12

Применимость и точность подходов обработки температурных кинетик в методиках классической и пьезорезонансной лазерной калориметрии

© К.В. Зотов¹, А.Ю. Остапив¹, Н.В. Терещенко¹, О.А. Рябушкин²

¹ Московский физико-технический университет, Долгопрудный, Московская обл., Россия ² ФИРЭ им В.А. Котельникова РАН, Фрязино, Московская обл., Россия

e-mail: kirill.zotov@phystech.su ostapiv.ayu@phystech.su nikita.tereshchenko@phystech.su roa228@mail.ru

Поступила в редакцию 03.10.2024 г. В окончательной редакции 14.11.2024 г. Принята к публикации 14.11.2024 г.

> Получены выражения для поправочных коэффициентов, позволяющие учесть влияние конечной теплопроводности образца на измерение коэффициента оптического поглощения методами лазерной калориметрии (ЛК) и пьезорезонасной лазерной калориметрии (ПРЛК), из которых ПРЛК значительно более устойчив к эффектам конечной теплопроводности образца, чем ЛК. На практике основным источником ошибок определения коэффициента поглощения методом ПРЛК оказывается непостоянство температуры окружающей среды и коэффициента теплоотдачи кристалла с окружающей средой. Предложены модификации методов, позволяющие частично учесть неидеальные условия проведения эксперимента. Полученные поправочные коэффициенты могут расширить область применимости методов ПРЛК и ЛК на образцы больших линейных размеров или низкой теплопроводности.

> Ключевые слова: оптическое поглощение, лазерная калориметрия, уравнение теплопроводности, пьезорезонансная лазерная калориметрия, пьезоэлектрический резонанс.

DOI: 10.61011/OS.2025.01.59882.7073-24

Введение

В настоящее время стандартизованной методикой измерения коэффициентов оптического поглощения является лазерная калориметрия (ЛК) [1]. В этой методике измеряется зависимость температуры образца от времени T(t) при нагреве лазерным излучением в течение времени t_0 и последующем остывании после выключения лазерного источника. Для определения коэффициента оптического поглощения было предложено несколько методов, получивших названия экспоненциального, импульсного и градиентного [2]. Каждый из них базируется на уравнении теплового баланса, не учитывающем распределение температуры внутри образца:

$$\begin{cases} \frac{\partial T}{\partial t} = \bar{Q}\theta(t_0 - t) - \Gamma(T - T_a), \\ T(0) = T_a, \end{cases}$$
(1)

где $\bar{Q} = P(1 - \exp(\alpha L))/mc \approx \alpha LP/mc$ — усреднённый по образцу тепловой источник, связанный с поглощением лазерного излучения при малом оптическом поглощении, $\alpha L \ll 1$, P — мощность излучения, L — длина образца, $\theta(t)$ — тета-функция Хевисайда, t_0 — момент выключения лазерного излучения, $m = \rho V$ — масса образца, ρ — плотность, V — объём, c — удельная теплоёмкость, α — коэффициент оптического поглощения, $\Gamma = hS/mc$ — скорость теплоотдачи, h — коэффициент теплоотдачи, S — площадь поверхности образца, T_a — температура окружающей среды.

В градиентном методе анализируется разность производных температуры в моменты времени, соответствующих одной и той же температуре T_0 при нагреве и охлаждении:

$$G = \left(\frac{\partial T}{\partial t}\right)\Big|_{t=t_0}^{tt_0}.$$
 (2)

Из (1) следует, что при неизменной температуре окружающей среды $G \equiv \bar{Q}$.

В предположении постоянства параметров Γ и T_a решение уравнения (1) имеет вид

$$T(t) = T_a + \frac{\bar{Q}}{\Gamma} \begin{cases} 1 - e^{-\Gamma t}, & t \le t_0, \\ e^{-\Gamma t} \left(e^{\Gamma t_0} - 1 \right), & t > t_0. \end{cases}$$
(3)

Экспоненциальный и импульсный методы основаны на аппроксимации экспериментальной зависимости T(t) экспоненциальной функцией вида

$$f(t) = A + Be^{-Ct} \tag{4}$$

при нагреве $(t < t_0)$ и остывании $(t > t_0)$ соответственно. Набор оптимальных параметров *A*, *B* и *C* предоставляет возможность определить тепловой источник \overline{Q} . Далее будем обозначать величины, полученные аппроксимацией кинетики нагрева, индексом ехр, а кинетики остывания — индексом puls. В случае экспоненциального метода

$$E = A_{\exp}C_{\exp} = \bar{Q}, \qquad (5)$$

для импульсного метода

$$I = \frac{C_{\text{puls}}f(t_0/2)}{2\text{sh}(C_{\text{puls}}t_0/2)} = \bar{Q}.$$
 (6)

