

# К вопросу об оценке эффективных оптических характеристик плотноупакованных фибриллярных сред

Д.А.Зимняков, Л.В.Кузнецова, О.В.Ушакова, Р.Мюллюля

*Предложен метод определения эффективных оптических характеристик многократно рассеивающих случайно-неоднородных сред на основе анализа углового распределения интенсивности в пике когерентного обратного рассеяния от слоя среды конечной толщины с учетом отражательной способности его границ. Представлены результаты экспериментальных исследований оптических характеристик слоев сухой и насыщенной иммерсионными жидкостями бумаги в видимой области с использованием измерений полуширины пиков интенсивности когерентного обратного рассеяния на фиксированных длинах волн (633 и 532 нм), а также спектроскопии диффузного и коллимированного пропускания. Полученные результаты свидетельствуют об изотропном характере рассеяния зондирующего излучения в слоях бумаги.*

**Ключевые слова:** многократное рассеяние, случайно-неоднородные среды, транспортная длина.

## 1. Введение

Оптические методы зондирования случайно-неоднородных сред в настоящее время широко применяются в биологии, медицине и материаловедении. Для описания переноса зондирующего излучения в исследуемых объектах в ряде случаев может быть использовано диффузионное приближение теории переноса излучения [1, 2], в рамках которого в качестве параметров зондируемой среды вводятся транспортный коэффициент рассеяния  $\mu'_s$  и коэффициент поглощения  $\mu_a$ . Существенное влияние на распространение зондирующего излучения в среде оказывает также и параметр анизотропии рассеяния  $g$ , определяемый как

$$g = \langle \cos \theta \rangle = \frac{\int_0^\pi \cos \theta \sin \theta p(\theta) d\theta}{\int_0^\pi \sin \theta p(\theta) d\theta},$$

где  $\theta$  – угол рассеяния, а фазовая функция рассеяния  $p(\theta)$  описывает угловое распределение интенсивности излучения, рассеянного изолированным рассеивателем [1]. Для плотноупакованных случайно-неоднородных сред, в которых корреляции положений рассеивающих частиц оказывают существенное влияние на распространение света, в качестве  $p(\theta)$  берется эффективная фазовая функция среды, вычисляемая с учетом статического структурного фактора рассеивающей системы (см., напр., [3, 4]). В случае полидисперсных рассеивающих систем парамет-

ры  $\mu'_s$ ,  $\mu_a$  и  $g$  определяются в результате их усреднения по ансамблям рассеивателей. В случае слабо поглощающих случайно-неоднородных сред ( $\mu'_s \gg \mu_a$ ) параметр анизотропии рассеяния определяет взаимосвязь между двумя характерными масштабами в зондируемой случайно-неоднородной среде – транспортной длиной  $l^* = (\mu'_s)^{-1}$  и длиной рассеяния  $l = \mu_s^{-1}$ , где  $\mu_s$  – коэффициент рассеяния:  $l^* = l/(1 - g)$  [1].

В рамках приближения слабого рассеяния ( $\lambda \ll l$ ) взаимосвязь между структурными характеристиками зондируемой среды (концентрацией и средним размером рассеивающих центров) и транспортными параметрами  $l$ ,  $l^*$  и  $l_a = \mu_a^{-1}$  может быть установлена в результате вычисления сечений рассеяния ( $\sigma_s$ ) и поглощения ( $\sigma_a$ ) рассеивателей, а также значения  $g$  (например, с использованием теории Ми [5]) с последующим нахождением длины рассеяния  $l = (\sigma_s c)^{-1}$ , длины поглощения  $l_a = (\sigma_a c)^{-1}$  и транспортной длины  $l^* = [\sigma_s c(1 - g)]^{-1}$ , где  $c$  – объемная концентрация рассеивателей. С точки зрения оптической диагностики многократно рассеивающих случайно-неоднородных сред, характеризующихся малым поглощением (к ним относятся, например, большинство биологических тканей в случае их зондирования светом с  $\lambda = 0.7 - 1.2$  мкм), транспортная длина является важным параметром, определяющим расстояние в среде, на котором происходит переход от режима направленного переноса зондирующего излучения к диффузионному режиму распространения. Отношение  $l^*/l$  также играет важную роль в описании процесса переноса зондирующего излучения в случайно-неоднородных средах, поскольку им определяется характерное число актов рассеяния, необходимое для стохастизации волнового вектора излучения в среде. В случае  $l^* \gg l$  исследуемая среда характеризуется существенно анизотропным рассеянием зондирующего излучения, в то время как при  $l^* \approx l$  в среде имеет место изотропное рассеяние, что, как правило, типично для ансамблей рассеивающих центров с размерами, существенно меньшими длины волны.

Одним из традиционных методов определения  $l^*$  яв-

Д.А.Зимняков, Л.В.Кузнецова. Саратовский государственный университет им. Н.Г.Чернышевского, Россия, 410012 Саратов, ул. Астраханская, 83; e-mail: zimnyakov@sgu.ru

О.В.Ушакова. Саратовский государственный технический университет, Россия, 410071 Саратов, ул. Политехническая, 77

Р.Мюллюля. University of Oulu, P.O. Box 4500, 90014 University of Oulu, Finland

ляется измерение диффузного пропускания  $T_d$  слоя исследуемой среды и/или диффузного отражения  $R_d$  от него с помощью интегрирующих сфер (см., напр., [6]). Значение  $l$  для слабо поглощающих сред может быть найдено в результате измерений коллимированного пропускания  $T_c$  как  $l \approx W / \ln(1/T_c)$  (где  $W$  – толщина зондируемого слоя), при этом необходимо учитывать френелевские потери на отражение на границах слоя.

В настоящей работе рассмотрен альтернативный подход к определению транспортной длины для слабо поглощающих случайно-неоднородных сред на основе анализа полученных в эксперименте угловых распределений интенсивности в пиках когерентного обратного рассеяния с учетом отражательной способности границ слоя исследуемой среды. В качестве исследуемых образцов использовались слои сухой и насыщенной иммерсионной жидкостью бумаги, представляющей собой типичный пример случайно-неоднородной среды с фибриллярной структурой.

