

## ВОЗДЕЙСТВИЕ ЛАЗЕРНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ НА ВЕЩЕСТВО

# Исследование акустического сигнала при плавлении льда под действием мощного лазерного излучения с длиной волны 2940 нм

Н.Н.Ильичев, А.В.Сидорин, Э.С.Гулямова, П.П.Пашинин

*Измерены акустические сигналы, возникающие при плавлении тонкого (около 2 мкм) слоя льда, находящегося между двумя подложками, с помощью мощного лазерного излучения с длиной волны 2940 нм. Обнаружено, что при плавлении льда появляется акустический сигнал отрицательного давления, связанный с различными удельными объемами воды и льда. Амплитуда этого сигнала сравнима с амплитудой сигнала положительного давления, возникающего при действии лазерного излучения на такой же слой воды. Измерены формы акустических сигналов при изменении плотности энергии падающего на слой излучения. Изменение формы импульса отрицательного давления с увеличением плотности энергии излучения интерпретировано как разрыв сплошности среды. Проведены оценки температуры и давления в слое при нагреве воды и плавлении льда.*

**Ключевые слова:** оптоакустика, лазерное плавление льда, акустические датчики.

### 1. Введение

Акустические методы исследования плавления твердых веществ под действием мощного лазерного излучения дают возможность наблюдать за процессом фазовых превращений с временным разрешением. Это интересно как для исследования динамики происходящих при плавлении процессов, в частности соотношения жидкой и твердой фаз в процессе плавления, так и для наблюдения метастабильных состояний. Это особенно важно при объемном нагреве, который происходит, например, при лазерном нагреве относительно прозрачных для греющего излучения веществ, когда тепло выделяется во всем их объеме, а не подводится к границе раздела фаз вследствие теплопроводности.

Существуют работы, посвященные исследованию плавления веществ под действием лазерного излучения акустическими методами. Например, в [1] приведены результаты исследования особенностей оптико-акустического эффекта при плавлении индия, находящегося под прозрачной для греющего излучения подложкой. Поскольку плотность твердого индия больше плотности жидкого, то при плавлении давление увеличивается. Однако увеличение давления происходит и при нагреве индия (за счет его теплового расширения), поэтому эффект плавления влияет на зависимость давления от времени только количественно, что создает определенные трудности в экспериментальном определении момента начала фазового перехода. Необходимо отметить, что лазерное излучение с длиной волны вблизи 1000 нм поглощается в индии в очень тонком слое (~50 нм [1]). При длительностях импульса лазерного излучения ~10 нс глубина диффузии тепла в индии составляет около 700 нм.

Сопоставление этой величины и расстояния, на котором поглощается излучение, говорит о том, что в случае плавления лазерным излучением металла нельзя говорить об объемном нагреве вещества.

Опубликован также ряд работ, в которых исследовалась генерация звука при фазовых переходах, происходящих под действием лазерного излучения. Например, в теоретической работе [2] исследовалась динамика быстрых процессов при плавлении и испарении вещества в зоне лазерного нагрева. В этой работе также рассматривался случай, когда лазерному воздействию подвергался металл. В работе [3] представлены результаты исследования динамического сдвига точки кипения металла при лазерном воздействии, в [4, 5] – результаты исследования фотоакустических эффектов, возникающих при воздействии лазерного излучения на вещество. Во всех перечисленных работах фазовый переход происходит либо при плавлении металла, либо при испарении вещества под действием мощного лазерного излучения.

Одной из целей настоящей работы является регистрация и исследование акустических сигналов, которые возникают при плавлении тонкого слоя льда, находящегося между двумя подложками, под действием мощного лазерного излучения с длиной волны 2940 нм.

Была рассмотрена также возможность использования акустических сигналов, возникающих при плавлении льда, для калибровки импульсных акустических датчиков.

### 2. Эксперимент

Схема эксперимента приведена на рис.1. Использовались два типа подложек, закрывающих слой воды или льда. Это подложки из кварцевого стекла толщиной 5.7 мм и из сапфира толщиной 9.5 мм.

Выбор этих материалов обусловлен большим различием их теплопроводностей и акустических импедансов, в связи с чем представляет интерес сравнение характеристик акустических сигналов от слоя воды или льда при использовании этих подложек.

