

УДК 535.233+535.338.1+536.52

ИЗМЕРЕНИЕ НЕСТАЦИОНАРНОЙ ТЕМПЕРАТУРЫ МЕТОДОМ  
СПЕКТРАЛЬНОЙ ПИРОМЕТРИИ

© 2012 г. А. Н. Магунов, А. О. Захаров, Б. А. Лапшинов

НИИ перспективных материалов и технологий  
Россия, 115054, Москва, ул. Малая Пионерская, 12

Поступила в редакцию 30.06.2011 г.

Регистрация последовательности спектров теплового излучения позволяет определить нестационарную температуру  $T(t)$  без привлечения данных об излучательной способности объекта. При нагревании монокристалла кремния КЭФ-4.5 излучением непрерывного Nd : YAG-лазера ( $\lambda = 1.064$  мкм) зарегистрированы последовательности из сотен спектров излучения в интервалах длин волн  $\lambda = 350\text{--}760$  нм и  $\lambda = 650\text{--}1000$  нм при времени накопления сигнала п.з.с.-линейкой  $\tau = 15\text{--}35$  мс и частоте записи спектров  $f \approx 30\text{--}66$  Гц. Проведена автоматизированная обработка спектров, получены зависимости температуры кристалла в диапазоне  $T \approx 1100\text{--}1450$  К от времени после начала облучения.

## ВВЕДЕНИЕ

Неизотермические методы широко применяются для изучения кинетики и механизмов физико-химических процессов в неорганической [1–4] и органической [5] химии, лазерной термохимии [6, 7], плазмохимии [8–10]. В неизотермическом режиме процессы идут тогда, когда в системе имеется внутренний (химический) или внешний (лазерный, плазменный, микроволновый, ионно- и электронно-пучковый, токовый) источник тепла, а каналы теплоотвода не обеспечивают термостабилизации. В таких условиях необходимо измерять нестационарную температуру  $T(t)$ , дифференцируя которую можно определить температурную зависимость мощности  $P \sim dT/dt$  тепловых источников, нагревающих и охлаждающих объект.

В области высоких температур ( $T \geq 1000$  К) для измерений температуры применяют методы оптической пирометрии, при этом основная проблема заключается в том, что для многих материалов нет данных по излучательной способности.

В последние годы развивается метод спектральной пирометрии [11], в котором отсутствие данных по излучательным свойствам объекта компенсируется обширной спектральной информацией. С помощью п.з.с.-спектрометра регистрируют широкий спектр излучения объекта, проводят проверку его подобия планковскому спектру, а затем вычисляют температуру по тем интервалам, где спектры подобны. Как правило, в исследуемом процессе регистрируют один спектр, по которому вычисляют одно значение температуры, усредненной по времени накопления сигнала, но часто это бывает недостаточно для описания процесса.

В данной работе проведена регистрация последовательностей, состоящих из 300–1500 спектров при частоте записи спектров 30–66 Гц, и построены зависимости температуры от времени после начала нагревания монокристалла кремния, облучаемого лазерным пучком. Обсуждаются характеристики установки и возможности автоматизированной обработки спектров для вычисления температуры.

## ЭКСПЕРИМЕНТ

Установка включает Nd : YAG-лазер непрерывного действия ( $\lambda = 1.064$  мкм) мощностью до 30 Вт, измеритель мощности, держатель образца и волоконно-оптические п.з.с.-спектрометры HR 2000+ (Ocean Optics) для регистрации спектров. Спектры выводятся на монитор компьютера, к которому можно подключить как один, так и несколько спектрометров, при этом все спектры наблюдаются одновременно. Применение нескольких спектрометров позволяет расширить интервал длин волн при регистрации спектров, а также сравнивать результаты, полученные в разных интервалах спектра. Кремниевая линейка каждого спектрометра состоит из 2048 пикселей.

