25

и получить в ТК чип-лазерах режим биений с разностью частот ВВ $\omega_B \approx |\Omega|$, что весьма важно для гирометрических приложений ТКЛ.

В следующей работе будут найдены условия достижения $\alpha_{\Sigma} = \pi/2$ в несимметричных МНКР, а также условия создания поляризационно-изотропных МНКР с $\alpha_{\Sigma} = \pi$, что важно как для исследования анизотропных свойств АС, так и для получения неполяризованного лазерного излучения.

Литература

- Kravtsov N.V., Lariontsev E.G., Shelaev A.N. // Laser Physics. 1993. 3, N1. P. 21.
- Гарбузов Д.З., Дедыщ В.В., Кочергин А.В., Кравцов Н.В., Наний О.Е., Надточеев В.Е., Фирсов В.В., Шелаев А.Н.// Квант. электроника. 1989. 16, №12. С. 2423; Изв. АН СССР, сер. физ. 1990. 54, №12. С. 2397.

УДК 534.212+534.232

- Nilsson A.C., Gustafson E.K., Byer L.R. // IEEE J. Quant. Electron. 1989. 25, N4. P. 767.
- Кравцов Н.В., Наний О.Е. // Квант. электроника. 1993.
 20, №4. С. 322.
- 5. Наний О.Е. // Там же. 1992. 19, №8. С. 762.
- 6. Наний О.Е., Шелаев А.Н.// Там же. 1984. 11, №5. С. 943.
- Войтович А.Н., Севериков В.Н. Лазеры с анизотропными резонаторами. Минск, 1988.
- Зверев Г.М., Голяев Ю.Д. Лазеры на кристаллах. М., 1994.
 Паращук Д.Ю., Лаптев Г.Д., Чигарев Н.В., Головнин И.В.,
- Чиркин А.С.// Квант. электроника. 1996. 23, №3. С. 231. 10. Шелаев А.Н. // Матер. VII Междунар. научно-техн. конф.
- "Лазеры в науке, технике, медицине". Сергиев Посад, 1996. С. 18.

Поступила в редакцию 20.11.96

ИССЛЕДОВАНИЕ ОПТИЧЕСКИХ СВОЙСТВ ФОТОЭМУЛЬСИЙ ИМПУЛЬСНЫМ ОПТИКО-АКУСТИЧЕСКИМ МЕТОДОМ

Л.А. Асланов, В.Н. Захаров, А.А. Карабутов, Н.Б. Подымова

(Международный лазерный центр МГУ, кафедра неорганической химии)

Исследуются поглощение и рассеяние света в фотографических эмульсиях на длине волны основной ($\lambda = 1,06$ мкм) и второй ($\lambda = 0,53$ мкм) гармоник Nd:YAG лазера. Используется импульсный оптико-акустический метод. Обнаружено, что коэффициент поглощения света много меньше коэффициента рассеяния, а коэффициенты экстинкции и поглощения света для эмульсий различной светочувствительности близки. Показано, что влияние скрытого изображения на оптические характеристики фотоэмульсий мало.

1. Введение

Фотографические эмульсии представляют собой важный и интересный объект исследования. В частности, нельзя сказать, что механизм образования скрытого изображения до конца понят. Ранее [1] на основе анализа экспериментальных фактов, предпринятого в связи с противоречиями между накопившимися данными экспериментов и фотолитической теорией образования центров скрытого изображения (ЦСИ) Герни-Мотта была сформулирована "фотоакустическая" концепция образования ЦСИ [1] за счет конденсации кластеров негалоидного серебра. Проверка этой концепции требует исследования оптических характеристик фотоэмульсий и их изменения под действием облучения. Исследованию поглощения света фотоэмульсиями посвящена настоящая статья.

Фотографические эмульсии представляют собой гетерогенную рассеивающую среду, состоящую из микрокристалликов AgBr или AgCl в желатине. Поэтому для исследования их оптических характеристик целесообразно использование импульсного оптико-акустического эффекта [2], позволяющего измерять поглощение света в рассеивающих объектах с микронным разрешением за один лазерный импульс [3-5].

Кристаллы AgBr и AgCl являются полупроводниками с шириной запрещенной зоны, соответствующей квантам ультрафиолетового диапазона (соответственно 2,684 и 3,245 эВ [6]). Поэтому в них возможны два механизма лазерного возбуждения звука – тепловой и концентрационно-деформационный [2]. Поскольку при увеличении концентрации электронно-дырочных пар происходит сжатие решетки галогенидов серебра [7], то эти два механизма будут конкурировать друг с другом. При малых (по сравнению с длительностью лазерного импульса) временах жизни электронно-дырочных пар основную роль будет играть тепловой механизм генерации звука.

