

文章编号: 1005-5630(2023)01-0025-07

DOI: 10.3969/j.issn.1005-5630.2023.001.004

基于柱矢量光束的纵向拉曼信号探测

徐万祥¹, 林 剑²

(1. 上海理工大学 光子芯片研究所, 上海 200093;
2. 上海理工大学 光电信息与计算机工程学院, 上海 200093)

摘要: 提出了一种获得径向偏振光中纵向分量激发拉曼信号的方法, 用于解决一般偏振拉曼信号无法检测分子取向垂直于样品的问题。首先使用聚焦后的角向偏振光和径向偏振光激发样品, 然后用两种激发光产生的拉曼信号进行计算, 得到由纯纵向光场激发的拉曼信号。使用 Si(0 0 1) 样品和 Si(1 1 0) 样品验证了该方法的可行性。这对于使用拉曼散射信号测量纵向取向的分子, 以及纵向的分子振动模式具有一定意义。

关键词: 径向偏振光; 纵向电场; 拉曼信号

中图分类号: O 437 **文献标志码:** A

Longitudinal Raman signal detection based on cylindrical vector beam

XU Wanxiang¹, LIN Jian²

(1. Institute of Photonic Chips, University of Shanghai for Science and Technology, Shanghai 200093, China;
2. School of Optical-Electrical and Computer Engineering, University of Shanghai for Science and Technology, Shanghai 200093, China)

Abstract: A method for achieving the Raman signal excited by the longitudinal component of radially polarized light is proposed in this paper to solve the problem that ordinary polarized Raman signal cannot detect samples with vertical molecular orientation. In this method, the focused azimuthally polarized light and radially polarized light are used to excite the sample, and then the Raman signals generated by the two excitation lights are calculated to obtain the Raman signals excited by the pure longitudinal light field. We use Si(0 0 1) samples and Si(1 1 0) samples to verify the feasibility of this method. This work has certain significance for measuring longitudinally oriented molecules and longitudinal molecular vibration modes by Raman scattering.

Keywords: radially polarized light; longitudinal electric field; Raman signal

收稿日期: 2022-02-12

基金项目: 国家自然科学基金(11874267)

第一作者: 徐万祥(1996—), 男, 硕士研究生, 研究方向为偏振拉曼。E-mail: 17863653599@163.com

通信作者: 林 剑(1979—), 男, 副教授, 研究方向为受激拉曼散射成像、多光子荧光成像、光学纳米成像。
E-mail: jianlin@usst.edu.cn

引 言

拉曼光谱以光子为探针, 具有无接触、无损伤和高灵敏度等优点, 是一种快速、可实时检测材料结构和微结构及声子与其他元激发间相互作用的有效工具, 利用它可以了解晶体内部的缺陷、晶格畸变及其相变等情况。分子取向对于理解材料的物理化学性质, 以及改进它们在各种实际应用中的性能具有重要意义^[1-3]。通过定量检测极性半导体横向光学(TO)和纵向光学(LO)拉曼峰信息可以判断其横向和纵向自由载流子密度和迁移率, 可以优化其电导率^[4]; 在对电场与纳米粒子取向关系的研究中通过模拟计算发现, 当激发光的偏振方向与纳米粒子排列方向一致时, 电场强度会被增强, 从而使拉曼散射信号增强, 近场成像实验结果也验证了上述结论^[5]。

通过控制激发光, 以及在探测时控制拉曼信号的偏振状态, 可以进行偏振拉曼信号的测量。偏振拉曼光谱除了可以提供常规拉曼光谱能够给出的一般化学识别信息之外, 还可以探测有关分子取向和化学键振动对称性的信息^[6]。偏振拉曼光谱的测量, 可以旋转样品以控制晶体轴和入射光束偏振之间的角度, 或是样品保持静止, 通过调整检偏器的方向来进行^[7-8]。目前偏振拉曼信号通常使用线偏振光激发, 激发光的偏振方向垂直于光束传播方向, 平行于样品表面, 可以有效检测分子取向均一并且平行于样品表面的样品, 但是不利于检测分子取向沿着光束传播方向且垂直于样品表面的样品。在通常使用的背散射实验条件下, 如果需要测量垂直取向的样品, 则需要改变样品的切割方向, 或者将样品旋转一定角度。例如在氧化锌样品中, 当入射光方向和晶体轴 Z 轴平行时, 为了观察此类材料中的纵向光学(LO)拉曼振动模式, 以往的实验会使用一块平行于晶体 Z 轴做 45°切割的材料样品或是沿 Z 轴 45°斜入射的线偏振光进行观察^[9-11], 这种方式加大了实验复杂度, 并且无法在同一条件下获

