

室温脉冲 QCL 光谱特性实验研究*

汤媛媛 刘文清 何亚柏 阮俊 许振宇 姚路 阚瑞峰†

(中国科学院安徽光学精密机械研究所环境光学与技术重点实验室, 合肥 230031)

(2012 年 5 月 1 日收到; 2012 年 5 月 31 日收到修改稿)

本文报道了对长脉冲工作模式下中心波长为 1274 cm^{-1} 量子级联激光器光谱特性的研究结果. 通过采用高带宽的中红外 HgCdTe 探测器及高速数据采集装置得以记录时域下的光谱, 结合高分辨率的标准具, 可以获得有关光谱在频域下的信息. 通过对测量的光谱数据的分析, 获得了光谱的外形、调谐特性、分辨率随时间变化的特性与规律, 以及电压、温度对光谱的影响方式, 得到了提高光谱分辨率、优化光谱质量的方法, 从而可以提高下一步光谱定量分析的准确性.

关键词: 量子级联激光器, 红外激光吸收光谱, 频率负啁啾

PACS: 42.62.Fi, 42.55.Px, 33.20.Ea

1 引言

红外激光吸收光谱技术是一种高灵敏的气体检测技术, 它是利用分子对红外辐射的“指纹”吸收特性结合红外激光器的单模、窄线宽和快速调谐特性实现气体分子的定性和定量检测. 目前对红外激光吸收光谱技术的研究主要集中在两个区域: $1\text{--}2.2\ \mu\text{m}$ 的近红外区和 $3\text{--}25\ \mu\text{m}$ 的中红外区. 基于近红外分布反馈式 (DFB) 激光器的激光吸收光谱系统中用到的多是商用通讯波段的激光器, 已经成功实现了在泛频振动带探测包含 CH 和 OH 键的小分子^[1]. 近红外光源在气体探测上的不足之处是痕量气体在这个波段的吸收较弱, 而且能够探测的气体种类有限. 而中红外波段由于覆盖了大量分子的基频吸收带, 气体的吸收强度要强 2—3 个量级以上, 更加适合于痕量气体的高灵敏检测.

量子级联激光器 (QCL) 是近年来发展起来的理想的中红外光源之一, 它具有宽的调谐范围, 高的输出功率, 在连续或脉冲方式下工作时能够在室温下工作无需低温制冷, 并且能进行在线实时检测.

由于 QCL 在中红外区有大范围的输出波长, 覆盖了大量气体分子振转能级的基频吸收, 因此可以实现对多种痕量气体的高灵敏检测^[2].

当前室温脉冲 QCL 常用的一种工作方式是在长脉冲模式下工作, 即激光器的脉冲宽度设置在几百个纳秒到几个微秒之间, 脉冲电流为几安培, 叠加在一个缓慢增加到设定值的直流电压后驱动激光器, 高于激光阈值电流的长脉冲在持续期间产生一个电流脉冲, 引起激光器局部自加热, 这种热量在瞬间不会被温度控制器补偿, 因此激光调谐频率作为时间的函数, 几乎是线性地往更低波数 (更低频率) 变化^[3–5], 即频率负啁啾. 这种方法可以达到 1 cm^{-1} 以上的调谐范围和几百纳秒量级的调谐时间; 通过设置激光器的底座温度, QCL 产生以一个频率为中心的输出, 因此可以在一个激光脉冲上扫描气体分子的吸收谱线, 获得气体分子完整的吸收光谱. 需要说明的一点是, 在 QCL 的长脉冲模式下, 啁啾实质就是频率的调谐, 但与通常红外激光器要抑制频率的啁啾以获得窄的激光线宽不同, 这种工作模式正是利用激光器输出频率的啁啾来调谐获得一定的光谱范围. 本文即以脉冲 QCL 的

* 国家重点基础研究发展计划前期先导项目 (批准号: 2010CB234607), 中国科学院战略性先导科技专项 (批准号: XDA05040102) 和自然科学基金 (批准号: 61108034) 资助的课题.

† E-mail: kanruifeng@aiofm.ac.cn

频率负啁啾特性为前提,研究了长脉冲工作模式下 QCL 的光谱特性,并给出了相关研究结果.

2 实验装置

实验装置主要由中红外量子级联激光器、光学调整单元、中红外探测器、激光器控制单元和高速数据采集单元组成,如图 1. 测量装置上用到的中红外激光光源是由 Cascade Technologies 提供的在 1274 cm^{-1} ($7.85\text{ }\mu\text{m}$) 附近热电冷却的分布反馈式量子级联激光器. 该频率附近主要存在 H_2O , CH_4 和 N_2O 的特征吸收谱线. 通过设置激光器的工作温度与电压,可以测量得到不同气体的吸收光谱,从而进一步反演其浓度. 以对空气的测量为例,根据高分辨透过率光谱数据库 (HITRAN) 提供的谱线参数可以得到气体分子真实的吸收情况和谱线位置信息,结合标准气体的标定,可以识别不同气体分子的谱线. 图 2 给出了空气中 H_2O , CH_4

和 N_2O 实际吸收情况的模拟结果,模拟为单位长度的吸收系数,浓度分别为 H_2O 1%, CH_4 5 ppm, N_2O 1 ppm. 对比测量光谱和谱线的分布特征,可以确定测量到的气体种类.