Основным фактором, определяющим распространение зондирующего излучения в слоях сухой бумаги, является многократное рассеяние света структурообразующими элементами (волокнами целлюлозы, неупорядоченная сетка которых составляет основу структуры бумаги, фрагментами волокон и частицами наполнителей, добавляемых в бумагу для придания ей требуемых свойств). Высокая плотность упаковки и достаточно большие показатели преломления рассеивающих центров ( $\sim 1.55$  для волокон целлюлозы и от 1.52 до 2.5 для частиц наполнителей в зависимости от их типа; значение  $\sim 2.5$  имеют частицы двуокиси титана) при относительно слабом поглощении (для неокрашенной бумаги) в видимой области обуславливают значения оптической толщины  $\tau \approx \mu_s W = W/l$ , многократно превышающие единицу даже для образцов толщиной 80–100 мкм. Это приводит к преимущественно диффузионному режиму распространения света в слоях сухой бумаги и позволяет с некоторыми допущениями применять для исследования их оптических свойств оптические диффузионные методы и, следовательно, модели переноса излучения в зондируемой среде на основе диффузионного приближения. Типичным примером является использование модели Кубелки–Мунка для интерпретации результатов оптической диагностики слоев бумаги [7, 8]. Диффузионное приближение применимо и в случае анализа данных, получаемых при зондировании образцов бумаги с помощью импульсно-модуляционных методов и методов низкокогерентной интерферометрии (в частности, времяпролетной фотометрии и оптической когерентной томографии), которые обладают достаточно высокой чувствительностью к изменениям структурных характеристик исследуемых образцов [9–11].

Одной из важных проблем оптической диагностики многократно рассеивающих сред со сложной структурой (в том числе и бумаги) является установление взаимосвязи между диагностическими параметрами, получаемыми с использованием того или иного оптического метода, и структурными характеристиками зондируемой среды. Для решения данной проблемы в случае оптического зондирования бумаги рассматривались различные модели бумаги как случайно-неоднородной среды; в частности, в [12] предложена многослойная модель, учитывающая шероховатость границ раздела отдельных слоев. В работе [13] рассмотрена оптическая модель бу-

маги как ансамбля случайным образом ориентированных диэлектрических цилиндров.

Интерес к исследованию оптических характеристик бумаги обусловлен также тем, что ранее при исследованиях ее оптических свойств методом времяпролетной фотометрии [9] предполагалось, что анизотропия рассеяния зондирующего излучения в слоях бумаги чрезвычайно высока ( $g \approx 0.94 - 0.97$ ); при этом не проводились непосредственные оценки отношения  $l^*/l$  как характеристики анизотропии рассеяния зондирующего излучения. Предположение о столь высокой анизотропии рассеяния света в слоях бумаги было сделано, исходя из оценок в рамках теории Ми значений  $g$  для волокон целлюлозы как одной из основных структурных составляющих бумаги. Вместе с тем наличие в слоях бумаги частиц наполнителей и фрагментов волокон, характеризующихся существенно меньшими значениями дифракционного параметра  $\pi d/\lambda$  ( $d$  – характерный размер рассеивателей), чем волокна целлюлозы, должно приводить к уменьшению эффективного параметра анизотропии рассеяния для образцов бумаги как системы рассеивателей различных типов по сравнению с приведенными в работе [9] значениями.

В связи с этим с целью установления характера рассеяния света в слоях бумаги нами в дополнение к измерениям угловых распределений интенсивности в пиках когерентного обратного рассеяния для различных длин волн зондирующего излучения также исследованы спектральные зависимости  $T_d$ ,  $R_d$  и  $T_c$  в видимой области для сухих и насыщенных жидкостями образцов. Это позволило сопоставить данные, полученные с использованием различных оптических диффузионных методов, а также установить преимущественно изотропный характер рассеяния зондирующего излучения в слоях бумаги (из сравнения полученных в результате анализа экспериментальных данных значений  $l^*$  и  $l$ ).

## 2. Методика проведения экспериментов

Были исследованы образцы бумаги типа сору рарег от различных производителей, незначительно различающиеся по толщине  $W$  и объемной доле твердой фракции  $f$ : бумага мультимедийного применения категории В Ballet Classic (производитель АО «Светогорск», Россия), бумага писчая Universal Office (производитель Бумажный комбинат г. Котлас, Россия), бумага писчая Office Line (производитель ГК «Экорт», Россия) и офисная бумага Data Copy (производитель M-Real, Швеция). Перед проведением экспериментов для всех образцов были определены значения  $W$  в 10 различных зонах образца с последующим усреднением полученных данных. Измерения выполнялись с помощью прибора Микрон-02 (цифровой прибор для поверки концевых мер длины с индуктивным преобразователем перемещений; используемые пределы измерений 0–200 мкм, гарантированная производителем погрешность измерений  $\pm 0.2\%$ ). Во время измерений деформация образцов бумаги в зоне контакта наконечника индуктивного датчика прибора Микрон-02 с измеряемым образцом не оказывала существенного влияния на результаты измерений, о чем косвенно свидетельствует сопоставление значений плотности  $\rho$  исследуемых образцов, вычисляемых по измеренным толщине, массе (взвешивание на аналитических весах) и площади образцов, с соответствующими значениями, указанными производителями. По полученным

данным  $\rho = (79.7 \pm 4.1) \text{ г/м}^2$  для образца № 1 (по данным производителя  $80 \text{ г/м}^2$ ),  $(67.6 \pm 3.8) \text{ г/м}^2$  для образца № 2 ( $65 \text{ г/м}^2$ ),  $(62.6 \pm 3.5) \text{ г/м}^2$  для образца № 3 ( $65 \text{ г/м}^2$ ) и  $(81.8 \pm 4.2) \text{ г/м}^2$  для образца № 4 ( $80 \text{ г/м}^2$ ).

Незначительная систематическая погрешность измерений толщины образцов в результате воздействия наконечника индуктивного датчика на образец обусловлена малым значением измерительного усилия, создаваемого пружиной датчика (не более  $0.3 \text{ Н}$ ), а также достаточно большим радиусом кривизны контактной поверхности наконечника (и, следовательно, большой площадью контакта наконечника с образцом). Случайная составляющая погрешности измерений толщины образцов в фиксированной точке, определяемая по серии из 10 показаний прибора Микрон-02 для уровня значимости  $0.9$ , не превышала  $\pm 1 \text{ мкм}$ ; аналогичная величина, определяемая в результате измерений в 10 различных точках, выбираемых случайным образом в пределах участка размером  $100 \times 100 \text{ мм}$ , не превышала  $\pm 5 \text{ мкм}$ . Объемные доли твердой фазы оценивались, исходя из разностей измеренных плотностей сухих и насыщенных водой образцов, при этом насыщаемые образцы выдерживались в жидкости не менее 12 ч. В качестве иммерсионных жидкостей использовались дистиллированная вода и глицерин (производитель «УкрХимРесурс», массовая доля чистого глицерина не менее  $94\%$ ), существенно различающиеся как по показателям преломления ( $\sim 1.33$  для воды и  $\sim 1.47$  для глицерина), так и по вязкости.

