

В.А. Донченко, А.А. Землянов, Ал.А. Землянов, Т.Н. Копылова, А.П. Серых

СТАТИСТИЧЕСКИЕ ПРИЗНАКИ ЭФФЕКТА ВЫНУЖДЕННОЙ ФЛУОРЕСЦЕНЦИИ СИСТЕМЫ ПОЛИДИСПЕРСНЫХ МИКРОННЫХ КАПЕЛЬ С ЛАЗЕРНЫМ КРАСИТЕЛЕМ

На основании полученных экспериментальных данных предложена статистическая модель для описания эффекта вынужденной флуоресценции (lasing) ансамбля полидисперсных микронных капель, содержащих лазерный краситель. В рамках модели рассматриваются различные статистические признаки идентификации эффекта вынужденной флуоресценции. Приведены экспериментально полученные статистические характеристики флуоресценции этанольного раствора родамина 6Ж, распыленного в виде капель различного размера, при облучении лазерными импульсами с длиной волны 0,53 мкм.

Эффект вынужденной флуоресценции в изолированной капле, содержащей лазерный краситель, известен как эффект «lasing» и достаточно хорошо изучен экспериментально [1–5]. В то же время вопрос о вынужденной флуоресценции ансамбля капель разного размера в литературе слабо освещен [5], хотя представляет, на наш взгляд, значительный научный и практический интерес.

В настоящей работе рассматриваются статистические характеристики сигналов вынужденной флуоресценции системы полидисперсных капель с красителем с целью нахождения признаков идентификации эффекта lasing.

Капля представляет собой сферический резонатор, спектр собственных мод которого определяется длиной волны излучения, размерами и показателем комплексного преломления вещества капли [6]. При освещении капли с красителем излучением накачки краситель начинает флуоресцировать, а при выполнении пороговых условий в капле возникает генерация – lasing. Спектральная картина lasing представляет собой серию пиков, соответствующих возбужденным собственным модам сферического резонатора [1]. Как и в лазере на красителе, спектр lasing сдвинут в длинноволновую сторону относительно максимума спектра флуоресценции красителя в жидкой фазе [1]. Повышение уровня накачки приводит к появлению дополнительных серий спектральных пиков, что вызвано генерацией мод высших порядков [4]. В связи с тем что добротность больших капель выше, чем мелких, при одном и том же уровне накачки в больших каплях могут реализоваться условия генерации и происходит lasing, тогда как мелкие капли флуоресцируют подобно красителю в жидкой фазе [5].

Таким образом, спектральная картина lasing системы полидисперсных капель должна представлять собой сложную, нерегулярную пиковую структуру на фоне спектральной кривой флуоресценции красителя в жидкой фазе.

Математическая модель наблюдаемого в одном эксперименте сигнала $y(\lambda)$ с учетом рассмотренных физических явлений может быть представлена в виде

$$y(\lambda) = f(\lambda) + \sum_{i=1}^M C[\lambda_i - \Lambda(p)] \sum_{j=1}^{m_i} C_{ij} K(\lambda - \lambda_i - \Delta_{ij}) + n(\lambda), \quad (1)$$

где $f(\lambda)$ – детерминированная функция, описывающая спектр флуоресценции красителя в жидкой фазе; $n(\lambda)$ – эквивалентный шум измерений; λ_i – длина волны, в окрестности которой появляется один или несколько спектральных пиков; M – число интервалов, на которые разбит исследуемый спектральный диапазон; $\Lambda(p)$ – длина волны, начиная с которой наблюдается устойчивая генерация; p – плотность мощности излучения накачки; $C(z) = \{1, z \geq 0; 0, z < 0\}$; j – номер пика в i -й зоне в окрестности λ_i ; m_i – число пиков в i -й зоне; Δ_{ij} – отклонение положения j -го пика в i -й зоне от λ_i ; $K(\lambda - \lambda_i - \Delta_{ij})$ – ядерная функция, описывающая характер спектральных пиков; $K(z) \geq 0, K(0) = 1$,

$K(z) = K(-z)$, $K(|z_1|) > K(|z_2|)$, $|z_1| < |z_2|$; $\sum_{j=1}^{m_i} C_{ij}K(\lambda - \lambda_i - \Delta_{ij})$ – суммарная величина сигналов в окрестности λ_i ; C_{ij} – амплитуда j -го пика в i -й зоне.

