УДК 534; 535.3; 536

О ВЗРЫВНОМ ВСКИПАНИИ ЖИДКОСТИ НА ПОДЛОЖКЕ ПОД ДЕЙСТВИЕМ СУБНАНОСЕКУНДНОГО ЛАЗЕРНОГО ИМПУЛЬСА

А. А. Самохин, А. Ю. Ивочкин

Анализируются условия и возможности акустической регистрации импульсов давления от взрывного вскипания прозрачной жидкости на поглощающей подложке, нагреваемой лазерными импульсами наносекундной и субнаносекундной длительности.

Ключевые слова: фотоакустический эффект, лазерное воздействие, испарение.

1. Поведение вещества при импульсном нагреве исследуется уже много лет (см., напр., [1–3] и цитированную там литературу). При таком воздействии нагреваемое вещество обычно оказывается в термодинамически неравновесном состоянии. Метастабильность перегретой жидкости приводит при определенных условиях к ее взрывному вскипанию (BB). Этот эффект используется в различных практических приложениях. Изучение особенностей этого процесса может способствовать также экспериментальному определению критического давления для перехода жидкость-пар [1], поскольку взрывное вскипание возможно только в докритической области давлений.

Взрывное вскипание жидкости наблюдается, например, при непосредственном поглощении в ней лазерного импульса или за счет контактного нагрева прозрачной жидкости на импульсно-нагреваемой подложке. Одним из характерных проявлений ВВ является значительное повышение давления в той области, где начинается распад перегретого метастабильного состояния. Однако этот процесс экспериментально мало изучен, если иметь в виду, в частности, его временные характеристики.

Генерация давления в воде при ее быстром вскипании на подложке, нагреваемой лазерным импульсом ($\tau_n = 24$ нс, $\lambda = 248$ нм), исследовалась в работе [4]. Давление регистрировалось пьезодатчиком, который находился в воде на расстоянии 3 см от подложки. Проявление взрывного вскипания отождествлялось с более быстрым ростом амплитуды акустического сигнала при увеличении плотности энергии лазерного импульса, которое сопровождалось также дополнительным уширением сигнала.

ИОФ РАН, 119991 Россия, Москва, ул. Вавилова, 38; e-mail: asam40@mail.ru.

Явного разделения сигнала на термоакустический и испарительный, которое четко проявляется в случае воздействия излучения на свободную поверхность поглощающей жидкости [2], в работе [4] не наблюдалось. Нам неизвестно также ни одной экспериментальной работы, в которой бы сообщалось о регистрации коротких (субнаносекундных) импульсов давления, которое можно было бы связать с ВВ. Между тем, из теоретических работ [5, 6] следует, что характерные длительности процесса ВВ должны быть меньше одной наносекунды.

Целью настоящей работы является обсуждение условий, необходимых для наблюдения субнаносекундных особенностей поведения давления, связанных с взрывным вскипанием прозрачной жидкости на импульсно-нагреваемой подложке.

2. Регистрацию импульсов давления от взрывного вскипания жидкости на импульсно-нагреваемой подложке целесообразно в ряде случаев проводить не в самой жидкости, а в подложке, что позволяет, в частности, исследовать случай тонких пленок жидкости. Подобные случаи исследовались теоретически в рамках метода молекулярной динамики в [5] (вода на золоте) и экспериментально в [7] (изопропанол на кремнии), однако какой-либо информации о поведении давления в работах [5, 7] не приводится.

При быстром лазерном нагреве в поглощающей подложке, кроме возможных импульсов от BB, возникает также фотоакустический (термоакустический) сигнал давления (ФАСД), обусловленный тепловым расширением (без фазового перехода) в системе жидкость-подложка. Важным обстоятельством является то, что процесс BB, в отличие от формирования ФАСД, носит пороговый характер с длительностью, которая может быть существенно меньше наносекундных лазерных импульсов. По этой причине при неоднородном, например, гауссовом, распределении интенсивности лазерного воздействия по пятну облучения, характерные особенности BB, которое в разных областях воздействия возникает в разное время, претерпевают деструктивное усреднение, "размазывание" на фоне ФАСД, характерная длительность которого сравнима с длительностью лазерного импульса.

