

С.Є. ЗЕЛЕНСЬКИЙ, О.С. КОЛЕСНИК

Київський національний університет імені Тараса Шевченка
(Вул. Володимирська, 64/13, Київ 01601; e-mail: Zelensky@knu.ua)

ВПЛИВ ТРИВАЛОСТІ ЛАЗЕРНОГО ІМПУЛЬСУ НА КІНЕТИКУ ІНДУКОВАНОГО ЛАЗЕРОМ ТЕПЛООВОГО ВИПРОМІНЮВАННЯ ПОРУВАТИХ ВУГЛЕЦЕВИХ МАТЕРІАЛІВ

УДК 535.233, 536.331

Досліджено форму імпульсних сигналів індукованого лазером теплового випромінювання поруватого вуглецевого матеріалу при варіюванні тривалості імпульсів лазерного збудження від 20 до 40 нс. Виявлено, що амплітуда і тривалість імпульсів теплового випромінювання суттєво залежать від тривалості лазерних імпульсів. Зокрема, зареєстровано збільшення тривалості імпульсів свічення з 70 до 200 нс, що зумовлено змінами розподілу температури в залежності від глибини у поверхневому шарі опромінюваного матеріалу. Проведено комп'ютерне моделювання процесів імпульсного лазерного нагрівання і формування сигналів теплового випромінювання. Результати моделювання показали задовільне узгодження з результатами вимірювань.

Ключові слова: індуковане лазером теплове випромінювання, кінетика, поруватий вуглець.

1. Вступ

При лазерному опроміненні світлопоглинальних матеріалів локальне зростання температури в області поглинання лазерного випромінювання може призводити до помітних змін картини теплового випромінювання опромінюваного об'єкта, що лежить в основі різноманітних лазерних технологій [1–10]. Використання потужних лазерних імпульсів наносекундної тривалості дає можливість отримати індуковане лазером теплове випромінювання у видимому світлі, і ця обставина суттєво розширює можливості для експериментальних досліджень та застосувань. У теплових лазерних те-

хнологіях важливим інструментом є аналіз кінетики наростання та загасання індукованого лазером теплового випромінювання (ІЛТВ), оскільки форма імпульсу індукованого лазером свічення несе важливу інформацію про процеси у досліджуваному об'єкті [11–15].

Дана робота є продовженням циклу робіт [16–20], присвячених дослідженню кінетики ІЛТВ поверхневих шарів вуглецевих матеріалів. У попередніх дослідженнях з'ясовано, що загасання ІЛТВ у цих матеріалах досить складне. Зокрема, у загасанні свічення можна виділити принаймні дві компоненти з характерним часом порядку 10^{-8} с та 10^{-7} с. Кінетика загасання свічення залежить не тільки від властивостей досліджуваного матеріалу, а і від багатьох інших факторів, зокрема: (i) від інтенсивності лазерного збудження; (ii) від попередньої історії лазерного опромінення поверхні; (iii) від довжини хвилі реєстрації ІЛТВ; (iv) від довжини хвилі лазерного збудження; (v) від шорсткості поверхні; (vi) від наявності оточуючого повітря. У

Цитування: Зеленський С.Є., Колесник О.С. Вплив тривалості лазерного імпульсу на кінетику індукованого лазером теплового випромінювання поруватих вуглецевих матеріалів. *Укр. фіз. журн.* **70**, № 5, 299 (2025).

© Видавець ВД “Академперіодика” НАН України, 2025. Стаття опублікована за умовами відкритого доступу за ліцензією CC BY-NC-ND (<https://creativecommons.org/licenses/by-nc-nd/4.0/>).