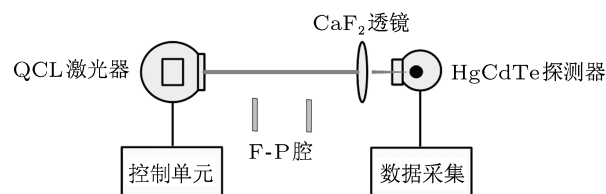


图 1 测量装置

装置中采用 Vigo PVI-2TE-8 光电探测器将探测到的光信号转换为电信号. 测量时将其放置在激光器出光孔前约 80 cm 的位置,由一个 CaF_2 透镜将红外光聚集到探测器的靶面上. 光电转换后的脉冲光谱信号由数据采集卡采集,采样速率为 1 GS/s. 对采集到的光谱信号分析和处理.

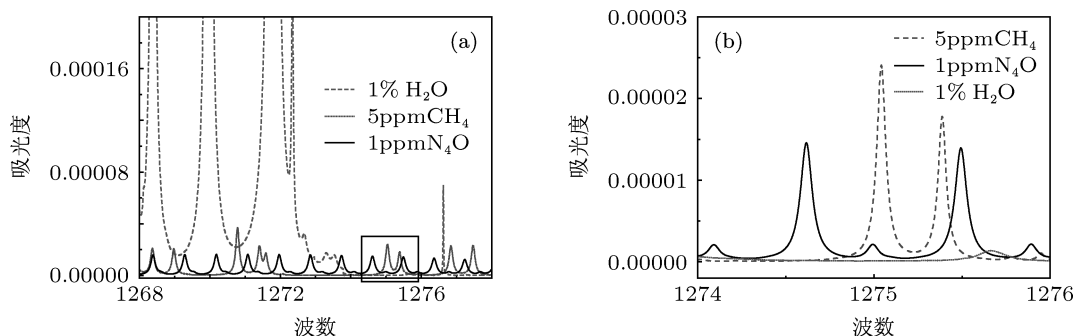


图 2 (a) 1274 cm^{-1} 附近空气中 H_2O , CH_4 和 N_2O 的模拟吸收; (b) 激光器调谐范围内谱线的吸收情况 (数据来源于 HITRAN04 数据库)

对于实验中用到的中心波长为 1274 cm^{-1} 的脉冲量子级联激光器,其脉冲持续时间在 100—800 ns 可调;脉冲重复频率小于 100 kHz;温度操作范围为 10—35 $^{\circ}\text{C}$,占空比不超过 5%,叠加在脉冲上的直流电压最大不超过 15 V. 在 20 $^{\circ}\text{C}$ 5%的占空比时其峰值功率可高达 95 mW. 在激光器的安全操作范围内,对 QCL 的光谱特性进行了研究.

3 实验结果

3.1 光谱外形

激光脉冲的光谱外形决定了脉冲 QCL 在光谱

测量中的实用性^[6],因此了解光谱脉冲的外形及其随时间的演化行为很重要. 采用图 3(a) 所示的电流脉冲作为激发脉冲,研究了激发的光脉冲的外形. 此时激光器工作的电压为 13 V,温度为 10 $^{\circ}\text{C}$,脉冲持续时间为 800 ns,重复频率 5 kHz.

图 3(b) 为激发的光强信号随时间的变化. QCL 光脉冲的成功记录源于探测器的快速时间响应以及数字采集卡的高速数字化过程. 光脉冲上升沿与下降沿前后的基线为没有激光时的探测器电压响应. 从图中可以看出,电流脉冲的初始部分含有瞬间开关转换引起的瞬时振荡,一旦发射脉冲的初始部分通过后,时域上的光谱随时间的持续功率逐渐减小,在末端达到最小值,并产生尖锐的下降沿. 当

采用 800 ns 的激发脉冲时, QCL 的光强随时间呈现近似梯形的变化. 脉冲 QCL 在时域的光谱外形通常是相似的, 大多数脉冲 QC 激光器都呈现出典型的梯形轮廓^[3,7]. 这是由于激光器的热耗散增加了激光器的热沉温度, 激光阈值也会随着热沉温度的增加而增加, 即激光负啁啾的同时, 所需的阈值电流也越来越高. 由于激光电流是恒定的, 因此相应产生的出光能量越来越低. 正是输出脉冲的这一部分被用作脉冲 QCL 光谱定量分析的研究基础. 为了说明这一点, 图 3(b) 同时给出了激光器在相同的工作参数下测量空气得到的光谱, 是通过在探测器

与激光器之间放置光程为 70 m 的多次反射池得到的. 空气的光谱中包含有 N_2O 和 CH_4 的特征吸收光谱, 吸收谱线正位于脉冲输出能量下降的地方. 这种光谱形状也意味着信噪比在脉冲持续的过程中会逐渐降低.

事实上, 脉冲 QCL 的光谱外形在时域和频域有着几乎是线性的相关性, 这表明可以通过光电探测器直接测量随时间变化的光谱, 并且用这个结果去推断光谱的频域特性^[5]. 因而我们得以在高重复频率下采集脉冲 QCL 的光谱, 分析气体分子的吸收光谱并最终反演出浓度.