Предварительные исследования показали, что при времени насыщения образцов жидкостью  $t_{\text{sat}} \geq 7 - 10 \text{ ч}$  (в зависимости от плотности сухого образца) зависимости плотности от времени насыщения  $\rho(t_{\text{sat}})$  для всех исследуемых образцов характеризуются достижением стационарного значения  $\rho(t_{\text{sat}}) \approx \text{const}$ . Следует отметить, что при насыщении жидкостями толщина образцов увеличивается на  $10\% - 15\%$  (в зависимости от насыщающей жидкости, плотности образца в сухом состоянии и его толщины), что, предположительно, обусловлено разбуханием волокон целлюлозы при их гидратации. Увеличение толщины насыщенных жидкостью образцов учитывалось в дальнейшем при анализе экспериментальных результатов. Полученные в предварительных экспериментах значения толщины и объемной доли твердой фазы для исследуемых образцов приведены в табл. 1.

В ходе экспериментов с образцами бумаги были получены угловые распределения интенсивности в пиках когерентного обратного рассеяния для длин волн зондирующего излучения  $633$  и  $532 \text{ нм}$ , а также спектры диффузного пропускания и отражения для исследуемых образцов в диапазоне  $\lambda = 450 - 800 \text{ нм}$ . На рис. 1 приведена схема экспериментальной установки для анализа угловых распределений интенсивности в пиках когерентного обратного рассеяния. В качестве источников зондирующего излучения использовались гелий-неоновый лазер (ГН-5П, производитель НПО «Плазма»,  $\lambda = 633 \text{ нм}$ , вы-

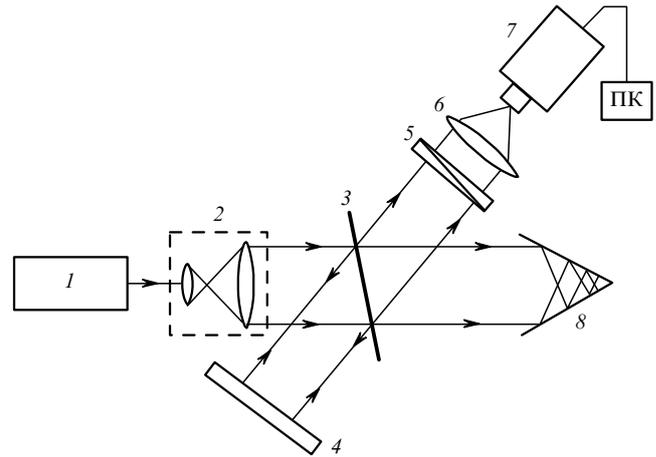


Рис. 1. Схема экспериментальной установки для анализа угловых распределений интенсивности в пиках когерентного обратного рассеяния:

1 – лазер ( $\lambda = 633$  или  $532 \text{ нм}$ ); 2 – телескопическая система – расширитель пучка с точечной диафрагмой (пространственным фильтром); 3 – светоделитель; 4 – исследуемый образец; 5 – поляризатор; 6 – объектив – фурье-преобразователь; 7 – ПЗС-камера; 8 – оптическая ловушка-поглотитель.

ходная мощность  $5 \text{ мВт}$ , линейная поляризация) и вторая гармоника непрерывного лазера на аллюмоиттриевом гранате с диодной накачкой (производитель «Лазер-компакт»,  $\lambda = 532 \text{ нм}$ , выходная мощность  $2 \text{ мВт}$ , линейная поляризация). Пучок зондирующего излучения расширялся телескопической системой ( $50\times$ ) с диафрагмой – пространственным фильтром (диаметр пучка на выходе телескопической системы был равен  $20 \text{ мм}$ ) – и с помощью светоделителя направлялся на исследуемый образец, расположенный в передней фокальной плоскости объектива – фурье-преобразователя с фокусным расстоянием  $80 \text{ мм}$ . Непосредственно перед объективом устанавливался поляризационный фильтр, используемый для выделения сополяризованной составляющей зондирующего излучения, рассеянного образцом (т. е. линейно поляризованной составляющей с направлением электрического поля, совпадающим с направлением поля в зондирующем пучке). Угловые распределения интенсивности обратного рассеянного излучения регистрировались в задней фокальной плоскости объектива с помощью монохромной ПЗС-камеры (тип VS-СТТ-075-2001, разрядность  $10$  бит, размер пикселя  $8.3 \times 8.3 \text{ мкм}$ , формат кадра  $780 \times 580$  пикселей).

На рис. 2, а приведено типичное распределение интенсивности в фокальной плоскости объектива – фурье-преобразователя, отвечающее пику когерентного обратного рассеяния при зондировании сухого образца бумаги № 1 излучением с  $\lambda = 633 \text{ нм}$ , а на рис. 2, б – соответствующая форма пика когерентного обратного рассеяния. По полученным угловым распределениям интенсивности  $I(\theta)$  определялись полуширины пиков когерентного обратного рассеяния  $\Omega_{0.5}$  (табл. 2). Для образцов бумаги, насыщенных глицерином, измерения угловых распределений интенсивности в пиках когерентного обратного рассеяния на  $\lambda = 532 \text{ нм}$  не проводились из-за низкого качества получаемых изображений пиков (в данном случае в образцах имело место существенно малократное рассеяние зондирующего излучения, приводившее к подавлению эффекта когерентного обратного рассеяния).

Табл. 1. Толщина  $W$  и объемная доля твердой фазы  $f$  для исследуемых образцов.