ISSN 2071-0194. Укр. фіз. журн. 2025. Т. 70, № 5

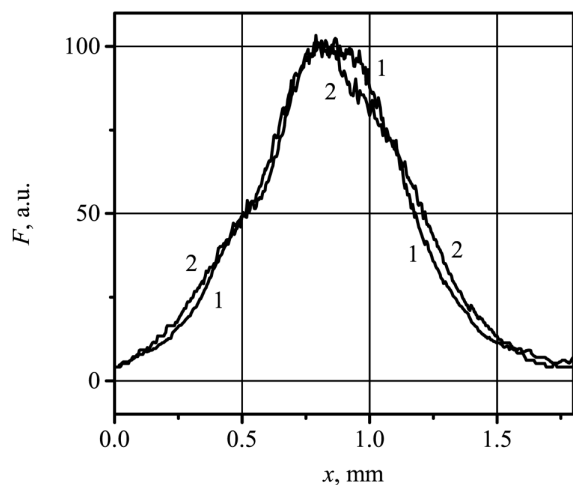


Рис. 1. Залежність інтенсивності лазерного випромінювання від координати поперек пучка у випадку $\tau_i = 20$ нс (крива 1) та 40 нс (крива 2)

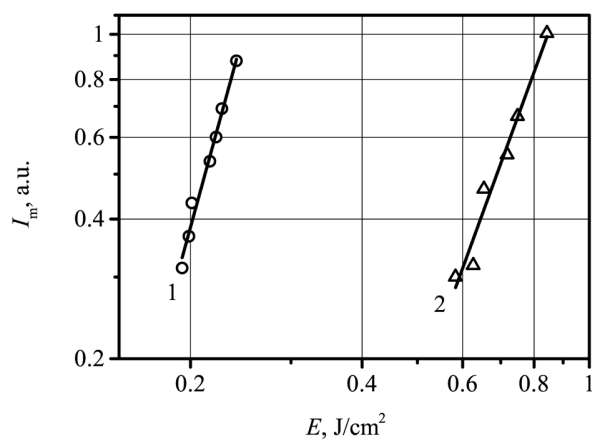


Рис. 2. Амплітуда I_m імпульсів ІЛТВ як функція поверхневої густини енергії E імпульсів лазерного збудження з $\tau_i = 20$ (крива 1) та 40 нс (крива 2)

даній роботі досліджується ще один фактор, що впливає на кінетику ІЛТВ вуглецевих матеріалів – це тривалість імпульсу лазерного збудження. Експерименти показують, що при збільшенні тривалості лазерного імпульсу з 20 до 40 нс тривалість імпульсу ІЛТВ збільшується у декілька разів (наприклад, з 70 до 200 нс для зразків поруватого вуглецю).

2. Методика

Для збудження ІЛТВ використовувався YAG:Nd лазер з електрооптичною модуляцією добротності.

Для варіювання тривалості імпульсів лазерної генерації здійснювалась зміна фронту імпульсного електричного сигналу, який відкривав електрооптичний затвор. Таким методом було отримано лазерну генерацію з керованою тривалістю імпульсу τ_i від 18 до 40 нс без зміни геометрії лазерного резонатора. Типові розподіли інтенсивності лазерного випромінювання F поперек пучка наведено на рис. 1 для двох значень тривалості імпульсів 20 та 40 нс. Як видно з рис. 1, в обох режимах роботи лазерні пучки мають приблизно однакові поперечні розподіли інтенсивності, що суттєво полегшує порівняння результатів вимірювань при різних значеннях τ_i .

У даній роботі методика вимірювань сигналів ІЛТВ аналогічна методиці, застосованій в роботах [18, 19]. Вимірювання проводились у спектральному інтервалі 560 ± 20 нм.

Для демонстрації ефекту впливу тривалості імпульсів лазерного збудження на кінетику ІЛТВ вибрано поруватий вуглецевий матеріал – фармацевтичне активоване вугілля. У попередніх роботах [18, 19] для цього матеріалу розроблено комп'ютерну модель, яка дозволяє розрахувати форму імпульсу свічення при імпульсному лазерному збудженні. У розрахунках використовується класичне рівняння теплопровідності з просторово-неоднорідним джерелом тепла, утвореним у поверхневому шарі матеріалу за рахунок поглинання лазерного випромінювання. У результаті розраховується змінний у часі розподіл температури, що дає можливість розрахувати світимість поверхні як функцію часу з використанням формули Планка для теплового випромінювання чорного тіла. У розрахунках береться до уваги температурна залежність коефіцієнта теплопровідності та питомої теплоємності опромінюваного матеріалу та оточуючого повітря, як описано у [18, 19].

