

УДК 544.08

АНАЛИЗ СПЕКТРОВ ПРОПУСКАНИЯ ОПТИЧЕСКИХ МИКРОРЕЗОНАТОРОВ МЕТОДОМ УШИРЕНИЯ МОДЫ

Д. Д. Ружицкая^{1,2}, А. А. Самойленко², А. Д. Иванов²,
К. Н. Миньков^{2,3}

¹Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова,
119991, Москва, Ленинские горы, 1

²Всероссийский научно-исследовательский институт оптико-физических измерений,
119361, Москва, ул. Озёрная, 46

³Московский институт электроники и математики им. А. Н. Тихонова
Национального исследовательского университета Высшей школы экономики,
101000, Москва, ул. Мясницкая, 20
E-mail: Academi@ya.ru

Представлен алгоритм обработки спектров пропускания оптических микрорезонаторов с модами «шепчущей галереи» для применения в качестве детектора наночастиц. Алгоритм основан на уширении резонансной кривой микрорезонатора при осаждении наночастиц на его поверхности. Сопоставлены экспериментальные результаты по детектированию частиц с теорией адсорбции Ленгмюра. Оценён вклад нестабильности источника возбуждающего излучения, вызванной температурным дрейфом резонансной частоты, в погрешность измерений.

Ключевые слова: оптические микрорезонаторы, оптический сенсор, наночастицы, моды «шепчущей галереи», теория адсорбции Ленгмюра.

DOI: 10.15372/AUT20180110

Введение. Оптические диэлектрические микрорезонаторы (ОДМР) представляют собой тела вращения, изготовленные из оптически прозрачного материала. По внутренней поверхности ОДМР, вблизи его экватора, по замкнутой траектории возможно распространение излучения и образование оптических резонансов. Такие резонансные моды называются модами «шепчущей галереи». Они обладают высокой добротностью, что позволяет использовать их для определения малых флуктуаций показателя преломления в окружающей среде с большой чувствительностью [1]. Высокая чувствительность спектров пропускания ОДМР к различным неоднородностям позволяет применять их в качестве сенсоров, которые могут обнаруживать наноразмерные частицы [2].

Принцип действия разработанного адсорбционного сенсора основан на следующем явлении. Наночастицы, которые оседают на поверхность ОДМР, вблизи его экватора, оказываются связанными с оптическим излучением моды «шепчущей галереи» через выпадающее поле. В результате этого взаимодействия часть излучения моды резонатора рассеивается в окружающей среде, а часть излучения возвращается обратно в резонатор. Обратное рассеяние приводит к вырождению исходной начальной моды и образованию двух новых мод (распространяющихся по и против часовой стрелки), а рассеяние во внешней среде — к потерям в оптическом резонансе, которые в линейных колебательных системах способствуют уширению резонансной кривой [3]. Таким образом, адсорбированные частицы вызывают уширение спектра пропускания ОДМР. Сферические частицы, прикрепившиеся к поверхности ОДМР, при условии одинакового диаметра будут вносить различные потери

в зависимости от места, где находится частица относительно пространственной локализации поля [4]. Однако для большого числа таких частиц данный эффект будет усредняться, и в данном случае можно считать, что потери пропорциональны числу наночастиц, осевших на поверхность ОДМР. В целом метод уширения моды позволяет получить информацию о единичных частицах, этот факт подтвердили эксперименты в [5]. В предлагаемой работе в качестве диагностического параметра использовалась ширина резонансной кривой оптической моды, которая пропорциональна потерям энергии в моде и, следовательно, числу адсорбированных частиц. Концентрация наночастиц в образце находится по скорости их осаждения на поверхность ОДМР.

Таким образом, для построения измерительной системы с использованием ОДМР в качестве первичного преобразователя необходимо проводить обработку его спектра пропускания в целях определения ширины резонансной кривой моды «шепчущей галереи» в каждый момент времени измерения.

