

Сравнение результатов рефрактометрических измерений в процессе диффузии, полученных корреляционным фоновым методом и методом голографической интерферометрии с нестационарной опорной волной

А.В.Крайский, Т.В.Миронова

Сравниваются результаты, полученные при использовании схемы голографической записи с нестационарной опорной волной в случае линейного изменения частоты по координате и во времени, и результаты корреляционной обработки цифровых фотографий, сделанных со случайным фоновым экраном, при исследовании процесса взаимной диффузии двух жидкостей. Пространственно-временное поведение сигнала в четырех основных типах зависимостей («пространство–временная частота», «пространство–время», «пространственная частота–временная частота», «пространственная частота–время») получено в голографическом эксперименте и рассчитано (в соответствующих координатах) по данным корреляционного фонового метода. Продемонстрировано практическое совпадение результатов корреляционного анализа и голографической двухэкспозиционной интерферометрии.

Ключевые слова: голографическая интерферометрия, нестационарная опорная волна, корреляционный фоновый метод, диффузия жидкостей.

1. Для визуализации и измерения величины оптических неоднородностей широкое распространение получил корреляционный фоновый метод. В работе [1] этот метод применяется для решения рефрактометрических задач с использованием пламени спиртовки, в [2, 3] – для измерения дисторсии и хроматической аберрации оптических систем, в работе [4] – для определения деформаций прозрачных тел. Точность определения взаимных смещений областей пар изображений на матрице фотоаппарата доходит до сотых долей пикселя. В сущности, это метод измерения градиента оптической плотности. Представляет интерес сравнение результатов исследования какого-либо процесса, приводящего к появлению оптических неоднородностей среды, полученных корреляционным методом, с результатами, полученными другими методами.

2. В настоящей работе мы сопоставляем результаты исследования процесса взаимной диффузии двух бесцветных жидкостей. Данные получены путем корреляционной обработки цифровых фотографий случайного фонового экрана, сделанных в белом свете сквозь кювету, в которой происходит процесс диффузии. Эталонами для сравнения служат результаты для лазерного излучения, прошедшего через кювету, в которой идет процесс взаимной диффузии, полученные нами значительно раньше методом двухэкспозиционной голографической интерферометрии с нестационарной опорной волной [5–8]. Пары жидкостей заметно различались по плотности, поэтому в кювете достаточно быстро происходило их разделение и возникал переходный слой, перпендикулярный направлению силы тяжести, так что система приобретала квазиод-

номерный характер. Это упрощало схему эксперимента. В принципе, голографический метод можно применять для объектов со сложным пространственным поведением, вырезая целевой диафрагмой исследуемый участок, однако корреляционный метод позволяет исследовать такие объекты без подобных действий, изучая двумерные изображения. В настоящей работе мы проводили сравнение в рамках процесса, рассмотренного в старом голографическом эксперименте, т.е. рассматривалась квазиодномерная картина.

3. При взаимной диффузии двух прозрачных жидкостей с различными показателями преломления происходит изменение показателя преломления среды $n(t, x)$ – он является функцией времени и пространственной координаты. Будем полагать, что показатель преломления зависит только от концентрации N вещества одного сорта, т.е.

$$n = \beta N, \quad (1)$$

а поведение концентрации описывается решением уравнения диффузии с коэффициентом D , не зависящим от концентрации (такую пару жидкостей будем называть идеальной),

$$\frac{1}{D} \frac{\partial N}{\partial t} = \frac{\partial^2 N}{\partial x^2}. \quad (2)$$

Функция

$$\varphi(t, x) = dn(t, x) \quad (3)$$

где d – толщина кюветы, имеет размерность длины и является исследуемой, изменяющейся в процессе диффузии частью оптического пути светового пучка до системы регистрации как при голографической записи информации, так и при корреляционных фоновых измерениях. Кювета полагается тонкой, вследствие чего можно пренебречь по-

А.В.Крайский, Т.В.Миронова. Физический институт им. П.Н.Лебедева РАН, Россия, 119991 Москва, Ленинский просп., 53; e-mail: kraiskii@sci.lebedev.ru, tania@itep.ru

Поступила в редакцию 19 апреля 2013 г., после доработки – 2 апреля 2014 г.