3. Результати та їх обговорення

На рис. 2 у подвійному логарифмічному масштабі наведено залежність амплітуди I_m імпульсів ІЛТВ від поверхневої густини енергії лазерного збудження E з тривалістю імпульсу $\tau_i = 20$ та 40 нс. Наведені на рис. 2 результати були отримані на одній і тій же ділянці поверхні зразка при фіксованому розташуванні фотоприймача і лазерного пучка і фіксованій напрузі живлення фотоприйма-

ча. За таких умов експерименту можна вважати, що осцилограми з однаковою амплітудою відповідають приблизно однаковій максимальній температурі поверхні T_m , яка досягається у момент максимуму імпульсу свічення.

Як видно з рис. 2, в обох випадках $\tau_1 = 20$ та 40 нс, залежність I_m від E сильно нелінійна, що є характерним для такого типу вторинного випромінювання при імпульсному лазерному збудженні. Як запропоновано в [21, 22], для характеристики ступеня нелінійності ІЛТВ зручно скористатись безрозмірним параметром $\gamma = (dI_m/I_m) / (dE/E)$, який легко розрахувати як нахил графіку $I_m(E)$ у подвійному логарифмічному масштабі.

З рис. 2 випливає $\gamma \approx 4,5$ для $\tau_1 = 20$ нс та $\gamma \approx 3,5$ для $\tau_1 = 40$ нс. Отримані на експерименті значення γ є типовими для ІЛТВ вуглецевих матеріалів [23], а близькість значень γ для $\tau_1 = 20$ та 40 нс свідчить на користь висловленого вище твердження про близькість T_m для осцилограм з однаковими амплітудами I_m .

На рис. 2 особливо звертає на себе увагу факт значного зміщення кривої 2 по відношенню до кривої 1. Зокрема, як випливає з рис. 2, щоб отримати імпульс ІЛТВ при $\tau_1 = 40$ нс такої ж амплітуди, як при $\tau_1 = 20$ нс, доводиться суттєво збільшувати густину енергії E . Зазначена обставина свідчить про те, що на максимальну температуру поверхні значною мірою впливають процеси переносу тепла від поверхні вглибину зразка за час дії лазерного імпульсу.

Слід також звернути увагу на таку обставину. Відомо, що аерозольні частинки сажі при лазерному опроміненні з густиною енергії 0,2–0,5 Дж/см² досягають температури сублімації вуглецю (близько 4000 К) [9], що є важливою умовою для практичних застосувань. З іншого боку, як видно з рис. 2, у даній роботі експерименти були проведені при досить високих значеннях густини енергії лазерного збудження (до 0,8 Дж/см²), хоча пірометричні оцінки температури поверхневого шару у цих експериментах не перевищували 3300 К. Ця обставина додатково вказує на те, що за час дії лазерного імпульсу значна частина енергії лазерного збудження покидає поверхневий шар внаслідок процесів теплопереносу.

На рис. 3 наведено типові осцилограми імпульсів ІЛТВ при збудженні $\tau_1 = 20$ та 40 нс. На рис. 3 наведені осцилограми з однаковою амплі-

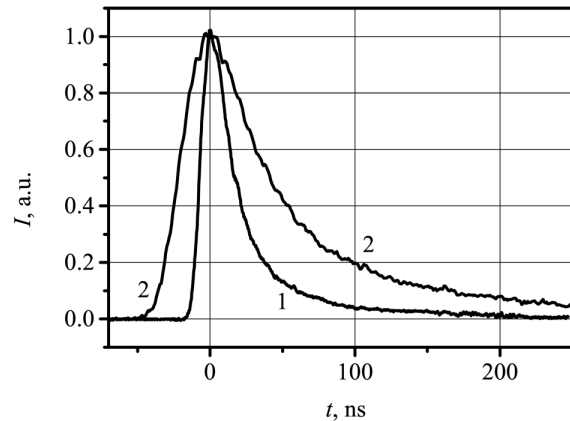


Рис. 3. Осцилограми імпульсів ІЛТВ при $\tau_1 = 20$ нс (крива 1) та 40 нс (крива 2)

тудою I_m , отримані при різних значеннях густини енергії E (відповідно до рис. 2). Осцилограми, наведені на рис. 3, зсунуті по горизонталі до збігу їх максимумів.

