

光纤在光子相关光谱中的研究

黄 伟

(北京建筑工程学院, 北京 100044) (英国皇家学院物理系, U.K. London, WC2R 2LS)

(2000 年 11 月 7 日收到 2001 年 3 月 17 日收到修改稿)

E.R. PIKE

单模光纤为光子相关光谱测量过程提供了一个理想的光信号接受系统。理论分析表明, 用一个单模光纤作为光信号接受系统能达到理论极限值为 1 的相干系数, 同时可以保持一个相当高的光信号接受效率。即可以利用光纤有效地提高测量过程中的信噪比。另外, 单模光纤还提供了用任意大的散射体积和任意大的传输距离来实现光散射测量的可能性。实验测量结果与上述理论分析一致。

关键词: 单模光纤, 光子相关谱, 信噪比, 相干系数

PACC: 4281, 0765, 4225

1 引 言

用光子相关光谱技术来测量线度为亚微米的悬浮物粒子已有近三十年的历史^[1-3]。这些颗粒是各种形式的大分子, 其中包括各种典型的蛋白质、病毒、酶体, 以及微型乳液中的胶质粒子、层状泡等聚合体。由于光子相关光谱技术能非常简便、快捷、有效的测量粒子的平均大小和多分散性等重要参量, 而且这种技术对样品保持绝对清洁、干净、无任何破坏性, 所以在生物工程、药物学、以及微生物领域研究有重要的应用价值。光子相关光谱技术测量中要得到准确的实验数据, 其途径之一就是有效地提高信噪比。实际测量中, “噪声”是所有实验中不理想的状态, 尤其包括理论计算中有限的平均时间、光源起伏、以及样品中杂质的散射光等。由此可知要提高信噪比, 减少噪声的途径是有限的。因为这需要更准确的理论计算和实验环境, 所以有效途径是提高光信号的接受效率。

将光纤应用到有关光散射的测量技术中是近几年刚开展的一项新课题, 并且取得了许多进展^[4-6]。由于光纤的光波导细芯可以与光的波长相比拟, 所以当光信号进入光纤以后的传输, 在理论上可以把光纤作为一个投影算符的变换, 这个算符类似于量子力学中希尔伯特空间的一个矢量投影, 故有时把光纤称为空间滤波器, 输出的光信号只正比于相同的变换因子而与传输截面的位置无关。为了取得一个高的信噪比, 即要求实现一个高的光信号接受效

率。本文中把单模光纤用于光子相关光谱测量中, 理论分析表明, 用一个单模光纤作为光信号接受系统能在理论上达到限值为 1 的相干系数, 这说明它能保持一个相当高的光信号接受效率。即可以利用光纤有效地提高测量过程中的信噪比。另外, 单模光纤还提供了用任意大的散射体积和任意大的传输距离来实现光散射测量的可能性。有关实验证明了以上理论分析的可靠性。

2 实 验

2.1 实验装置

见图 1。激光光源为 Ar^+ 激光器, 波长为 $\lambda = 488 \text{ nm}$ 经过透镜 L_1 后, 入射到样品 S 上。实验样品为均匀分布在水中的胶乳悬浮粒子, 其平均的有效直径为 109 nm 。接受系统由一根长为 4 m , 内芯直径为 $3.5 \mu\text{m}$ 的光纤和光探测相关器组成。

2.2 实验结果

用传统的光子相关光谱技术测量即无光纤时, 得到的实验结果如图 2, 其中散射角度 θ 为 90° , 温度为 $T = 296.5 \text{ K}$ 。测得粒子平均直径为 $D_c = 2r_c = (109.2 \pm 11.6) \text{ nm}$, P_D 为相对强度。

用图 1 光路测量时, 在相同的散射角度, 温度和入射光强下的实验结果见图 3。其平均直径为 $D_f = 2r_f = (109.0 \pm 0.94) \text{ nm}$, P_D 为相对强度。