Н.Н.Ильичев, А.В.Сидорин, Э.С.Гулямова, П.П.Пашинин. Институт общей физики им. А.М.Прохорова РАН, Россия, 119991 Москва, ул. Вавилова, 38; e-mail: ilichev@kapella.gpi.ru

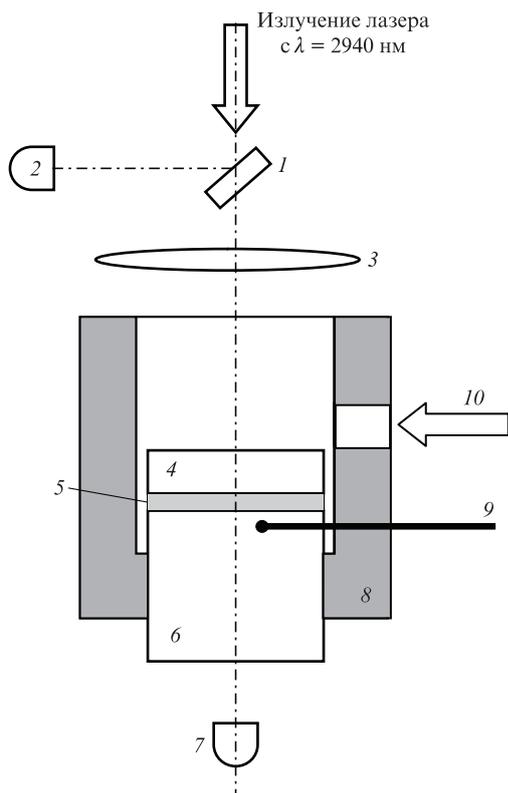


Рис.1. Схема установки:

1 – делительная подложка; 2, 7 – фотоприемники PD29; 3 – линза из  $\text{BaF}_2$  с  $f = 300$  мм; 4 – подложка; 5 – слой воды или льда толщиной  $\sim 2$  мкм; 6 – акустический датчик из ниобата лития; 8 – стакан из пенопласта; 9 – датчик температуры; 10 – поток паров жидкого азота.

Охлаждение осуществлялось при обдуве верхней части акустического датчика (АД) 6 и подложки 4 парами жидкого азота, получавшимися при его испарении из сосуда Дьюара. АД и подложка располагались так, что лазерное излучение распространялось вертикально, верхняя часть стакана из пенопласта не закрывалась, так что «сухой» (без паров воды) холодный азот свободно выходил из стакана, не позволяя находящимся в окружающем воздухе парам воды намерзнуть на подложку. Лазерное излучение проходило через эту область без ослабления. Контроль температуры осуществлялся термодатчиком, который находился в тепловом контакте с кристаллом ниобата лития вблизи слоя воды.

Лазер на кристалле ИАГ:Ег работал в режиме активной модуляции добротности, максимальная плотность энергии на поверхности слоев равнялась  $0.26 \text{ Дж/см}^2$ , площадь пятна излучения –  $0.037 \text{ см}^2$ , длительность импульса составляла  $\sim 275$  нс. Поперечное распределение интенсивности излучения было близким к гауссову. Коэффициент поглощения  $\alpha$  излучения с длиной волны  $\sim 2940$  нм в воде и во льду был равен  $\sim 1.3 \times 10^4 \text{ см}^{-1}$  [6], поэтому нагрев слоя толщиной 1 – 2 мкм под действием этого излучения можно считать объемным.

Акустический датчик представлял собой параллелепипед из кристалла ниобата лития с длинами параллельных кристаллографическим осям  $Y$ ,  $X$  и  $Z$  ребер 25, 25 и 35 мм соответственно. Боковая поверхность датчика была теплоизолирована с помощью монтажной пены. Круглый сигнальный электрод из медной фольги толщиной  $\sim 1$  мкм с диаметром приемной площадки  $\sim 3$  мм на-