З рис. 3 видно, що збільшення тривалості імпульсу лазерного збудження з 20 до 40 нс призводить до суттєвого збільшення тривалості переднього фронту імпульсу ІЛТВ. Якщо при $\tau_1 = 20$ нс тривалість переднього фронту становить близько 10 нс, то при $\tau_1 = 40$ нс ця величина збільшується до 25 нс. У обох цих випадках тривалість переднього фронту становить порядку половини тривалості відповідного імпульсу лазерного збудження. Цей результат у межах точності вимірювань відповідає результатам комп'ютерного моделювання, які передбачають тривалість переднього фронту імпульсу ІЛТВ близько 9,5 нс при $\tau_1 = 20$ нс та 17 нс при $\tau_1 = 40$ нс. Слід також відзначити, за результатами розрахунків, максимум імпульсу свічення досягається із запізненням на 16 та 29 нс від максимуму лазерного імпульсу для $\tau_1 = 20$ та 40 нс відповідно.

Як видно з рис. 3, збільшення тривалості імпульсу лазерного збудження з 20 до 40 нс призводить до значного видовження заднього фронту імпульсу ІЛТВ. Зважаючи на те, що у загасанні свічення ІЛТВ спостерігається довготривала компонента, для подальшого порівняння результатів експериментів і результатів розрахунків доцільно запровадити параметр τ_{01} як тривалість імпульсу ІЛТВ на рівні 0,1 від його максимального значення.

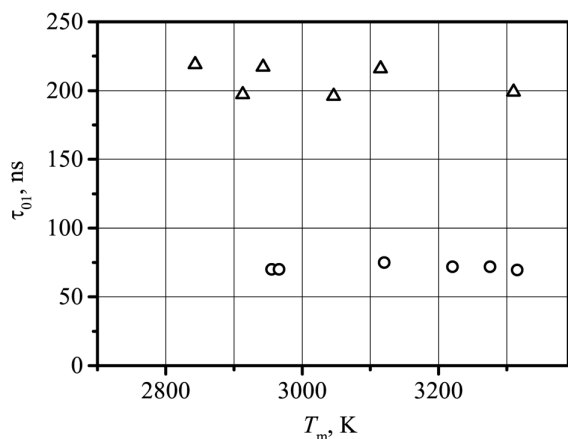


Рис. 4. Тривалість τ_{01} імпульсів ІЛТВ при $\tau_1 = 20$ нс (кружечки) та 40 нс (трикутники) як функція максимальної температури поверхні T_m

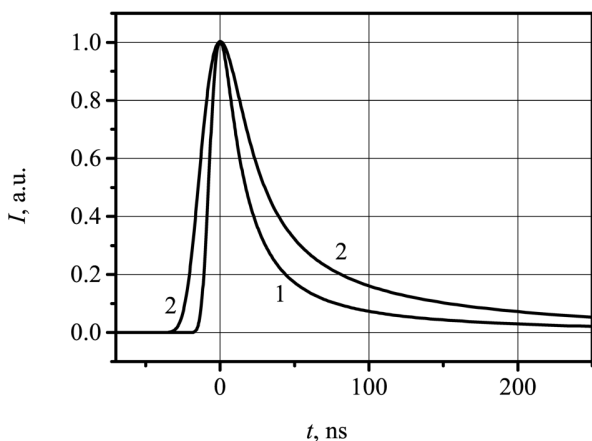


Рис. 5. Розраховані осцилограми ІЛТВ вуглецевого матеріалу з циліндричними елементами шорсткої з висотою $h = 0,5$ мкм для $\tau_1 = 20$ та 40 нс (криві 1 та 2 відповідно)

Результати вимірювань та розрахунків тривалості імпульсу теплового випромінювання τ_{01} на довжині хвилі 560 нм

τ_{01} , нс	$\tau_1 = 20$ нс	$\tau_1 = 40$ нс
Експеримент	70	200
Розрахунок, $h = 0,4$ мкм	129	233
Розрахунок, $h = 0,5$ мкм	90	177
Розрахунок, $h = 0,6$ мкм	79	135

Результати вимірювань τ_{01} наведені на рис. 4. По горизонталі на рис. 4 відкладено пірометричну оцінку максимальної температури поверхні T_m .

