Giusfredi G, de Natale P, Inguscio M, Yerokhin V A, Pachucki K 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 143001

- [4] Arie A, Schiller S, Gustafson E K, Byer R L 1992 *Opt. Lett.* **17** 1204
- [5] Kazovsky L G 1986 *J. Lightwave Technol.* **4** 182
- [6] Ohmae N, Moriwaki S, Mio N 2010 *Rev. Sci. Instrum.* **81** 073105
- [7] Xiang L, Zhang X, Zhang J W, Ning Y Q, Hofmann W, Wang L J 2017 *Chin. Phys. B* **26** 074209
- [8] Hall J L, Hollberg L, Baer T, Robinson H G 1981 *Appl. Phys. Lett.* **39** 680
- [9] Kunz P D, Heavner T P, Jefferts S R 2013 *Appl. Opt.* **52** 8048
- [10] Webster S A, Oxborrow M, Gill P 2004 *Opt. Lett.* **29** 1497
- [11] Ludlow A D, Huang X, Notcutt M, Zanon-Willette T, Foreman S M, Boyd M M, Blatt S, Ye J 2007 *Opt. Lett.* **32** 641
- [12] Ye J, Ma L S, Hall J L 1996 *Opt. Lett.* **21** 1000
- [13] Ma L S, Ye J, Dube P, Hall J L 1999 *J. Opt. Soc. Am. B* **16** 2255
- [14] Gianfrani L, Fox R W, Hollberg L 1999 *J. Opt. Soc. Am. B* **16** 2247
- [15] Ye J, Ma L S, Hall J L 1997 *IEEE Trans. Instrum. Meas.* **46** 178
- [16] Han H N, Zhang J W, Zhang Q, Zhang L, Wei Z Y 2012 *Acta Phys. Sin.* **61** 164206 (in Chinese) [韩海年, 张金伟, 张青, 张龙, 魏志义 2012 物理学报 **61** 164206]
- [17] DeVoe R G, Brewer R G 1984 *Phys. Rev. A* **30** 2827
- [18] Zhao G, Hausmaninger T, Ma W, Axner O 2017 *Opt. Lett.* **42** 3109
- [19] Dinesan H, Fasci E, Castrillo A, Gianfrani L 2014 *Opt. Lett.* **39** 2198
- [20] van Leeuwen N J, Wilson A C 2004 *J. Opt. Soc. Am. B* **21** 1713
- [21] Curtis E A, Barwood G P, Huang G, Edwards C S, Giesecking B, Brewer P J 2017 *J. Opt. Soc. Am. B* **34** 950
- [22] Taubman M S, Myers T L, Cannon B D, Kelly J F, Williams R M 2004 *Spectrochim. Acta A* **60** 3457
- [23] Silander I, Hausmaninger T, Ma W G, Harren F J M, Axner O 2015 *Opt. Lett.* **40** 439
- [24] Schmidt F M, Foltynowicz A, Ma W G, Axner O 2007 *J. Opt. Soc. Am. B* **24** 1392
- [25] Dinesan H, Fasci E, Castrillo A, Gianfrani L 2014 *Opt. Lett.* **39** 2198
- [26] Saraf S, Berceau P, Stochino A, Byer R, Lipa J 2016 *Opt. Lett.* **41** 2189
- [27] Chen T L, Liu Y W 2017 *Opt. Lett.* **42** 2447
- [28] Ma W G, Silander I, Hausmaninger T, Axner O 2016 *J. Quant. Spectrosc. Ra.* **168** 217
- [29] Axner O, Ma W G, Foltynowicz A 2008 *J. Opt. Soc. Am. B* **25** 1166
- [30] Rothman L S, Jacquemart D, Barbe A, Chris Benner D, Birk M, Brown L R, Carleer M R, Charkerian C, Chance K, Coudert L H, Dana V, Devi M V, Flaud J M, Gamache R R, Goldman A, Hartmann J M, Jucks K W, Maki A G, Mandin J Y, Massie S T, Orphal J, Perrin A, Rinsland C P, Smith M A H, Tennyson J, Tolchenov R N, Toth R A, Auwera J V, Varanasi P, Wagner G 2005 *J. Quant. Spectrosc. Ra.* **96** 139
- [31] Ehlers P, Johansson A C, Silander I, Foltynowicz A, Axner O 2014 *J. Opt. Soc. Am. B* **31** 2938
- [32] Jia M Y, Zhao G, Hou J J, Tan W, Qiu X D, Ma W G, Zhang L, Dong L, Yin W B, Xiao L T, Jia S T 2016 *Acta Phys. Sin.* **65** 128701 (in Chinese) [贾梦源, 赵刚, 侯佳佳, 谭巍, 邱晓东, 马维光, 张雷, 董磊, 尹王宝, 肖连团, 贾锁堂 2016 物理学报 **65** 128701]
- [33] Ma W G, Tan W, Zhao G, Li Z X, Fu X F, Dong L, Zhang L, Yin W B, Jia S T 2014 *Spectrosc. Spect. Anal.* **34** 2180 (in Chinese) [马维光, 谭巍, 赵刚, 李志新, 付小芳, 董磊, 张雷, 尹王宝, 贾锁堂 2014 光谱学与光谱分析 **34** 2180]

