

# 利用 OPO 的 CARS 光谱测温及狭缝函数的影响

李荣福, 千庆姬, 高春歌  
(吉林大学物理教学中心, 吉林 长春 130025)

**摘要:**论述了在宽带相干反斯托克斯拉曼散射(CARS)光谱技术中,利用光参量振荡器(OPO)替代常用的染料激光器作为斯托克斯光源的可行性,分析了 OPO-CARS 测温范围和仪器狭缝函数对测温结果的影响。理论分析和实验结果表明:测温范围在 2200K 以下,在 CARS 光谱测温技术中可以采用 OPO 替代染料激光器作为斯托克斯光源;狭缝函数对测量结果的影响是不容忽视的,相对比较来看,采用佛克脱函数形式最好。

**关键词:**相干反斯托克斯拉曼光谱;光参量振荡器;光谱测温;狭缝函数

中图分类号:TN248

文献标识码:A

## CARS Thermometry with OPO and Influence of Slit Function

LI Rong-fu, QIAN Qing-ji, GAO Chun-ge

(Physics Teaching and Research Centre, Jilin University, Changchun 130025, China)

**Abstract:** The possibility for using an optical parametric oscillator (OPO) instead of the dye laser is discussed and the Slit function of the detection system is studied. The optical analysis and experiment demonstrate that the OPO-CARS setup is useful in the case of measuring temperature below 2200K and the Voigt function is the best slit function.

**Key words:** coherent anti-Stokes Raman spectrum (CARS); optical parametric oscillator (OPO); spectral measuring temperature; slit function

### 1 引言

近几年相干反斯托克斯拉曼散射(CARS)光谱检测技术发展迅速,广泛用于工业、生物医学、化学分析等领域,已成为流体温度及浓度场分布测量中最有效的方法之一<sup>[1-2]</sup>。在 CARS 光谱测试中,以往采用染料激光器作为斯托克斯光源,但染料激光器存在经常更换染料、其化学反应和温度变化引起输出不稳定,调谐波长困难,系统庞大,染料对人体有害等许多缺陷。为此,有人<sup>[3]</sup>提出利用光参量振荡器(OPO)替代染料激光器作为斯托克斯光源。本文通过理论分析和实验得出 2200K 以下温度范围内 OPO-CARS 光谱测温结果较为满意,同时研究了仪器狭缝函数对测量结果的影响。

### 2 CARS 测温原理及分析

相干反斯托克斯拉曼散射光谱是四波混频的非

线性光学现象。设频率为  $\omega_p$ 、光强为  $I_p$  的两束泵浦光和频率为  $\omega_s$ 、光强为  $I_s$  的斯托克斯光会聚于被检测样品时,通过介质的三阶非线性极化率  $\chi^{(3)}$ ,实现光强与物质的相互作用而产生频率为  $\omega_{as}$ 、光强为  $I_{as}$  的相干反斯托克斯信号光,由光的耦合波方程,信号光强度  $I_{as}$  是三阶非线性极化率的平方  $|\chi^{(3)}|^2$  和泵浦光及斯托克斯光谱轮廓的卷积形式表达<sup>[4]</sup>,即:

$$I_{as}(\omega_{as}) \propto \int d\omega_p I_p(\omega_p) \int d\delta I_p(\omega_{as} - \delta) I_s(\omega_s^0 - \delta) |\chi^{(3)}(\delta)|^2 \quad (1)$$

式中,  $\omega_s^0$  是泵浦光中心频率;  $\delta$  是泵浦光频率和斯托克斯光频率之差 ( $\delta = \omega_p - \omega_s$ )。当气压不太高时可

作者简介:李荣福(1957-),女,工程师,主要从事光电检测及应用研究。E-mail: lironfu040@sina.com

收稿日期:2007-12-01;修订日期:2008-01-18

利用孤立光谱模型,三阶非线性极化率为:

$$\chi^{(3)} = \frac{2N}{h} \sum_j \frac{\Delta\rho_j \alpha_j^2}{2\delta - i\Gamma_j} + \chi^{\text{NR}} \quad (2)$$

