

**ВИЗУАЛИЗАЦИЯ ПРОЦЕССОВ КРИСТАЛЛИЗАЦИИ
В ПРИСТЕНОЧНОМ СЛОЕ КАПЛИ ВОДЫ**

И. Н. ПАВЛОВ, Б. С. РИНКЕВИЧЮС, А. В. ТОЛКАЧЕВ

*Национальный исследовательский университет «МЭИ»,
Москва, Россия, e-mail: rinkevbs@mail.ru*

Рассмотрено применение метода нарушенного полного внутреннего отражения для визуализации и исследования процесса кристаллизации воды в тонком (порядка сотен нанометров) пристеночном слое.

Ключевые слова: *нарушенное полное внутреннее отражение, кристаллизация, визуализация, пограничный слой.*

The application of disturbed total reflection method for visualization and study of the water crystallization process in the thin (about hundreds of nanometers) near-wall layer is considered.

Key words: *frustrated total internal reflection, crystallization, visualization, boundary layer.*

Метод нарушенного полного внутреннего отражения (НПВО) [1] давно известен и широко используется для измерения показателя преломления различных сред. Ранее он был применен авторами для визуализации неоднородных пристеночных потоков жидкостей в кювете, плоском и Т-образном микроканалах, а также для анализа испарения, охлаждения и растекания капли жидкости на горизонтальной подложке [2 – 4]. В последние годы возрос интерес к исследованию процесса кристаллизации воды при различных предварительных воздействиях на нее. Несмотря на многочисленные исследования по этой теме, сам механизм так и не изучен до конца [5]. Исследование кристаллизации капли с помощью микроскопа по обычной методике позволяет получить информацию только о форме, но не позволяет рассмотреть контактный слой капли с поверхностью, что возможно при помощи НПВО.

Предлагаемый метод основан на явлении НПВО и позволяет регистрировать малые изменения показателя преломления капли в тонком слое толщиной порядка сотен нанометров вблизи поверхности подложки при угле падения излучения, близком к критическому углу полного внутреннего отражения (ПВО). Суть метода состоит в следующем. Лежащая на охлаждающей поверхности капля с показателем преломления n_2 соприкасается с горизонтальной границей раздела стеклянной призмы n_1 и воздуха n_3 , где охлаждается и кристаллизуется. Поверхность призмы освещается широким параллельным лазерным пучком, падающим под углом θ_p , большим критического угла ПВО для границы стекло–воздух, но меньшим для границы стекло–жидкость, т. е. $n_3/n_1 < \sin\theta_i < n_2/n_1$, так как условие ПВО для жидкости не выполняется, то коэффициент отражения для части пучка, отраженной от капли, меньше чем для части пучка, отраженной от воздуха, который равен единице.

Оптимальным с точки зрения чувствительности метода является случай с поляризацией падающего излучения, параллельной плоскости падения [3], поэтому в дальнейшем будем рассматривать его, тогда формула для энергетического коэффициента отражения будет иметь вид

$$\rho_{\parallel}(x, y) = \frac{\operatorname{tg}^2 \left[\theta_i - \arcsin \left(\frac{n_1}{n_2(x, y)} \sin \theta_i \right) \right]}{\operatorname{tg}^2 \left[\theta_i + \arcsin \left(\frac{n_1}{n_2(x, y)} \sin \theta_i \right) \right]},$$

где θ_i – угол падения лазерного пучка; n_1 – показатель преломления призмы; $n_2(x, y)$ – распределение показателя преломления жидкости на границе раздела.

Таким образом, в отраженном свете на светлом фоне пучка, отраженного от границы с воздухом, видно темное изображение капли и визуализируется положение капли и ее размер. По измерению коэффициента отражения ρ_{\parallel} от капли для заданного угла θ_i можно судить о показателе преломления жидкости n_2 . На рис. 1 показаны расчетные графики зависимости коэффициента отражения от показателя преломления жидкости для различных углов падения пучка θ_i при показателе преломления призмы $n_1 = 1,5677$. Из рис. 1 следует, что коэффициент отражения сильно зависит от показателя преломления жидкости вблизи критического угла, составляющего для данной призмы $58,036^\circ$.

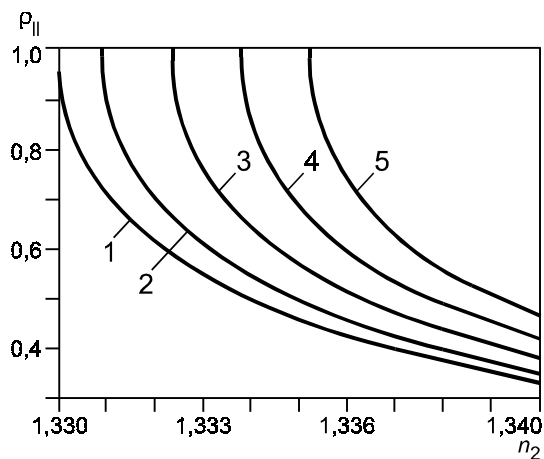


Рис. 1. Графики зависимости коэффициента отражения от показателя преломления жидкости:

$$1 - \theta_i = 58,036^\circ; 2 - \theta_i = 58,1^\circ; 3 - \theta_i = 58,2^\circ; 4 - \theta_i = 58,3^\circ; 5 - \theta_i = 58,4^\circ$$

