

基于飞秒光学频率梳的乙炔气体光谱测量



高宇炜,武腾飞*,张磊,韩继博,赵春播,夏传青

航空工业北京长城计量测试技术研究所 计量与校准技术重点实验室 动态测试与校准技术航空科技重点实验室,北京 100095

摘要:双光梳光谱分析技术近年来凭借高分辨率、高灵敏度、宽光谱覆盖和快速测量的优势,在分子和原子光谱分析领域得到了快速的发展。首先简要介绍双光梳光谱测量技术的基本原理,然后根据实验室现有条件,建立相应的双光梳光谱测量装置,并针对乙炔气体进行可行性验证。

关键词:双光梳光谱学;激光光谱学;光谱分析;光学频率梳;双光梳系统

中图分类号:TN249

文献标识码:A

DOI: 10.19452/j.issn1007-5453.2020.12.012

光学频率梳(optical frequency comb, OFC)作为一种高精度的频率测量工具,在前沿物理领域得到了广泛的应用^[1]。光梳通过将光频率和微波频率相联系,通过两者之间的直接关联,可以有效地实现对光学频率的计量^[2-3]。在实际应用方面,飞秒激光频率梳在精密时间计量^[4]、精密宽带光谱测量^[5]、高精度距离测量^[6]、高精度速度监测^[7]、激光雷达^[8]、光纤传感^[9]和激光多普勒测速^[10]等方面得到广泛的应用。由于飞秒激光频率梳具有带宽高、短时稳定和长时稳定效果好的特点,近些年其在高精度光谱测量方面实现了长足的进步,出现了许多新光谱测量方法^[11-13]。现有的测量方法主要分为两类:第一类是在原有的光谱测量方法的基础上,将普通光源替换为飞秒光源,利用飞秒光源的特点,提升光谱测量精度,如在傅里叶变换光谱法中^[11],使用飞秒光源可以增加主动探测的光谱范围,在腔增强或腔衰荡法中^[12],可以将高品质因数的激光脉冲耦合进光学谐振腔,提升测量灵敏度;第二类是基于光梳的相干性,利用异步光取样的方法,将飞秒光学频率梳作为光源,实现光谱的测量^[13]。由于该光谱测量方法利用了两台光梳作为相干光源,这种方法一般被称为双光梳光谱法(DCS)。这种方法的基本原理是2002年由Schiller^[14]首次提出的。在2004年,Keilmann^[15]等首次通过试验证实了该原理具有实际可行性和有效性。自此DCS方法在精密激光光谱方向实现了重大突破。以美国国家标准与技术研究院(NIST)为代表的

许多国际科研机构^[16-17],在深入研究DCS原理和各个举出方向方面实现了许多突破性进展,为DCS的发展方向和应用前途提出了许多重要研究方向。

在实际应用中,对光谱测量速度和精度的需求也日益提升,通过光谱分析方法进行气体浓度、温度、压强等物理量的计算的需求也日益增多。在汽车尾气排放^[18-19],温室气体排放^[20]、航空发动机尾气成分分析等领域,已经有学者进行其他光谱分析技术的应用研究。DCS作为一种高速高精度的光谱分析技术^[21],其同样具有广泛的应用前景。本文在双光梳光谱原理分析的基础上,进行了乙炔气体光谱分析测量,实现了简化光梳锁定系统的情况下,光谱分辨率仍然能达到相对较高的水平。

1 原理及试验装置

1.1 双光梳光谱测量原理

双光梳光谱法的基本原理是,光梳产生的激光脉冲序列通过半透镜后被分为两束光,其中一束光通过固定的反射镜,另外一束光则通过可动反射镜反射,分别构成了静止脉冲和移动脉冲。两束激光最终汇合通过样品,最后照射在光电探测器上,进行检测和数据采样。同时可以通过移动动镜,实现移动脉冲对静止脉冲的扫描,从而得到两者的

收稿日期:2020-10-19; 退修日期:2020-10-28; 录用日期:2020-11-20

*通信作者: Tel.: 010-62457101 E-mail: tengfei.wu@163.com

引用格式: Gao Yuwei, Wu Tengfei, Zhang Lei, et al. C_2H_2 spectrum measurement based on femtosecond optical frequency comb [J]. Aeronautical Science & Technology, 2020, 31(12): 86-89. 高宇炜,武腾飞,张磊,等. 基于飞秒光学频率梳的乙炔气体光谱测量[J]. 航空科学技术, 2020, 31(12): 86-89.