得三维偏振拉曼信号。

对径向偏振光束进行强聚焦, 理论上可以在焦点处产生较强的纵向偏振光场^[12-17], 可以用于激发纵向偏振的拉曼信号, 但焦点区域仍然有不可忽略的横向偏振分量, 会对纵向偏振拉曼信号的测量产生干扰。本文从理论角度说明了通过结合角向偏振光与径向偏振光激发的拉曼信号, 可以计算得到由纯纵向偏振光激发的拉曼信号, 并通过单晶硅的实验结果说明此方法确实可行。本文提出的纵向偏振拉曼信号的测量方法将有助于检测分子取向垂直的样品。

1 纵向偏振光激发的拉曼信号的计算

拉曼信号源自激发光与材料的非弹性散射, 在强聚焦的条件下, 焦点区域可能同时存在 x , y , z 偏振分量, 拉曼信号包括所有 3 个分量所激发的信号

$$I^{\text{Raman}}(\lambda) = \sum_i \sigma_i(\lambda) I_i^{\text{Laser}} \quad (1)$$

$$I_i^{\text{Laser}}(\lambda) = \iint |E_i(x, y)|^2 dx dy \quad (2)$$

式中: i 代表 x , y , z ; I_i^{Laser} 表示各个偏振分量的光强; $\sigma_i(\lambda)$ 为材料和探测器对 3 个电场分量的拉曼响应; $E_i(x, y)$ 为聚焦光场场强。可以看出, 拉曼信号并不总是正比于激光强度, 对于各向异性样品, 只有用偏振光激发, 才能探测到样品的偏振特性。在强聚焦条件下, 焦点区域可能存在一定强度的纵向偏振场, 它是矢量光场在聚焦过程中发生干涉的结果, 与 x 和 y 偏振分量总是同时存在。从式(1)可知, 纯纵向偏振分量激发的拉曼信号, 可以在总的拉曼信号中减去由 x 和 y 偏振分量激发的拉曼信号而获得。

首先考虑径向偏振光和角向偏振光的焦点光强分布。聚焦后的径向偏振光 $E_{\text{Radial}}^{(s)}$ 和角向偏振光 $E_{\text{Azimuthal}}^{(s)}$ 在焦点区域某一点的电场分布可以使用柱坐标系 $r = (\rho_s, \varphi_s, z_s)$ 计算^[13]

$$E_{\text{Radial}}^{(s)} = \frac{-iA}{\pi} \int_0^\alpha \int_{2\pi} \sin \theta \cos^{1/2} \theta l_0(\theta) e^{ik[z_s \cos \theta + \rho_s \sin \theta \cos(\varphi - \varphi_s)]} \begin{bmatrix} \cos \theta \cos \varphi \\ \cos \theta \sin \varphi \\ \sin \theta \end{bmatrix} d\varphi d\theta \quad (3)$$

$$E_{Azimuthal}^{(s)} = \frac{-iA}{\pi} \int_0^\alpha \int_{2\pi}^0 \sin \theta \cos^{\frac{1}{2}} \theta l_0(\theta) e^{ik[z_s \cos \theta + \rho_s \sin \theta \cos(\varphi - \varphi_s)]} \begin{bmatrix} -\sin \varphi \\ \cos \varphi \\ 0 \end{bmatrix} d\varphi d\theta \quad (4)$$

