

**РОССИЙСКАЯ АКАДЕМИЯ НАУК  
ФИЗИЧЕСКИЙ ИНСТИТУТ им.П.Н.ЛЕБЕДЕВА  
Отделение Оптики  
Отдел Оптики Низкотемпературной плазмы**

Оптика

Препринт №

**РЕГИСТРАЦИЯ СПЕКТРОВ СЛАБОГО ПОГЛОЩЕНИЯ  
ФАЗОВЫМ МЕТОДОМ С ИСПОЛЬЗОВАНИЕМ ДИОДНОГО  
ЛАЗЕРА И ВЫСОКОДОБРОТНОГО РЕЗОНАТОРА**

И.В.Николаев, В.Н.Очкин,  
М.В.Спиридонов, С.Н.Цхай

**МОСКВА 2011**

**И.В.Николаев, В.Н.Очкин, М.В.Спиридонов, С.Н.Цхай**

**РЕГИСТРАЦИЯ СПЕКТРОВ СЛАБОГО ПОГЛОЩЕНИЯ ФАЗОВЫМ  
МЕТОДОМ С ИСПОЛЬЗОВАНИЕМ ДИОДНОГО ЛАЗЕРА  
И ВЫСОКОДОБРОТНОГО РЕЗОНАТОРА**

*Учреждение Российской Академии Наук Физический институт  
им. П.Н.Лебедева. Москва, 119991, Ленинский проспект, 53*

**АННОТАЦИЯ**

Предложен и развит метод записи спектра поглощения частиц в высокодобротном резонаторе по фазовой задержке частотно-перестраиваемого амплитудно-модулированного излучения диодного лазера. Метод демонстрирует высокое спектральное разрешение и чувствительность. В основе метода лежит установленная в работе возможность регистрации спектра в условиях глубокой амплитудной модуляции, когда сопутствующая ей девиация частоты превышает ширину спектра. Это достигается с помощью специальной техники обработки сигналов в канале регистрации поглощения спектрометра и параллельных измерений параметров частотной перестройки в режиме реального времени. Экспериментально метод реализован для случая модуляции тока инжекции лазера прямоугольными импульсами. Зарегистрирован спектр поглощения молекул воды в области 635нм с разрешением  $4.5 \cdot 10^{-3} \text{см}^{-1}$  и чувствительностью по коэффициенту поглощения  $\sim 7 \cdot 10^{-11} \text{см}^{-1}$ . Проведены сопоставительные измерения с помощью другого известного высокочувствительного лазерного метода CEAS (ICOS). Обсуждаются возможные пути развития метода.

**И.В.Николаев, В.Н.Очкин, М.В.Спиридонов, С.Н.Цхай**

**РЕГИСТРАЦИЯ СПЕКТРОВ СЛАБОГО ПОГЛОЩЕНИЯ ФАЗОВЫМ  
МЕТОДОМ С ИСПОЛЬЗОВАНИЕМ ДИОДНОГО ЛАЗЕРА  
И ВЫСОКОДОБРОТНОГО РЕЗОНАТОРА**

*Учреждение Российской Академии Наук Физический институт  
им. П.Н.Лебедева. Москва, 119991, Ленинский проспект, 53*

## **1. Введение**

Один из методов исследования потерь электромагнитных колебаний и волн, распространяющихся в различного рода объектах, основан на измерении сдвига фазы модулированного по амплитуде (АМ) излучения на выходе из объекта или реакции объекта по сравнению с фазой излучения, падающего на объект. В оптических исследованиях этот метод традиционно используется для измерения времен жизни возбужденных состояний частиц, начиная с работы 1933 года [1]. При этом частица может быть уподоблена резонатору для оптической частоты с затуханием.

Много позже, в 1980 году, фазовый метод был использован для определения времени жизни фотона в оптическом резонаторе, составленном из зеркал, в целях измерения потерь при отражении от зеркал на уровне до  $10^{-4}$  [2] и в дальнейшем за ним закрепились названия PS-SRDS (phase shift cavity ringdown spectroscopy) или CAPS (cavity attenuated phase shift). В последнее время CAPS с применением высокодобротных пассивных оптических резонаторов развивается в значительной мере в связи с потребностями газоанализа, в т.ч. измерениями концентраций малых примесей в атмосфере. В первых экспериментах в качестве излучателей использовались лазеры на красителях. В 1996 году в работе [3] измерено поглощение молекулой  $^{18}\text{O}_2$  в области 635 нм в резонаторе с коэффициентами отражения зеркал  $R=0.9985$  и электрооптической модуляцией на частоте 2,13 МГц. В работе [4] аналогичная техника использовалась для измерения сечений поглощения на частотах колебаний связи С-Н в различных углеводородах в области 615-655 нм. Следует отметить реализацию CAPS с использованием широкополосных источников

света. Так, в [5] для измерений поглощения  $O_2$  использовалась Хе лампа в области 700-900 нм и CAPS дополнен преобразованием Фурье. В [6] для измерения поглощения на частотах Н-Д связи использован титан-сапфировый (Ti:Sapphire) лазер, причем чувствительность по поглощению составила  $2,5 \cdot 10^{-9} \text{ см}^{-1}$ . В [7,8] для измерения концентрации  $NO_2$  применялся светодиод, излучающий в области 430 нм и достигнута чувствительность по поглощению  $2 \cdot 10^{-9} \text{ см}^{-1}$ . Недостатком широкополосных источников в практическом плане можно считать необходимость использования спектрального прибора для селекции области поглощения.

Наибольшие перспективы высокочувствительной спектроскопии связываются в настоящее время с использованием полупроводниковых диодных лазеров (DL), в которых частотная перестройка достигается изменением возбуждающего лазер инжекционного тока. В последние годы появились работы, использующие DL в сочетании с CAPS. Так, в [9] проводились измерения фоновой концентрации  $NO_2$  в атмосфере по поглощению излучения диодного лазера в области 404 нм и продемонстрирована чувствительность  $8 \cdot 10^{-10} \text{ см}^{-1}$  (0.06ppb), а аналогичные измерения, выполненные в работе [10] привели к соответствующим значениям  $2.7 \cdot 10^{-10} \text{ см}^{-1}$  (0.02ppb).

Вместе с тем следует отметить и трудность, ограничивающую развитие CAPS с DL. При несомненном удобстве упаравления параметрами лазерного излучения током инжекции, ее особенностью является то, что амплитудная модуляция интенсивности сопровождается частотной модуляцией. Эта проблема хорошо известна в технике абсорбционной диодной спектроскопии с частотной и волновой (FM, WM) модуляцией, когда возникает остаточная амплитудная модуляция RAM (residual amplitude modulation), ограничивающая чувствительность измерений поглощения. Методам минимизации влияния RAM посвящены многие работы (см., напр., [12, 13]). По отношению к CAPS эта же проблема проявляется с обратной стороны – для АМ остаточной является частотная модуляция (RFM). В принципе, имеется способ разделения частотной и амплитудной модуляции излучения DL [14], но он применим не ко всем типам DL и требует весьма специфической формы модуляции, трудно сочетающейся с CAPS. В силу этого к настоящему времени CAPS может быть реализован только для малой окрестности фиксированной частоты в спектре поглощения из области перестройки ДЛ, а модуляция тока по необходимости должна быть малой, чтобы спектральное разрешение было достаточным для селекции

исследуемых частиц. При этом, с одной стороны, возникает существенное ограничение чувствительности метода и, с другой стороны, оказывается невозможной запись спектра с высоким разрешением. Указанная проблема анализируется и решается в настоящей работе.

## 2. Метод регистрации спектра по сдвигу фазы в резонаторе с потерями.

Если в резонатор попадает короткий (длительность  $\delta t$  менее времени двойного прохода резонатора) импульс с интенсивностью  $I_\delta$ , то его интенсивность на выходе из резонатора определяется следующей формулой:

$$I_{out}(t) \sim I_\delta e^{\frac{-t}{\tau(\nu)}}, \quad (1)$$

где  $\nu$  – оптическая частота излучения,  $t$  – время,  $\tau(\nu)$  – время затухания излучения в резонаторе, связанное с параметрами резонатора следующим образом [15,16]:

$$\tau(\nu) = \frac{d}{c \cdot [(1 - R_{eff}(\nu)) + k(\nu) \cdot d]}, \quad (2)$$

где  $d$  – длина резонатора,  $c$  – скорость света,  $R_{eff}(\nu)$  – эффективный коэффициент отражения зеркал, включающий потери не связанные с поглощением (например, рассеяние в веществе внутри резонатора),  $k(\nu)$  – коэффициент поглощения вещества.

Пусть интенсивность света, падающего на резонатор, изменяется гармонически

$$I(t) = I_0 \cdot (1 + \alpha \cdot \sin(\Omega \cdot t)), \quad (3)$$

где  $I_0$  – интенсивность падающей волны без модуляции,  $\alpha$  – глубина амплитудной модуляции,  $\Omega$  – частота модуляции сигнала. Тогда интенсивность света на выходе резонатора определяется следующим выражением [3]:

$$\begin{aligned} I_{out}(t, \nu) &= \frac{1}{\tau(\nu)} \int_{-\infty}^t I_0 (1 + \alpha \sin \Omega t') \exp\left[-\frac{(t-t')}{\tau(\nu)}\right] dt' = \\ &= I_0 \left(1 + \frac{\alpha}{1 + \Omega^2 \tau(\nu)^2} [\sin \Omega t - \Omega \tau(\nu) \cos \Omega t]\right) \\ &= I_0 \left(1 + \frac{\alpha}{\sqrt{1 + \Omega^2 \tau(\nu)^2}} \times \sin[\Omega t - \arctg \Omega \tau(\nu)]\right) = I_0 (1 + \alpha \cos(\theta(\nu))) \times \sin[\Omega t - \theta(\nu)] \end{aligned} \quad (4)$$

Из сопоставления выражений (3) и (4) видно, что интенсивность прошедшей волны, как и падающей, модулирована гармоническим сигналом. Однако, фаза модуляции прошедшего излучения смещена по отношению к фазе модуляции падающего света на угол  $\theta(\nu) = \arctg(\Omega \cdot \tau(\nu))$ , а глубина модуляции меньше исходной в  $\sqrt{1 + (\Omega \cdot \tau(\nu))^2} = \cos^{-1}(\theta(\nu))$  раз. Измеряя фазовый сдвиг  $\theta(\nu)$ , можно, при известном коэффициенте отражения зеркал, найти коэффициент поглощения вещества по формуле (2). Чтобы извлечь фазовый сдвиг из сигнала (4) необходимо произвести демодуляцию сигнала.