Экспериментальная установка. Для измерения концентрации наночастиц была разработана система детектирования, блок-схема которой показана на рис. 1. Использовался перестраиваемый лазер (Л) с внешним резонатором Vita Wave ECDL-6710R, благодаря которому широкая спектральная линия диодного лазера преобразуется в достаточно узкую [6]. Получение сигнала происходит следующим образом. Модулятор (М) частоты, входящий в блок управления лазером, вырабатывает сигнал, который воздействует на систему перестройки частоты лазера. Этот сигнал имеет пилообразную форму и содержит участки возрастания (прямой ход) и спада (обратный ход). Затем сигнал поступает в канал перестройки частоты лазера и записывается компьютером (ПК) с помощью АЦП (сигнал синхронизации). Ввод и вывод излучения в ОДМР осуществляется с помощью системы ввода/вывода (ВВ), которая представляет собой треугольную призму. Луч лазера фокусируется на внутренней поверхности призмы под большим углом, чем угол полного внутреннего отражения. Если к точке фокуса подвести ОДМР на расстояние порядка длины волны, то полное внутреннее отражение начинает нарушаться, и часть света из призмы попадает в ОДМР и обратно в призму. Таким образом, обеспечивается связь с ОДМР. Если в диапазон сканирования частоты лазера попадает мода «шепчущей галереи» ОДМР, мощность излучения, прошедшая через систему ВВ, начинает модой поглощаться. При этом в сигнале фотодетектора (ФД) на соответствующей частоте появляется отрицательный пик, который характеризует поглощение излучения ОДМР при адсорбции наночастиц на его поверхности. Полученный таким образом спектр пропускания микрорезонатора и сигнал синхронизации с блока управления лазером записываются с помощью АЦП для дальнейшей обработки.

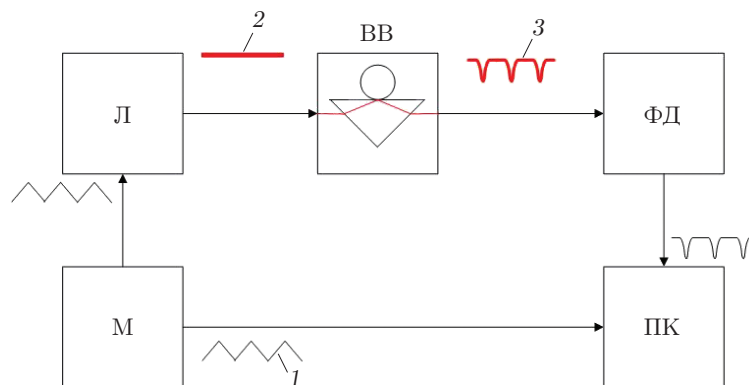


Рис. 1. Блок-схема установки для получения сигнала (1 — сигнал синхронизации, 2 — оптическое излучение, 3 — спектр пропускания ОДМР)

Постановка задачи. Необходимо создать алгоритм обработки спектра пропускания ОДМР, который позволит вычислить концентрацию наночастиц в воздушной или жидкой среде при их взаимодействии с поверхностью ОДМР.

Определение зависимости изменения ширины резонансной кривой от времени. Обработка данных и нахождение концентрации наночастиц осуществляется с использованием программного пакета MATLAB. С помощью сигнала проводят три последовательные операции: выделение из записи последовательных спектров пропускания ОДМР при фиксированном диапазоне сканирования частоты лазера, нормировка и выравнивание последовательности спектров пропускания микрорезонаторов и вычисление зависимости ширины резонансной кривой от времени.

Первым этапом обработки сигналов пропускания ОДМР и синхронизации является их разделение на две составляющие: прямой и обратный ходы сканирования частоты лазера. Для этого находится период сигнала синхронизации T по его фурье-спектру [7]. Далее происходит обработка сигнала синхронизации, состоящая в его разбиении на участки прямого и обратного ходов:

1) задаётся интервал поиска в виде $[A_0, A_0 + T]$, где A_0 — начальная точка поиска, период T определяется по максимуму в спектре сигнала синхронизации, полученном с помощью дискретного преобразования Фурье;

2) на выделенном участке находится локальный максимум;

3) осуществляется проверка конца сигнала синхронизации, затем задаётся новое значение A_0 и происходит переход к следующему интервалу.

Далее весь спектр пропускания ОДМР «нарезается» на единичные реализации спектров таким образом, что одинаковые номера отсчётов в каждой реализации соответствуют одной и той же частоте лазера. Данная операция производится следующим образом. Началом единичного спектра пропускания ОДМР считается положение максимума, полученное в п. 2, а его длиной — $T/2$. Единичная реализация спектра пропускания ОДМР приведена на рис. 2, а, где U — уровень сигнала на АЦП, N — номера отсчётов. После этого составляется матрица, в которой каждая строка представляет собой единичную реализацию спектра. Полученный таким образом набор реализаций позволяет проводить анализ моды резонатора при одинаковой частоте лазера.

