

基于脉冲受激布里渊散射光谱的 非接触式黏弹性测量*

李佳芮 乐陶然 尉昊赞 李岩†

(清华大学精密仪器系, 精密测试技术及仪器国家重点实验室, 北京 100084)

(2023年12月15日收到; 2024年4月17日收到修改稿)

细胞和组织的力学特性在决定生物功能中起着至关重要的作用, 布里渊光谱技术作为一种黏弹性显微成像方法, 可以无标记、非接触地以高空间分辨率表征样品的力学特征变化. 为了更加灵敏地识别生物系统的微小力学性质差异, 在提高布里渊散射效率的同时, 结合多种黏弹性对比机制进行测量是需要关注的问题. 本文报道了基于脉冲受激布里渊散射的光谱测量方法, 采用脉冲光激发、连续光时域探测的方式, 通过一次时域测量即可得到完整光谱并根据光谱信息反演样品的多种黏弹性参数. 得益于受激散射和时域探测, 实验中以毫秒级的光谱积分时间即可得到信噪比为 26 dB 的光谱, 弹性纵模的存储模量和损耗模量的平均测量精度分别达 0.1% 和 1%. 基于此方法, 测量并对比了常见液体及聚合物材料的布里渊光谱, 并研究了不同固化阶段的 PDMS 弹性变化, 与琼脂糖凝胶进行了对比. 最后, 基于多种黏弹性对比机制对 6 种食用油进行鉴别, 不仅为物质鉴别提供了新的思路, 也拓展了布里渊光谱的测量能力, 提高了黏弹性测量的灵敏性.

关键词: 布里渊散射, 黏弹性, 生物力学

PACS: 78.35.+c, 46.35.+z, 87.85.G-

DOI: 10.7498/aps.73.20231974

1 引言

细胞与其微环境之间的力学相互作用在调节其行为^[1]、促进发育和生理功能^[2]方面起着至关重要的作用. 在过去的几十年里, 新技术的发展带来了对生物力学的新认识, 例如原子力显微镜^[3]、光镊法^[4]、光学相干弹性成像^[5]以及光声成像^[6]等, 但仍缺乏可行的仪器来非接触地描述力学特性细节, 在避免扰动和损伤的同时又能够以高空间分辨率对非均质样本进行研究. 布里渊光谱技术作为生物医学传感和成像的新型工具, 利用激光在微米级尺度上通过非弹性光散射来表征材料的行进密度波动(声波), 无需接触即可在微观尺度上测量材料和生物样品的力学特征, 也可与其他光谱技术如拉

曼光谱、荧光光谱结合, 实现多模态成像和分析. 几十年来, 基于法布里-珀罗标准具的布里渊光谱技术一直用于材料表征^[7]和遥感^[8], 然而, 标准具腔扫描速度慢且光通量低, 导致单像素点的光谱采集达分钟量级, 因此在生物领域的发展长期受到阻碍. Scarcelli 和 Yun 于 2008 年首次将虚拟成像相位阵列应用到布里渊光谱测量中, 结合共聚焦显微镜实现了晶状体的三维弹性显微成像^[9], 之后成功运用在体内人眼测量中^[10]. 目前, 该技术已广泛应用于从单细胞^[11,12]、多细胞^[13,14]、组织器官^[15,16]到整个生物体^[17]的各生物样品及材料中. 然而, 受自发产生机制的影响, 此方法存在散射信号弱、弹性散射背景强的问题, 光谱积分时间较长; 系统中色散元件的有限精度和入射光线宽更是导致其光谱分辨率较低. 虽然目前这种技术有望应用在越来越

* 国家重点研发计划(批准号: 2020YFC2200101)资助的课题.

† 通信作者. E-mail: liyan@mail.tsinghua.edu.cn

多的领域中,但在散射光的产生和收集方面几乎达到了理论极限.为了打破这一瓶颈,需要一种从根本原理上有所区别的方法来产生布里渊散射.

为了克服自发布里渊散射的上述问题,近十年来提出了利用非线性受激过程进行布里渊光谱测量和显微成像的方法.声子在泵浦和探测光相互作用的过程中被共振放大,非弹性散射效率相较于自发过程更大,并在本质上不受弹性背景的影响. Ballmann 等^[18]于2015年首次将其应用到显微成像中,之后 Remer 和 Bilenca^[19,20]优化了调制和锁相机制,并于2020年实现了在生物样品中的应用^[21].然而,由于泵浦光源与探测光源非相干,表征光谱分辨力的布里渊线宽受限于光源线宽,难以进行准确的黏度测量,且光谱分辨率与空间分辨率相互限制;此外,探测光频率扫描的过程增加了测量时间,且信号的产生和探测基于连续激光器,并未充分利用非线性相互作用,导致采集速度仅得到了有限的提高.因此,采用脉冲光源激发受激布里渊散射成为现阶段研究的热点方向.

基于脉冲受激布里渊散射 (impulsive stimulated Brillouin scattering, ISBS) 的光谱测量方法使用一对超短脉冲光源来激发声子,并通过第3束连续光在时域上探测声子^[22-24].由于两束脉冲泵浦光在频域表现为宽带,能够提供丰富的频率差,因此无需扫频即可实现与多种模式声子的共振.这种时域测量方法的单副光谱测量时间仅取决于脉冲光的重复频率,测量速度与其他两种方法相比更具有进一步优化的潜力.此外,泵浦光激发的声场波长固定且严格同向,只有有限的声学模式和光子作用,探测光与参考光又由同一光源产生且光路高度对称,所以避免了布里渊线宽受泵浦光源和探测光源线宽的影响,因此在实现弹性测量的同时也能够通过线宽反演出材料的黏性信息.为了提高 ISBS 方法的测量速度,本课题组提出了基于矩阵束算法的光谱分析方法,从而以更少的信号平均次数实现目标精度的测量,减小光谱积分时间至亚毫秒量级,并实现多组分材料的测量和分析^[25,26].在此基础上,通过建立信噪比模型并进行多参数优化,在保持亚毫秒积分时间的同时减小样品光损伤的风险,并在优化空间分辨率后实现快速三维布里渊显微成像^[27].目前针对 ISBS 光谱的研究较少,并未建立完整的理论体系,且现有研究多局限于对布里渊频移和样品弹性的测量,在利用 ISBS 光谱

线宽为样品提供更多力学特征方面仍有可拓展的潜力.