式中: $l_0(\theta) = \exp\left[-\beta_0^2\left(\frac{\sin \theta}{\sin \alpha}\right)^2\right] J_1\left(2\beta_0 \frac{\sin \theta}{\sin \alpha}\right)$; $\alpha = \arcsin(NA/n)$; $\beta_0 = 3/2$; A 为常数; J_1 为一阶贝塞尔函数; NA 是聚焦的数值孔径。

从式(3)和式(4)可以看出, 聚焦后的径向偏振光和角向偏振光具有强度相同的 x 和 y 偏振分量, 但是只有径向偏振光存在纵向偏振分量。图 1 是当 $NA = 0.95$ 时计算得到的径向偏振光径向分量在聚焦区域 $x-y$ 平面上和 $x-z$ 平面上的场强分布图和角向偏振光在聚焦区域 $x-y$ 平面上

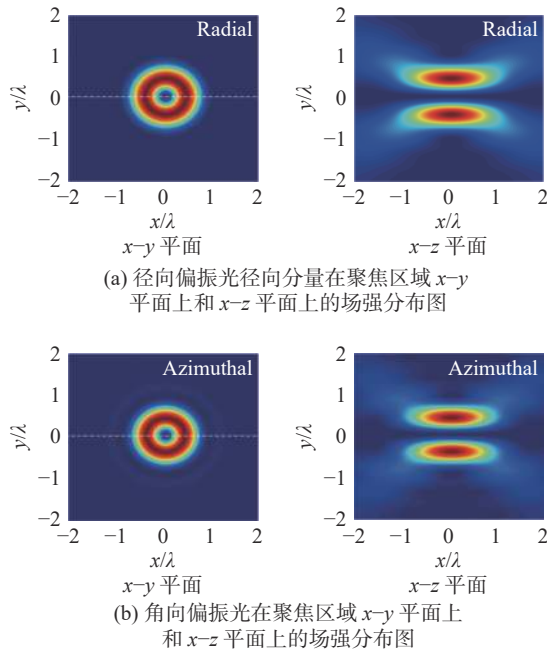


图 1 径向偏振光径向分量和角向偏振光在聚焦区域场强分布图以及横向分量强度曲线图

Fig. 1 Field intensity distribution and transverse component intensity of radially and azimuthally polarized light focusing area

和 $x-z$ 平面上的场强分布图。可以看到, 两种偏振状态的横向偏振分量强度分布在焦平面都是中心对称的甜甜圈形状, 在平行于光束传播方向平面上的分布都是双曲线形状。图 1(c) 为沿着图 1(a)、(b) 中虚线的强度曲线图, 其中两个峰值间距在 $1/10$ 波长范围内, 说明两种光束在焦点区域横向偏振分量的空间强度分布比较接近, 当这两个横向偏振分量的强度一致时, 可以认为所激发的拉曼信号相同。根据式(2)和式(3), 可以算出 x 或 y 偏振分量和 z 分量与总强度的比值分别为 26.3% 和 47.3%。当角向和径向偏振光的功率相同时, 纵向偏振光所激发的拉曼信号, 可以通过径向偏振光激发的拉曼信号按照一定比例减去角向偏振光激发的拉曼信号而获得, 其表达式为

$$I_{Longitudinal}^{Raman}(\lambda) = I_{Radial}^{Raman}(\lambda) - 2mI_{Azimuthal}^{Raman}(\lambda) \quad (5)$$

式中 m 为径向偏振光在焦点区域, x 或 y 偏振分量强度与总强度的比值。

为了验证此方法的正确性, 搭建了如图 2 所示的实验光路。激光器为 638 nm 的半导体激光器, 输出光束经保偏单模光纤出射, 入射光为线偏振光, 当加入径向偏振片后, 根据其旋转角度不同, 可以产生径向或角向偏振光。激发光由数值孔径为 0.95 的物镜聚焦到样品表面, 反射的拉曼信号经过检偏器由光纤光谱仪探测。根据入射光和检偏器的偏振方向, 拉曼信号的偏振模式可以通过 $z(is)\bar{z}$ 的形式来标记, 其中 z 和 \bar{z} 表示入