Изображение матрицы приводится на рис. 2, б. Частота следования спектров составляет 25 Гц (задаётся блоком управления лазером). Цветом обозначена интенсивность сигнала от 0 до 1 в нормированных единицах.

На данном этапе в спектре пропускания ОДМР наблюдается дрейф резонансной частоты, связанный с изменением температуры и соответствующей деформацией резонатора. «Ломаный» вид спектра пропускания также обусловлен тем, что в процессе измерения оператор корректировал центральную частоту перестройки лазера таким образом, чтобы резонансный пик не уходил за границы области развёртки системы детектирования.

Вторым этапом обработки является нормирование и выпрямление матрицы единичных спектров пропускания микрорезонатора. Этот этап проводится в три шага:

1. Из каждой единичной реализации спектра пропускания ОДМР вычитается линейный наклон, вызванный изменением мощности при перестройке частоты лазера и проявляющийся в виде наклона постоянной составляющей оптического излучения. Наклон для каждой единичной реализации вычисляется по значениям первой и последней точек.

2. Производится нормирование каждой строки на 1. Для этого вычисляется максимальное и минимальное значения каждой единичной реализации. Нормирование происходит по формуле

$$\text{Norm}(j) = (\max_j - x(i)_j) / (\max_j - \min_j), \quad (1)$$

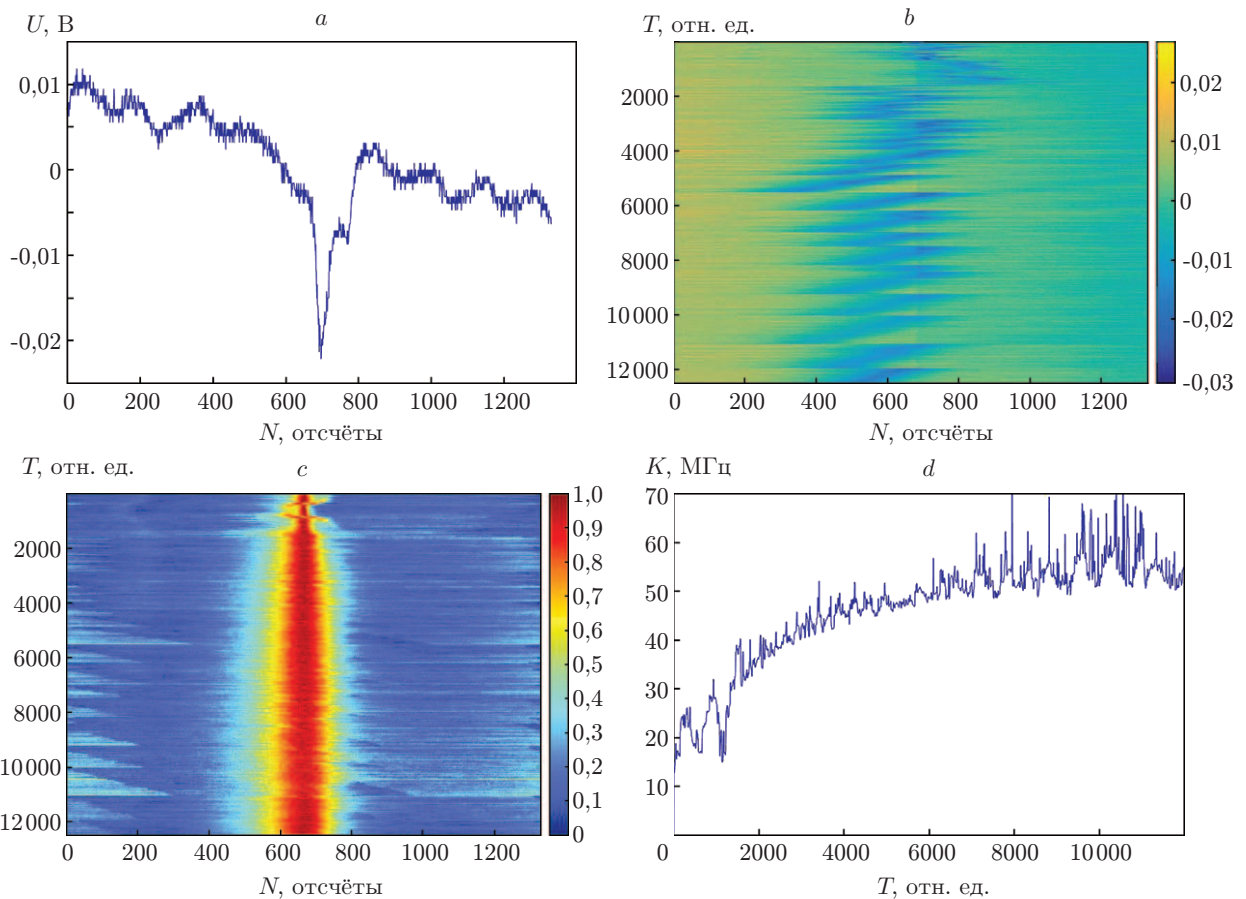


Рис. 2. Последовательность обработки сигнала: *a* — единичная реализация изменения спектра пропускания ОДМР; *b* — частотный спектр ОДМР; *c* — выпрямленный частотный спектр ОДМР, нормированный на 1 без учёта дрейфа; *d* — зависимость ширины резонансной кривой после фильтрации

где Norm — значение нормированного выпрямленного спектра; j — номер реализации спектра; $x(i)$ — значение i -й точки в j -й единичной реализации спектра; \max_j и \min_j — максимальное и минимальное значения в этой реализации.

3. Выравнивание максимума резонанса. Данная операция осуществляется по следующему алгоритму:

а) составляется матрица-маска из 0 и 1 (положение 1 соответствует наличию пика в этой области, 0 — его отсутствию), которая вычисляется по формуле

$$\text{Mask} = \text{sign}(\text{Norm} - \text{Thr})/2 + 0,5, \quad (2)$$

где Thr — пороговое значение для поиска пика, которое изменяется от 0 до 1 (для данной реализации спектра оно принято равным 0,85); $\text{sign}(\text{Norm} - \text{Thr})$ — функция, которая определяется как