Предполагаем, что наблюдения проводятся только в наборе длин волн λ_i , $i = 1, \dots, M$, причем пересечением пиков соседних зон можно пренебречь. В этих предположениях сигнал (1) будет либо содержать пикообразное слагаемое, либо нет, в зависимости от того, превышает λ_i порог $\Lambda(p)$ либо нет.

Математическая модель наблюдаемого сигнала в i -й зоне имеет вид

$$y(\lambda_i) = \begin{cases} f(\lambda_i) + n(\lambda_i) & \text{при } \lambda_i < \Lambda(p), \\ f(\lambda_i) + \sum_{j=1}^{m_i} C_{ij}K(\Delta_{ij} + n(\lambda_i)) & \text{при } \lambda_i \geq \Lambda(p). \end{cases} \quad (2)$$

Обозначим через H_0^i гипотезу о том, что сигнал измеряется в допороговой зоне, т. е. справедлива верхняя строка в модели (2). Соответственно через H_1^i обозначим гипотезу о сигнале, измеренном в послепороговой зоне, со структурой, описываемой нижней строкой модели (2). Поскольку особый интерес представляет значение неизвестного порога $\Lambda(p)$, то задача по его оцениванию в данном случае сводится к последовательной проверке гипотез H_0^i, H_1^i , $i = 1, \dots, M$, по совокупности экспериментальных данных. При этом в качестве оценки $\tilde{\Lambda}(p)$ порога $\Lambda(p)$ естественно принять величину

$$\tilde{\Lambda}(p) = 1/2(\lambda_{i^*-1}, \lambda_{i^*}), \quad (3)$$

где i^* – минимальный номер зоны, где впервые принята гипотеза $H_1^{i^*}$.

Пусть при $\lambda = \lambda_i$ проведена серия независимых измерений сигнала $y = y(\lambda_i)$ объема N_i . При этом протокол наблюдений обозначим через $\vec{y} = \{y_1(\lambda_i), \dots, y_{N_i}(\lambda_i)\}$ или, упрощая обозначения, запишем

$$\vec{y} = \{y_1, y_2, \dots, y_{N_i}\}. \quad (4)$$

Известно [7], что оптимальным в смысле минимума ошибок признаком для проверки наших гипотез является отношение правдоподобия. Однако его вычисление требует знания плотностей распределения $P(y/H_0^i)$, $P(y/H_1^i)$ для случайной величины y в i -й зоне при условии нулевой и первой гипотезы соответственно. Поскольку теоретические закономерности этих распределений отсутствуют, то синтез различающего признака может быть осуществлен путем использования той информации, которой мы реально располагаем.

Рассмотрим некоторые варианты построения признака, различающего гипотезы H_0^i и H_1^i . Как видно из модели наблюдаемого сигнала (2), наши гипотезы различают наличие или отсутствие суммы неотрицательных случайных величин $\sum_{j=1}^{m_i} C_{ij}K(\Delta_{ij})$. Причем это структурное различие должно проявляться вне зависимости от характера распределения параметров, входящих в эту сумму. В частности, факт неотрицательности слагаемых влечет за собой неравенства для первых двух моментов сигнала $y(\lambda_i)$:

$$M_1[y(\lambda_i)] \geq M_0[y(\lambda_i)] = f(\lambda_i); \quad (5a)$$

$$D_1[y(\lambda_i)] \geq D_0[y(\lambda_i)]. \quad (5b)$$

Это означает, что при гипотезе H_1^i среднее и дисперсия независимого сигнала будут больше, чем при гипотезе H_0^i .

