



理论与实验研究

环形泵浦相位匹配 CARS 技术的匹配方式和空间分辨率的实验研究*

赵建荣 杨仕润 俞刚

(中国科学院力学研究所,北京 100080)

提 要 通过对环形泵浦相位匹配方式的解剖,发现所得到的 CARS 信号是由多种相位匹配方式产生的,分析了各种匹配方式产生的 CARS 强度的份额与空间分布。通过光路设计可得到与交叉 BOXCARS 相比拟的空间分辨率。计算和实验都证实了两束泵浦光与斯托克斯光在透镜表面上的张角有一最佳值,这种相位匹配方式是不存在相位失配的 BOXCARS,并充分利用了环形泵浦束的能量。

关键词 相干反斯托克斯拉曼光谱, 环形泵浦相位匹配

1 前 言

CARS(相干反斯托克斯拉曼光谱)技术自 1973 年问世以来,已成功地用于多种火焰的温度及浓度测量。为提高它在光束方向的空间分辨率以解决由于火焰温度和浓度不均匀造成的低温度高浓度的加权(温度越低,浓度越高,CARS 信号越强)使测量结果比实际温度偏低、浓度偏高的问题,人们发展了 BOXCARS 相位匹配技术^[1]来代替原来的共线相位匹配技术。但是,由于 BOXCARS 技术在光路准直上的困难和易受折射率变化的影响而导致 CARS 信号大大衰减,实际应用中越来越多的人采用了被 Ekbreth^[2]称为非稳腔空间增强探测 CARS(简称 USED CARS)的相位匹配技术^[2~6]。这是因为该技术最初由作为泵浦激光源的 YAG 激光器为非稳腔结构和环模输出而得名。而在相位匹

配上,它与人为地把通常的高斯模光束改成环模束是等效的。为了更具普通性,我们采用环状泵浦空间增强探测 CARS 技术(ASED CARS)的名称,本文仅讨论斯托克斯光束从泵浦光束中心穿过的形式。这里,斯托克斯光束是指染料激光器发出的特定频率的激光,它与泵浦激光的频率差等于待测分子的拉曼位移,以期获得共振 CARS 信号。一个 CARS 光子则是由两个泵浦光子和一个斯托克斯光子混频产生的。

由于激光束聚焦后的光腰直径很小(约 100 μm),因此,实际上,横向空间分辨率总是满足要求的。关于 CARS 的纵向空间分辨率的界定目前尚无统一说法,分别有把包含总信号强度的 50%^[7],75%^[8],90%^[1]的长度定义为纵向空间分辨率。按作者的看法,这要根据研究对象的温度梯度差异而采用的不同相位匹配技术来满足分辨率的要求和获得最强的信号为准。

* 自然科学基金资助项目

收稿日期:1998-02-23

一般认为共线 CARS 技术的纵向空间分辨率为几十毫米^[8],而 BOXCARS 则可达毫米量级^[1]。关于 ASED CARS 的纵向空间分辨率仅 Davis 等^[7]做过探讨,但未涉及它的相位匹配图及影响其分辨率的因素。我们的实验研究表明,ASED CARS 的信号主要来自 BOXCARS 的相位匹配方式,并且两束泵浦光与斯托克斯光在透镜表面上有一最佳张角。除 BOXCARS 之外,还包含少量的共线和近共线 CARS 和普通 CARS 的贡献,因此,当滤掉共线和近共线信号时,即可得到与 BOXCARS 相比较的空间分辨率。通常认为 CARS 信号在环状泵浦光环之外^[2,6,9],我们的结果表明,在通常情况下,CARS 信号绝大部分与泵浦光环重合,环外的能量很小。