相关干涉图,经过傅里叶变换可以得到待测样品的吸收谱图。为了实现不进行机械运动也能实现扫描的效果,可以利用两台重复频率差很小的两台光梳分别替代静止脉冲和移动脉冲,具体实现方式如图1所示^[22-23]。

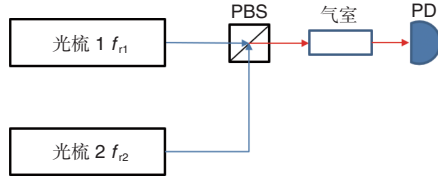


图1 双光梳光谱装置

Fig.1 Dual-comb spectrum device

假定来自光梳1和光梳2的脉冲在某时刻入射到探测器,其电场强度分别为 $E_1(t) = \exp(i\varphi_1)A_1(t)$ 和 $E_2(t) = \exp(i\varphi_2)A_2(t + \tau)$,其中 φ_1 和 φ_2 分别为来自光梳1和光梳2的脉冲载波相位, A_1 为光梳1的脉冲电场包络, A_2 为光梳2的脉冲电场包络, τ 为时间延迟。经光电探测和采集后得到的电信号可表示为 $V(t) = h(t) \{ [E_1(t) + E_2(t)][E_1^*(t) + E_2^*(t)] \}$,其中 $h(t)$ 为光电探测器与信号采集过程的总冲击响应函数。略去直流项,则有 $V(t) \propto h(t) * [E_1(t)E_2^*(t)]$,于是,可采集到干涉图信号 $V(\tau) \propto \exp(i\Delta\varphi) \int h(t') A_1(t-t') A_2^*(t-t'-\tau) dt'$,其中 t' 为探测器响应尺度的时间变量, $\Delta\varphi = \varphi_1 - \varphi_2$ 。由于 $E_1(t)$ 和 $E_2(t)$ 均为飞秒脉冲的电场,这使得其包络乘积 $A_1(t)A_2^*(t + \tau)$ 的非零时间远远短于光电探测响应时间,从而在 $A_1(t)A_2^*(t + \tau)$ 非零时, $h(t)$ 可视为常数。在无样品时,经探测和采集后的干涉图信号 $V(\tau)$ 可表示为:

$$V_{\text{ref}} \propto \exp(i\Delta\varphi) A_1(\tau) A_2^*(-\tau) \quad (1)$$

若两个脉冲序列通过响应函数为 $h_s(t)$ 的待测样品,如图2所示,则测得的干涉图信号:

$$V_{\text{test}} \propto V_{\text{ref}}(\tau) h_s(\tau) \quad (2)$$

当测得 $V_{\text{test}}(\tau)$ 和 $V_{\text{ref}}(\tau)$ 后,通过卷积运算即可得到 $h_s(\tau)$ 及其相应的频域响应 $H_s(f)$ ^[21]。其频域测量过程如图2所示,具有微小重复频率差的两台光梳之间合束后,各个梳齿之间产生相对应的拍频,形成了重复频率为重频差的射频梳,就将光信号携带的信息变换到射频频率上,便于探测和处理。值得指出的是,图1的DCS系统中,由于来自两台光梳的脉冲先在PBS上合束后再进入样品室,这样获得的干涉信号是对称的,因此傅里叶变换后获得的是样品的幅度信息;若将其中一台光梳输出的光脉冲先通过样品室后再进行合束,则可以在傅里叶变换后得到样品的幅度和相位信息^[16]。