Номер образца	$W$ (мкм)	$f$
1	$94 \pm 4.7$	$0.45 \pm 0.02$
2	$80 \pm 4$	$0.42 \pm 0.02$
3	$60 \pm 3$	$0.35 \pm 0.018$
4	$90 \pm 4.5$	$0.39 \pm 0.02$

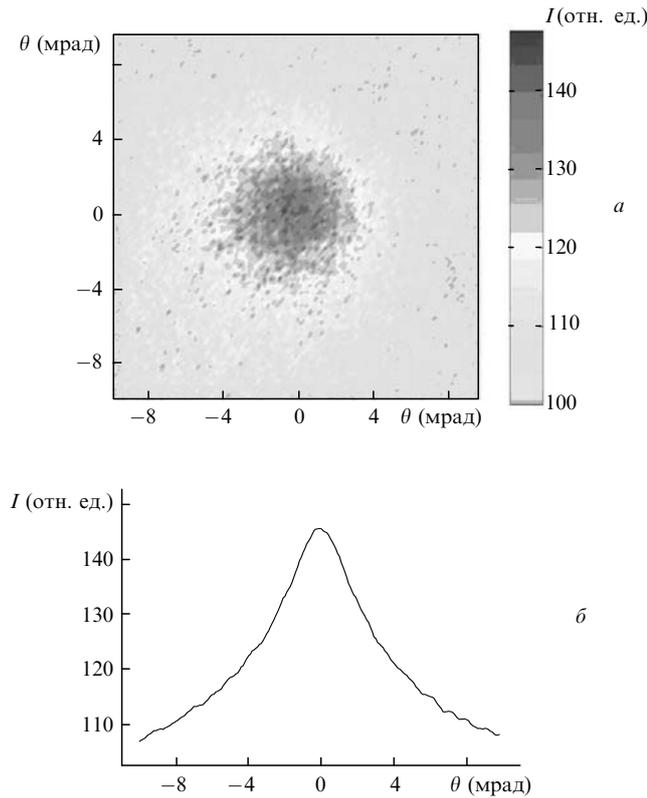


Рис.2. Типичное угловое распределение интенсивности обратно рассеянного излучения в области пика когерентного обратного рассеяния, регистрируемое с помощью ПЗС-камеры (когерентность излучения приводит к существенной спекл-модуляции детектируемого излучения) (а) и форма пика, соответствующая распределению интенсивности на рис.2,а (для подавления спекл-модуляции проводилось усреднение распределения интенсивности по 20 статистически независимым спекл-модулированным кадрам для исследуемого образца) (б).

В работе были исследованы спектры диффузного пропускания ( $T_d(\lambda)$ ) и отражения ( $R_d(\lambda)$ ) для сухих и насыщенных иммерсионными жидкостями образцов в диапазоне  $\lambda = 450 - 800$  нм с использованием спектрофотометра Cary-2415 с интегрирующей сферой. На рис.3,а в качестве примера приведены спектры  $T_d(\lambda)$  и  $R_d(\lambda)$  для образца № 1 в сухом состоянии и в случае его насыщения иммерсионной жидкостью (глицерином). Также для оценки коэффициента экстинкции  $\mu_t = \mu_a + \mu_s$  исследуемых образцов проводились измерения их спектров коллимированного пропускания  $T_c(\lambda) \approx \exp(-\mu_t W)$  в диапазоне 400–800 нм с использованием спектрофлуориметра СДЛ-1, оборудованного специальным коллимирующим

Табл.2. Полуширина пика  $\Omega_{0.5}$  (в мрад) для исследуемых образцов.

$\lambda$ (нм)	Номер образца	Состояние образца		
		Сухой	Насыщенный водой	Насыщенный глицерином
633	1	$6.2 \pm 0.31$	$4.3 \pm 0.22$	$3.5 \pm 0.18$
	2	$6.16 \pm 0.31$	$4.27 \pm 0.21$	$3.6 \pm 0.18$
	3	$6.7 \pm 0.34$	$4.8 \pm 0.24$	$4 \pm 0.2$
	4	$6.3 \pm 0.32$	$4.2 \pm 0.21$	$4.5 \pm 0.22$
532	1	$5.6 \pm 0.28$	$3.7 \pm 0.19$	–
	2	$5.2 \pm 0.26$	$3.9 \pm 0.19$	–
	3	$5.4 \pm 0.27$	$3.3 \pm 0.17$	–
	4	$5.2 \pm 0.26$	$3.9 \pm 0.2$	–

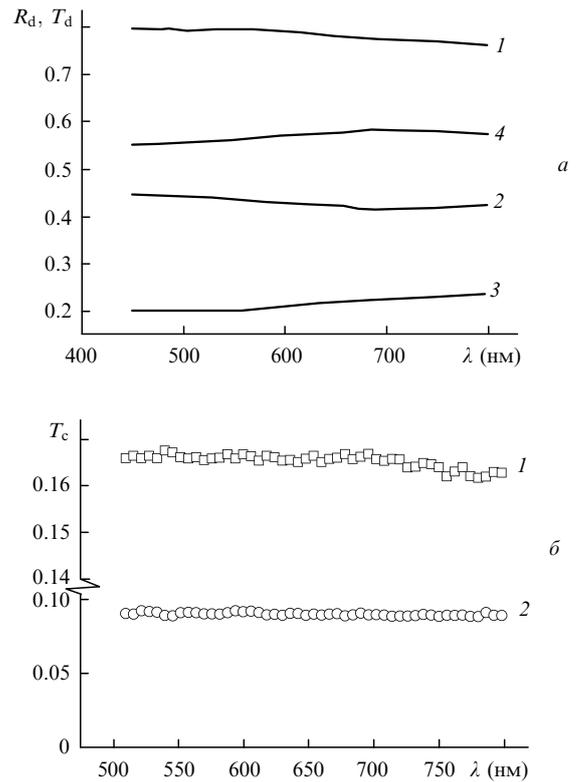


Рис.3. Спектры диффузного отражения  $R_d$  (1, 2) и диффузного пропускания  $T_d$  (3, 4) для сухого (1, 3) и насыщенного глицерином (2, 4) образца № 1 (а), а также спектры коллимированного пропускания для сухого (1) и насыщенного глицерином (2) образца № 3 (б).

приспособлением из трех соосно расположенных диафрагм малого диаметра (1 мм) в кюветном отсеке. Достаточно большое расстояние между диафрагмами (180 мм) обеспечивало пренебрежимо малое влияние рассеянного вперед излучения на результаты измерений по сравнению с влиянием нерассеянной (коллимированной) составляющей. На рис.3,б в качестве примера приведены спектры коллимированного пропускания, полученные для сухого и насыщенного глицерином образца № 3.