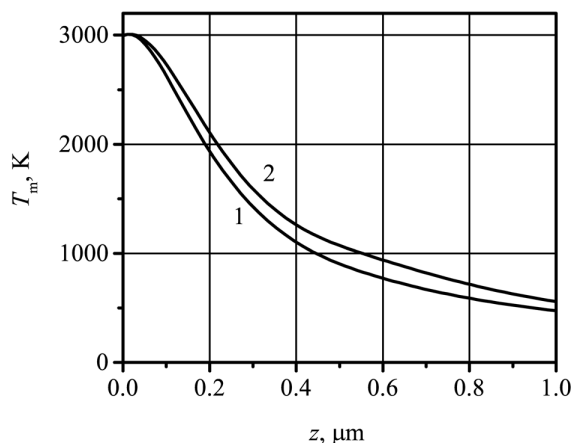


Рис. 6. Розрахована максимальна температура T_m як функція глибини z для $\tau_1 = 20$ та 40 нс (криві 1 та 2 відповідно) для $h = 0,5$ мкм

Температуру розраховано з використанням формули Планка для випромінювання чорного тіла за результатами вимірювань амплітуд імпульсів ІЛТВ на двох довжинах хвиль 560 та 430 нм.

Як видно з рис. 4, тривалість імпульсу ІЛТВ τ_{01} суттєво залежить від тривалості імпульсу лазерного збудження τ_1 . Зокрема, при дворазовому збільшенні τ_1 величина τ_{01} зростає з 70 до 200 нс. Таке збільшення τ_{01} не може бути пояснене збільшенням тривалості переднього фронту і потребує окремого аналізу.

Для з'ясування причин зазначеного вище значного збільшення тривалості імпульсів ІЛТВ τ_{01} при збільшенні τ_1 розглянемо наведені нижче результати комп'ютерного моделювання процесів лазерного розігрівання поверхневих шарів світлопоглинальних матеріалів.

У попередніх роботах [17, 18] відмічалось, що шорсткі поверхні при імпульсному лазерному опроміненні нагріваються нерівномірно, внаслідок чого шорсткість поверхні може помітно впливати на характеристики імпульсів теплового випромінювання. Зважаючи на цю обставину, видається доцільним провести комп'ютерне моделювання формування імпульсів ІЛТВ шорсткими поверхнями з варіюванням тривалості лазерних імпульсів. Для розрахунків може бути використаний підхід, описаний у [18]. Зокрема, шорстку поверхню можна представити рівномірно розподіленими циліндричними висгупами висотою h . Для розрахунків можна використати елемент поверх-

ні з одним виступом. У даній роботі у розрахунках діаметр виступу було покладено рівним його висоті. Площа поверхні навколо виступу дорівнювала площі верхівки виступу. Змінний параметр h вибирали порядку глибини проникнення лазерного випромінювання в опромінюваний матеріал. У розрахунках підбиралась середня інтенсивність лазерного випромінювання до досягнення максимальної температури $T_m = 3000$ К на верхівці виступу.

Результати розрахунків для шорсткої поверхні з $h = 0,5$ мкм наведено на рис. 5 та у таблиці. Як видно з таблиці та з рис. 3 та 5, результати розрахунків відповідають результатам експериментів.

Таким чином, комп'ютерна модель, розроблена у попередніх роботах, виявилась придатною для розрахунків параметрів імпульсів ЛЛТВ при варіюванні тривалості лазерних імпульсів від $\tau_1 = 20$ до 40 нс. Залишається питання щодо причин спостережуваного значного видовження тривалості імпульсів свічення.

У попередніх роботах [16, 17] було помічено, що у згасанні ЛЛТВ різних вуглецевих матеріалів спостерігається відносно довготривала компонента з часом загасання порядку 10^{-7} с. Присутність цієї компоненти загасання свічення у [16, 17] пов'язувалась з тією обставиною, що у досліджених матеріалах глибина проникнення лазерного випромінювання суттєво перевищує довжину теплової дифузії за час порядку тривалості лазерного імпульсу. Тому в кінці нагрівального лазерного імпульсу в поверхневому шарі матеріалу формується витягнутий розподіл температури з глибиною, отже спостерігається повільна складова загасання випромінювання.