перечным смещением пучка в процессе его распространения. Представляется достаточно очевидным, что показатель преломления в этих условиях будет описываться тем же уравнением диффузии (2) с таким же коэффициентом диффузии. В работе [5] мы пользовались понятием мгновенной временной частоты в данной точке пространства (см. также [9]),

$$v = -\frac{1}{\lambda} \frac{\partial \varphi}{\partial t} = -\frac{d}{\lambda} \frac{\partial n}{\partial t}, \quad (4)$$

и по аналогии с ней – локальной пространственной частоты, или угловой координаты (связанной с градиентом показателя преломления)

$$q_x = \frac{\partial \varphi}{\partial x} = d \frac{\partial n}{\partial x}, \quad (5)$$

которая при данной геометрии эксперимента пропорциональна градиенту показателя преломления, поскольку изменения происходят только вдоль одной пространственной координаты, перпендикулярно границе раздела жидкостей при постоянной толщине слоя.

4. В голографической установке запись сигнала проводилась по схеме Лейта с нестационарной опорной волной с линейным изменением частоты по координате и во времени [10]. Изменение частоты происходило по горизонтальной координате (вдоль границы раздела жидкостей). Такую волну можно представить как волну с плоским волновым фронтом, который вращается вокруг оси, параллельной находящейся от нее на некотором расстоянии плоскости голограммы. Запись проводилась по схеме двухэкспозиционной интерферометрии, т.е. запись сигнальной волны, прошедшей через исследуемую кювету (плоская волна), накладывалась на такую же запись сигнала в отсутствие кюветы, сделанную в другое время (записывался дополнительный сигнал). После этого голограмма подвергалась фотохимической обработке. Информация о пространственном и временном распределении сигнала записывалась по вертикальной и горизонтальной координатам голограммы соответственно. На голограмме записывалась полная информация о поле. При восстановлении записанного поля стационарной опорной волной вся эта информация содержалась в восстановленной волне. В [5–8] проведен анализ структуры поля, записанного на голограмме, и показано, что это поле можно восстановить в различных представлениях. Пространственное и временное распределения поля независимы, и с помощью астигматической оптики можно получить их четыре «канонических» вида, в которых по каждой из координат представлено либо соответствующее координатное распределение, либо его фурье-образ. Эти распределения содержат полную информацию о пространственно-временном поведении сигнала во всех следующих четырех представлениях: «пространство – временная частота», «пространство – время», «пространственная частота – временная частота», «пространственная частота – время». В каждом из представлений проявляются особенности процесса диффузии.

Для корреляционной обработки осуществлялась съемка кюветы с диффундирующими жидкостями на фоне случайного экрана. Эксперименты проводились с водными растворами КСl и этилового спирта различных концентраций. Цель настоящей работы – показать возмож-

ности корреляционного метода для получения приведенных выше четырех основных представлений сигнала и определения коэффициента диффузии.

5. Как и в работах [6–8], особых мер, способствующих тщательному наслаиванию одной жидкости на другую и препятствующих их перемешиванию, не требовалось. Жидкости вначале под действием гравитации быстро самопроизвольно гидродинамически разделялись с образованием некоторого относительно узкого профиля перехода от одной жидкости к другой вследствие различия их плотностей. Далее наблюдалась диффузия из установившегося начального состояния.

Экран, на фоне которого проводилась фотосъемка процесса диффузии, представлял собой квадратную регулярную сетку со случайным черно-белым заполнением ячеек (вероятность заполнения 0.5). Масштаб при фотографировании был подобран таким, чтобы размер изображения одной ячейки на матрице фотоаппарата составлял 2.5 пикселя. Этот размер оптимален с точки зрения отношения сигнал/шум [11]. Процесс диффузии проходил в кювете высотой 4 см и толщиной 1 мм. Схема фотографической записи приведена на рис.1. Расстояние от фоновой картины до кюветы $l = 37$ см, от фоновой картины до фотоаппарата – $L = 51$ см. Использовался фотоаппарат Olympus μ Tough, фокусное расстояние f при съемке было равно 7 мм, максимальное смещение элементов изображения в приведенных случаях составляло 5–11 пикселей.

6. Отклонение луча $\Delta\theta$, вызванное прохождением его через кювету, приводит к смещению в плоскости приемной матрицы изображения соответствующего участка случайной картины на Δx . В предположении, что углы α и β малы, по смещению Δx можно из геометрии схемы рассчитать угол

$$\Delta\theta \approx \Delta x \frac{L-f}{lf} \quad (6)$$

и градиент показателя преломления содержимого плоской кюветы

$$\frac{dn}{dx} \approx \Delta x \frac{L-f}{Lfd}. \quad (7)$$

Эталонным изображением служила фотография экрана сквозь кювету, заполненную жидкостью одного вида. Затем через некоторые интервалы времени проводилось фотографирование сквозь кювету с диффундирующими жидкостями. Зависимость Δx от вертикальной координаты определялась при корреляционном сканировании пар фотографий (сделанной в определенный момент времени