Конечная теплопроводность образца искажает результаты всех вышеупомянутых методик, однако наиболее чувствительным оказывается градиентный метод [3], поскольку величина *G* оказывается сильно зависимой от положения внешнего термодатчика. По этой причине градиентный метод был исключён из стандарта ISO 11551 в 2003 г. Несмотря на это, он единственный позволяет измерять временные зависимости коэффициента оптического поглощения, что открывает широкие возможности исследования деградации оптических элементов под действием лазерного излучения [4].

Одним из основных недостатков лазерной калориметрии является использование внешнего термодатчика, температура которого не может быть в полной мере отождествлена с температурой образца из-за наличия теплового сопротивления между образцом и датчиком. Кроме того, термодатчик может поглощать рассеянное лазерное излучение, что также искажает показания [2]. Для образцов, обладающих пьезоэлектрическими свойствами (в частности, к таковым относятся все нелинейно-оптические кристаллы), развита методика пьезорезонасной лазерной калориметрии (ПРЛК) [5], использующая температурную зависимость частот собственных акустических мод образца. После предварительной калибровки изменение частоты в процессе разогрева может быть пересчитано в изменение температуры. Поскольку акустическая мода распределена по образцу, измеренная таким образом температура может быть отождествлена со средней температурой кристалла [5].

Целью настоящей работы являлся теоретический анализ основных допущений, используемых в стандартизованных методах обработки температурной кинетики, и оценка их влияния на измеряемую величину коэффициента оптического поглощения, а также экспериментальная проверка применимости этих методов для ПРЛК.

Учет конечной теплопроводности образца

Для учёта конечной теплопроводности образца необходимо перейти от уравнения теплового баланса к уравнению теплопроводности. Будем считать, что температура кристалла измеряется относительно окружающей среды, которая постоянна во времени. Тогда в самом общем виде уравнение теплопроводности для области с граничными условиями в виде закона Ньютона—Рихмана на границе области и начальными условиями, соответствующими тепловому равновесию образца с окружающей средой, запишется следующим образом:

$$\begin{cases} \frac{\partial T(\mathbf{r},t)}{\partial t} = a\Delta T(\mathbf{r},t) + Q(\mathbf{r},t),\\ (-\kappa\nabla T(\mathbf{r},t),\mathbf{n})|_{\partial\Omega} = hT(\mathbf{r},t)|_{\partial\Omega},\\ T(\mathbf{r},0) = 0, \end{cases}$$
(7)

где $a = \kappa/c\rho$ — коэффициент температуропроводности, κ — коэффициент теплопроводности, $Q(\mathbf{r}, t)$ — функция источника тепла, \mathbf{n} — внешняя нормаль к границе области.

Стандартным методом решения таких уравнений является метод Фурье. Решение ищется в виде ряда с разделёнными переменными:

$$T(\mathbf{r},t) = \sum_{k} \tau_{k}(t) s_{k}(\mathbf{r}).$$
(8)

Функции $s_k(\mathbf{r})$ представляют собой собственные функции для оператора Лапласа, удовлетворяющие граничным условиям

$$\begin{cases} \Delta s_k(\mathbf{r}) = -\lambda_k s_k(\mathbf{r}), \\ (-\kappa \nabla s_k(\mathbf{r}), \mathbf{n})|_{\partial \Omega} = h s_k(\mathbf{r})|_{\partial \Omega}. \end{cases}$$
(9)

Рассмотрение граничных условий естественным образом приводит к определению числа Био, характеризующего однородность распределения температуры: $b = hR/\kappa$, где R — характерный размер образца.