В видимой и ближней ИК областях спектра распространение зондирующего излучения в исследуемых образцах определяется в основном процессом рассеяния, поскольку  $\mu_s \gg \mu_a$  и, следовательно,  $\mu_t \approx \mu_s$ . Предварительный анализ полученных экспериментальных результатов, проведенный без учета отрагательной способности границ образцов и их конечной толщины при измерениях когерентного обратного рассеяния (в этом случае транспортный коэффициент рассеяния связан с полушириной пика когерентного обратного рассеяния следующим приближенным выражением (см., напр., [14]):  $\Omega_{0.5} \approx \lambda \mu'_s / (3\pi)$ ), позволяет заключить, что в нашем случае имеет место соотношение  $\mu_s \geq \mu'_s$  (т. е. оценки коэффициента рассеяния сопоставимы с оценками транспортного коэффициента рассеяния, что свидетельствует о преимущественно изотропном характере рассеяния при распространении зондирующего излучения). Данный вывод находится в противоречии с упомянутым выше предположением [9] о существенно анизотропном характере рассеяния видимого и ИК излучения в слоях сухой бумаги ( $g \approx 0.94 - 0.98$  соответствует режиму рассеяния с  $\mu_s \gg \mu'_s$ ; при этом транспортная длина для исследуемых образцов должна существенно превышать их толщину).

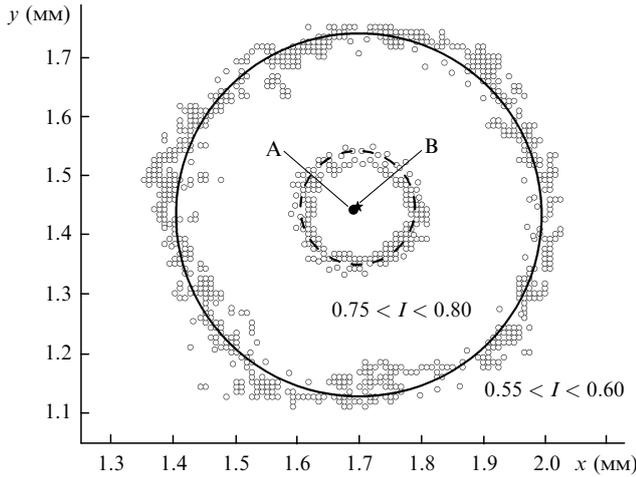


Рис.4. Линии равной интенсивности диффузно рассеянного излучения от многослойного пакета, составленного из образцов бумаги № 2. Приведенные значения – диапазоны нормированных интенсивностей, выбираемые при построении соответствующей линии (нормировка проводилась на значение, определенное вблизи геометрического центра распределения за пределами зоны ввода излучения); точка А соответствует центру зоны ввода излучения, точка В – геометрическому центру линий равной интенсивности. Малое значение эксцентricности линий относительно точки А отвечает малому значению транспортной длины.

Полученные в наших экспериментах типичные значения диффузного пропускания образцов сухой бумаги в видимой и ближней ИК областях спектра (0.20–0.25) противоречат предположению о существенно анизотропном характере рассеяния при  $l^* \gg W$ . Оценки транспортной длины также были проведены путем анализа пространственных распределений интенсивности обратно рассеянного излучения на поверхности многослойного пакета, составленного из исследуемых образцов, при наклонном падении сфокусированного зондирующего пучка (метод рефлектометрии при наклонном падении зондирующего пучка, предложенный Л. Вангом и С. Жаком [15]). Для изотропных многократно рассеивающих сред преобразование направленной составляющей зондирующего излучения в диффузную по мере проникновения пучка в среду приводит к эксцентricности осесимметричных распределений интенсивности диффузно рассеянного света, регистрируемых с помощью ПЗС-камеры, относительно зоны ввода излучения. Смещение зоны ввода излучения относительно геометрического центра линий равной интенсивности диффузно рассеянного света в первом приближении прямо пропорционально транспортной длине для зондируемой среды и зависит от эффективного показателя преломления среды и угла ввода зондирующего пучка.

На рис.4 в качестве примера приведены линии равной интенсивности диффузно рассеянного излучения с  $\lambda = 633$  нм при угле падения сфокусированного зондирующего пучка на образец  $35^\circ$ . Наблюдаемые в экспериментах с наклонным падением сфокусированного зондирующего пучка на образец малые смещения (сопоставимые с размером пикселя ПЗС-камеры) геометрического центра линий равной интенсивности диффузно рассеянного света относительно зоны ввода излучения позволяют сделать вывод о том, что транспортная длина для исследуемых сухих образцов в данном случае находится в интервале приблизительно 10–25 мкм (т. е.  $l^* \ll W$ ).

### 3. Анализ экспериментальных результатов

Форма и ширина пика когерентного обратного рассеяния от слоя многократно рассеивающей среды в отсутствие поглощения определяются не только транспортной длиной  $l^*$ , но также отношением  $W/l^*$  и отражательной способностью  $\mathfrak{R}$  границы слоя. Величина  $\mathfrak{R}$ , в свою очередь, зависит от отношения эффективного показателя преломления слоя  $n_{\text{eff}}$  к показателю преломления однородной среды  $n_i$ , из которой зондирующий пучок падает на границу слоя (в нашем случае  $n_i \approx 1$ ). В рамках диффузионного приближения угловое распределение интенсивности  $I(\theta)$  в пике когерентного обратного рассеяния может быть описано следующими выражениями (см., напр., [16]):

$$I(\theta) = J(\theta) + J(0),$$

$$J(\theta) \equiv \frac{1}{2\pi l^{*3}} \int_0^W dz_+ \int_0^W dz_- \exp(-z_+/l^*) \exp(-z_-/l^*) \times \int d^2r \exp(-irq) \sum_{n=-\infty}^{+\infty} \left[ \frac{1}{(r^2 + a_n^2)^{1/2}} - \frac{1}{(r^2 + b_n^2)^{1/2}} \right], \quad (1)$$