本文报道了基于 ISBS 的布里渊光谱和黏弹性测量方法,系统采用皮秒脉冲光泵浦声波、近红外连续光探测的结构,通过时域探测的方式,以 10 ms 的积分时间实现了信噪比为 26 dB 的布里渊光谱测量.通过建立布里渊光谱信息与黏弹性参数之间的理论模型,非接触地测量了常见液体、聚合物、弹性体的声速和声衰减信息,常见液体的弹性纵模存储模量和损耗模量的平均相对测量精度分别达 0.1% 和 1%.最后,利用一次光谱测量得到的多种黏弹性参数对常见食用油进行力学特征鉴别,不仅拓宽了布里渊光谱的测量能力,也为物质鉴别提供了新的对比机制.

2 原理

2.1 ISBS 光谱测量基本原理

ISBS 光谱测量关键性光路结构如图 1(a) 所示,两束交叉的脉冲泵浦光产生一对相向传播的声波,作为探测光的连续光以满足相位匹配的角度与激发的声波产生相互作用,通过测量受到振幅调制的散射光的时域变化,即可经过傅里叶变换得到布里渊光谱,其布里渊频移和线宽分别与材料的弹性和黏性相关.采用脉冲泵浦、连续光探测的方式既保留了脉冲光激发散射效率高的优点,又可在一次激发下测量长时间范围的声波波动,避免频率扫描带来的测量速度上的缺陷.

泵浦光在透射光栅 (TG) 上衍射,其 ± 1 级衍射光的衍射半角 θ_1 为 $\arcsin(\lambda_{\text{pump}}/d)$,其中, λ_{pump} 为泵浦光的中心波长, d 为透射光栅的栅距.仅利用泵浦光的 ± 1 级衍射光激发声子,经过两个透镜后,泵浦光在样品上的入射角度 θ'_1 为 $\arcsin[(f_1/f_2)\sin\theta_1]$.由于光路对称,两路泵浦光几乎同时到达样品测量平面,在样品中建立光强峰值和峰谷交替出现的干涉图案,干涉条纹周期与透射光栅栅距的关系为 $d' = \lambda_{\text{pump}}/(2 \sin \theta'_1) = (f_2/f_1)d/2$.通过电致伸缩激发出一对相向传播的声波,能量守恒和动量守恒过程如图 1(b) 所示.由于两束脉冲光在频域表现为宽带,因此可激发的声子模式频率范围较大.根据能量守恒,脉冲光 1 的高频光子产生斯托克斯光和声子,脉冲光 2 的低频光子与脉冲光 1 的斯托克斯光子频率一致,能量由脉冲光 1 转移到脉冲光 2 和

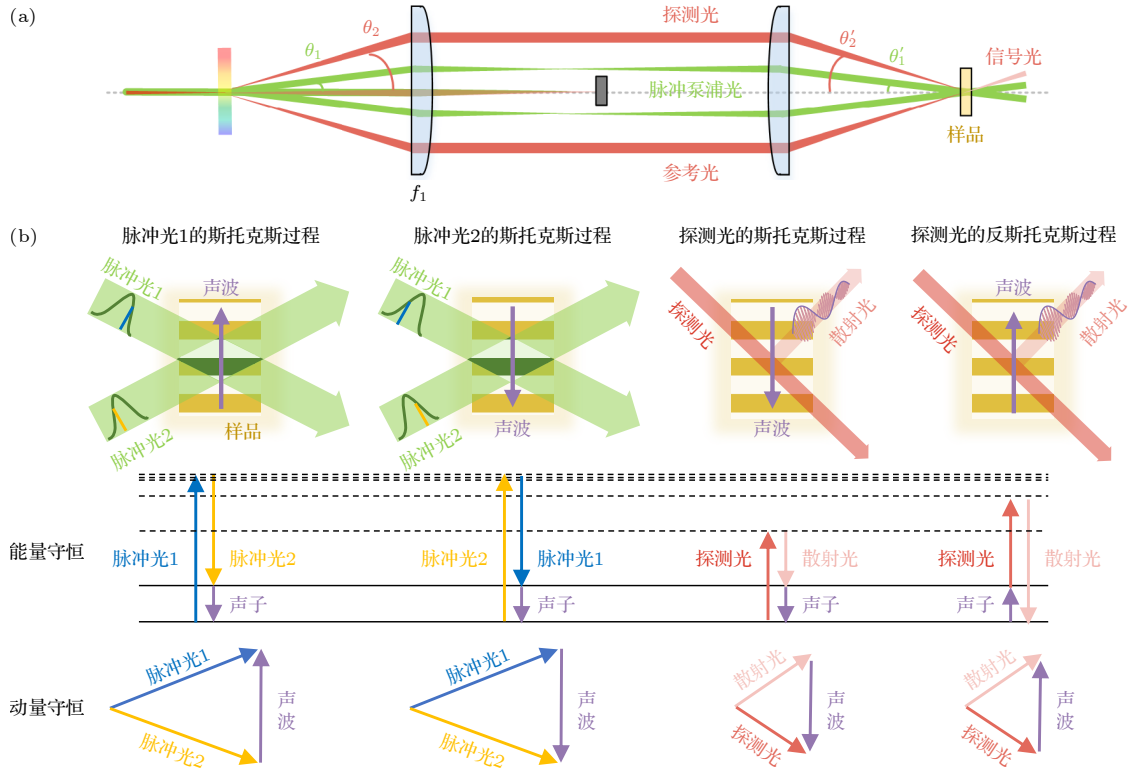


图 1 ISBS 原理示意图 (a) 外差式 ISBS 的光路示意图; (b) ISBS 过程的能量守恒和动量守恒

Fig. 1. The principle of ISBS: (a) Schematic diagram for the optical path of heterodyne ISBS; (b) conservation of energy and momentum in the ISBS process.

激发的声子上; 同样, 脉冲光 2 的高频光子也通过斯托克斯过程转化为脉冲光 1 的低频光子并激发声子, 由此实现声波的激发和受激循环放大. 根据动量守恒, 两束脉冲光相交于样品测量区域, 在垂直光轴方向的投影方向相反, 因此脉冲光 1 和脉冲光 2 的斯托克斯过程在垂直光轴方向上产生一对传播方向相反的声波. 传播方向与干涉条纹周期分布方向平行, 激发的声波长与泵浦光产生的干涉条纹的空间周期一致:

$$\Lambda = d' = \left(\frac{f_2}{f_1} \right) \frac{d}{2}. \quad (1)$$

脉冲泵浦光激发出声波引起材料折射率变化, 通过引入另外一束探测光, 与声波发生相互作用产生布里渊散射光. 作为探测光的连续光在光致光栅区域空间某点衍射光的衍射效率随时间变化, 携带声波的振动信息, 从而在整个时间尺度上观察光致光栅的时间依赖性. 如图 1(a) 所示, 探测光与泵浦光共路垂直入射在透射光栅上, 探测光一级衍射光的衍射半角为 θ_2 . 经过 4f 系统后, 探测光在样品中光致光栅上的入射角为 $\theta_2' = \arcsin [(f_1/f_2) \sin \theta_2] = \arcsin [(f_1/f_2) \lambda_{\text{probe}}/d]$. 而样品中光致光栅的栅距