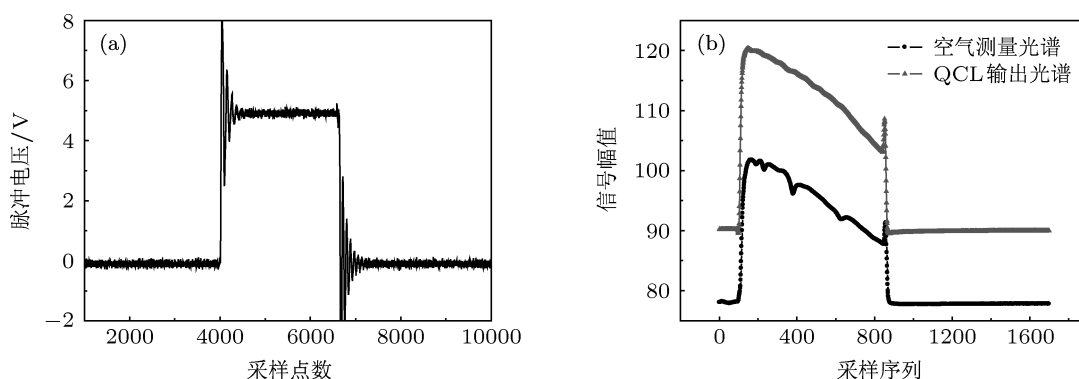


图3 (a) 激发脉冲形状; (b) 光脉冲形状

3.2 光谱的调谐特性

在光谱应用中, 我们不仅关心脉冲激发出的光谱外形, 还关心在一个固定的脉宽范围内, 是否有足够的调谐范围和调谐率, 从而扫描得到气体分子完整的吸收谱线; 光电探测器探测到的光谱信号其时间与频率的关系. 为此我们研究了脉冲 QCL 的调谐特性.

光谱调谐特性的研究也采用与上节相同的装置, 只是在激光器和聚焦透镜之间之前插入了一个自制的 F-P 标准具: 以两块镀有高反射率膜的 ZnSe 透镜作为标准具的平行平板, 其在红外波段的镜面反射率 $> 75\%$. 测量中标准具镜片间隔为 $L = 14.552 \text{ cm}$, 以空气为介质, 垂直入射, 因此得到 FSR 为

$$\begin{aligned} \text{FSR} &= \frac{1}{2nL} = \frac{1}{2 \times 1 \times 14.552 \text{ cm}} \\ &= 0.03436 \text{ cm}^{-1}. \end{aligned}$$

对通过标准具的一系列光谱进行了实验研究.

在所有情况下, 记录的是 1000 个脉冲的平均.

3.2.1 调谐范围

为了检验长脉冲工作模式下调谐范围的大小, 首先研究了不同脉冲宽度下光谱的调谐范围. 在激光器的安全操作范围内, 选取 500, 600, 700 和 800 ns 脉冲宽度进行研究.

不同宽度脉冲通过标准具后的干涉信号如图 4 所示. 此时激光器温度控制在 10°C , 电压固定在 13.75 V, 重复频率为 5 kHz, 只改变脉冲宽度而其他参数不变. 干涉条纹之间的间隔即 FSR 为 0.03436 cm^{-1} , 根据脉冲上干涉条纹的多少, 可以得到光谱覆盖的频域范围. 对于 500 ns 的脉冲, 其光谱可以调谐 1 cm^{-1} ; 800 ns 脉冲甚至可以达到 1.4 cm^{-1} . 图 5 给出了调谐范围随脉冲宽度的变化曲线. 实验表明采用长脉冲扫描的方法可以达到至少 1 cm^{-1} 以上的调谐范围和几百纳秒量级的调谐时间, 因此可以在一个激光脉冲上扫描气体分子完整的吸收谱线, 极大地缩短测量时间. 脉冲越宽,

光谱扫描范围也越大, 光谱调谐范围随脉冲宽度的改变几乎呈线性变化, 直线拟合的系数为 0.993.

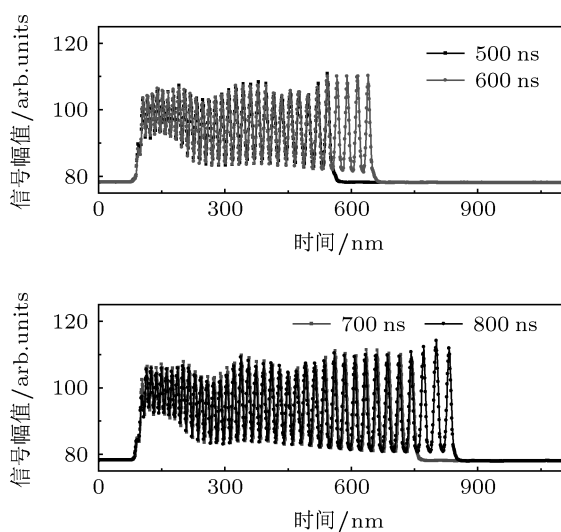


图4 不同宽度脉冲通过标准具后的干涉信号

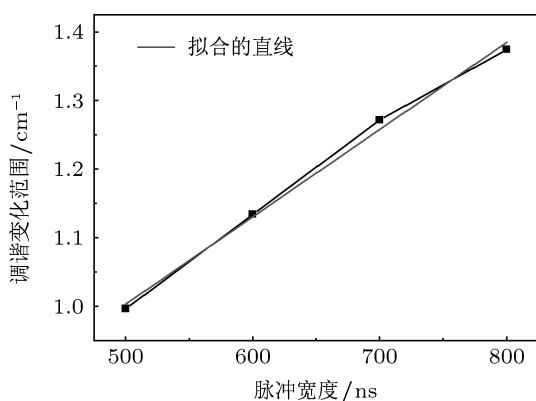


图5 调谐范围随脉冲宽度的变化

同时我们记录了不同脉冲宽度下测量空气得到的光谱. 此时激光器工作参数不变, 仅改变了脉冲宽度. 图 6 中给出的是 70 m 多次反射池光程下对空气的测量结果, 同样采用了 500, 600, 700 和 800 ns 脉冲. 可以更直观地看出: 脉冲越宽, 光谱扫描范围越大, 相应光谱也能覆盖更多的吸收谱线; 并且, 相等脉宽部分产生的光谱重合得很好, 信号仅在脉冲末端发生变化, 随脉冲持续时间的改变不断变宽, 这说明一个脉冲内激光器的调谐行为是一致的, 并不随外加脉冲宽度的改变而发生变化, 这一点也将在下一节得到进一步证明. 从光谱测量的角度来说, 调谐范围越宽, 调谐范围内能获得的谱线特征越多, 对光谱分析越有

利. 考虑激光器的散热和稳定工作, 在测量单种气体分子的单根吸收谱线时, 可以选择稍短的脉宽, 如 500 ns.

