

ОПТИКА И СПЕКТРОСКОПИЯ. ЛАЗЕРНАЯ ФИЗИКА

УДК 535.37+681.785.57

Безопорная низкокогерентная рефлектометрия случайно- неоднородных сред в условиях широкополосной спектральной селекции рассеянного зондирующего излучения

Е. А. Исаева, А. А. Исаева, Д. А. Зимняков

Исаева Елена Андреевна, кандидат физико-математических наук, доцент кафедры «Физика», Саратовский государственный технический университет имени Гагарина Ю. А., 27isaevaeva@mail.ru

Исаева Анна Андреевна, кандидат физико-математических наук, доцент кафедры «Физика», Саратовский государственный технический университет имени Гагарина Ю. А., isanna.1987@mail.ru

Зимняков Дмитрий Александрович, доктор физико-математических наук, профессор, заведующий кафедрой «Физика», Саратовский государственный технический университет имени Гагарина Ю. А.; главный научный сотрудник лаборатории проблем лазерной диагностики технических и живых систем, Институт проблем точной механики и управления РАН (Саратов), zimnykov@mail.ru

Представлены результаты экспериментальной верификации предложенного ранее метода безопорной низкокогерентной рефлектометрии насыщенных флуорофором случайно-неоднородных сред в условиях малой спектральной селективности системы детектирования флуоресцентного излучения среды. Увеличение ширины спектрального окна детектора приводит к существенному подавлению пространственных флуктуаций интенсивности флуоресценции, возбуждаемой накачкой непрерывным лазерным излучением. Тем не менее, зависимость индекса мерцаний пространственных флуктуаций интенсивности от центральной длины волны спектрально селектируемого флуоресцентного излучения, полученная в эксперименте с сильно рассеивающими флуоресцирующими средами (оптически толстыми слоями плотноупакованных наночастиц диоксида титана, насыщенными водным раствором родамина 6Ж), отображает установленные ранее характерные особенности переноса флуоресцентного излучения в подобных системах. К числу этих особенностей относится эффект возрастания средней длины распространения флуоресцентного излучения в системе вблизи максимума флуоресценции вследствие его спонтанного усиления при высоких концентрациях флуорофора. Полученные результаты демонстрируют возможность применения спектрометрических систем с относительно низким разрешением (с шириной спектрального окна порядка 1 нм) для реализации метода безопорной низкокогерентной рефлектометрии случайно-неоднородных сред.

Ключевые слова: частично когерентное излучение, спектральная селекция, стохастическая интерференция, спектр-модуляция, индекс мерцаний, случайно-неоднородные среды, флуоресценция.

Поступила в редакцию: 19.03.2019 / Принята: 13.09.2019 / Опубликовано: 02.12.2019

Статья опубликована на условиях лицензии Creative Commons Attribution License (CC-BY 4.0)

DOI: <https://doi.org/10.18500/1817-3020-2019-19-4-270-278>

© Исаева Е. А., Исаева А. А., Зимняков Д. А., 2019





Введение

Оптические методы зондирования сложных систем технического и биологического характера являются одним из перспективных подходов к получению комплексной информации о структуре и функциональных свойствах подобных систем в материаловедении и биомедицине [1–4]. В процессе взаимодействия света с дисперсными системами с упорядоченной или случайной структурой в условиях многократного рассеяния происходит стохастическая модуляция основных характеристик распространяющегося в среде света (амплитуды, частоты, поляризации). Результатом является стохастическая интерференция парциальных составляющих (волн) многократно рассеянного средой светового поля, внешне проявляющаяся в возникновении спекл-структур в рассеянном излучении при зондировании среды узкополосным (лазерным) излучением.

Многократно рассеянные зондируемыми средами спекл-модулированные световые поля в условиях частично когерентного зондирования могут анализироваться путем наложения на них «гладких» опорных световых полей. Подобный подход применяется, например, в оптической когерентной томографии и ее модификациях (в частности, в низкокогерентной рефлектометрии), с успехом используемых для решения диагностических задач в материаловедении и биомедицине [5–9].

Вместе с тем, в отсутствие наложения опорного светового поля корреляционный или спектральный анализ изменяющихся во времени спекл-модулированных рассеянных полей, порождаемых динамическим рассеянием лазерного излучения в нестационарных средах, позволяет получить информацию о динамике рассеивающих центров на пространственном масштабе порядка длины волны зондирующего излучения. Метод диффузионно-волновой спектроскопии, основанный на данном подходе, успешно применяется для изучения структурных перестроек пеноподобных материалов [10], термически активированных процессов в гидрогелях [11, 12], массопереноса в неупорядоченных пористых системах [13].

Определенный интерес представляет метод оптического зондирования с использованием спектральной селекции рассеянного средой широкополосного излучения, возникающего в результате флуоресценции среды, накачиваемой лазерным светом, либо в результате многократного рассеяния света от некогерентного источ-

ника зондирующего излучения (в отсутствие флуоресценции среды). В условиях высокой пространственной локализации зоны детектирования рассеянного излучения и узкополосной спектральной селекции детектируемый оптический сигнал будет претерпевать значительные флуктуации при изменении положения зоны детектирования на поверхности образца. Эти флуктуации обусловлены интерференцией парциальных составляющих светового поля, распространяющихся в среде по различным случайным траекториям и регистрируемых детектором. Поскольку значения разности фаз интерферирующих парциальных составляющих являются случайными величинами, то пространственные распределения интенсивности в формируемых подобным образом структурах будут иметь выраженный стохастический характер. Физическая модель этого явления может быть построена на основе рассмотрения зондируемой среды как многолучевого интерферометра со случайными значениями разности хода интерферирующих волн (парциальных составляющих). Подобный подход был ранее экспериментально верифицирован с использованием в качестве зондирующего излучения флуоресценции насыщенной лазерным красителем зондируемой среды. Флуоресценция возбуждалась путем накачки среды непрерывным лазерным излучением [14]. В данном случае осуществлялась узкополосная спектральная селекция флуоресцентного излучения с использованием спектрального окна с шириной 0.052 нм, а в качестве системы детектирования применялся рамановский микроскоп (LabRam GR 800, Horiba Jobin Yvon).