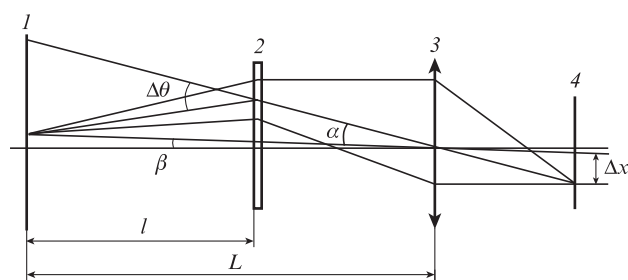


Рис.1. Схема регистрации: 1 – фоновая картин; 2 – кювета с исследуемыми жидкостями; 3 – объектив фотоаппарата; 4 – плоскость приемной матрицы.

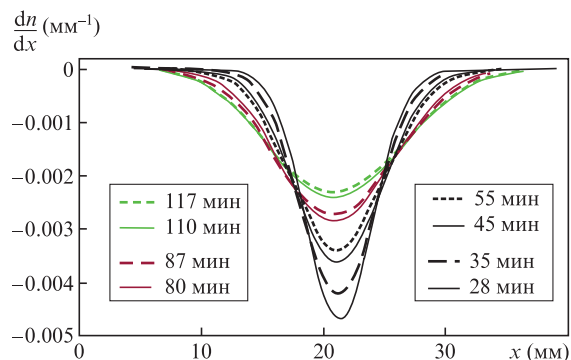


Рис.2. Зависимости градиента показателя преломления от координаты для пары «вода–трехмолярный раствор KCl» при разных временах от начала диффузии.

и эталонной) окном 256×32 пикселя, сильно вытянутым по горизонтали. Такая форма окна обеспечивала локальность измерений по вертикальной координате, вдоль которой изменяется показатель преломления, а также их достаточную статистическую устойчивость (за счет большого размера по горизонтали). Результаты измерения градиента показателя преломления, пропорционального локальной пространственной частоте или угловой координате (в терминах работ [6–8]), показаны на рис.2. Ось абсцисс направлена вниз вдоль центра кюветы.

После интегрирования восстанавливается профиль показателя преломления (рис.3). При этом рассчитывается не абсолютное его значение, а разность между показателем преломления на данной глубине кюветы и показателем преломления оптически менее плотной жидкости в начале координат. Показатель преломления дистиллированной воды $n_1 \sim 1.333$, что дает для трехмолярного раствора KCl значение $n_2 \sim 1.364$ (табличное значение 1.362 [12]).

7. Можно рассчитать, как ведет себя производная показателя преломления по времени в разных точках пространства в разные моменты времени. Теоретическая зависимость этой величины от координаты из работ [6–8] приведена на рис.4,а. На рис.4,б показаны картины первого типа в координатах «временная частота–пространство», экспериментально полученные в работах [6–8] для растворов H_2SO_4 (3.71 М) и KCl (3 М). Каждой точке картины соответствует пространственная координата по оси абсцисс и мгновенная частота по оси ординат. Яркость в точке соответствует интенсивности света в ней.

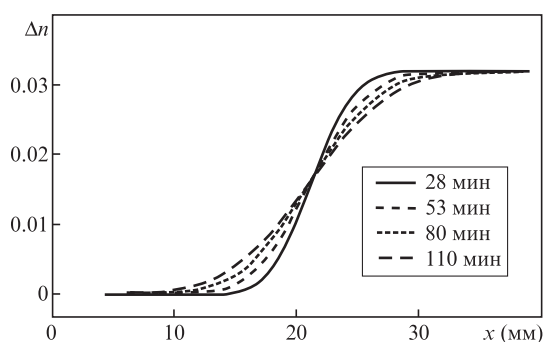


Рис.3. Зависимости показателя преломления от координаты для пары «вода–трехмолярный раствор KCl» при разных временах от начала диффузии.