根据光谱的调谐范围和脉冲宽度, 可以计算出光谱的平均调谐率. 若调谐为线性, 以 500 ns 脉冲为例, 其调谐范围为 1 cm^{-1} , 由此得调谐率

$$\Delta\nu = 1 \text{ cm}^{-1}/500 \text{ ns} = 0.002 \text{ cm}^{-1}/\text{ns},$$

与量子级联激光器说明书中给出的技术指标基本一致. 实际应该为 $-0.002 \text{ cm}^{-1}/\text{ns}$, 代表输出频率的负啁啾, 即输出频率随着脉冲的持续而减小.

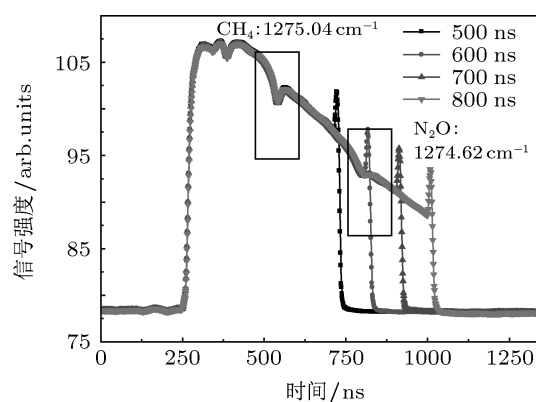


图6 不同脉冲宽度下对空气的测量结果

3.2.2 调谐率

以上研究的是整个脉冲的调谐情况. 为了更好地了解单脉冲持续时间内的调谐情况, 我们进一步分析了脉冲内频率调谐随时间的变化过程. 采用图 4 所示的不同宽度脉冲通过标准具后产生的干涉信号, 根据条纹间距和峰值点位置可以得到与脉冲持续时间相对的频率调谐; 输出频率的变化相对时间求导数, 即可得到脉冲的调谐范围随时间改变的速率, 即调谐率. 如图 7 所示, 分别给出了 800 ns 脉宽的干涉信号、调谐范围和调谐率随时间的变化关系.

从图中可见, 单个的脉冲内调谐范围随时间的改变几乎是线性的. 但分析调谐率的变化可以更清楚地发现, 激光器的频率调谐并不是严格的线性, 起初是高的调谐率, 然后随着脉冲的持续而减慢. 从标准具条纹的疏密变化也可以看出调谐率的改变, 每个标准具条纹的间距是 0.03436 cm^{-1} , 随着调谐速率变慢, 干涉条纹也越来越能清楚地分辨.

不同脉冲宽度下的光谱脉冲信号都有相似的变化,其调谐范围、调谐率的改变如图 8 所示.可以看出,在其他工作参数不变,仅改变脉冲宽度的情况下,激光器在相同的脉冲持续时间内调谐范围和调谐率有着一致的变化,这就是能得到上节图 6 测量结果的原因.调谐率在脉冲持续的过程中改变,表明了时域对频域的关系并不是严格线性的.这种输出频率的非线性调谐可能会造成气体吸收光谱浓度反演的误差.同时,从不同脉冲宽度信号调谐率的变化还可以看到,随着时间的持续,调谐率的变化逐渐减慢,到脉冲末端调谐速率最慢.这是因为脉冲持续的过程中激光器的热积累与热耗散逐渐达到了平衡,温度的改变效果开始减缓^[5],从而使得输出频率的调谐速率变慢,最终会达到一个稳定水平.这就意味着随着脉冲宽度的增加,脉冲内时域对频域的线性关系会越来越好,更长的脉冲有利于获得更好的线性调谐

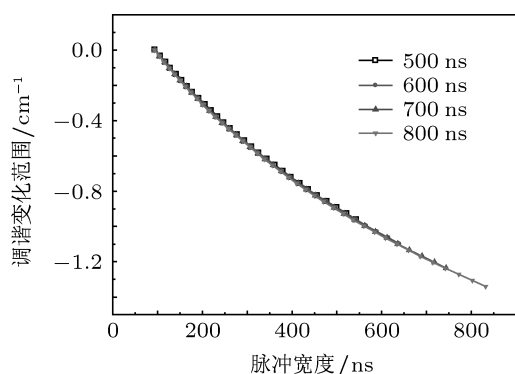


图 8 不同脉宽时调谐范围和调谐率随时间的变化

3.2.3 光谱调谐特性的影响因素

我们的量子级联激光器工作在几百纳秒的脉冲下,其频率调谐是长时间的持续脉冲对激光器自加热的结果.改变底座的温度,激光器有源区的平均温度跟随着底座温度的改变而改变,从而实现温度对波长的调谐.通过改变激光器工作的电压和温度参数,研究了这些因素对调谐特性的影响.

1) 不同电压下的调谐特性

固定激光器工作参数,只改变电压,记录了不同电压下脉冲通过标准具的信号.此时温度控制在 10 °C,重复频率为 5 kHz,脉宽为 800 ns,电压分别为 13.75, 14.2 和 14.7 V.不同电压下的干涉信号如图 9(a) 所示,由条纹峰峰值与采样时间的关系可

特性.

