Письма в ЖЭТФ, том 111, вып. 7, с. 464 – 468 © 2020 г. 10 апреля

Диагностика локального временного профиля ультразвукового пучка в воде с помощью спектроскопии комбинационного рассеяния

С. М. Першин[1), А. П. Брысев[1), М. Я. Гришин, В. Н. Леднев, А. Ф. Бункин, Р. В. Клопотов

Институт общей физики им. А. М. Прохорова РАН, 119991 Москва, Россия

Поступила в редакцию 26 февраля 2020 г.
После переработки 13 марта 2020 г.
Принята к публикации 13 марта 2020 г.

Впервые с помощью импульсной лазерной спектроскопии комбинационного рассеяния света реализована диагностика локального профиля акустического давления с пиковым перепадом 50 МПа на частоте 2.0 МГц в фокусе ультразвукового пучка, распространяющегося в воде. Пучок лазера (527 нм, 10 нс) фокусировали в перетяжку ультразвукового пучка под углом 90°. Рассеянные назад фотоны регистрировали в стробируемом спектроанализаторе. Обнаружено, что спектры комбинационного рассеяния света в моменты, соответствующие максимуму и минимуму акустического давления, заметно отличаются. Используя эту особенность для поточечной репродукции профиля акустического давления, задержку между импульсами ультразвука и лазера последовательно увеличивали с шагом 50 нс. Показано, что возникающие при этом изменения в положении центра полосы валентных колебаний O-H молекул воды в спектре комбинационного рассеяния света в пределах погрешности измерений воспроизводят профиль акустического давления, непосредственно измеренный PVDF-гидрофоном в точке лазерного зондирования. Полученные результаты могут служить основой нового метода дистанционной диагностики временного профиля акустического давления и мониторинга локальных динамических процессов сжатия-растяжения в воде вплоть до критических значений, соответствующих кавитационному разрыву, когда использование гидрофона может привести к его разрушению.

DOI: 10.31857/S0370274X20070073

Введение. В экспериментальных исследованиях нелинейных процессов при распространении интенсивных ультразвуковых пучков в жидкостях широко используются методы, основанные на непосредственном измерении характеристик акустического поля, например, с помощью широкополосных мембранных или игольчатых гидрофонов с пьезоактивным PVDF-элементом. В то же время существует достаточно много случаев, когда прямые методы измерений параметров акустического поля в силу тех или иных ограничений оказываются неприменимыми. В таких ситуациях применяются непрямые, например, оптические методы, позволяющие реализовать визуализацию ультразвуковых полей и фронтов [1, 2]. В работе [3] теоретически исследована возможность установления однозначной связи между значением амплитуды локального акустического давления в жидкости и параметрами лазерного излучения, рассеянного на микрочастицах, находящихся в данной области. В работе [4] было показано, что, используя анализ спектра дифракции Рамана-Ната и последующее решение обратной задачи, можно реконструировать временной профиль акустического давления в ультразвуковой волне. Однако для профиля, искаженного за счет генерации высших гармоник и дифракционных эффектов при распространении в жидкости интенсивного ультразвукового пучка (т.е. для так называемого "нелинейного" профиля), решение обратной задачи не всегда имеет однозначный результат.

Особый интерес здесь представляет физика изменения свойств воды под статическим [5, 6], а также импульсным давлением (~ 4 МПа) в фокусе ультразвукового пучка [7] умеренной интенсивности. Было установлено, что вариация давления, проявляется в несимметричной деформации огибающей OH полосы комбинационного рассеяния (КР) из-за перестройки структуры водородо-связанных комплексов [8] в воде. Оставалось неясным, будет ли деформация огибающей OH полосы молекул воды однозначно обратимой и линейной при вариации давления до нескольких десятков мегапаскалей в фокусе УЗ пучка высокой интенсивности.