2 ASED CARS 的相位匹配关系

根据 Davis 等^[7]的分析,ASED CARS 应满足相位匹配关系

$$2k_p \cos \theta_p = k_s + k_a \cos \theta_a \quad (1)$$

对小角度,(1)式可写成

$$\theta_a = \sqrt{\frac{2k_p}{k_a}} \theta_p \quad (2)$$

其中,波矢 $k_i = n_i \cdot 2\pi\omega_i$, n_i 为介质对 ω_i 的折射率、 ω_i 为以 cm^{-1} 表示的频率、 θ_i 为相对于水平入射 k_i 的夹角,下标 p, s 和 a 分别代表泵浦光束、斯托克斯光束和 CARS 光束。

有三种方式可以满足上述相位匹配关系式

1) 共线 CARS(图 1-1)。这时, $\theta_p = \theta_s =$

$\theta_a = 0^\circ$ 。

2) 普通 CARS(图 1-2)。这时,虽然 $\theta_p \neq 0^\circ$,但 k_p 是作为一束光与 k_s 作用产生 k_a 。

3) BOXCARS(图 1-3)。通过立体几何关系可以证明,这种匹配方式同样满足上述关系式。对通常的 BOXCARS, $\theta_a < \theta_p$ ^[1],而这种匹配关系却得到 $\theta_a > \theta_p$ ^[7]。一般认为在 ASED CARS 中,三束光的平面关系如图 2 所示^[2,6,9],这就给人以错觉,即环状 CARS 光束在泵浦光环之外。事实上,由于环状泵浦束有一定的宽度,泵浦束与 CARS 束大部分是重叠的。取 YAG 激光环内径为 5 mm、外径 14mm、透镜焦距 200 mm、 $k_p = 118105 \text{ cm}^{-1}$ 、对测量氮的 CARS 而言, $k_s = 103458 \text{ cm}^{-1}$ 、 $k_a = 132752 \text{ cm}^{-1}$,用(2)式进行简单的计算即可得知, $\theta_{p,内} = 0.72^\circ$ 、 $\theta_{a,内} = 0.96^\circ$ 、 $\theta_{p,外} = 2.0^\circ$ 、 $\theta_{a,外} = 2.7^\circ$,其中,下标内外分别与泵浦环和 CARS 环的内外缘相对应。最后得到 CARS 环的内径为 6.7 mm,外径为 18.9 mm。这就是说,如果要 CARS 环完全在泵浦环之外,必须限制泵浦环外径小于 6.7 mm,这将极大地减小 CARS 信号的强度。另外,在正常情况下,由于泵浦环之外的 CARS 能量是由泵浦束外缘与斯托克斯束作用产生的,而高斯束外缘强度比内缘弱得多,而环形束也是环带中间最强、带缘弱,CARS 强度又是与泵浦束强度的平方成正比,所以环外信号很弱。但由后面计算结果可以得出,在大的 θ_p 时(几十度),保持泵浦环适当宽度,CARS 信号可以出现在泵浦环之外的。

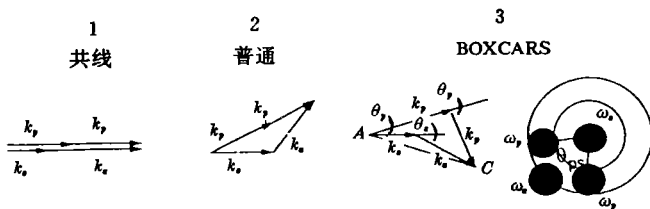


图 1 ASED CARS 中包含的相位匹配类型

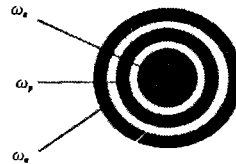


图 2 一般 ASED CARS 描述的光斑位置

3 实验结果

CARS 实验布局如图 3 所示。YAG 激光器为美国光谱物理公司生产的 290-30 型,每秒 30 个脉冲,脉宽为 8 ns,最大单脉冲能量 850 mJ(532 nm);染料激光器为与之配套的加拿大 Lumonics 公司的 SpectrumMaster 500-B 型;多道光学探测系统为美国普林斯顿仪器公司的 OMA4 系统。为克服实验期间激光能量起伏对 CARS 信号强度的影响,我们采用了双光路技术,参照光路的 CARS 信号作为归一信号,提高了测量结果的可靠性。实验中的染料激光束直径为 4 mm, YAG 激光束内径为 5 mm, 外径分别为 12.5 mm 和 14 mm(根据需要由光阑调节)。图中, M_h 为中间打一 $\Phi 4$ 孔的反射镜,染料激光束从孔中穿过,而高斯泵浦束经反射后成为环形束, L_1 为聚焦透镜, L_2 为收集透镜, L 是光纤耦合镜, OMA4 系统采集信号并存入计算机。