Зважаючи на зазначене вище, видається доцільним проаналізувати поведінку розподілу температури всередині опромінюваного зразка при змінах тривалості імпульсів лазерного збудження. Результати відповідних розрахунків наведені на рис. 6 для $h = 0,5$ мкм. Координата z відраховується від верхівки виступу на поверхні. Розподіли температур, наведені на рис. 6, відповідають моментам часу, коли температура на верхівці виступу досягає свого максимуму, що наближено відповідає моментам максимумів імпульсів свічення. Слід зазначити, що наведені на рис. 6 розподіли температури є початковими для процесів релаксації температури і відповідного загасання свічення.

Як видно з рис. 6, при збільшенні τ_1 від 20 нс до 40 нс відбувається суттєве розширення розподілу $T(z)$. Як наслідок, відбувається збільшення тривалості загасання свічення і, відповідно, збільшення τ_{01} .

4. Висновки

Підводячи підсумок, варто додатково підкреслити такі обставини. Отримані у роботі експериментальні і розрахункові результати свідчать про суттєву залежність характеристик імпульсів ЛЛТВ поруватих вуглецевих матеріалів від тривалості імпульсів лазерного збудження. Зокрема, варто звернути увагу на виявлену на експерименті чутливість амплітуди імпульсів ЛЛТВ до варіацій тривалості лазерних імпульсів. Крім того, важливою обставиною є значне видовження імпульсів свічення, які відповідають однаковій максимальній температурі поверхні, але збуджені лазерними імпульсами різної тривалості. Зазначені особливості ЛЛТВ узгоджуються з існуючими модельними уявленнями і додають додаткових рис до суцільної картини цього непростого типу індукованого лазером випромінювання.

Робота виконана за підтримки Міністерства освіти і науки України відповідно до Договору № БФ/30-2021 від 04 серпня 2021 року.

1. L. Hou, F. Yin, S. Wang, J. Sun, H. Yin. A review of thermal effects and substrate damage control in laser cleaning. *Optics and Laser Technology* **174**, 110613 (2024).
2. N.Y. Galan-Freyre, L.C. Pacheco-Londono, A. Figueroa-Navedo, S.P. Hernandez-Rivera. Standoff laser-induced thermal emission of explosives. *Proc. SPIE* **8705**, 870508 (2013).
3. A. Tsuge, Y. Uwamino, T. Ishizuka. Applications of laser-induced thermal emission spectroscopy to various samples. *Appl. Spectrosc.* **43**, 1145 (1989).
4. A. Mandelis. Laser infrared photothermal radiometry of semiconductors: Principles and applications to solid state electronics. *Solid-State Electron.* **42**, 1 (1998).
5. S. Pham Tu Quoc, G. Cheymol, A. Semerok. New contactless method for thermal diffusivity measurements using modulated photothermal radiometry. *Rev. Sci. Instrum.* **85**, 054903 (2014).
6. G.N. Pearson, M. Harris, D.V. Willetts, P.R. Tapster, P.J. Roberts. Differential laser absorption and thermal emission for remote identification of opaque surface coatings. *Appl. Opt.* 1997 **36**, 2713 (1997).
7. Z.H. Lim, A. Lee, Y. Zhu, K.-Y. Lim, C.-H. Sow. Sustained laser induced incandescence in carbon nanotubes for