где используется цилиндрическая система координат  $rz$  для осесимметричного случая;  $z_{\pm}$  – переменные интегрирования, введенные в [16];  $q \equiv |\mathbf{k}_i + \mathbf{k}_f| = 2\pi\theta/\lambda$  – модуль вектора рассеяния;  $\mathbf{k}_i$  – волновой вектор падающей волны;  $\mathbf{k}_f$  – волновой вектор детектируемой рассеянной волны;  $a_n = z_+ - z_- + 2n(W + 2z_b)$ ;  $b_n = z_+ + z_- + 2z_b + 2n \times (W + 2z_b)$ ;  $z_b$  – длина экстраполяции, отсчитываемая от границы слоя в направлении отрицательных значений  $z$  и определяемая условием равенства нулю на расстоянии  $z_b$  потока диффузной составляющей рассеянного излучения [17]. Значение  $z_b$  определяется отражательной способностью границы рассеивающего слоя и, следовательно, эффективным показателем преломления рассеивающей среды  $n_{\text{eff}}$ . В работе [17] для граничного условия, соответствующего уравнению переноса излучения в диффузионном приближении, получено следующее выражение:

$$z_b = \frac{2}{3} l^* \frac{1 + \mathfrak{R}}{1 - \mathfrak{R}}, \quad (2)$$

где отражательная способность границы  $\mathfrak{R}$  находится путем интегрирования коэффициента отражения для неполяризованного света, вычисляемого в соответствии с теорией Френеля, по всем возможным значениям угла падения света на границу. Таким образом,  $z_b$  является функцией эффективного показателя преломления рассеивающей среды, что, в свою очередь, оказывает влияние на характер распределения  $I(\theta)$  в пике когерентного обратного рассеяния.

При интерпретации результатов измерений интенсивности когерентного обратного рассеяния от образцов бумаги был использован следующий подход, разработанный на основе метода, который ранее применялся для анализа транспортных характеристик плотноупакованных слоев порошкового  $\text{TiO}_2$  [18]. По полученным в экспериментах значениям полуширины пиков когерентного обратного рассеяния  $\Omega_{0,5}$  на основе выражений (1) и (2) строились зависимости  $l^* = \varphi(n_{\text{eff}})$ , соответствующие измеренным значениям  $\Omega_{0,5}$ . На рис.5 в качестве примера

представлены подобные зависимости для одного из исследуемых образцов (как в сухом состоянии, так и при насыщении его водой и глицерином), иллюстрирующие значительное влияние отражательной способности границы слоя на формирование пика когерентного обратного рассеяния. При вычислении  $l^* = \varphi(n_{\text{eff}})$  для заданных  $n_{\text{eff}}$  учитывалось изменение толщины образцов (примерно на 10% – 15%) при их насыщении иммерсионными жидкостями. Эффективный показатель преломления для сухих и насыщаемых иммерсионными жидкостями образцов бумаги рассчитывался с использованием теории Максвелла – Гарнетта [5], в соответствии с которой среднее значение относительной диэлектрической проницаемости двухкомпонентной композитной среды

$$\bar{\epsilon} = n_{\text{eff}}^2 \approx \epsilon_2 \left( 1 + \frac{2f\alpha}{1-f\alpha} \right), \quad (3)$$

где  $\epsilon_2$  – относительная диэлектрическая проницаемость базовой среды, в которую погружены рассеивающие центры, состоящие из вещества с относительной диэлектрической проницаемостью  $\epsilon_1$  (в качестве которых в нашем случае рассматривались волокна целлюлозы);  $f$  – объемная доля рассеивающих центров;  $\alpha = (\epsilon_1 - \epsilon_2)/(\epsilon_1 + \epsilon_2)$  – фактор деполяризуемости. Несмотря на определенную ограниченность данного подхода, связанную с соотношением между характерным размером рассеивающих центров и длиной волны зондирующего излучения, в работе [19] были получены удовлетворительные результаты даже в случае применения теории Максвелла – Гарнетта для расчета оптических характеристик случайных ансамблей диэлектрических цилиндров с диаметрами, сопоставимыми с длиной волны распространяющегося излучения. При оценках  $n_{\text{eff}}$  для сухих и насыщенных иммерсионными жидкостями образцов бумаги было принято, что  $\epsilon_1 = n_1^2 = n_{\text{cel}}^2 \approx 2.40$  (целлюлоза),  $\epsilon_2 = 1$  (сухие образцы),  $\epsilon_2 = n_{\text{H}_2\text{O}}^2 \approx 1.77$  (образцы, насыщенные водой),  $\epsilon_2 = n_{\text{Gl}}^2 \approx 2.16$  (образцы, насыщенные глицерином).

Табл.3. Транспортная длина  $l^*$  (результаты анализа измерений интенсивности в пиках когерентного обратного рассеяния) и длина рассеяния  $l$  (из измерений коллимированного пропускания).

Номер образца	Состояние образца	$\lambda = 633 \text{ нм}$			$\lambda = 532 \text{ нм}$		
		$l^*$ (мкм)	$l$ (мкм)	$l^*/l$	$l^*$ (мкм)	$l$ (мкм)	$l^*/l$
1	Сухой	$9.2 \pm 1.0$	$7.6 \pm 0.8$	$\sim 1.21$	$6.9 \pm 0.8$	$7.5 \pm 0.8$	$\sim 0.92$
	Насыщенный водой	$12.5 \pm 1.3$	$9.7 \pm 0.1$	$\sim 1.29$	$8.0 \pm 0.8$	$9.5 \pm 0.1$	$\sim 0.84$
	Насыщенный глицерином	$13.9 \pm 1.4$	$11.0 \pm 1.1$	$\sim 1.26$	–	–	–
2	Сухой	$10.0 \pm 1.1$	$6.2 \pm 0.6$	$\sim 1.61$	$7.0 \pm 0.8$	$6.1 \pm 0.6$	$\sim 1.15$
	Насыщенный водой	$15.1 \pm 1.5$	$7.7 \pm 0.8$	$\sim 1.96$	$7.4 \pm 0.8$	$7.6 \pm 0.8$	$\sim 0.97$
	Насыщенный глицерином	$15.3 \pm 1.5$	$8.4 \pm 0.8$	$\sim 1.82$	–	–	–
3	Сухой	$11.0 \pm 1.2$	$5.8 \pm 0.6$	$\sim 1.9$	$8.7 \pm 0.9$	$5.8 \pm 0.6$	$\sim 1.5$
	Насыщенный водой	$13.9 \pm 1.4$	$6.4 \pm 0.6$	$\sim 2.17$	$11.0 \pm 1.2$	$6.4 \pm 0.6$	$\sim 1.7$
	Насыщенный глицерином	$14.5 \pm 1.5$	$7.2 \pm 0.7$	$\sim 2.01$	–	–	–
4	Сухой	$9.6 \pm 1.0$ (точка С на рис.5)	$6.9 \pm 0.7$	$\sim 1.39$	$9.5 \pm 1.0$	$7.2 \pm 0.7$	$\sim 1.32$
	Насыщенный водой	$11.3 \pm 1.2$ (точка D на рис.5)	$8.4 \pm 0.8$	$\sim 1.35$	$10.1 \pm 1.1$	$8.5 \pm 0.9$	$\sim 1.19$
	Насыщенный глицерином	$11.4 \pm 1.2$ (точка F на рис.5)	$8.9 \pm 0.9$	$\sim 1.28$	–	–	–