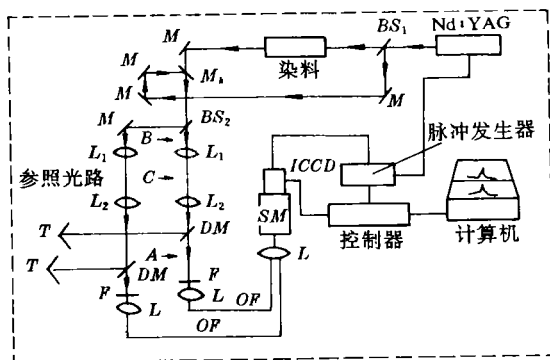


图3 测量ASED CARS相位匹配和分辨率的实验框图

M - 反射镜; L - 透镜; F - 滤光片; T - 陷波器(Trap); BS - 分束器; DM - 双反射镜; OF - 光纤; SM - 光谱仪

3.1 CARS 能量分布

分别把直径为 5、7、9、10.5 和 12.5 mm 的空间滤光片置于 A 处,采集滤光片外的 CARS 信号,得到图 4 的结果(YAG 激光束外径为 12.5 mm)。图中,不放滤光片时的

CARS 信号强度为 1。可以看出,在直径 7 mm 之外,CARS 强度急剧下降,当滤光片直径为 12.5 mm 时,CARS 信号只剩下 30% 左右。可见泵浦环外的 CARS 能量分布是非常弱的。90% 左右的能量集中在 $\Phi 5 \sim 12.5$ 的环内,而 YAG 激光环内径($\Phi 5$)之内的 CARS 强度仅为总强度的 6% 左右。这部分 CARS 信号是由共线和近共线相位匹配造成的。其成因是由于环形激光的衍射,聚焦在中心的能量与染料激光耦合产生的。

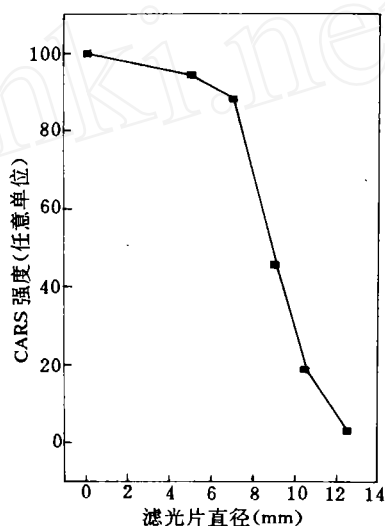


图4 CARS强度随滤光片直径的衰减

3.2 相位匹配方式

为弄清主要ASED CARS信号是通过何种匹配方式产生,我们制作了两个多孔铝片:中心孔 $\Phi 3$,另有4个和6个 $\Phi 4$ 孔分别均匀分布在中心孔同心 $\Phi 10$ 的圆周上。把这两个铝片分别置于 B 处,让斯托克斯束从中心通过,外径 14 mm 的泵浦束由 $\Phi 10$ 圆周上的孔穿出,根据需要遮盖不同的孔,我们测得表 1 的结果。由表 1 可看出,普通 CARS,即泵浦数目为 1 时的信号极弱,而两束泵浦光相对于斯托克斯光在透镜表面上不同张角 θ_s 产生的信号强度有很大不同。180°张角的信号基本上是两个普通 CARS 的和;在 60°张角时,即使在 6 束泵浦光的情况下,也比

90°张角仅4束泵浦光时的CARS信号弱,尽管前者泵浦光的能量是后者的1.5倍。显然,在我们的实验条件下,90°张角可以得到最大的交叉相位匹配信号,即CARS效率最高。