Frequency locking of fiber laser to 1530.58 nm NH₃ sub-Doppler saturation spectrum based on noise-immune cavity-enhanced optical heterodyne molecular spectroscopy technique*

Jia Meng-Yuan¹⁾²⁾ Zhao Gang¹⁾²⁾ Zhou Yue-Ting¹⁾²⁾ Liu Jian-Xin¹⁾²⁾ Guo Song-Jie¹⁾²⁾
 Wu Yong-Qian³⁾ Ma Wei-Guang^{1)2)†} Zhang Lei¹⁾²⁾ Dong Lei¹⁾²⁾ Yin Wang-Bao¹⁾²⁾
 Xiao Lian-Tuan¹⁾²⁾ Jia Suo-Tang¹⁾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) (*Institute of Optics and Electronics, Chinese Academy of Sciences, Chengdu 610209, China*)

(Received 28 December 2017; revised manuscript received 16 March 2018)

Abstract

Noise-immune cavity-enhanced optical heterodyne molecular spectroscopy (NICE-OHMS) is a powerful tool for trace gas detection, which is based on the combination of frequency modulation spectroscopy (FMS) for reduction of $1/f$ noise, especially residual intensity noise, and cavity enhanced absorption spectroscopy (CEAS) for prolonging the interaction length between the laser and the targeted gas. Because of the locking of modulation frequency in FMS to the free spectral range (FSR) of the cavity, NICE-OHMS is immune to the frequency-to-amplitude noise, which is a main limitation to CEAS. Moreover, due to the building of high power inside the cavity, NICE-OHMS can easily saturate the molecular absorption thus obtain sub-Doppler spectroscopy, which possess a high resolution and odd symmetry, and thus can act as a frequency discriminator for the locking of the laser frequency to the transition center. In this paper, a fiber laser based NICE-OHMS system is established and the laser frequency is locked to the sub-Doppler absorption line of NH₃ by sub-Doppler NICE-OHMS. To avoid the complex design of high- Q -factor bandpass filter at radio frequency, the frequency ν_{pdh} , used for Pound-Drever-Hall (PDH) locking, is generated by the beat frequencies ν_{fsr} and ν_{dvb} , which are used for NICE-OHMS signal and DeVoe-Brewer (DVB) locking, respectively. The performances of PDH and DVB locking are analysed by the frequency distribution deduced from the error signals, which result in frequency deviations of 4.3 kHz and 0.38 kHz, respectively. Then, the CEAS signal and NICE-OHMS signal in the dispersive phase for the measurement of NH₃ at 1.53 μm under 70 mTorr are obtained, which show signal-to-noise ratios of 3.3 dB and 45.5 dB, respectively. Due to the high power built in the cavity, the sub-Doppler structure in the NICE-OHMS signal is obtained in the center of the absorption transition with a saturation degree of 0.22, which is evaluated by the amplitude ratio between sub-Doppler and Doppler-broadened signals. The linewidth (full width at half maximum) of the sub-Doppler

* Project supported by the National Key R&D Program of China (Grant No. 2017YFA0304203), Changjiang Scholars and Innovative Research Team in University of Ministry of Education of China (Grant No. IRT13076), the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11434007, 61475093, 61378047, 61675122, 61622503, 61575113, 11704236), the Shanxi Natural Science Foundation, China (Grant No. 2015021105), the Shanxi Scholarship Council of China (Grant No. 2017-016), and the Key Discipline Construction Projects of Shanxi.

† Corresponding author. E-mail: mwg@sxu.edu.cn

signal of 2.05 MHz is obtained, which is calibrated by the time interval between carrier and sideband. The free-running drift of the laser frequency is estimated by the NICE-OHMS signal and results in 50 MHz over 3 h. While, with locking, the relative deviation of the laser frequency is reduced to 16.3 kHz. In order to evaluate the long term stability of the system, the frequency deviation over 3 h is measured. The Allen deviation analysis shows that the white noise is the main noise of the system in the integration time shorter than 10 s. And the frequency stability can reach to 1.6×10^{-12} in an integration time of 136 s.

Keywords: noise-immune cavity-enhanced optical heterodyne molecular spectroscopy, fiber laser, sub-Doppler structure, frequency stability

PACS: 42.62.Fi, 42.60.-v, 06.30.Ft

DOI: [10.7498/aps.67.20172541](https://doi.org/10.7498/aps.67.20172541)