Очевидно, что достаточным условием для отсутствия заметного негативного влияния такого "размазывания" сигнала ВВ является такая степень однородности H интенсивности нагрева по пятну облучения, которая обеспечивает разброс по времени моментов начала ВВ, не превышающий характерной длительности импульсов давления ВВ $\tau_{eb} \leq 0.1$ нс. Для наносекундных лазерных импульсов с длительностью τ_n это означает:

$$(1-H) \cdot \tau_n < \tau_{eb}.\tag{1}$$

14

Если $\tau_n = 24$ нс, как это было, например, в работе [4], то уровень неоднородности не должен превышать половины процента. В работе [4] говорится о "хорошей пространственной однородности" лазерного облучения, однако количественной ее характеристики не приводится.

В связи с ограничением (1) необходимо отметить, что наблюдение коротких пиков давления от ВВ на фоне ФАСД в определенных условиях [8] возможно и при менее жестком требовании, чем (1), если обеспечивается субнаносекундное временное разрешение импульсов давления, которое в [4] не реализовывалось.

3. Другим способом устранения нежелательного разброса моментов начала взрывного вскипания может быть использование для нагрева подложки более коротких лазерных импульсов, длительность которых не слишком велика по сравнению с характерной длительностью процесса BB. Во всяком случае, уменьшение длительности лазерного импульса облегчает выполнение требований на степень однородности (постоянства) интенсивности по пятну облучения, определяемых соотношением (1).

Рассмотрим такую ситуацию более подробно на примере золотой подложки толщиной h, расположенной непосредственно на поверхности датчика из ниобата лития толщиной H под акустически толстым слоем воды. В линейном приближении и с учетом малости затрат на нагрев воды по сравнению с золотом из-за сравнительной малости температуропроводности воды для ФАСД в подложке P(t) имеем (см., напр., [3]):

$$P(t) = K \frac{\varepsilon}{c_p} \left(\kappa \left. \frac{\partial T}{\partial t} \right|_{z=0} + \frac{1}{\alpha} \left. \frac{\partial I}{\partial t} \right) + (1 - K) \frac{v_g \varepsilon}{c_p} I(t),$$
(2)

где $\varepsilon = 1.4 \cdot 10^{-5} \text{ K}^{-1}$, $c_p = 128.9 \text{ Дж}/(\text{кг}\cdot\text{K})$, $v_g = 3.24 \cdot 10^3 \text{ м/c}$ означают соответственно коэффициент теплового расширения, удельную теплоемкость и скорость звука в золоте, I(t) – плотность мощности лазерного излучения, T – температура поверхности подложки, $K = Z_g/(Z_w + Z_g)$, $Z_w = \rho_w v_w$ – акустический импеданс воды ($\rho_w = 10^3 \text{ кг/m}^3$ – ее плотность, $v_w = 1.48 \cdot 10^3 \text{ м/c}$ – скорость звука), $Z_g = \rho_g v_g$ ($\rho_g = 19.3 \cdot 10^3 \text{ кг/m}^3$ – плотность золота). В (2) предполагается также, что характерная длина возбуждаемой звуковой волны, определяемая длительностью лазерного импульса τ_n , велика по сравнению с глубиной прогрева, т.е. $\tau_n v_g > \sqrt{\chi \tau_n}$, где $\chi = 1.26 \cdot 10^{-4} \text{ м}^2/\text{c}$ – коэффициент температуропроводности золота.

При K = 1 формула (2) описывает сигнал давления в случае свободной поверхности, тогда как K = 0 соответствует полностью зажатой (неподвижной) поверхности. Для границы вода-золото K = 0.95, т.е. влияние на ФАСД наличия жидкости на поверхности золота в этом приближении относительно невелико и уменьшается с уменьшением длительности лазерного импульса.

В условиях поверхностного нагрева, когда $\sqrt{\chi \tau_n} \alpha > 1$, где α – коэффициент поглощения лазерного излучения, основной вклад в выражение при K дает член с временной производной от температуры, а зависимость приращения температуры T от времени при постоянных теплофизических параметрах можно определить с помощью известной формулы:

$$T(t) = \int_{0}^{\infty} \frac{AI_0(t-\tau)}{\rho_g c_p \sqrt{\pi\chi\tau}} d\tau,$$
(3)

где A – коэффициент поглощения лазерного излучения поверхностью, $I_0(t)$ – плотность мощности падающего излучения.



