

文章编号: 1001-3806(2002)02-0150-03

CARS 光谱测温及仪器狭缝函数对测量的影响

郑咏梅 申铨国 谷 峰

(吉林大学南岭校区应用物理系, 长春, 130025)

摘要: 设计了一种利用光参量振荡器(OPO)来代替染料激光器的宽带相干反斯托克斯喇曼散射(CARS)光谱测温实验装置。为了提高 CARS 测量温度的精度, 测量和分析了检测系统中狭缝函数对测量结果的影响, 确定了狭缝函数的具体形式。将测量结果与热电偶读数比较, 发现在温度范围 300 K ~ 1200 K 内, 温度测量的不确定度小于 2%。

关键词: 相干反斯托克斯喇曼散射; 光参量振荡器; 温度测量; 狭缝函数

中图分类号: O433.1 **文献标识码:** A

OPO-CARS thermometry and influence of slit function on precision

Zheng Yongmei, Shen Xuanguo, Gu Feng

(Department of Applied Physics, Nanling College, Jilin University, Changchun, 130025)

Abstract: A new broadband coherent anti-Stoke Raman spectral (CARS) thermoscope, consisting of a frequency double Nd:YAG laser and an optical parametric oscillator (OPO) instead of the dye laser, is introduced. In order to increase the precision of CARS temperature measurement, the slit function of the detection system is studied and determined. The precision of the system is evaluated based on the difference between the best-fitting temperature of CARS spectrum and temperature of thermocouple reading. The uncertainty of the temperature measurement is less than 2% in the range of 300 K ~ 1200 K.

Key words: coherent anti-Stoke Raman spectrum; optical parametric oscillator (OPO); thermometry; slit function

引 言

相干反斯托克斯喇曼散射(CARS)光谱技术在工业、生物医学、化学分析等领域的应用研究非常活跃, 在测量气体的温度和浓度场分布、诊断燃烧过程等方面也日趋成熟^[1~3]。扫描式 CARS 技术是利用窄线宽斯托克斯光源能更精确地测量 CARS 光谱, 并通过测量气体分子间碰撞、温度变化和泵浦饱和所引起的谱线偏移, 来研究气体的物理特性。但存在扫描时间长, 温度和浓度场等方面的测量受到限制; 单脉冲法是利用宽带斯托克斯光源, 通过一个脉冲获得所要波长范围内的全部光谱, 可节省测量时间, 提高分辨率, 常用于温度变化大的燃烧过程的测量和诊断^[1,3]。但作为斯托克斯光源的宽带染料激光器存在需要经常更换染料, 其化学反应和温度变化致使激光输出不稳定, 调谐波长困难, 系统庞

大, 且染料对人体有害等。我们采用固体化和易于调整的光参量振荡器(OPO)代替染料激光器, 设计了 OPO-CARS 光谱测温实验装置, 并利用单脉冲法对高温电炉内的温度分布进行测量, 同时研究和分析了仪器狭缝函数对测量不确定度的影响。在实践应用中具有一定的参考价值。

1 测温原理

相干反斯托克斯喇曼散射是四波混频的非线性光学现象。设频率为 ω_p (光强为 I_p) 的两束泵浦光和频率为 ω_s (光强为 I_s) 的斯托克斯光束会聚于试样时, 通过介质的三阶非线性极化率⁽³⁾, 实现光场与物质之间强相互作用而产生频率为 ω_{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⁽³⁾ 和泵浦及斯托克斯光谱轮廓的卷积形式表达^[4], 即:

$$I_{as}(\omega_{as}) = d_p I_p(\omega_p) \times d I_p(\omega_{as} - \omega_p) I_s(\omega_s) / \chi^{(3)}(\omega_{as})^2 \quad (1)$$

式中, ω_p^0 是泵浦光中心频率, ω_p 是泵浦光频率和斯

作者简介: 郑咏梅, 女, 1964 年 10 月出生。副教授, 博士研究生。从事光电技术、光信息处理及测试研究。

收稿日期: 2000-10-19; 收到修改稿日期: 2001-05-15

托克斯光频率之差,即 $\omega = \omega_p - \omega_s$ 。当气压不太高并可利用孤立光谱线模型时可忽略极化系数的分量之间的交叉项,则其三阶非线性极化率为:

$$\chi^{(3)} = \frac{2N}{h} \sum_j \frac{\rho_{ij}^2}{2 - \rho_{ij}} + \chi^{NR} \quad (2)$$