d' 等效于声波波长 Λ , 即 $(f_2/f_1)d/2$, 因此泵浦光在样品中激发的光致光栅栅距 d' 和探测光在样品上的入射角 θ_2' 满足 $\sin \theta_2' = \lambda_{\text{probe}}/(2d')$, 探测光无需角度匹配即可满足布拉格条件, 此时声波对探测光的调制作用最强. 探测光发生布里渊散射的能量和动量守恒过程如图 1(b) 所示, 探测光与已经被激发的一对声波分别发生斯托克斯散射和反斯托克斯散射, 因此被测散射光与探测光相比产生正向和负向的布里渊频移. 在透射光栅与 4f 系统组合的结构下, 泵浦光或探测光经过 TG 和 4f 系统后在样品上发生受激布里渊散射过程对应的声波波数均为 $4\pi(f_2/f_1)/d$. 因此对于探测光来说, 仍满足与泵浦光激发的声波场的相位匹配关系, 而与光波长无关. 另外, 值得注意的是, 布里渊频移大小与探测光散射角有关, 在自发布里渊散射和受激布里渊散射中, 散射角通常为 180° , 而 ISBS 系统中探测光的散射角远小于 180° . 因此对于同样的样品使用同样波长的探测光, ISBS 测得的布里渊频移要明显小于其他方法.

外差式的探测能够通过引入参考光来提高测量信号的信噪比. 连续光经透射光栅产生的 ± 1 级

衍射光分别作为探测光和参考光, 其余阶次的衍射光在 $4f$ 系统的傅里叶面上通过空间滤波器阻挡. 由布拉格衍射的基本原理, 只有当衍射角等于入射角时才会产生强度峰值, 而又因光路结构对称, 探测光的衍射光与参考光重叠, 因此无需引入其他光和额外对准即可实现外差探测.

2.2 光谱模型与材料黏弹性

参考光与探测光的一级衍射光发生外差干涉, 因此探测器上的测量信号 $I_{\text{sig}}(t)$ 可以表示为^[28]

$$I_{\text{sig}}(t) \propto \sin(2\pi\nu_a t) \exp(-\alpha V t), \quad (2)$$

其中, ν_a , α 和 V 分别为声波的频率、衰减系数和传播速度. 由于外差信号与衍射效率线性相关, 因此探测器测量信号能够直接反映声波振荡信息. 利用光电探测器测得外差干涉信号, 再经过傅里叶变换得到外差 ISBS 系统的光谱信号:

$$I(\nu) \propto \frac{1}{\sqrt{(\alpha V)^2 + [2\pi(\nu - \nu_a)]^2}}. \quad (3)$$

可以看出, 布里渊散射光的光谱特征能够反映声波在材料中的传播特性, 而声波的传播特性又与材料的黏弹性相关. 对于外差 ISBS 系统来说, 光谱最大值对应的布里渊频移 ν_B 即声子振动频率 ν_a . 因此, 通过光谱得到声波振动频率, 并由系统参数根据 (1) 式计算得到声波波长, 即可计算出声波在材料中的传播速度 V :

$$V = \lambda \nu_B = \frac{f_2 d}{f_1 2} \nu_B, \quad (4)$$

复纵模的实部 M' 与声速及材料的密度有关, 因此根据外差 ISBS 测得的光谱信息和材料密度可得表征材料弹性特征的存储模量 M' 为

$$M' = V^2 \rho_0 = \rho_0 \left(\frac{f_2 d}{f_1 2} \right)^2 \nu_B^2. \quad (5)$$

另一方面, 根据 (3) 式所示布里渊峰的半高全宽可以计算出布里渊线宽 Δ_B , 与声波在材料中的衰减系数 α 有关, 由此可得声衰减系数的表达式为

$$\alpha = \frac{\pi \Delta_B}{\sqrt{3} V} = \frac{\pi \Delta_B}{\sqrt{3} \lambda \nu_B}. \quad (6)$$

复纵模的虚部 M'' 与材料的纵向黏度 η_l 有关^[29], 而声波在材料中的衰减系数 α 与纵向黏度 η_l 之间的关系为 $\alpha = 2\pi^2 \nu_B^2 \eta_l / (\rho_0 V^3)$ ^[30], 因此通过外差 ISBS 光谱信息可以计算出表征材料黏性特征的损耗模量 M'' 为

$$M'' = 2\pi \nu_B \eta_l = \frac{\rho_0}{\sqrt{3}} \left(\frac{f_2 d}{f_1 2} \right)^2 \nu_B \Delta_B. \quad (7)$$

可以看出, 与其他布里渊光谱方法不同, 由于外差 ISBS 系统激发的声波波长与材料折射率无关, 因此无需折射率参数, 仅通过系统参数和光谱信息即可计算在测量区域内与材料黏弹性相关的声波传播速度和衰减系数, 在已知材料密度的情况下又能进一步反演出对应的弹性纵模存储模量和损耗模量.

3 ISBS 光谱测量系统

本文基于的外差 ISBS 光谱测量系统如图 2 所示. 其中, 泵浦光源为波长 532 nm、脉冲宽度小于 10 ps 的 Nd:YVO₄ 固体脉冲激光器 (Huaray Laser; PINE-532-15), 脉冲重复频率设置为 10 kHz, 最大单脉冲能量为 100 μ J. 泵浦光通过焦距为 500 mm 的柱面镜 CL 聚焦在 TG 上, 柱面镜的使用在纵向压缩泵浦光大小从而提高单脉冲能量密度, 同时保证横向产生足够多的干涉条纹, 以增强声波的激发效率. 探测光源输出 780 nm 的连续光, 其种子光为分布式布拉格反射激光器 (Thorlabs; DBR780PN), 经过保偏光纤传输至锥形放大器 (New Focus; TA-7613) 进行功率放大, 最大输出功率约为 350 mW. 探测光通过一个焦距为 400 mm 的球面镜 L1 聚焦在 TG 上, 与泵浦光通过短通二向色镜 DM (Thorlabs, DMSP650) 合光后入射到 TG 上, 之后经过消色差透镜 L2 和 L3 在样品测量平面聚焦. 因为 DM 在 532 nm 处的透过率并非 100%, 所以一部分泵浦光被 DM 反射并被光电探测器 PD1 (Thorlabs, PDA 10A-EC, 150 MHz) 接收作为示波器的触发源. 泵浦光经过 $4f$ 系统在样品上激发出波长固定的声波, 探测光经 TG 分光后的其中一路经 ND2 衰减后作为参考光, 从而实现受激布里渊散射信号的外差探测. 两路泵浦光在样品上的单脉冲能量约为 60 μ J, 探测光和参考光在样品上的总功率约为 80 mW. 测量焦面处泵浦光斑横向和纵向的半高全宽分别为 740 μ m 和 230 μ m, 探测光斑的半高全宽约为 300 μ m. 所有的测量均在 (22 ± 1) $^{\circ}$ C 的室温下进行.