Рис. 1: Приращение температуры подложки при воздействии лазерных импульсов длительностью 100 пс (a) и 400 пс (б) с плотностью поглощенной энергии в импульсе 10 и 20 мДж/см² соответственно: 1 – плотность мощности лазерного излучения, 2 – приращение температуры, 3 – температура предельного перегрева с учетом изменения давления при начальной температуре подложки 75 °C.

На рис. 1 ((a), (б)) показано приращение температуры поверхности подложки при ее нагреве лазерным импульсом с длительностью 100 и 400 пс и различными плотностями поглощенной энергии $E = 10 \text{ мДж/см}^2$ и $E = 20 \text{ мДж/см}^2$ соответственно, обеспечивающими один и тот же максимум приращения температуры ~300 К. Отличие поглощенной энергии $E = A \cdot E_0$ от падающей E_0 определяется коэффициентом поглощения A, который для золота предполагался равным 0.4. При постоянном E увеличение длительности импульса на фактор ϕ приводит к уменьшению максимальной температуры нагрева в $\sqrt{\phi}$ раз из-за возрастания тепловых потерь за счет теплопроводности подложки.

Рис. 2: Фотоакустический сигнал давления при тех же условиях воздействия, что и на рис. 1: 1 – полный фотоакустический сигнал давления, 2 – ФАСД от свободной поверхности, 3 – дополнительный вклад в ФАСД от воды (давление на границе раздела вода-подложка) при наличии (сплошная) и отсутствии (штрихи) взрывного вскипания.

Поведение ФАСД показано на рис. 2 ((a), (б)) для тех же условий, что и на рис. 1 ((a), (б)). Дополнительный вклад в ФАСД за счет воды изображен на рис. 2 ((a), (б)) плавными составляющими кривых 3, часть которых (без учета ВВ) показана штриховой линией. Следует иметь в виду, что этот вклад является заниженным из-за неучета теплового расширения воды в (1), (3), где ее влияние сводится только к дополнительной механической нагрузке при движении поверхности подложки за счет ее теплового расширения. Влияние нелинейного теплового расширения воды становится более выраженным по мере роста температуры, что необходимо учитывать при более полном анализе поведения Φ АСД.

Начало взрывного вскипания при достаточно быстром нагреве определяется моментом достижения границы абсолютной термодинамической неустойчивости перегретой фазы, т.е. температуры предельного перегрева, которая находится в околокритической области и зависит от внешнего давления, в данном случае давления на границе раздела вода-подложка. Приближенно зависимость температуры предельного перегрева от давления можно записать в виде функции $T_l(P) = T_c(0.9 + 0.1 \cdot P/P_c)$, которая изображена на рис. 1 ((a), (б)) кривой 3 для начальной температуры подложки 75 °C. Необходимо напомнить, что при увеличении времени нагрева процесс ВВ может начинаться и при более низких температурах, чем T_l . Насколько нам известно, особенности акустических сигналов от ВВ в рассматриваемых условиях субнаносекундного воздействия пока еще не исследованы ни теоретически, ни экспериментально. Остается открытым, в частности, и вопрос о возможном скачке температур на границе между жидкостью и подложкой [6, 7], который здесь для простоты не учитывается.

На основе результатов работ [5, 6] можно предположить, что время нарастания и длительность импульса давления при ВВ составляют, соответственно, десятки и сотни пикосекунд. Максимум давления P_m , очевидно, не может превосходить величины критического давления P_c , которое составляет 220 атм для воды. Величина P_m , предположительно, близка к давлению насыщения P_s при достигнутой температуре предельного перегрева. Для воды, например, $P_s(0.95T_c) = 176$ атм. Качественно соответствующий таким данным импульс давления от ВВ представлен той частью кривой 3 на рис. 2, которая начинается после скачка давления и расположена над штриховой линией, описывающей влияние слоя воды в отсутствие ВВ.

Следует подчеркнуть при этом, что вклад давления от ВВ в ФАСД не является аддитивным, поскольку на полный сигнал влияет только та часть импульса ВВ, показанная сплошной кривой, которая превышает давление, действующее до этого на границе жидкость-подложка.