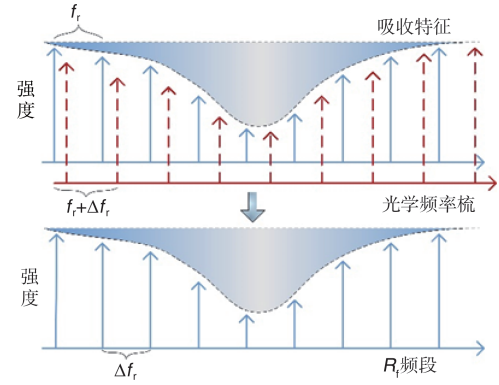


图2 频域测量过程

Fig.2 Frequency domain measurement process

1.2 试验装置

基于以上原理,搭建了如图3所示的双光梳光谱测量系统。其中,comb1和comb2分别为两台光频梳,HWP为二分之一波片,PBS为分束立方体,M为反射镜,PD为光电探测器。将两台光频梳锁通过锁定系统锁定在同一台频率基准上(本试验采用铷钟作为频率基准)实现两台光梳的同步,然后两束光分别通过调节偏振的二分之一波片使得两者的偏振方向一致,从而在PBS中合束后通过反射气室,气室两面都镀有反射层使得吸收光程增加,然后出射光通过反射镜打在光电探测器上,通过上位机控制的采集卡采集带有吸收光谱信息的拍频信号。将采集到的信号进行傅里叶变换,从而得到乙炔气体在带通滤光片指定范围内的吸收光谱信号。

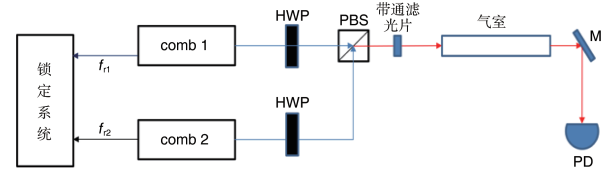


图3 双光梳光谱测量系统原理图

Fig.3 Dual-comb spectrum measurement system

2 光谱测量性能评估

根据图3所示,建立测量用的双光梳光谱系统,两台光频梳的重复频率为 $f_{r1} = 250\text{MHz}$, $f_{r2} = f_{r1} + 802\text{Hz}$ 。根据奈奎斯特采样定理,使用的采集卡的采样率被设置为 500MHz 。图4为采样获得的典型的双光梳干涉时域信号,图5为将时域信号进行相应处理后,使用快速傅里叶变换得到的映射到射频域的对应的射频梳中峰值较好较为清晰的一根梳齿。通过图示拍频梳梳齿的半高全宽可以计算得到实际吸收光谱的光谱分辨率为 $\text{RES}_r = f_{\text{rw}} * (f_{r1} / \Delta f_r) = 2.81\text{GHz}$ 。根据式(3)可知,理论光谱分辨率可以由采样时间、重复频率、重频差三者进行计

算,其中的参数 k 为切趾函数引入的增宽因素,本试验中可以认为 $k \approx 1.43$ 。带入上述参数可以得到本系统的理论光谱分辨率为650MHz,考虑到快速傅里叶变换引入的窗函数和谱线的自身展宽,以及本试验对两台光梳的偏移频率(f_{ceo})并未锁定,测量结果的光谱分辨率符合预期。