经过带通滤光片滤除泵浦光及杂散光的影响后, 携带声波信息的外差信号光由光电探测器 PD2 (New Focus, 1601FS-AC, 30 kHz—1 GHz)

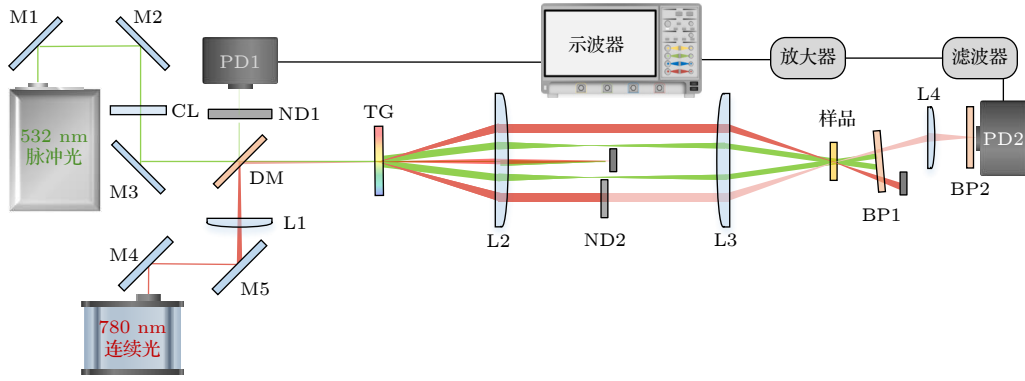


图2 ISBS 光谱测量系统, M1—M5, 反射镜; L1 和 L4, 球面镜; L2 和 L3, 消色差透镜; CL, 柱面镜; ND1 和 ND2, 中性密度滤光片; DM, 二向色镜; TG, 透射光栅; BP1 和 BP2, 780 nm 带通滤光片; PD1 和 PD2, 光电探测器

Fig. 2. Diagram of ISBS system. M1—M5, mirrors; L1 and L4, spherical lenses; L2 and L3, achromatic lenses; CL, cylindrical lens; ND1 and ND2, neutral density filter; DM, dichroic mirror; TG, transmission grating; BP1 and BP2, 780 nm bandpass filters; PD1 and PD2, photodetector.

探测, 信号经高通滤波器 (Mini Circuits, BHP-50+, 41—800 MHz) 及两级级联放大器 (Mini Circuits, ZFL-1000+, 1 GHz) 放大约 250 倍后, 通过高采样率的示波器 (Agilent Technologies, DSO9254A, 2.5 GHz) 进行采集和存储, 外差信号的平均运算过程也在示波器上完成. 对采集的时域信号进行补零处理以减小光谱采样点间隔后, 经过傅里叶变换得到 ISBS 光谱. 根据最大峰值来定位布里渊频移, 再由半高处对应的采样点经过插值计算半高全宽作为布里渊线宽.

4 实验结果与分析

4.1 常见纯品的 ISBS 光谱及黏弹性测量

为了验证布里渊光谱测量力学特征的可行性, 并为其他领域的研究提供更加丰富的黏弹性信息, 基于上述 ISBS 系统和黏弹性理论模型, 测量并对比了多种纯品化学试剂和聚合物的布里渊光谱. 示波器设置为平均 100 次, 因此得到一副完整布里渊光谱的积分时间为 10 ms, 液体样品均置于光程为 10 mm 的石英比色皿中进行测量. 图 3(a) 展示了甲醇、油酸和水的测量结果, 可以看出, ISBS 方法不仅能够提供所需的布里渊光谱信息, 同时还能够提供丰富的时域信息. 经时域测量和傅里叶变化, 图 3(b) 展示了常见的 12 种液体纯品和 5 种聚合物纯品的 ISBS 光谱. 进行傅里叶变化前对时域信号进行补零处理以将光谱采样点间隔由 2.1 MHz 减小为 19 kHz. 所有液体光谱的平均光谱信噪比为 26 dB, 足以准确地提取布里渊频移和线宽. 与

液体相比, 固体材料的吸收系数更大, 因此同样光功率密度下固体材料中产生了非传播的周期性温度分布, 在光谱中表现为低频分量. 由于电学带通滤波器的使用, 光谱中小于 41 MHz 的非传播热信号被截止. 从光谱对比结果可以看出, 聚合物材料普遍拥有比液体样品更大的布里渊频移和线宽, 因此声波在其中的传播速度更大且衰减速度普遍较快, 对应了更大的硬度和黏性.

基于理论模型和测量得到的 ISBS 光谱结果对各样品的声学传播参数及黏弹性表征模量进行了量化反演. 根据图 3(b) 得到的布里渊光谱分别提取了 12 种液体样品和 5 种常见聚合物材料的布里渊光谱信息, 材料标准密度由参考文献 [31] 得出, 由此计算并对比了各液体纯品和聚合物的存储模量 M' 和损耗模量 M'' , 如图 3(c) 所示. 可以看出, 与液体样品相比, 固体聚合物样品拥有更大的弹性和黏性, 这是因为聚合物材料的分子结构更加有序, 分子间作用力更强. 在百兆赫兹的声波振动频率下, 液体的存储模量在 GPa 量级, 而损耗模量在 MPa 量级, 这与弹性模量的理论预测一致 [29]. 在上述液体样品中, 水的布里渊频移最大, 这是由于水分子表现出更有序的网状结构, 声速在其中传播更快. 在 5 种聚合物材料中, PMMA 的频移最大, 表示其具有更有序的结构, 因此声波在其中传播最快, 弹性最大; 而 PC 的布里渊线宽最宽, 声波在其中传播的衰减较大, 黏性最大. 这些由接触式测量才能得到的力学特征, 通过外差 ISBS 系统无需接触即可直观清晰地展现, 为液体纯品和聚合物材料在各领域的应用提供了参考.