Калибровка относительной спектральной чувствительности спектрометров проводится с помощью эталонной вольфрамовой лампы LS-1-CAL, спектр которой известен по результатам измерений, проведенных в метрологической лаборатории. Первичный спектр излучения любого объекта, зарегистрированный спектрометром, содержит зависимость количества фотоэлектронов в пикселе от длины волны, соответствующей данному пикселу. Затем первичный спектр автоматически

корректируется путем умножения сигнала каждого пиксела на калибровочные коэффициенты  $k(\lambda)$ , определяемые как отношение интенсивностей в действительном спектре эталонной лампы к интенсивностям в спектре той же лампы, зарегистрированном спектрометром. Откорректированные таким образом спектры выражены в единицах интенсивности ( $I$ , мкВт/см<sup>2</sup>·нм), падающей на вход оптического волокна. Калибровка двух спектрометров, применяемых в наших измерениях, проводится в интервалах длин волн  $\lambda = 350$ – $760$  и  $\lambda = 650$ – $1000$  нм, хотя спектрометры позволяют регистрировать более широкие интервалы длин волн (для одного из спектрометров рабочий диапазон составляет 350–800 нм, для другого 650–1080 нм). Спектральная ширина, соответствующая каждому пикселу в п.з.с.-линейке, составляет 0.2 нм.

Программа спектрометра позволяет задавать время накопления отдельного спектра, интервал времени между соседними спектрами, полное время регистрации спектров (или их количество). Частота регистрации спектров п.з.с.-спектрометром определяется временем накопления, которое зависит от яркости объекта и расстояния до него. Время накопления отдельных спектров п.з.с.-линейкой выбирается в интервале 1–20 с и определяется методом проб и ошибок для каждого объекта и условий измерения таким образом, чтобы получать интенсивность, достаточную для дальнейшей обработки, но не достигать уровня насыщения сигнала или его обрезания при оцифровке.

Для определения температуры по спектрам излучения создана программа, которая позволяет представить каждый спектр в координатной плоскости  $(x, y)$ , где  $x = \ln(\lambda^5 I)$  и  $y = C_2/\lambda$ . В этих координатах спектр можно аппроксимировать функцией Вина (коротковолновая часть функции Планка). Уравнение прямой, аппроксимирующей экспериментальный спектр (или его участок), в такой системе координат имеет вид

$$y = A - Tx,$$

где  $A$  – постоянная,  $T$  – искомая температура объекта.

Участок спектра, по которому необходимо вычислить температуру, выбирается визуально, при этом обычно приходится исключать коротковолновый край экспериментального спектра, где сигнал мал и сильно зашумлен. Кроме того, в спектрометре, работающем в интервале длин волн 650–1000 нм, на длинноволновом краю спектра из-за большой интенсивности лазера наблюдается крыло рассеянной лазерной линии. Поэтому вблизи  $\lambda = 1000$  нм интервал длин волн шириной 10–20 нм для вычислений не используется.

Во многих работах калибровка спектрометра проводится не в единицах мощности, а в единицах, пропорциональных количеству  $N$  фотоэлек-

тронов в пикселах [11]. В таком случае по оси абсцисс откладывают значения  $x = \ln(\lambda^4 N)$ .

На рис. 1 показано окно программы, которая позволяет вычислять температуру образца по спектру излучения. В память программы заносятся файлы, в каждом из которых содержится зарегистрированный оцифрованный спектр. Файлы последовательно вызываются программой. Количество спектров может составлять от нескольких штук до десятков тысяч. Интервал длин волн для вычисления температуры задается двумя маркерами. После выбора интервала, по которому необходимо вычислять температуру, проводится единообразное вычисление для всех спектров серии, помещенной в память программы.