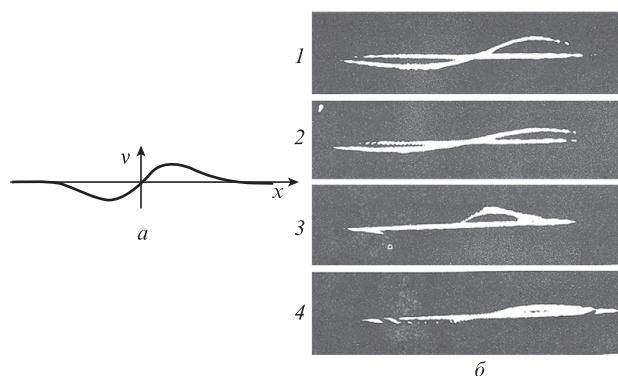


Рис.4. Распределения поля в координатах «пространство–временная частота» в голографическом эксперименте – теоретическая зависимость (а) и экспериментальные данные для растворов H_2SO_4 (время от начала процесса диффузии 19 мин 45 с (1) и 34 мин (2)) и KCl (5 мин 20 с (3) и 20 мин 10 с (4)) (б). Горизонтальные линии – дополнительный сигнал, который имеет нулевую частоту.

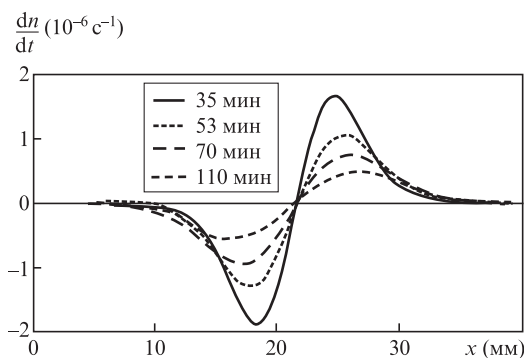


Рис.5. Зависимости производной показателя преломления по времени от пространственной координаты при разных временах от начала диффузии.

При корреляционной обработке цифровых фотографий картине «пространство–временная частота» соответствует зависимость производной показателя преломления по времени от координаты, получаемая при обработке пар фотографий, сделанных с некоторым временным интервалом. Зависимость скорости изменения показателя преломления от координаты, рассчитанная по цифровым фотографиям, показана на рис.5 для некоторых моментов времени. Видно качественное согласие с данными, полученными в голографическом эксперименте.

8. Распределение второго типа, в координатах «пространство–время», при восстановлении голографической записи имело вид интерференции модулированного кюветой сигнала с немодулированным сигналом из другой экспозиции. На картине четко видны интерференционные полосы, «рисующие» пространственно-временное поведение показателя преломления [6–8] (рис.6,а). В сущности, можно сказать, что каждая интерферограмма представляет собой несколько десятков непрерывных, разрешенных во времени кадров. В каждый момент времени зарегистрирована интерференционная картина, по которой можно восстановить распределение фазы $\Phi = (2\pi/\lambda)\rho(x)$ по глубине, из которого определяется профиль показателя преломления. Сравнивая два достаточно близких (по времени) распределения, можно определить производную показателя преломления по времени, которая характеризуется наклоном полосы в рассматриваемой точке. Эти интерференционные картины использовались

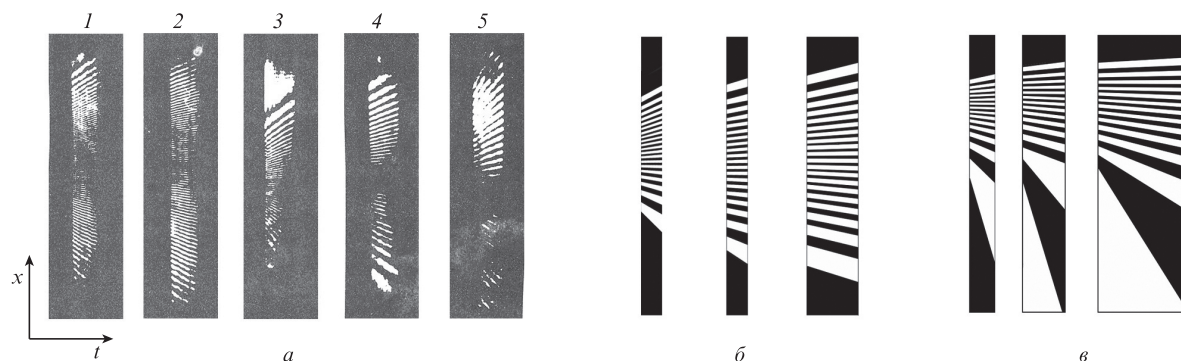


Рис.6. Распределения поля в координатах «пространство–время» – данные голографического эксперимента для растворов H_2SO_4 (время от начала процесса диффузии 19 мин 45 с (1) и 34 мин (2)) и KCl (5 мин 20 с (3), 20 мин 10 с (4) и 60 мин (5)) (а) и модельные интерферограммы, рассчитанные из профиля показателя преломления в корреляционном эксперименте для KCl (б) и для этилового спирта (в).