Известно, что система функций $s_k(r)$ является полной и ортогональной в пространстве $L_2(\Omega)$ квадратично интегрируемых функций на Ω [7], следовательно, разложение справедливо, и, кроме того, можно записать

$$Q(\mathbf{r},t) = \sum_{k} q_k(t) s_k(\mathbf{r}), \qquad (10)$$

где коэффициенты *q*^{*k*} равны

$$q_k(t) = \frac{(Q, s_k)}{\parallel s_k \parallel^2} = \frac{\int Q(\mathbf{r}, t) s_k(\mathbf{r}) d\Omega}{\int \Omega s_k^2(\mathbf{r}) d\Omega}.$$
 (11)

Подстановка (8) и (11) в (7) дает уравнения для определения коэффициентов τ_k :

$$\begin{cases} \frac{d\tau_k(t)}{dt} = q_k(t) - a\lambda_k\tau_k(t),\\ \tau_k(0) = 0. \end{cases}$$
(12)

Решение уравнения (12) в случае $q_k(t) = q_k \theta(t_0 - t)$ имеет вид

$$\tau_k(t) = \frac{q_k}{a\lambda_k} \begin{cases} 1 - e^{a\lambda_k t}, & t \le t_0, \\ e^{-a\lambda_k t} (e^{a\lambda_k t_0} - 1), & t > t_0. \end{cases}$$
(13)

Оптика и спектроскопия, 2025, том 133, вып. 1

Таким образом, зависимость от времени каждого члена разложения аналогична решению уравнения теплового баланса с характерным временем $1/a\lambda_k$ и величиной q_k в качестве теплового источника. В большинстве практически значимых случаев характерное время для гармоник с номерами k > 1 пренебрежимо мало по сравнению со временем измерения, и их вклад в кинетику температуры сводится к константе:

$$T(\mathbf{r},t) = \tau_1(t)s_1(\mathbf{r}) + \sum_{k=1}^{+\infty} \frac{q_k}{a\lambda_k} s_k(\mathbf{r})\theta(t_0 - t).$$
(14)

Измеряемая в методе ПРЛК средняя температура выражается через усреднённые функции $\bar{s_k}(\mathbf{r})$. Интегрируя обе части верхнего равенства в (9) по области Ω и применяя теорему Остроградского–Гаусса, получим выражение $\bar{s_k}(\mathbf{r})$ через значения функции s_k на границе области:

$$\bar{s}_k(\mathbf{r}) = \frac{h}{\kappa \lambda_k |\Omega|} \int_{\partial \Omega} s_k dS, \qquad (15)$$

где $|\Omega| - d$ -мерный объём области Ω .

В приближении (14) экспоненциальная зависимость температуры от времени определяется первым членом разложения, следовательно, из (13) $C_{\exp} = C_{puls} = a\lambda_1$. Величина A_{\exp} представляет собой максимальный разогрев при $t \to \infty$, представляющий собой ряд из членов вида $q_k/a\lambda_k$. Тогда можно записать

$$E(\mathbf{r})a\lambda_{1}\sum_{k}\frac{q_{k}}{a\lambda_{k}}s_{k}(\mathbf{r}) = q_{1}s_{1}(\mathbf{r})$$
$$+\lambda_{1}\sum_{k=2}^{+\infty}\frac{q_{k}}{\lambda_{k}}s_{k}(\mathbf{r}) = q_{1}s_{1}(\mathbf{r}) + \delta(\mathbf{r}).$$
(16)

Для импульсного метода решение оптимизационной задачи дает следующие выражения для параметров A_{puls} , B_{puls} :

$$A_{\text{puls}} = 0,$$

$$B_{\text{puls}} = 2e^{a\lambda_1 t_0/2} \operatorname{sh}(a\lambda_1 t_0/2) \frac{q_1}{a\lambda_1} s_1(\mathbf{r})$$

$$+ \frac{\lambda_1}{2a} \frac{\exp(a\lambda_1 (t_0 + \Delta t_c/2))}{\operatorname{sh}(a\lambda_1 \Delta t_c/2)} \sum_{k=2}^{\infty} \frac{q_k}{\lambda_k^2} s_k(\mathbf{r}), \qquad (17)$$

где Δt_c — время остывания. Подстановка в (6) приводит к выражению

$$I(\mathbf{r}) = q_1 s_1(\mathbf{r}) + \frac{\exp(a\lambda_1(t_0 + \Delta t_c/2))}{2\mathrm{sh}(a\lambda_1 t_0/2)\mathrm{sh}(a\lambda_1 \Delta t_c/2)}$$
$$\times \lambda_1^2 \sum_{k=2}^{\infty} \frac{q_k}{\lambda_k^2} s_k(\mathbf{r}) = q_1 s_1(\mathbf{r}) + \delta_{\mathrm{puls}}(\mathbf{r}).$$
(18)

В случае градиентного метода в предположении, что разность производных температуры берётся в моменты