$$\text{sign} = \begin{cases} 1, & \text{Norm} - \text{Thr} \geq 0, \\ -1, & \text{Norm} - \text{Thr} < 0; \end{cases}$$

б) составляется функция, которая отображает положение координаты центра пика x_c^j в каждой j -й строке и имеет вид

$$x_c^j = \sum_i x_i m_i^j / \sum_i m_i^j, \quad (3)$$

где x_i — текущая координата точки в j -й единичной реализации спектра, m_i^j — значение i -го отсчёта j -го единичного спектра;

в) в каждой единичной реализации спектра осуществляется сдвиг пика на центральную позицию с использованием встроенной функции MATLAB циклической перестановки.

Нормированный спектр пропускания ОДМР, из которого вычтена составляющая дрейфа, показан на рис. 2, с. Полученный таким образом выпрямленный частотный спектр даёт представление о том, как происходило уширение резонансной кривой, и возможность определить наличие перебоев в работе сенсора.

На третьем этапе происходит создание маски выпрямленного частотного спектра в виде комбинаций 0 и 1 по формуле (2). При этом порог Thg выбирается равным 0,5, что соответствует половине высоты пика. При суммировании строк этой матрицы получается кривая, описывающая зависимость ширины пика от времени (рис. 2, d). Для вычисления значений величины отсчётов в величину оптической частоты K используется амплитуда сканирования лазера, которая определяется по сигналу с опорного интерферометра с помощью масштабного коэффициента

$$k = T_{\text{МГЦ}}/T_{\text{он}}, \quad (4)$$

где $T_{\text{МГЦ}}$ — амплитуда сканирования частоты лазера, определяемая по опорному интерферометру ($T_{\text{МГЦ}}$ устанавливается оператором); $T_{\text{он}}$ — длина единичного спектра в отсчётах. Запись сигнала опорного интерферометра, сигналов синхронизации и пропускания ведётся одновременно.

Пересчитанная кривая подвергается линейной фильтрации с нулевой фазой. Преимуществом данного фильтра является то, что он сохраняет форму сигнала в его временной области [8]. Таким образом, влияние случайных флуктуаций частоты лазера, шумов приёмника излучения, а также локальных выбросов, вызванных вибрацией, может быть минимизировано.

Интерпретация полученных данных. На кривой рис. 2, d можно выявить участок линейного роста. Наклон этого участка пропорционален скорости осаждения наночастиц на поверхность ОДМР. Для нахождения концентрации частиц в среде проводится градуировка с применением эталонного образца, в результате чего определяется коэффициент пропорциональности между скоростью уширения резонансной кривой и концентрацией наночастиц в среде.