Отсюда имеем два признака (две статистики):

$$T_1(\vec{y}^i) = \frac{1}{N_i} \sum_{l=1}^{N_i} y_l, \quad T_2(\vec{y}^i) = \frac{1}{N_i - 1} \sum_{l=1}^{N_i} [T_1(\vec{y}^i) - f(\lambda_i)]^2, \quad (6)$$

каждый из которых может быть использован для проверки гипотез с помощью решающего правила вида

$$T(\bar{y}^i) \begin{cases} H_1^i \\ \geq d_i \\ H_0^i \\ \leq d_i \end{cases}, \quad (7)$$

где d_i – некоторая константа.

Имеет смысл рассматривать такой комбинированный признак, который будет одновременно учитывать различия в средних и дисперсиях. Этот признак можно представить как

$$T_3(\bar{y}^i) = T_3(\bar{y}^i) + [T_1(\bar{y}^i) - f(\lambda_i)]^2. \quad (8)$$

При гипотезе H_0^i статистика T_3 описывает в основном дисперсию шумов измерения n , при гипотезе H_1^i – дисперсию, создаваемую пиками, и квадрат разности между средними. Поэтому признак T_3 более чувствителен к смене гипотез. В решающем правиле (7) требуется доопределить пороговое значение d_i , с которым сравнивается статистика. Естественно, этот порог d_i должен выбираться из условия минимума вероятностей ошибок в принятиях решений. При этом так же, как и при оптимальной обработке, можно воспользоваться асимптотической гауссовостью статистик T_1 и T_2 и рассчитать оптимальный порог d_i , однако параметры гауссовских распределений нужно будет оценивать по экспериментальным данным.

Рассмотрим еще один вариант выявления различий между гипотезами H_0^i и H_1^i . Речь пойдет о структуре распределения $P(y/H_1^i)$. Предположим для простоты, что в i -й зоне измерений имеется только один пик ($m_i = 1$ в (2)) с шириной, меньшей ширины рассматриваемой зоны. В условиях единичного эксперимента при случайном характере Δ_i могут возникнуть две ситуации. Либо пик не наблюдается, и измеряется величина

$$y(\lambda_i) = f(\lambda_i) + n(\lambda_i),$$

как и при нулевой гипотезе, либо имеет место «выброс», порожденный пиком, и наблюдается величина

$$y(\lambda_i) = f(\lambda_i) + C_{i1}K(\Delta_{i1}) + n(\lambda_i).$$

Такой характер наблюдений в статистическом плане может быть интерпретирован с помощью смеси двух распределений, которая в нашем случае может быть представлена в виде

$$P(y/H_1^i) = (1 - \varepsilon)P(y/H_0^i) + \varepsilon H_1(y), \quad (9)$$

где ε – вероятность получить наблюдение в единичном акте испытаний, связанная с наличием пика (или доля таких наблюдений, которую можно получить в серии независимых испытаний); $H_1(y)$ – плотность распределения наблюдений при наличии пиков.

Таким образом, если число пиков сравнительно невелико, то распределение наблюдений при гипотезе H_1^i можно аппроксимировать смесью (9). Далее, в случае, когда величина пиков велика по сравнению с дисперсией шума измерений $n(\lambda_i)$, то при некоторой λ смесь (9) может быть разделима, т. е. носители распределений $P(y/H_0^i)$ и $H_1(y)$ не пересекаются. В нашем случае факт разделения смеси (9) является надежным признаком того, что данная длина волны $\lambda \geq \Lambda(p)$ – порогового значения, т.е. что в нашей капельной среде, помимо обычной флуоресценции, происходит lasing.

Обратимся к результатам наших экспериментов. В эксперименте лазерное излучение с длиной волны 0,53 мкм и длительностью импульса 10 нс фокусировалось в струю распыленного раствора родамина 6Ж с концентрацией 2×10^{-4} моль/л. Радиусы капель распределены в пределах от 1 до 35 мкм с максимумом около 5 мкм. Плотность мощности излучения накачки менялась от 0,05 МВт/см² и выше. Спектральная картина излучения капель снималась при ширине аппаратной функции монохроматора 10 Å. Регистрация сигналов флуоресценции

осуществлялась ФЭУ-79 с индивидуально подобранным делителем напряжения для улучшения временного разрешения до 6 нс. Степень подавления упругого рассеяния (на длине волны $\lambda = 0,53$ мкм) оптическими фильтрами и монохроматором была не менее 10^{-7} .