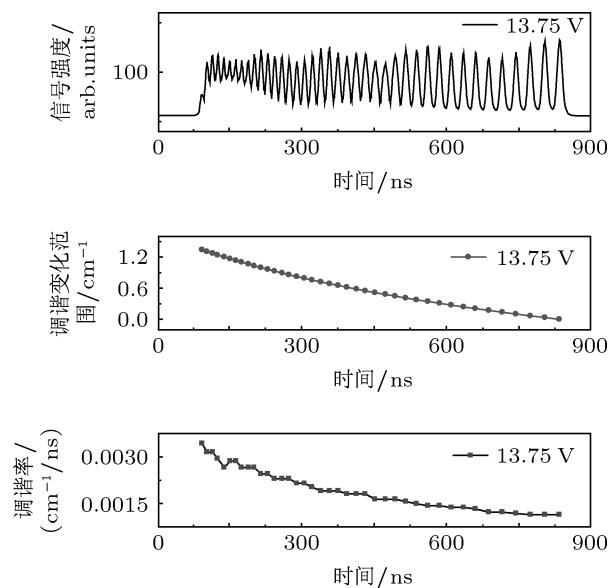
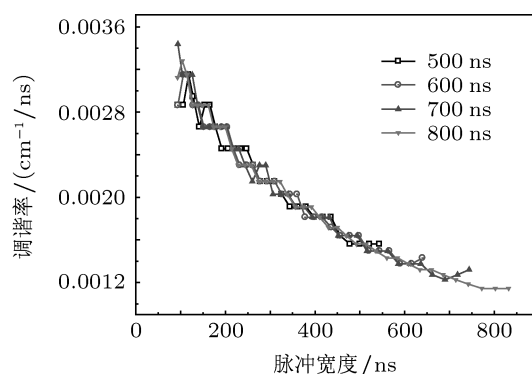


图 7 标准具条纹、调谐范围和调谐率随时间的变化



以得到相对输出频率随时间的变化,结合 HITRAN 给出的测量到的 N₂O 谱线的位置参数,可以得到激光器的绝对频率调谐,如图 9(b) 所示.可以看出,电压幅值越高,激光器调谐的范围越大.根据脉冲内条纹的个数和首尾条纹在时间轴的位置,可以计算出不同电压下的平均调谐速率:

13.75 V 时,

$$\begin{aligned} \text{调谐率} &= \frac{39 \times 0.03436 \text{ cm}^{-1}}{(834 - 94)} = \frac{1.34004 \text{ cm}^{-1}}{740} \\ &\approx 0.00181 \text{ cm}^{-1}/\text{ns}; \end{aligned}$$

14.2 V 时,

$$\text{调谐率} = \frac{42 \times 0.03436 \text{ cm}^{-1}}{(832 - 92)} = \frac{1.44312 \text{ cm}^{-1}}{740}$$

$$\approx 0.00195 \text{ cm}^{-1}/\text{ns};$$

14.7 V 时,

$$\text{调谐率} = \frac{45 \times 0.03436 \text{ cm}^{-1}}{(844 - 100)} = \frac{1.5462 \text{ cm}^{-1}}{744} \\ \approx 0.00208 \text{ cm}^{-1}/\text{ns}.$$

电压幅值越高, 则平均调谐速率越大, 这说明调谐范围随电压的变化是因为更高的工作电流加快了调谐速率的结果. 不同电压下空气的吸收光谱很好地验证了这一点, 如下图 10 所示.

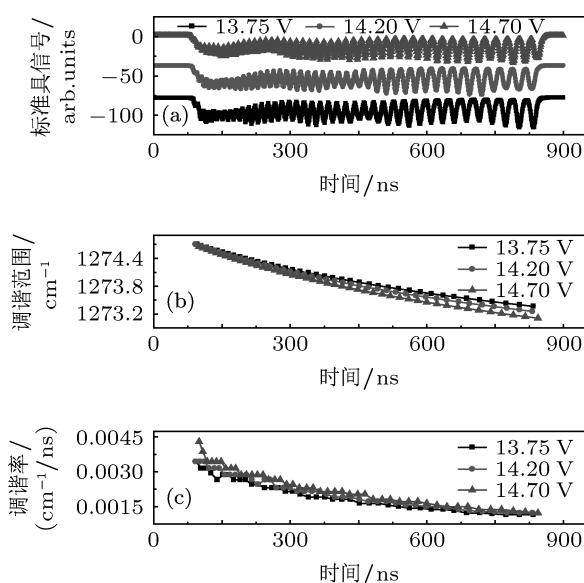


图 9 不同电压下通过标准具后的信号

图 10 为不同电压下空气的吸收信号, 图中箭头指示的是 N_2O 在 1274.62 cm^{-1} 附近的吸收谱线. 可以看到谱线位置随着直流电压的增加而逐渐向左偏移, 这就是由于直流电压的增加使得激光器的工作电流增加, 从而加快了调谐速率, 因此脉冲持续时间上相同时刻激光的输出频率减小得更快, 吸收线的中心位置逐渐向左有一个小的偏移. 该变化更直观地表明电压幅值的变化会改变相同采样点处对应的频率. QCL 的频率调谐是由温度效应导致的, 驱动电压会改变 QC 激光芯片的热耗散, 并因此改变其温度.