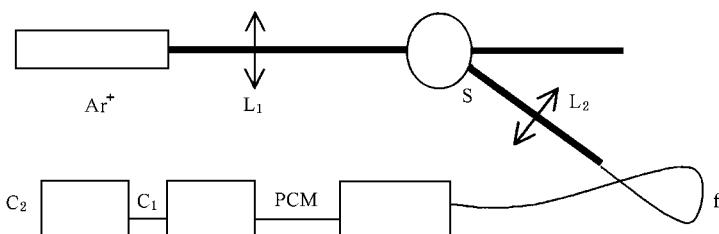


图 1 实验装置 L_1 L_2 透镜 S 样品 f 光纤 PCM 光子探测器 C_1 相关器 C_2 计算机

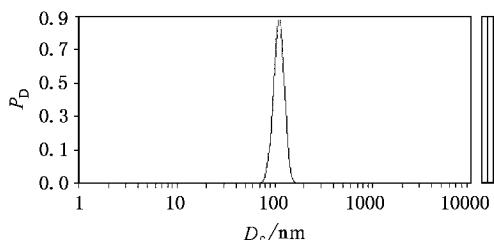


图 2 无光纤时测量结果 D_c 为平均直径, P_D 为相对强度.

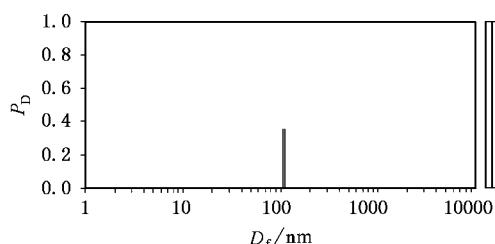


图 3 用光路图 1 装置时的测量结果 D_f 为平均直径, P_D 为相对强度

3 理 论

3.1 光子相关光谱理论

波长为 λ 的激光照射到样品上, 在固定的散射角度 θ 方向上, 对应的散射光矢量为 $K = \frac{4\pi n}{\lambda} \sin(\theta/2)$, 其中 n 为介质的折射率. 则散射光的强度相关函数为

$$g^{(2)}(\tau) = 1 + |[g^{(1)}(\tau)]|^2, \quad (1)$$

式中 $g^{(1)}(\tau)$ 为自相关函数.

为了测量溶液中悬浮粒子的大小, 考虑到粒子在溶液中作为球形或近球形体处理时, 粒子具有多分散性的分布. 而对此多分散性悬浮物液体, 若 $P(D_t)$ 为平移扩散系数的分布关系 (D_t 为平移扩散系数) 则对每一个 D_t 与场相关函数 $g^{(1)}(\tau)$ 有下列关系^[7]:

$$g^{(1)}(\tau) = \int_{D_t(\min)}^{D_t(\max)} P(D_t) \exp(-K^2 D_t \tau) dD_t. \quad (2)$$

若 $\Gamma = D_t K^2$ 则 (2) 式为

$$g^{(1)}(\tau) = \int_{\Gamma(\min)}^{\Gamma(\max)} P(\Gamma) \exp(-\Gamma \tau) d\Gamma. \quad (3)$$

据斯托克斯-爱因斯坦公式

$$D_t = \frac{k_B T}{6\pi\mu r}, \quad (4)$$

其中 k_B 为玻耳兹曼常量, μ 是溶剂的黏滞度. 结合 (1) 式计算得 D_t , 则由 (4) 式可以得到粒子的等效半径 r .

计算悬浮粒子的等效半径有各种方法^[8-11]. 我们采用 SVD 方法 (singular value decomposition), 计算粒子的测量结果, 并连接计算机作测量数据处理, 则可以从实验过程中直接得到粒子的等效半径. 测量结果见图 2 和图 3.

3.2 单模光纤接受器理论分析

假定入射到样品的激光电场为 $E_e(r, t)$, 样品介质的散射光为 $E_s(r, t)$, 在介质溶液中 $A(r)$ 为入射光束的场强分布, $B(r)$ 为散射光束的场强分布, 则

$$\begin{aligned} E_e(r) &= C_e A(r) \exp(-ik_e \cdot r), \\ E_s(r) &= C_s A(r) \exp(-ik_s \cdot r), \end{aligned} \quad (5)$$

其中 k_e 为入射光束的波矢量, k_s 为散射光束的波矢量.