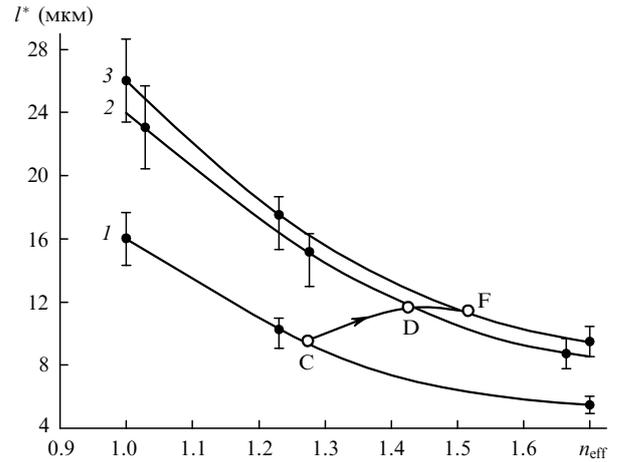


Рис.5. Зависимости  $l^* = \varphi(n_{\text{eff}})$ , соответствующие измеренным в экспериментах значениям  $\Omega_{0.5}$ , для сухого (1), насыщенного водой (2) и глицерином (3) образца № 4 при длине волны зондирующего излучения 633 нм. Линия со стрелкой иллюстрирует изменение оптических характеристик образца при его насыщении иммерсионными жидкостями (см. табл.2). Доверительные интервалы соответствуют погрешностям в определении значений  $\Omega_{0.5}$  и  $W$ .

На рис.5 линией со стрелкой показано изменение полученных из экспериментальных данных значений эффективного показателя преломления  $n_{\text{eff}}$  и транспортной длины  $l^*$  при насыщении зондируемой среды различными иммерсионными жидкостями. Существенное возрастание транспортной длины (и, следовательно, уменьшение транспортного коэффициента рассеяния) при увеличении  $n_{\text{eff}}$  обусловлено тривиальным иммерсионным эффектом (оптическим просветлением зондируемой среды), происходящим в результате уменьшения отношения  $\epsilon_1/\epsilon_2$  и снижения эффективности рассеяния зондирующего излучения рассеивающими центрами (волокнами целлюлозы).

Для интерпретации результатов измерений диффузного пропускания сухих образцов (для которых  $W \gg l^*$ ) использовалось известное соотношение для диффузного

пропускания слоя, полученное в рамках диффузионного приближения теории переноса излучения (см., напр., [20, 21]):

$$T_d(W) = \frac{l^* + z_{b1}}{W + z_{b1} + z_{b2}}, \quad (4)$$

где  $z_{b1}$ ,  $z_{b2}$  – соответственно длины экстраполяции для первой и второй границ слоя (в нашем случае  $z_{b1} = z_{b2}$ ). Оценки транспортной длины для сухих образцов по выражению (4) удовлетворительно согласуются с результатами анализа измерений интенсивности  $I(\theta)$  в пиках когерентного обратного рассеяния; расхождение между двумя группами данных не превышает 15 % (так, например, для образца №4 значение  $l^*$ , полученное в результате анализа измерений  $I(\theta)$  для  $\lambda = 633$  нм, равно  $(9.6 \pm 1.0)$  мкм, в то время как значение  $l^*$ , найденное из измерений диффузного пропускания с использованием выражения (4), равно  $(10.8 \pm 0.9)$  мкм).

Следует отметить, что данные, полученные в результате анализа угловых распределений интенсивности и диффузного пропускания исследуемых сухих образцов, демонстрируют тенденцию к уменьшению значений  $l^*$  с уменьшением длины волны, в то время как спектры коллимированного пропускания – постоянно коэффициент экстинкции в видимой области (см. рис.3,б), что соответствует уменьшению отношения  $l^*/l$  в коротковолновой области видимого диапазона спектра.

В табл.3 приведены значения транспортной длины, полученные из анализа результатов измерений угловых распределений интенсивности  $I(\theta)$ , и длины рассеяния, найденные из измерения коллимированного пропускания на соответствующих длинах волн. Полученные результаты свидетельствуют о преимущественно изотропном характере рассеяния зондирующего излучения в образцах бумаги.

#### 4. Заключение

Таким образом, в настоящей работе рассмотрена методика интерпретации экспериментальных данных по диффузному распространению света (в частности, результатов измерений угловых распределений интенсивности в пиках когерентного обратного рассеяния) в случайно-неоднородных средах с высокой плотностью упаковки рассеивающих центров. Применительно к оценке транспортного коэффициента зондируемой среды методика позволяет учесть влияние отражательной способности границы раздела зондируемой среды и свободного пространства, обусловленное многократными отражениями парциальных составляющих рассеянного светового поля в среде от границы, на диффузию излучения в слое среды. В основе используемого подхода лежит взаимно однозначное соответствие между измеренной в эксперименте полушириной пика интенсивности когерентного обратного рассеяния и значениями эффективного показателя преломления  $n_{\text{eff}}$  и транспортной длины  $l^*$  для зондируемой среды. В работе для оценки  $n_{\text{eff}}$  при заданных структурных характеристиках зондируемой среды (в частности, объемной доле рассеивающих центров) применялась модель Максвелла – Гарнетта.