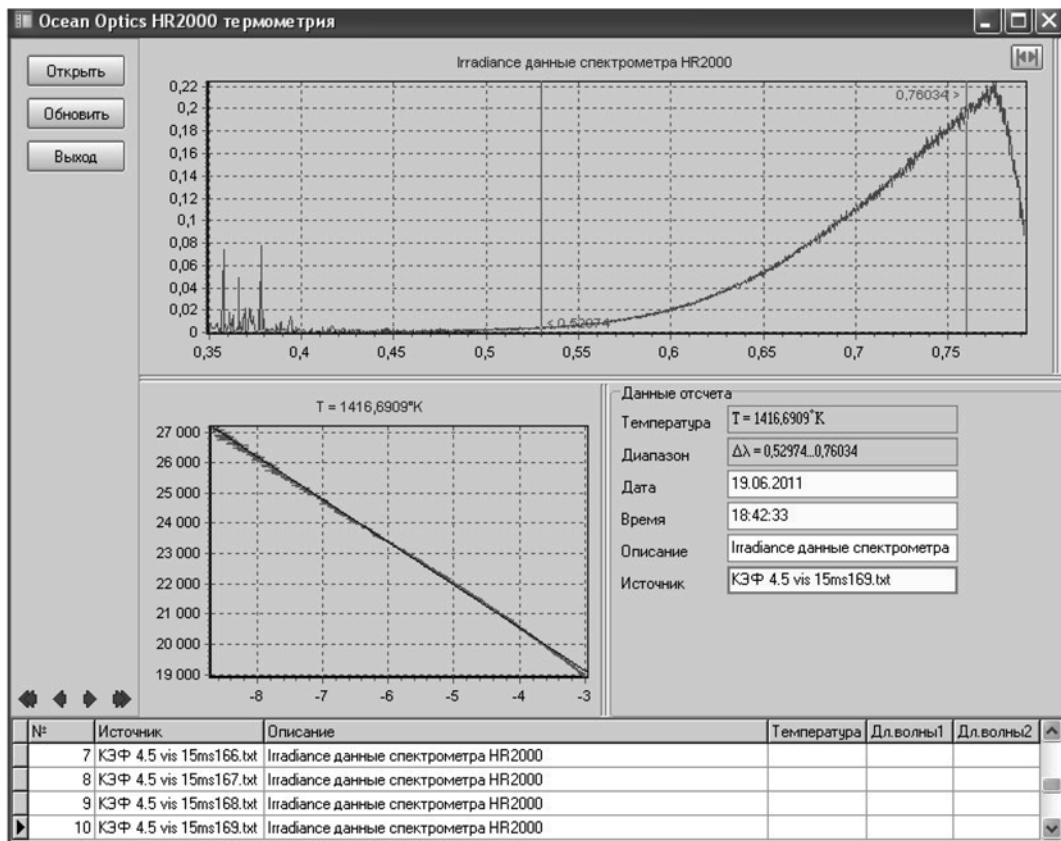
Время, в течение которого возможна регистрация последовательности спектров, ограничено только объемом памяти компьютера (например, последовательность, состоящая из 1300 спектров в интервале  $\lambda = 650$ – $1050$  нм, занимает объем 50 Мбайт).

## РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

На рис. 2 показаны спектры теплового излучения плоского образца монокристаллического кремния КЭФ-4.5 (электронная проводимость, легирующая примесь – фосфор, удельное электрическое сопротивление 4.5 Ом · см). Толщина образца 0.4 мм, образец облучают сверху по нормали к полированной поверхности лазерным пучком с плотностью мощности 100 Вт/см<sup>2</sup> в многомодовом режиме. Спектры зарегистрированы через интервалы времени 1 с в двух разных экспериментах. Размеры нагреваемого образца (2 × 2 мм) меньше диаметра пучка ( $\approx 3$  мм). Кристалл лежит на подложке из поликора (керамика на основе корунда) толщиной 0.3 мм, прозрачного для лазерного излучения. Температура плавления поликора превышает 2000 К. Приемные торцы волоконных световодов  $\varnothing 0.6$  мм расположены на расстоянии 4 см от образца.

На рис. 3 показаны те же спектры в координатах Вина. Температура определяется по наклону прямых, аппроксимирующих выбранный участок экспериментального спектра. Уравнение каждой прямой и искомая температура определяются методом наименьших квадратов. Коэффициент корреляции между экспериментальными точками и прямой обычно не менее 0.995. Спектры с существенными отклонениями от прямолинейной формы отбрасываются.

На рис. 4 показаны зависимости температуры кристалла от времени после включения и выключения лазера для двух уровней мощности накачки ( $P = 12$  и  $16$  Вт, плотность мощности на образце  $D \approx 130$  и  $180$  Вт/см<sup>2</sup>). Большое количество точек на каждой из кривых позволяет проводить численное дифференцирование и оценивать скоро-



**Рис. 1.** Окно программы “Спектральная пирометрия”. Температура монокристалла кремния вычисляется по тепловому спектру в интервале длин волн  $\lambda = 530\text{--}760$  нм (верхнее окно). В нижнем окне выбранный фрагмент спектра построен в координатах Вина, наклон прямой определяется температурой ( $T \approx 1417$  К). Время накопления спектра 15 мс.