Возникает вопрос о возможности модификации инструментальной базы данного метода путем замещения дорогостоящей системы детектирования рассеянного флуоресцентного излучения на основе рамановского микроскопа более доступной системой, включающей в себя в качестве блока спектральной селекции портативный спектрометр общего назначения с существенно большей шириной спектрального окна (порядка 1 нм). В связи с этим целью данной работы явился статистический анализ стохастических интерференционных полей, формируемых сильно рассеивающими флуоресцирующими средами, с использованием метода безопорной низкокогерентной рефлектометрии [14] в условиях малой спектральной селективности системы детектирования флуоресцентного излучения среды.



Отметим также, что подобные исследования могут позволить получить значимые результаты для дальнейшей разработки технологий контроля лазерной генерации в сложных системах с локализацией света для фотонных приложений [15–17], сред с высокоэффективным преобразованием излучения для фотоэлектрических устройств [18, 19], а также методов биомедицинской диагностики, связанных с морфофункциональным анализом биотканей при зондировании в полосах поглощения хромофоров ткани.

1. Методика эксперимента

В работе представлены результаты исследования стохастических интерференционных полей, полученных при зондировании насыщенных красителем случайно-неоднородных сред с использованием статистического анализа пространственных распределений флуктуаций интенсивности флуоресценции на поверхностях исследуемых образцов. В качестве образцов использовались слои плотноупакованных наночастиц диоксида титана (Sigma Aldrich #637254, анатаз, размер частиц < 25 нм), насыщенных водным раствором родамина 6Ж с объемной долей красителя в растворе 0.005. Насыпная плотность частиц в зондируемых слоях составляла ~ 0.4 г/см³. Образцы получали путем помещения частиц диоксида титана в цилиндрическую кювету высотой 2 мм и внутренним

диаметром 6 мм. Полученные слои частиц диоксида титана насыщались водным раствором Родамина 6Ж. Измерения коэффициента диффузного пропускания насыщенных водой слоев частиц на длине волны 630 нм позволили приблизительно оценить их транспортный коэффициент рассеяния как $\mu_t \approx 23$ мм⁻¹. Таким образом, при толщине слоев $L = 2$ мм безразмерный параметр $L\mu_t$ существенно превышает 1, что позволяет считать зондируемые слои оптически толстыми средами.

Для реализации метода безопорной некогерентной рефлектометрии использовалась экспериментальная установка, схема которой представлена на рис. 1. Детектирование флуоресцентного излучения производилось в режиме сканирования вдоль поверхности исследуемого образца 3 с помощью подвижного транслятора 4. Флуоресценция в среде возбуждалась путем накачки среды непрерывным лазерным излучением с длиной волны 532 нм 1 (твердотельный лазер с диодной накачкой с выходной мощностью 50 мВт). Пучок лазерного излучения, проходя через рассеивающую линзу 2, расширялся, полностью перекрывая поверхность зондируемого слоя частиц. Микрообъектив с фокусным расстоянием 1.6 мм и числовой апертурой 1.25 5 использовался для локализации зоны детектирования на поверхности слоя. Изменения регистрируемой интенсивности в процессе

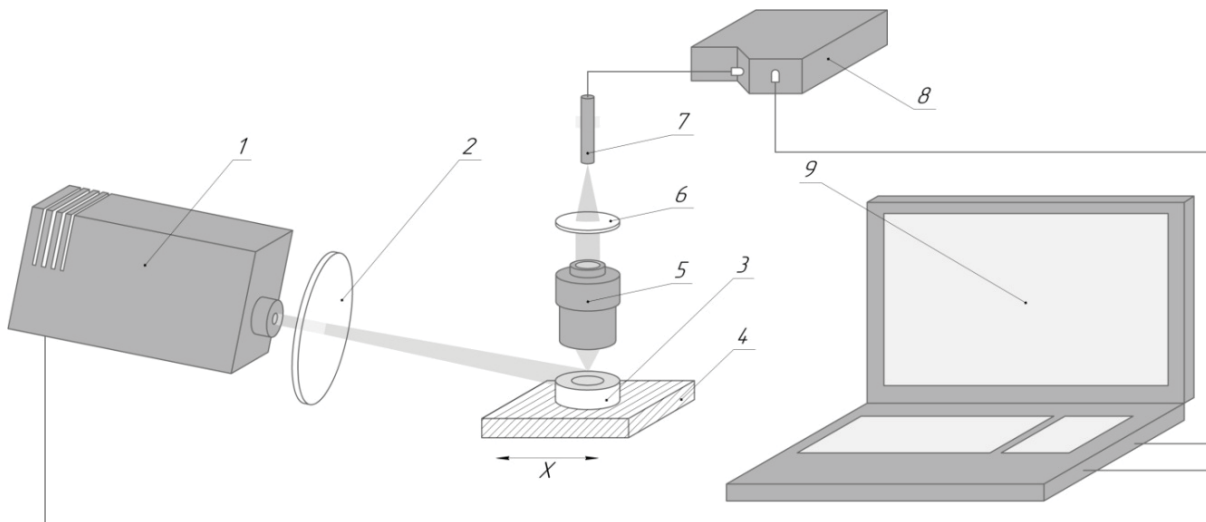


Рис. 1. Схема экспериментальной установки: 1 – непрерывный DPSS лазер (532 нм, выходная мощность 50 мВт); 2 – рассеивающая линза (фокусное расстояние 200 мм); 3 – исследуемая среда; 4 – однокоординатный транслятор; 5 – микрообъектив (Nikon E plan 100X, N.A.1.25); 6 – собирающая линза, 7 – оптоволокно (Ocean Optics P100 UV-VIS); 8 – спектрометр Ocean Optics HR4000CG-UV-NIR; 9 – ПК