2. Теоретическая модель импульсного оптикоакустического эффекта в рассеивающей среде

Толщина фотографических эмульсий (от единиц до десятков микрометров), как правило, много меньше диаметра лазерного пучка, используемого для возбуждения звука. Поэтому достаточно использовать одномерное приближение в задаче лазерной оптоакустики. Форма акустического сигнала может быть представлена в виде свертки временной зависимости интенсивности поглощенного лазерного излучения и пространственного распределения источников тепла в среде [2].

Фотографические эмульсии характеризуются сильным рассеянием света и малым его пропусканием даже при толщинах слоев в десятки микрометров. Поэтому будет обоснованным использовать приближение полубесконечной среды, занимающей полупространство z>0 и граничащей с однородной прозрачной средой. Так как коэффициент рассеяния света µ велик (практически µ >10³ см⁻¹) и глубина проникновения света в среду *l* мала по сравнению с диаметром лазерного пучка, то падающий пучок можно считать коллимированным. Из-за малости глубины проникновения света в среду возбуждаемые акустические сигналы имеют малую длительность (сравнимую с длительностью лазерного импульса), и можно ограничиться одномерными акустической и тепловой задачами. Распределение интенсивности света I(z,t) при различных условиях рассеяния света в среде и отражения на ее границах проанализировано в работах [8-11]. Мы использовали результаты этих работ для коллимированного лазерного пучка в приближении изотропного рассеяния.

Если коэффициент поглощения света μ_a много меньше коэффициента рассеяния: $\mu_a \ll \mu_s$ (что справедливо, как будет показано ниже, для фотоэмульсий), то давление в акустической волне, излучаемой в рассеивающую среду, имеет вид [12]

$$p\left(\tau = t - \frac{z}{c_0}\right) \cong \frac{c_0^2 \beta^*}{2c_p} I_0 \int f(\tau - \theta) \mu_a \left\{-3 \exp(-c_0 \mu_s |\theta|) + 2\left(3 + \frac{2r_0}{1 - r_0}\right) \exp(-2c_0 \sqrt{\mu_a \mu_s} |\theta|)\right\} d\theta,$$
(1)

где $I_0 f(t)$ описывает временную зависимость огибающей интенсивности падающего лазерного пучка, $r_0 - коэффициент$ внутреннего отражения света от границы со стороны рассеивающей среды, $c_0 - ско-$ рость звука в среде, c_p – ее теплоемкость, b^* – коэффициент теплового расширения.

В нашем приближении ($\mu_a \ll \mu_s$) коэффициент экстинкции света $\mu_{eff} = 2\sqrt{\mu_a \mu_s} \ll \mu_s$, и поэтому форма акустического сигнала определяется вторым слагаемым в (1), описывающим генерацию звука диффузной (рассеянной) компонентой светового поля.

Спектр импульса акустического давления при лазерном возбуждении звука $p(\omega) = I_0 f(\omega) K(\omega)$ [2], где $I_0 f(\omega)$ – спектр временной огибающей интенсивности лазерного пучка, $K(\omega)$ – передаточная функция термооптического возбуждения звука. Из (1) следует, что

$$K(\omega) = \frac{c_0^2 \beta^*}{c_p} \frac{1}{1 + (\omega/\mu_{\text{eff}} c_0)^2} \left(3 + \frac{2r_0}{1 - r_0}\right).$$
(2)

Таким образом, вид передаточной функции определяется коэффициентом экстинкции μ_{eff} , а амплиту-

да термооптически возбуждаемого акустического импульса – коэффициентом поглощения света (см. (1)). Это дает возможность раздельного измерения $\mu_{eff} = 2\sqrt{\mu_a \mu_s}$ и μ_a (и соответственно μ_s) для рассеивающих сред.

3. Экспериментальная установка и исследуемые образцы

Установка для исследования оптических характеристик фотоэмульсий импульсным оптико-акустическим методом была собрана по схеме с регистрацией акустического сигнала в поглощающей среде и подробно описана в работе [12]. Исследовались оптические свойства фотоэмульсий на длине волны основной (λ =1,06 мкм, энергия в импульсе 20÷30 мДж) и второй гармоник (λ =0,53 мкм, энергия 0,7÷2 мДж) Nd:YAG лазера (длительность импульса 2т, \cong 10 нс).