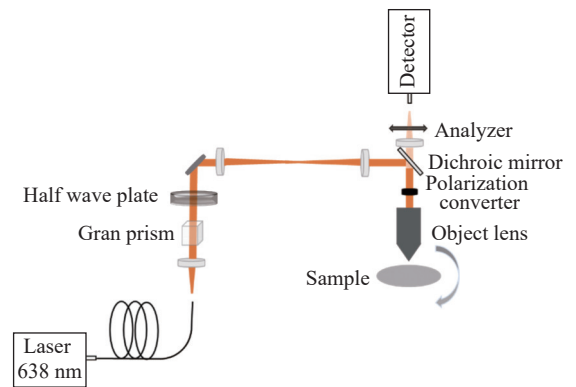


图 2 实验装置示意图
Fig. 2 Schematic of experimental setup

射光和信号光的传播方向，*i*和*s*代表入射光和检偏器的偏振方向。

2 单晶硅纵向偏振拉曼信号的计算

单晶硅是金刚石立方结构，具有三重简并 F_{2g} 拉曼活性光学声子，具有两个横向光学(TO)模式和一个纵向光学(LO)模式。晶体的 3 个晶轴 $\langle 100 \rangle$, $\langle 010 \rangle$, $\langle 001 \rangle$ 定义了晶体坐标系的 3 个方向 e_x , e_y 和 e_z 。硅只有 1 个主要拉曼峰，波数在 520 cm^{-1} 附近，其对线偏振光的拉曼响应的计算式为

$$\sigma_{z(i)s\bar{z}} \propto \sum_j |e_i R_j e_s|^2 \quad (6)$$

式中： e_i 和 e_s 是入射光和检偏器在晶体坐标系中偏振方向的方向矢量； R_j 是拉曼张量，*j*代表 *x*、*y* 或 *z*，拉曼张量与硅晶体的对称性相关， R_x 和 R_y 对应于横向光学 TO_1 , TO_2 模式， R_z 对应于纵向光学(LO)模式，具体表达式为

$$\begin{aligned} R_x &= \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & b \\ 0 & b & 0 \end{bmatrix}, R_y = \begin{bmatrix} 0 & 0 & b \\ 0 & 0 & 0 \\ b & 0 & 0 \end{bmatrix}, \\ R_z &= \begin{bmatrix} 0 & b & 0 \\ b & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \end{aligned} \quad (7)$$

对于晶面为 $\langle 110 \rangle$ 的单晶硅样品，晶体坐标系与实验室坐标系(由 *x*, *y*, *z* 表示)的空间关系如图 3 所示。电子材料最常见的拉曼散射配置是背散射^[18]。在这种散射配置下，入射光(k_i)沿 *z* 轴入射，散射光(k_s)沿 *z* 轴以 180° 反平行收集，入射光束保持水平偏振方向，检偏器的方向可以设置为水平偏振或垂直偏振，然后旋转样品来控

制晶体轴和入射光束偏振之间的角度。这与更常见的偏振拉曼散射方法相反。在偏振拉曼散射中，样品保持稳定，通过调整光学检偏器的方向来选择所需的散射偏振方向，或者在某些情况下，通过偏振旋转器改变入射偏振方向。因此，对于背散射模式，当入射偏振矢量 e_i 为 *x* 偏振，散射偏振矢量 e_s 可以通过在散射光的路径中放置检偏器来选择 *x* 偏振或 *y* 偏振。例如，当入射光的偏振方向为 *x* 或 *y*，检偏器的偏振方向为 *x* 时，偏振拉曼信号的模式记录为 $z(xx)\bar{z}$ 或 $z(yx)\bar{z}$ 。