## 2.1. Традиционный подход к детектированию фазы в оптических измерениях и его ограничения.

Стандартная схема демодуляции для гармонических сигналов иллюстрируется рисунком 1. Излучение лазера DL модулируется по амплитуде с частотой  $\Omega$  током инжекции, вырабатываемым блоком управления лазера MC. В силу указанных выше причин при прохождении оптического резонатора С фаза модуляции изменяется на величину  $\theta$ , так что сигнал от детектора D с переменной составляющей имеет вид  $A \sin(\Omega t + \theta)$ . Здесь, в соответствии с (3) и (4), А – амплитуда переменной части модулированного сигнала от резонатора

$$A = I_{out} = I_0 \alpha \cdot \cos \theta. \quad (5)$$

Этот сигнал подается одновременно на два смесителя демодулятора  $M_X$  и  $M_Y$ . На встроенный узкополосный генератор G демодулятора подается опорный сигнал с частотой  $\Omega_r$ , также вырабатываемый блоком управления лазера MC. В смесителях происходит перемножение сигналов от детектора и генератора, в результате чего вырабатывается сумма двух гармонических сигналов с разностной  $\Omega_r - \Omega$  и суммарной  $\Omega_r + \Omega$  частотами смешиваемых сигналов, причем фазы сигналов от  $M_X$  и  $M_Y$  дополнительно принудительно смещаются генератором по фазе на  $\pi/2$  друг относительно друга. Т.е. сигнал смесителя  $M_X$

$$\tilde{X} = A \cos(\Omega t + \theta - \Omega_r t) - A \cos(\Omega t + \theta + \Omega_r t), \quad (6a)$$

а сигнал смесителя  $M_Y$

$$\tilde{Y} = A \sin(\Omega t + \theta - \Omega_r t) + A \sin(\Omega t + \theta + \Omega_r t). \quad (6b)$$

Для исследуемого сигнала с частотой модуляции, равной частоте опорного сигнала ( $\Omega=\Omega_r$ ), сигналы смешанных компонент будут равны постоянному сигналу и сигналу с удвоенной частотой опорного сигнала, соответственно

$$\tilde{X}' = A \cos(\theta) - \cos(2\Omega t + \theta), \quad \tilde{Y}' = A \sin(\theta) + \sin(2\Omega t + \theta). \quad (6в)$$

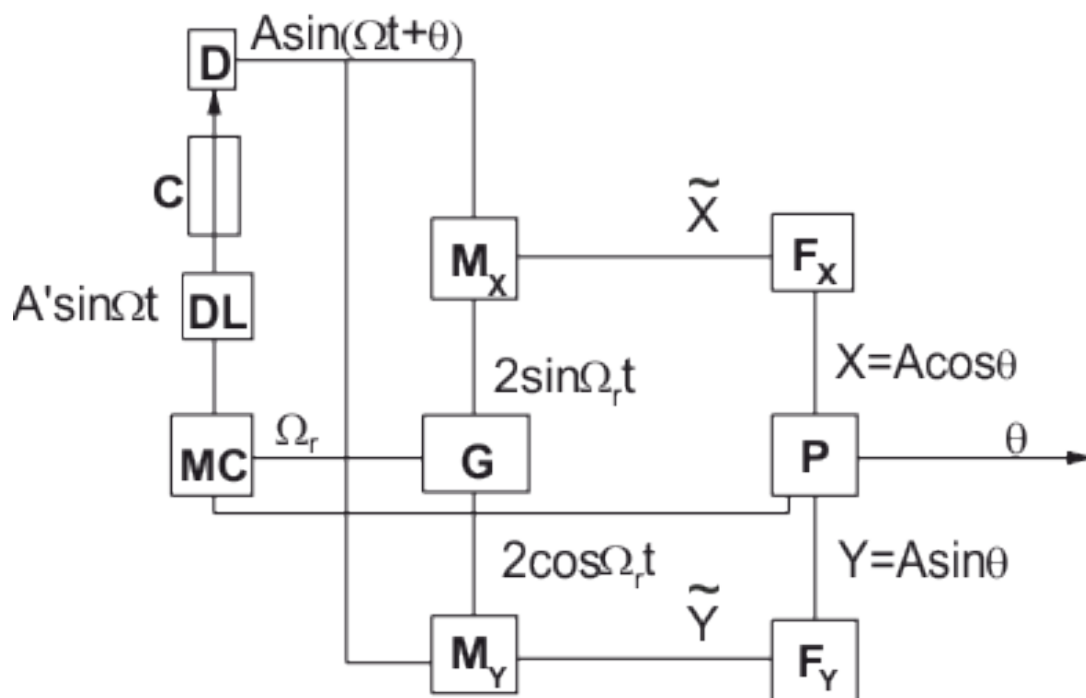


Рис. 1. Процедура демодуляции. MC – блок управления лазером, DL – лазер, C – резонатор, D – детектор, G – генератор демодулятора, M<sub>X</sub> и M<sub>Y</sub> – смесители, F<sub>X</sub> и F<sub>Y</sub> – фильтры низких частот, P – процессор.

Смешанные сигналы поступают на фильтры низких частот F<sub>X</sub> и F<sub>Y</sub>, пропускающие только постоянные составляющие, равные при условии (6в)

$$X = A \cos(\theta), \quad Y = A \sin(\theta). \quad (6г)$$

В связи с этой процедурой можно ввести понятие вектора демодуляции на комплексной плоскости

$$F_D(X, Y) = X + jY \quad (6д)$$

с углом  $\theta$  между вектором и осями,  $j$  – мнимая единица. По этим величинам можно найти амплитуду и фазовый сдвиг исследуемого сигнала

$$A = (X^2 + Y^2)^{1/2}, \quad \theta = \text{tg}^{-1}(Y/X). \quad (7)$$

Описанная принципиальная схема стандартных амплитудно-фазовых измерений предполагает, что в исходном исследуемом сигнале несущая частота

$\nu$  в процессе модуляции не меняется. Если говорить об оптических измерениях, то в формулах (4) частота  $\nu = \text{const}$ . Такое предположение не всегда оправданно, в том числе и в рассматриваемом нами случае применения CAPS в диодной лазерной спектроскопии высокой чувствительности. Как уже отмечалось во введении, и перестройка частоты излучения и изменение его интенсивности происходят одновременно при изменении тока инжекции, т.е. амплитудная модуляция сопровождается модуляцией частотной.

Введем, по аналогии с глубиной амплитудной модуляции (3), величину  $\gamma$  частотной модуляции

$$\nu = \nu_0 (1 + \gamma \sin \Omega t), \quad (8)$$

где  $\nu_0$  – центральная частота, вблизи которой изменяется частота излучения при модуляции. Максимальные отклонения частоты от центрального положения (девиация)  $\Delta \nu_m = \nu_0 \gamma$ . Если CAPS применяется для регистрации спектра поглощения по указанной схеме демодуляции, а минимальное требуемое спектральное разрешение составляет  $\delta \nu$ , возникает ограничение на глубину модуляции

$$\gamma \ll \frac{\delta \nu}{\nu_0}. \quad (9)$$

Объединяя выражения (3) и (8), получим

$$I(\nu) = I_0 \cdot \left[ 1 + \frac{\alpha}{\gamma} \cdot \left( \frac{\nu}{\nu_0} - 1 \right) \right], \quad (10)$$

т.е. ограничение на глубину частотной модуляции приводит к аналогичному ограничению глубины амплитудной модуляции, величины полезного сигнала  $A = I_0 \alpha$  (5) и, как следствие, к ограничению чувствительности измерений поглощения. В работах, посвященных диодной спектроскопии с частотной модуляцией рассчитывались оптимальные величины девиации частоты, обеспечивающие максимальную чувствительность для линий поглощения с различным типом уширения [12,13]. Типичные значения оптимальных девиаций в 2-3 раза превышают полуширину спектра поглощения т.е. требуется достаточно глубокая частотная модуляция. Эти же выводы относятся и к методу CAPS.

Если применять глубокую амплитудную модуляцию, то дополнительная, создаваемая резонатором, фаза становится зависящей от частоты излучения  $\theta(\nu)$



из-за «остаточной» частотной модуляции RFM лазерного излучения. При использовании процедуры демодуляции в описанном виде на выходе демодулятора возникает сигнал, соответствующий некоторому значению фазы, усредненной по частоте  $\nu$  излучения. В такой ситуации спектральное разрешение ограничивается девиацией частоты  $\Delta\nu_m$ . Очевидно, что для регистрации спектра поглощения с более высоким разрешением процедура измерений должна быть модифицирована.

## 2.2. Фазовый метод при одновременной частотной и амплитудной модуляции.

Общая схема рассуждений может быть следующей. Пусть модуляция интенсивности  $I$  лазерного излучения описывается функцией с периодом  $T_\Omega$ . Во временном представлении в пределах одного периода модуляции эту функцию можно представить (рис.2) как сумму следующих друг за другом без разрывов элементарных виртуальных «импульсов». Длительность  $\Delta t_k$  каждого из них может варьироваться, но достаточно мала, чтобы изменение оптической частоты  $\delta\nu_k$  за это время было также мало и отвечало условию (9), так что ограничение на глубину модуляции для каждого из них не возникает.

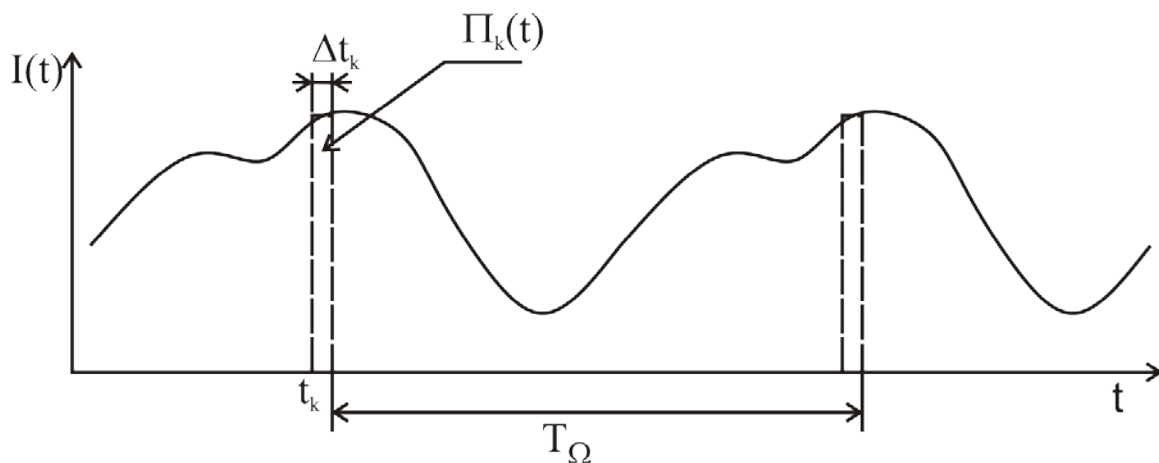


Рис.2. Пояснение к процедуре разбиения зависимости интенсивности от времени на виртуальные «импульсы».

При таком представлении в каждом из периодов зависимости интенсивности излучения от времени можно выделить элементарные

виртуальные «импульсы» с одинаковой фазой по отношению к некоторому фиксированному моменту модуляции. Тогда к последовательности таких импульсов, следующих с интервалами, равными периоду модуляции  $T_\Omega$ , может быть применена традиционная схема демодуляции (рис.1). Генератор  $G$  при этом по-прежнему создает гармонические сигналы с частотой  $\Omega = \Omega_r$ , определяемой управляющим блоком  $MC$ , а смесители формируют гармонические сигналы совместно с таковыми, присутствующими в компонентах Фурье разложения элементарных «импульсов». Фильтры  $F_X$  и  $F_Y$  обеспечивают детектирование фазы именно для основных Фурье-компонент выделенных «импульсов» с соответствующими задержками фаз. Применяя такое рассмотрение для всей совокупности серий таких импульсов с различными фазами  $\theta_k$ , можно восстановить весь спектр фаз  $\theta(v)$ .

Сказанное формально можно записать в следующем виде. Примем, что интенсивность излучения  $I$  прямо пропорциональна величине  $\beta$  превышения тока инжекции над пороговым значением  $i_{th}$  [17]

$$I \sim \beta = (i - i_{th}). \quad (11)$$

Пусть функция  $\Phi$  задает связь периодической величины превышения тока инжекции над пороговым током  $\beta(t, T)$  с периодическим изменением интенсивности излучения  $I(v(t), T_\Omega, t) = \beta(t, T_\Omega) \cdot \Phi(v(t), T_\Omega, t)$ . Введём вспомогательную кусочно-непрерывную функцию, составленную из узких виртуальных прямоугольников:

$$\tilde{\Phi}(v(t), T_\Omega, t) = \sum_k \Pi_k(t), \quad (12)$$

где

$$\Pi_k(t) = \begin{cases} \frac{I(v(t), T_\Omega, t)}{\Delta t_{k+1}}, & \text{для } t \in \left[ \sum_{i=0}^k \Delta t_i + T_\Omega \cdot n, \sum_{i=0}^{k+1} \Delta t_i + T_\Omega \cdot n \right], n=0,1,2,\dots, \Delta t_0 = 0 \\ 0, & \text{для } t \in \left( \sum_{i=0}^{k+1} \Delta t_i + T_\Omega \cdot n, \sum_{i=0}^k \Delta t_i + T_\Omega \cdot (n+1) \right), n=0,1,2,\dots, \Delta t_0 = 0 \end{cases}$$

Величина  $\overline{I(v(t), T_{\Omega}, t)} \Big|_{\Delta t_{k+1}}$  – среднее значение интенсивности на интервале