В данной работе использовалась Ag(I, Br)-эмульсия с плоскими микрокристаллами, приготовление образцов фотоэмульсий описано в работе [12]. Готовую эмульсию подвергали сернистой сенсибилизации до уровней светочувствительности 0,85, 50 и 170 ед. ГОСТ. Микроструктура фотоэмульсии на стеклянной подложке толщиной 2 мм, полученная в растровом электронном микроскопе, приведена на рис. 1. Четко видны микрокристаллы бромида серебра среднего размера $2R \sim 1$ мкм; их объемная концентрация не слишком велика: расстояние между кристаллами $d \approx 2 \div 3$ мкм. Толщина микрокристаллов порядка 0,1 мкм.



Рис. 1. Микроструктура фотоэмульсии в растровом электронном микроскопе

Эффективность термооптического возбуждения звука в кристаллах AgBr $\beta^* c_0^2/c_p \approx 2,2$ близка к эффективности термооптического возбуждения звука в желатине. Поэтому фотоэмульсию можно было считать квазиоднородной средой с точки зрения эффективности возбуждения звука. А так как $c_0\tau_L \gg (R,d)$, то фотоэмульсию также можно было считать акустически однородной. Оптико-акусти-



Рис. 2. Оптико-акустические сигналы, возбуждаемые излучением λ=0,53 мкм в неэкспонированных (a) и засвеченных (б) фотоэмульсиях чувствительностью 0,85 (1), 50 (2) и 170 ед. ГОСТ (3). Кривые 4 – формы лазерного импульса

ческого сигнала в чистом желатине зарегистрировано не было.

Толщина фотоэмульсий изменялась в пределах 20-40 мкм и их светопропускание не превышало 8-10% (как на основной частоте, так и на частоте второй гармоники). Поэтому приближение полубесконечной среды, использованное при выводе формулы (1), также можно считать выполненным с достаточной степенью точности. Фотоэмульсии прижимались к кварцевому звукопроводу широкополосного пьезоприемника на основе ниобата лития (временное разрешение не хуже 3 нс). Облучение фотоэмульсий производилось через прозрачную стеклянную подложку, поэтому можно было поверхность поглощающей среды считать жесткой и использовать при анализе экспериментальных результатов выражения (1)-(2).

4. Экспериментальные результаты

Исследовался акустический сигнал, возбуждаемый в фотоэмульсиях одиночным импульсом излучения основной частоты и второй гармоники Nd:YAG лазера; исследовались как неэкспонированные, так и экспонированные одиночным импульсом второй гармоники или дневным светом (засвеченные) эмульсии. Экспонированные эмульсии до измерений не подвергались проявлению. Во всех случаях контрольные неэкспонированные образцы при проявлении в стандартном проявителе при 20°C в течение 3 мин не давали заметного почернения (оптическая плотность D < 0,02).

1°. Свойства фотоэмульсий на длине волны $\lambda = 0,53$ мкм. Формы оптико-акустических сигналов, возбуждаемых в неэкспонированных эмульсиях излучением с $\lambda = 0,53$ мкм и нормированных на плотность энергии E_0 падающего на эмульсию лазерного импульса, приведены на рис. 2, *а*. Амплитуды сигналов для трех типов эмульсий были близки, и их вариации не выходили за пределы нестабильности энергии импульсов излучения второй гармоники.

Спектральные передаточные функции лазерного возбуждения звука в неэкспонированных эмульсиях (рис. 3, *a*) близки к описываемым теоретической зависимостью (2). Коэффициент экстинкции света оказался одинаковым для неэкспонированных эмульсий различной чувствительности и составил

$$\mu_{\text{aff}}^{n}$$
 ($\lambda = 0.53 \text{ MKM}$) = (1.39 ± 0.05)·10³ cm⁻¹.

Используя выражение (1) и считая форму лазерного импульса гауссовой, по измеренной эффективности возбуждения звука $p_{\max}/E_0 = (90 \pm 15)$ атм см²/Дж найдем коэффициент поглощения света в неэкспонированных эмульсиях:

$$\mu_{a}^{n}(\lambda = 0.53 \text{ MKM}) = (2.2 \pm 0.4) \text{ cm}^{-1},$$

который также одинаков для эмульсий различной чувствительности. (Показатели преломления света в желатине и стекле близки, и для коэффициента внутреннего отражения света принималось $r_0=0.$) Расчет коэффициента рассеяния света дает

$$\mu_n(\lambda = 0.53 \text{ MKM}) = (2.2 \pm 0.5) \cdot 10^5 \text{ cm}^{-1}$$

что соответствует обратной толщине микрокристаллов AgBr в эмульсиях. Как видно, условие применимости (1) $\mu_{\mu} \ll \mu_{\mu}$ выполняется достаточно хорошо.