Fig. 1. The scheme of the experimental setup: 1 – continuous wave laser (532 nm, output power 50 mW); 2 – concave lens (focal length 200 mm); 3 – the media under investigation; 4 – linear (1D) translation stage; 5 – micro-lens (Nikon E plan 100X, N.A.1.25); 6 – collecting lens; 7 – aperture-acting optical fiber (Ocean Optics P100 UV-VIS); 8 – Ocean Optics HR4000CG-UV-NIR spectrometer; 9 – PC



сканирования связаны со стохастической интерференцией рассеянного излучения в узкой полосе длин волн. Шаг смещения вдоль оси X при сканировании составлял 10 мкм. Система детектирования флуоресцентного излучения состояла из собирающей линзы с фокусным расстоянием 15 мм 6 и оптоволоконна 7 (Ocean Optics P100 UV-VIS, числовая апертура 0.22, диаметр световедущей сердцевины, выполняющей роль диафрагмы, равен 100 мкм), подключаемого ко входному разъему спектрометра 8 (Ocean Optics HR4000CG-UV-NIR). Эмпирически установлено, что линза 6 повышает эффективность вводимого в систему оптоволоконно-спектрометр сигнала. Спектры флуоресценции записывались с помощью специализированного программного обеспечения на персональном компьютере 9 . Ширина спектрального окна составляла приблизительно $\Delta\lambda = 0.78$ нм.

2. Экспериментальные результаты

На рис. 2 представлены типичные распределения интенсивности флуоресцентного излучения $I(\Delta X)$, полученные при пошаговом сканировании вдоль оси X , для нескольких длин волн из регистрируемого спектрального интервала (570–680 нм).

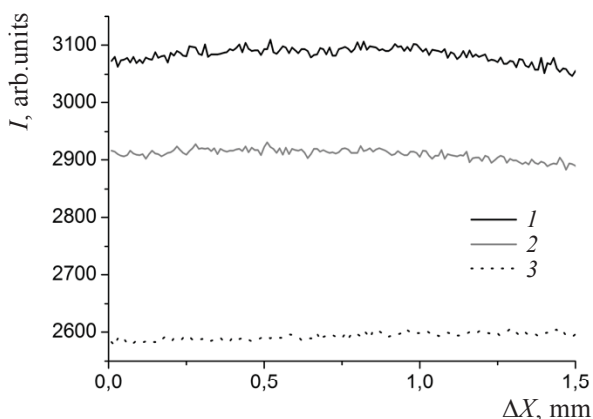


Рис. 2. Примеры распределений интенсивности флуоресцентного излучения, получаемых при линейном сканировании образца для различных длин волн: $1 - \lambda = 570$ нм, $2 - \lambda = 590$ нм, $3 - \lambda = 620$ нм

Fig. 2. Examples of the fluorescence intensity distributions at various wavelengths in the course of linear scanning of the sample: $1 - \lambda = 570$ nm, $2 - \lambda = 590$ nm, $3 - \lambda = 620$ nm

Интерпретация полученных экспериментальных данных осуществлялась в рамках подхода, рассмотренного в [14]; в соответствии с этим подходом статистические моменты

пространственных флуктуаций интенсивности излучения, многократно рассеянного случайно-неоднородной средой, могут быть представлены как интегральные преобразования функции плотности вероятности значений разности хода распространяющихся в среде парциальных составляющих рассеянного поля. Для нахождения функции плотности вероятности значений путей парциальных составляющих в среде с заданными оптическими параметрами целесообразно применить метод Монте-Карло моделирования переноса флуоресцентного излучения в среде.

Была принята следующая постановка задачи: излучение накачки попадало на поверхность образца и поглощалось красителем в приповерхностном слое толщиной в несколько микрометров, индуцируя тем самым флуоресценцию этого слоя. Флуоресцентное излучение в результате многократного рассеяния распространялось по всему объему образца. Распространение пакетов фотонов с единичным начальным весом моделировалось в среде со следующими параметрами: эффективный показатель преломления $n_{eff} = 2$ (значение оценивалось с учетом показателей преломления частиц TiO_2 и насыщающего водного раствора родамина 6Ж), коэффициент рассеяния $\mu_s = 23$ мм⁻¹, транспортный коэффициент рассеяния $\mu_t = 22.8$ мм⁻¹, коэффициент поглощения среды $\mu_a \approx 0$ мм⁻¹. Как отмечено выше, рассматриваемая среда относится к оптически «толстым» рассеивающим средам $L\mu_t \gg 1$.

Следует более подробно рассмотреть учет возможного поглощения среды в рамках Монте-Карло моделирования. Предполагается, что коэффициент диффузии излучения в среде, определяемый как $D_r = v_g l^*/3$ (v_g – групповая скорость и l^* – транспортная длина распространения света в среде), не зависит от поглощения среды [20]. Таким образом, на первой стадии моделирования функция плотности вероятности значений оптических путей парциальных составляющих $\rho(s)$ получается для рассматриваемой среды при отсутствии поглощения. Ненулевое поглощение среды (как положительное для пассивных сред, так и отрицательное для активных сред, усиливающих зондирующее излучение) может быть учтено путем модификации с помощью бугеровского множителя функции $\rho(s)$, полученной в результате Монте-Карло моделирования переноса излучения в непоглощающей среде [14]:

$$\rho'(s) = \rho(s) \exp(-\tilde{\mu}_a s), \quad (1)$$

где $\tilde{\mu}_a$ – эффективное значение коэффициента



поглощения, s – оптическая длина пути парциальных составляющих излучения. Отметим, что эффект поглощения в большей степени проявляется для парциальных составляющих, характеризующихся большими значениями путей распространения в среде. Соответственно, положительное поглощение (пассивные среды) сопровождается уменьшением вклада составляющих с большими s в регистрируемый оптический сигнал, а отрицательное поглощение (например, в средах со спонтанным усилением излучения) приводит к возрастанию вклада составляющих, соответствующих «хвосту» распределения $\rho(s)$. При этом справедливо следующее соотношение:

$$I(\mu_a)/I(0) = \int_0^\infty \rho'(s) ds / \int_0^\infty \rho(s) ds,$$

где $I(\mu_a)$ и $I(0)$ – значения интенсивности рассеянного света, регистрируемого при заданных условиях детектирования при наличии и в отсутствие поглощения среды соответственно. При дальнейшем анализе модифицированная функция плотности вероятности $\rho'(s)$ должна быть подвергнута перенормировке вида $K'\rho'(s)$ с коэффициентом, определяемым следующим выражением:

$$K' = \frac{1}{\int_0^\infty \rho'(s) ds}.$$

Входящая в выражение для статистического момента второго порядка флуктуаций интенсивности функция плотности вероятности разности путей парциальных составляющих в среде может быть рассчитана как [14]

$$\rho'(\Delta s) = K \int_0^\infty \rho'(s + \Delta s) \rho'(s) ds, \quad (2)$$

где нормировочный коэффициент K определяется по формуле

$$K = 1 / \left[\int_0^\infty \int_0^\infty \rho'(s + \Delta s) \rho'(s) ds \right] d(\Delta s), \quad (3)$$

а Δs – разность путей парциальных составляющих рассеянного излучения в среде. При расчете плотности распределения вероятностей разностей путей парциальных составляющих по данным Монте–Карло моделирования применялся частотный анализ полученного набора значений разностей путей.

Типичные примеры получаемых в результате моделирования распределений $\rho'(s)$ и $\rho'(\Delta s)$ представлены на рис. 3.

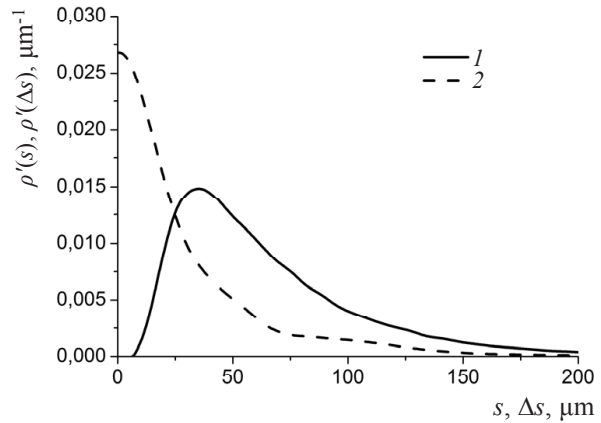


Рис. 3. Типичные кривые плотности распределения вероятностей путей парциальных составляющих $\rho'(s)$ и разностей путей $\rho'(\Delta s)$, полученные в результате моделирования методом Монте–Карло для представленных в тексте параметров анализируемой среды: 1 – $\rho'(s)$, 2 – $\rho'(\Delta s)$

Fig. 3. Dependences of the probability density functions on the optical path lengths of the partial components of the radiation $\rho'(s)$ and on the difference in the optical path lengths of the partial components of the radiation $\rho'(\Delta s)$, obtained from the Monte–Carlo simulation for the parameters of the analyzed medium: 1 – $\rho'(s)$, 2 – $\rho'(\Delta s)$

Среднее значение разности оптических длин путей рассчитывалось по формуле

$$\langle \Delta s \rangle = \int_0^\infty (\Delta s) \rho'(\Delta s) d(\Delta s). \quad (4)$$

Стохастическое интерференционное поле, регистрируемое в эксперименте, формируется в результате суперпозиции парциальных составляющих многократно рассеянного флуоресцентного излучения в среде. Подобный случай можно интерпретировать как результат некогерентного сложения двух линейно поляризованных статистически независимых составляющих (поляризационных мод) с ортогональными направлениями поляризации [14].

Индекс мерцания $\beta = \frac{\sigma_i^2}{\langle I \rangle^2}$, где σ_i^2 – дисперсия флуктуаций интенсивности рассеянного света, $\langle I \rangle$ – среднее значение интенсивности рассеянного света, многократно рассеянного линейно-поляризованного излучения, описывается соотношением [21]

$$\beta_l = \int_0^\infty |g(l_c, \Delta s)|^2 \rho'(\Delta s) d(\Delta s). \quad (5)$$

Тогда индекс мерцания для линейно поляризованных статистически независимых составляющих (поляризационных мод) с ортогональными направлениями поляризации может быть записан в виде:



$$\beta_{lp} = \frac{\sigma_i^2}{\langle I \rangle^2} = \frac{(\sigma_i^2)_{lp,||} + (\sigma_i^2)_{lp,\perp}}{(\langle I_{lp,||} \rangle + \langle I_{lp,\perp} \rangle)^2} \quad (6)$$

$$= \frac{1}{2} \frac{(\sigma_i^2)_{lp,||}}{(\langle I_{lp,||} \rangle)^2} = \frac{1}{2} \frac{(\sigma_i^2)_{lp,\perp}}{(\langle I_{lp,\perp} \rangle)^2} = \frac{1}{2} \int_0^\infty |g(l_c, \Delta s)|^2 \rho'(\Delta s) d(\Delta s),$$

где $|g(l_c, \Delta s)|$ – модуль нормированной функции (комплексной степени) временной когерентности излучения, l_c – длина временной когерентности излучения. Модуль комплексной степени когерентности $|g(l_c, \Delta s)|$ в условиях спектральной селекции рассеянного излучения прямоугольным окном определяется как

$$|g(l_c, \Delta s)| = \left| \frac{\sin\{\pi\Delta s/l_c\}}{\pi\Delta s/l_c} \right| \quad [22].$$