由此也说明ASEDCARS的信号主要来自多个 $\theta_{ps} = 90^\circ$ (后面计算表明最佳 θ_{ps} 为82.4°)的相位匹配方式,它确实是交叉BOXCARS相位匹配的简化,完全不同于共线CARS。

表1 泵浦束相对于斯托克斯束张角与CARS强度的关系

泵浦束张角 θ_p	180°		120°		90°		60°	
泵浦束数目	1	2	2	3	2	4	2	6
能量份额%*	0.09	0.22	0.52	0.98	3.01	12.6	1.56	10.4

* 在透镜表面两泵浦束与斯托克斯连线的夹角 ** 对总的CARS信号强度而言

为了解释实验结果,我们对相位匹配条件作进一步探讨。式(1)只是ASEDCARS相位匹配的必要条件,它不能剖析ASEDCARS的复杂相位匹配结构,也就不能给出对CARS强度作出最大贡献的最佳结构。由图1-3可看出,为达到理想的相位匹配,由 k_p, k_s 和 $\pi - \theta_p$ 决定的ASEDCARS应与 k_a, k_b 和 $\pi - \theta_a$ 决定的ASEDCARS相等。当泵浦激光环定了以后, θ_p 从而 θ_a 都定了下来,而 θ_p' 则是通过 θ_p 和所选取的两束 ω_p 与 ω_s 在透镜上的张角 θ_{ps} 相互依赖的。应用有关的几何知识可以得到

$$2k_p \sin(\pi - \theta_p')/2 = \frac{\sin \theta_a}{\sin \left[\tan^{-1} \left(\frac{k_a - k_s \tan \frac{\theta_a}{2}}{k_a + k_s} \right) + \frac{\theta_a}{2} \right]} k_a \quad (3)$$

$$\theta_{ps} = 2\sin^{-1}[(\sin \theta_p'/2)/\sin \theta_p] \quad (4)$$

表2 在氮CARS条件下计算的 $\theta_p, \theta_a, \theta_p'$ 和 θ_{ps} 之间的关系(度)

θ_p	1	2	5	10	15	20	30	45	60
θ_a	1.33	2.67	6.67	13.4	20.1	26.8	40.4	61.4	83.7
θ_p'	1.32	2.65	6.62	13.3	19.9	26.6	40.1	60.9	82.9
θ_{ps}	82.9	82.9	83.0	83.3	83.7	84.5	86.5	91.5	99.7

(3)式与一般BOXCARS给出的相位匹配条件^[1]有很大差别,这是因为在ASEDCARS中 ω_s 是零角度入射。

3 纵向空间分辨率的测量

空间分辨率是CARS测量的一个重要

指标。就我们的实验条件($f = 200 \text{ mm}$, ω_p 位于以 ω_s 为圆心的 $\Phi 10$ 的圆周上), $\theta_p = 1.43^\circ, \theta_a = 1.91^\circ$, (3)式右端计算结果为 236178 cm^{-1} ,可推得 $\theta_p' = 1.89^\circ$,对应的 θ_{ps} 为82.9°,即为最佳的 θ_{ps} 。在 θ_{ps} 等于60°、90°、120°和180°的CARS强度测量中,90°的信号最强,两者取得了良好一致。

表2给出由(1)、(3)和(4)式计算得到的 $\theta_p, \theta_a, \theta_p'$ 和 θ_{ps} 之间的关系。我们的结果表明,在ASEDCARS相位匹配中,在泵浦环上总能有一对 ω_p 与环心的 ω_s 满足BOXCARS的相位匹配条件,CARS信号主要是多组满足最佳条件组合的贡献。与共线CARS一样,在ASEDCARS中不存在相位失配问题,可以充分利用泵浦环的能量而同时具有BOXCARS的空间分辨率。