Наблюдавшиеся сигналы были импульсами сжатия, что говорит о малом влиянии концентрационно-деформационного механизма возбуждения звука. Проявление концентрационно-деформационного механизма в нашем случае возможно за счет наличия примеси AgI, в которой ширина запрешенной зоны меньше энергии квантов излучения второй гармоники ($2\hbar\omega_{,}=2,34$ эВ). В кристаллах AgBr соотношение энергий обратное, и электронно-дырочные пары в объеме кристалла рождаться не могут. В любом случае преобладание теплового меха-

27



Рис. 3. Спектральные передаточные функции лазерного возбуждения звука ($\lambda \approx 0,53$ мкм) в неэкспонированных (*a*) и засвеченных (*б*) фотоэмульсиях чувствительностью 0,85 (*1*), 50 (*2*) и 170 ед. ГОСТ (*3*). Сплошные линии – аппроксимации по формуле (18)

низма генерации звука говорит о малой концентрации электронно-дырочных пар или о малом (сравнимым с длительностью лазерного импульса) времени жизни фотовозбужденных носителей. Эти данные соответствуют прямым измерениям релаксации фотопроводимости эмульсий [13,14].

Оптико-акустические сигналы, возбуждаемые излучением второй гармоники в засвеченных эмульсиях, близки как по форме, так и по амплитуде (рис. 2, δ). Передаточные функции для трех типов эмульсий близки между собой (рис. 3, δ) и величина коэффициента экстинкции света

 $\mu_{eff}^{c}(\lambda = 0,53 \text{ MKM}) = (1,55 \pm 0,05) \cdot 10^{3} \text{ cm}^{-1}$

мало отличается от коэффициента экстинкции неэкспонированных эмульсий.

В засвеченных эмульсиях эффективность возбуждения звука практически такая же, как и в неэкспонированных: $p_{\rm max}/E_0 = (80\pm15)$ атм см²/Дж, и коэффициент поглощения света

$$\mu_{\mu}^{e}(\lambda = 0.53 \text{ MKM}) = (2.1 \pm 0.4) \text{ cm}^{-1}$$

Совпадение оптических характеристик неэкспонированных и засвеченных эмульсий примечательно и говорит о слабом влиянии скрытого изображения на оптические свойства эмульсий (экспозиция эмульсии единственным импульсом излучения второй гармоники приводила к формированию изображения с оптической плотностью D = 1,5 при указанных выше условиях проявления).

2°. Свойства фотоэмульсий на длине волны $\lambda = 1.06$ мкм. Формы оптико-акустических сигналов, возбуждаемых излучением λ=1,06 мкм, приведены на рис. 4 для эмульсии с чувствительностью 0,85 ед. ГОСТ. Оптико-акустические сигналы, зарегистрированные в фотоэмульсиях с другой чувствительностью, мало отличаются как по форме, так и по амплитуде. Для всех фотоэмульсий облучение единичным импульсом излучения второй гармоники (которое формирует скрытое изображение и приводит к почернению эмульсии после проявления) не дает заметного изменения амплитуды акустического сигнала, что говорит о неизменности коэффициента поглощения света. В то же время в засвеченной эмульсии амплитуда сигнала заметно возрастает, а форма изменяется.

Оптико-акустические сигналы в неэкспонированной и экспонированной одиночным импульсом $\lambda=0,53$ мкм эмульсиях не слишком сильно превышали уровень шума ($S/N \sim 5 \div 10$), и поэтому возможны лишь оценки величин коэффициентов рассеяния и поглощения света. Поскольку в этом случае можно считать $\mu_{eff} c_0 \tau_L \ll 1$, величину коэффициента экстинкции можно оценить по скорости нарастания фронта акустического сигнала [2]: $\mu_{eff} = (0,47 \div 0,56) \times \times 10^3$ см⁻¹. Это примерно в 3 раза меньше, чем для $\lambda=0,53$ мкм.