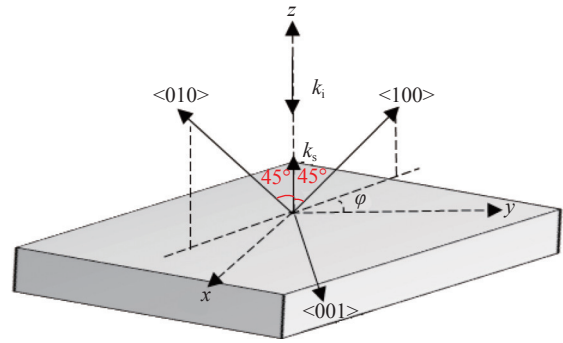


图 3 硅晶体坐标系与实验室坐标系的关系示意图

Fig. 3 Schematic diagram of the relationship between silicon crystal coordinate system and laboratory coordinate system

当样品绕 *z* 轴顺时针旋转角度为 φ ，实验室坐标系的方向矢量(1 0 0)，(0 1 0)和(0 0 1)对应的晶体坐标系的方向矢量为 $e_H^i = \left(\frac{\sqrt{2}}{2} \sin \varphi, -\frac{\sqrt{2}}{2} \sin \varphi, \cos \varphi \right)$ ， $e_V^i = \left(\frac{\sqrt{2}}{2} \cos \varphi, -\frac{\sqrt{2}}{2} \cos \varphi, -\sin \varphi \right)$ ， $e_z^i = \left(\frac{\sqrt{2}}{2}, \frac{\sqrt{2}}{2}, 0 \right)$ ，而探测部分偏振方向矢量沿 *x* 方向偏振固定不变，为 $e^s = \left(\frac{\sqrt{2}}{2} \sin \varphi, -\frac{\sqrt{2}}{2} \sin \varphi, \cos \varphi \right)$ 。基于上述定义中的单位偏振矢量，当检偏器的方向为 *x* 偏振时，根据式(6)可以计算样品在不同偏振模式下对激发光的拉曼响应。以 HH 模式为例

$$\sigma_{TO_1} \propto |e_x R_x e_x|^2 = \left| \begin{bmatrix} \frac{\sqrt{2}}{2} \sin \varphi, -\frac{\sqrt{2}}{2} \sin \varphi, \cos \varphi \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & b \\ 0 & b & 0 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \frac{\sqrt{2}}{2} \sin \varphi \\ -\frac{\sqrt{2}}{2} \sin \varphi \\ \cos \varphi \end{bmatrix} \right|^2 = \frac{1}{2} b^2 \sin^2(2\varphi) \quad (8)$$

$$\sigma_{TO_2} \propto |e_x R_y e_x|^2 = \left| \begin{bmatrix} \frac{\sqrt{2}}{2} \cos \varphi, -\frac{\sqrt{2}}{2} \cos \varphi, \sin \varphi \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 0 & 0 & b \\ 0 & 0 & 0 \\ b & 0 & 0 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \frac{\sqrt{2}}{2} \sin \varphi \\ -\frac{\sqrt{2}}{2} \sin \varphi \\ \cos \varphi \end{bmatrix} \right|^2 = \frac{1}{2} b^2 \sin^2(2\varphi) \quad (9)$$

$$\sigma_{LO} \propto |e_x R_z e_x|^2 = \left| \begin{bmatrix} \frac{\sqrt{2}}{2}, \frac{\sqrt{2}}{2}, 0 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 0 & b & 0 \\ b & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \frac{\sqrt{2}}{2} \sin \varphi \\ -\frac{\sqrt{2}}{2} \sin \varphi \\ \cos \varphi \end{bmatrix} \right|^2 = b^2 \sin^4 \varphi \quad (10)$$

每种模式的拉曼响应为 $\sigma_{\text{TO}_1} + \sigma_{\text{TO}_2} + \sigma_{\text{LO}}$, 计算得到 $z(xx)\bar{z}$, $z(yx)\bar{z}$ 和 $z(zx)\bar{z}$ 模式的拉曼响应分别为

$$\begin{aligned}\sigma_{z(xx)\bar{z}}^{\text{Si}(110)} &= b^2(\sin^4 \varphi + \sin^2 2\varphi) \\ \sigma_{z(yx)\bar{z}}^{\text{Si}(110)} &= b^2(\cos^4 \varphi + \sin^4 \varphi - \frac{1}{4}\sin^2(2\varphi)) \\ \sigma_{z(zx)\bar{z}}^{\text{Si}(110)} &= b^2\end{aligned}\quad (11)$$