不同电压下的信号仍显示出非线性调谐的特性, 如图 9(c) 所示. 调谐率会随着驱动电压改变. 14.7 V 时, 脉冲起始端的调谐率为 $0.0043 \text{ cm}^{-1}/\text{ns}$, 而末端为 $0.0012 \text{ cm}^{-1}/\text{ns}$; 而 13.75 V 时调谐速率略微减慢, 从脉冲起始端的 $0.00344 \text{ cm}^{-1}/\text{ns}$ 变为最后的 $0.00115 \text{ cm}^{-1}/\text{ns}$. 14.7 V 时的调谐范围达

到 1.5 cm^{-1} , 即使在 13.75 V 也有 1.3 cm^{-1} . 信号具有相似的啁啾行为: 起初是高的啁啾率, 然后随着脉冲的持续而减慢. 在完整的信号光谱上, 可以看到标准具条纹有相同的变化趋势: 由密集逐渐变得稀疏, 但不同电压下调谐率大小不同, 这说明长脉冲工作模式下, 调谐率不仅在一个脉冲持续过程中改变, 而且由激光器驱动电流决定.

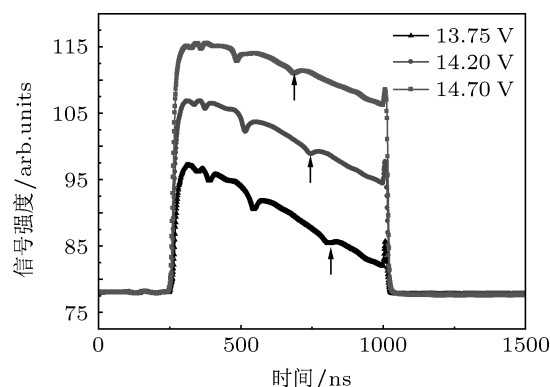


图 10 不同电压下空气的吸收信号

2) 不同温度下的调谐特性

改变底座的温度, 激光器有源区的平均温度跟随着底座温度的改变而改变, 从而实现温度对波长的调谐. 实际操作时, 将底座温度设定在一固定值, 通过脉冲电流实现在一中心波长附近的调谐.

固定激光器工作参数, 只改变底座温度, 分别记录了 11°C , 13°C , 15°C 和 17°C 时光脉冲通过标准具的信号, 如图 11. 此时电压控制在 13.75 V.

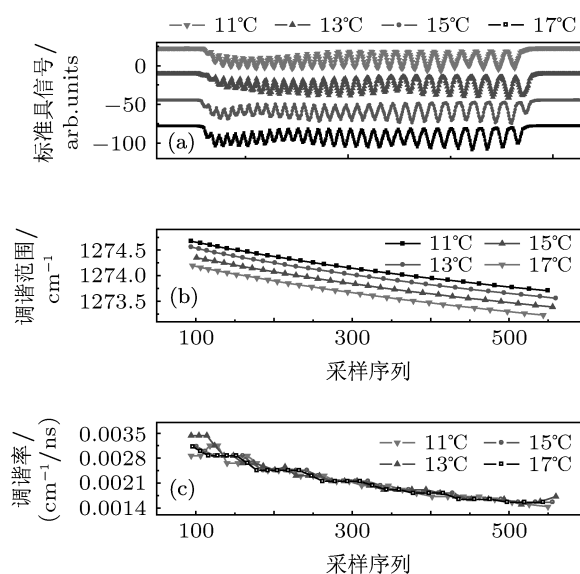


图 11 不同温度下光脉冲通过标准具的信号

可以看出, 固定脉冲宽度和电压而仅改变底座

温度时, 激光器调谐覆盖的光谱范围基本相同; 脉冲持续时间内调谐率变化情况也基本相同, 只在脉冲初始时刻体现出较明显的差异, 这应该是电流脉冲上升沿瞬时振荡的结果; 但不同温度下中心波长位置不同. 图 12 给出了在图 11 相应激光器底座温度下对空气的测量结果, 位于脉冲调谐范围内的 CH_4 和 N_2O 的吸收谱线很好地显示了脉冲工作量子级联激光器的频率“负啁啾”特性, 即随着底座温度的升高, 相同吸收谱线逐渐向左偏移. 脉冲工作 QCL 的波长调谐实质是温度的调谐, 通过激光器有源区的热积累, 使得激光调谐波长作为时间的函数, 几乎是线性的往更低波数(更低频率)变化, 因此底座温度设置越高, 整个频率调谐窗口就会向更低波数的方向偏移, 看上去吸收谱线就随着温度升高向左偏移, 但光谱的调谐范围大小并未发生改变.

在 3.2.1 节中我们分析得到波长调谐范围和脉冲宽度有着几乎线性一致的关系: 在固定的激光器底座温度和电压下, 波长的平均调谐速率, 作为脉冲持续时间的函数, 可以确定为 $-0.002 \text{ cm}^{-1}/\text{ns}(-60 \text{ MHz}/\text{ns})$. 在此我们可以更进一步地分析得到, 这个脉冲导致的输出频率改变, 与底座温度几乎无关, 如图 13 所示. 频率的改变是由于采用电流脉冲在 QCL 内引起局部的自加热导致的. 图 14 给出了输出波长随脉冲持续时间的变化, 分别对应不同的底座温度. 从图中可以得到温度对波长的调谐速率约为 $-0.085 \text{ cm}^{-1}/\text{K}(-2.5 \text{ GHz}/\text{K})$, 这个负啁啾速率与 QC 激光器的底座温度无关.