далее для расчетов других представлений сигнала [6–8]. На рис.6,б приведены модельные интерферограммы, которые были рассчитаны из профиля показателя преломления, полученного корреляционным методом из цифровых снимков, сделанных в различные моменты времени. Ось абсцисс связана с временем, ось ординат – с пространственной координатой. Длина волны для модельного расчета была принята равной 1500 нм. При построении каждой из модельных интерферограмм использовались профили фаз, полученные из двух снимков, сделанных через определенные интервалы времени. Эти интервалы отнесены к границам соответствующих интерферограмм. В промежутке профиль фаз был получен линейной интерполяцией граничных профилей (искривление полос считалось пренебрежимо малым).

9. Третий тип картины поля, восстановленного с голограммы, соответствует двумерному изображению, связывающему время и пространственные частоты (рис.7,а–в). Каждая точка полученных картин содержит информацию о поле волны, идущей в данный момент времени в данном направлении. Верхняя горизонтальная линия на снимках – это линия нулевых частот, восстановленная с

голограммы, которая была получена при втором экспонировании. Убывающая по ширине полоса – это картина спектра пространственных частот для области диффузии. Интерференционные полосы, ясно видные на рис.7,а, связаны с интерференцией частей волнового фронта, идущих в одном направлении из двух разных областей кюветы [6–8].

В случае корреляционного фонового метода этой картине соответствует зависимость градиента показателя преломления от времени. На рис.7,г представлена зависимость максимального градиента показателя преломления. Подобная зависимость давно применяется для определения коэффициента диффузии оптическими методами [13].

10. Наконец, можно получить четвертый вид представления сигнала в координатах «пространственная частота–временная частота». В корреляционном эксперименте ему соответствует представление в координатах «градиент показателя преломления–производная показателя преломления по времени». В нашем случае такая зависимость имеет вид параметрической кривой для определенного момента времени. Зависимость, полученная из уравнения диффузии, показана на рис.8,а. В схеме голографической записи картина распределения поля в координатах «пространственная частота–временная частота» была получена как оптическим путем (в фокусе фотоаппарата, настроенного на бесконечность, рис.8,б), так и рассчитана при обработке интерферограмм (рис.8,в). Соответствующие зависимости, полученные в результате корреляционной обработки цифровых фотографий процесса диффузии, приведены на рис.8,г. Заметная асимметрия петель на рис.8,б,г связана, скорее всего, с непостоянством коэффициента диффузии при изменении концентрации раствора в переходной области. Она сильнее выражена для серной кислоты (рис. 8,б), для которой зависимость коэффициента диффузии от концентрации сильнее. На эту асимметрию указывает наклон касательной к кривой при нулевой временной частоте и максимальной угловой координате. При этом не выполняется равенство (2) в области максимального градиента при нулевой пространственной частоте.

Алгоритм получения зависимостей, показанных на рис.8,в, подробно описан в [6]. В его основу были положены измерения с помощью микроскопа координат положения максимумов почернения интерференционных полос для какого-либо вертикального сечения картин, показанных на рис.6,а. Производные по времени определялись по координатам одной полосы в двух сечениях.

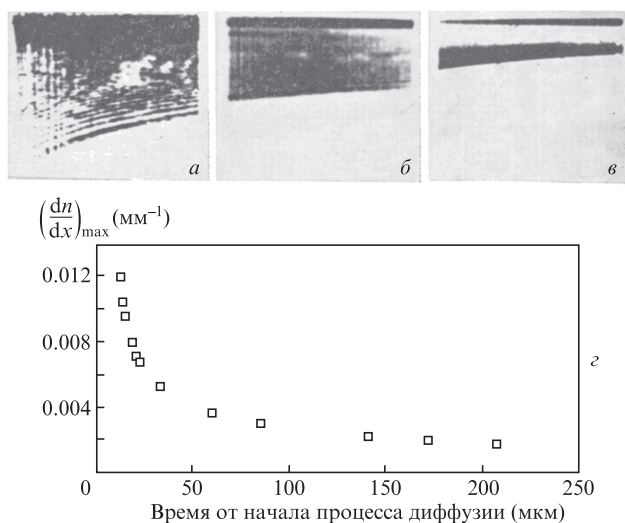


Рис.7. Распределения поля в координатах «пространственная частота (ось ординат)–время (ось абсцисс)» в голографическом эксперименте для раствора KCl при временах экспонирования 5 мин 20 с – 17 мин 55 с (а), 20 мин 10 с – 32 мин 45 с (б) и 60 мин – 160 мин 44 с (в); г – зависимость максимального градиента показателя преломления от времени в процессе диффузии для раствора этилового спирта (корреляционный эксперимент).