Следует отметить, что при осаждении частиц не каждое соударение заканчивается прилипанием частицы к поверхности ОДМР. Вероятность данного события пропорциональна концентрации частиц и зависит от свойств поверхности микрорезонатора и степени покрытия поверхности осевшими ранее частицами. Таким образом, в начальный момент времени, когда поверхность микрорезонатора ещё «чистая» и число центров адгезии, на которые может прилипнуть частица, намного больше уже осевших частиц, количество частиц, осаждаемых в единицу времени, постоянно. При этом число частиц на поверхности, а следовательно, и ширина резонансной кривой оптической моды растут линейно. Когда осевших частиц накапливается достаточно много для того, чтобы они начали препятствовать прилипанию новых, скорость их осаждения уменьшается и затем выходит на насыщение. Указанное явление представлено теорией адсорбции с образованием слоя частиц. Полученный результат согласуется с теорией адсорбции Ленгмюра [9]. Модель адсорбции частиц на поверхности микрорезонатора описывается уравнением

$$\frac{d\theta}{dt} = k_{\alpha}C_0(1 - \theta) - k_d\theta, \quad (5)$$

где k_{α} и k_d — константы адсорбции и десорбции; C_0 — концентрация адсорбирующих частиц; θ — степень покрытия поверхности микрорезонатора.

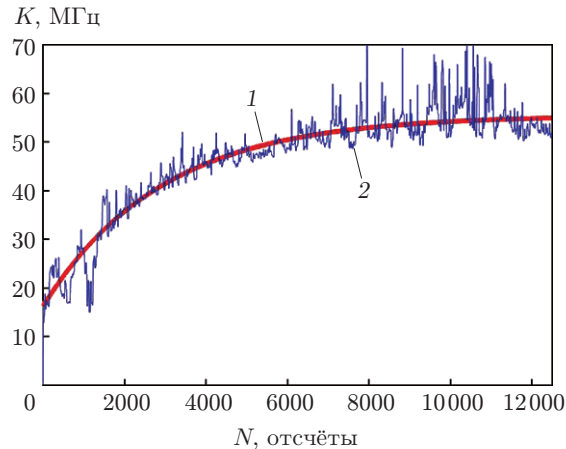


Рис. 3. Сравнение теоретической кривой (1), характеризующей покрытие ОДМР частицами, и экспериментальной кривой уширения моды (2)

Теоретический расчёт процесса осаждения наночастиц на поверхность ОДМР показан кривой 1 на рис. 3. Как видно из рисунка, решение уравнения (5) хорошо аппроксимирует экспериментальную кривую уширения моды (2).

Определение влияния частотной нестабильности лазера на ширину резонансного пика. Из рис. 2, *b* видно, что в спектре ОДМР в процессе измерений наблюдается дрейф резонансной частоты с соответствующей перестройкой частоты лазера. Переключаемый лазер является источником частотной нестабильности ввиду процессов конкуренции мод и резких изменений амплитуды раскачки при «перескоке» моды и вносит ошибку в результат измерения ширины резонансной кривой. При определении оптимального режима работы лазера был оценён вклад центральной частоты генерации в нестабильность амплитуды частотной раскачки. Для решения этой задачи проанализирован сигнал, записанный с опорного интерферометра при постепенном изменении центральной частоты лазера. Лазерный пучок направлялся в кольцевой интерферометр, а сигнал снимался с фотоприёмника. В процессе записи сигнала оператор медленно перестраивает центральную частоту, в результате чего получается последовательность интерферограмм в виде кадров (рис. 4). Данный сигнал хорошо описывается суммой двух синусоид. Для оцен-

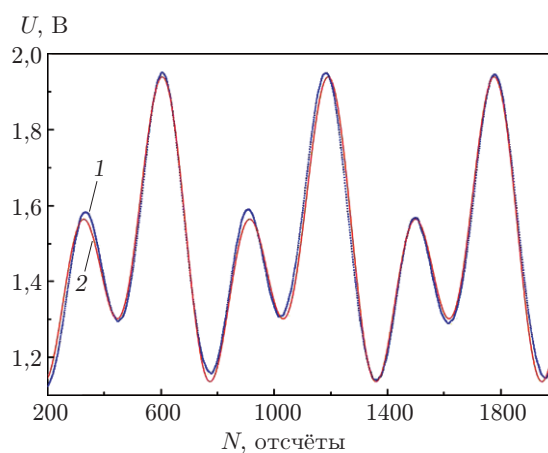


Рис. 4. Сравнение сигнала с опорного интерферометра (кривая 1) с моделью $S_{\text{mod}}(x)$ (кривая 2) для оценки относительных искажений