Схема экспериментальной установки представлена на рис. 2. Излучение лазера δ проходит через оптическую установку расширителя пучка 7, представляющую собой телескопическую систему из двух собирающих линз с разными фокусными расстояниями и пространственный фильтр в виде точечной диафрагмы. Расширенный коллимированный пучок, пройдя через боковую поверхность призмы 5, отражается от ее основания, контактирующего с исследуемой каплей жидкости 4. Угол отражения соответствует условию ПВО для границы призма–воздух. Далее отраженный пучок попадает на диффузно рассеивающий экран 3, изображение на котором регистрируется с помощью цифровой видеокамеры 2 и затем обрабатывается на компьютере 1. Капля создается с помощью микродозатора и располагается на охлаждающей поверхности элемента Пельтье 6. Поверхности призмы и элемента Пельтье выставляют горизонтально параллельно друг другу, величину зазора между ними регулируют с помощью микрометрического винта с шагом 2 мкм. Основание призмы, контактирующее с исследуемой каплей, освещается широким коллимированным пучком лазерного излучения, падающим под углом, близким к критическому углу ПВО для границы раздела призмы с каплей. В качестве источника

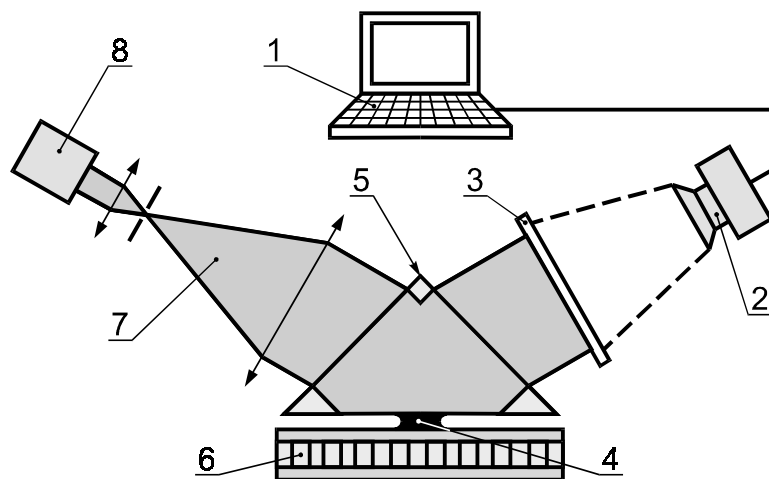


Рис. 2. Схема экспериментальной установки:

1 – компьютер; 2 – цифровая камера; 3 – экран; 4 – капля; 5 – призма;
6 – элемент Пельтье; 7 – расширитель пучка; 8 – лазер

излучения в установке используется полупроводниковый лазер мощностью 3 мВт с длиной волны излучения 655 нм. Оптическая система для формирования широкого коллимированного лазерного пучка диаметром 40 мм состоит из положительных двух линз с разными фокусными расстояниями и пространственного фильтра – точечной диафрагмы. Стекло́нная прямоугольная призма имеет показатель преломления $n = 1,5677$ для $\lambda = 655$ нм. Отраженный пучок регистрируется с помощью цифровой видеокамеры Видеоскан-285/К-USB с частотой съемки 7 кадров/с и разрешением 1392×1040 пикселей, дающей черно-белые изображения в формате *.bmp. Для цифровой регистрации и обработки полученных рефрактографических изображений установлен пакет прикладных программ. Созданная установка фиксирует изменение показателя преломления жидкости в четвертом знаке после запятой.

Хорошо известно, что параметры процесса кристаллизации капли на поверхности зависят от характеристик самой поверхности. Шероховатость поверхности стеклянной призмы, использовавшейся в экспериментах, измеряли во ВНИИОФИ с помощью интерференционного микроскопа фирмы Zygo. Средний параметр шероховатости

поверхности RMS составил 5,8 нм. Температура поверхности элемента Пельтье вблизи капли регистрируется с помощью термопары и записывается на компьютере. На рис. 3 приведен пример полученных таким образом зависимостей температуры от времени в процессе охлаждения капли. Кривая получена при токе через элемент 1,4 А и подаваемом на него напряжении 8,8 В. Пример полученных изображений контактного пятна капли для зазора между призмой и элементом Пельтье 1,5 мм приведен на рис. 4, а – в, объем капли – 10 мкл. Контактный слой капли с призмой имеет разную структуру при кристаллизации для разных высот капли. Для больших значений (1 – 1,5 мм) величины зазора между призмой и элементом Пельтье имеет место образование крупных, радиально направленных пузырьков воздуха в виде вытянутых эллипсов в контактном слое с призмой (призма расположена сверху капли). Для меньших значений (0,3 – 0,7 мм) образуется мелкочаеистая структура (вкрапления пузырьков воздуха во льду) по краям капли, а в центре – большой пузырек воздуха, не нарушающий ПВО. При этом в отличие от наблюдения за кристаллизацией капли в микроскоп, метод НПВО позволяет определить, в каком месте капли находится каждая из фаз – воздух, вода и лед – по соответствующему коэффициенту отражения.