В настоящей работе впервые представлены экспериментальные результаты по лидарной [9] дистанционной диагностике "нелинейного" временного про-

1)e-mail: pershin@kapella.gpi.ru, brysev@ya.ru

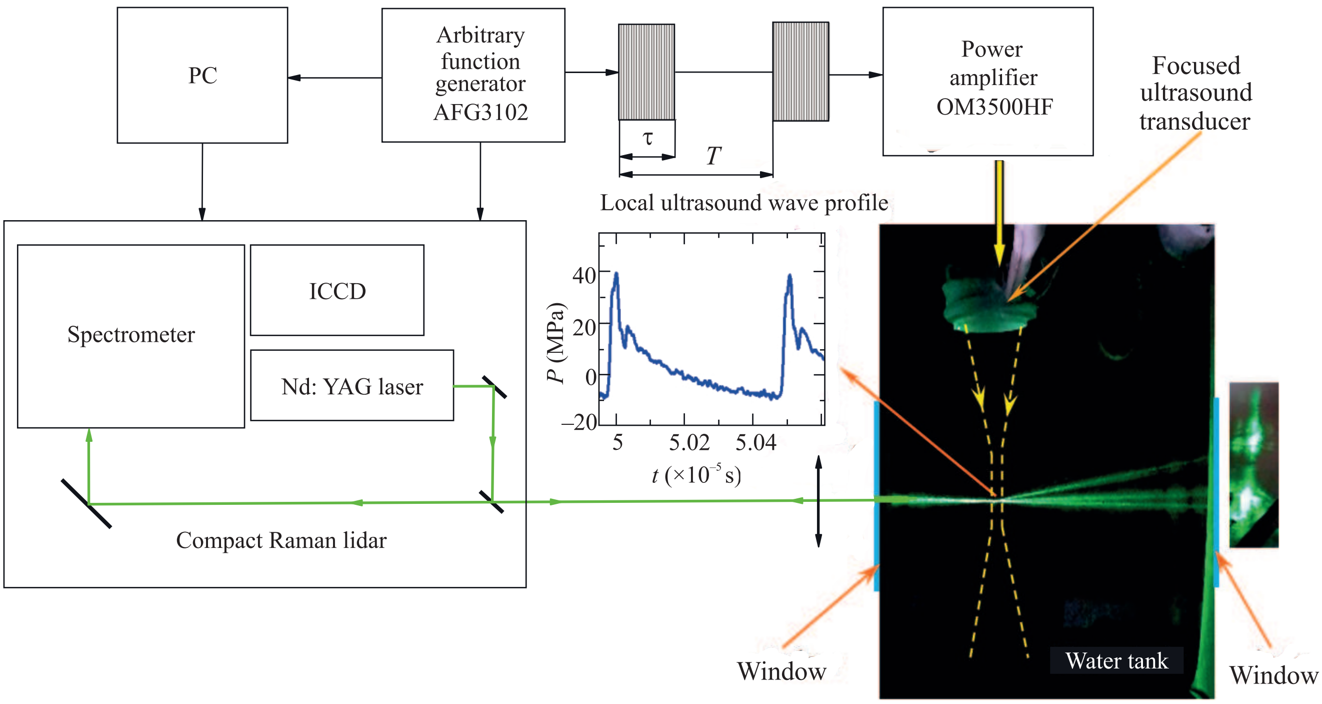

Рис. 1. (Цветной онлайн) Схема экспериментальной установки. Границы ультразвукового пучка условно показаны желтыми пунктирными линиями. Лазерный пучок условно показан сплошной зеленой линией. T – длительность одного цикла работы установки, τ – длительность ультразвукового импульса, PC – персональный компьютер, ICCD (intensified CCD) – ПЗС камера с усилителем яркости