времени, в которые выполняется (14), получаем из (7) и (13)

$$G(\mathbf{r}) = q_1 s_1(\mathbf{r}) \left[e^{-a\lambda_1 t_h} + e^{-a\lambda_1 t_c} \left(e^{a\lambda_1 t_0} - 1 \right) \right], \quad (19)$$

где моменты времени t_h и t_c определяются из условия равенства температур: $T(\mathbf{r}, t_n) = T(\mathbf{r}, t_c), t_h \leq t_0, t_c \geq t_0$. Подставляя (13) и (14), получаем соотношение

$$e^{-a\lambda_1 t_h} + e^{-a\lambda_1 t_c} \left(e^{-a\lambda_1 t_0} - 1 \right) = 1 + \frac{\lambda_1}{q_1 s_1(\mathbf{r})} \sum_{k=2}^{+\infty} \frac{q_k}{\lambda_k} s_k(\mathbf{r}).$$
(20)

Подстановка (20) в (19) даёт

$$G(\mathbf{r}) = q_1 s_1(\mathbf{r}) + \lambda_1 \sum_{k=2}^{+\infty} \frac{q_k}{\lambda_k} s_k(\mathbf{r}) = q_1 s_1(\mathbf{r}) + \delta(\mathbf{r}).$$
(21)

Из выражений (16), (18), (21) следует, что для всех трёх методов определяется первый член разложения с некоторой аддитивной поправкой, отражающей влияние высших членов разложения. Для экспоненциального и градиентного методов эта поправка равна

$$\delta(\mathbf{r}) = \lambda_1 \sum_{k=2}^{+\infty} \frac{q_k}{\lambda_k} s_k(\mathbf{r}), \qquad (22)$$

для импульсного

$$\delta_{\text{plus}}(\mathbf{r}) = \frac{\exp(a\lambda_1(t_0 + \Delta t_c/2))}{2\text{sh}(a\lambda_1 t_0/2)\text{sh}(a\lambda_1 \Delta t/2)}\lambda_1^2 \sum_{k=2}^{\infty} \frac{q_k}{\lambda_k^2} s_k(\mathbf{r}). \quad (23)$$

Члены рядов (22) и (23) быстро убывают с ростом номера, причём поправка для импульсного метода меньше за счёт зависимости $1/\lambda_k^2$ вместо $1/\lambda_k$. Переход к методике ПРЛК заключается в усреднении собственной функции $s_k(\mathbf{r})$, что увеличивает степень λ_k в соответствующих выражениях на единицу (см. (15)).

В случае слабо неоднородного распределения температуры $(b \ll 1)$ собственная функция $s_1(r)$ слабо отклоняется от единицы, и выражение $q_1s_1(\mathbf{r})$ оказывается близко к усреднённому тепловому источнику \overline{Q} . Можно записать

$$q_1 s_1(\mathbf{r}) = \gamma(\mathbf{r}) \bar{Q}. \tag{24}$$

Таким образом, коэффициент поглощения α , определяемый обработкой экспериментальных данных, и истинный коэффициент поглощения α_0 связаны соотношением

$$\alpha(\mathbf{r}) = \gamma(\mathbf{r})\alpha_0 + \frac{mc}{PL}\delta(\mathbf{r}), \qquad (25)$$

где *r* — радиус-вектор точки измерения.

Асимптотическая оценка поправочных коэффициентов для прямоугольной геометрии образца

Конкретный вид собственных функций $s_k(\mathbf{r})$ зависит от геометрии образца и граничных условий (коэффициента теплоотдачи). Кроме того, от формы пучка

Удельная теплоёмкость с [9]	1060 J/kg/K
Плотность ρ [9]	2747 kg/m ³
Коэффициент теплопроводности к [9]	3.5 W/m/K
Радиус пучка по уровню $1/e^2 w$	1 mm
Размеры $W \times H \times L$	$1\times1\times5cm$

Таблица 1. Параметры модели



W = 10 mm

Рис. 1. Использованная в моделировании конфигурация расположения термодатчика. Белым цветом в масштабе изображён профиль интенсивности лазерного пучка, используемого в эксперименте.

лазерного излучения и места его попадания в кристалл изменяются коэффициенты разложения q_k . Для дальнейшей конкретизации выражений для поправочных коэффициентов γ и δ необходимо задаться всеми этими параметрами. В частности, рассмотрение поправочной функции для градиентного метода в случае образца цилиндрической формы, нагреваемого гауссовым лазерным пучком, проходящим через центр кристалла, было проведено в [8].