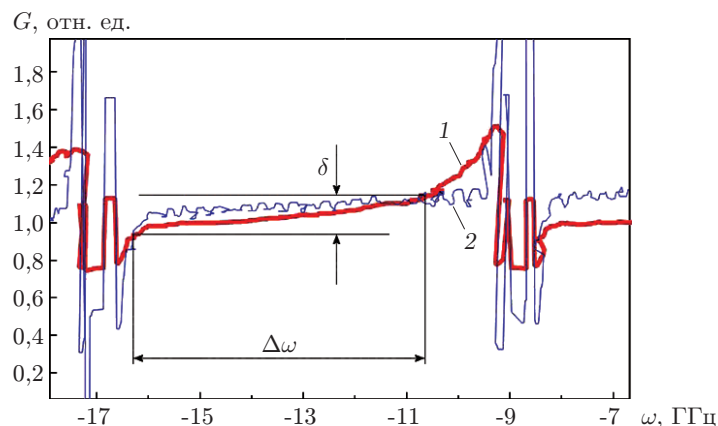


Рис. 5. Флуктуация амплитуды частотной раскачки (кривая 1) и параметра формы моды (кривая 2) в зависимости от центральной частоты лазера ω

ки величины искажений интерферограммы при перестройке центральной частоты лазера была построена модель сигнала

$$S_{\text{mod}}(x) = P + A \sin(\omega(x - x_0)) + K_1 A \sin(2\omega(x - x_0) + \Delta\varphi), \quad (6)$$

где P — постоянная составляющая сигнала; A — амплитуда первой гармоники; K_1 — коэффициент пропорциональности между первой и второй гармоникой; $\omega = 2\pi/T$ — центральная частота лазера; $\Delta\varphi$ — фаза; x_0 — параметр, характеризующий смещение постоянной составляющей частоты.

Для проведения анализа характеристик перестройки лазера использовался следующий алгоритм. Запись сигнала опорного интерферометра была разбита на единичные реализации с помощью сигнала синхронизации по алгоритму, описанному выше. Общее количество кадров для анализа составило 1400. Для каждого кадра последовательно проводилось фитирование моделью (6). Результаты обработки кадров интерферограммы представлены на рис. 5. Здесь кривая 1 характеризует параметр T , который отвечает за амплитуду частотной раскачки, а параметр K_1 (кривая 2) — за искажение формы сигнала, отражающее процессы в лазере.

Полный диапазон перестройки центральной частоты составляет около 15 ГГц. На участке с локальными выбросами параметра K_1 наблюдаются переходные процессы в резонаторе лазера, в связи с чем корректный расчёт параметра T на этом участке невозможен. Кроме того, вблизи участков увеличивается крутизна параметра T , следовательно, использование данного участка частот при наличии температурного дрейфа резонансной частоты ОДМР не рекомендуется. Тем не менее на полном диапазоне перестройки присутствует участок шириной $\Delta\omega \approx 5$ ГГц, который характеризуется пологим склоном, где изменение амплитуды раскачки δ не превышает 25 %. Данный участок обеспечивает приемлемую погрешность при сдвиге длины волны в диапазоне 1 ГГц ввиду адсорбции наночастиц и влияния температуры.

Заключение. В предлагаемой работе описан алгоритм обработки спектров ОДМР для получения количественной оценки концентрации наночастиц, адсорбированных на его поверхности. Данный алгоритм обеспечивает расчёт уширения резонансного пика в условиях температурного дрейфа частоты и был использован в исследованиях осаждения наночастиц серебра в жидкой среде [10] и наночастиц TiO_2 в воздушной среде. В экспериментах в режиме реального времени наблюдались флуктуации ширины резонансного пика, которые могли соответствовать актам взаимодействия (адсорбции или соударения) единичных частиц с поверхностью ОДМР. Минимальная регистрируемая массовая концентра-