Для случая высокой степени когерентности излучения при $l_c \gg \langle \Delta s \rangle$ (где $l_c = \frac{\lambda_c^2}{\Delta\lambda}$, λ_c – средняя длина волны в спектральном интервале, выделяемом прямоугольным окном, $\Delta\lambda$ – ширина окна, $\langle \Delta s \rangle$ – среднее значение разностей путей парциальных составляющих) значение индекса мерцания детектируемого сигнала β_I должно стремиться к 0.5, а зависимости локальных значений интенсивности должны описываться релеевским распределением [14]. Для случая низкой степени когерентности $l_c \ll \langle \Delta s \rangle$ распределение

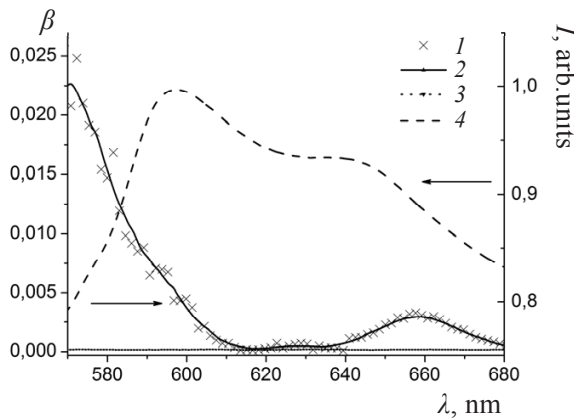


Рис. 4. Значения индекса мерцаний β (1) и усредненной по выборке средней интенсивности регистрируемого флуоресцентного отклика среды (4) в зависимости от средней длины волны в выделяемом спектральном интервале. 2 – кривая, интерполирующая полученные в эксперименте значения индекса мерцаний; 3 – уровень шума используемой системы детектирования

Fig. 4. The values of oscillation index (I) and average intensity of the recorded fluorescence response of medium (4) depending on the average wavelength in the detected spectral range. 2 is a curve interpolating the experimentally obtained values of the oscillation index; 3 is a noise level of the used detection system

интенсивности описывается гауссовой статистикой и малыми значениями индекса мерцания β_I .

Таким образом, возрастание $\langle \Delta s \rangle$ и, соответственно, «уширение» распределения $\rho(\Delta s)$ при заданных условиях детектирования сопровождается уменьшением значения индекса мерцания.

На рис. 4 представлены полученные в эксперименте значения индекса мерцаний и средней интенсивности спектрально селективируемого флуоресцентного излучения в зависимости от средней длины волны в спектральном интервале, выделяемом скользящим окном шириной 0.78 нм.

3. Обсуждение результатов

Существенно немонотонное поведение β в зависимости от λ (см. рис. 4) может быть интерпретировано в рамках представлений о влиянии поглощения и рассеяния флуоресцентного излучения в зондируемой среде на плотность вероятности значений разности путей парциальных составляющих поля флуоресцентного излучения. В частности, максимальные значения индекса мерцаний, наблюдаемые на высокочастотной границе анализируемого спектрального интервала, предположительно обусловлены влиянием длинноволнового крыла спектра поглощения раствора родамина. Убывание коэффициента поглощения среды, обусловленного собственным поглощением родамина, с ростом длины волны приводит к возрастанию значения $\langle \Delta s \rangle$ и, в соответствии с выражением (5) – к убыванию β . Резкий спад индекса мерцаний в спектральном интервале от 580 нм до 630 нм, коррелирующий с существенным возрастанием интенсивности в этом интервале (рис. 4, кривая 4), предположительно обусловлен эффектом спонтанного усиления флуоресцентного излучения. Подобный физический механизм обсуждался ранее в [14]. Соответственно, убывание флуоресцентного отклика среды и эффективности спонтанного усиления в сочетании с влиянием остаточного поглощения флуорофора в длинноволновой области (в интервале от 640 нм до 660 нм) приводят к незначительному возрастанию β и появлению низкоамплитудного локального максимума индекса мерцаний на 660 нм. При дальнейшем увеличении длины волны спектрально селективируемого зондирующего излучения роль остаточного собственного поглощения раствора флуорофора



сводится к минимуму при одновременном снижении фактора эффективности рассеяния частиц, образующих зондируемую среду. Влиянием этих факторов предположительно обусловлено возрастание $\langle \Delta s \rangle$ и, соответственно, наблюдаемое в эксперименте убывание индекса мерцаний для длин волн $\lambda > 660$ нм (см. рис. 4).

Заключение

Установлена зависимость индекса мерцания пространственных флуктуаций интенсивности от центральной длины волны спектрально селективного флуоресцентного излучения для оптически толстых слоев плотноупакованных наночастиц диоксида титана в случае малой спектральной селективности системы детектирования. Подобный эффект согласуется с результатами, полученными для случая системы с высокой спектральной селективностью детектора, и предположительно обусловлен спектральной зависимостью отрицательного поглощения флуоресцентного излучения в исследуемой среде (что, в свою очередь, связано со спонтанным усилением флуоресценции при высоких концентрациях красителя). Показано, что метод безпорной низкокогерентной интерферометрии на основе статистического анализа флуктуаций интенсивности излучения может быть реализован с использованием спектрометрических систем с относительно низким разрешением (с шириной спектрального окна порядка 1 нм). Подобные исследования играют важную роль для развития существующих и создания новых методов флуоресцентной диагностики в биомедицине и материаловедении.

Благодарности

Исследование выполнено при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект № 18-32-00584).