ходился на верхней поверхности кристалла и непосредственно контактировал с водой или льдом. Второй, заземленный электрод находился на противоположной грани кристалла. Выбранные размеры кристалла и расположение электродов позволяли сдвинуть во времени появление паразитных сигналов, вызванных отражениями распространяющейся внутри кристалла акустической волны. Регистрация сигнала осуществлялась с помощью осциллографа DPO 7254. Акустический датчик мог регистрировать изменения давления с периодом межмодовых биений интенсивности лазерного излучения 7 нс. Непосредственный контакт слоя воды или льда малой толщины с сигнальным электродом позволял не заботиться о дифракционном искажении формы акустической волны при ее распространении в среде. На существование такого искажения указывалось в [4, 7]. Толщина слоя воды была равна  $\sim 2$  мкм и оценивалась по пропусканию излучения с  $\lambda = 2940$  нм. В экспериментах использовалась дистиллированная вода.

### 3. Результаты эксперимента

На рис.2 представлены зависимости акустического сигнала от времени при использовании подложек из кварцевого стекла и сапфира, закрывающих слои воды и льда. Плотность энергии излучения составляла  $0.26 \text{ Дж/см}^2$ , температура воды – около  $20^\circ\text{C}$ , температура льда перед

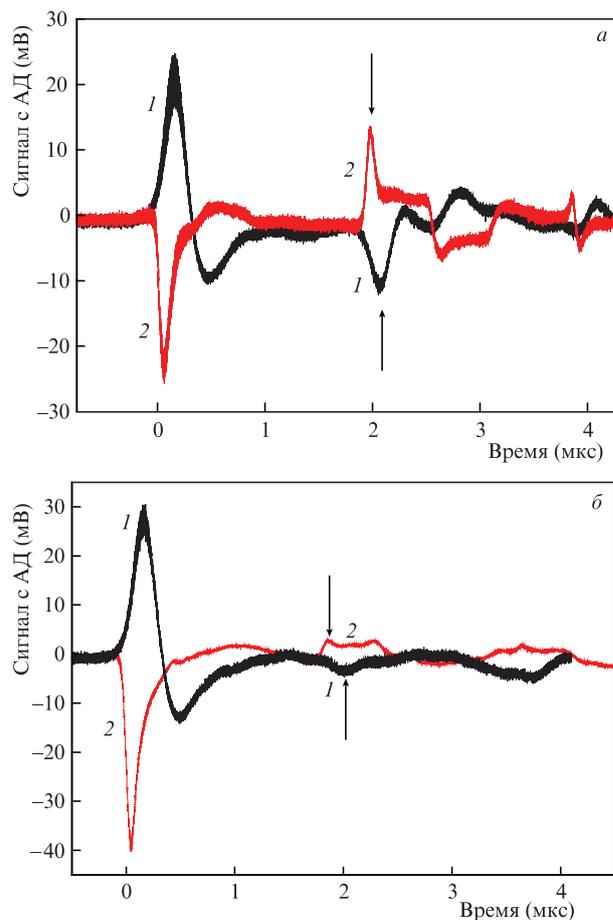


Рис.2. Сигналы с АД при использовании подложек из кварцевого стекла (а) и сапфира (б), закрывающих слои воды (1) и льда (2). Стрелками отмечены пики, возникающие из-за отражения акустического сигнала от свободной поверхности подложки. Плотность энергии лазерного излучения  $0.26 \text{ Дж/см}^2$ .

приходом лазерного импульса – от  $-5$  до  $-10^\circ\text{C}$ . Длительность развертки осциллографа выбрана такой, чтобы были видны пики, возникающие из-за отражения акустического сигнала от свободной поверхности подложки. Сигналов, обусловленных распространением и отражениями акустического импульса в датчике, на этом временном масштабе не видно.

Полярность акустического сигнала от слоя воды положительная, а от слоя льда – отрицательная, т.е. давление, возникающее в слое воды при его облучении, является положительным, а при облучении льда – отрицательным. В последнем случае отрицательный сигнал указывает на то, что происходит плавление льда, а поскольку плотность воды больше плотности льда, генерируется импульс отрицательного давления.

Интересно, что задний фронт импульса отрицательного давления обрывается достаточно круто (рис.2,*a* и *b*, кривые 2), что может указывать на разрыв сплошности льда или воды, т.к. при плавлении образуется смесь воды и льда. Возможность возникновения разрыва подтверждает и то, что в случае слоя льда форма отраженного в подложке импульса акустического давления сильно отличается от формы импульса давления в этом слое (см., напр., рис.2,*a*). В случае как воды, так и льда дополнительным фактором, искажающим форму отраженного импульса, может быть дифракционное искажение формы сигнала при его распространении в подложке.