Однако на практике невозможно гарантировать одинаковость коэффициента теплоотдачи h на различных гранях образца, а также обеспечить точное совпадение центров образца и лазерного пучка.

В настоящем разделе мы оцениваем влияние указанных выше двух факторов на точность определения коэффициента оптического поглощения. В рамках математической модели рассматривался кристалл LBO. Параметры модели приведены в табл. 1.

В рамках модели анализировались температура на верхней грани образца для методики ЛК и средняя температура для методики ПРЛК. Коэффициенты теплоотдачи на верхней и нижней гранях параллелепипеда полагались разными, при этом среднее их значение задавалось постоянным, поскольку в эксперименте из кинетики температуры определяется именно оно. Пучок



Рис. 2. Зависимость отклонения измеряемого коэффициента поглощения в методике ЛК от положения пучка относительно центра кристалла. *I* — экспоненциальный метод, *2* — импульсный метод, *3* — градиентный метод.

также смещался по вертикальной оси от центра кристалла (рис. 1).

На рис. 2 изображена зависимость измеряемого коэффициента поглощения по всем трём методам от положения пучка при равенстве коэффициентов теплоотдачи на верхней и нижней гранях кристалла. При приближении пучка к грани, на которой измеряется температура, существенно изменяется амплитудный разогрев. Наибольшее влияние это оказывает на результаты экспоненциального метода. Импульсный метод же оказывается наиболее устойчивым к смещению пучка, что согласуется с теоретическим выводом о малости аддитивной поправки (23).

На рис. 3 приведены результаты моделирования при различных условиях теплообмена образца с окружающей средой. С ростом коэффициента теплоотдачи грани, на которой измеряется температура, измеряемый коэффициент поглощения для всех методов уменьшается.

Отметим, что графики для экспоненциального и градиентного методов отличаются друг от друга, несмотря на совпадение выражений для поправок (16) и (21), поскольку в экспоненциальном методе используется вся кинетика разогрева, для начальной части которой условие заведомо не выполняется. При исключении из рассмотрения начального участка кинетики графики совпадают, график для экспоненциального метода с исключением начального участка кинетики продемонстрирован на рис. 3, слева снизу.

Таким образом, в методике ЛК поправочные коэффициенты должны рассчитываться, по сути, индивидуально для каждого конкретного эксперимента, что ограничивает их практическую применимость.

В методике ПРЛК, напротив, все методы обработки кинетики температуры дают одинаковый результат, и, кроме того, измеряемый коэффициент поглощения сла-



Рис. 3. Результаты моделирования для методики ЛК. Зависимость отклонения измеряемого коэффициента поглощения от положения пучка относительно центра кристалла при различных условиях теплообмена. $I - h_t = h_b = 30 \text{ W/m}^2/\text{K}$, $2 - h_t = 45 \text{ W/m}^2/\text{K}$, $h_b = 15 \text{ W/m}^2/\text{K}$, $3 - h_t = 15 \text{ W/m}^2/\text{K}$, $h_b = 45 \text{ W/m}^2/\text{K}$.

бо зависит от вышеперечисленных параметров. Результаты моделирования представлены на рис. 4.

Для ПРЛК поправочный коэффициент $\delta \approx 0$, поскольку средние значения собственных функций быстро спадают к нулю с ростом номера. Для коэффициента γ в случае измерения по методу ПРЛК для образца в форме прямоугольного параллелепипеда с размерами $W \times H \times L$ можно получить следующее асимптотическое выражение:

$$\bar{\gamma} = 1 + \left(\frac{1}{6} - \frac{w^2}{W^2}\right) b_W + \left(\frac{1}{6} - \frac{w^2}{H^2}\right) b_H,$$
(26)

где $b_w = h\kappa/2W$, $b_H = h\kappa/2H$ — соответствующие формальные числа Био по осям *x* и *y* соответственно, *w* — радиус пучка по уровню $1/e^2$. Для наших параметров модели получаем $\bar{\gamma} = 1.013$. Соответствующие поправки показаны на рис. 4.

Анализ дополнительных источников погрешности определения коэффициента оптического поглощения

Кроме бесконечной теплопроводности образца, уравнение теплового баланса в форме (1) также неявно опирается на предположение о том, что оптическая мощность лазера, температура окружающей среды и коэффициент теплоотдачи не являются функциями времени.