Список литературы

1. Brunel L., Brun A., Snabre P., Cipelletti L. Adaptive speckle imaging interferometry: a new technique for the analysis of microstructure dynamics, drying processes and coating formation // *Opt. Exp.* 2007. Vol. 15, № 23. P. 15250–15259. DOI:10.1364/OE.15.015250
2. Liu B., Brezinski M. E. Theoretical and practical considerations on detection performance of time domain, Fourier domain, and swept source optical coherence tomography // *J. Biomed. Opt.* 2007. Vol. 12, iss. 4. P. 044007 – 044011. DOI: 10.1117/1.2753410
3. Zakharov P., Cardinaux F., Scheffold F. Multispeckle diffusing-wave spectroscopy with a single-mode detection scheme // *Phys. Rev. E Stat. Nonlin. Soft Matter Phys.* 2006. Vol. 73, iss. 1. P. 011413–011416. DOI: 10.1103/PhysRevE.73.011413
4. Прокурин С. Г., Кускова Н. А., Авсиевич Т. И. Оптические доплеровские методы для измерения скорости потоков биологических жидкостей // *Изв. Сарат. ун-та. Нов. сер. Сер. Физика.* 2017. Т. 17, вып. 4. С. 269–280. DOI: <https://doi.org/10.18500/1817-3020-2017-17-4-269-280>
5. Huang D., Swanson E. A., Lin C. P., Schuman J. S., Stinson W. G., Chang W., Hee M. R., Flotte T., Gregory K., Puliafito C. A., Fujimoto J. G. Optical coherence tomography // *Science.* 1991. Vol. 5035, iss. 254. P. 1178–1181. DOI: 10.1126/science.1957169
6. Fujimoto J. G., Brezinski M. E., Tearney G. J., Boppart S. A., Bouma B., Hee M. R., Southern J. F., Swanson E. A. Optical biopsy and imaging using optical coherence tomography // *Nat Med.* 1995. Vol. 1. P. 970–972.
7. Narayan R. J. Monitoring and Evaluation of Biomaterials and their Performance *In Vivo*. Amsterdam : Woodhead Publ., 2017. 224 с.
8. Shirazi M. F., Jeon M., Kim J. Structural Analysis of Polymer Composites Using Spectral Domain Optical Coherence Tomography // *Sensors (Basel).* 2017. Vol. 5, iss.17. P. 1155. DOI: 10.3390/s17051155
9. Ульянова О. В., Ульянов С. С., Зайцев С. С., Хиженякова М. А., Салтыков Ю. В., Филонова Н. Н., Субботина И. А., Ляпина А. М., Федорова В. А. Исследование статистических характеристик оптических GB-спеклов, формирующихся при рассеянии света на виртуальных структурах нуклеотидных последовательностей генов энтеробактерий // *Изв. Сарат. ун-та. Нов. сер. Сер. Физика.* 2018. Т. 18, вып. 2. С. 123–137. DOI: <https://doi.org/10.18500/1817-3020-2018-18-2-123-137>
10. Durian D. J., Weitz D. A., Pine D. J. Dynamics and coarsening in three-dimensional foams // *J. Phys. Condens. Matter.* 1990. Vol. 2. P. SA433–SA436. DOI: 10.1088/0953-8984/2/S/069
11. Isaeva A. A., Isaeva E. A. Spatially resolved speckle correlometry in application to media structure characterization // *IEEE, Laser Optics International Conference.* 2014. Vol. 6886501. P. 501214. DOI: 10.1109/LO.2014.6886501
12. Zimnyakov D. A., Isaeva A. A., Isaeva E. A., Ushakova O. V. Speckle-correlation analysis of the dynamic scatterers in temperature-governed gelation // *Proc. SPIE.* 2016. Vol. 9917. P. 99172E–99178E. DOI: 10.1117/12.2229822
13. Zimnyakov D. A., Sadovoi A. V., Vilenskii M. A., Zakharov P. V., Myllylä R. Critical behavior of phase interfaces in porous media: Analysis of scaling properties with the use of noncoherent and coherent light // *JETP.* 2009. Vol. 108, № 2. P. 311–325. DOI: 10.1134/S1063776109020149



14. Zimnyakov D. A., Yuvchenko S. A., Pavlova M. V., Alonova M. V. Reference-free path length interferometry of random media with the intensity moments analysis // *Opt. Express*. 2017. Vol. 25, iss. 13. P. 13953–13972. DOI: 10.1364/OE.25.013953
15. Wiersma D. S., Lagendijk A. Light diffusion with gain and random lasers // *Phys. Rev. E*. 1996. Vol. 54, iss. 4. P. 4256–4265
16. Van der Molen K. L., Mosk A. P., Lagendijk A. Quantitative analysis of several random lasers // *Opt. Commun.* 2007. Vol. 278. P. 110–113. DOI: 10.1016/j.optcom.2007.05.047
17. El-Dardiry R. G., Lagendijk A. Tuning random lasers by engineered absorption // *App. Phys. Lett.* 2011. Vol. 98, iss. 16. P. 161106–08. DOI: <https://doi.org/10.1063/1.3571452>
18. Colodrero S., Calvo M. E., Miguez H. Photon management in dye sensitized solar cells. Электронный ресурс. URL: https://www.researchgate.net/publication/221907408_Photon_Management_in_Dye_Sensitized_Solar_Cells (дата обращения: 1.04 2019). DOI: 10.5772/8077
19. Mihi A., Miguez H. Origin of light-harvesting enhancement in colloidal-photonic-crystal-based dye-sensitized solar cells // *J. Phys. Chem. B*. 2005. Vol. 109, iss. 33. P. 15968–76. DOI: 10.1021/jp051828g
20. Furutsu K., Yamada Y. Diffusion approximation for dissipative random medium and the applications // *Phys. Rev. E*. 1994. Vol. 50, iss. 5. P. 3634–3640. DOI: <https://doi.org/10.1103/PhysRevE.50.3634>
21. Zimnyakov D. A., Oh J.-T., Sinichkin Yu. P., Trifonov V. A., Gurianov E. V. Polarization-sensitive speckle spectroscopy of scattering media beyond the diffusion limit // *J. Opt. Soc. Am. A*. 2004. Vol. 21, iss. 59. P. 59–70. DOI: <https://doi.org/10.1364/JOSAA.21.000059>
22. Born M., Wolf E. Principles of Optics. 7th ed. Cambridge: Cambridge University Press, 1999. 987 p.