Спектральная кривая флуоресценции этанольного раствора родамина 6Ж приведена на рис. 1 и 2 в виде штриховой линии (кривая нормирована на максимум флуоресценции). На рис. 1, а, б приведены также в виде точек спектральные распределения излучения капельного облака при возбуждении его импульсами с плотностью $p_0 = 8$ МВт/см² (см. рис. 1, б) и $p = 0,2p_0$ (см. рис. 1, а). Каждая точка представляет собой среднее по выборке из 40 значений сигналов флуоресценции. Средние значения нормированы на среднее при длине волны, соответствующей максимуму флуоресценции красителя в жидкой фазе. Видно, что при $p = 0,2p_0$ спектральная картина флуоресценции от капель практически совпадает с кривой флуоресценции от красителя в жидкой фазе. При $p = p_0$ в длинноволновой области наблюдается превышение средних значений сигналов флуоресценции от капель над соответствующими значениями средних в случае красителя в жидкой фазе.

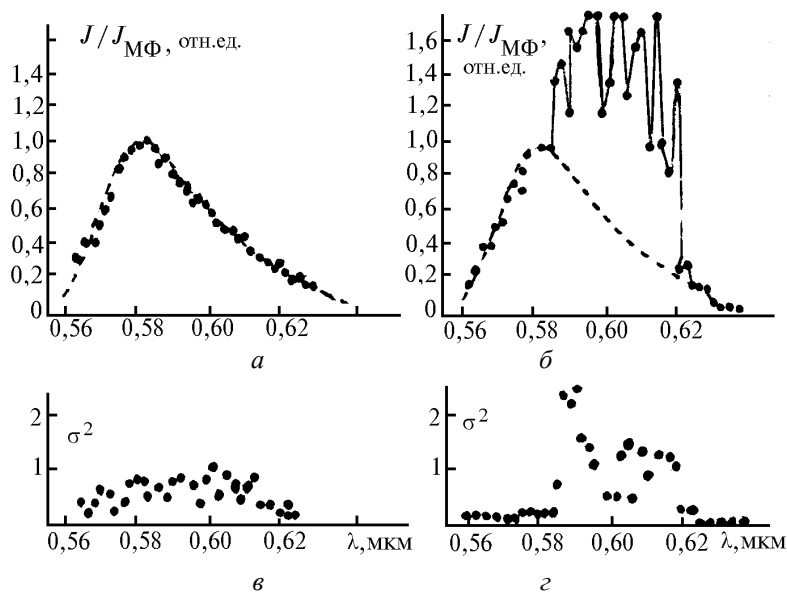


Рис. 1. Спектральная зависимость интенсивности флуоресценции и дисперсии сигналов флуоресценции струи микронных капель с родамином 6Ж при различных плотностях мощности накачки p . Штриховой линией показана нормированная на максимальное значение спектральная характеристика флуоресценции раствора красителя, точками – раствора красителя в виде капельной струи (а – флуоресценция капель при $p = 0,2p_0$, б – при $p = p_0$, в – дисперсия сигналов флуоресценции капель при $p = 0,2p_0$, г – при $p = p_0$)