В качестве альтернативного подхода для определения эффективного показателя преломления может быть использован анализ полученного в эксперименте углового распределения интенсивности излучения, диффузно рас-

сеянного зондируемой средой, который был предложен в работе [22]. Возможно также применение модели эффективной среды (например, на основе приближения когерентного потенциала [19, 23]) при нахождении  $n_{\text{eff}}$  для зондируемой среды, исходя из ее структурных параметров. Полученные с использованием разработанной методики на основе измерений интенсивности пиков когерентного обратного рассеяния значения транспортной длины для сухих и насыщенных иммерсионными жидкостями образцов бумаги хорошо согласуются со значениями, полученными в результате анализа результатов измерений диффузного пропускания.

Представляется важным вопрос о влиянии длины когерентности используемых источников излучения на результаты измерений интенсивности пиков когерентного обратного рассеяния. Для применявшихся в работе лазерных источников были измерены длины когерентности (с использованием интерферометра Майкельсона), которые составили  $\sim 14$  см (для гелий-неонового лазера) и  $\sim 1.9$  мм (для лазера на алюмоиттриевом гранате с диодной накачкой). Оба значения многократно превышают максимальные значения как транспортной длины, так и толщины для исследуемых образцов, в связи с чем влиянием длины когерентности источников излучения на результаты измерений можно пренебречь.

На основании полученных результатов следует сделать вывод о преимущественно изотропном характере рассеяния зондирующего излучения в образцах бумаги ( $l^* \geq l$ , что следует из сравнения результатов измерений интенсивности пиков когерентного обратного рассеяния, диффузного и коллимированного пропускания). Данный вывод противоречит принятому в работе [9] допущению о существенно анизотропном характере рассеяния света в слоях бумаги. Следует отметить, что одними из основных структурообразующих элементов бумаги являются волокна целлюлозы с диаметрами  $d \approx 10 - 20$  мкм. Для изолированных цилиндрических рассеивателей, характеризующихся весьма большими величинами дифракционного параметра  $\pi d/\lambda$  в видимой области ( $\sim 50 - 150$ ), действительно следует ожидать выраженной анизотропии рассеяния в направлении, перпендикулярном осям цилиндров, что и явилось причиной используемого в работе [9] допущения.

Вместе с тем на диффузное распространение излучения в слоях бумаги оказывают существенное влияние и другие ее структурные составляющие с существенно меньшими размерами (в частности, субмикронные частицы наполнителей, используемых для обеспечения требуемых эксплуатационных характеристик бумаги). Кроме того, при достаточно большой объемной доле рассеивающих центров в среде возможен эффект «инверсии», когда роль базовой среды, в которую погружены рассеиватели, начинает играть не воздух или иммерсионная жидкость, заполняющие пространство между рассеивателями, а материал рассеивающих центров, в который вкраплены микрообъемы воздушной или жидкой среды. Также необходимо учитывать микроструктурированность волокон целлюлозы, которые не являются однородными цилиндрическими рассеивающими центрами.

Авторы выражают благодарность В.И.Кочубею за содействие в спектральных измерениях.

Данная работа выполнена при поддержке гранта РФФИ № 04-02-16533 и гранта АФГИР и Минобразова-

ния РФ «Мезооптика» (Аналитическая ведомственная целевая программа «Развитие научного потенциала высшей школы (2006–2008 гг.)», код проекта РНП.2.1.1.4473).

1. Ishimaru A. *Wave Propagation and Scattering in Random Media* (New York: Acad. Press, 1978).
2. Chandrasekhar S. *Radiative Transfer* (New York: Dover, 1960).
3. Sahnier P.M., Zinkin M.P., Watson G.H. *Phys. Rev. B*, **42**, 2621 (1990).
4. Shinde R., Baldi G., Richter S., et al. *Appl. Opt.*, **38**, 197 (1999).
5. Борен К., Хафмен Д. *Поглощение и рассеяние света малыми частицами* (М: Мир, 1986).
6. Тучин В.В. *Лазеры и волоконная оптика в биомедицинских исследованиях* (Саратов: Изд-во Саратовского гос. ун-та, 1998).
7. Niskanen K. *Paper Physics, Papermaking Science and Technology* (Jyväskylä: Fapet Oy, 1998, Vol. 16).
8. Borch J. et al. *Handbook of Physical Testing of Paper* (New York: Marcel Dekker, 2002, Vol. 2).
9. Carlsson J., Hellentin P., Malmqvist L., Persson A., Persson W., Wahlstrom C.-G. *Appl. Opt.*, **34**, 1528 (1995).
10. Alarousu E., Krehut L., Myllylä R., Hast J. *Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Eng.*, **5475**, 48 (2004).
11. Alarousu E., Krehut L., Pyykäri T., Myllylä R. *Meas. Sci. Technol.*, **16**, 1131 (2005).
12. Кириллин М.Ю., Приезжев А.В., Хаст Ю., Мюллер Р. *Квантовая электроника*, **36**, 174 (2006).
13. Green K., Lamberg L., Lumme K. *Appl. Opt.*, **39**, 4669 (2000).
14. Kim Y.L., Liu Y., Turzhitsky V.M., Roy H.K., Wali R.K., Backman V. *Opt. Lett.*, **29** (16), 1906 (2004).
15. Wang L., Jacques S. *Appl. Opt.*, **34**, 2362 (1995).
16. MacKintosh F.C., John S. *Phys. Rev. B*, **37**, 1884 (1988).
17. Zhu J.X., Pine D.J., Weitz D.A. *Phys. Rev. A*, **44**, 3948 (1991).
18. Зимняков Д.А., Кузнецова Л.В., Правдин А.Б. *Письма в ЖЭТФ*, **82** (5), 300 (2005).
19. Kirchner A., Busch K., Soukoulis C.M. *Phys. Rev. B*, **57**, 277 (1998).
20. Rivas J.G., Sprik R., Soukoulis C.M., Busch K., Lagendijk A. *Europhys. Lett.*, **48**, 22 (1999).
21. Rivas J.G., Sprik R., Lagendijk A., Noordam L.D., Rella C.W. *Phys. Rev. E*, **63**, 046613 (2001).
22. Rivas J.G., Dau D.H., Imhof A., Sprik R., Bret B.P.J., Johnson P.M., Hijmans T.W., Lagendijk A. *Opt. Comm.*, **220**, 17 (2003).
23. Busch K., Soukoulis C.M. *Phys. Rev. E*, **54**, 893 (1996).