Для оценки влияния вышеперечисленных факторов на ошибку определения коэффициента оптического поглощения с помощью уравнения (1) с добавлением дополнительных временных зависимостей были получены модельные кинетики температуры. Решалось уравнение теплового баланса (1) вместо более общего уравнения теплопроводности (7), поскольку, как было показано, результирующая кинетика температуры определяется, в



Рис. 4. Результаты моделирования для методики ПРЛК. Все методы обработки дают одинаковый результат. Кривая *1* — без учета поправочных коэффициентов, кривая *2* — с учетом.

сущности, первым членом разложения (8), временная зависимость которого подчиняется уравнению, по форме аналогичному уравнению теплового баланса. Затем были произведены оценки отклонения восстановленного различными методами коэффициента поглощения от заданного значения. Численная ошибка восстановления коэффициента поглощения при независящих от времени параметрах модели составила порядка 0.1%.

Влияние непостоянства температуры окружающей среды

Временная зависимость температуры окружающей среды приводит к появлению дополнительного члена в функции теплового источника в уравнении (1): $ar{Q} heta(t-t_0) o ar{Q} heta(t-t_0)-\partial T_a/\partial t,$ который возможно оценить, измеряя температуру окружающей среды с помощью дополнительного термодатчика. В случае градиентного метода к величине G достаточно прибавить разность производных температуры окружающей среды. Однако экспоненциальный и импульсный методы опираются на вид кинетики температуры, которая уже не в полной мере описывается функцией вида (4). Преобразование Фурье температуры окружающей среды позволяет представить её в виде суммы слагаемых вида $T_a(\omega) \exp(i\omega t)$. В силу линейности уравнения (1) результирующее решение может быть представлено как сумма решений для каждого члена разложения (в том числе и для $\omega = 0$, что соответствует $T_a = \text{const}$). Добавка, связанная с изменением температуры окружающей среды, имеет вид

$$\Upsilon(t) = \sum_{\omega_k} \frac{i\omega_k \hat{T}(\omega_k)}{\Gamma + i\omega_k} [\exp(-\Gamma t) - \exp(i\omega_k t)].$$
(27)

Перед аппроксимацией кинетики температуры экспоненциальной функцией (4) требуется предварительно вычесть поправку (27), для расчёта которой, однако, требуется значение скорости теплоотдачи Г, которое само определяется из экспериментальной кинетики, поэтому необходим итеративный процесс уточнения поправки.

Поскольку температура окружающей среды также должна подчиняться уравнению теплового баланса, в рамках модели полагалось, что её кинетика имеет экспоненциальный вид (3) с некоторым значением амплитудного разогрева, который в нашей модели предполагался равным 30% от разогрева кристалла. На рис. 5 представлена зависимость смоделированного отклонения измеряемого коэффициента поглощения от истинного значения в зависимости от соотношения скоростей теплоотдачи окружающей среды Γ_a и кристалла Г. Как видно, при приближении отношения этих величин к 1 погрешность определения коэффициента поглощения в условиях нашей модели превышает 30%. Предложенная процедура позволяет сократить погрешность до величин порядка 1%.

Влияние непостоянства коэффициента теплоотдачи

Коэффициент теплоотдачи при конвективном теплообмене варьируется в зависимости от слабо контролируемых параметров воздушных потоков, обтекающих образец. Этот фактор может быть устранён помещением образца в вакуумную камеру [8,10], однако такой подход технически сложен [11], а для методики ЛК значительно усложняет обеспечение хорошего теплового контакта с внешним термодатчиком [10].

Теоретическое рассмотрение произвольной временной зависимости коэффициента теплоотдачи сопряжено со



Рис. 5. Зависимость отклонения измеряемого коэффициента поглощения от соотношения скоростей теплоотдачи окружающей среды и кристалла. *1, 2, 3* — экспоненциальный, импульсный и градиентный методы с коррекцией, *4, 5, 6* — экспоненциальный, импульсный и градиентный методы без модификаций.



Рис. 6. Зависимость отклонения измеряемого коэффициента поглощения от относительной величины изменения коэффициента теплоотдачи. 1 — экспоненциальный метод, 2 — импульсный метод с коррекцией, 3 — градиентный метод с коррекцией, 4 — импульсный метод без модификаций, 5 — градиентный метод без модификаций.

Таблица 2. Параметры лазерного источника

Длина волны λ	1030 nm
Частота следования импульсов	5 MHz
Длительность импульсов	2 ns
Средняя мощность Р	40 W

значительными трудностями. В простейшей модели можно предположить, что коэффициенты теплоотдачи во время нагревания и охлаждения имеют не совпадающие между собой постоянные значения. При этом вид кинетики охлаждения зависит в том числе от коэффициента теплоотдачи при нагреве. Поскольку экспоненциальный метод использует информацию, полученную аппроксимацией только кинетики нагревания, для него коррекция в этом случае не требуется.