филя интенсивного УЗ пучка в воде, обеспечивающего перепад акустического давления до 50 МПа. При этом в качестве измеряемого параметра используется величина сдвига гравитационного центра огибающей полосы валентных OH колебаний молекул воды в спектре КР. Ранее мы статистически обосновали [10], что сдвиг центра OH полосы КР является наиболее чувствительным параметром измерения деформации OH полосы воды по сравнению с другими методами анализа, например, деконволюции гауссовскими кривыми составных компонент [5]. Было показано [11], что физический смысл сдвига центра OH полосы КР в воде сопоставим с энтропией или параметром порядка. В акустическом пучке умеренной интенсивности ($\sim$4 МПа) [7] сдвиг в сторону низкочастотного крыла был обусловлен увеличением вклада низкочастотных OH-колебаний крупноразмерных кластеров в огибающую OH полосы КР. Отметим здесь отличительную особенность OH полосы воды, которая отсутствует в спектрах КР других жидкостей: плечо на низкочастотном крыле отражает вклад крупноразмерных водородо-связанных комплексов [8, 10]. Так, в отличие от давления [7], повышение температуры воды разрушает эти комплексы, уменьшает их вклад в огибающую и увеличивает сдвиг центра OH полосы в сторону высокочастотного крыла [9–11].

Экспериментальная установка и методика измерений. Схема экспериментальной установки представлена на рис. 1. Эксперименты проводились в водном бассейне сечением 145 × 120 мм и высотой 225 мм, имеющем прозрачные окна в боковых стенках для ввода-вывода лазерного излучения (на рис. 1 показана фотография бассейна, вид сверху). Сфокусированный ультразвуковой пучок излучался пьезоэлементом, имеющим форму сферического сегмента диаметром 28 мм. Его возбуждение осуществлялось радиоимпульсами с несущей частотой $F = 2.0$ МГц, периодом следования $T = 170$ мс и длительностью $\tau = 35$ мкс, синтезируемыми в генераторе Tektronix AFG 3102. Для излучения интенсивного ультразвукового пучка эти радиоимпульсы последовательно усиливали с помощью трех усилителей мощности, при этом в качестве оконечного усилителя использовали модель OM3500HF производства компании OM-POWER, имеющую выходную мощность до 3.5 кВт (на рис. 1 показан только оконечный усилитель). Параметры ультразвукового поля при указанных значениях возбуждения были предварительно измерены с помощью широкополосного (до 30 МГц) звукопрозрачного мембранного PVDF-гидрофона (GEC Marconi) с диаметром пьезоактивной зоны 0.5 мм, закрепленного на цифровой позиционирующей системе Welmex BiSlide.

Результаты этих измерений показали, что фокальная перетяжка ультразвукового пучка расположена в области 57–70 мм от излучателя, ее диаметр (по уровню 0.7) составляет 2.0 мм. Временной профиль акустического давления, показанный в центре рис. 1, зарегистрирован на оси сфокусированного ультразвукового пучка в области фокальной перетяжки в точке, отстоящей от излучателя на расстоянии 61 мм, в которой перепад акустического давления P_{p-p} максимален. Видно, что данный профиль претерпел сильную трансформацию своей начальной синусоидальной формы, обусловленную совместным действием нелинейных и дифракционных эффектов при распространении в воде интенсивного ультразвукового пучка. В частности, хорошо выражен ударный фронт, на котором акустическое давление за достаточно короткий (не превышающий 30 нс) промежуток времени меняется от фазы разрежения с минимумом давления, равным -10 МПа, до фазы сжатия с максимумом давления, равным $+40$ МПа. Таким образом, суммарный перепад акустического давления составляет $P_{p-p} = 50$ МПа.

Корректность диагностики локального временного профиля ультразвуковой волны в геометрии с взаимно-перпендикулярными лазерным и ультразвуковым пучками предполагает выполнение следующих двух условий. Во-первых, для хорошего разрешения по времени необходимо, чтобы длительность зондирующего лазерного импульса τ_{las} была много меньше периода ультразвуковой волны $T = 500$ нс. В данном случае это условие выполняется с большим запасом, так как $\tau_{\text{las}} = 10$ нс. Во-вторых, для пространственного разрешения необходимо, чтобы диаметр зондирующего лазерного пучка был много меньше длины ультразвуковой волны, равной 747 мкм. Это условие выполнялось с помощью фокусирующей линзы (рис. 1) с фокусным расстоянием 60 мм, которая обеспечивала каустику лазерного пучка с диаметром перетяжки, равным 80 мкм в фокальной зоне ультразвукового пучка. Отметим, что в этой области ультразвуковой пучок имеет плоский волновой фронт.