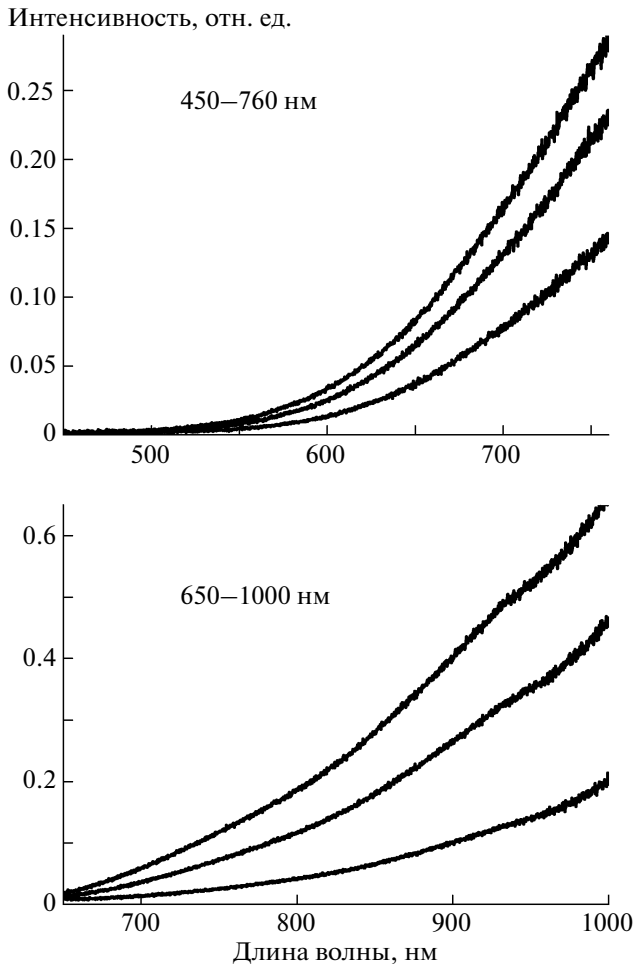
сти нагревания и остывания  $dT/dt$ . Наблюдаемая при  $T \geq 1100$  К скорость нагревания кристалла достигает 1000–1500 К/с, скорость остывания после выключения лазера достигает 3000–5000 К/с (оценочные данные).

Видно, что при большем уровне накачки установившаяся температура достигается в результате резкого уменьшения скорости нагревания, что может быть связано с нелинейным уменьшением коэффициента поглощения падающей мощности (например, из-за экспоненциального увеличения концентрации свободных носителей в кристалле) или быстрым ростом тепловых потерь (мощность теплоотвода излучением  $\sim T^4$ ). Интегральные тепловые потери, включающие кроме теплоотвода излучением также теплоотвод в подложку, при любой выбранной температуре определяются по скорости остывания кристалла после выключения лазера.

Для излучения первой гармоники неодимового лазера монокристалл кремния при  $T = 300$  К полупрозрачен (линейный коэффициент поглощения  $\alpha \approx 10$  см<sup>-1</sup>), при толщине 0.4 мм коэффициент пропускания света кристаллом составляет примерно 0.3. Поэтому при нагреве образца свет

лазера поглощается в объеме практически равномерно. С повышением температуры край межзонного поглощения света сдвигается в длинноволновую сторону, т.е. коэффициент поглощения возрастает, и при  $T > 570$  К кристалл становится непрозрачным для первой гармоники лазера. Поэтому при более высоких температурах нагревание приобретает не объемный, а поверхностный характер (при  $T = 1000$  К –  $\alpha \approx 2500$  см<sup>-1</sup>), т.е. излучение в основном поглощается в поверхностном слое глубиной менее  $h \approx 1/\alpha \approx 4$  мкм.