当检偏器偏振为 x 方向时, 角向偏振光激发的拉曼响应为 x 和 y 偏振分量激发的 $z(xx)\bar{z}$ 模式和 $z(yx)\bar{z}$ 模式之和, 因此根据式(1)可得

$$\begin{aligned}I_{\text{Azimuthal}}^{\text{Raman}} &= I_{\text{Azimuthal}}^{\text{Laser}} \left(\frac{1}{2}\sigma_{z(xx)\bar{z}}^{\text{Si}(110)} + \frac{1}{2}\sigma_{z(yx)\bar{z}}^{\text{Si}(110)} \right) \\ &= \frac{1}{2}b^2(2\sin^4 \varphi + \cos^4 \varphi + \frac{3}{4}\sin^2(2\varphi))\end{aligned}\quad (12)$$

当聚焦的数值孔径为 0.95 时, 由式(2)和式(3)可知, 径向偏振光在焦点区域, x , y 和 z 偏振分量强度占总强度的比值分别为 26.3%, 26.3%, 47.4%。根据式(1)可得

$$\begin{aligned}I_{\text{Radial}}^{\text{Raman}} &= I_{\text{Radial}}^{\text{Laser}} \left(0.263\sigma_{z(xx)\bar{z}}^{\text{Si}(110)} + 0.263\sigma_{z(yx)\bar{z}}^{\text{Si}(110)} + \right. \\ &\quad \left. 0.474\sigma_{z(zx)\bar{z}}^{\text{Si}(110)} \right) \\ &= 0.263b^2(2\sin^4 \varphi + \cos^4 \varphi + \frac{3}{4}\sin^2(2\varphi)) + \\ &\quad 0.474b^2\end{aligned}\quad (13)$$

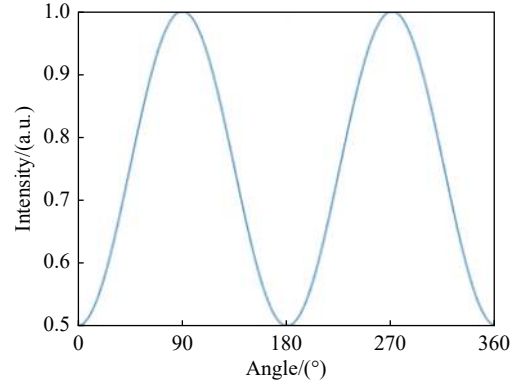
当 $I_{\text{Azimuthal}}^{\text{Laser}} = I_{\text{Radial}}^{\text{Laser}}$ 时, 根据式(5), 可以得到纵向偏振分量激发的拉曼信号为

$$I_{\text{Longitudinal}}^{\text{Raman}} = I_{\text{Radial}}^{\text{Laser}} - 0.526I_{\text{Azimuthal}}^{\text{Laser}}\quad (14)$$

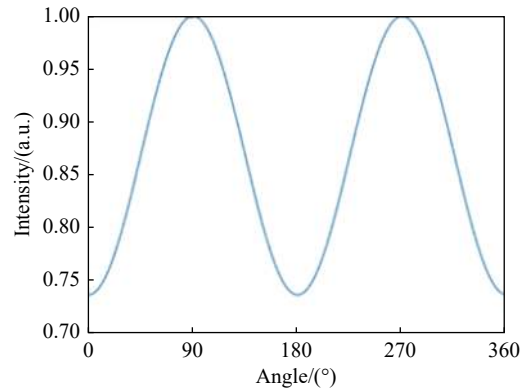
图 4 所示为计算得到的角向偏振光、径向偏振光和纵向分量激发的拉曼信号在分别归一化之后与样品旋转角度之间的关系。可以看到, 角向偏振和径向偏振的拉曼信号都有两个峰值和一个谷值, 径向偏振拉曼信号的谷值高于角向偏振光的拉曼信号强度, 而纵向偏振拉曼信号强度不随样品旋转角度变化。