$\sum_{i=0}^k \Delta t_i \leq t \leq \sum_{i=0}^{k+1} \Delta t_i$ . Фурье представление функции  $\Pi_k(t)$  имеет следующий вид:

$$\Pi_k(t) = A_{F0} + \sum_{m=1}^{\infty} A_{Fm,k} \cdot \sin \left( \frac{m \cdot 2 \cdot \pi \cdot t}{T_{\Omega}} - \left( \frac{\pi}{2} + \frac{2 \cdot \pi \cdot t_k}{T_{\Omega}} + \frac{m \cdot \pi \cdot \Delta t_k}{T_{\Omega}} \right) \right), \quad (13)$$

где  $A_{Fm,k} = \frac{2 \cdot \Pi_k(t_k)}{m \cdot \pi} \cdot \sin \left( \frac{m \cdot \pi \cdot \Delta t_k}{T_{\Omega}} \right)$  – амплитуды Фурье-гармоник,

$t_k = \sum_{i=0}^k \Delta t_i$ . После прохождения виртуального импульса излучения через

резонатор он приобретет фазовый сдвиг и сигнал принимает следующий вид

$$\Pi_k(t) = A_{F0} + \sum_{m=1}^{\infty} A_{Fm,k} \cdot \sin \left( \frac{m \cdot 2 \cdot \pi \cdot t}{T_{\Omega}} - \left( \frac{\pi}{2} + \frac{2 \cdot \pi \cdot t_k}{T_{\Omega}} + \frac{m \cdot \pi \cdot \Delta t_k}{T_{\Omega}} \right) - \theta'_m(v(t_k)) \right) \quad (14)$$

где, в соответствии с выражениями (1)-(4)  $\theta'_m(v(t_k)) = m \cdot 2 \cdot \pi \frac{\tau'(v(t_k))}{T_{\Omega}}$  –

сдвиг фаз, вносимый резонатором в гармонический сигнал. Проведём, в соответствии с изложенным в разделе 2.1, традиционную процедуру смешения гармонических сигналов внутреннего генератора G и сигнала в виде функции  $\Pi_k(t)$ , в результате на выходе смесителей получим сигналы:

$$\tilde{X}_k(t) = \Pi_k(t) \cdot 2 \cdot \sin \left( \frac{2 \cdot \pi \cdot t}{T_{\Omega}} \right), \quad (15a)$$

$$\tilde{Y}_k(t) = \Pi_k(t) \cdot 2 \cdot \cos \left( \frac{2 \cdot \pi \cdot t}{T_{\Omega}} \right). \quad (15b)$$

После низкочастотной фильтрации выделим постоянные составляющие из функций  $\tilde{X}$  и  $\tilde{Y}$ . Согласно формулам (6) они будут равны соответственно:

$$X_k = A_{F1,k} \cdot \cos \left( - \left( \frac{\pi}{2} + \frac{2 \cdot \pi \cdot t_k}{T_\Omega} + \frac{\pi \cdot \Delta t_k}{T_\Omega} \right) - \theta'(v(t_k)) \right) \quad (16a)$$

$$Y_k = A_{F1,k} \cdot \sin \left( - \left( \frac{\pi}{2} + \frac{2 \cdot \pi \cdot t_k}{T_\Omega} + \frac{\pi \cdot \Delta t_k}{T_\Omega} \right) - \theta'(v(t_k)) \right). \quad (16b)$$

В целом для функции  $\tilde{\Phi}(v(t), T_\Omega, t) = \sum_k \Pi_k(t)$  процедура демодуляции приведёт к следующим результатам:

$$X = \sum_k X_k = \sum_k A_{F1,k} \cdot \cos \left( - \left( \frac{\pi}{2} + \frac{2 \cdot \pi \cdot t_k}{T_\Omega} + \frac{\pi \cdot \Delta t_k}{T_\Omega} \right) - \theta'(v(t_k)) \right) \quad (17a)$$

$$Y = \sum_k Y_k = \sum_k A_{F1,k} \cdot \sin \left( - \left( \frac{\pi}{2} + \frac{2 \cdot \pi \cdot t_k}{T_\Omega} + \frac{\pi \cdot \Delta t_k}{T_\Omega} \right) - \theta'(v(t_k)) \right). \quad (17b)$$

Поскольку интервалы  $\Delta t_k$  малы, то данные выражения можно приближённо представить в виде:

$$X = \sum_k X_k = \sum_k \frac{2 \cdot \Pi_k(t_k) \cdot \Delta t_k}{T_\Omega} \cdot \cos \left( - \left( \frac{\pi}{2} + \frac{2 \cdot \pi \cdot t_k}{T_\Omega} + \frac{\pi \cdot \Delta t_k}{T_\Omega} \right) - \theta'(v(t_k)) \right) \quad (18a)$$

$$Y = \sum_k Y_k = \sum_k \frac{2 \cdot \Pi_k(t_k) \cdot \Delta t_k}{T_\Omega} \cdot \sin \left( - \left( \frac{\pi}{2} + \frac{2 \cdot \pi \cdot t_k}{T_\Omega} + \frac{\pi \cdot \Delta t_k}{T_\Omega} \right) - \theta'(v(t_k)) \right). \quad (18b)$$

Переходя к пределу при  $\Delta t_k \rightarrow 0$ , и учитывая, что при малых  $\Delta t_k \rightarrow 0$  функция  $\Pi_k(t_k) \rightarrow I(v(t), T_\Omega, t) = \beta(t, T_\Omega) \cdot \Phi(v(t), T_\Omega, t)$ , получаем вместо сумм следующие интегральные соотношения:

$$X = \int_{T_\Omega} \frac{2 \cdot \beta(t, T) \cdot \Phi(v(t), T_\Omega, t)}{T_\Omega} \cdot \cos \left( - \frac{2 \cdot \pi \cdot t}{T_\Omega} - \theta(v(t)) \right) dt, \quad (19a)$$

$$Y = \int_{T_\Omega} \frac{2 \cdot \beta(t, T) \cdot \Phi(v(t), T_\Omega, t)}{T_\Omega} \cdot \sin \left( - \frac{2 \cdot \pi \cdot t}{T_\Omega} - \theta(v(t)) \right) dt, \quad (19b)$$

где  $\theta(v(t)) = \theta'(v(t)) + \frac{\pi}{2}$ . В общем случае нахождение зависимости  $\theta(v(t))$  требует обращения системы нелинейных интегральных уравнений и её решение связано с серьёзными техническими и математическими проблемами. Более того, чтобы реализовать такую схему в практических измерениях, необходимо установить связь частоты  $\nu$  и момента  $t$ , в который она реализуется в сигнале. Эта связь не следует из общих принципов, а определяется механизмами генерации излучения в DL, режимами их работы и технологическими особенностями активных лазерных элементов даже аналогичного типа. Поэтому она должна быть установлена экспериментально.

Наличие этой проблемы отчасти компенсируется тем, что DL и современные версии управляющих блоков MC позволяют достаточно гибко формировать функции модуляции  $\Phi$  различного вида. Ниже рассмотрим одну из таких разновидностей, реализуемых при наших экспериментальных и вычислительных возможностях.

### 2.3. Метод CAPS при модуляции прямоугольными импульсами.

Опишем реализацию изложенной выше концепции для случая, когда функция модуляции представляет собой меандр с рабочим циклом 0.5, что поясняется рис.3 - частота модуляции  $\Omega$ , период модуляции  $T_\Omega$ , длительность импульса  $T = T_\Omega/2$ . Рис.3а,б,с иллюстрируют модуляцию тока инжекции, частоты и интенсивности излучения. Как и выше, виртуальные импульсы излучения в пределах одного реального импульса нумеруются числами  $k = 1, 2, 3, \dots$  и их ширина  $\Delta t_k$  варьируется таким образом, чтобы соответствующие им изменения частоты  $\delta\nu_k$  были одинаковы и отвечали условию  $\delta\nu_k \ll \Gamma$ , где  $\Gamma$  – полуширина контура линии из спектра поглощения. Величина превышения тока инжекции над пороговым значением равна  $\beta$  (11).

Предположим, что перестройка оптической частоты излучения при инжектировании происходит как под действием увеличения концентрации свободных зарядов т.е. пропорциональна току, так и вследствие джоулева нагрева активной зоны. На переднем фронте импульса тока, соответствующего первому виртуальному импульсу с  $k=1$  нагрев отсутствует поэтому можно считать, что в этот момент частота

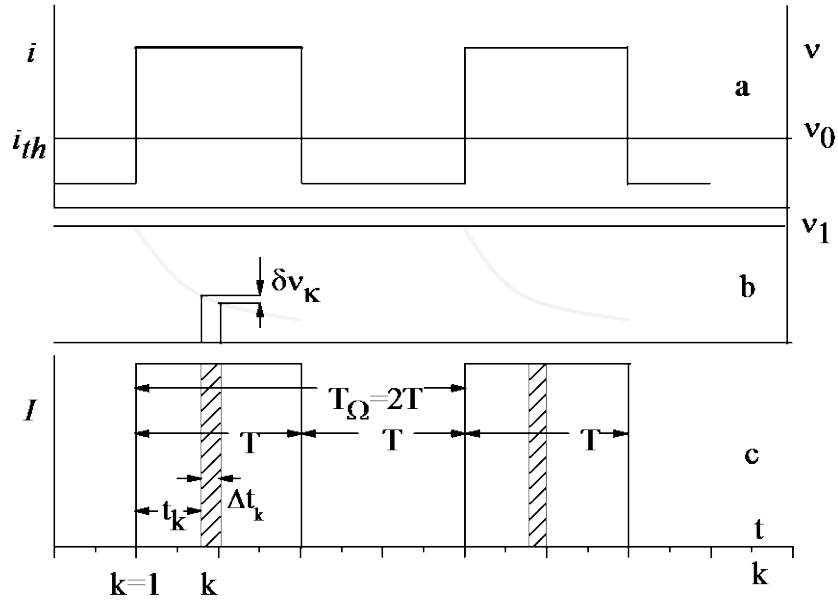


Рис.3. Модуляция прямоугольной формы

$$v_1 = v_0 - \beta \cdot k_i \quad (20)$$

где  $k_i$  – коэффициент пропорциональности,  $v_0$  – частота при пороговом токе. В последующее время происходит нагрев, динамика которого определяется характерным временем  $\tau$  теплопроводности активного элемента лазера, так что в итоге частота излучения определяется выражением

$$v(t) = v_0 - \beta \cdot k_i - k_\tau \cdot \left(1 - e^{-\frac{t}{\tau}}\right), \quad (21)$$

$k_\tau$  - коэффициент пропорциональности в слагаемом, отвечающем тепловому механизму. Хотя соотношения (20), (21) соответствуют общезначимым принципам и опыту работы с DL, они должны быть подтверждены, а входящие в них коэффициенты измерены экспериментально в рабочих режимах конкретного спектрометра (см. ниже).

В соответствии с общей концепцией запишем выражения для компонент вектора модуляции

$$X(\beta) = \beta \cdot \sum_k A_{F1,k}(t_k) \cos\left(\theta(v(t_k)) + \frac{\pi \cdot t_k}{T}\right) \cdot \Delta t_k, \quad (22a)$$

$$Y(\beta) = \beta \cdot \sum_k A_{F1,k}(t_k) \sin\left(\theta(v(t_k)) + \frac{\pi \cdot t_k}{T}\right) \cdot \Delta t_k. \quad (22б)$$

Здесь  $A_{F1,k}(t_k)$  - амплитуда первой гармоники в Фурье-разложении периодического прямоугольного сигнала с длительностью импульса  $\Delta t_k$ . Фазовые сдвиги  $\frac{\pi \cdot t_k}{T}$  связаны с задержкой виртуальных импульсов на время  $t_k$  относительно переднего фронта в каждом из реальных импульсов модуляции и при суммировании учитывается, что длительность импульсов и время между ними равны и эти же сдвиги определяют частоту модуляции  $\Omega = 2\pi / T_{\Omega} = \pi / T$ . В отличие от выражений (6а,б), в (22а,б) фазовый сдвиг  $\theta$ , задаваемый резонатором, зависит от оптической частоты, различной для различных виртуальных импульсов т.е. для различных моментов времени  $t_k$ .