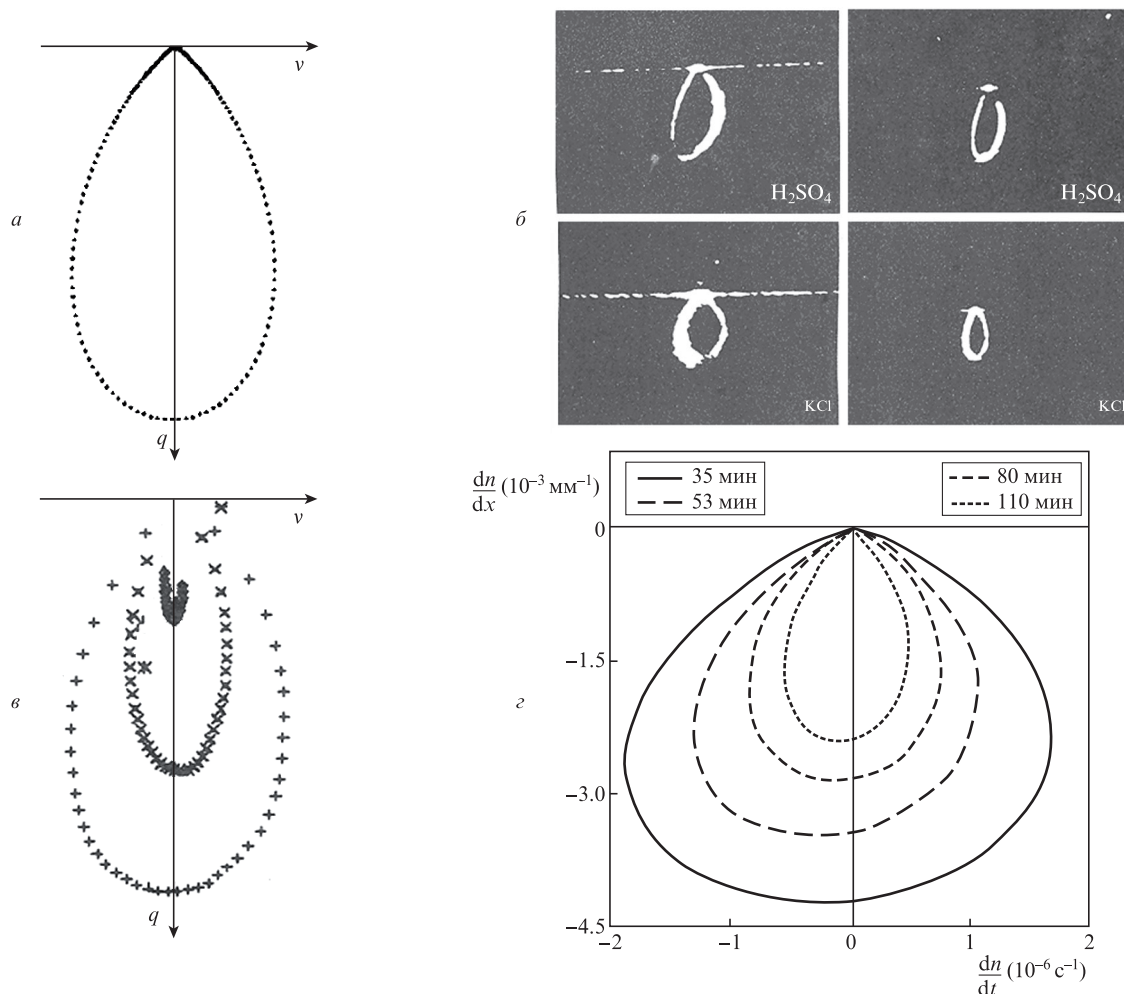


Рис.8. Распределения поля в координатах «пространственная частота (ось ординат)–временная частота (ось абсцисс)» в голографическом эксперименте – теоретическая зависимость (а) и экспериментальные данные для растворов H_2SO_4 и KCl (б), а также рассчитанные по интерферограммам характеристики для раствора KCl (в); г – зависимости градиента показателя преломления от производной показателя преломления по времени, рассчитанные из данных корреляционного фонового метода.