В импульсном методе для определения коэффициента поглощения вместо величины I, определённой формулой (6), необходимо использовать величину I^{\natural} :

$$I^{\natural} = \frac{C_{\exp} f_{\text{puls}}(t_0/2)}{\exp(C_{\text{puls}} t_0/2)(1 - \exp(-C_{\exp} t_0/2))}.$$
 (28)

При $C_{exp} = C_{puls}$ выражение (28) переходит в (6).

В случае градиентного метода из определения (2) величины *G* получаем

$$G = \overline{Q} - T_0 (C_{\exp} - C_{puls}).$$
⁽²⁹⁾

На рис. 6 представлено теоретическое отклонение измеряемого коэффициента поглощения от величины скачка коэффициента теплопроводности относительно среднего значения. Предполагалось, что при нагревании коэффициент теплоотдачи имеет значение $h - \Delta h/2$, при



Рис. 7. Схема экспериментальной установки. 1 — источник лазерного излучения, 2 — измеритель резонансной частоты кристалла, 3 — компьютер, 4 — термодатчик, измеряющий температуру окружающей среды, 5 — измеритель мощности.



Рис. 8. Коэффициент поглощения в методе ПРЛК, определённый различными методами. *1* — экспоненциальный метод, *2* — импульсный метод, *3* — градиентный метод.

остывании $h + \Delta h/2$ для сохранения среднего значения коэффициента теплоотдачи постоянным.

Эксперимент

Для сравнения результатов обработки температурных кинетик описанными выше методами было проведено измерение коэффициента поглощения кристалла LBO с помощью методикой ПРЛК. Параметры кристалла совпадают с использованными в модели (табл. 1).

В качестве источника излучения использовался импульсный волоконный иттербиевый лазер, параметры которого приведены в табл. 2. Время облучения образца составляло 1000 s. Столь длительное время проведения эксперимента связано с большим характерным временем разогрева кристалла, обусловленного его значительной теплоёмкостью. Температура окружающей среды контролировалась внешним термодатчиком, расположенным на расстоянии 10 mm от кристалла. Для измерения резонансной частоты кристалла применялся метод,

Модель, метод	Экспоненциальный	Импульсный	Градиентный	Максимальное различие между методами
Без учета	4.8 ± 0.3	5.0 ± 0.6	5.0 ± 0.4	26%
C учётом $\partial T_a/\partial t$	5.2 ± 0.3	5.5 ± 0.8	5.5 ± 0.5	30%
С учётом <i>h</i>	5.2 ± 0.3	5.2 ± 0.5	5.3 ± 0.5	11%

Таблица 3. Сводная таблица значений коэффициента оптического поглощения в cm⁻¹



Рис. 9. Экспериментальные результаты с коррекцией изменения температуры окружающей среды. 1 — экспоненциальный метод, 2 — импульсный метод, 3 — градиентный метод.

описанный в [12]. Схема экспериментальной установки изображена на рис. 7.

Для оценки случайной ошибки эксперимент повторялся несколько раз в одинаковых условиях, каждая кинетика обрабатывалась с использованием трёх методов.

В рамках одного эксперимента различие коэффициентов поглощения, определённых различными методами (рис. 8), достигает 26%. Как уже упоминалось, погрешность, связанная с конечной теплопроводностью, для нашего образца составляет порядка 1%.

Измеренная нестабильность выходной мощности для нашего лазера составила 2% с характерными временами изменения мощности, много большими времени эксперимента, что привело к ошибке измерения коэффициента поглощения не более чем на 1%, согласно численному решению уравнения (1).

В наших экспериментах температура окружающей среды демонстрировала линейный рост, сменяющийся после выключения лазера линейным спадом с характерной скоростью $\sim 1 \cdot 10^{-4}$ K/s. Такой вид зависимости температуры от времени можно считать частным случаем экспоненциальной зависимости при $\Gamma_a \rightarrow 0$. По модулю добавочный член $\partial T_a/\partial t$ составлял $\sim 7\%$ от теплового источника, обусловленного поглощением.

При учёте изменения температуры окружающей среды в обработке экспериментальных данных (рис. 9) среднее значение коэффициента оптического поглощения возросло на 8% для всех трёх методов, однако в рамках одного эксперимента всё так же наблюдалось значительное (до 30%) различие между результатами применения различных методов.