На рис. 1, в, г представлены спектральные распределения дисперсии сигналов флуоресценции от капель для случая $p = 0,2p_0$ (см. рис. 1, в) и $p = p_0$ (см. рис. 1, г). С некоторого значения $\lambda = \Lambda$ отмечается резкое увеличение дисперсии в красной области спектра. На рис. 3 приведены гистограммы амплитуд сигналов флуоресценции в каплях, полученные при $\lambda < \Lambda$ (рис. 3, а) и $\lambda > \Lambda$ (рис. 3, в). Гистограммы построены при выборке объема $N = 300$. Для сравнения на рис. 3, б приведена гистограмма сигналов упругого рассеяния от капель этанола при $\lambda = 0,53$ мкм. Сигналы в случае $p = p_0$ четко разделены на 2 группы: группа «малых» сигналов – группа А и группа «больших» сигналов – группа В (рис. 3, в). Можно предположить, что гистограмма на рис. 3, в описывает разделение смеси (9), т.е. сигналы группы А относятся к флуоресценции негенерирующих капель ($P(y/H_0^i)$ в смеси (9)), сигналы группы В относятся к lasing ($H_1(y)$). В самом деле, спектральное распределение, построенное для сигналов группы А и представленное на рис. 2, а, совпадает со спектральным поведением флуоресценции красителя в жидкой фазе. Спектральное распределение группы В (точки) приведено на рис. 2, б. Сигналы группы В лежат в красной области спектра, что характерно для lasing одиночной капли родамина 6Ж (рис. 4).

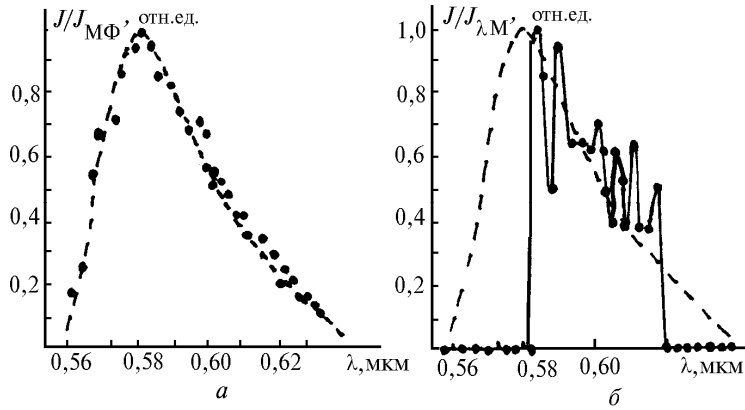


Рис. 2. Спектральная зависимость флуоресценции для сигналов зоны А (а), зоны В (б). Сигналы нормированы на максимальные значения

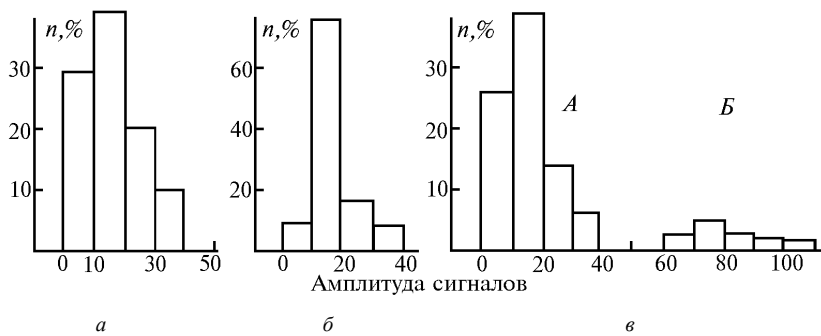


Рис. 3. Гистограммы сигналов флуоресценции каплей (а – при $p = 0,2p_0$, в – при $p = p_0$, б – гистограмма сигналов упругого рассеяния от каплей этанола)

Таким образом, сам факт присутствия распределения $H_1(y)$ на гистограмме является надежным признаком lasing. Кроме того, «разделенные» распределения позволяют независимо исследовать характеристики флуоресценции как генерирующих, так и негенерирующих полидисперсных каплей.