Заменяя суммирование в (22а,б) по узким импульсам  $\Delta t_k$  интегрированием по  $dt$ , можно записать эти выражения в виде

$$X(\beta) = \beta \cdot \int \frac{A_{F1}(t) \cos\left(\theta(v(t)) + \frac{\pi \cdot t}{T}\right) dt}{T}, \quad (23а)$$

$$Y(\beta) = \beta \cdot \int \frac{A_{F1}(t) \sin\left(\theta(v(t)) + \frac{\pi \cdot t}{T}\right) dt}{T}. \quad (23б)$$

Для того, чтобы формулы для  $X(\beta)$  и  $Y(\beta)$  можно было переписать в терминах частоты необходимо воспользоваться связью частоты и времени (21), откуда следует:

$$t = -\tau \cdot \ln\left(1 + \frac{v - v_1}{k_\tau}\right), \quad dt = -\frac{\tau}{k_\tau} \cdot \frac{dv}{1 + \frac{v - v_1}{k_\tau}} \quad (24)$$

Введём вспомогательную функцию  $W(v - v_1)$ , такую что:

$$W(v - v_1) = \begin{cases} 0, v < v_0 \\ -\frac{\tau}{k_\tau} \cdot \frac{1}{\left(1 + \frac{v - v_1}{k_\tau}\right)}, v(T) > v \geq v_0 \\ 0, v \geq v(T) \end{cases}, \quad (25)$$

тогда фазовая задержка отдельного виртуального импульса относительно переднего фронта импульса тока, в частотном представлении примет следующий вид:

$$\frac{\pi \cdot t}{T} = \frac{-\pi \cdot \tau}{T} \cdot \ln\left(1 + \frac{v - v_1}{k_\tau}\right) = \frac{-\pi \cdot \tau}{T} \cdot \ln\left(W(v - v_1) \cdot \left(-\frac{k_\tau}{\tau}\right)\right). \quad (26)$$

Умножив, аналогично выражению (6д), компоненту  $Y(\beta)$  на комплексную единицу  $-j$  и сложив с компонентой  $X(\beta)$ , предварительно нормируя обе компоненты сигнала на величину  $\beta$ , мы, с помощью формулы Эйлера  $e^{j\varphi} = \cos \varphi + j \sin \varphi$ , получим следующее выражение для нормированного на величину  $\beta$  вектора демодуляции (6д) в виде:

$$\begin{aligned} \frac{X(\beta)}{\beta} + j \cdot \frac{Y(\beta)}{\beta} &= F_D(v_1) = \\ &= \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{A}_{F1}(v) \cdot W(v - v_1) \cdot \exp\left\{j \cdot \left(\frac{\pi \cdot \tau}{T} \cdot \ln\left(\frac{1}{W(v - v_1)} \cdot \left(-\frac{\tau}{k_\tau}\right)\right) + \theta(v)\right)\right\} dv \\ &= \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{A}_{F1}(v) \cdot \exp\{j \cdot \theta(v)\} \cdot W(v - v_1) \cdot \exp\left\{j \cdot \frac{\pi \cdot \tau}{T} \cdot \ln\left(\frac{1}{W(v - v_1)} \cdot \left(-\frac{\tau}{k_\tau}\right)\right)\right\} dv \end{aligned} \quad (27)$$

Поскольку время и частота связаны, коэффициенты Фурье-разложения  $A_{F1}(t)$  заменены на коэффициенты  $\tilde{A}_{F1}(v)$ . Выражение (27) представляет собой свёртку двух комплексных функций  $f_1(v) = \tilde{A}_{F1}(v) \cdot \exp\{j \cdot \theta(v)\}$  и ядра

$$f_c(v) = W(v - v_1) \cdot \exp\left\{j \cdot \frac{\pi \cdot \tau}{T} \cdot \ln\left(\frac{1}{W(v - v_1)} \cdot \left(-\frac{\tau}{k_\tau}\right)\right)\right\}.$$

Если известен вид ядра  $f_c$  и вид вектора демодуляции  $F_D(v_1)$ , то вид функции  $f_1(v)$  может быть найден путем решения уравнения Фредгольма 1 рода типа свертки (27). Отсюда, в свою очередь, могут быть установлены спектральные распределения амплитудных  $\tilde{A}_{F1}(v)$  и фазовых  $\theta(v)$  множителей для области изменения частоты  $v_1$ . Значения  $F_D(v_1)$  для этого диапазона могут быть измерены в эксперименте при регистрации сигнала после смесителей и фильтрации (рис.1). Для установления вида ядра следует также измерить параметры  $\tau$  и  $k_\tau$ .



### 3. Эксперимент, методы измерений.

#### 3.1. Экспериментальная установка.

Схема экспериментальной установки изображена на рис. 4

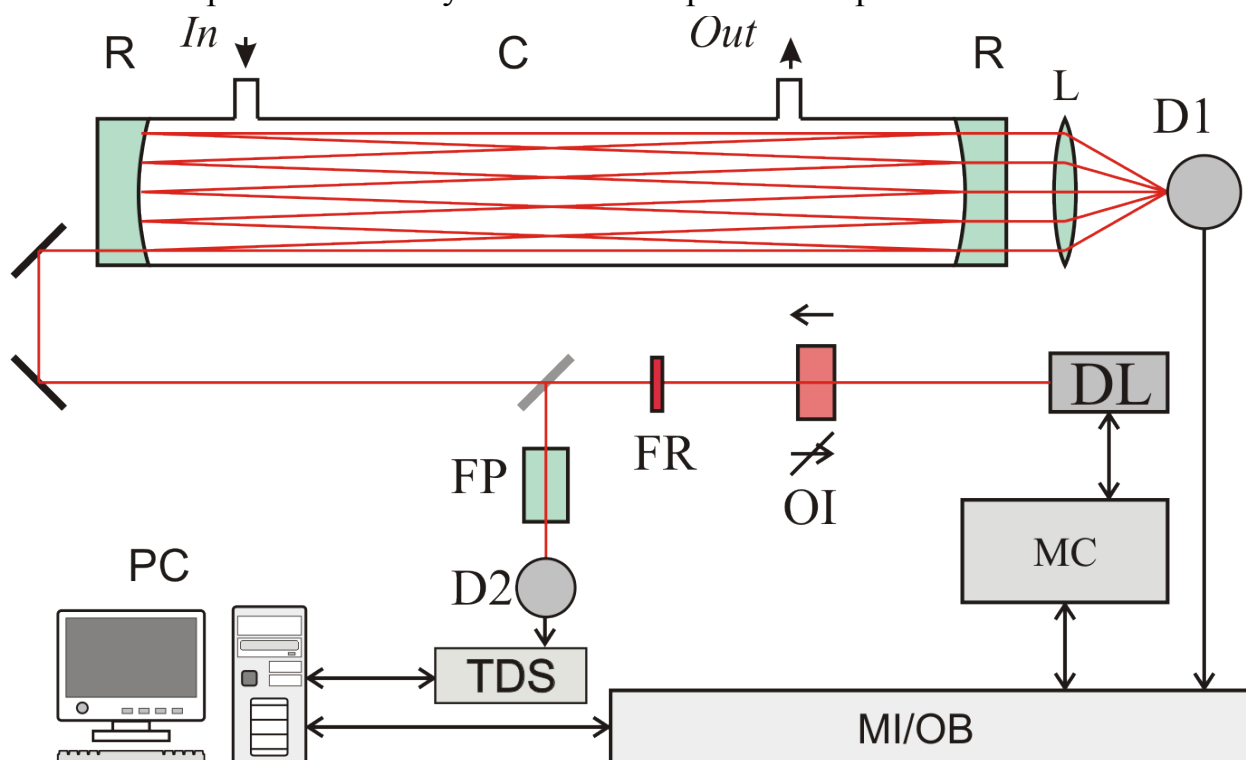


Рис.4. Схема экспериментальной установки. DL – диодный лазер; R и C – зеркала и корпус резонатора; In, Out – впуск и откачка газа; D1, D2 – приемники излучения; MI/OB – плата NI PCI-6120; FP – интерферометр Фабри-Перо; OI – оптический изолятор; MC – блок контроля питания лазера и системы термостабилизации, FR – фильтр с пропусканием в красной области; PC – компьютер; TDS – осциллограф.

Источником излучения с длинами волн вблизи  $\sim 635$  нм служит полупроводниковый лазер (InGaAlP, Sanyo) типа Фабри-Перо. Управление режимами работы лазера осуществлялось при помощи блока питания и контроля лазера MC. Температура корпуса лазера в режимах проводимых измерений составляла 298K и могла при помощи элемента Пельтье, также управляемого блоком MC, поддерживаться с долговременной (несколько часов) стабильностью 0.0003K. Исследуемый образец помещался во внешний по отношению к лазеру оптический резонатор (Los-Gatos Res.) длиной 45 см. Зеркала (Layertec) резонатора диаметром 25 мм и радиусом кривизны 1 м имели,

по данным производителя, коэффициенты отражения  $\sim 0.9999$ . Зеркала монтировались на вакуумно-плотном корпусе с возможностью наполнения и откачки газов. Для подавления оптической обратной связи, вызванной попаданием отражённого/рассеянного от оптических деталей установки излучения обратно в лазер в схеме использовался оптический изолятор (Thorlabs). Излучение на выходе резонатора регистрировалось детектором D1 (фотоумножитель Hamamatsu, R928). Для детальных частотно-временных измерений часть излучения отводилась также в канал с эталоном Фабри-Перо из кварца с базой 10 см.

Электрические сигналы от детектора D1 и блока управления подавались на АЦП многофункциональной платы MI/OB ввода/вывода (NI PCI-6120, National Instruments) с частотой оцифровки до 800кГц, после которой данные передавались на персональный компьютер PC (Intel Core2 E6400) для выполнения последующих процедур их обработки. В канале с интерферометром сигнал от детектора D2 (фотодиод Si, Hamamatsu, S1336 с трансимпедансным усилителем) с частотой более 800кГц регистрировался осциллографом Tektronix TDS2024B с полосой 50МГц. Частота модуляции тока инжекции подбиралась таким образом, чтобы удовлетворить условию  $\theta \sim 45^\circ$  и составила при проводимых измерениях 8888 Гц. В этом случае ошибка измерения сдвига фаз минимальна [18]. В различных измерениях глубина модуляции тока на этой частоте варьировалась в пределах (70-100)%. В эксперименте использовалась внеосевая (off-axis) схема ввода излучения в резонатор, которая позволяет использовать спектр поперечных мод резонатора и существенно подавить шумы, связанные с несогласованностью между модами лазерного излучения и модами внешнего резонатора. Для дополнительного подавления шумов данного типа за счет их усреднения при быстром сканировании лазерной частоты с малой амплитудой модуляции, на основной импульс модуляции тока инжекции накладывалась модуляция меньшей амплитуды (0,3% от амплитуды основной модуляции), но имеющая более высокую частоту  $\sim 130$  кГц. Начальная фаза этой дополнительной модуляции задавалась блоком управления случайным образом для каждого периода основной модуляции. Для подавления паразитного излучения лазера в желто-зеленой области использовался красный светофильтр.

Результаты регистрации спектров обсуждаемым фазовым методом сравнивались с результатами измерений известным методом т.н. «усиления

поглощения с помощью резонатора» CEAS (cavity enhanced absorption spectroscopy), называемым также ICOS. До настоящего времени этот метод признается одним из наиболее чувствительных абсорбционных методов. Техника работы с этим методом неоднократно описана (см., напр., обзоры [19, 20] и дальнейшие ссылки в них). В этом случае для записи спектра излучение лазера модулируется по амплитуде с малой глубиной и в процессе медленного сканирования частоты регистрируется спектр поглощения. Так же, как и в фазовом методе, в методе CEAS ход лучей в резонаторе соответствовал внеосевой юстировке. Возможности описанной выше экспериментальной установки в отношении использованных в ней элементов и оптической схемы полностью обеспечивают реализацию CEAS, каких-либо дополнительных модификаций не требуется.

### 3.2. Параметры и режимы работы лазера.

В данной работе реализовывалась методика в варианте, описанном в разделе 2.3 и следовало обеспечить режимы работы лазера и регистрации исходных данных при глубокой амплитудной модуляции лазерного излучения меандром, отвечающие принятым предпосылкам. При этом, как также указывалось, для регистрации спектра поглощения с глубокой амплитудно-частотной модуляцией тока инжекции меандром требуется провести вспомогательные измерения для определения некоторых характеристики используемого лазера. В частности, необходимо убедиться в постоянстве коэффициента  $\beta$  пропорциональности между интенсивностью лазерного излучения и превышением инжекционного тока над пороговым значением (11) в условиях изменения инжекционного тока. Следует также определить коэффициенты  $k_i$  и  $k_t$ , определяющие перестройку частоты под действием тока и температуры (20), (21).