式中,  $\chi^{\text{NR}}$  为与波长无关的非共振极化率;  $\alpha_j$  为极化系数;  $\Delta\rho_j$  为第  $j$  能级态上的分子密度,它由与温度有关的玻尔兹曼分布率决定;  $\Gamma_j$  为独立谱线的线宽。在宽带单脉冲 CARS 法中,斯托克斯光谱分布应考虑到由单色仪的分辨本领和多通道光分析器等仪器灵敏度决定的狭缝函数  $T(\omega_{\text{as}} - \omega'_{\text{as}})$ , 考虑到斯托克斯光线宽  $\Delta\omega_s$  远比泵浦光和狭缝函数线宽宽的多,可把  $I_s$  从式(1)中提出来,则式(1)可写成:

$$I_{\text{AS}}(\omega_{\text{as}}) \propto I_s(\omega_s^0 - \delta) \int d\omega'_{\text{as}} T(\omega_{\text{as}} - \omega'_{\text{as}}) \times \int I_p(\omega'_{\text{as}} - \delta) |\chi^{(3)}(\delta)|^2 d\delta \quad (3)$$

为了消除斯托克斯光的影响,利用非共振参考气体作为试样得出非共振信号  $I^{\text{NR}}$ ,它与斯托克斯光谱分布  $I_s(\omega_s^0 - \delta)$  成正比,因此,可用非共振 CARS 信号光谱来进行归一化,结果为:

$$\frac{I_{\text{as}}(\omega_{\text{as}})}{I^{\text{NR}}} \propto \int d\omega'_{\text{as}} T(d\omega_{\text{as}} - \omega'_{\text{as}}) \times \int d\delta I_p(\omega'_{\text{as}} - \delta) |\chi^{(3)}(\delta)|^2 \quad (4)$$

由式(4)得出,CARS 信号光强不仅与样品的光谱特性和斯托克斯光谱有关,还与狭缝函数有关。因式中样品的极化率与温度有关,因而通过测试 CARS 信号光强,可求出对应的样品温度。实际测量时,首先确定试样所用泵浦光的线宽和实验装置的狭缝函数  $T(\omega_{\text{as}} - \omega'_{\text{as}})$ ,并按一定温度间隔(如 50K)计算极化率  $\chi^{(3)}$ ,代到式(4)进行卷积运算,从而建立以温度为参数的理论光谱数据库;然后对实验得到的 CARS 信号实验数据进修曲线拟合求出实验光谱,并与理论光谱库中的理论谱相比较,得出实验谱对应的实验温度,这个温度就是被测温度。本文利用了经修改的 CARSFIT(sandia national la. laboratory USA)光谱数据库。

在单脉冲宽带 OPO - CARS 测温技术中,因为 OPO 输出带宽相对比较窄(约 60 ~ 80 cm<sup>-1</sup>),高温区测温范围会受到限制。下面从理论上分析 OPO - CARS 测温范围。

CARS 信号光强度与分子的振转能级上粒子数密度  $N(\nu)$  有关。由玻尔兹曼分布规律,振量子

数  $\nu$  能级上粒子数密度  $N(\nu)$  与基态上粒子数密度  $N(0)$  之比为:

$$\frac{N(\nu)}{N(0)} \propto \exp(-1.44\omega_e\nu/T) \quad (5)$$

式中,  $\omega_e$  为分子基振动圆频率。因当  $\nu \geq 3$  时,  $\frac{N(\nu)}{N(0)} \approx \frac{1}{100}$ , 可以不计  $\nu \geq 3$  的能级,只考虑  $\nu = 1 \rightarrow 0$  间跃迁的冷带和  $\nu = 2 \rightarrow 1$  态间的第一“热带”。那么由式(5),可求当  $\frac{N(3)}{N(0)} \leq 0.01$  时的  $T = 200\text{K}$ 。

同样,量子数为  $J$  的转动能级上粒子数  $N(J)$  相对最低转动能级上粒子数密度  $N(0)$  之比为:

$$\frac{N(J)}{N(0)} \propto (2J+1) \exp[-\beta_e hcJ(J+1)/KT] \quad (6)$$

式中,  $\beta_e$  为分子转动常数;  $h$  为普朗克常数。经计算  $\nu = 2, T = 2200\text{K}$  时,  $J = 60$  的转动能级上的粒子密度与  $J = 0$  态上粒子密度之比为 0.0101。因此,在 2200K 以下温度时,可只考虑  $J = 60$  以下的转动能级间跃迁。另一方面,计算得出对  $\text{N}_2$  气体来说  $Q(J=60)$  跃迁频移和  $Q(J=0)$  跃迁频移之间间隔为 50 cm<sup>-1</sup>, 这比 OPO 光谱线宽(一般大于 60 cm<sup>-1</sup>) 范围小。由此分析可得出在 2200K 以下温度范围内利用 OPO 代替染料激光器作斯托克斯光源是可行的。