На рис.3 приведены зависимости импульса давления от времени при разных плотностях энергии излучения

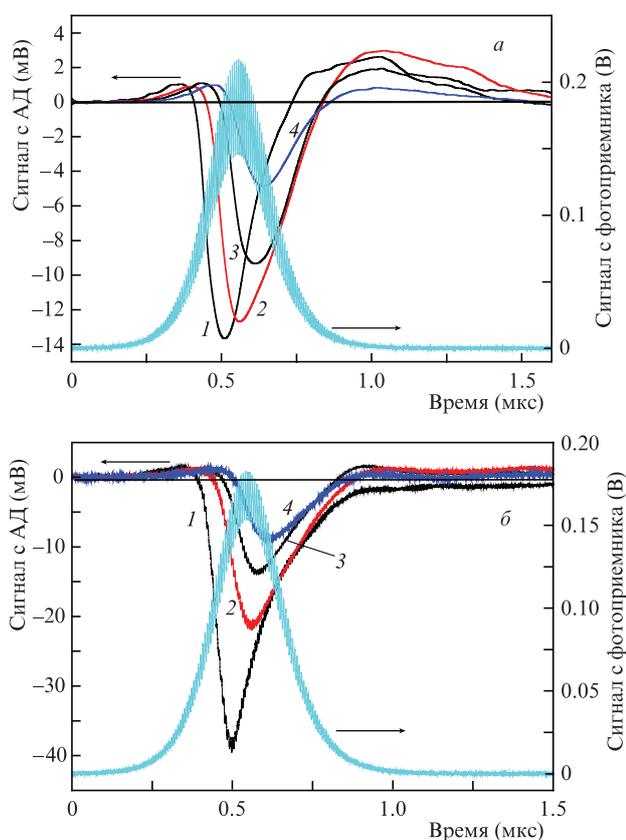


Рис.3. Сигналы с АД при воздействии излучения на слой льда, закрытый подложками из кварцевого стекла (*a*) и сапфира (*b*). Плотность энергии излучения 0.26 (1), 0.13 (2), 0.08 (3) и 0.05 (4) Дж/см<sup>2</sup>. На рис.*a* высокочастотная составляющая акустического импульса отфильтрована, представлены также сигналы с фотоприемника 2 (см. рис.1).

для случаев, когда слой льда прикрыт подложками из кварцевого стекла и сапфира. Видно, что амплитуда сигнала давления по абсолютной величине уменьшается с уменьшением плотности энергии излучения. Видно также, что в начале действия импульса излучения давление положительно, что объясняется генерацией фотоакустического сигнала из-за нагрева льда, а затем, с началом плавления льда, возникает импульс отрицательного давления. Необходимо также отметить, что амплитуда сигнала от слоя льда под сапфировой подложкой в 1.5–2 раза больше, чем в случае подложки из кварцевого стекла.

#### 4. Обсуждение результатов

Оценим температуру, давление и изменение толщины слоя воды при воздействии на него излучения с  $\lambda = 2940$  нм. Для грубой оценки примем, что температура и давление внутри слоя воды не зависят от координаты, перпендикулярной плоскости слоя. Пусть на слой воды толщиной  $h$ , который находится между кристаллом ниобата лития (среда 1) и подложкой из кварцевого стекла, (среда 2) падает импульс лазерного излучения длительностью  $\tau_p$  с плотностью энергии на поверхности слоя  $E$ . Распределение интенсивности излучения по сечению лазерного пучка считаем прямоугольным. Энергия, поглощенная в слое воды, расходится на ее нагрев, нагрев сред 1 и 2, ограничивающих слой, и электрода из меди толщиной  $h_{Cu} = 1$  мкм. Положим также, что температура поверхности сред 1 и 2 равна температуре слоя, а глубина их прогрева равна длине диффузии тепла в них. Поскольку тепло распространяется в электроде за время  $\sim 9$  нс, то будем считать, что при  $\tau_p = 275$  нс температура электрода равна температуре воды. При этих условиях баланс энергии запишется следующим образом:

$$E[1 - \exp(-ah)] = C_w \rho_w h \Delta T + \sqrt{C_1 \rho_1 \chi_1 \tau_p} \Delta T + \sqrt{C_2 \rho_2 \chi_2 \tau_p} \Delta T + C_{Cu} \rho_{Cu} h_{Cu} \Delta T,$$