Оценки коэффициента поглощения света по величине нормированной амплитуды сигнала $(p_{wax}/E_0 \cong 0.4 \text{ атм} \cdot \text{см}^2/\text{Дж})$ дают

$$\mu_a(\lambda = 1,06 \text{ MKM}) = (0,06 \pm 0,02) \text{ cm}^{-1}.$$

Соответственно коэффициент рассеяния света имеет тот же порядок величины, что и на второй гармонике (см. выше). Как видно, коэффициент поглощения света значительно (в тридцать раз) меньше, чем на второй гармонике. После засветки фотоэмульсии дневным светом (без проявления скрытого изображения) коэффициент поглощения света основной гармоники возрастает в 2,5-3 раза. Следовательно, образующиеся центры скрытого изображения влияют на поглощение основной гармоники значительно сильнее, нежели на поглощение второй гармоники.

5. Обсуждение экспериментальных результатов и выводы

Наиболее неожиданным результатом представляется отсутствие заметного различия в оптических характеристиках на длине волны $\lambda = 0,53$ мкм неэкспонированных и засвеченных фотоэмульсий (см. Вестник Московского университета. Серия 3, Физика. Астрономия. 1997. № 3

29



эмульсия, 2 – экспонированная одним импульсом λ =0,53 мКм (E_0 =3 мДж/см²), 3 – засвеченная эмульсия

п. 4(1°)). Это говорит о том, что образующиеся центры скрытого изображения (а почернение эмульсии при проявлении однозначно свидетельствует об их появлении даже при облучении одиночным импульсом второй гармоники) не вносят заметного дополнительного поглощения света.

Неожиданна близость оптических свойств фотоэмульсий с сильно различающейся чувствительностью (от 0,85 до 170 ед. ГОСТ) для излучения как видимого, так и ИК-диапазона, в котором фотоэмульсии не чув-

ствительны. Этот факт может свидетельствовать в пользу концепции образования центров скрытого изображения, изложенной в работе [1].

Малое исходное поглощение света с $\lambda = 1,06$ мкм позволяет обнаружить его возрастание при формировании кластеров серебра на центрах скрытого изображения при засветке эмульсии. Однако центры скрытого изображения, образовавшиеся после однократной экспозиции эмульсии импульсом второй гармоники, не дают заметного изменения коэффициента поглощения света.

Наблюдаемые формы оптико-акустических сигналов показывают, что вклад концентрационно-деформационного механизма генерации звука в фотоэмульсиях светом видимого и ИК-диапазона мал. Поэтому участие фотовозбужденных носителей в создании центров скрытого изображения заслуживает дополнительной проверки.

Подведем некоторые итоги.

1. Предложена импульсная оптико-акустическая методика измерения коэффициентов рассеяния и поглощения света в неоднородных средах. Измерены коэффициенты поглощения и рассеяния света в фотографических эмульсиях на λ =1,06 и 0,53 мкм. Обнаружено, что для данных длин волн в фотоэмульсиях коэффициент поглощения света много меньше коэффициента рассеяния.

2. Обнаружено, что оптические свойства фотоэмульсий одинакового состава, но различной фоточувствительности близки.

3. Показано, что влияние центров скрытого изображения на оптические характеристики фотоэмульсий незначительно.



Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант 94-03-08041).

Литература

- 1. Асланов Л.А.//Неорганические материалы. 1995. **31**, №4. С.540.
- 2. Гусев В.Э., Карабутов А.А. Лазерная оптоакустика. М., 1991.
- Karabutov A.A., Letokhov V.S., Podymova N.B.//J.Mod. Opt. 1995. 42, N1. P.7.
- Karabutov A.A., Letokhov V.S., Podymova N.B.//Appl. Opt. 1995. 34, N9. P.1484.
- Karabutov A.A., Podymova N.B., Letokhov V.S.//Appl. Phys. 1996. B63, N6. P.545.
- 6. Hamilton J.F.//Adv. in Phys. 1988. 37, N4. P.359.
- Lokaj P., Pelant I., Sladky P.//Czech. J. Phys. 1980. B30, N7. P.837.
- Sobolev V.V. Light Scattering in Planetary Atmospheres. Oxford, 1975.
- Yasa Z.A., Jackson W.R., Amer N.M.//Appl. Opt. 1982. 21, N1. P.21.
- 10. Chandrasekhar S. Radiative Transfer. N.Y., 1960.
- 11. Kortum G. Reflectance Spectroscopy. N.Y., 1969.
- 12. Aslanov L.A., Karabutov A.A., Podymova N.B. et al.//Laser Physics. 1996. 6. N6. P.1105.
- Schroder O., Granzer F., Russow A. et. al.//Imaging on the Information Superhighway: 48th Annual Conf. Washington, 1995. P.156.
- 14. Russow A., Jensch Ch., Mussig Th.//Ibid. P.171.

Поступила в редакцию 15.11.96