Для оптического зондирования сфокусированного ультразвукового пучка в воде использовали компактный лидар КР света, разработанный в НЦВИ ИОФ РАН [9]. Лидар собран на импульсном твердотельном лазере с диодной накачкой (Laser Compact DTL-319QT, $\lambda = 527$ нм, длительность импульса 10 нс, энергия в импульсе 200 мкДж, период повторения импульсов 170 мс задается генератором AFG 3102) и дифракционного спектрометра (SpectraPhysics MS127i, спектральный диапазон 500–750 нм, спектральное разрешение 0.1 нм), оборудованного охлаждаемой до температуры $-10\,^{\circ}$C ПЗС-камерой со стробируемым усилителем яркости (Andor iStar, минимальная длительность строба 5 нс, минимальный шаг изменения длительности строба 0.25 нс).

Распространение высокоинтенсивного ультразвукового пучка в воде сопровождается модуляцией ее показателя преломления в соответствии с пространственно-временным профилем давления ультразвукового поля, которое в данном случае характеризуется большими градиентами в области ударных фронтов. Лазерный пучок, диаметр которого много меньше длины ультразвуковой волны, падая под углом 90° на фокальную зону акустического пучка с большими градиентами показателя преломления, испытывает эффекты рефракции и рассеяния. Рассеянное назад излучение собиралось линзой и направлялось на входную щель спектрометра. Начальный момент излучения лазерного импульса, который задавали во втором канале генератора AFG3102, был равен времени задержки ($T(0)_{\text{delay}} = 41 + 9$ мкс), необходимой для того, чтобы ультразвуковой импульс достиг своей фокальной зоны и обеспечил установившийся режим модуляции давления. Далее задержку между импульсами ультразвука и лазера относительно ее начального значения последовательно увеличивали с шагом 50 нс. Для каждого значения времени задержки осуществляли регистрацию пяти спектров, каждый из которых получался накоплением по 50 лазерным импульсам, что в дальнейшем использовали при вычислении погрешности оптических измерений. Обработка и анализ зарегистрированных полос валентных O-H колебаний молекул воды состояли в аппроксимации их гауссовым профилем (см. рис. 2, линия) с последующим вычислением центра OH полосы в соответствии с процедурой, подробно описанной в [10]. Далее рассчитывали разброс значений в каждой точке измерений и строили зависимость положения центра OH полосы КР молекул воды от величины задержки между ультразвуковым и лазерным импульсами.

Полученную зависимость графически сопоставляли с локальным временным профилем ультразвукового пучка, непосредственно измеренным PVDF-гидрофоном в точке лазерного зондирования.

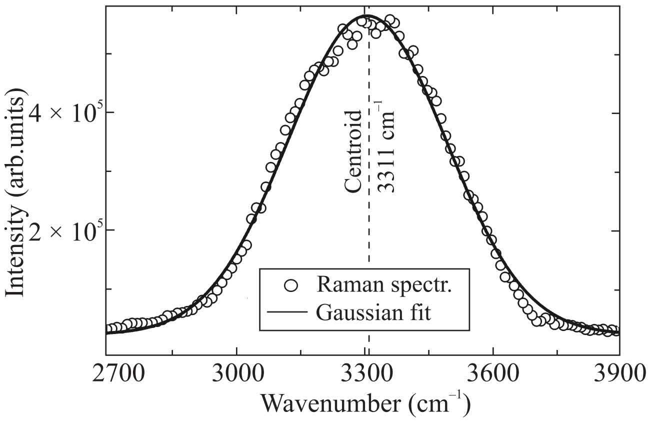

Рис. 2. Полоса OH валентных колебаний молекул воды в спектре комбинационного рассеяния света (точки) и ее аппроксимация гауссовой кривой (линия)