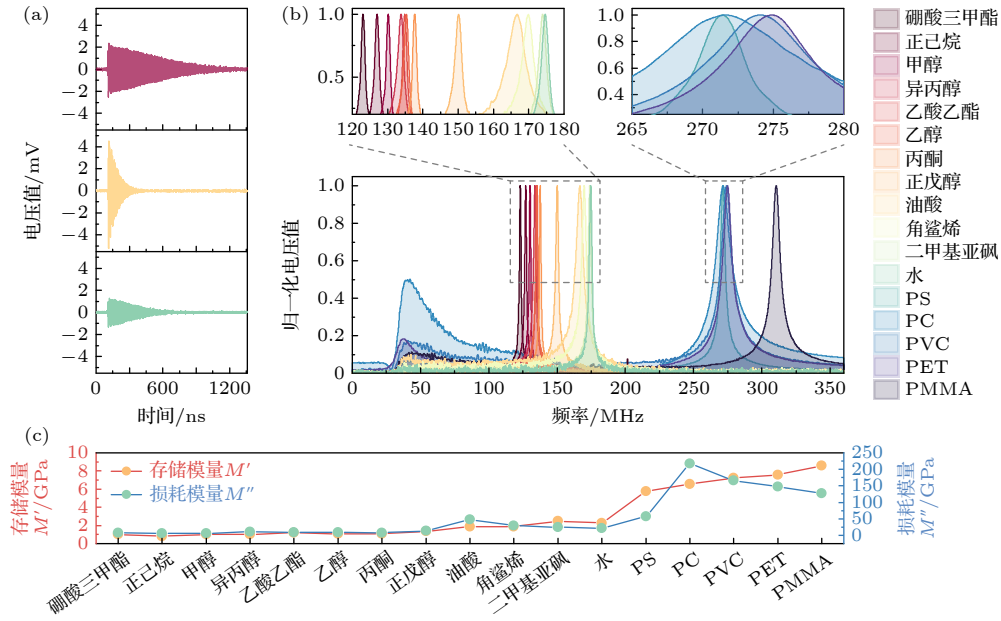


图 3 液体和聚合物纯品的 ISBS 测量结果、对应光谱及弹性纵模 (a) 典型液体纯品的 ISBS 时域测量信号; (b) 多种液体及聚合物纯品的 ISBS 光谱及局部放大图; (c) 由 ISBS 光谱信息提取的弹性纵模实部 (存储模量) 和虚部 (损耗模量)
 Fig. 3. ISBS measurement results, spectra, and elastic longitudinal modules of pure liquid and polymer samples: (a) ISBS time-domain signals of typical liquid purities; (b) ISBS spectra and details of various liquid and polymer purities; (c) the real (storage modulus) and imaginary (loss modulus) parts of elastic longitudinal modules extracted from ISBS spectral information.

表 1 典型液体纯品的 ISBS 光谱信息、声波信息和纵向模量的实验计算值

Table 1. Experimentally calculated values of ISBS spectral information, acoustic information, and longitudinal modulus for typical liquid purities.

样品	ν_B/MHz	Δ_B/MHz	$V/(\text{m}\cdot\text{s}^{-1})$	$\alpha/(\text{dB}\cdot\text{cm}^{-1})$	M'/MPa	M''/MPa
硼酸三甲酯	123.09±0.06	1.54±0.02	1060.0±0.5	26.4±0.3	1028.0±0.9	7.4±0.1
正己烷	127.03±0.03	1.73±0.01	1094.0±0.3	28.7±0.3	790.6±0.4	6.2±0.1
甲醇	130.19±0.02	1.51±0.01	1121.1±0.2	24.4±0.1	994.7±0.3	6.65±0.02
异丙醇	133.87±0.05	2.47±0.04	1152.9±0.4	38.9±0.6	1037.9±0.7	11.1±0.2
乙酸乙酯	134.81±0.04	1.64±0.01	1160.9±0.4	25.7±0.1	1213.4±0.8	8.53±0.04
乙醇	135.34±0.03	1.91±0.02	1165.5±0.3	29.7±0.2	1072.2±0.5	8.7±0.1
丙酮	137.68±0.05	1.58±0.01	1185.7±0.5	24.2±0.1	1102.9±0.8	7.30±0.04
正戊醇	150.17±0.03	2.78±0.05	1293.2±0.3	39.0±0.7	1361.9±0.6	14.6±0.3
油酸	166.85±0.12	7.44±0.06	1436.8±1.0	93.9±0.7	1844.6±2.6	47.5±0.4
角鲨烯	169.87±0.12	4.70±0.07	1462.9±1.0	58.3±0.9	1836.9±2.6	29.4±0.4
二甲基亚砜	173.98±0.08	2.96±0.03	1498.2±0.7	35.9±0.4	2471.4±2.2	24.3±0.2
水	174.69±0.05	2.80±0.05	1504.4±0.4	33.7±0.6	2257.6±1.3	20.9±0.4

进一步地, 为了建立典型液体样品的黏弹性数据库, 并展示此黏弹性测量方法的精度, 对上述 12 种液体纯品进行了多次重复测量, 统计了各布里渊频移和线宽, 并由此计算了声波在样品中传播的速度和衰减系数, 及样品的弹性纵模. 表 1 统计了各测量值的均值和标准差, 由各样品的光谱信息和声信息测量值的相对标准差得到布里渊频移 ν_B 和声速 V 的平均相对测量精度均为 0.04%, 存储模

量 M' 的平均相对测量精度为 0.1%; 布里渊线宽 Δ_B 、声衰减 α 及损耗模量 M'' 的平均相对测量精度均为 1%.

4.2 不同固化阶段 PDMS 的弹性测量及与琼脂的黏弹性对比

聚二甲基硅氧烷 (polydimethylsiloxane, PDMS) 是一种无毒的二甲基硅油, 将基本组分和固化剂按

比例混合,在高温下可快速完成固化.固化后的PDMS结构柔韧,广泛用于柔性传感器^[32]和生物材料^[33]等.然而,之前的研究多采用如原子力显微镜等接触式方法进行测量,难以在不影响固化、不破坏样品的情况下,对不同固化阶段的PDMS弹性变化进行测量.通过测量其布里渊光谱,可以非接触地得到弹性信息,从而使用相同的表征平台对同一样品固化过程中的弹性变化进行测量.这里基于外差ISBS光谱测量系统,在同一表征平台下研究了不同固化阶段下的PDMS弹性变化.实验中以10:1的比例混合基本组分(Sylgard 184)和固化剂,在室温环境下自然固化.图4(a)对比了固化6 h, 8 h, 10 h和48 h的PDMS布里渊光谱,虚线标注的各固化阶段的布里渊频移由121.04 MHz逐渐增大到122.63 MHz,由此计算得到PDMS固化过程中的声速变化如图4(b)所示.随着时间的推移,声波在PDMS中的传播速度由1042 m/s增大到1056 m/s,表明聚合物骨架排列更加坚固,也进一步验证了通过此系统表征弹性变化的可靠性.