На рис. 10 представлены результаты применения формул и для обработки экспериментальных данных модифицированными импульсным и градиентным методами. Коэффициенты теплоотдачи при нагревании и охлаждении были определены из аппроксимации соответствующих участков кинетики экспоненциальной функцией вида (4). Обработка экспоненциальным методом изменений не претерпела.

После такой обработки разброс коэффициентов поглощения, определенных различными методами, уменьшился практически в 3 раза, до 11%. По-видимому, для полного устранения различий между методами требуется развитие более сложной модели изменения коэффициента теплоотдачи во времени.

Средние значения коэффициента оптического поглощения, определенные различными методами и с учетом различных факторов, приведены в табл. 3.



Рис. 10. Экспериментальные результаты с учетом изменения коэффициента теплоотдачи. *1* — экспоненциальный метод, *2* — импульсный метод, *3* — градиентный метод.

Выводы

В методике ПРЛК для определения коэффициента оптического поглощения влияние конечной теплопроводности может быть учтено с помощью аналитических поправок, которые зависят лишь от параметров кристалла и его геометрии. В классическом методе ЛК расчёт подобных поправок должен учитывать также условия, в которых находится кристалл и потому должен был бы проводиться индивидуально для каждого измерения. В методике ПРЛК становится возможным применение градиентного метода, исключенного из стандарта для ЛК из-за проблем с точностью измерений. Этот метод позволяет измерять коэффициент оптического поглощения практически в реальном времени.

Тем не менее было показано, что в условиях, когда условия теплообмена изменяются во времени, погрешности в определении коэффициента оптического поглощения могут достигать гораздо больших величин. Таким образом, эксперимент по измерению коэффициента оптического поглощения должен быть поставлен так, чтобы минимизировать влияние этих факторов.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] Национальный стандарт Российской Федерации. ГОСТ Р ИСО 11551-2015. Оптика и оптические приборы. Лазеры и лазерные установки (системы). Методика измерений коэффициента поглощения лазерного излучения оптическими элементами (Стандартинформ, М., 2017).
- [2] U. Willamowski, T. Gross, D. Ristau, H. Welling. Proc. SPIE, 2870, 483–494 (1996). DOI:10.1117/12.259934
- [3] P. Meja, U. Broulik, U. Pfeifer, B. Steiger. Proc. SPIE, 2966, 96-104 (1997).
- [4] К.В. Зотов, Н.В. Терещенко, А.Ю. Остапив, Г.Ю. Иванов, О.А. Рябушкин. Квант. электрон., 53 (9), 720–724 (2023)
 [К.V. Zotov, N.V. Tereshchenko, А.Yu. Ostapiv, G.Yu. Ivanov, O.A. Ryabushkin. Bull. Lebedev Phys. Inst., 51 (1), S51–S57 (2024). DOI:10.3103/S1068335624600165].
- [5] O.A. Ryabushkin, A.V. Konyashkin, D.V. Myasnikov, V.A. Tyrtyshnyy, O.I. Vershinin. Photonic Fiber and Crystal Devices: Advances in Materials and Innovations in Device Applications VII, 8874, 141–149 (2013) DOI: 10.1117/12.2023285
- [6] G.A. Aloyan, N.V. Kovalenko, I.V. Grishchenko, A.V. Konyashkin, O.A. Ryabushkin. Acoust. Phys., 68 (5), 427–434 (2022).
- [7] D.S. Grebenkov, B. Nguyen. SIAM Rev., 55(4), 601–667 (2013). DOI:10.1137/120880173
- [8] G. Enrique Bernal. Appl. Opt., 14(2), 314–321 (1975).
 DOI:10.1364/AO.14.000314
- [9] D.N. Nikogosyan *Nonlinear optical crystals: a complete survey* (Springer Science & Business Media, 2006).

- [10] R. Atkinson. Appl. Opt., 24 (4), 464–471 (1985).
 DOI: 10.1364/AO.24.000464
- [11] U. Williamowski. Standardisation-suited Methods for the Precise Characterisation of Absorptance, Reflectance and Transmittance of Optical Components. PhD thesis (Laser Zentrum Hannover e. V., Hannover, 2018).
- [12] K.V. Zotov, I.V. Grischenko, A.V. Konyashkin, O.A. Ryabushkin. Appl. Opt., 62, 4047–4051 (2023).
 DOI: 10.1364/AO.485644