где  $C, \chi, \rho$  – удельные теплоемкости, теплопроводности и плотности воды (индекс w), кристалла и подложки (индексы 1 и 2), ограничивающих слой воды, и электрода (индекс Cu);  $\Delta T$  – изменение температуры слоя. В результате

$$\Delta T = \frac{E[1 - \exp(-ah)]}{C_w \rho_w h + \sqrt{C_1 \rho_1 \chi_1 \tau_p} + \sqrt{C_2 \rho_2 \chi_2 \tau_p} + C_{Cu} \rho_{Cu} h_{Cu}}. \quad (1)$$

Считая, что излучение поглощается в слое полностью, получаем из (1), что изменение температуры слоя воды при  $E = 0.26$  Дж/см<sup>2</sup> и  $\tau_p = 275$  нс оказывается равным  $175^\circ\text{C}$  (подложка из кварцевого стекла) и  $143^\circ\text{C}$  (сапфировая подложка). Различие температур в этих случаях связано с более высокой теплопроводностью сапфира.

Характеристики использованных материалов представлены в табл.1. Данные взяты из работы [8]. Время прохождения акустической волны через электрод толщиной 1 мкм составляет  $\sim 0.2$  нс, поэтому считаем, что давление внутри медного электрода и воды одинаково. Под действием давления  $\Delta p$  упругая стенка 1, ограничивающая слой, движется со скоростью  $\Delta p / (V_{s1} \rho_1)$  [9], где  $V_{s1}$  – скорость звука в среде 1. Скорость изменения толщины слоя  $h$

Табл.1.

Материал	Удельная теплоемкость (кДж·кг <sup>-1</sup> ·град <sup>-1</sup> )	Плотность (10 <sup>3</sup> кг/м <sup>3</sup> )	Теплопроводность (Вт·м <sup>-1</sup> ·град <sup>-1</sup> )	Скорость звука (м/с)
Вода	4.2	1	0.5	1400
Лед	2.12	0.917	2.21	3800
LiNbO <sub>3</sub>	0.657	4.7	4.6	7200
Кварцевое стекло	1.05	2.2	1.38	5900
Сапфир	0.756	3.97	23.1	11000
Медь	0.39	8.93	400	4700

$$\frac{dh}{dt} = \Delta p \left( \frac{1}{z_1} + \frac{1}{z_2} \right),$$

где  $z_1 = V_{s1}\rho_1$ ;  $z_2 = V_{s2}\rho_2$ . Изменение толщины слоя в результате деформации ограничивающих слой сред за время действия лазерного импульса таково:

$$\Delta h = \Delta p \left( \frac{1}{z_1} + \frac{1}{z_2} \right) \tau_p. \quad (2)$$

Изменение объема слоя воды

$$dV = \left( \frac{\partial V}{\partial p} \right)_T dp + \left( \frac{\partial V}{\partial T} \right)_p dT.$$

Отсюда получаем уравнение для изменения толщины слоя:

$$\Delta h = h(\beta_w \Delta p + \gamma_w \Delta T), \quad (3)$$

где

$$\beta_w = \frac{1}{V} \frac{\partial V}{\partial p} \text{ и } \gamma_w = \frac{1}{V} \frac{\partial V}{\partial T}$$

