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

С. М. Першин¹⁾, А. П. Брысев¹⁾, 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 О-Н 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 ОН полосы комбинационного рассеяния (КР) из-за перестройки структуры водородо-связанных комплексов [8] в воде. Оставалось неясным, будет ли деформация огибающей ОН 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. *Т* – 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 ОН колебаний молекул воды в спектре КР. Ранее мы статистически обосновали [10], что сдвиг центра ОН полосы КР является наиболее чувствительным параметром измерения деформации ОН полосы воды по сравнению с другими методами анализа, например, деконволюции гауссовскими кривыми составных компонент [5]. Было показано [11], что физический смысл сдвига центра ОН полосы КР в воде сопоставим с энтропией или параметром порядка. В акустическом пучке умеренной интенсивности ($\sim 4 \,\mathrm{M\Pi a}$) [7] сдвиг в сторону низкочастотного крыла был обусловлен увеличением вклада низкочастотных ОН-колебаний крупноразмерных кластеров в огибающую ОН полосы КР. Отметим здесь отличительную особенность ОН 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 цен-

3 Письма в ЖЭТФ том 111 вып. 7–8 2020

тра ОН 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 $F = 2.0 \,\mathrm{MGm}$, периодом следования $T = 170 \,\mathrm{mc}$ и длительностью $\tau = 35\,\mathrm{мкc},$ 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 $P_{p-p} = 50 \text{ MII}a.$

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 $\tau_{las} = 10$ 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 °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 vльтразвукового 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 $(T(0)_{delay} = 41 + 9 \text{ мкс})$, 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 О-Н колебаний молекул воды состояли в аппроксимации их гауссовым профилем (см. рис. 2, линия) с последующим вычислением центра ОН полосы в соответствии с процедурой, подробно описанной в [10]. Далее рассчитывали разброс значений в каждой точке измерений и строили зависимость положения центра ОН полосы КР молекул воды от величины задержки между ультразвуковым и лазерным импульсами.

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



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

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 ОН 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 ОН полосы КР воды в отсутствие ультразвука (квадраты). Рисунок 3 демонстрирует, что в пределах погрешности измерений временная последовательность вызванных ультразвуком смещений центра ОН 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 ОН полосы КР в воде с порогом обнаружения перепада давления ~ 20 МПа. Полученная зависимость



Рис. 3. (Цветной онлайн) Результаты лазерного зондирования (шкала справа): красные кружки – центр ОНполосы КР в зависимости от задержки между импульсами лазера и ультразвука, зеленые квадраты – центр ОН 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

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 ОН 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 $\sim 50 \,\mathrm{MHa}$ 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).

- А.П. Брысев, Л.М. Крутянский, В.Л. Преображенский, УФН 168(8), 877 (1998).
- В. А. Шутилов, Акустический журнал 5(2), 231 (1959).
- И. Л. Расковская, Письма в ЖЭТФ 106(2), 119 (2017).
- 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).
- T. Kawamoto, S. Ochiai, and H. Kagi, J. Chem. Phys. 120(13), 5867 (2004).
- A.F. Bunkin, V.K. Klinkov, V. Lukianchenko, and S.M. Pershin, Phys. of Wave Phenomena 12(4), 180 (2004).
- 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).
- Н. Д. Соколов, Водородная связь, под ред. Н. Д. Соколова, Наука, М. (1981), с. 63.
- 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).
- V. N. Lednev, M. Ya. Grishin, S. M. Pershin, and A. F. Bunkin, Opt. Lett. 41(20), 4625 (2016).
- S. M. Pershin and A. F. Bunkin, Bulletin of the Russian Academy of Sciences. Physics/Supplement Physics of Vibrations 7(4), 217 (1999).
- 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.
- 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.
- S. M. Pershin, L. M. Krutyansky, and V. A. Luk'yanchenko, JETP Lett. 94(2), 121 (2011); doi: 10.1134/S0021364011140116.