### 3 实验

图 1 为测温实验装置示意图。首先由  $\text{Nd}^{3+}$ : YAG 激光器(SurliteII - 10 型)发出波长为 532nm, 线宽为 0.2 cm<sup>-1</sup>、脉冲能量为 96mJ 的倍频光和波长为 355nm, 能量为 140mJ 的三倍频光。其中倍频光由光延迟反射镜  $M_5, M_6$  和  $M_7$  反射后通过分束器  $\text{BS}_1$  分为间距为 4mm 左右的两束光作为试料的(通常为空气中的  $\text{N}_2$  气体)泵浦光,另一三倍频光用作光参量振荡器 OPO 的泵浦光,入射于 OPO 内的 BBO 晶体。通过调频 BBO 晶体的相位匹配角,其输出中心波长调谐于 CARS 测温所需要的 606.7nm, 这时, OPO 输出能量为 26mJ, 线宽为 78 cm<sup>-1</sup>。满足相位匹配条件的两束 532nm 的泵浦光和 606.7nm 的斯托克斯光经焦距为 20cm 的透镜  $L_2$  聚焦于被测高温炉里的不同位置,形成直径为 0.2mm, 长 1mm 的类似圆柱形微小测量区。电加热高温炉内的不同位置处的温度由热电偶测量,温度测量范围为从室

温至 1300K。泵浦光和斯托克斯光与高温炉内的  $N_2$  分子相互作用结果生成相干反斯托克斯信号光, 沿着满足相位匹配条件的方向发射出来。该信号光经于  $L_2$  相同的透镜  $L_3$  收集之后通过分束器  $BS_2$ ,  $BS_3$  和滤光片  $F$  进一步滤掉泵浦光和斯托克斯光后, 只有中心波长为 474nm 的信号光进入双单色仪  $SP$  而被分光。该信号光谱由  $CCD$  转换为电信号之后经光学多通道分析器  $OMA$  和微计算机  $PC$  处理后显示信号光谱, 并通过理论光谱数据库拟合后给出被测试点的温度值。为考察狭缝函数对测量结果的影响, 分别选取了佛克脱函数、高斯函数、洛伦兹函数形式作为狭缝函数进行曲线拟合, 并确定出最佳拟合温度, 以提高测量精度。

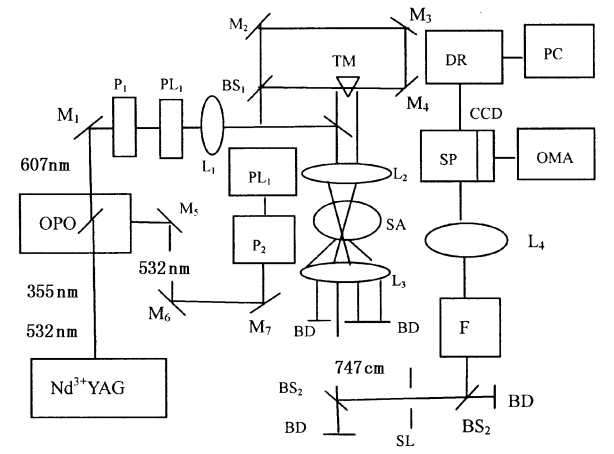


图 1 实验装置  
Fig. 1 experimental setup

OPO: 光参量振荡器;  $M_1 \sim M_7$ : 反射镜;  $L_1 \sim L_4$ : 透镜;  $P_1, P_2$ : 半波片;  $PL_1, PL_2$ : 偏振器;  $BS_1 \sim BS_3$ : 分束器;  $BD$ : 光陷阱;  $TM$ : 三角镜;  $SA$ : 样品;  $SP$ : 单色仪;  $CCD$ : 探测器;  $DR$ : 驱动源;  $PC$ : 微计算机

OPO: optical parametric oscillator;  $M_1 \sim M_7$ : mirrors;  $L_1 \sim L_4$ : lenses;  $P_1, P_2$ : 1/2 waveplates;  $F$ : filter;  $PL_1, PL_2$ : polarizers;  $BS_1 \sim BS_3$ : beam splitters;  $BD$ : beam dump;  $TM$ : triquetrous mirror;  $SA$ : sample;  $SP$ : spectrometer;  $CCD$ : DR: motor driver;  $OMA$ : optical multichannel analyzer;  $PC$ : personal computer