同样广泛用于生物实验的琼脂糖凝胶为一种天然多糖聚合物,与细胞外基质相似,可用于细胞生长、分化和增殖,并能够模拟组织的力学性质,调整浓度等因素即可改变琼脂糖的结构形态.琼脂糖和PDMS均为生物中常用的培养基底,还没有研究通过同一个评价体系对两种材料的黏弹性进行对比.这里以2%的浓度将低熔点琼脂糖与蒸馏水混匀,80 °C加热后在常温下静置固化为固态弹性琼脂糖凝胶,利用外差ISBS光谱测量系统测得其布里渊光谱,与固化48 h的PDMS的布里渊光谱进行对比,如图4(c)所示.琼脂糖凝胶对应的布里渊频移为175.05 MHz,线宽为3.54 MHz,由此

计算得声波在其中的传播速度和衰减系数分别为1507 m/s和43 dB/cm.与PDMS相比,琼脂糖凝胶的弹性更大而黏性更小.由于基底的弹性影响细胞的分化增殖和迁移,对两种材料黏弹性的评估为研究细胞对基底环境的反应提供了参考.

4.3 食用油的黏弹性特征鉴别

特级初榨橄榄油、牛油果油和亚麻籽油的加工价格高于市场上其他类型的食用油,而核桃油、玉米胚芽油和葵花籽油价格相对较低,经常被掺杂在昂贵的食用油中,常需要对此进行鉴别.与常见的物质鉴别方法例如拉曼光谱不同,布里渊光谱表征的是样品中的分子聚集形式而不是分子化学键的振动和转动,能够通过测量黏弹性为食用油的鉴别提供一种新的对比机制.采用ISBS光谱测量系统,保持10 ms的积分时间对6种食用油进行了测量,10次重复测量后的平均布里渊光谱如图5(a)所示.图中对信号集中的频段进行了局部放大,可以看出6种食用油的布里渊频移、线宽及峰值均有所区别,因此利用ISBS光谱可以非接触且快速地根据黏弹性特征对食用油进行区分.

通过提取各样品10次重复测量获得的ISBS光谱的频移和线宽,分别计算出声速和声衰减系数,并在图5(b)中进行了对比.现有布里渊光谱研究仅从弹性出发讨论样品的差异,然而对于弹性相近的样品如亚麻籽油和核桃油,声速测量值分别为 (1467.7 ± 1.7) m/s和 (1468.1 ± 1.4) m/s,在各自的 1σ 范围内即存在重叠,因此仅通过声速难以对亚麻籽油和核桃油进行分辨,如图5(b)的轴须图所示.而考虑由布里渊线宽得到的黏性特征后,两种食用油的黏弹性差异明显.根据测量结果,亚麻

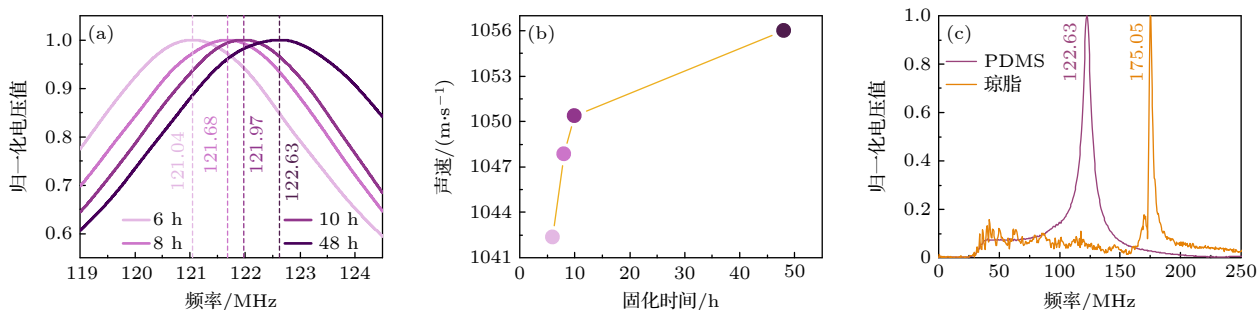


图4 PDMS及琼脂糖凝胶的ISBS光谱和黏弹性测量 (a)不同固化时间下PDMS的ISBS光谱和(b)声速测量结果;(c)PDMS与琼脂糖凝胶的ISBS光谱对比

Fig. 4. ISBS spectra and viscoelastic measurements of PDMS and agar: (a) ISBS spectra of PDMS and (b) sound velocity under different curing times; (c) comparison of ISBS spectra between PDMS and agar.

籽油和核桃油的声衰减系数分别为 (113 ± 2) dB/cm 和 (105 ± 1) dB/cm, 即使在各自 2σ 的范围也没有重叠, 无需额外测量即可区分价格较为昂贵的亚麻籽油与价格较低的核桃油。

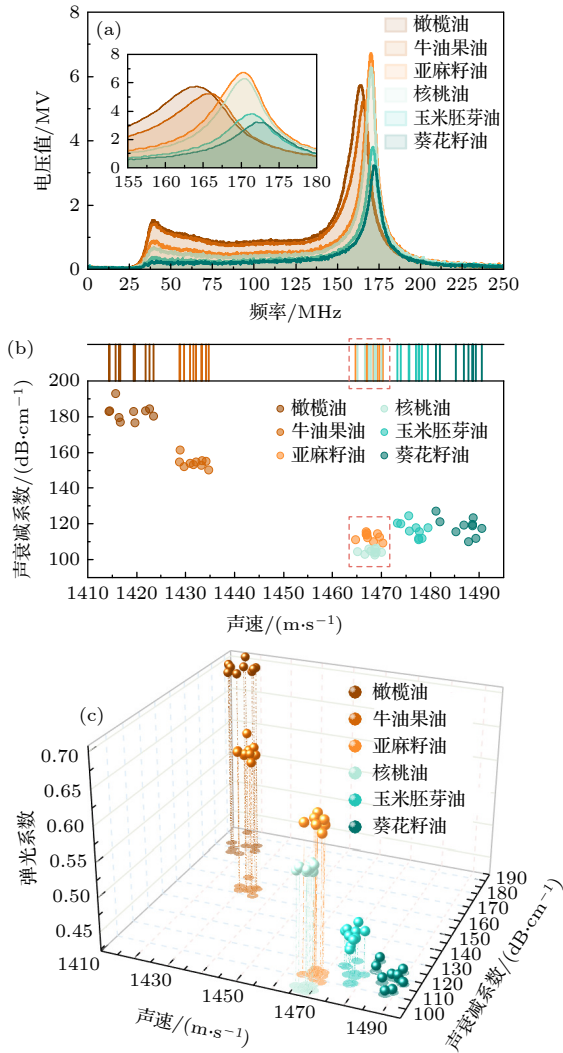


图 5 常见食用油的 ISBS 光谱及黏弹性鉴别 (a) 常见食用油的 ISBS 光谱; (b) 常见食用油的声速和声衰减系数, 轴须图表示各样品声速的重叠情况; (c) 基于声速-声衰减系数-弹光系数的三维黏弹性鉴别