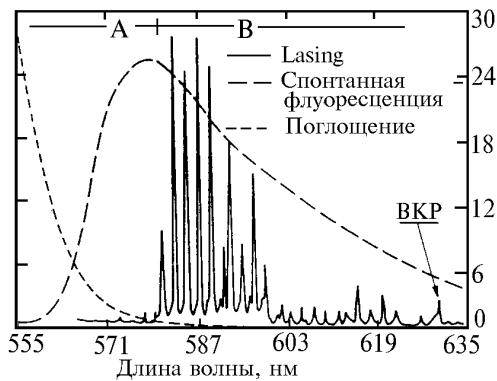


Рис. 4. Спектральная зависимость вынужденной флуоресценции одиночной капли, полученная в [1]

В общем случае, условия разделимости смеси не всегда будут выполняться, рассматриваемые распределения как-то пересекутся, но в любом случае при гипотезе H_1^i распределение $P(y/H_1^i)$ имеет более «тяжелый правый хвост» по сравнению с распределением $P(y/H_0^i)$ (рис. 5, $p \gg p_0$). Этот факт можно использовать для построения решающего правила типа (7), но в данном случае на основе максимальных порядковых статистик, т. е.

$$T(\bar{y}^i) = \max_{j \in [1:N_i]} y_j \begin{cases} H_1^i \\ \geq d_i \\ H_0^i \\ \leq d_i \end{cases} . \quad (10)$$

Другими словами, в протоколе наблюдений y^i находится максимальный элемент и сравнивается с порогом d_i , который определяется экспериментально. Например, для ситуации, представленной на рис. 1, z , в качестве порога может быть взято любое число из интервала (40, 60).

Мы рассмотрели несколько статистических признаков, по которым можно надежно отличить эффект lasing от обычной флуоресценции капель. Проведенные нами эксперименты доказывают правомочность применения рассмотренных признаков для идентификации явления вынужденной флуоресценции в облаке полидисперсных капель при использовании спектральных измерений с разрешением, сравнимым со спектральной шириной одиночного пика lasing ($\sim 10\text{\AA}$).

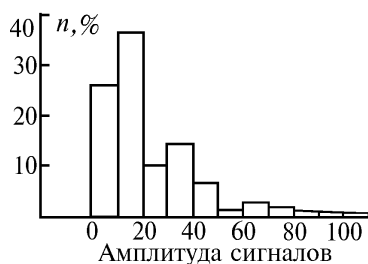


Рис. 5. Гистограмма сигналов флуоресценции капель красителя при $p \gg p_0$

Работа финансировалась в рамках гранта Конкурсного центра МОПО фундаментального естествознания при Санкт-Петербургском университете N 95-05.5-32.

1. Bismas A., Latifi H., Armstrong R.L., Pinnick R.G. // Opt. Lett. 1989. V.14. N 4. P. 214–217.
2. Pinnick R.G., Bismas A., Pendleton J., Armstrong R.L. // Appl. Opt. 1992. V. 31. N 3. P. 987–996.
3. Xie J.–G., Ruckgauer T.E., Armstrong R.L., Pinnick R.Gt. // Appl. Lett. 1991. V. 16. N 17. P. 1310–1312.
4. Qian S.–X., Snow J.B., Tzeng H.–M., Chang R.K. // Reprint Series. 1986. V. 231. P. 486–488.
5. Serpenguzel A., Swindal J.C., Chang R.K., Acker W.P. // Appl. Opt. 1992. V. 31. N 18. P. 3543–3551.
6. Lam C.C., Leung P.T., Young R. // J. Opt. Am. 1992. V. 9. P. 1585–1592.
7. Уилкс С. Математическая статистика. М.: Наука, 1967. 632 с.

СФТИ, Томск
Институт оптики атмосферы СО РАН, Томск

Поступила в редакцию
14 декабря 1996 г.

V.A. Donchenko, A.A. Zemlyanov, A.I.A. Zemlyanov, T.N. Kopylova, A.P. Serykh. **Statistical Criteria for Induced Fluorescence of Polydisperse Micron Laser-dyed Drops.**

Based on data obtained experimentally, a statistical model is proposed to describe a phenomenon of induced fluorescence of polydisperse micron drops containing laser dye. Various statistical criteria for the phenomenon identification are treated in the frameworks of the model. The statistical characteristics of Rodamin 6G ethanol solution atomized into droplets by laser pulses of 0.53 μm wavelength are presented in the paper.