Чтобы установить частотную зависимость  $\theta(\nu)$  с помощью уравнения (27), следует провести измерения  $F_D(\nu_1)$  в области изменений  $\nu_1$  из области перестройки частоты генерации лазера. Это можно сделать, определяя значения  $X$  и  $Y$  после прохождения сигнала через низкочастотные фильтры  $F_x$  и  $F_y$  при различных величинах  $\beta$  - надпорогового тока инжекции. Как следует из описания модели, для корректной регистрации спектра необходимо, чтобы при

переходе от импульса к импульсу инжекционного тока величина порогового тока  $i_{th}$  и частота на переднем фронте сохранялись. Следует, однако, учесть, что выделение джоулева тепла и нагрев лазера влияют на величину  $i_{th}$ . Система термостабилизации не позволяет устранить эти флуктуации температуры, поскольку она контролирует (с определенной инерционностью) не температуру активной зоны  $p-n$  перехода, но только лишь температуру корпуса лазера. Для минимизации этого нежелательного эффекта использовалась модуляция тока инжекции по схеме, которая иллюстрируется рис. 5. Последовательность импульсов тока (и генерации) разбивается на серии из

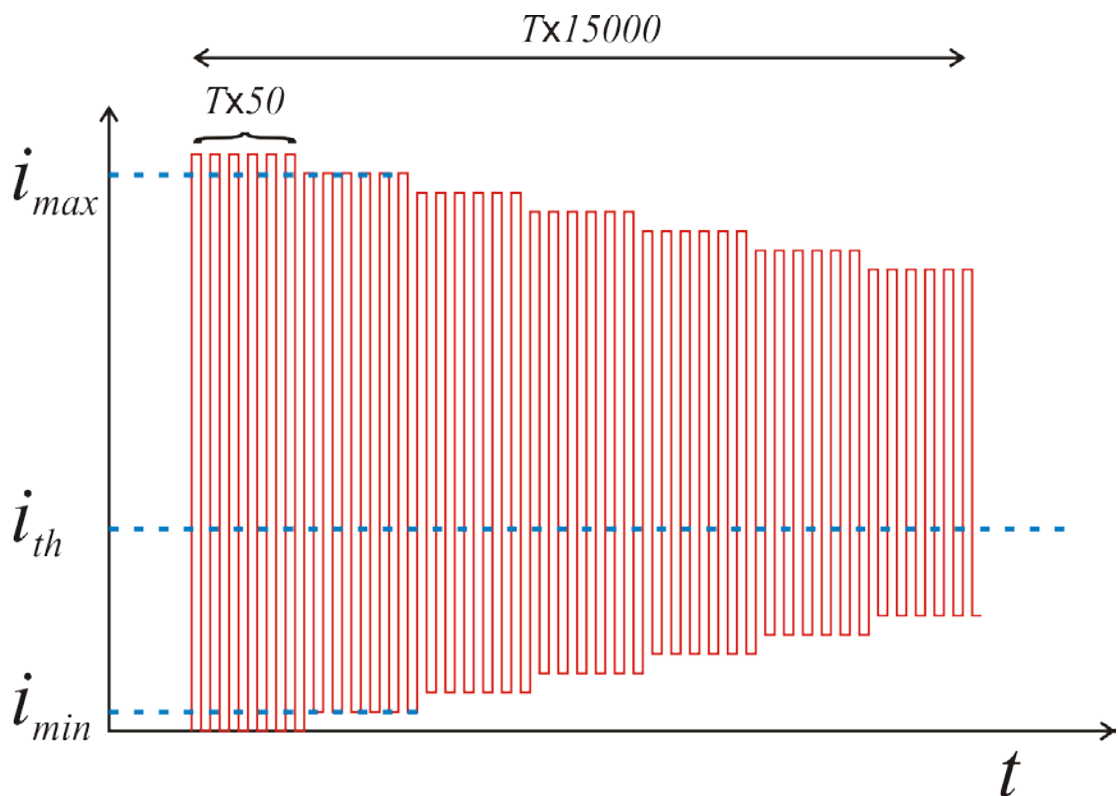


Рис.5. Схема модуляции тока инжекции.

$N_{ser}$  импульсов каждая с равной глубиной модуляции, в пределах серии  $\beta_{N,ser}=const$ . Эти серии образуют последовательность из  $N_{step}$  шагов с различной глубиной модуляции и различными значениями  $\beta_{N,step}$  (первая серия на рис.5 соответствует 100% модуляции). Для каждого последующего шага ток инжекции сохраняется, а амплитуда модуляции тока варьируется так, что изменение  $\Delta i$  импульсных значений тока  $i_{max}$  и  $i_{min}$  выше и ниже порогового значения  $i_{th}$  происходит на одинаковую величину. Это дает возможность

поддерживать баланс тепловыделения. При модуляции тока с рабочим циклом 0.5 суммарное тепловыделение за один период модуляции  $T_{\Omega}=T/2$  равно  $Q_J = (i_{\max} U_{\max} + i_{\min} U_{\min}) T_{\Omega}$ , где  $U_{\max}$  и  $U_{\min}$  – падение напряжения на лазерном элементе при соответствующих токах. Для поддержания баланса тепла уменьшению мощности  $U_{\max} \Delta i_{\max}$  должно соответствовать эквивалентное увеличение  $U_{\min} \Delta i_{\min}$ . Измерение вольт-амперной характеристики лазера показывает, что в рабочих режимах ее нелинейность мала,  $U_{\min} \approx U_{\max}$ , так что  $-\Delta i_{\max}^{\delta+1} = \Delta i_{\min}$ ,  $\delta=10^{-4}$ .

При таком «симметричном» изменении глубины модуляции среднее тепловыделение в течение последующих серий остаётся неизменным, что минимизирует изменения температуры  $p-n$  перехода на переднем фронте тока инжекции и, соответственно, значения  $i_{th}$  в течение всего цикла измерений, хотя надпороговый ток, превышение  $\beta$  и частота  $\nu_1$  варьируются. Параметры модуляции могли меняться в различных измерениях и определялись процессором Р, контролирующим блок управления режимов работы лазера (рис.1). Типичные значения  $N_{ser} \sim 50$ ,  $N_{step} \sim 300$  и при указанной выше частоте модуляции  $\sim 9$ кГц время одного цикла измерений составляет  $\sim 1$ с. При регистрации спектров для повышения отношения сигнал/шум использовалось  $\sim 200$  циклов.

Для определения параметров  $\tau$  и  $k_{\tau}$  регистрировалась зависимость интенсивности света, прошедшего через эталон ФП от времени при перестройке частоты в пределах одного импульса тока инжекции. Типичная картина осцилляций интенсивности приведена на рис.6.

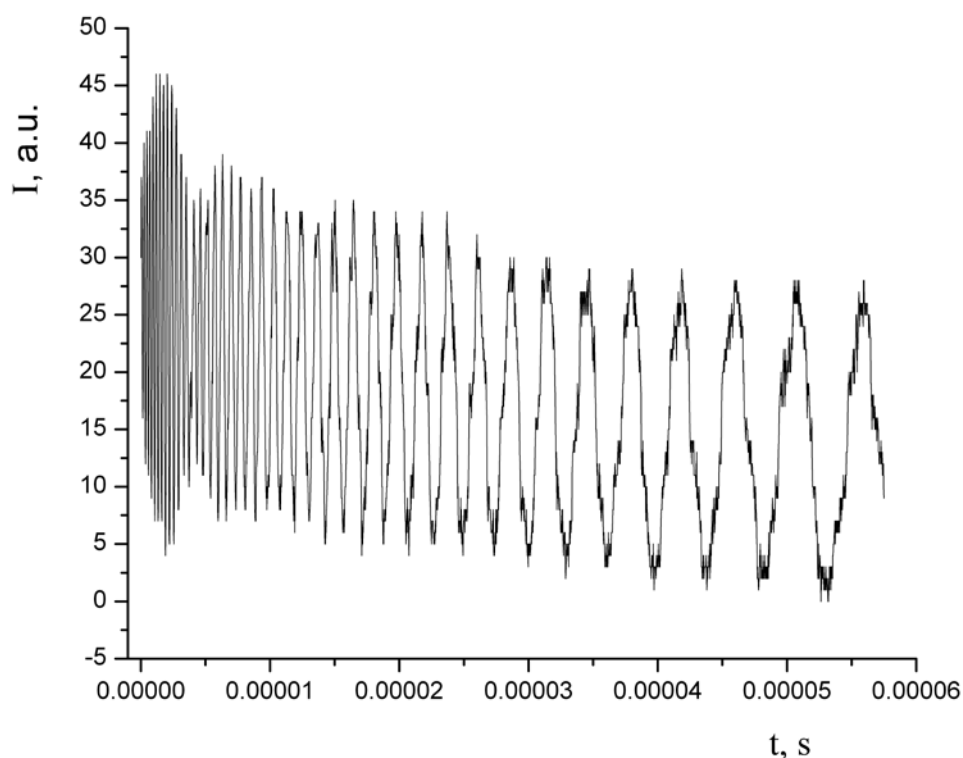


Рис.6. Осцилляции интенсивности при прохождении частотно-перестраиваемого излучения через эталон ФП

Видно, что период осцилляций увеличивается от начала к концу импульса т.е. скорость перестройки частоты по мере протекания тока уменьшается, практически прекращаясь к концу импульса. Такое поведение хорошо согласуется с принятой при записи выражения (13) формой записи изменения частоты при нагреве активной зоны лазера. Относительное изменение амплитуд осцилляций за время протекания тока в данном случае может не приниматься в расчет, поскольку оно связано с интерференционным эффектом, вносимым плоскопараллельной пластинкой, ответвляющей излучение в канал с эталоном (рис.4). Зная оптическую длину интерферометра, можно найти различие частот,

соответствующее одному периоду осцилляций  $\Delta\nu = \frac{1}{2 \cdot Ln} \text{ см}^{-1}$ , где  $Ln$  –

оптическая длина эталона. Пример такой частотно-временной характеристики изображён на точками на рисунке 7. Поскольку частотная перестройка в течение прямоугольного токового импульса обусловлена исключительно процессом

нагрева рабочей области лазера током, описать эту характеристику можно при помощи только лишь слагаемого  $k_r \cdot \left(1 - e^{-\frac{t}{\tau}}\right)$  из выражения (13). Затем, применяя к экспериментальным данным экспоненциальную регрессию, можно определить необходимые температурные параметры лазера. Результат применения приведён на рисунке 7 (сплошная линия). Соответствующие этой регрессии параметры составляют:  $\tau = 17 \pm 2 \mu\text{s}$  и  $k_r = 2.53 \pm 0.07 \text{ cm}^{-1}$ .

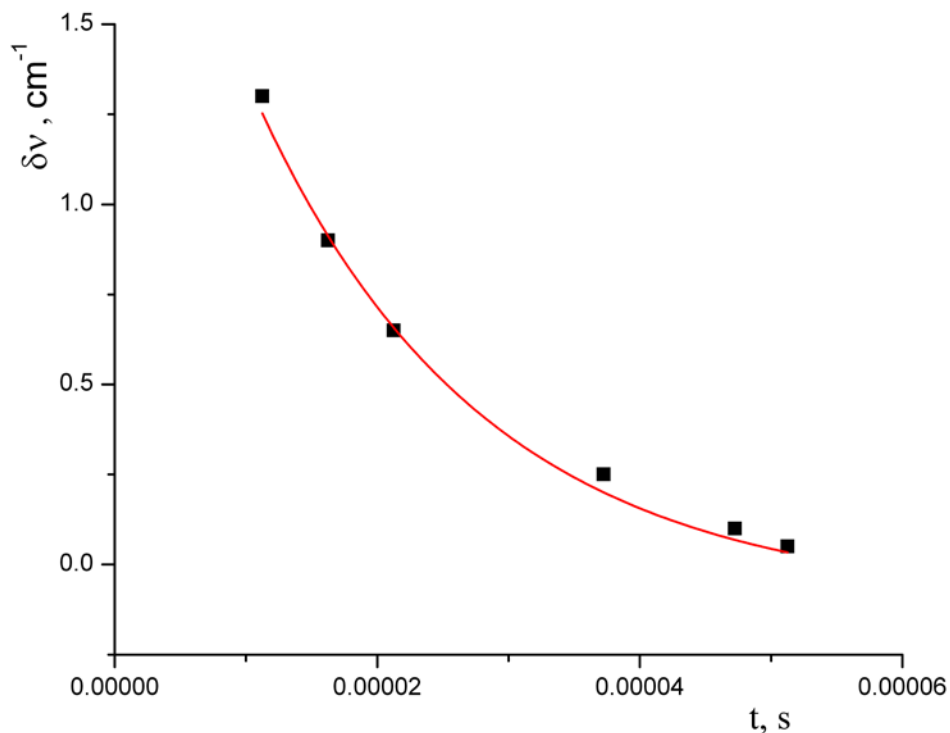


Рис.7. Изменение частоты излучения в процессе накачки.