式中, χ^{NR} 为与波长无关的非共振极化率, ρ_{ij} 为极化系数, ρ_{ij} 为第 j 能量态上的分子密度,它由与温度有关的玻尔兹曼分布率决定, ρ_{ij} 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 $T(\omega_s - \omega_{s0})$,同时因为斯托克斯光的线宽 $\Delta\omega_s$ 远比泵浦光和狭缝函数线宽宽得多,可把 I_s 从积分号中提出来,则(1)式可写成如下卷积积分形式:

$$I_{AS}(\omega_s) = I_S(\omega_p - \omega_s) \int d\omega_{AS} T(\omega_s - \omega_{AS}) \times I_P(\omega_s - \omega_{AS}) / \chi^{(3)}(\omega_s) / \rho_{ij}^2 \quad (3)$$

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

$$\frac{I_{AS}(\omega_s)}{I^{NR}} = \int d\omega_{AS} T(\omega_s - \omega_{AS}) \times \int d\omega_{AS} I_P(\omega_s - \omega_{AS}) / \chi^{(3)}(\omega_s) / \rho_{ij}^2 \quad (4)$$

上式说明,CARS 信号光强不仅与试料的光谱特性有关,与斯托克斯光的光谱分布有关,还与狭缝函数 $T(\omega_s - \omega_{AS})$ 有关。由于式中试料的极化率与温度有关,因而通过测试 CARS 信号光强求出对应的温度。实际测量时,首先确定实验所用泵浦光的线宽和实验装置的狭缝函数 $T(\omega_s - \omega_{AS})$,并按一定温度间隔(如 50 K 间隔)计算极化率 $\chi^{(3)}$,代到(4)式进行卷积运算,从而建立理论光谱数据库,然后利用曲线拟合由实验得出的 CARS 信号,并与理论谱相比较,确定待测的温度。

2 实验

图 1 所示为测温实验装置示意图^[5]。首先由 Nd^{3+} YAG 激光器 (Surlite II-10) 发出波长为 532 nm,线宽为 0.2 cm^{-1} 、脉冲能量为 96 mJ 的倍频光和波长为 355 nm,能量为 140 mJ 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 BS_1 分为间距为 4 mm 左右的两束光作为试料的(通过为空气中的 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。通过调谐 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 606.7 nm,这时,OPO 输出能量为 26 mJ,线宽为 78 cm^{-1} 。满足相位匹配条件的两束 532 nm 的泵浦光和 606.7 nm 的斯托克斯光经焦距为 20 cm 的透镜 L_2 聚焦于被测高温炉里的不同位置,形成直径 0.2 mm、长 1 mm 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 1300 K。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。该信号光经与 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 474 nm 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。其中进一步地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,确定出最佳拟合温度,以提高测量精度。

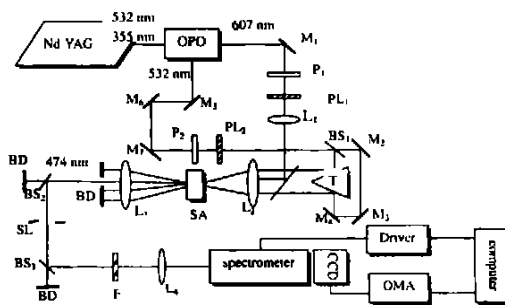


Fig. 1 Experimental setup of OPO-CARS thermometry
 $M_1 \sim M_7$ —mirrors; $L_1 \sim L_4$ —lenses; $P_1 \sim P_2$ —semi-wave plates; PL_1, PL_2 —polarizers; $\text{BS}_1 \sim \text{BS}_3$ —beam splitters; BD—beam dump; T—triangular prism; SA—sample