$$\text{RES} = k \times \frac{f_{r1}}{T \cdot \Delta f_r} \quad (3)$$

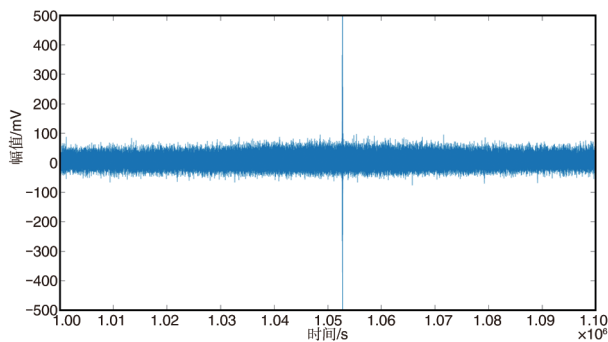


图4 双光梳干涉时域信号

Fig.4 Double comb interference time domain signal

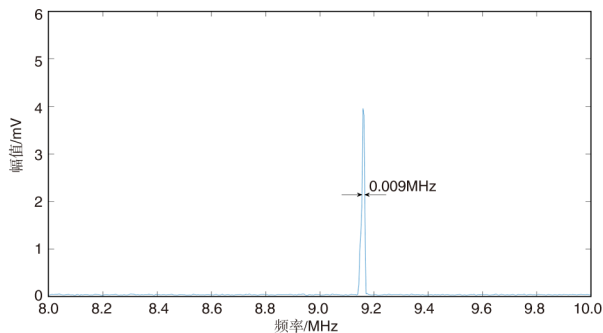


图5 乙炔气体吸收峰

Fig.5 C_2H_2 absorption peak

3 结论

本文设计并实现了一种基于双光梳光谱的气体光谱分析装置,并进行了乙炔气体的测试,计算得到系统的光谱分辨率为2.81GHz。在免去复杂的偏置频率锁定装置的情况下,相对损失的光谱分辨率较小,通过试验验证了双光梳光谱的高速高分辨率特性。由于影响光谱分辨率的主要因素为双光梳系统的互线宽,下一步工作可以通过进一步优化两台光梳的线宽,从而进一步提高光谱分辨率。

AST

参考文献

[1] 魏志义,张伟,韩海年. 光学频率梳的研究进展和应用[C]//中国宇航学会2008年全国频率控制技术年会,2008:108-112.

Wei Zhiyi, Zhang Wei, Han Hainian. Research progress and application of optical frequency comb [C]//Proceedings of the 2008 National Annual Conference on Frequency Control Technology, 2008: 108-112. (in Chinese)

[2] Udem T, Holzwarth R, Hänsch T W. Optical frequency metrology[J]. Encyclopedia of Materials Science & Technology, 2005, 416(6877):1-5.

[3] 孙青, 杨奕, 孟飞, 等. 基于频率梳的太赫兹频率精密测量方法研究 [J]. 光学学报, 2016, 36(4):133-138.
Sun Qing, Yang Yi, Meng Fei, et al. Research on precise measurement method of terahertz frequency based on frequency comb [J]. Acta Optics Sinica, 2016, 36 (4): 133-138. (in Chinese)

[4] Chou C W, Hume D B, Rosenband T, et al. Optical clocks and relativity[J]. Science, 2010, 329(5999):1630-1633.

[5] Holzwarth R, Udem T, Hnsch T, et al. Optical frequency synthesizer for precision spectroscopy[J]. Physical Review Letters, 2000, 85(11):2264-2267.

[6] Coddington I, Swann W C, Nenadovic L, et al. Rapid and precise absolute distance measurements at long range[J]. Nature Photonics, 2009, 3(6):351-356.

[7] Mance J G, La Lone B M, Dolan D H, et al. Time-stretched photonic Doppler velocimetry[J]. Optics Express, 2019, 27 (18): 25022-25030.

[8] Newbury N R, Coddington I, Swann W C. Optical frequency comb-based coherent LIDAR. U. S. Patent 8, 558, 993[P]. 2013-10-15.

[9] 王文娟, 薛景锋, 张梦杰. 光纤传感在飞机结构健康监测中的应用进展和展望[J]. 航空科学技术, 2020, 31(7):95-101.
Wang Wenjuan, Xue Jingfeng, Zhang Mengjie. Application progress and prospect of optical fiber sensor in aircraft structural health monitoring[J]. Aeronautical Science & Technology, 2020, 31(7):95-101. (in Chinese)

[10] 秋路, 屈飞舟, 惠辉辉. 机载激光测速技术在大气数据校准领域的应用研究[J]. 航空科学技术, 2019, 30(2):32-36.
Qiu Lu, Qu Feizhou, Hui Huihui. Research on applications of airborne laser anemometry in air data calibration[J]. Aeronautical Science & Technology, 2019, 30(2):32-36. (in Chinese)

[11] Adler F. Mid-infrared fourier transform spectroscopy with a broadband frequency comb[J]. Optics Express, 2010, 18(21): 21861-21872.