3.3 光谱的分辨率

当对 QCL 施加几百纳秒的脉冲时, 此时测量得到的光谱其分辨率是由探测信号的带宽-持续时间的乘积决定的 [8]. 在这类技术系统中, 一个信号的带宽-持续时间的乘积不能小于某一特定的最小值, 也就是满足“不确定关系”. Bracewell 详细描述过这个关系, 他证明了, 等效的持续时间 Δt , 和等效的带宽 $\Delta \nu$, 其乘积必须大于或者等于一个由脉冲形状决定的常数 C [8]. 对于矩形的时间窗口, $\Delta t \Delta \nu \geq C = 0.886$; 对于高斯时间窗口, $\Delta t \Delta \nu \geq C = 0.441$. 这是海森堡测不准原理在时间和频率上的表述形式. Kosterev 等人曾采用 5—20 ns 的 QCL 脉冲测量气体分子的吸收光谱,

并获得了 290 MHz 的光谱分辨率. 在他们对光谱仪的描述中, 表明了通过改变脉冲持续时间不能显著提高 290 MHz 的分辨率. 如果缩短脉冲持续时间, 分辨率会有傅里叶变换的限制; 而如果增长脉冲持续时间, 频率啁啾又会过大 [9].

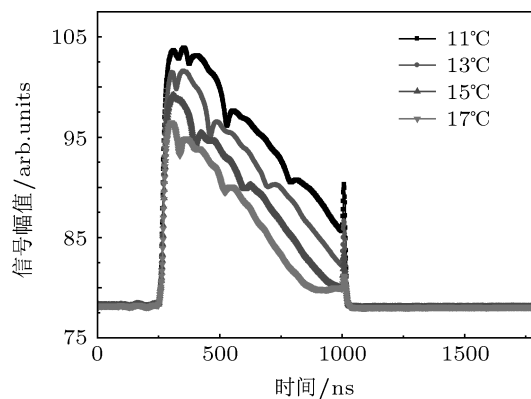


图 12 不同温度下空气的吸收信号

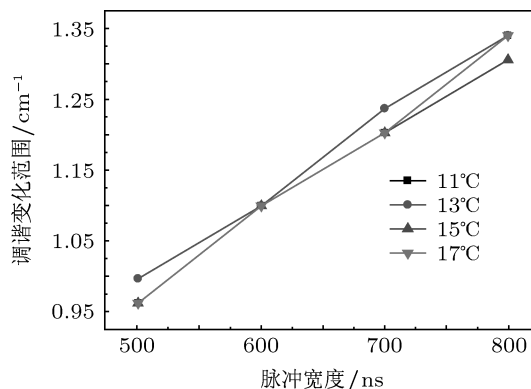


图 13 不同底座温度下调谐范围随脉冲宽度的改变

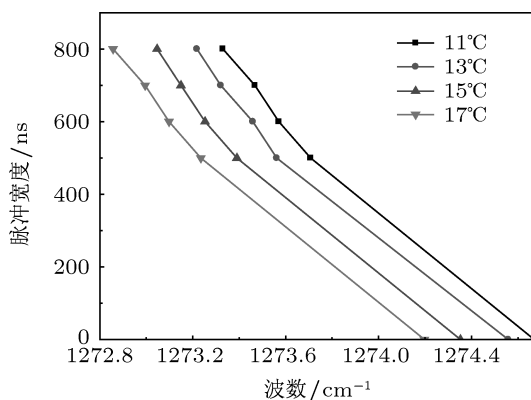


图 14 波长调谐随着底座温度和脉冲宽度的变化

对长脉冲 QCL 光谱探测系统可以做相似的分析 [3]. 假设激光调谐速率为 $d\nu/dt$, 在时间窗口 τ

中, 激光的频率啁啾为 $d\nu/dt \cdot \tau$, 因此, 如果采用更小的时间窗口, 傅里叶极限频率区间 $\Delta\nu$ 将会增加, 然而啁啾极限频率区间会减小. 最佳时间窗口 τ , 因此由 $C/\tau = d\nu/dt \cdot \tau$ 决定. 根据 $\Delta\nu = C/\tau$, 用 $\Delta\nu$ 重写这个等式, 给出 $\Delta\nu = d\nu/dt \cdot C/\Delta\nu$, 由此得到

$$\Delta\nu = \sqrt{C \frac{d\nu}{dt}}. \quad (1)$$

可见长脉冲扫描光谱技术的分辨率极限强烈依赖于调谐速率^[3]. 在满足扫描气体分子吸收谱线所需的范围后, 激光器调谐速率越慢, 光谱的分辨率越高. 我们测得 13.75 V 时, 800 ns 脉冲起始端的调谐率为 $0.00344 \text{ cm}^{-1}/\text{ns}$ (103.2 MHz/ns), 脉冲末端的调谐率为 $0.00115 \text{ cm}^{-1}/\text{ns}$ (34.5 MHz/ns), 在矩形时间窗口下, 即 $C = 0.886$ 时, 对应的脉冲起始端分辨率极限为 0.01 cm^{-1} (302 MHz), 脉冲末端为 0.0059 cm^{-1} (175 MHz). 也就是说, 在一个长脉冲持续过程中调谐速率会改变, 因此脉冲当中光谱的分辨率会发生变化. 波长调谐速率随时间逐渐减慢, 说明脉冲后半部分的光谱分辨率更好.

此外, 在 3.2 节中, 我们得到了固定温度时, 不同电压下的波长调谐率. 由于光谱分辨率与调谐速率有关, 因此低的调谐率意味着更好的光谱分辨率. 在 14.7V 的驱动电流下, $0.00208 \text{ cm}^{-1}/\text{ns}$ 的调谐率可以达到至少 0.0083 cm^{-1} (250 MHz) 的有效分辨率. 如果采用较低的 13.75 V 的电压, 其他条件不变, 波长的调谐速率就会减缓, 产生一个更窄的波长调谐窗口, 但分辨率会提高, 变为 0.0078 cm^{-1} (233 MHz). 值得注意的是, 即使采用更快的调谐, 光谱的分辨率也足够区分扫描范围内的谱线. 低电压时, 光谱分辨率更好.