Fig. 5. ISBS spectra and viscoelastic identification of common edible oils: (a) ISBS spectra of common edible oils; (b) sound velocity and acoustic attenuation coefficients of common edible oils, the rug plot indicates the overlap of the sound velocity for each sample; (c) three-dimensional viscoelastic identification based on sound velocity, acoustic attenuation, and elasto-optic coefficient.

对于一些具有相近声速和声衰减系数的样品, 仅通过这两维参数难以进行黏弹性的区分. 在这种情况下, 本课题组基于 ISBS 光谱峰值引入对弹光系数的测量^[28], 建立由声速-声衰减系数-弹光系数

组成的三维黏弹性表征方法, 食用油的表征结果如图 5(c) 所示. 经过光谱信息反演计算可得亚麻籽油和核桃油样品的弹光系数分别为 0.633 ± 0.005 和 0.588 ± 0.012 , 两者的 2σ 范围仍未重叠, 结合两种样品的声速和声衰减系数计算结果, 能够更加灵敏地进行黏弹性的鉴别和分类. 这种基于 ISBS 光谱的黏弹性鉴别方法, 仅需一次光谱测量即可得到样品的多种黏弹性信息, 加入对布里渊线宽和峰值的分析更是为黏弹性测量增加了新的对比机制, 从而提高鉴别灵敏度.

5 结论

本文提出了基于 ISBS 的布里渊光谱测量系统, 通过非接触式的方法测量了多种材料的黏弹性. 通过建立由 ISBS 系统测得的布里渊光谱信息与材料黏弹性关系的理论模型, 一次测量即可同时得到包括声速、声衰减系数、弹性纵模存储和损耗模量在内的多种黏弹性信息, 从而拓展布里渊光谱的测量能力, 提高黏弹性鉴别的灵敏度. 系统采用皮秒脉冲光作为泵浦光激发声波, 利用近红外连续光探测布里渊散射光, 这种时域的探测方法能够以 10 ms 的积分时间进行 26 dB 高信噪比的光谱测量. 结合建立的理论模型, 根据测量光谱提取的布里渊频移与线宽对比了 12 种常见液体纯品和 5 种聚合物材料的黏弹性, 并实现了对弹性纵模的量化测量, 液体的存储和损耗模量的平均相对测量精度分别为 0.1% 和 1%. 此外, 通过测量不同固化阶段的 PDMS 验证了基于 ISBS 方法测量弹性的可靠性, 并对比了 PDMS 与琼脂糖凝胶的黏弹性. 进一步地, 对常见食用油的黏弹性进行了鉴别, 在弹性鉴别的基础上加入了黏性和弹光系数的对比, 为食用油鉴别提供了新对比机制. 综上, 本文提出的基于外差 ISBS 的布里渊光谱测量系统, 为非接触式黏弹性测量提供了新思路, 拓展了布里渊光谱的测量能力和应用场景, 一次光谱测量得到的多种黏弹性信息也提高了材料鉴别的灵敏度.

参考文献

- [1] Discher D E, Janmey P, Wang Y L 2005 *Science* **310** 1139
- [2] Naruse K 2018 *J. Smooth Muscle Res.* **54** 83
- [3] Stylianou A, Lekka M, Stylianopoulos T 2018 *Nanoscale* **10** 20930
- [4] Lee W M, Reece P J, Marchington R F, Metzger N K,

- Dholakia K 2007 *Nat. Protoc.* **2** 3226
- [5] Kennedy B F, Wijesinghe P, Sampson D D 2017 *Nat. Photonics.* **11** 215
- [6] Wang X, Pang Y, Ku G, Xie X, Stoica G, Wang L V 2003 *Nat. Biotechnol.* **21** 803
- [7] Dil J G 1982 *Rep. Prog. Phys.* **45** 285
- [8] Hickman G D, Harding J M, Carnes M, Pressman A, Kattawar G W, Fry E S 1991 *Remote Sens. Environ.* **36** 165
- [9] Scarcelli G, Yun S H 2008 *Nat. Photonics.* **2** 39
- [10] Scarcelli G, Yun S H 2012 *Opt. Express* **20** 9197
- [11] Zhang J, Scarcelli G 2021 *Nat. Protoc.* **16** 1251
- [12] Elsayad K, Werner S, Gallemí M, Kong J, Sánchez Guajardo E R, Zhang L, Jaillais Y, Greb T, Belkhadir Y 2016 *Sci. Signal.* **9** rs5
- [13] Conrad C, Gray K M, Stroka K M, Rizvi I, Scarcelli G 2019 *Cell Mol. Bioeng.* **12** 215
- [14] Karampatzakis A, Song C Z, Allsopp L P, Filloux A, Rice S A, Cohen Y, Wohland T, Török P 2017 *NPJ Biofilms Microbiomes.* **3** 20
- [15] Seiler T G, Shao P, Eltony A, Seiler T, Yun S H 2019 *Am. J. Ophthalmol.* **202** 118
- [16] Matsukawa M, Tsubota R, Kawabe M, Fukui K 2014 *Ultrasonics* **54** 1155
- [17] Raghunathan R, Zhang J, Wu C, Rippey J, Singh M, Larin K, Scarcelli G 2017 *J. Biomed. Opt.* **22** 086013
- [18] Ballmann C W, Thompson J V, Traverso A J, Meng Z, Scully M O, Yakovlev V V 2015 *Sci. Rep.* **5** 18139
- [19] Remer I, Bilenca A 2016 *APL Photonics* **1** 061301
- [20] Remer I, Bilenca A 2016 *Opt. Lett.* **41** 926
- [21] Remer I, Shaashoua R, Shemesh N, Ben-Zvi A, Bilenca A 2020 *Nat. Methods* **17** 913
- [22] Meng Z, Ballmann C W, Petrov G I, Scully M O, Yakovlev V V 2015 *Nonlinear Optics Kauai, Hawaii, July 26, 2015 NTh3A.3*
- [23] Meng Z, Petrov G I, Yakovlev V V 2015 *Analyst* **140** 7160
- [24] Ballmann C W, Meng Z K, Traverso A J, Scully M O, Yakovlev V V 2017 *Optica* **4** 124
- [25] Li J R, Le T R, Wei H Y, Li Y 2022 *Frontiers in Optics + Laser Science Rochester, New York, October 17, 2022 JW4B.70*
- [26] Li J R, Zhang H Y, Lu M, Wei H Y, Li Y 2022 *Opt. Express* **30** 29598
- [27] Li J R, Le T R, Zhang H Y, Wei H Y, Li Y 2024 *Photon. Res.* **12** 730
- [28] Li J R, Zhang H Y, Chen X Y, Le T R, Wei H Y, Li Y 2022 *Appl. Phys. Lett.* **121** 251102
- [29] Prevedel R, Diz-Muñoz A, Ruocco G, Antonacci G 2019 *Nat. Methods* **16** 969
- [30] Dukhin A S, Goetz P J 2009 *J. Chem. Phys.* **130** 124519
- [31] Lide D R 2005 *CRC Handbook of Chemistry and Physics* (CRC Press)
- [32] Kim D H, Ghaffari R, Lu N, Rogers J A 2012 *Annu. Rev. Biomed. Eng.* **14** 113
- [33] Sun Y, Jallerat Q, Szymanski J M, Feinberg A W 2015 *Nat. Methods* **12** 134