4. Для наблюдения таких особенностей ФАСД, связанных с ВВ, требуется схема регистрации с субнаносекундным временным разрешением, которое вполне может быть обеспечено в современных условиях с помощью осциллографов с полосой в несколько ГГц и датчиков давления, например, на основе ниобата лития. Постоянная времени такого датчика, работающего в режиме источника тока, должна быть мала по сравнению с характерными временами исследуемых сигналов. В противном случае регистрируемые сигналы начинают искажаться, как это показано на рис. 3 для различных значений постоянной времени *τ*.

Кривые ФАСД на этом рисунке, кроме основных сигналов, содержат также дополнительные импульсы, обусловленные первым отражением исходного ФАСД в пленке золота с толщиной h = 1.25 мкм, которые сдвинуты от исходного импульса на время $t = 2h/v_d$ двойного пробега звука в пленке золота и уменьшены по амплитуде с учетом

Рис. 3: Искажение ФАСД, возбуждаемых лазерными импульсами длительностью 100 nc (a) и 400 nc (б) при их регистрации с различными значениями постоянной времени τ : 1 – 10 nc, 2 – 100 nc, 3 – 500 nc.

суммарного коэффициента отражения $K_r = 0.3$ звука от границ золото-ниобат лития и золото-вода.

Искажение сигнала (рис. 3) следует из уравнения для электрического напряжения на датчике U(t) (см., напр., [9]):

$$U + \tau \frac{dU}{dt} = \frac{\gamma v_d S_0 R}{d} [p(t,0) - p(t,d)], \qquad (4)$$

где γ , v_d , S_0 , R, d соответственно пьезоэлектрический коэффициент материала датчика, скорость звука в нем, площадь электродов, сопротивление нагрузки и толщина датчика, p(t,0) и p(t,d) – временная форма импульса давления на переднем и тыльном электродах соответственно. Это же уравнение при известной постоянной времени τ может быть использовано для восстановления ФАСД по регистрируемому поведению электрического сигнала с датчика давления.

5. Таким образом, для наблюдения характерных особенностей ВВ необходимо в случае наносекундных импульсов с длительностью $\tau_n > 1$ нс иметь однородность $H < (\tau_n - \tau_{eb})/\tau_n$ или использовать более короткие лазерные импульсы с $\tau_n = \tau_{eb} = 0.1$ нс. Однако уменьшение τ_n уменьшает относительное значение сигнала ВВ на фоне регистрируемого ФАСД.

Постоянная времени системы регистрации τ должна быть как можно меньше, поскольку учет аппаратной функции, связанной с конечной величиной *RC*, где *C* обозначает емкость датчика, может вносить дополнительную ошибку. При соблюдении этих условий сигнал BB в случае больших τ_n может наблюдаться как узкий пик в случае длинных наносекундных лазерных импульсов, когда амплитуда ФАСД не слишком велика, или как уширение более коротких импульсов субнаносекундных ФАСД, амплитуда которых может значительно превосходить сигнал от BB. Для уменьшения этого различия целесообразно использовать другие материалы подложки с меньшим, чем у золота, значением коэффициента теплового расширения, например, кремний.

Авторы выражают благодарность Н.Н. Ильичеву за полезные обсуждения.

Работа выполнена при частичной поддержке гранта РФФИ № 13-02-01129.

ЛИТЕРАТУРА

- [1] А. А. Самохин, Квантовая электроника 1, 2056 (1974).
- [2] А. А. Самохин, Труды ИОФАН **13**, 3 (1988).
- [3] С. Н. Андреев, С. В. Орлов, А. А. Самохин, Труды ИОФАН 60, 127 (2004).
- [4] H. K. Park, D. Kim, C. P. Grigoropoulos, A. C. Tam, J. Appl. Phys. 80, 4072 (1996).
- [5] Y. Dou, L. V. Zhigelei, N. Vinograd, B. J. Garrison, J. Chem. Phys. A 105, 2748 (2001).
- [6] А. А. Самохин, Е. А. Молоков, Краткие сообщения по физике ФИАН 35(11), 25 (2008).
- [7] F. Lang, P. Leiderer, New J. Phys. 8, 14 (2006).
- [8] А. А. Самохин, В. И. Вовченко, Н. Н. Ильичев, П. В. Шапкин, Квантовая электроника **37**, 1141 (2007).
- [9] А. А. Самохин, Инженерная физика, № 6, 30 (2012).

Поступила в редакцию 29 августа 2012 г.