若 $X(r)$ 为散射区域的场强分布, 则

$$X(r) = A^*(r) B(r). \quad (6)$$

上述方程中 C_e, C_s 为正交化的电场强度矢量常量^[12].

$$C_s^2 = \frac{2}{\varepsilon c} \frac{1}{\pi \omega_0^2}, \text{ 式中 } \pi \omega_0^2 = \int |B(r)|^2 d^2 r, \quad (7)$$

$$C_e^2 = \frac{2}{\varepsilon c} \frac{I_o}{\pi \omega_e^2}, \text{ 式中 } \pi \omega_e^2 = \int |A(r)|^2 d^2 r, \quad (8)$$

式中 I_o 为入射光强, ϵ 为介电常量, c 为光速。由光纤传输理论可得, 通过光纤后接受到的光强度为^[13,14]

$$I_e(t) = \frac{\omega^2 \alpha^2}{16} C_e^2 C_s^2 \left| \sum_i \int d\mathbf{r} - \mathbf{r}_i \right| X(\mathbf{r}) \cdot \exp(-i\Delta\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) d^3 r^2, \quad (9)$$

式中 α 为介质的光极化率, $\omega = 2\pi/\lambda$ 为光信号频率, $\Delta\mathbf{k} = \mathbf{k}_s - \mathbf{k}_e$ 。

由(9)式可整理得到

$$I_e(t) = \gamma \sum_{i,j} X(\mathbf{r}_i(t)) X^*(\mathbf{r}_j(t)) \cdot \exp\{-i\Delta\mathbf{k} \cdot [\mathbf{r}_i(t) - \mathbf{r}_j(t)]\}, \quad (10)$$

其中 $\gamma = \sigma_d I_e \Omega$, $\Omega = \frac{\lambda^2}{\pi \omega_e^2}$, $\sigma_d = \left[\left(\frac{2\pi}{\lambda} \right)^2 \frac{\alpha}{4\pi\epsilon} \right]^2$,

$$I_e = \frac{I_0}{\pi \omega_0^2},$$

Ω 称为有效立体角, σ_d 为微分散射截面^[15]。由(10)式, 将求和整理分成两项则

$$I_e(t) = \gamma \left\{ \sum_i |X(\mathbf{r}_i(t))|^2 + \sum_{i \neq j} X(\mathbf{r}_i(t)) X^*(\mathbf{r}_j(t)) \cdot \exp\{-i\Delta\mathbf{k} \cdot [\mathbf{r}_i(t) - \mathbf{r}_j(t)]\} \right\}. \quad (11)$$

把上式取 $I_e(t)$ 的时间平均值则

$$I_f = \gamma \left\{ \sum_i |X(\mathbf{r}_i)|^2 + \sum_{i \neq j} X(\mathbf{r}_i) X^*(\mathbf{r}_j) \cdot \exp\{-i\Delta\mathbf{k} \cdot (\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j)\} \right\}. \quad (12)$$

在图 1 的光路中, 假定入射光束沿 X 轴进行, 由(6)式得 $X(\mathbf{r}) = A^*(\mathbf{r})B(\mathbf{r})$, $A(\mathbf{r}) = A(x)$, 则散射

作用区域体积 $V_s = \int |X(\mathbf{r})|^2 d^3 r$, 据(7)(8)式得到

$$V_s = \sqrt{\pi \omega_e \pi \omega_0^2},$$

其中 $\sqrt{\pi \omega_e} = \int |A(x)|^2 dx$, 结合(12)式整理得到

$$I_f = \sigma_d I_d \Omega C_n V_s S(Q), \\ S(Q) = \left[1 + C_n \int X(\mathbf{r}) \exp(-i\Delta\mathbf{k} \cdot \Delta\mathbf{r}) d^3(\Delta\mathbf{r}) \right], \quad (13)$$