Non-contact viscoelasticity measurements based on impulsive stimulated Brillouin spectroscopy*

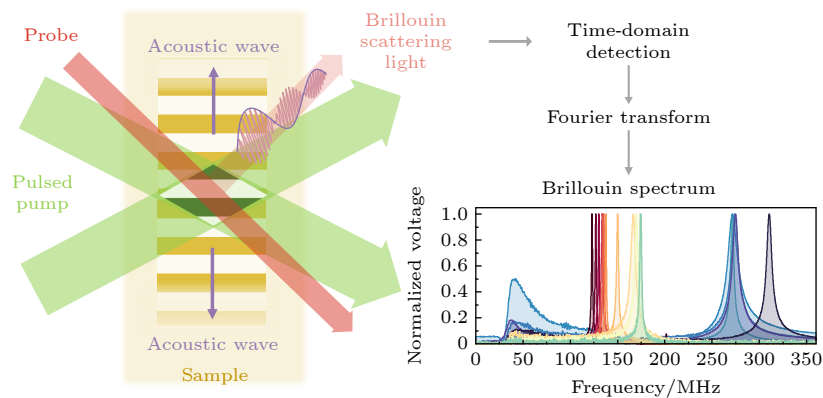
Li Jia-Rui Le Tao-Ran Wei Hao-Yun Li Yan †

(State Key Laboratory of Precision Measurement Technology and Instruments, Department of Precision Instrument, Tsinghua University, Beijing 100084, China)

(Received 15 December 2023; revised manuscript received 17 April 2024)

Abstract

The mechanical properties of cells and tissues play a crucial role in determining biological functions. As a label-free and non-contact mechanical imaging method, Brillouin spectroscopy can characterize viscoelastic changes in samples with high spatial resolution. To sensitively identify small mechanical differences among biological systems, it is important to improve Brillouin scattering efficiency while combining various viscoelastic contrast mechanisms in measurement. This paper presents a high-speed Brillouin spectroscopy based on impulsive stimulated Brillouin scattering. The acoustic oscillation can be excited in a single shot with a pulsed pump laser and detected by a continuous probe laser in the time domain. This time-domain signal can then be transferred to the frequency-domain Brillouin spectrum with high precision. With this method, various viscoelastic information including sound velocity, sound attenuation coefficient, elastic longitudinal storage modulus, and loss modulus can be obtained simultaneously based on derived spectral information. Owing to stimulated scattering and time-domain detection, spectra with a signal-to-noise ratio of 26 dB can be achieved within a millisecond-level spectral integration time. The average measurement precision for storage modulus and loss modulus of the longitudinal elastic modulus are 0.1% and 1%, respectively. With this method, the Brillouin spectra and viscoelastic parameters of typical liquids and polymer materials are measured and compared, providing a comprehensive reference for viscoelastic parameters. We also study the elastic changes in different curing stages of PDMS and make a comparison of viscoelasticity with agarose gel. Moreover, six edible oils are identified based on various viscoelastic contrast mechanisms, which not only provides a new perspective for material identification but also expands the measurement capabilities of Brillouin spectroscopy and enhances the sensitivity of viscoelasticity measurements.



Keywords: Brillouin scattering, viscoelasticity, biomechanics

PACS: 78.35.+c, 46.35.+z, 87.85.G–

DOI: [10.7498/aps.73.20231974](https://doi.org/10.7498/aps.73.20231974)

* Project supported by the National Key R&D Program of China (Grant No. 2020YFC2200101).

† Corresponding author. E-mail: liyan@mail.tsinghua.edu.cn



基于脉冲受激布里渊散射光谱的非接触式黏弹性测量

李佳芮 乐陶然 尉昊赞 李岩

Non-contact viscoelasticity measurements based on impulsive stimulated Brillouin spectroscopy

Li Jia-Rui Le Tao-Ran Wei Hao-Yun Li Yan

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 73, 127801 (2024) DOI: 10.7498/aps.73.20231974

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.73.20231974>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

单原子Lennard-Jones体黏弹性弛豫时间

Viscoelastic relaxation time of the monoatomic Lennard-Jones system

物理学报. 2020, 69(12): 123101 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200138>

基于拉曼-布里渊散射的海水盐度精细探测遥感方法

Method of remotely sensing seawater salinity fine detection based on Raman Brillouin scattering

物理学报. 2021, 70(22): 229201 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210201>

非线性效应对前向受激布里渊散射分布式传感的影响

Influence of nonlinear effects on forward stimulated Brillouin scattering distributed sensing

物理学报. 2022, 71(15): 154206 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220313>

皮秒激光驱动下的背向受激布里渊散射的光谱结构

Spectral structures of backward stimulated Brillouin scattering driven by a picosecond laser

物理学报. 2021, 70(19): 195202 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210568>

水体参数对受激布里渊散射阈值及增益的影响

Influence of water parameters on threshold value and gain coefficient of stimulated Brillouin scattering

物理学报. 2021, 70(15): 154205 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210326>

带空气狭缝倒置结构的脊型硫系光波导后向受激布里渊散射研究

Study on backward stimulated Brillouin scattering of chalcogenide inverted-ridge optical waveguide with air slot

物理学报. 2024, 73(1): 014206 <https://doi.org/10.7498/aps.73.20231272>