ция наночастиц в экспериментах по опробированию данного метода составила 0,001 ppm, а максимальная — 1 ppm. Теоретически в используемом алгоритме верхний предел концентрации будет ограничен скоростью сканирования лазера. Анализ кривых, полученных в результате обработки спектров предлагаемым алгоритмом, указывает на образование монослоя частиц на поверхности ОДМР. Стандартное отклонение концентраций в экспериментах составило порядка 15 %. Такой результат согласуется с теорией адсорбции, и уширение моды может быть аппроксимировано изотермой Ленгмюра. Точность аппроксимации оценивалась коэффициентом детерминации $R_{\text{sqr}} = 0,789$. Значение коэффициента свидетельствует о том, что аппроксимация является достаточно хорошей. Форма и размер частиц могут влиять на скорость осаждения и динамику перемещения в исследуемой среде, поляризуемость частиц — на потери поглощения [3], но в большей степени — на сдвиг резонансной частоты [2]. По этой причине необходимо калибровать сенсор с учётом среднего диаметра и типа исследуемых наночастиц. Для целей детектирования следует использовать ОДМР с добротностью не менее 10^6 , которая в значительной мере зависит от шероховатости поверхности. Контроль шероховатости перед применением ОДМР можно проводить методами интерференционной микроскопии [11]. Кроме того, была разработана модификация алгоритма для определения характеристик перестройки частоты лазера и оценки нестабильности. В результате анализа выявлено, что нестабильность источника оптической накачки не оказывает значительного влияния на вычисление концентрации наночастиц в исследуемой среде при условии работы лазера в заданном диапазоне частот. Несмотря на то что в алгоритме предусмотрена компенсация сдвига резонанса, для уменьшения составляющей погрешности и улучшения результатов важно предусмотреть термостабилизацию измерительной ячейки и исследуемой среды.

Работа выполнена с использованием оборудования Центра коллективного пользования высокоточных измерительных технологий в области фотоники [12], созданного на базе Всероссийского научно-исследовательского института оптико-физических измерений.

Авторы выражают благодарность профессору Г. Г. Левину, начальнику отделения голографии, оптической томографии, нанотехнологий и наноматериалов Всероссийского научно-исследовательского института оптико-физических измерений за полезные обсуждения.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. **Городецкий М. Л.** Оптические микрорезонаторы с гигантской добротностью. М.: Физматлит, 2011. 416 с.
2. **Foreman M. R., Swaim J. D., Vollmer F.** Whispering gallery mode sensors // *Adv. Opt. and Photon.* 2015. **7**, N 2. P. 168–240.
3. **Hu Y., Shao L., Arnold S. et al.** Mode broadening induced by nanoparticles in an optical whispering-gallery microcavity // *Phys. Rev.* 2014. **90**, N 4. 043847.
4. **Wiersig J.** Structure of whispering-gallery modes in optical microdisks perturbed by nanoparticles // *Phys. Rev. A.* 2011. **84**, N 6. 063828.
5. **Shao L., Jiang X.-F., Yu X.-C. et al.** Detection of single nanoparticles and lentiviruses using microcavity resonance broadening // *Adv. Mater.* 2013. **25**, N 1. P. 5616–5620.
6. **Vassiliev V. V., Zibrov S. A., Velichansky V. L.** Compact extended-cavity diode laser for atomic spectroscopy and metrology // *Rev. Sci. Instrum.* 2006. **77**, N 1. 013102.
7. **Van Loan Ch.** Computational Frameworks for the Fast Fourier Transform. Philadelphia: SIAM, 1992. 273 p.
8. **Smith III J. O.** Introduction to Digital Filters with Audio Applications. W3K Publishing, 2007. 480 p.

9. **Schaaf P., Talbot J.** Surface exclusion effects in adsorption processes // Journ. Chem. Phys. 1989. **91**, N 7. P. 4401–4409.
10. **Самойленко А. А., Левин Г. Г., Лясковский В. Л. и др.** Применение оптических микрорезонаторов с модами типа «шепчущей галереи» для обнаружения наночастиц серебра в водной среде // Оптика и спектроскопия. 2017. **122**, № 6. С. 1037–1039.
11. **Вишняков Г. Н., Левин Г. Г., Минаев В. Л.** Автоматизированные интерференционные приборы ВНИИОФИ // Автометрия. 2017. **53**, № 5. С. 131–138.
12. **Центр** коллективного пользования высокоточных измерительных технологий в области фотоники. URL: <http://www.ckr.vniiofi.ru/> (дата обращения: 2.08.2017).

Поступила в редакцию 2 августа 2017 г.