其中 $C_n = N/V$ 为悬浮粒子平均数密度。进一步, 由(7)(8)式整理得到

$$I_f = \sigma_d I_e C_n \lambda^2 \sqrt{\pi \omega_e} S(Q). \quad (14)$$

当用传统的光子相关谱技术测量光散射即无光纤时, 得到的接受器光信号强度为^[16,17]

$$I_e(\delta t) = \gamma \frac{1}{\pi \omega_0^2} \sum_{i,j} X(\mathbf{r}_i(t)) \delta X(\mathbf{r}_j(t)) \delta t \\ \cdot \exp\{-i\Delta\mathbf{k} \cdot [\mathbf{r}_i(t) - \mathbf{r}_j(t)]\}, \quad (15)$$

γ 与(10)式的表示相同。由(15)式, 对 $I_e(t)$ 取时间平均值并整理方程得到

$$I_e(\delta t) = \gamma C_n \frac{\int |X(\mathbf{r}, \delta t)|^2 d^3 r}{\pi \omega_0^2} S(Q). \quad (16)$$

结合(7)和(8)式得到

$$I_e = \eta \sigma_d I_e C_n \lambda^2 \sqrt{\pi \omega_e} S(Q), \quad (17)$$

其中 $\eta = \frac{\pi \omega_0^2}{\lambda^2} \pi \omega_e^2$ 。由自相关函数的定义: $g^{(1)}(\tau) =$

$$I_e(0) I_e(\tau) \text{ 可得到}^{[18]}$$

$$g^{(1)}(\tau) = I_e^{-2} [1 + f(A) \exp(-2\Delta k^2 D_t)], \quad (18)$$

其中 $f(A)$ 为著名的相干系数。我们假定入射光为高斯光束分布, 且光沿 X 方向传播, $A(\mathbf{r}) = A(X)$, 则得到^[19]

$$f(A) = \frac{1}{A/A_c + 1}, A = \pi \omega_0^2, A_c = \lambda^2 / \pi \omega_e^2. \quad (19)$$

由(17)式 $\eta = A/A_c$, 则上式为

$$f(A) = \frac{1}{\eta + 1}. \quad (20)$$

结合(9)式则

$$I_e = \eta I_f. \quad (21)$$

实际测量中综合各种因素可得, 当相干系数 $f(A)$ 接近 0.8 时, 则为传统测量系统的最佳值。在 $f(A) = 0.8$ 时, $\eta = 1/4$, 代入(21)式,

$$I_e = \frac{1}{4} I_f. \quad (22)$$

由此可知相干系数达到 0.8 最佳情况下, 用光纤系统测量得到光信号强度为传统装置的 4 倍, 进一步 $f(A) = 0.9$ 时则为 9 倍。

4 结论与讨论

综上所述, 利用单模光纤作为光子相关光谱测量的信号接受系统, 由理论分析可知当相干系数达 0.9 时光纤系统得到光信号强度是传统装置的 9 倍, 由此表明利用光纤可以实现一个相当高的光信号接受效率。进一步据(20)(21)式可推出相干系数在理论上的极限值可能达到 1。因此, 理论分析表

明只要有关实验条件能够精确测定,则可以准确的测得悬浮物粒子的平均大小。根据我们利用光纤系统测量粒子大小的光子相关光谱图得到的结果见图3,可以计算得到 $D_f = 2r_f = (109.0 \pm 0.94) \text{ nm}$, 相对误差为 $\epsilon_f = 0.9\%$, 而传统装置的测量结果见图2: $D_c = 2r_c = (109.2 \pm 11.6) \text{ nm}$, 相对误差为 $\epsilon_c = 10.6\%$, 故两种测量光路的相对误差比值为 $\epsilon_c/\epsilon_f = 11.8$, 由此可知传统光路测量的误差比光纤系统大十几倍。所以利用单模光纤测量时,其精确度显著提高。这说明利用光纤实现了一个理想的光信号接受效率,即有效地提高了测量过程中的信噪比。由此可见实验结果与有关理论分析相一致。