纵向分辨率取决于激光束聚焦后的光腰直径,一般为100 μm 量级,可以满足要求。人们关注的是纵向空间分辨率。对共线CARS,其纵向空间分辨率为10 cm量级。BOXCARS的分辨率为毫米量级。为了确定ASEDCARS的空间分辨率,我们做了下面

实验。

从一个密闭容器的底部吹入氧气。容器上部开一宽 20 mm、长 40 mm 的矩形孔,在长度方向有两个可以对称滑动的挡板以调节光束方向实际吹氧的有效长度。为使气体从孔中均匀喷出,在矩形孔下面粘结一块 7 mm、厚颗粒度为 100 目的青铜粉末烧结板。调节宽带染料激光中心波长使之与 YAG 激光波长匹配以测量氮的 CARS 谱,这样,在产生 CARS 谱的长度内,被纯氧占据的区间将不对 CARS 谱作贡献,从而判定 CARS 的作用长度,即分辨率。

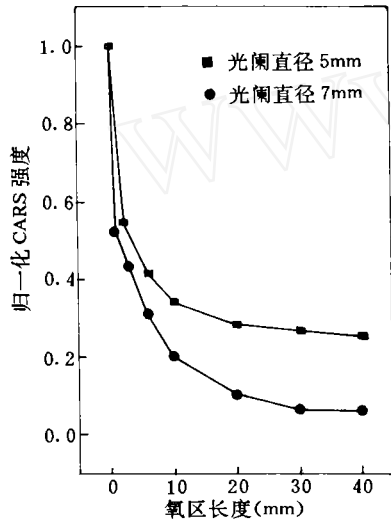


图 5 在不同的光阑直径下,CARS 强度和氧气区长度的关系

将吹氧容器置于 C 处,同时,将其矩形孔中心置于激光束焦点处,让激光束紧贴对称滑动板面扫过,以排除喷出的氧气扩散使其尺度增加的影响,从而保证挡板的距离即氧气区的长度。在不吹氧时测得室内空气氮的 CARS 谱,其强度定义为 100%。当向容器吹氧时,对称调节滑动挡板距离(即调节光束纵向纯氧的尺度)可观察到 CARS 谱强度随纯氧的尺度增加而衰减的变化。其衰减量就是在该距离内 CARS 信号的含量。

将一可变光阑置于 B 处,孔径分别调节为 5 mm 和 7 mm,以测量共线和近共线的

CARS 分辨率。由图 5 可知,分别在 40 mm 和 10 mm 以外还有 20% 以上的共线和近共线 CARS 信号强度。

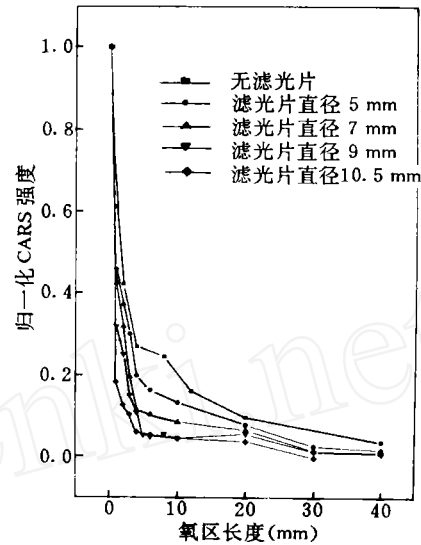


图 6 在不同的滤光片直径下,CARS 强度和氧气区长度的关系

图 6 表示光束中心 A 处放置不同直径空间滤光片的测量结果(泵浦束外径 12.5 mm)。为了比较,也测量了不加光阑或滤光片的 CARS 信号。可以看出,当用 $\phi 5$ 或 $\phi 7$ 滤光片分别挡掉共线和近共线 CARS 信号后,分辨率大为提高(随挡板距离的增加,CARS 信号急剧降低)。也可看到,7 mm 直径的滤光片为最佳选择(这与前面简单算得的 ASEDCARS 束内缘直径为 6.7 mm 相吻合)。这时,90% 以上的 CARS 能量集中在 4 mm 作用区内。由图 4 可以看出,这时的 CARS 信号损失仅 10%。当再加大滤光片直径时,分辨率提高不大,但 CARS 信号损失急剧增加。