Измерения  $k_i$  проводились, в соответствии с соотношениями (11) и (20), путем сопоставления превышения тока над порогом генерации  $\beta$  (данные, передаваемые в процессор от блока управления МС и детектора излучения в измерительном канале) и частоты генерации  $\nu_1$  на переднем фронте импульса (данные от детектора в канале интерферометра) и дали значение  $k_i = 0.1828 \pm 0.0008 \text{ cm}^{-1}/\text{mA}$ .

## 4. Процедура измерений и обработки данных при регистрации поглощения.

### 4.1. Схема демодуляции.

Демодуляция проводилась согласно общей схеме, изображённой на рисунке 1. Информация о параметрах модуляции тока от блока контроля работой лазера МС и рабочий сигнал с приёмника D1 (рисунок 4) поступают на плату NI PCI-6120, где происходит их оцифровка и передача на персональный компьютер. Дальнейшая обработка сигнала ведётся средствами языка визуального программирования Labview. Вначале в оцифрованном сигнале выделяется основная гармоника и генерируются сигналы  $2\sin(\Omega t)$  и  $2\cos(\Omega t)$ , где  $\Omega = \Omega_c$  - частота основной гармоники оцифрованного сигнала, а коэффициент 2 дается в тех же единицах, что и амплитуда рабочего сигнала. Длительность генерируемых компьютером сигналов равна длительности оцифрованного сигнала, в нашем случае она была равна пятидесяти периодам основной гармоники. Далее для получения величины  $X$ , оцифрованный сигнал умножался на сгенерированный сигнал  $2\sin(\Omega t)$ , после чего из данного произведения выделялась постоянная составляющая при помощи программного фильтра низких частот, также реализованного в среде визуального программирования Labview. Аналогичная процедура проводилась и для получения величины  $Y$ , за исключением того, что оцифрованный сигнал умножался не на  $2\sin(\Omega t)$ , а на  $2\cos(\Omega t)$ . Каждый раз при изменении величины тока инъекции лазера производилась подобная процедура обработки сигнала с приёмника D1 (в режиме реального времени *on-line*), в результате чего формировались массивы величин  $X$  и  $Y$ , необходимые для решения интегрального уравнения (27).

Для получения данных, необходимых для расчёта параметров ядра  $f_c$  уравнения (27), сигнал с приёмника D2 (рис.4) поступал на цифровой осциллограф TDS 2024B фирмы Tektronix, после чего оцифрованный сигнал подавался на персональный компьютер, где производилась его дальнейшая обработка. Предварительная обработка данного сигнала, также производилась в режиме реального времени и заключалась в относительном определении местоположения пиков сигнала с интерферометра. Дальнейшая процедура расчёта связана с решением интегрального уравнения.



## 4.2. Решение задачи о восстановлении спектра фаз модулированного излучения.

Массивы  $X$  и  $Y$ , записанные в ходе эксперимента в режиме реального времени, обрабатываются на следующем отдельном этапе обработки. Исходя из сформулированной задачи (27), минимизируемый функционал в нашей задаче выглядит следующим образом:

$$M^\alpha(f_1(v), F_D(v)) = \int_{-\infty}^{\infty} |Af_1 - F_D|^2 dv + \alpha \cdot \Psi(f_1), \quad (28)$$

где  $Af_1 = \int_{-\infty}^{\infty} f_c(v - v_1) \cdot f_1(v) dv$ ,  $\alpha$  – параметр регуляризации, а стабилизирующий функционал  $\Psi(f_1)$  определяется выражением:

$$\Psi(f_1) = \int_{-\infty}^{\infty} M(\omega) \cdot |\tilde{f}_1(\omega)| d\omega, \quad (29)$$

$\tilde{f}_1(\omega)$  – Фурье-образ функции  $f_1(v)$ ,  $M(\omega) = \omega^2$ . Выбор параметра регуляризации  $\alpha$ , используемого в данном методе, проводился по методу обобщённой невязки [21]. Для решения уравнения типа свёртки (19) оптимальным с точки зрения простоты решения и машинного времени подходит метод регуляризации, основанный на преобразовании Фурье. Проведение прямого и обратного преобразования Фурье оцифрованных данных проводилось при помощи алгоритма дискретного быстрого преобразования Фурье (БПФ), поставляемого в стандартном пакете инструментов для обработки цифровых сигналов Labview.

Учитывалось, что, поскольку ни ядро  $f_c$ , ни функция  $f_1$  не являются, вообще говоря, периодическими, а число измеряемых значений в каждом из массивов конечно, возможно наличие т.н. эффекта Гиббса [22], искажающего результат решения. Он состоит в появлении артефактов в сигнале, подвергнутому прямому и обратному БПФ, в виде осцилляций на границах области перестройки частоты. Для снижения влияния данного эффекта, нами применялись различные «оконные» функции. Результаты модельных расчетов и обработки экспериментальных данных показали, что наилучшее приближение с точки зрения соответствия сигналов в центральной части спектра даёт косинусная оконная функция из стандартного набора программного пакета Labview 2009. Для массива из  $n$  элементов данная функция задается в виде:

$$y_l = \begin{cases} x_l \cdot \left(1 - \cos\left(\frac{2 \cdot \pi \cdot l}{2 \cdot m}\right)\right), & \text{при } 0 \leq l < m \\ x_l \cdot \left(1 - \cos\left(\frac{2 \cdot \pi \cdot (n-l-1)}{2 \cdot m}\right)\right), & \text{при } n-m \leq l < n, \\ x_l, & \text{при } m \leq l < n-m-1 \end{cases} \quad (30)$$

где  $x_l$  – элемент массива с индексом  $l$ ,  $m = \left\lfloor \frac{n \cdot r}{2} \right\rfloor$ ,  $r$  – часть от общей длины окна, в которой производится косинусное усечение сигнала.

Все расчёты проводились также в среде визуального программирования Labview. Процессор компьютера PC (рис.4) с частотой 2.4GHz позволяет провести описанные расчеты за время (1-2)с, т.е. быстрее, чем время создания массивов при измерениях (от нескольких секунд до 2 минут). Можно поэтому считать, что обработка данных и расчет частотного и фазового спектров происходят в режиме реального времени записи данных эксперимента.

## 5. Регистрация спектров поглощения. Результаты и обсуждение.

Определяемый спектр фазовых сдвигов отражает частотную зависимость потерь резонатора и может быть связан с рядом факторов, главные из которых – потери при отражении от зеркал, рассеяние Рэлея и поглощение среды, что выражается эффективным коэффициентом отражения  $R_{\text{eff}}$ . В диапазоне частотной перестройки лазера резонансное поведение имеет только поглощение.

В данной работе в резонатор вводились пары воды при давлении насыщенного пара для температуры  $T=296\text{K}$  в смеси с гелием при общем давлении, равном атмосферному. Молекулы воды имеют слабые полосы поглощения вблизи рабочей области лазера 635нм [23].

На первом этапе измеряется коэффициент отражения зеркал резонатора (среднее значение для двух зеркал). Для резонатора, заполненного буферным газом – гелием - в соответствии с соотношениями (2) и (7) при сдвиге фазы на величину  $\theta_0(\nu)$  коэффициент отражения  $R_{\text{eff}}$  в формуле

$$R_{\text{eff}} = 1 - \frac{2 \cdot \pi \cdot f_M d}{c} \cdot \frac{1}{\text{tg}(\theta_0(\nu))}, \quad (31)$$

$f_M = \Omega/2\pi$  - частота модуляции. В области перестройки частоты лазера измеренный сдвиг фазы постоянен и равен  $\theta_0(\nu) = 44^\circ \pm 1^\circ$ , а коэффициент отражения  $R_{\text{eff}} = 0.999921 \pm 0.000003$ . Это значение хорошо соответствует заявленным изготовителем характеристикам зеркал (см. раздел 3.1), что говорит о малости вклада рэлеевского рассеяния гелием в пределах указанной точности на данном этапе измерений. Действительно, есть указания [24], что сечение рассеяния Рэлея для гелия менее такового для азота ( $\sigma_{R,N_2,635\text{нм}} = 3 \cdot 10^{-27} \text{см}^2$ ) более чем на порядок величины. Поэтому вклад этого рассеяния при атмосферном давлении содержится примерно в девятом знаке после запятой в абсолютном значении потерь излучения в резонаторе. Это может сказываться на абсолютном значении коэффициента поглощения, если его значения менее  $10^{-9} \text{см}^{-1}$ , но не на виде спектра поглощения, поскольку рассеяние, как и отражение, имеет нерезонансный характер.

При наличии в резонаторе поглощающих частиц коэффициент поглощения

$$k(\nu) = \frac{2 \cdot \pi \cdot f_M \cdot d}{c} \cdot \left( \frac{1}{\text{tg} \theta(\nu)} - \frac{1}{\text{tg} \theta_0(\nu)} \right). \quad (32)$$

На рис.8 показан спектр сдвига фазы, а на рис.9 – спектр поглощения молекул воды.