– сжимаемость и объемный коэффициент теплового расширения воды соответственно. Время прохождения звука в поперечном направлении превышает 700 нс (радиус засвеченной части слоя  $\sim 1$  мм), что почти в два раза больше длительности лазерного импульса, поэтому считаем, что изменяется только толщина слоя,  $dV = Sdh$ . Из (2) и (3), учитывая, что  $\tau_p(z_1^{-1} + z_2^{-1}) \gg h|\beta_w|$ , получаем изменение давления

$$\Delta p = \frac{h\gamma_w \Delta T}{\tau_p(z_1^{-1} + z_2^{-1})}. \quad (4)$$

Значение  $\Delta h$  находится из (2). Расчет по (2) – (4) при  $h = 2$  мкм дает давление 14 МПа (138 атм) и  $\Delta h = 0.4$  мкм, если слой ограничен подложкой из кварцевого стекла, и 18 МПа (181 атм) и  $\Delta h = 0.26$  мкм в случае сапфировой подложки. Значение коэффициента объемного расширения воды зависит от температуры и давления. При расчете принято, что  $\gamma_w = 1.13 \times 10^{-3}$  град<sup>-1</sup> при температуре 175 °С и давлении 14 МПа (подложка из кварцевого стекла) и  $\gamma_w = 0.93 \times 10^{-3}$  град<sup>-1</sup> при температуре 143 °С и давлении 18 МПа (сапфировая подложка). Значения коэффициента объемного расширения воды найдены на основе формул, приведенных в [10]. При определении изменения температуры из (1) не учитывалась работа силы давления по перемещению стенок. В данном случае это допустимо, поскольку, как показывает расчет, это работа мала по сравнению с энергией, затраченной на нагрев воды.

Оценим изменение давления при плавлении льда под действием излучения. Изменение толщины слоя при плавлении льда обусловлено изменением плотности среды при плавлении и изменением объема при изменении давления. Изменением объема вследствие изменения температуры можно пренебречь: будем считать, что плавление происходит при постоянной температуре. Как следует из уравнения Клайперона – Клаузиуса, температура плавления льда изменяется на  $-1$  °С при увеличении давления на 134 атм [11]. Считая, что поперечные размеры слоя не меняются, получаем

$$\Delta h = h\beta \Delta p + h \left( \frac{\rho_i}{\rho_w} - 1 \right), \quad (5)$$

где индекс  $i$  относится ко льду;  $\beta$  – средняя сжимаемость смеси льда и воды. С другой стороны, изменение толщины слоя за счет деформации ограничивающих слой сред описывается выражением (2). Учитывая, что в наших условиях неравенство  $\tau_p(z_1^{-1} + z_2^{-1}) \gg h|\beta|$  выполняется как для сжимаемости льда, так и для воды, из (2) и (5) получаем

$$\Delta p = \frac{h(\rho_i/\rho_w - 1)}{\tau_p(z_1^{-1} + z_2^{-1})}. \quad (6)$$

Расчет с использованием (6), если слой ограничивает подложка из кварцевого стекла, дает  $\Delta p = -5.7$  МПа ( $-56$  атм), а из (2) получим  $\Delta h = -0.17$  мкм. Аналогично для случая сапфировой подложки  $\Delta p = -11.5$  МПа ( $-114$  атм) и  $\Delta h = -0.16$  мкм. Сравнение расчетных значений отрицательного давления при плавлении льда под подложками из кварцевого стекла и из сапфира показывает, что в случае сапфировой подложки давление почти в два раза больше. Из экспериментальных данных для минимального давления при плавлении льда, представленных на рис.2,а и б, также следует, что давление под сапфировой подложкой по абсолютной величине в 1.5–2 раза больше, чем под подложкой из кварцевого стекла.

Отметим также, что для того чтобы расплавить слой льда толщиной 2 мкм, необходима плотность энергии излучения  $\sim 0.06$  Дж/см<sup>2</sup> (без учета ухода тепла в подложки и электрод). При превышении плотностью энергии этого значения давление не должно уменьшаться, т. к. весь лед должен расплавиться. Однако, как видно из рис.3, амплитуда сигнала давления по абсолютной величине продолжает увеличиваться. Это указывает на то, что использованная теоретическая модель слишком грубая и нуждается в улучшении.