Профиль показателя преломления в какой-либо момент времени находился с помощью полиномиальной интерполяции по методу наименьших квадратов на массиве координат полос для соответствующего сечения. При этом в состав минимизируемого функционала включались производные нескольких низших порядков аппроксимирующего полинома с подобранными весами для стабилизации значений первой и второй производных по пространственной координате. Далее производная по пространственной координате вычислялась для полученного полинома. Так же определялся и аппроксимирующий полином для профиля производной показателя преломления по времени. Полученная таким образом пара чисел (производная по времени и производная по координате, вычисленные для одной точки пространства) являлась координатами соответствующей точки на рис.8,в.

11. Для получения коэффициента диффузии наиболее удобно представить данные измерений в виде зависимости производной показателя преломления по времени от его второй производной по координате. Если показатель преломления ведет себя в соответствии с уравнением диффузии (2), это должна быть пропорциональная зависимость. При этом нам совершенно не важно, каков был начальный профиль концентрации раствора по глубине. На рис.9 для раствора KCl представлены зависимости пер-

вой производной показателя преломления по времени от второй производной по координате, полученные в эксперименте с голографической записью процесса диффузии и при обработке данных корреляционного фонового метода. В случае голографического эксперимента вторая производная вычислялась для описанного выше интерполяционного полинома. Зависимости на всех рисунках достаточно хорошо соответствуют пропорциональным зависимостям. Для голографического эксперимента при малом времени от начала процесса (рис.9,а) на краях зависимостей имеет место петлеобразное поведение – точки прямого и обратного хода не совпадают. Это связано с использованием интерполяционного полинома для получения производных при небольшом количестве экспериментальных точек (30–40). В корреляционном эксперименте число точек существенно больше, поэтому, возможно, этот эффект не проявляется.

Коэффициента диффузии раствора KCl , полученные для рассматриваемых моментов времени в голографическом эксперименте, составляют $1.7 \times 10^{-3} \text{ мм}^2/\text{с}$ для зависимости рис.9,а и $1.8 \times 10^{-3} \text{ мм}^2/\text{с}$ для зависимости рис.9,б, что соответствует табличным значениям при температуре 18.5°C [12]. По данным эксперимента, проведенного с помощью корреляционного фонового метода (рис.9,в,г), коэффициент диффузии для раствора KCl равен $1.99 \times$

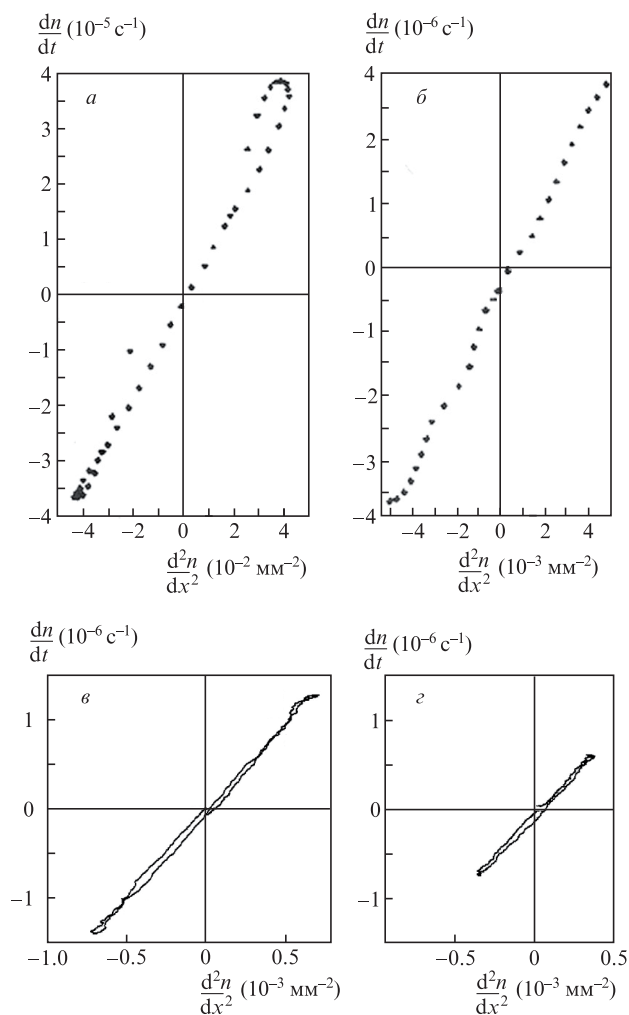


Рис.9. Зависимости производной показателя преломления по времени от второй производной по координате (раствор KCl) – данные голографического эксперимента, полученные через 5 мин 20 с (а) и 100 мин 44 с (б) от начала процесса диффузии, и данные эксперимента на базе корреляционного фонового метода, полученные через 44 мин (в) и 84 мин (г) от начала этого процесса.