3 单晶硅偏振拉曼的实验结果

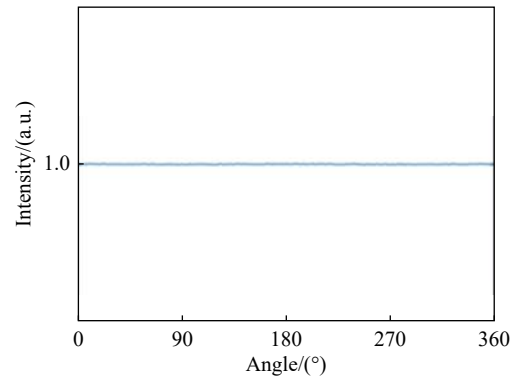
图 5 所示为实验测得的角向偏振光和径向偏振光激发的拉曼信号与样品旋转角度之间的关系, 以及将实验数据代入式(14)计算得到的纵



(a) 角向偏振光



(b) 径向偏振光



(c) 纵向偏振光

图 4 理论上入射光为角向偏振、径向偏振和纵向偏振, 探测部分为 x 偏振, 旋转 $\text{Si}(110)$ 样品计算得到的各模式对应的拉曼信号强度曲线图

Fig. 4 Raman signal intensity curve corresponding to each mode theoretically calculated by rotating silicon (110) wafer sample when the incident light is azimuthal polarization, radial polarization and longitudinal polarization, and the detection part is x polarization

向偏振分量激发的拉曼信号的强度, 其中角向偏振光和径向偏振光激发的拉曼信号根据激发光强度分别进行了归一化。可以看到, 角向偏振和径向偏振的拉曼信号强度随样品角度的变化情况、

强度的相对关系与计算得到的结果基本一致；纵向偏振拉曼信号的强度基本保持不变，也与计算结果保持一致。这些结果说明了本文提出的获得纵向偏振拉曼信号的方法是切实可行的。

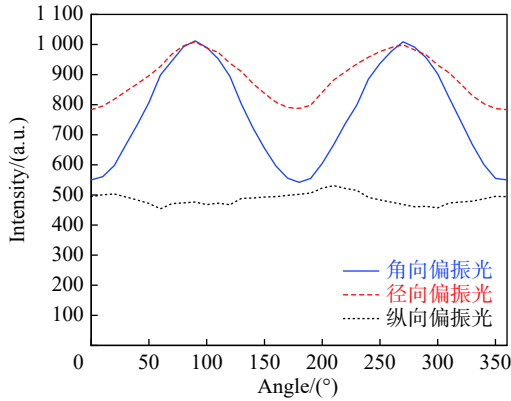


图 5 入射光为角向偏振和径向偏振，探测部分为 X 偏振，旋转 Si(1 1 0) 样品实验得到的拉曼信号强度曲线（纵向偏振光曲线为径向偏振-0.526×角向偏振实际计算得到）

Fig. 5 Raman signal intensity curves obtained by rotating Si(1 1 0) wafer samples with azimuthal polarization and radial polarization of incident light and X polarization of detection part. The longitudinally polarized light is actually calculated by radial polarization minus 0.526 times azimuthal polarization

4 结 论

提出了一种计算径向偏振光中纵向分量激发拉曼信号的方法。此方法首先根据入射光束偏振态、拉曼张量以及探测部分偏振态得出 Si(0 0 1) 样品和 Si(1 1 0) 样品理论拉曼信号强度，然后使用聚焦后的角向偏振光和径向偏振光激发 Si(0 0 1) 样品和 Si(1 1 0) 样品，用两种激发光产生的拉曼信号进行计算，得到由纯纵向光场激发的拉曼信号。硅片数值计算和实验结果证实了本文的实验系统可以准确地测量纵向分量所激发的拉曼信号强度。此方法可应用于其它样品中检测纵向分量的拉曼信号强度，对于探测纵向的分子振动模式具有一定意义。

参 考 文 献:

- [1] PETORAL R M, YAZDI G R, SPETZ A L, et al. Organosilane-functionalized wide band gap semiconductor surfaces[J]. *Applied Physics Letters*, 2007, 90(22): 223904.
- [2] LIU J, LIN Y H, LIANG L, et al. Templateless assembly of molecularly aligned conductive polymer nanowires: a new approach for oriented nanostructures[J]. *Chemistry – A European Journal*, 2003, 9(3): 604 – 611.
- [3] KIM D H, PARK Y D, JANG Y, et al. Enhancement of field-effect mobility due to surface-mediated molecular ordering in regioregular polythiophene thin film transistors[J]. *Advanced Functional Materials*, 2005, 15(1): 77 – 82.
- [4] PINES A, GIBBY M G, WAUGH J S. Proton-enhanced nuclear induction spectroscopy. A method for high resolution NMR of dilute spins in solids[J]. *The Journal of Chemical Physics*, 1972, 56(4): 1776 – 1777.
- [5] OSSIKOVSKI R, PICARDI G, NDONG G, et al. Raman spectroscopy and polarization: selected case studies[J]. *Comptes Rendus Physique*, 2012, 13(8): 837 – 852.
- [6] BOWER D I. Investigation of molecular orientation distributions by polarized Raman scattering and polarized fluorescence[J]. *Journal of Polymer Science: Polymer Physics Edition*, 1972, 10(11): 2135 – 2153.
- [7] RAMABADRAN U, ROUGHANI B. Intensity analysis of polarized Raman spectra for off axis single crystal silicon[J]. *Materials Science and Engineering: B*, 2018, 230: 31 – 42.
- [8] LI F, HUANG T D, LAN Y W, et al. Anomalous lattice vibrations of CVD-grown monolayer MoS₂ probed using linear polarized excitation light[J]. *Nanoscale*, 2019, 11(29): 13725 – 13730.
- [9] JIA B H, GAN X S, GU M. Direct observation of a pure focused evanescent field of a high numerical aperture objective lens by scanning near-field optical microscopy[J]. *Applied Physics Letters*, 2005, 86(13): 131110.
- [10] WOOD S, RIGAS G P, ZOLADEK-LEMANCZYK A, et al. Precise characterisation of molecular orientation in a single crystal field-effect transistor using polarised Raman spectroscopy[J]. *Scientific Reports*, 2016, 6: 33057.
- [11] TAKEDA Y, SHIBATA N, OKADA A. Three-dimensional crystallographic orientation measurement of polycrystalline alumina by Raman-microprobe polarization[J]. *Journal of the Ceramic Society of Japan*, 2001, 109(1265): 12 – 15.
- [12] LIN J, WEI S S, ZHUANG S L. Highly longitudinally polarized coherent anti-Stokes Raman scattering

- microscopy with improved spatial resolution[J]. *AIP Advances*, 2018, 8(10): 105327.
- [13] YOUNGWORTH K S, BROWN T G. Focusing of high numerical aperture cylindrical-vector beams[J]. *Optics Express*, 2000, 7(2): 77 – 87.
- [14] ZHAN Q W, LEGER J R. Focus shaping using cylindrical vector beams[J]. *Optics Express*, 2002, 10(7): 324 – 331.
- [15] SCHULTZ Z D, STRANICK S J, LEVIN I W. Advantages and artifacts of higher order modes in nanoparticle-enhanced backscattering Raman imaging[J]. *Analytical Chemistry*, 2009, 81(23): 9657 – 9663.
- [16] LI X P, VENUGOPALAN P, REN H R, et al. Super-resolved pure-transverse focal fields with an enhanced energy density through focus of an azimuthally polarized first-order vortex beam[J]. *Optics Letters*, 2014, 39(20): 5961 – 5964.
- [17] LI X P, LAN T H, TIEN C H, et al. Three-dimensional orientation-unlimited polarization encryption by a single optically configured vectorial beam[J]. *Nature Communications*, 2012, 3: 998.
- [18] TUSCHEL D. Application of Raman polarization selection rules: heterogeneous solid-state structure[J]. *Spectroscopy*, 2012, 27(3): 22 – 27.

(编辑: 张 磊)