Во время действия импульса излучения лед плавится, и после его полного плавления получившаяся вода должна нагреться за счет энергии, содержащейся в оставшейся части лазерного импульса. В результате нагрева воды должно повыситься давление в слое. Расчет показывает, что при  $E = 0.2$  Дж/см<sup>2</sup> давление в слое воды под кварцевой подложкой должно увеличиться на 11 МПа (112 атм), а под сапфировой подложкой – на 12 МПа (116 атм). Если принять во внимание, что после плавления льда в слое имеется отрицательное давление, то после нагрева воды давление должно стать положительным и равным 5.3 МПа (52 атм) (кварцевая подложка) и 0.5 МПа (5 атм) (сапфировая подложка). Это означает, что отрицательный импульс давления при плавлении льда должен заканчиваться скачком положительного давления. Однако, как видно

из рис.2, такого импульса нет, что может служить еще одним косвенным указанием на разрыв сплошности слоя.

Обратим внимание на то, что выражение (6) не содержит плотности энергии излучения, а все величины, входящие в нее, или определяются экспериментально, или известны из справочной литературы. Поэтому акустический сигнал, возникающий при плавлении льда, можно использовать для калибровки акустических датчиков. Следует только обеспечить полное расплавление льда.

## 5. Заключение

Измерены сигналы с АД, возникающие при воздействии мощного излучения с  $\lambda = 2940$  нм на тонкий слой воды или льда под подложкой из кварцевого стекла или сапфира. Отрицательный акустический сигнал, возникающий при облучении слоя льда мощным лазерным излучением, интерпретирован как отрицательное давление, возникающее при плавлении льда из-за различия удельных объемов льда и воды. Особенности временной формы сигналов с АД при облучении слоя льда при плотности энергии лазерного излучения  $0.26$  Дж/см<sup>2</sup> позволили сделать вывод о возможном возникновении в облучаемом слое разрывов сплошности под действием отрицательного давления.

Проведена оценка температуры и давления в слоях воды и льда при воздействии на них импульсов лазерного излучения с плотностью энергии  $0.26$  Дж/см<sup>2</sup>. Для воды их средние значения составили:  $\Delta T = 175^\circ\text{C}$ ,  $\Delta p = 14$  МПа (138 атм) (подложка из кварцевого стекла) и  $\Delta T = 143^\circ\text{C}$ ,  $\Delta p = 18$  МПа (181 атм) (подложка из сапфира). Для льда  $\Delta p = -55$  атм (подложка из кварцевого стекла) и  $\Delta p =$

$-112$  атм (подложка из сапфира). Как показывает расчет, давление под сапфировой подложкой больше (для льда – по абсолютной величине), чем под подложкой из кварцевого стекла ввиду большего акустического импеданса сапфира.

Предлагается использовать акустический сигнал, возникающий при плавлении льда, для абсолютной калибровки импульсных акустических датчиков.

Работа выполнена при частичной поддержке РФФИ (грант № 16-02-00807а) и программы Президиума РАН I.7 «Актуальные проблемы фотоники, зондирование неоднородных сред и материалов».

1. Карабутов А.А., Кубышкин А.П., Панченко В.Я. и др. *Квантовая электроника*, **25** (8), 690 (1998) [*Quantum Electron.*, **28** (8), 670 (1998)].
2. Мажукин В.И., Никифорова Н.М., Самохин А.А. *Труды ИОФАН*, **60**, 108 (2004).
3. Карабутов А.А., Кубышкин А.П., Панченко В.Я., Подымова Н.Б. *Квантовая электроника*, **22** (8), 820 (1995) [*Quantum Electron.*, **25** (8), 789 (1995)].
4. Гусев В.Э., Карабутов А.А. *Лазерная оптоакустика* (М.: Наука, 1991).
5. Paltauf G., Dyer P.E. *Chem. Rev.*, **103**, 487 (2003).
6. Золотарев В.М., Морозов В.Н., Смирнова Е.В. *Оптические постоянные природных и технических сред. Справочник* (Л.: Химия, 1984).
7. Бурмистрова Л.В., Карабутов А.А., Портнягин А.И. и др. *Акустический журн.*, **24** (5), 655 (1978).
8. *Физические величины. Справочник*. Под ред. И.С.Григорьева и Е.З.Мейлихова (М.: Энергоатомиздат, 1991).
9. Красильников В.А., Крылов В.В. *Введение в физическую акустику. Учебное пособие* (М.: Наука, 1984).
10. <http://www.iapws.org/relguide/IF97-Rev.pdf>.
11. Ферми Э. *Термодинамика* (Харьков: Изд-во ХГУ, 1969).