因此, 要得到高分辨率的光谱, 最好采用 QC 激光器工作阈值以上低的电压来实现; 并且 QCL 脉冲的后半部分光谱分辨率更好, 应尽量选择脉冲后

半部分的光谱. 对于以长脉冲模式工作的 QCL 光谱测量系统, 其分辨率依赖于调谐速率, 实质是由于探测系统的时间分辨率的限制. 这是 QCL 长脉冲光谱技术的特点, 光谱的分辨率并不是受有效激光线宽的限制而是由探测系统的时间分辨率决定^[5,7]. 设计和制造出具有低的热耗散结构的激光器, 减小波数的负啁啾速率, 或者采用快速响应的光谱探测系统, 均有利于光谱分辨率的提高.

4 结论

以上对中心波长为 1274 cm^{-1} 的室温脉冲 QCL 的光谱特性研究表明, 通过对 QCL 施加几百纳秒的长脉冲, 可以获得足够的波长调谐范围以调谐得到气体分子完整的吸收光谱; 测量得到的规则的光谱外形, 有利于吸收光谱的定量分析. 对于完整的脉冲, 在固定的激光器工作参数下, 调谐范围随脉冲宽度的改变近似为线性; 而在脉冲持续时间内, 调谐速率随时间逐渐减小. 这是因为 QCL 的波长调谐实际是温度调谐, 脉冲持续的过程中激光器的热积累与热耗散逐渐达到了平衡, 从而使得波长的调谐速率变慢, 最终达到一个稳定水平. 其他参数不变时, 电压越高, 调谐速率越大, 这是由于直流电压的增加使得激光器的工作电流增加, 从而加快了调谐速率的结果; 而脉冲和电压导致的输出波长的改变, 与激光器的底座温度几乎无关. 在 QCL 的这种长脉冲工作模式下, 光谱的分辨率与激光器的调谐速率有关, 一个脉冲当中光谱的分辨率会发生变化, 因此脉冲后半部分的光谱分辨率更好. 由于激光器的工作电压会影响调谐速率, 因此在工作阈值以上采用低的电压, 光谱的分辨率会更好. 通过本文的研究工作, 得到了提高光谱分辨率、优化光谱质量的方法, 从而可以提高光谱定量分析的准确性.

- [1] Kosterev A A, Tittel F K 2002 *IEEE J. Quantum Electron.* **38** 582
 [2] Zhang Y G, Xu G Y, Li A Z, Li Y Y, Gu Y, Liu S, Wei L 2006 *Chin. Phys. Lett.* **23** 1780
 [3] McCulloch M T, Normand E L, Langford N, Duxbury G 2003 *J. Opt. Soc. Am. B* **20** 1761
 [4] Pflügl C, Schrenk W, Anders S, Strasser G 2004 *Semicond. Sci. Technol.* **19** 336
 [5] Normand E, McCulloch M, Duxbury G, Langford N 2003 *Opt. Lett.* **28** 16

- [6] Nelson D D, Shorter J H, Moman J B, Zahniser M S 2002 *Appl. Phys. B* **75** 343
 [7] Hay K G 2010 *Ph. D. Dissertation* (Glasgow: University of Strathclyde)
 [8] Bracewell R 1965 *The Fourier Transform and Its Applications* (New York: McGraw-Hill) p1
 [9] Kosterev A A, Curl R F, Tittel F K, Gmachl C, Capasso F, Sivco D L, Baillargeon J N, Hutchinson A L, Cho Y 2000 *Appl. Opt.* **39** 6866

Experimental study on spectral characteristics of room temperature operated pulsed quantum cascade laser*

Tang Yuan-Yuan Liu Wen-Qing He Ya-Bai Ruan Jun Xu Zhen-Yu
Yao Lu Kan Rui-Feng[†]

(Key Lab. of Environmental Optics & Technology, Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Hefei 230031, China)

(Received 1 May 2012; revised manuscript received 31 May 2012)

Abstract

Mid-infrared lasers are very effective for the spectroscopic measuring of the fundamental absorption lines for most gases. The quantum cascade laser (QCL), with the advantages of high power, wide tuning range and room-temperature operation, is one of the ideal mid-IR sources for trace gas detection. In this paper, the spectral characteristics of room temperature operated pulsed QCL with a central wavelength of 1274 cm^{-1} is presented. By using high-bandwidth HgCdTe detector and high-speed data acquisition devices, and combining with a high-resolution etalon, the features of the spectrum in the frequency domain can be acquired. Analysis of the measured spectral data gives the information about spectral shape, tuning characteristics and resolution variation with time, also about the influences of voltage and temperature on spectrum. The effective way to improve the spectral resolution and optimize the spectral quality is obtained, and it can be used to improve the accuracy of spectrum quantitative analysis.

Keywords: quantum cascade laser, infrared laser absorption spectroscopy, frequency down-chirp

PACS: 42.62.Fi, 42.55.Px, 33.20.Ea

* Project supported by the Priority National Basic Research Program of China(Grant No. 2010CB234607), the Strategic Priority Research Program of the Chinese Academy of Sciences (Grant No. XDA05040102), and the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 61108034).

[†] E-mail: kanrui Feng@aiofm.ac.cn