- rapid localized heating. *Appl. Phys. Lett.* **94**, 073106 (2009).
8. C.I.S. Filho, A.L. Oliveira, S.C.F. Pereira, G.F. de Sa, L.L. da Luz, S. Alves. Bright thermal (blackbody) emission of visible light from LnO_2 ($\text{Ln} = \text{Pr}, \text{Tb}$), photoinduced by a NIR 980 nm laser. *Dalton Trans.* **48**, 2574 (2019).
 9. C. Schulz, B.F. Kock, M. Hofmann, H. Michelsen, S. Will, B. Bougie, R. Suntz, G. Smallwood. Laser-induced incandescence: Recent trends and current questions. *Appl. Phys. B* **83**, 333 (2006).
 10. W. Streck, R. Tomala, M. Lukaszewicz, B. Cichy, Y. Gerasymchuk, P. Gluchowski, L. Marciniak, A. Bednarkiewicz, D. Hreniak. Laser induced white lighting of graphene foam. *Sci. Rep.* **7**, 41281 (2017).
 11. P.O. Witze, S. Hochgreb, D. Kayes, H.A. Michelsen, C.R. Shaddix. Time-resolved laser-induced incandescence and laser elastic-scattering measurements in a propane diffusion flame. *Appl. Opt.* **40**, 2443 (2001).
 12. M. Ditaranto, C. Meraner, N.E.L. Haugen, I. Saanum. Influence of long pulse duration on time-resolved laser-induced incandescence. *Appl. Phys. B* **112**, 359 (2013).
 13. X. Xu, C.P. Grigoropoulos, R.E. Russo. Nanosecond-time-resolution thermal emission measurement during pulsed excimer-laser interaction with materials. *Appl. Phys. A* **62**, 51 (1996).
 14. H.A. Michelsen. Understanding and predicting the temporal response of laser-induced incandescence from carbonaceous particles. *J. Chem. Phys.* **118**, 7012 (2003).
 15. L. Landstrom, K. Elihn, M. Boman, C.G. Granqvist, P. Heszler. Analysis of thermal radiation from laser-heated nanoparticles formed by laser-induced decomposition of ferrocene. *Appl. Phys. A* **81**, 827 (2005).
 16. S.E. Zelensky, T. Aoki. Decay kinetics of thermal radiation emitted by surface layers of carbon materials under pulsed laser excitation. *Opt. and Spectr.* **127**, 931 (2019).
 17. V. Karpovych, O. Tkach, K. Zelenska, S. Zelensky, T. Aoki. Laser-induced thermal emission of rough carbon surfaces. *J. Laser Appl.* **32**, 012010 (2020).
 18. S.E. Zelensky, O.S. Kolesnik, V.P. Yashchuk. The role of air in laser-induced thermal emission of surface layers of porous carbon materials. *Ukr. J. Phys.* **68**, 652 (2023).
 19. S.E. Zelensky, O.S. Kolesnik, V.P. Yashchuk. Kinetics of laser-induced thermal emission of porous carbon materials: Dependence on laser wavelength. *Ukr. J. Phys.* **69**, 143 (2024).
 20. V. Karpovych, K. Zelenska, S. Yablochkov, S. Zelensky, T. Aoki. Evolution of laser-induced incandescence of porous carbon materials under irradiation by a sequence of laser pulses. *Thai J. Nanosci. Nanotechnol.* **2** (2), 14 (2017).
 21. S. Zelensky. Laser-induced heat radiation of suspended particles: A method for temperature estimation. *J. Opt. A: Pure Appl. Opt.* **1**, 454 (1999).
 22. S. Zelensky. Laser-induced heat radiation in borate glass. *J. Phys.: Condens. Matter* **10**, 7267 (1998).
 23. S.E. Zelensky, L.V. Poperenko, A.V. Kopyshinsky, K.S. Zelenska. Nonlinear characteristics of laser-induced incandescence of rough carbon surfaces. *Proc. SPIE* **8434**, 84341H (2012).

Одержано 25.09.24

S.E. Zelensky, O.S. Kolesnik

THE INFLUENCE OF LASER PULSE DURATION ON THE KINETICS OF LASER-INDUCED THERMAL EMISSION OF POROUS CARBON MATERIALS

The shape of pulse signals of laser-induced thermal emission of porous carbon material is studied with the duration of laser excitation pulses varied from 20 to 40 ns. It is found that the amplitude and duration of thermal emission pulses depend significantly on the duration of laser pulses. In particular, an increase in the duration of the emission pulses from 70 to 200 ns is recorded, which is caused by changes in the temperature distribution with depth in the surface layer of the irradiated material. Computer modeling of the processes of pulsed laser heating and of the formation of thermal emission signals is carried out. The simulation results show satisfactory agreement with the measurement results.

Keywords: laser-induced thermal emission, kinetics, porous carbon.