$10^{-3} \text{ мм}^2/\text{с}$, что соответствует более высокой температуре ($20\text{--}22^\circ\text{C}$). Вопрос о некотором несовпадении двух ветвей зависимостей требует специального рассмотрения. Так же, как и в [6–8], для раствора KCl обе производные ($\partial n/\partial t$ и $\partial^2 n/\partial x^2$) близки к нулю в области границы раздела, что свидетельствует о слабой зависимости коэффициента диффузии от концентрации. Заметим, что совершенно не важно, каким было начальное распределение показателя преломления, поскольку решать уравнение диффузии не требуется – мы используем полученные из экспериментальных данных численные значения частей уравнения диффузии ($\partial n/\partial t$ и $\partial^2 n/\partial x^2$).

12. Из общих соображений может сложиться впечатление, что метод двухэкспозиционной голографической интерферометрии уступает корреляционному методу. Следует, однако, иметь в виду, что первый основывался на старых методах получения данных для последующей обработки. Корреляционный же метод полностью основан на современной измерительной технике регистрации изо-

бражений с дальнейшей компьютерной обработкой. Тем не менее полученные нами результаты позволяют утверждать, что корреляционный метод не уступает голографическому в точности восстановления характеристик объекта и выявления его свойств в различных представлениях.

Важно, что при голографической двухэкспозиционной интерферометрии необходимы прецизионная экспериментальная установка с хорошей антивибрационной защитой, когерентный источник излучения, прецизионный блок формирования специальной опорной волны и оптические элементы высокого качества. Корреляционный же метод позволяет использовать простую конфигурацию эксперимента. Нужен только транспарант, изготовленный с помощью обычного принтера, и цифровой регистратор изображения (достаточно примитивного цифрового фотоаппарата). В качестве источника излучения годится лампочка любого типа, обеспечивающая достаточное для нормальной экспозиции освещение. В принципе, даже не требуется строгая фиксация фотоаппарата, хотя укрепление его на одной базе с транспарантом и столиком с кюветой избавляет от дополнительных трудностей при обработке полученных изображений.

13. Таким образом, в работе с помощью корреляционного метода сравнения изображений проведено исследование рефракционных нестационарных процессов на примере взаимной диффузии двух жидкостей. Продемонстрировано практическое совпадение результатов корреляционного анализа и голографической двухэкспозиционной интерферометрии. Показано, что корреляционным методом можно определить коэффициент диффузии с достаточно хорошей точностью. При этом экспериментальная реализация корреляционного фонового метода не требует использования прецизионных установок и каких-либо специальных приборов и источников когерентного излучения.

1. Боркова В.Н., Крайский А.В., Миронова Т.В., Султанов Т.Т. *Кр. сообщ. физ. ФИАН*, № 7, 38 (2006).
2. Крайский А.В., Миронова Т.В. *Кр. сообщ. физ. ФИАН*, № 8, 14 (2008).
3. Крайский А.В., Миронова Т.В. *Измерительная техника*, № 5, 26 (2011).
4. Крайский А.В., Кудрявцев Е.М., Миронова Т.В., Султанов Т.Т. *Кр. сообщ. физ. ФИАН*, № 9, 18 (2012).
5. Крайский А.В. *Препринт ФИАН № 222* (М., 1988); <http://preprints.lebedev.ru/?p=784>.
6. Боркова В.Н., Зубов В.А., Крайский А.В. *Препринт ФИАН № 75* (М., 1989); <http://preprints.lebedev.ru/?p=786>.
7. Borkova V.N., Zubov V.A., Krajskij A.V. *J. Sov. Laser Research*, **11** (4), 305 (1990).
8. Боркова В.Н., Зубов В.А., Крайский А.В. *Труды ФИАН*, **212**, 58 (1991); <http://proceedings.lebedev.ru/212>.
9. Финк Л.М. *Сигналы, помехи, ошибки. Заметки о некоторых неожиданных парадоксах и заблуждениях в теории связи* (М.: Радио и связь, 1984).
10. Боркова В.Н., Зубов В.А., Крайский А.В. *Оптика и спектроскопия*, **63** (2), 384 (1987).
11. Миронова Т.В. *Автометрия*, № 5, 84 (2014).
12. *Таблицы физических величин. Справочник*. Под ред. И.К.Кикоина (М.: Атомиздат, 1976).
13. Яковлев К.П. *Физический практикум* (М.-Л.: Гостехиздат, 1949, с. 38).