4 实验结果与分析

首先利用充有约 200kPa 氩气体的石英管作为试料, 测出其非共振 CARS 信号, 其光谱曲线如图 2 所示。由图可见, 光谱线宽约为  $80\text{cm}^{-1}$ , 这正好与本实验中作为斯托克斯光源的 OPO 线宽 ( $78\text{cm}^{-1}$ ) 基本一致。其次为测出狭缝函数, 利用焦距为 6cm 的透镜, 把单模 He-Ne 激光器发出的单色光会聚于

单色仪狭缝处, 测其谱线, 其结果如图 3 所示。由图可见, 仪器狭缝函数半宽为  $1 \sim 2\text{cm}^{-1}$ , 表现出左右不对称的洛伦兹函数和高斯函数卷积的佛克脱 (Voigt) 函数形式。图中的点表示曲线拟合的结果, 曲线左半边是线宽为  $0.50\text{cm}^{-1}$  的洛伦兹函数和线宽为  $0.92\text{cm}^{-1}$  的高斯函数卷积而得到; 右半边是线宽为  $0.90\text{cm}^{-1}$  的洛伦兹函数和线宽为  $0.60\text{cm}^{-1}$  的高斯函数卷积而得到的, 其结果与实验曲线 (图中实线曲线) 拟合的相当好。图 4 是可控温的高温炉内中心处的 4 种温度下得到的 CARS 谱和上面得到的佛克脱函数作为狭缝函数, 进行拟合的结果。表 1 表示理论拟合温度值与利用热电偶实测温度的比较。

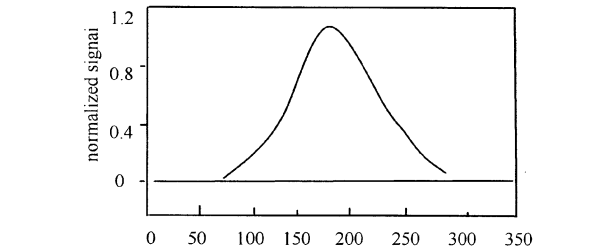


图 2 200kPa 氩气条件下测得的非共振 CARS 谱  
Fig. 2 nonresonant CARS spectrum of a reference cell filled with 200kPa argon

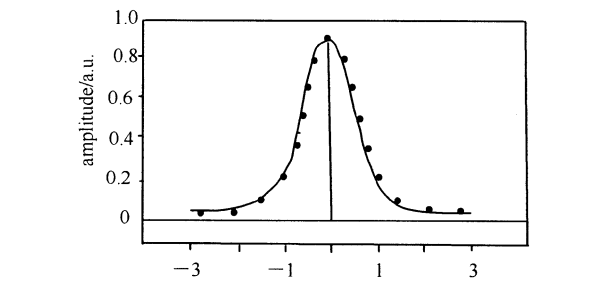


图 3 洛伦兹函数与高斯函数卷积的佛克脱函数拟合结果  
Fig. 3 measlit function fitted with an asymmetric Voigt function

表 1 理论拟合温度值与利用热电偶实测温度的比较

| Tab.1 comparison the fitting temperature to the thermocouple reading |                |                       |
|----------------------------------------------------------------------|----------------|-----------------------|
| Thermo. - tem. /K                                                    | Fit. - tem. /K | Relativ difference /% |
| 654.6                                                                | 644.8          | 1.5                   |
| 736.8                                                                | 723.5          | 1.8                   |
| 982.6                                                                | 967.2          | 1.6                   |
| 1192.9                                                               | 1178.6         | 1.1                   |