同时理论分析进一步表明,利用单模光纤接受光信号的另一个显著特点是:光散射可以在任意大的入射光束直径下进行。这样对一些特殊样品测量时增加波束的直径比降低照射更有效(例如波束直径扩大10倍,照射到样品上的强度变为原来的百分之一,但信号接受强度变为原来的十分之一)。这个特点对某些敏感样品如不能保持高功率激光照射的样品,尤其是生物酶和病毒等活菌体测量,将有重要的应用价值。另外,入射光束直径大则对应较小的光束色散,这样入射光束可以实现较远的工作距离。因此,这说明了单模光纤可以提供任意大的散射体积和远距离传输光信号的可能性。

-
- [1] R. Foord, E. Jakeman, C. J. Oliver, E. R. Pike, R. J. Blagrove, E. Wood, A. R. Peacock, *Nature* (London), **227**(1970), 242.
 - [2] B. E. Dahneke, Measurement of Suspended Particules by Quasi-Elastic Light Scattering(Wiley, New York ,1983).
 - [3] B. McNally, P. Ptain, E. R. Pike, Light Scattering and Photon Correlation Spectroscopy NATO AST Series, High Technology ,Vol. **40** , E. R. Pike and J. B. Abbiss(eds.) (1997), p. 117 .
 - [4] H. Dhadwal, B. Chu, *Rev. Sci. Instrum.* , **60**(1989), 845.
 - [5] J. McClymer, *Rev. Sci. Instrum.* , **61**(1990), 2001.
 - [6] H. Wiese, D. Horn, *J. Chem. Phys.* , **94**(1991), 6429.
 - [7] O. Glatter, J. Sieberer, H. Schnablegger, *Part. Part. Syst. Charact.* , **8**(1991), 274.
 - [8] E. R. Pike, J. G. Mcwhirter, C. Demol, *Proc. IEE* , **131**(1984), 660.
 - [9] C. F. Shannon, W. Weaver, *The Mathematical Theory of Communication* (University of Illinois Press , Chicago ,1949).
 - [10] E. R. Pike, B. M. McNally, *Scientific Computing* (Springer-Verlag , Berlin ,1997), p. 101 .
 - [11] J. M. Borwein, A. S. Lewis, *Mathematical Programming* , **57** (1992), 49.
 - [12] P. Pusey, Photon Correlation Spectroscopy and Velocimetry , H. Cummins and E. R. Pike(eds.)(Plenum , New York ,1976) ,pp. 45—142.
 - [13] E. Neumann, *Sing-Mode Fibers* (Springer-Verlag , Berlin ,1988) , Chap. 7.
 - [14] J. Hansen, I. McDonald, *Theory of Simple Liquids* (Academic , London ,1976) , Chap. 7.
 - [15] M. Kerker, *The Scattering of Light and Other Electromagnetic Radiation* (Academic , New York ,1969).
 - [16] P. Stephanek, *Dynamic Light Scattering* , W. Brown(eds.)(Oxford Science , Oxford ,1993) , Chap. 4.
 - [17] M. Klein, T. Furtag, *Optics* (Wiley , New York ,1986) , Chap. 7.
 - [18] E. Jakeman, *Photon Correlation and Light Beating Spectroscopy* , H. Cummins and E. R. Pike(eds.)(Plenum , New York ,1973) ,pp. 109—111.
 - [19] B. Saleh, *Photonelectron Statistics* (Springer-Verlag , Berlin , 1978) , Chap. 4.

PHOTON CORRELATION SPECTROSCOPY USING SINGLE-MODE OPTICAL FIBERS

HUANG WEI

(*Beijing Institute of Civil Engineering and Architecture, Beijing 100044, China*)

E. R. PIKE

(*Department of Physics, KCL, U. K. London, WC2R 2LS, England*)

(Received 7 November 2000; revised manuscript received 17 March 2001)

ABSTRACT

Obtaining true beautiful data from any photon correlation experiment demands on serious attention to improve the signal-to-noise ratio. Single-mode optical fibers provide the ideal receiver optics for photon correlation spectroscopy measurements. The analysis shows that a single-mode fiber can achieve a high collection efficiency and improve the signal-to-noise ratio effectively in photon correlation experiments. All these features are also demonstrated in experiments.

Keywords : single-mode optical fiber, photon correlation spectroscopy, signal-to-noise ratio, coherence factor

PACC : 4281, 0765, 4225