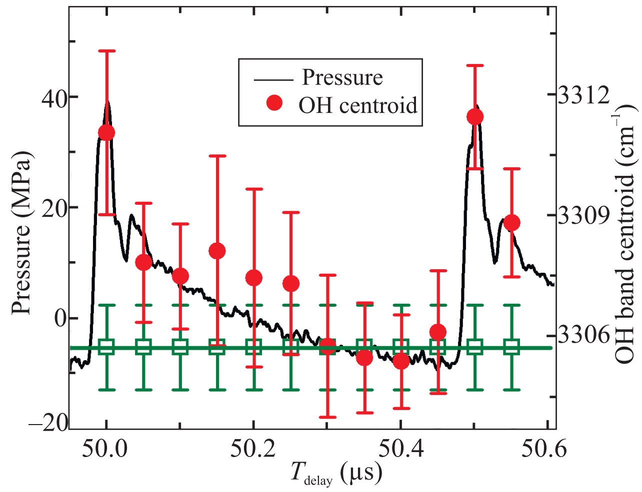

Рис. 3. (Цветной онлайн) Результаты лазерного зондирования (шкала справа): красные кружки – центр OH-полосы КР в зависимости от задержки между импульсами лазера и ультразвука, зеленые квадраты – центр OH полосы КР в отсутствии ультразвука. По левой шкале: черная сплошная линия – волновой профиль, непосредственно зарегистрированный в фокусе ультразвукового пучка PVDF-гидрофоном в точке лазерного зондирования

Следует отметить, что в этой серии экспериментов увеличение числа точек в оптических данных было ограничено сравнительно небольшим промежутком времени, в течение которого температуру воды можно было считать неизменной. При его превышении становился существенным дрейф фазы частотного наполнения ультразвукового импульса в точке измерений, вызванный изменением температуры воды, что нарушало корректность используемой методики измерений.

Результаты и их обсуждение. Для демонстрации результатов дистанционного лазерного зондирования локального профиля ультразвукового пучка был выбран временной промежуток, несколько превышающий один период профиля (см. график на рис. 1). На рисунке 3 представлены результаты измерений положения центра OH полосы КР молекул воды (круги) в зависимости от величины задержки T_{delay}, на которые для большей наглядности сопоставления полученных результатов наложена часть временного профиля ультразвукового пучка, представленная на рис. 1 и непосредственно зарегистрированная PVDF-гидрофоном в точке лазерного зондирования. На рисунке 3 также показано положение центра OH полосы КР воды в отсутствие ультразвука (квадраты). Рисунок 3 демонстрирует, что в пределах погрешности измерений временная последовательность вызванных ультразвуком смещений центра OH полосы КР молекул воды, воспроизводит временной профиль: фронт и спад, полученный в той же точке с помощью PVDF-гидрофона. Результаты, представленные на рис. 3, дают оценку перестройки структурных комплексов воды по сдвигу центра OH полосы КР в воде с порогом обнаружения перепада давления ~ 20 МПа. Полученная зависимость делает возможной диагностику временного профиля более высокого значения акустического давления в фокусе пучка при отсутствии гидрофона. Из рисунка 3 следует, что для уменьшения разброса значений центра надо увеличить число измерений в серии, частоту следования импульсов лазера и уменьшить шаг задержки импульсом накачки (акустическим импульсом) и зондирования (импульс лазера), что будет учтено в последующих работах расширенного формата. При этом задержка (50 нс) между этими импульсами позволяет сделать оценку сверху о длительности фронта сжатия – менее 50 нс.

Существенно заметить, что перестройка структуры комплексов в воде (деформации огибающей OH полосы молекул воды) остается однозначно обратимой и линейной, как на фронте сжатия импульса (~ 30 нс), так и в фазе растяжения (~ 500 нс). Обнаруженная способность воды восстанавливать упругие свойства при периодической динамической нагрузке давлением в локальном объеме дает основание для использования предложенного подхода для измерения временных профилей при более высоких значениях акустического давления вплоть до критических величин, соответствующих кавитационному разрыву в воде, когда существует реальная опасность повреждения гидрофона перепадом давления на дарном фронте.

Заметим, что значения вариации давления ~ 50 МПа превышают те, что используются для гипертермической ультразвуковой деструкции раковых опухолей [12] и уже одного порядка с теми, что имеют место в современных промышленных литотриптерах, с помощью которых успешно дробят камни в организме человека [13].