3 实验结果与讨论

为使 CARS 信号归一化,我们选用充有约 200 kPa 的氩气体的石英管作为试管,测出其非共振 CARS 信号,其光谱曲线如图 2 所示,由图可见,作为斯托克斯光源的 OPO 线宽约为 80 cm^{-1} ,与该 OPO 线宽指标基本一致。另外,利用焦距为 6 cm 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。由图可见,仪器狭缝函数半宽为 1.2 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 0.50cm^{-1} 的洛伦兹函数和线宽为 0.92cm^{-1} 的高斯函数卷积而得到的, 右半边是线宽为 0.90cm^{-1} 的洛伦兹函数和线宽为 0.60cm^{-1} 的高斯函数卷积而得到的, 其结果与实验曲线拟合的相当好。图 4 是在高温炉内中心处不同的 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, 进行曲线拟合的结果是其最佳拟合温度分别为 654.6K , 736.8K , 982.6K 和 1199.9K , 与其对应的热电偶测量值为 644.8K , 723.5K , 967.2K 和 1178.6K 比较, 其相对偏差不超过 2%。

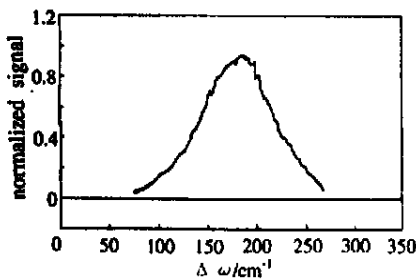


Fig. 2 Nonresonant CARS spectrum of a reference cell filled with 200kPa argon

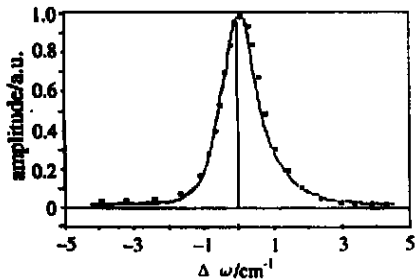


Fig. 3 Measured slit function fitted with an asymmetric Voigt function

实际上, 仪器狭缝函数的选取也是 CARS 测量温度时不可忽视的因素之一, 为考察不同狭缝函数对 CARS 测温精度的影响, 选用典型的几种狭缝函数进行拟合测量, 得到的拟合温度和利用热电偶测温进行比较, 每改变一次炉温, 利用不同狭缝函数对同一点同一温度进行 10 次测温, 并取平均值, 其结果如表

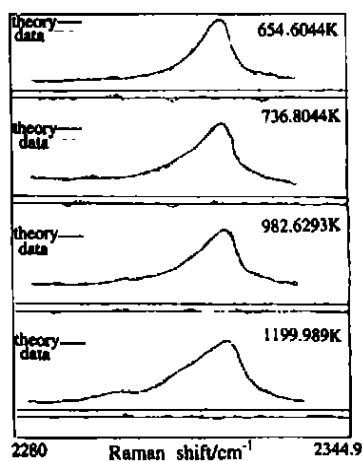


Fig. 4 The temperature fitting result for electric oven

1 所列。由表 1 可见, 利用佛克脱狭缝函数时的最佳拟合温度, 相对热电偶测温值的偏差不超过 2%。

Table 1 The average fitting temperature with different slit function (K)

thermal	slit function					
	Voigt		Gaussian		Lorentzian	
testing	fitting	error	fitting	error	fitting	error
293.5	292.2	1.3	291.8	1.7	290.5	3.0
642.0	639.4	2.6	628.3	12.7	627.8	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 测温精度也同样较高, 同时, 说明仪器狭缝函数对测温精度的影响是不可忽视的。而采用高斯狭缝函数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) 处的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或焦距, 以得到满意的测量结果。从表 1 可以看出, 在较低温度时 (约 1000 K 以下) 狭缝函数对测量精度的影响更大, 随被测温度的增高, 偏差越大; 而当较高温度 (约 1000 K 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 [6] 的结论基本一致。

参考文献

- [1] Meier W, Plath I, Stricker W. Appl Phys, 1991, B53(5/6): 339 ~ 346.
- [2] Brandley D, Lawes M, Scott MJ *et al.* Measurement of Temperature PDF in Turbulent Flames by CARS Technique. 24th Symposium on Combustion, in Brisbane, Australia, 1992.
- [3] P-Lucht R, Teets R E, Green R M. Combust Sci & Tech, 1987, 55: 41 ~ 61.
- [4] Snelling D R, Smallwood G J, Parameswaran T. Appl Opt, 1987, 26: 99 ~ 109.
- [5] 申铨国, 张铁强, 殷景志. 中国激光, 1998, 25(4): 381 ~ 384.
- [6] Diebel E, Dreier T, Lange B *et al.* Appl Phys, 1989, B50: 39.