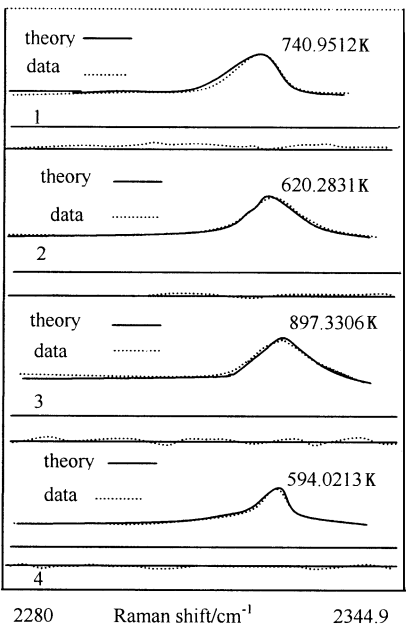


图 4 高温炉内温度拟合结果

Fig. 4 the temperature fitting result for alcohol flame

由表 1 可见:采用佛克脱狭缝函数时 OPO - CARS 测温值(拟合值)相对热电偶测温值的相对偏差不超过 2%。为考察狭缝函数对测温结果的影响、本文选择佛克脱(Foigt)、高斯(Gaussian)、洛伦兹(Lorentzian)狭缝函数进行拟合测量。不同狭缝函数时的拟合温度和利用热电偶测温结果进行比较,其结果如表 2 所示。

表 2 不同狭缝函数时的拟合温度和  
利用热电偶测温结果比较

Tab.2 the average fitting temperature  
with different silt function

| Thermai | silt function |       |          |       |            |       |
|---------|---------------|-------|----------|-------|------------|-------|
|         | Voigt         |       | Gaussian |       | Lorentzian |       |
|         | fiting        | erroy | fitting  | error | fitting    | error |
| testing |               |       |          |       |            |       |
| 293.5   | 292.2         | 1.3   | 291.8    | 1.7   | 290.5      | 3.0   |
| 642.0   | 639.4         | 2.6   | 628.3    | 12.7  | 627.5      | 14.2  |
| 724.6   | 717.2         | 7.4   | 709.8    | 14.8  | 708.3      | 16.3  |
| 970.4   | 958.7         | 11.7  | 950.2    | 20.2  | 948.3      | 22.1  |
| 1150.4  | 1153.9        | -3.5  | 1139.6   | 10.8  | 1136.5     | 13.9  |

上述实验的结果表明,在我们所研究的测温范围内,利用光参量振荡器代替染料激光器作为斯托克斯光源的 CARS 测温精度是较高的;同时,

还说明了仪器狭缝函数对测温精度的影响是不可忽视的。而采用高斯狭缝和洛伦兹狭缝函数时,相对热电偶测温结果的偏差均超过 2%,说明了所用狭缝函数的形式,对 CARS 测温精度的影响是值得注意的。另外,狭缝函数对透镜在仪器狭缝(往往是单色仪狭缝)处对信号光的聚焦情况很敏感。因此,在实验前利用佛克脱狭缝函数对已知的室温进行测量,根据测量结果的好坏,调节透镜与狭缝间的距离和焦距,就可以得到满意的结果。从表 1 可以看出,在较低温度时(约 1000K 以下)狭缝函数对测量精度的影响很大,随着被测温度的增高,偏差越大;而当较高温度(约 1000K 以上)时,温度偏差相对变小。这种现象可以解释为在较低温度时,CARS 谱中“热带”对拟合温度的贡献不大,主要由易受狭缝函数影响的“冷带”轮廓的形状决定拟合温度;在较高温度时不仅“热带”对拟合温度起作用,而且“冷带”中结构更精细的转动谱的作用更加明显,狭缝函数的作用逐渐被抵消,这一结果与文献[5]的结论一致。

参考文献:

[1] Meiey W,Plath I,Stricker W. The application of single-pulse CARS for temperature measurements in a turbulent stagnation flame, [J]. Appl. Phys. , 1991, B53 ( 5/6 ): 339 - 346.

[2] Brandley D,Lawes M,Scott M J, et al. Measurement of temperature PDF in turbulent flames by CARS technique [ C ]//24th Symposium on Combustion, in Brisbane, Australia, 1992.

[3] J G Haub, M J Jonhnson. Spectroscopic and nonlinear-optical applications of a tunable  $\beta$ -barium borate optical Parametric oseillator [ J ]. Opt. soc. Am. B, , 1993, 10/9: 1765 - 1771.

[4] D R Snelling, G J Smallwood, T Parmeswaran. Presision of multiplex CARS temperatures using both single-mode and multimode pump lasers [ J ]. Appl. Opt. , 1987, 26: 99 - 109.

[5] Seung Nam Park, Jae Won Hahn. Effect of the slit function and fast-fitting algorithm on accuracy of CARS temperatures [ J ] App. Spec, 1994, 48/6: 737 - 741.