Заключение. Впервые с помощью спектроскопии КР света выполнена репродукция временного профиля акустического давления в фокусе высокоинтенсивного сфокусированного ультразвукового пучка в воде с перепадом давления ~ 50 МПа на ударном фронте. Параметром, позволившим воспроизвести временной профиль давления ультразвуковой волны в данной схеме, является смещение гравитационного центра ОН-полосы КР молекул воды, обусловленное увеличением вклада низкочастотного крыла в деформацию огибающей полосы, вызванную ультразвуком. Полученные результаты могут служить основой нового метода дистанционной диагностики временного профиля акустического давления и мониторинга локальных динамических процессов сжатия-растяжения в воде при высоких (более 20 МПа) значениях вплоть до критического состояния – кавитационного разрыва, когда использование гидрофона может привести к его разрушению. Отдельный или самостоятельный интерес здесь остается к вариациям свойств воды от упругой деформации к нелинейной зависимости при приближении к критической точке разрыва сплошности, а также в окрестности точки особой температуры воды [14].

Авторы выражают благодарность Л. М. Крутянскому за полезные консультации и обсуждения. Работа выполнена при частичной финансовой поддержке гранта Российского научного фонда # 19-19-00712, а также при поддержке Международной Ассоциированной Лаборатории критических и сверхкритических явлений в функциональной электронике, акустике и флюидике (LIA LICS).

1. А. П. Брысев, Л. М. Крутянский, В. Л. Преображенский, УФН **168**(8), 877 (1998).
2. В. А. Шутилов, Акустический журнал **5**(2), 231 (1959).
3. И. Л. Расковская, Письма в ЖЭТФ **106**(2), 119 (2017).
4. A. P. Brysev, F. V. Bunkin, M. F. Hamilton, L. M. Krutyanskii, K. B. Cunningham, V. L. Preobrazhenskii, Yu. V. Pyl'nov, A. D. Stakhovskii, and S. J. Younghouse, Acoust. Phys. **44**(6), 641 (1998).
5. T. Kawamoto, S. Ochiai, and H. Kagi, J. Chem. Phys. **120**(13), 5867 (2004).
6. A. F. Bunkin, V. K. Klinkov, V. Lukianchenko, and S. M. Pershin, Phys. of Wave Phenomena **12**(4), 180 (2004).
7. A. P. Brysev, A. F. Bunkin, R. V. Klopotov, L. M. Krutyansky, A. A. Nurmatov, and S. M. Pershin, Optics and Spectroscopy **93**(2), 282 (2002).
8. Н. Д. Соколов, *Водородная связь*, под ред. Н. Д. Соколова, Наука, М. (1981), с. 63.
9. A. F. Bunkin, V. K. Klinkov, V. N. Lednev, D. L. Lushnikov, A. V. Marchenko, E. G. Morozov, S. M. Pershin, and R. N. Yulmetov, Appl. Opt. **51**(22), 5477 (2012).
10. V. N. Lednev, M. Ya. Grishin, S. M. Pershin, and A. F. Bunkin, Opt. Lett. **41**(20), 4625 (2016).
11. S. M. Pershin and A. F. Bunkin, Bulletin of the Russian Academy of Sciences. Physics/Supplement Physics of Vibrations **7**(4), 217 (1999).
12. D. R. Mittelstein, J. Ye, E. F. Schibber, A. Roychoudhury, L. T. Martinez, M. H. Fekrazad, M. Ortiz, P. P. Lee, M. G. Shapiro, and M. Gharib, Appl. Phys. Lett. **116**, 013701 (2020); doi: 10.1063/1.5128627.
13. A. D. Maxwell, B. W. Cunitz, W. Kreider, O. A. Sapozhnikov, R. S. Hsi, J. D. Harper, M. R. Bailey, and M. D. Sorensen, J. Urol. **193**, 338 (2015); doi.org/10.1016/j.juro.2014.08.009.
14. S. M. Pershin, L. M. Krutyansky, and V. A. Luk'yanchenko, JETP Lett. **94**(2), 121 (2011); doi: 10.1134/S0021364011140116.