Образец для цитирования:

Исаева Е. А., Исаева А. А., Зимняков Д. А. Безопорная низкокогерентная рефлектометрия случайно-неоднородных сред в условиях широкополосной спектральной селекции рассеянного зондирующего излучения // *Изв. Сарат. ун-та. Нов. сер. Сер. Физика*. 2019. Т. 19, вып. 4. С. 270–278. DOI: <https://doi.org/10.18500/1817-3020-2019-19-4-270-278>

Referenceless Low-Coherence Reflectometry of Random Media under Wide-Band Spectral Selection of Scattered Probe Light

E. A. Isaeva, A. A. Isaeva, D. A. Zimnyakov

Elena A. Isaeva, <https://orcid.org/0000-0003-0407-312X>, Yuri Gagarin State Technical University of Saratov, 77 Politechnicheskaya St., Saratov 410054, Russia, 27isaevaea@mail.ru

Anna A. Isaeva, <https://orcid.org/0000-0002-2925-2733>, Yuri Gagarin State Technical University of Saratov, 77 Politechnicheskaya St., Saratov 410054, Russia, isanna.1987@mail.ru

Dmitry A. Zimnyakov, <https://orcid.org/0000-0002-9787-7903>, Yuri Gagarin State Technical University of Saratov, 77 Politechnicheskaya St., Saratov 410054, Russia, zimnykov@mail.ru

Background and Objectives: The optical probes of randomly inhomogeneous media, based on analysis of the statistical parameters of the scattered light intensity, are sensitive to optical, structural, and transport parameters of the medium. A promising approach among the low-coherence optical methods is an approach in which the medium is considered as a multi-beam interferometer with randomly distributed values of the path difference of the interfering beams (partial waves). It is interesting to verify the potential of the referenceless low coherence reflectometry using a detection system with the low spectral selectivity (for example, a portable spectrometer with the spectral resolution of about 1 nm). On the one hand, the study of the dynamics and spectral features of fluorescence caused by the structural properties of the media makes it possible to explore more deeply the fundamental processes of conversion, transfer and amplification of radiation in heterogeneous micro- and nanostructured systems. On the other hand, such study will expand the potential of the existing low-coherence techniques. The aim of this work was a statistical analysis of stochastic interference

fields generated by the strongly scattering fluorescent media using the reference-free path length low-coherence reflectometry under the condition of low spectral selectivity of the detection system. **Materials and Methods:** The investigation of the stochastic interference of the fluorescence radiation scattered by the dye-doped random medium using reference-free path length reflectometry under the condition of low spectral selectivity of the detection system was carried out. A water solution of Rhodamine 6G was used as the dye. Strongly scattering media were composed by close-packed titanium dioxide particles. The width of the spectral window was about 1 nm. The probability distributions of the optical path length of partial components and their differences were evaluated by using Monte-Carlo simulation with certain parameters of the modeled medium (the refractive index, the reduced scattering coefficient and the absorption coefficient). **Results:** The strong dispersion of the oscillation index of fluorescent radiation was observed. Such significant non-monotonic behavior of the oscillation index can be interpreted in terms of the influence of the absorption and scattering of fluorescent radiation in the probed medium on the probability density of path difference of the partial components of fluorescent radiation. In particular, the maximum of the oscillation index observed at the high-frequency boundary of the analyzed spectral range is presumably caused by the optical absorbance of Rhodamine solution at the long-wavelength region. A sharp decrease of the oscillation index curve in the spectral range from 580 nm to 630 nm, which correlates with a significant increase in the fluorescence intensity in this interval, is presumably caused by the effect of spontaneous amplification of fluorescence radiation. The obtained data correlate with previously reported data for the case of narrow spectral selection with the spectral window about 0.05 nm. **Conclusion:** It was shown that the reference-free path low-coherence reflectometry based on the statistical analysis of spatial fluctuations of the radiation intensity can be implemented using spectrometric systems with relatively low resolution (with the spectral window width about 1 nm). Such studies can be considered as the physical basis for creating new approaches and improving the existing ones to fluorescence diagnostics of the randomly inhomogeneous media in the biomedicine and material science.



Keywords: partially coherent radiation, spectral selection, stochastic interference, speckle modulation, oscillation index, randomly inhomogeneous media, fluorescence.

Received: 19.03.2019/Accepted: 13.09.2019/Published: 02.12.2019

This is an open access article distributed under the terms of Creative Commons Attribution License (CC-BY 4.0).

Acknowledgements: This work was supported by the Russian Foundation for Basic Research (project No. 18-32-00584).