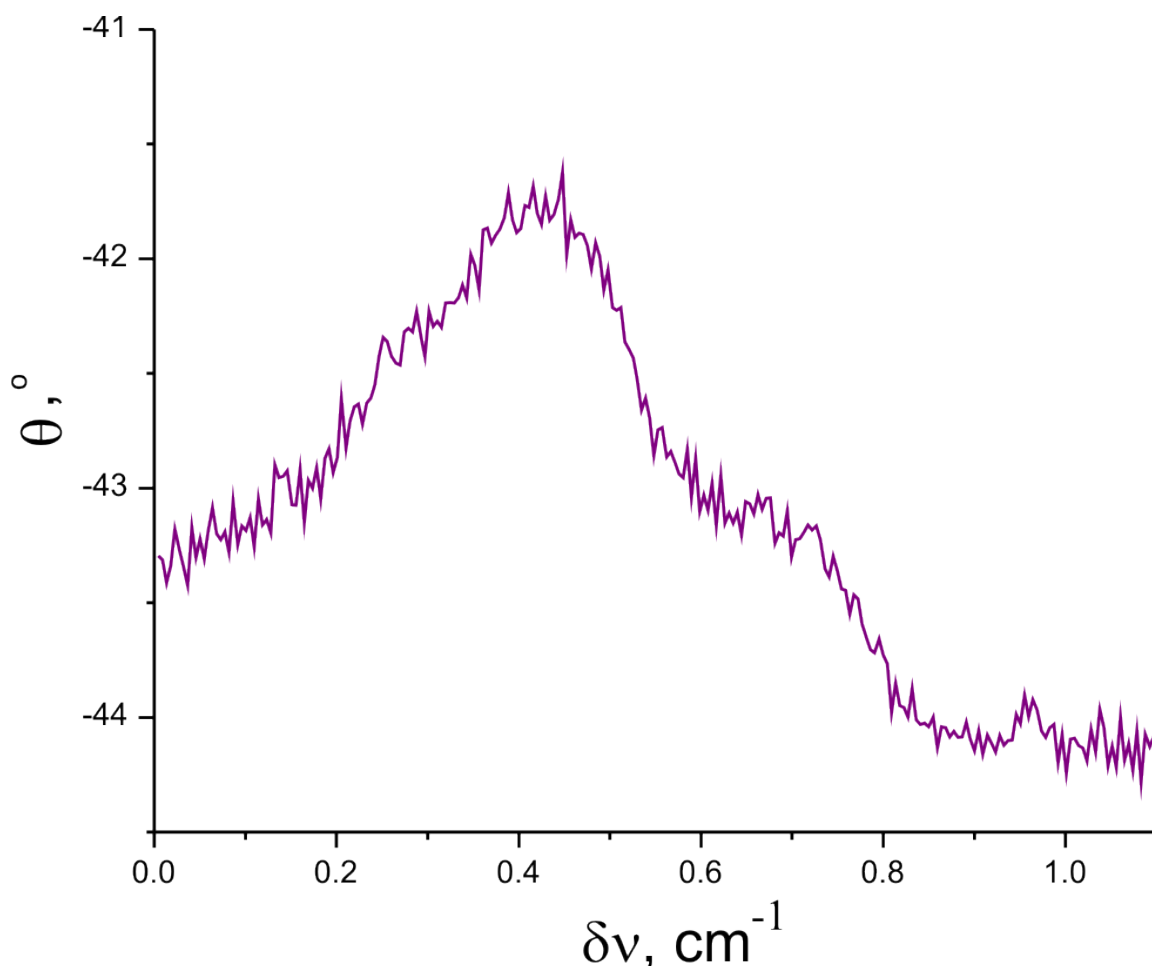


Рис.8. Изменение сдвига фаз при перестройке частоты генерации лазера

В тех же условиях проводилась регистрация спектра методом off-axis ICOS (CEAS). Результаты измерений этим методом также приведены на рис.8. вместе с величиной  $\delta k(\nu)$  невязки спектров, полученных разными методами. Спектральное разрешение методов в обоих случаях было не хуже  $0.0045 \text{ cm}^{-1}$  и определялось шагом изменения тока инжекции лазера. Значение невязки двух методов не превышает  $(5-6) \cdot 10^{-9} \text{ cm}^{-1}$ . Для корректности сравнения статистическая выборка, по которой проводилось усреднение, в обоих случаях составляла 200 последовательных циклов сканирования частоты.

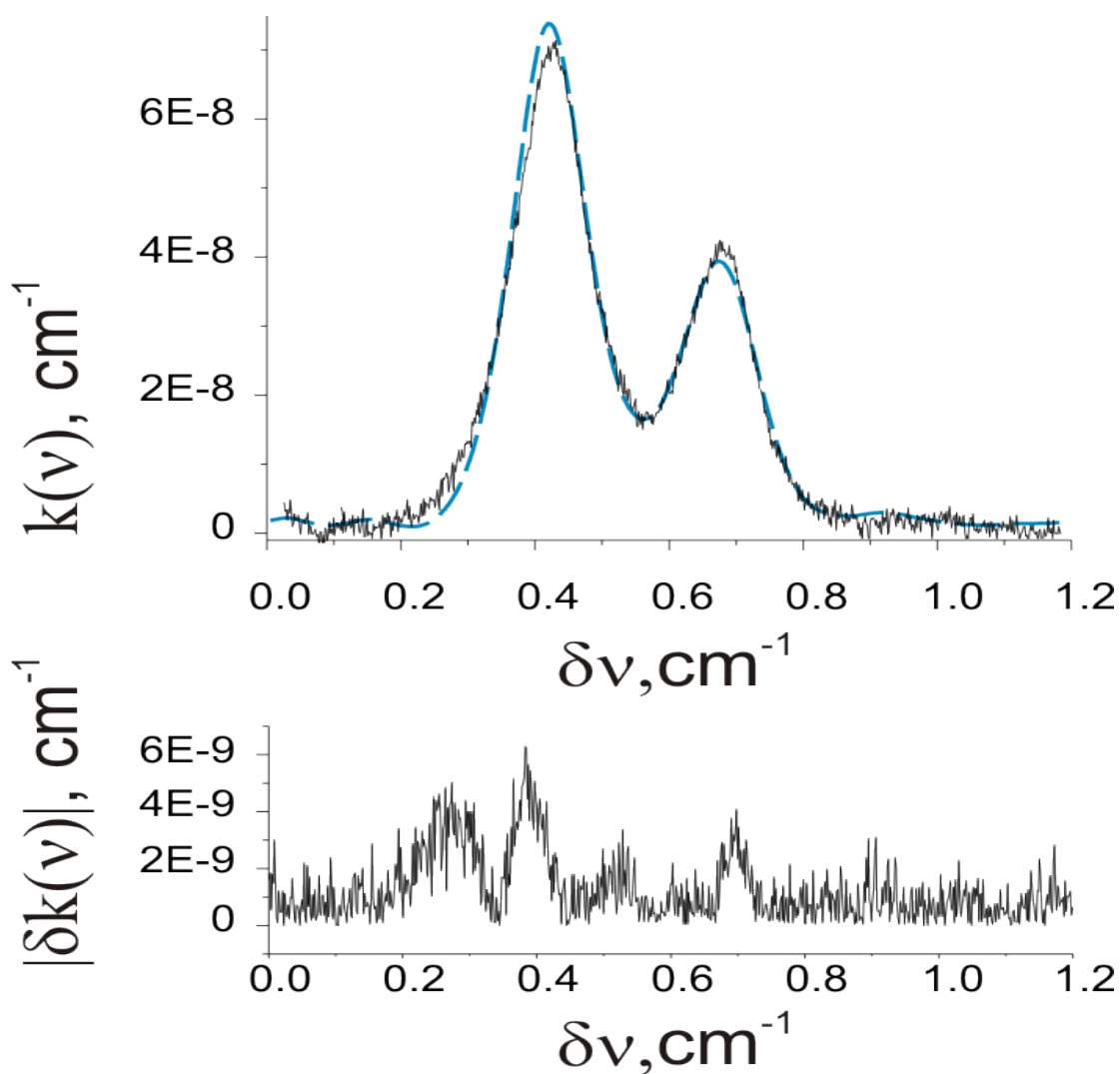


Рис.9. Результаты записи спектра поглощения паров воды методом ICOS (сплошная линия) и методом CAPS, предлагаемым в данной работе (штриховая линия). На нижнем графике изображён модуль невязки между двумя спектрами, изображёнными на верхнем графике.

Аппаратные погрешности измерений обоими методами можно оценить по кривым дисперсии Алана [23], приведенным на рис. 10. Видно, что при времени усреднения 2 секунды, точность измерения поглощения фазовым методом CAPS  $\sim 10^{-9} \text{ см}^{-1}$ , тогда как для метода ICOS это значение составляет около  $2 \cdot 10^{-8} \text{ см}^{-1}$ , поэтому за невязку, указанную на рис.9 ответственны, в первую очередь, погрешности ICOS. Видно также, что при больших (1-2) минуты временах усреднения выигрыш CAPS по точности еще более заметен. Погрешность (а, как следствие и чувствительность обнаружения поглощения) предложенного метода при больших временах усреднения, как видно на рис.10, даже при первом опыте

его применения, составляет  $\sim 7 \cdot 10^{-11} \text{ см}^{-1}$ . Это примерно в (50-70) раз выше, чем для ICOS при одних и тех же технических средствах.

Анализ источников погрешностей метода ICOS показывает, что основной из них связан с корректностью учета влияния базовой линии, это традиционная проблема для всех модификаций спектральных методов, основанных на амплитудных измерениях с применением инжекционных диодных лазеров.

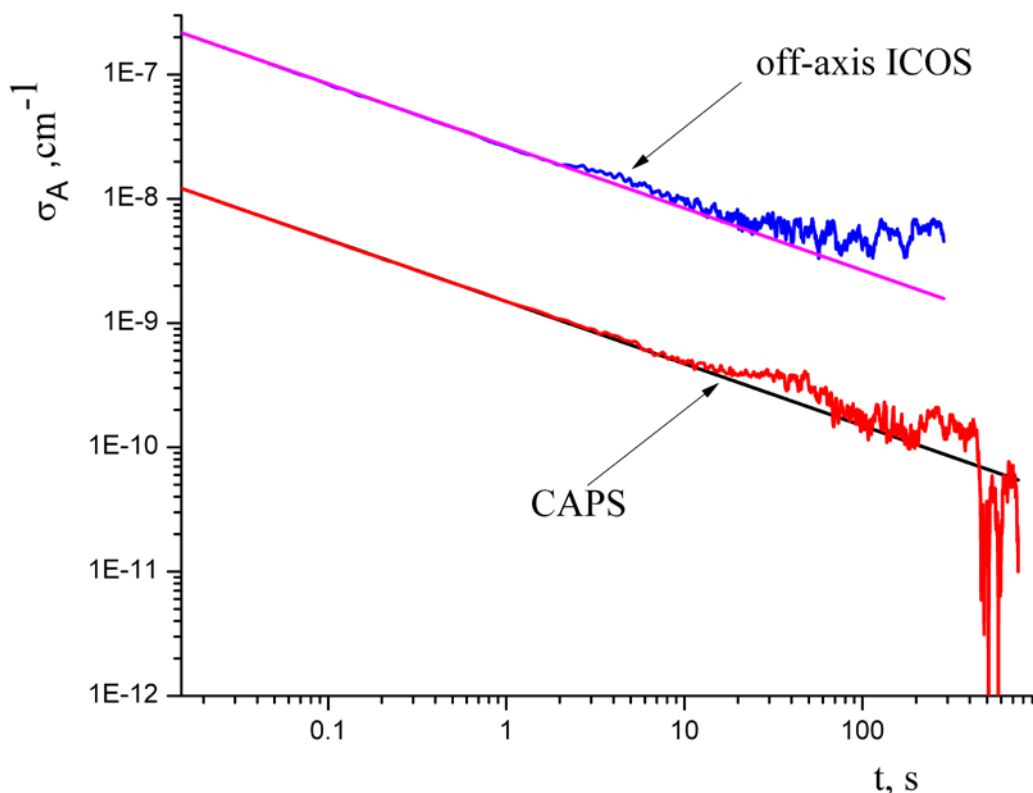


Рис.10 Квадратный корень из дисперсии Аллана для измерения коэффициента поглощения методами CAPS и ICOS.

При фазовых измерениях влияние базовой линии полностью исключается. Что касается перспектив дальнейшего уменьшения погрешностей обсуждаемого метода CAPS с фазовым сдвигом, их можно связать со следующими основными факторами. Во-первых, точность восстановления спектра поглощения определяется точностью измерения фазового сдвига модулированного излучения. Вторым фактором, ограничивающим точность восстановления спектра поглощения, является точность определения параметров ядра

интегрального уравнения (27) –  $\tau$  и  $k_\tau$ . И, наконец, третьим фактором является приближённость модели, описывающей температурную зависимость частоты генерации лазера в соотношении (21).

По результатам проведенных измерений можно сделать вывод, что при малых временах усреднения данных точность предложенного варианта CAPS определяется случайными погрешностями измерения сдвига фаз. В дальнейшем, если возникнет практическая необходимость, возможно улучшение этой точности. В частности, уменьшить данную погрешность можно за счёт применения дополнительных электронных аналоговых узкополосных фильтров в измерительном тракте спектрометра. В данной работе они не использовались, вся обработка сигналов велась на программном уровне. Уменьшить влияние случайной составляющей на результат измерений можно также при применении вместо осциллографа TDS2024В более быстродействующей высокоразрядной аппаратуры (плат оцифровки с частотой более 800МГц т.е. более высокой по сравнению с NI PCI-6120) в канале с эталоном Фабри-Перо, что позволит повысить точность измеряемых констант  $\tau$  и  $k_\tau$ . Систематическую составляющую ошибки можно уменьшить уточнением температурной составляющей в модели частотной перестройки лазера (выражение (21)).

Представляется перспективным также развитие этого метода при использовании процедур типа регрессии, когда производится корреляция зарегистрированного спектра со спектром, полученным при больших коэффициентах поглощения в дополнительном канале оптической схемы. В традиционной схеме записи спектров, например, с использованием методов частотной модуляции с малой глубиной такой прием дает выигрыш по чувствительности на порядок величины и более [14]. Для этого потребуются дополнительные исследования.

Сопоставим, наконец, предложенный метод с иными возможными методами регистрации спектров высокого разрешения по фазовой задержке в высокодобротном резонаторе. Упомянем два из них.