Если величина зазора составляла 0,1 мм, то капля растекалась тонкой пленкой внутри него. В этом случае при ее охлаждении образуются

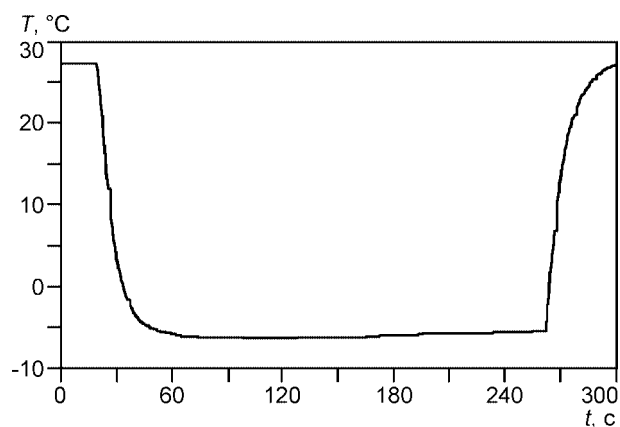


Рис. 3. График зависимости температуры охлаждающей поверхности элемента Пельтье от времени

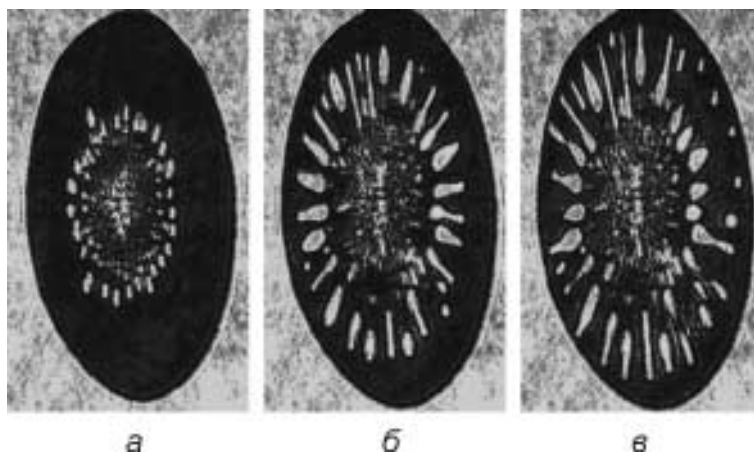


Рис. 4. Изображения контактного слоя кристаллизующейся капли с призмой для разных моментов времени (от начала охлаждения), полученные с помощью метода НПВО при величине зазора между призмой и элементом Пельтье 1,5 мм

вался практически ровный фронт кристаллизации,двигающийся от одного края призмы к другому.

Таким образом, была создана установка для визуализации фазовых переходов в пограничном слое жидкости. При проведении экспериментов визуализации процесса кристаллизации капли дистиллированной воды на поверхности элемента Пельтье с помощью метода нарушенного полного внутреннего отражения широкого лазерного пучка, были выявлены следующие особенности:

контактный слой капли с призмой имеет разную структуру при кристаллизации для разных высот капли, определяющихся зазором между элементом Пельтье и измерительной призмой;

при уменьшении зазора капля превращается в тонкую пленку, в ней при замерзании распространяется фронт кристаллизации от одного края поверхности к другому. Его скорость движения легко определяется с помощью данного метода;

в отличие от наблюдения в микроскоп, метод НПВО позволяет определить местоположение каждой из фаз – воздуха, воды и льда – в пристеночном слое по соответствующему коэффициенту отражения и воспроизвести динамику фазовых переходов.

Работа выполнена при поддержке РФФИ (грант № 12-08-31208).

Л И Т Е Р А Т У Р А

1. **Лейкин М. В., Молочников Б. И.** Отражательная рефрактометрия. Л.: Машиностроение, 1983.
2. **Павлов И. Н., Ринкевичюс Б. С., Толкачев А. В.** Лазерный визуализатор неоднородности пристеночных слоев жидкости // Измерительная техника. 2010. № 10. С. 33 – 35; **Pavlov I. N., Rinkevichyus B. S., Tolkachev A. V.** Laser visualizer of inhomogeneities in near-wall layers of a liquid // Measurement Techniques. 2011. V. 53. N 10. P. 1130 – 1134.
3. **Павлов И. Н.** Особенности визуализации перемешивания жидкостей по нарушенному полному внутреннему отражению // Тез. докл. науч.-техн. конф.-семинара по фотонике и информационной оптике. М.: НИЯУ МИФИ, 2011. С. 30.
4. **Pavlov I. N., Rinkevichyus B. S., Tolkachev A. V.** Visualization of physical processes in liquid drops on horizontal surface // Proc 15th Inter. Symp. Flow Visualization. Minsk (Belarus), 2012. N 018. P. 8.
5. **Moore E. B., Molinero V.** Structural transformation in supercooled water controls the crystallization rate of ice // Nature. 2011. V. 479. P. 506 – 508.

Дата принятия 01.03.2013 г.