- [12] Christoph G, Bjoern S, Albert, et al. Frequency comb vernier spectroscopy for broadband, high-resolution, high-sensitivity absorption and dispersion spectra[J]. Physical Review Letters, 2007, 99(26): 263902.
- [13] Coddington I, Newbury N, Swann W. Dual-comb spectroscopy [J]. Optica, 2016, 3(4): 414.
- [14] Schiller S. Spectrometry with frequency combs[J]. Optics Letters, 2002, 27(9): 766-768.
- [15] Keilmann F, Gohle C, Holzwarth R. Time-domain mid-infrared frequency-comb spectrometer[J]. Optics Letters, 2004, 29(13): 1542-1544.
- [16] Ideguchi T, Poisson A, Guelachvili G, et al. Adaptive real-time dual-comb spectroscopy[J]. Nature Communications, 2014, 5: 3375.
- [17] Roy J, Deschênes J D, Potvin S, et al. Continuous real-time correction and averaging for frequency comb interferometry[J]. Optics Express, 2012, 20(20): 21932-21939.
- [18] Coddington I, Swann W C, Newbury N R. Coherent dual-comb spectroscopy at high signal-to-noise ratio[J]. Physical Review A, 2010, 82(4): 043817.
- [19] 赵俊杰, 刘迪, 乔建翔, 等. 关于汽车尾气成分动态检测技术的分析[J]. 内燃机与配件, 2019, 280(4): 137-138.
- Zhao Junjie, Liu Di, Qiao Jianxiang, et al. Analysis on the dynamic detection technology of automobile exhaust components [J]. Internal Combustion Engine and Parts, 2019, 280 (4): 137-138. (in Chinese)
- [20] 何启欣. 基于红外激光吸收光谱技术的气体检测系统研究[D]. 长春: 吉林大学, 2018.
- He Qixin. Research on gas detection system based on infrared laser absorption spectroscopy technique[D]. Changchun: Jilin University, 2018. (in Chinese)
- [21] 刘文清, 崔志成, 刘建国, 等. 大气痕量气体测量的光谱学和化学技术[J]. 量子电子学报, 2004, 21(2): 202-210.
- Liu Wenqing, Cui Zhicheng, Liu Jianguo, et al. Spectroscopy and chemical technology for atmospheric trace gas measurement [J]. Chinese Journal of Quantum Electronics, 2004, 21 (2): 202-210. (in Chinese)
- [22] Takuro I. Dual-comb spectroscopy[J]. Optics & Photonics News, 2017, 28(1): 32.
- [23] Coddington I, Swann W C, Newbury N R. Coherent linear optical sampling at 15 bits of resolution[J]. Optics Letters, 34 (14): 2153-2155. (责任编辑 陈东晓)

作者简介

高宇炜(1997-)男, 硕士研究生。主要研究方向: 双光梳光谱测量。

Tel: 010-62457101 E-mail: gaoyuweiabc@126.com

武腾飞(1983-)男, 研究员。主要研究方向: 飞秒激光及其精密测量领域的研究。

Tel: 010-62457101 E-mail: tengfei.wu@163.co

C₂H₂ Spectrum Measurement Based on Femtosecond Optical Frequency Comb

Gao Yuwei, Wu Tengfei*, Zhang Lei, Han Jibo, Zhao Chunbo, Xia Chuanqing

Science and Technology on Metrology and Calibration Laboratory, Aviation Key Laboratory of Science and Technology on Dynamic Testing and Calibration, AVIC Changcheng Institute of Metrology & Measurement, Beijing 100095, China

Abstract: With the advantages of high resolution, high sensitivity, wide spectral coverage and rapid measurement, the dual-comb spectroscopy technology has developed rapidly in the field of molecular and atomic spectroscopy. First, the basic principle of the dual-comb spectrum measurement technology is briefly introduced, and then a corresponding dual-comb spectrum measurement device is established according to the existing conditions of the laboratory, and the feasibility of the acetylene gas is verified.

Key Words: dual-comb spectroscopy; laser spectroscopy; spectroscopy; optical frequency comb; dual-comb system

Received: 2020-10-19; Revised: 2020-10-28; Accepted: 2020-11-20

*Corresponding author. Tel.: 010-62457101 E-mail: tengfei.wu@163.com