在三束交叉 BOXCARS 的分辨率^[1]测量中,在焦长 483 nm、泵浦和斯托克斯入射夹角 ($\alpha + \theta$) 约为 7° 情况下,90% 的 CARS 能量集中在 4 mm 内,与我们的结果相当。需要指出的是,文献[1]中是用玻片测量的,为避免玻片在焦点附近被击坏,只能在极低激光

能量下进行,其结果比较高激光能量下得到的分辨率要高。

结论

1) ASED CARS 是一种简化的三维相位匹配方式,其中包含有共线、近共线、普通和交叉 BOXCARS 匹配产生的 CARS 信号。为提高分辨率,需要滤掉共线和近共线匹配产生的 CARS 信号,可以获得与三束交叉的 BOXCARS 同样的空间分辨率。

2) ASED CARS 的 CARS 信号主要来自泵浦束与斯托克斯束在透镜表面为最佳张角的匹配方式。而三束交叉的 BOXCARS 相位匹配并不涉及这个角度^[1]。这是由 ASED CARS 的斯托克斯束零角度入射造成的。它是不存在相位失配的 BOXCARS 并能充分利用环形泵浦束的能量。

3) 通常 ASED CARS 的信号强度主要分布在与泵浦激光环重叠部分,中心的共线和近线部分与环外部分强度之和不足 10%。

参 考 文 献

[1] A. C. Eckbreth, BOXCARS: crossed-beam phase-matched CARS generation in gases. *Appl. Phys. Lett.*, 1978, 32(7): 421

- [2] A. C. Eckbreth, G. M. Dobbs, J. M. Stufflebeam *et al.*, CARS temperature and species measurements in augmented jet engine exhausts. *Appl. Opt.*, 1984, 23(9): 1328
- [3] T. Dreier, B. Lange, J. Wolfrum *et al.*, Determination of temperature and concentration of molecular nitrogen, oxygen and methane with CARS. *Appl. Phys. B*, 1988, 45: 183
- [4] A. C. Eckbreth, T. J. Anderson, G. M. Dobbs, Multi-color CARS for hydrogen-fueled scramjet application. *Appl. Phys. B*, 1988, 45: 215
- [5] T. J. Anderson, A. C. Eckbreth, Simultaneous measurements of temperature and H₂ concentrations in hydrogen-fueled supersonic combustion. *AIAA* 90-0158
- [6] D. Click, K. A. Marko, L. Rimai, Broadband single-pulse CARS spectra in a fired internal combustion engine. *Appl. Opt.*, 1981, 20(7): 1178
- [7] L. C. Davis, K. A. Marko, L. Rimai, Angular distribution of Raman emission in degenerate four wave mixing with pumping by a single diffraction coupled laser beam: configurations for high spatial resolution. *Appl. Opt.*, 1981, 20(9): 1685
- [8] P. R. Regnier, F. Maya, T. P. E. Taran, Gas concentration measurement by coherent Raman anti-stokes scattering. *AIAA J.*, 1974, 12(6): 827
- [9] S. M. Green, R. P. Lucht, J. E. Peters, A dual-pump CARS system for simultaneous detection of methane and nitrogen. *AIAA* 97-0607

Investigation of Phase-Matching and Spatial Resolution on Annular-pump CARS

Zhao Jianrong Yang Shirun Yu Gong

(Institute of Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100080)

Abstract The experimental results indicate that the CARS signal by annular-pump phase matching is induced by several matching patterns. The intensity portion and spatial distribution of CARS signal for these patterns were analyzed. The same spatial resolution with fold BOXCARS can be obtained by optical design in annular-pump CARS. Our calculation and experiment confirm that the angle between two pump and one Stokes beams at lens surface exists an optimum. So, ASED CARS is BOXCARS without phase-mismatching, which makes full use of the energy of annular-pump beam.

Key words coherent anti-Stokes Raman spectroscopy, annular-pump phase-matching