References

1. Brunel L., Brun A., Snabre P., Cipelletti L. Adaptive speckle imaging interferometry: a new technique for the analysis of microstructure dynamics, drying processes and coating formation. *Optics Express*, 2007, vol. 15, no. 23, pp. 15250–15259. DOI: 10.1364/OE.15.015250
2. Liu B., Brezinski M. E. Theoretical and practical considerations on detection performance of time domain, Fourier domain, and swept source optical coherence tomography. *J. Biomed. Opt.*, 2007, vol. 12, iss. 4, pp. 044007–0440011. DOI: 10.1117/1.2753410
3. Zakharov P., Cardinaux F., Scheffold F. Multispeckle diffusing-wave spectroscopy with a single-mode detection scheme. *Phys. Rev. E Stat. Nonlin. Soft Matter Phys.*, 2006, vol. 73, iss. 1, pp. 011413–011416. DOI: 10.1103/PhysRevE.73.011413
4. Proskurin S. G., Kuskova N. A., Avsievich T. I. Optical Doppler Methods for the Measurements of Flow Velocities of Biological Liquids. *Izv. Saratov Univ. (N. S.), Ser. Physics*, 2017, vol. 17, iss. 4, pp. 269–280 (in Russian). DOI: <https://doi.org/10.18500/1817-3020-2017-17-4-269-280>
5. Huang D., Swanson E. A., Lin C. P., Schuman J. S., Stinson W. G., Chang W., Hee M. R., Flotte T., Gregory K., Puliafito C. A., Fujimoto J. G. Optical coherence tomography. *Science*, 1991, vol. 5035, iss. 254, pp. 1178–1181. DOI: 10.1126/science.1957169
6. Fujimoto J. G., Brezinski M. E., Tearney G. J., Boppart S. A., Bouma B., Hee M. R., Southern J. F., Swanson E. A. Optical biopsy and imaging using optical coherence tomography. *Nat. Med.*, 1995, vol. 1, pp. 970–972.
7. Narayan R. J. *Monitoring and Evaluation of Biomaterials and Their Performance in Vivo*. Amsterdam, Woodhead Publishing. 2017. 224 p.
8. Shirazi M. F., Jeon M., Kim J. Structural Analysis of Polymer Composites Using Spectral Domain Optical Coherence Tomography. *Sensors (Basel)*, 2017, vol. 5, iss. 17, pp. 1155. DOI: 10.3390/s17051155
9. Ulyanov S. S., Ulianova O. V., Zaitsev S. S., Khizhnyakova M. A., Saltykov Yu. V., Filonova N. N., Subbotina I. A., Lyapina A. M., Feodorova V. A. Study of Statistical Characteristics of GB-speckles, Forming at Scattering of Light on Virtual Structures of Nucleotide Gene Sequences of Enterobacteria. *Izv. Saratov Univ. (N. S.), Ser. Physics*, 2018, vol. 18, iss. 2, pp. 123–137 (in Russian). DOI: <https://doi.org/10.18500/1817-3020-2018-18-2-123-137>
10. Durian D. J., Weitz D. A., Pine D. J. Dynamics and coarsening in three-dimensional foams. *J. Phys. Condens. Matter*, 1990, vol. 2, pp. SA433–SA436. DOI: 10.1088/0953-8984/2/S/069
11. Isaeva A. A., Isaeva E. A. Spatially resolved speckle correlometry in application to media structure characterization. *IEEE, Laser Optics, International Conference*, 2014, vol. 6886501, pp. 501214. DOI: 10.1109/LO.2014.6886501
12. Zimnyakov D. A., Isaeva A. A., Isaeva E. A., Ushakova O. V. Speckle-correlation analysis of the dynamic scatterers in temperature-governed gelation. *Proc. SPIE.*, 2016, vol. 9917, pp. 99172E–99178E. DOI: 10.1117/12.2229822
13. Zimnyakov D. A., Sadovoi A. V., Vilenskii M. A., Zakharov P. V., Myllylä R. Critical behavior of phase interfaces in porous media: Analysis of scaling properties with the use of noncoherent and coherent light. *JETP*, 2009, vol. 108, no. 2, pp. 311–325. DOI: 10.1134/S1063776109020149
14. Zimnyakov D. A., Yuvchenko S. A., Pavlova M. V., Alonova M. V. Reference-free path length interferometry of random media with the intensity moments analysis. *Optics Express*, 2017, vol. 25, iss. 13, pp. 13953–13972. DOI: 10.1364/OE.25.013953
15. Wiersma D. S., Lagendijk A. Light diffusion with gain and random lasers. *Phys. Rev. E*, 1996, vol. 54, iss. 4, pp. 4256–4265.
16. Van der Molen K. L., Mosk A. P., Lagendijk A. Quantitative analysis of several random lasers. *Opt. Commun.*, 2007, vol. 278, pp. 110–113. DOI: 10.1016/j.optcom.2007.05.047
17. El-Dardiry R. G., Lagendijk A. Tuning random lasers by engineered absorption. *App. Phys. Lett.*, 2011, vol. 98, iss. 16, pp. 161106–08. DOI: <https://doi.org/10.1063/1.3571452>
18. Colodrero S., Calvo M. E., Miguez H. *Photon management in dye sensitized solar cells*. Available at: https://www.researchgate.net/publication/221907408_Photon_Management_in_Dye_Sensitized_Solar_Cells (accessed 1 April 2019). DOI: 10.5772/8077
19. Mihi A., Miguez H. Origin of light-harvesting enhancement in colloidal-photonic-crystal-based dye-sensitized solar cells. *J. Phys. Chem. B*, 2005, vol. 109, iss. 33, pp. 15968–76. DOI: 10.1021/jp051828g
20. Furutsu K., Yamada Y. Diffusion approximation for dissipative random medium and the applications. *Phys. Rev. E*, 1994, vol. 50, iss. 5, pp. 3634–3640. DOI: <https://doi.org/10.1103/PhysRevE.50.3634>
21. Zimnyakov D. A., Oh J.-T., Sinichkin Yu. P., Trifonov V. A., Gurianov E. V. Polarization-sensitive speckle spectroscopy of scattering media beyond the diffusion limit. *J. Opt. Soc. Am. A*, 2004, vol. 21, iss. 59, pp. 59–70. DOI: <https://doi.org/10.1364/JOSAA.21.000059>
22. Born M., Wolf E. *Principles of Optics*. 7th ed. Cambridge, Cambridge University Press. 1999. 987 p.

Cite this article as:

Isaeva E. A., Isaeva A. A., Zimnyakov D. A. Referenceless Low-Coherence Reflectometry of Random Media under Wide-Band Spectral Selection of Scattered Probe Light. *Izv. Saratov Univ. (N. S.), Ser. Physics*, 2019, vol. 19, iss. 4, pp. 270–278 (in Russian). DOI: <https://doi.org/10.18500/1817-3020-2019-19-4-270-278>