В первом случае имеется в виду возможность использования CAPS при малом значении глубины амплитудной модуляции  $\alpha$  (3) и, как следствие, при малой глубине частотной модуляции (10). При этом, как отмечалось, чувствительность будет ограничена малостью переменной составляющей детектируемого сигнала (5). Ее улучшение возможно лишь за счет статистики

измерений. Это увеличивает время измерений и, соответственно, приводит к ограничениям, накладываемым низкочастотными шумами, что ясно иллюстрируется кривыми дисперсии Аллана. При попытках провести сопоставительные измерения таким способом нам не удалось зарегистрировать спектры разумного качества в условиях, соответствующих рисункам 8-10. С этим, по-видимому, связано то, что в известной нам литературе также отсутствуют описания результатов, достигаемых с помощью этого очевидного приема.

Во втором случае речь идет об использовании CAPS в версии, когда модуляция интенсивности падающего на резонатор излучения производится с помощью внешнего по отношению к лазеру модулятора. Такие измерения с использованием лазера на красителях описаны в работе [3], при этом частота модуляции много больше частоты повторения циклов частотного сканирования излучения. В принципе, такие измерения могут проводиться и с использованием DL. В техническом отношении такой метод требует усложнения оптической схемы и использования дополнительной аппаратуры управления по сравнению с рассматриваемым в данной работе. Более принципиально, однако, что при этом также возникает ограничение на скорость записи спектра и проявление в силу этого влияния низкочастотных шумов. Оно связано с тем, что частота циклов сканирования инжекционного тока ограничена тепловыми эффектами, в то время как используемое в данной работе «симметричное» сканирование тока инжекции (рис.5) снимает данное ограничение.

Поясним это следующей оценкой. При использовании внешнего модулятора спектр поглощения регистрируется по точкам, число которых  $N$  определяет разрешение, в каждой точке лазер работает на фиксированной частоте. Для набора достаточной статистики каждая точка требует  $n$  отсчетов, каждый из которых занимает время  $\tau_s$ . Переход от точки к точке осуществляется скачкообразным изменением тока инжекции и занимает время  $\Delta t_h$ , необходимое для установления стационарного теплового режима работы лазера. Полное время  $T_{rec}$  записи спектра, таким образом, составляет  $T_{rec} = n \cdot N \cdot \tau_s + N \cdot \Delta t_h = N(n \cdot \tau_s + \Delta t_h)$ . Используем характерные величины для условий настоящей работы. Если не производить «симметричного» изменения над- и под- порогового тока (рис.5), то при разрешении  $\sim 0.005 \text{ см}^{-1}$  и соответствующем этому изменению надпорогового тока, датчик температуры на корпусе лазера показывает, что время  $\Delta t_h \sim (1-2) \text{ с}$  в рабочем режиме лазера и изменяется



пропорционально мощности тока инъекции. При «симметричном» изменении тока  $\Delta t_n \sim 0$ . Для используемого в наших условиях числа циклов  $n=200$  время  $n \cdot \tau_{ss}$  также  $\sim 2$  с т.е. использование внешнего модулятора увеличило бы время записи спектра в 1.5-2 раза. Если, однако, учесть, что при «симметричном» изменении тока используется меандр с рабочим циклом 0.5, т.е. со вдвое меньшей, чем при постоянном токе, мощностью, реальное увеличение времени записи спектра при той же статистике измерений возрастет в 3-4 раза. Как следует из графиков Аллана (рис.10), это приведет к ухудшению предельной чувствительности регистрации в 3-5 раз за счет накопления низкочастотных шумов.

Суммируя сказанное выше в отношении сопоставления различных известных методов записи спектров с предельно малым поглощением, можно прийти к выводу, что преимущества, достигаемые предложенным в настоящей работе методом, в своей основе достигаются за счет быстроты регистрации и использования максимально возможной амплитуды модуляции без потери спектрального разрешения (для группы фазовых методов), а также за счет освобождения от влияния базовой линии (в амплитудных методах).

## 6. Заключение

Предложенный вариант измерения поглощения света методом фазового сдвига модулирующего сигнала высокочастотным резонатором с малыми потерями отличается от предшествующих аналогов тем, что позволяет регистрировать спектр поглощения с высоким разрешением при глубокой амплитудной модуляции тока инъекции частотно-перестраиваемого диодного лазера. Этим достигается ряд преимуществ, в частности:

- повышается чувствительность к регистрации малых поглощений;
- регистрируется спектр поглощения с высоким разрешением, что принципиально важно для селекции слабо поглощающих частиц;
- снимаются традиционные проблемы учета базовой линии и остаточной частотной модуляции в области частотной перестройки лазера;
- по сравнению с известными высокочувствительными лазерными абсорбционными методами более высоких требований к используемой в эксперименте аппаратуре не предъявляется, преимущества достигаются за счет

математического обеспечения процесса обработки данных и использования дополнительных параметров частотной перестройки излучения;

- существенно сокращается время регистрации спектра по сравнению с возможной его записью при использовании внешнего модулятора;

- при использовании разработанных процедур обработки данных регистрация спектров ведется в режиме реального времени.

Рассмотренный общий подход к использованию метода CAPS с глубокой модуляцией в данной работе конкретизирован и проиллюстрирован на примере модуляции инжекционного тока и интенсивности генерации диодного лазера прямоугольным меандром. Вообще говоря, возможны и иные формы модуляции, оптимизация которых может привести к дальнейшему повышению точности и чувствительности диодной спектроскопии. Целесообразность этого в значительной мере связана с особенностями механизмов частотной перестройки инжекционных лазеров различного типа, когда соотношения вкладов электронной плотности и температуры различны и этот вопрос требует дополнительной проработки.

Работа проводилась при поддержке грантов РФФИ 10-02-01111-а, 10-08-00687-а, 11-08-01127-а; Программ поддержки научной молодежи РАН и Учебно-Научного Комплекса ФИАН; Программы «Фундаментальная оптическая спектроскопия и ее приложения» Отделения Физических Наук РАН и ФЦП «Научные и научно-педагогические кадры инновационной России» Г.К.№ 02.740.11.0447.

## Литература

1. F. von Duschinsky, Der zeitliche intensitätsverlauf von intermittierend angeregter resonanzstrahlung, Z. Phys., 81, 7-22 (1933).

2. J.M. Herbelin, J.A. McKay, M.A. Kwok, R.H. Ueunten, D.S. Urevig, D.J. Spencer, D.J. Benard, Sensitive measurement of photon lifetime and true reflectances in an optical cavity by a phase-shift method, Appl. Opt. 19, 144-147 (1980).

3. R. Engeln, G. von Helden, G. Berden, G. Meijer, Phase shift cavity ring down absorption spectroscopy, Chem.Phys. Lett. 262, 105-109 (1996).

4. E.K. Lewis, D.Reynolds, X. Li, G. de Villele, C. Leduc, D. L. Cedeno, C. Manzanares, Phase shift cavity ring-down measurement of C-H ( $\Delta v=6$ ) vibrational overtone absorptions, *Chem.Phys.Lett.* 334, 357-364 (2001).
5. E. Hamers, D. Schram, R. Engeln, Fourier transform phase shift cavity ring down spectroscopy, *Chem. Phys. Lett.* 365, 237–243 (2002).
6. C.J. Moehnke, E.K. Lewis, A. Lopez-Calvo, C.E. Manzanares, Phase shift cavity ring down at low temperatures: Vibration–rotation overtone absorption of H–D ( $\Delta v = 4$ ) at 297 and 105 K, *Chemical Physics Letters* 418, 576–580 (2006).
7. P.L.Kebabian, S.C Hendon, A.Freedman, Detection of nitrogen dioxide by cavity attenuated phase shift spectroscopy, *Anal.Chem.* 77(2), 724-728 (2005)
8. P.L. Kebabian, E.C. Wood, S.C. Herndon, and A.Freedman, A Practical Alternative to Chemiluminescence-Based Detection of Nitrogen Dioxide: Cavity Attenuated Phase Shift Spectroscopy *Environ. Sci. Technol.*, 42 (16), 6040-6045 (2008).
9. V.L. Kasyutich, P.A. Martin, R.J. Holdsworth, Phase-shift off-axis cavity-enhanced absorption detector of nitrogen dioxide, *Meas. Sci. Technol.* 17, 923–931 (2006).
10. I.V.Nikolaev, V.N.Ochkin, S.N.Tskhai, Reference and phase shift technique in Multipass laser schemes for trace gas particles detection, *Proc.17 Int. Conf. on Advanced Laser Technologies*, p.63. Antalya, Turkey, (2009).
11. D.A.Brazhnikov, I.V.Nikolaev, V.N.Ochkin, M.V.Spiridonov, S.N.Tskhai, Measurements of the Atmospheric Concentrations of Nitrogen Dioxide Using the Radiation Absorption in a Spectral Range of 415 nm, *Laser Physics* v.19, No6, pp 1323-1329 (2009).
12. Silver J.A. Frequency-modulation spectroscopy for trace species detection: theory and comparison among experimental methods. *Appl. Optics*, v.31, No6, 707-717 (1992).
13. T. Asakawa, M. Kanno, K. Tonokura, Diode laser detection of greenhouse gases in near-infrared region by wavelength modulation spectroscopy: pressure dependence of the detection sensitivity. *Sensors*, v.10, 4686-4699 (2010).
14. С.Н.Андреев, И.В.Николаев, В.Н.Очкин, С.Ю.Савинов, М.В.Спиридонов, С.Н.Цхай, Частотная модуляция при нестационарном разогреве  $p$ - $n$  перехода в диодной лазерной спектроскопии высокой чувствительности. *Квантовая электроника* т. 37, №4, 399-404 (2007).

15. В.Н.Очкин, Спектроскопия низкотемпературной плазмы. М.: Физматлит. 592с., (2010)
16. G.Berden, R.Peeters, G.Meijer, Cavity ring-down spectroscopy: Experimental schemes and applications. *Reviews in Physical Chemistry*. v.409, p.281, (2000)
17. Карлов Н.В. Лекции по квантовой электронике. М., Наука, (1988).
18. I. V. Nikolaev, V. N. Ochkin, M. V. Spiridonov, and S. N. Tskhai, Methods of Reference Signal and Phase Shifts in the Multipass Laser Schemes for the Detection of Trace Gas Impurities, *Laser Phys.* Vol. 21, No. 11 (2011).
19. D.S. Baer, J.B. Paul, M. Gupta, A. O'Keefe, Sensitive absorption measurements in the near infrared region using off-axis integrated-cavity output spectroscopy, *Appl. Phys. B* 75, 261–265 (2002).
20. G. Berden, R. Engeln, *Cavity Ring-Down Spectroscopy: Techniques and Applications*, (Wiley, 2009).
21. А.Ф. Верлань, В.С. Сизиков. Интегральные уравнения: методы, алгоритмы, программы. Киев «Наукова думка» (1986).
22. Д. Я. Герман, Конспект лекций по курсу «Цифровая обработка сигналов» /Д.Я.Герман. - М. : МГТУ им. Н.Э. Баумана, 174 с. (2009); Г.М. Фихтенгольц, Курс дифференциального и интегрального исчисления / Г.М. Фихтенгольц.: Наука, 700 с. (1969); Б. Голд, Цифровая обработка сигналов /Голд Б., Рейдер Ч. - Пер. с англ. под ред. А.М.Трахтмана -М.:Советское радио. - 368с. (1973).
23. L.S.Rothman e.a. *J. Quant. Spectr. Rad. Transfer*, v.82, p.5, (2003); L.S.Rothman L.S. *J. Quant. Spectr. Rad. Transfer*, v.96, p.139, (2005); Molexplorer<sup>TM</sup>. [http://www.pas-tech.de/pdf/MolExplorer\\_Manual.pdf](http://www.pas-tech.de/pdf/MolExplorer_Manual.pdf) , 35p., (2010).
24. P.L. Kebabian, W.A. Robinson, A.Freedman, Optical extinction monitor using cw cavity enhanced detection, *Rev. Sci. Instrum.*, 78, 063102, (2007).
25. P.Werle, R Mucke, F.Slemr. The limits of signal averaging in atmospheric trace-gas monitoring by tunable diode-laser absorption spectroscopy (TDLAS). *Appl.Phys.B*57, 131-139 (1993).