Температуры ниже 1100 К с помощью кремниевых п.з.с.-линеек при выбранном времени накопления видимого спектра (15 мс) определить не удастся из-за низкого уровня сигнала. Для спектрометра ближнего и.к.-спектра при том же времени накопления удастся определять температуры, превышающие 1000 К. Если время накопления спектра в интервале 760–990 нм увеличить до 35 мс, то можно зарегистрировать спектры излучения кремния при температурах  $T \geq 950$  К. Однако существенно продвинуться в сторону низких температур таким образом не удастся, так как интенсивность излучения на любой длине волны в области, где работает закон Вина, экспоненциально



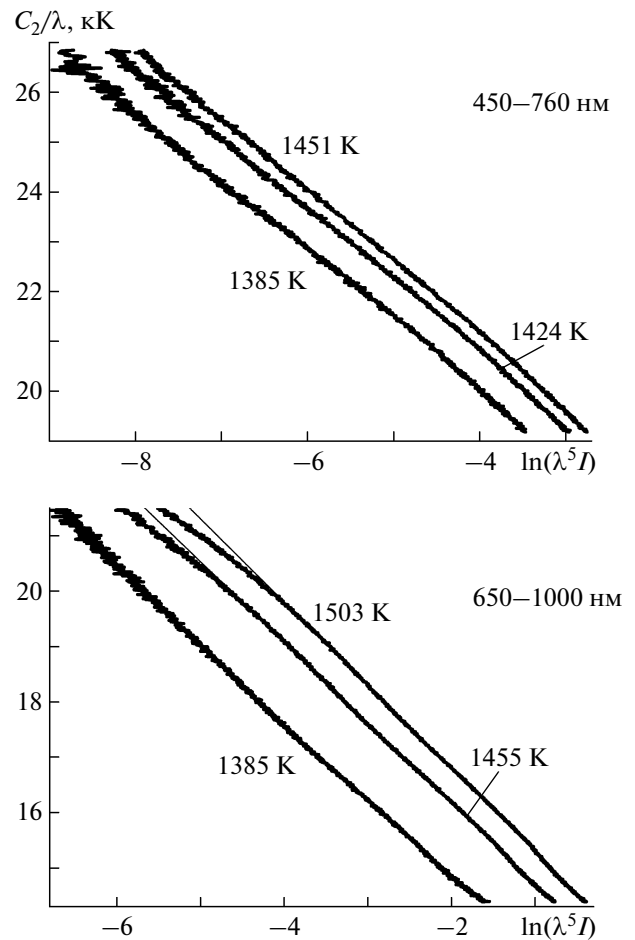
**Рис. 2.** Спектры теплового излучения монокристалла кремния, зарегистрированные в двух спектральных диапазонах с интервалом 1 с при лазерном нагревании (нижний спектр соответствует моменту времени  $t = 1$  с после начала нагревания, верхний — моменту  $t = 3$  с). Время накопления спектров 15 мс, плотность мощности лазерного излучения  $100 \text{ Вт/см}^2$ .

падает с уменьшением температуры объекта. Отношение времен, необходимых для накопления сигнала в пикселах, соответствующих одной и той же длине волны, но разным температурам объекта, определяется выражением

$$t_1/t_2 = [\exp(C_2/\lambda T_1) - 1]/[\exp(C_2/\lambda T_2) - 1].$$

Для накопления одинакового сигнала при температурах 1000 и 900 К отношение времен составляет  $t_1/t_2 \approx 25$  при  $\lambda = 500 \text{ нм}$  и  $t_1/t_2 \approx 6$  при  $\lambda = 900 \text{ нм}$ .

При повышении мощности лазера до  $25 \text{ Вт}$  (плотность мощности накачки на образце  $280 \text{ Вт/см}^2$ ) можно достичь температуры плавления, при этом интенсивность теплового излучения во всем спектре вначале падает почти в два раза, так как излучательная способность жидкого кремния при  $T \approx 1690 \text{ К}$  примерно вдвое меньше, чем твердо-



**Рис. 3.** Спектры рис. 2 в координатах Вина (нижний при  $t = 1$  с, верхний при  $t = 3$  с). Наклон прямых определяется температурой, указанной у кривых.

го монокристалла при  $T \approx 1680 \text{ К}$  [12, 13]. Облучение образца при такой мощности в течение нескольких секунд приводит к возрастанию температуры свыше  $2500 \text{ К}$ , что сопровождается вскипанием и разбрызгиванием кремния. После остывания поверхность кремния перестает быть плоской и становится шероховатой. При последующем нагреве того же образца регистрируемый спектр излучения удается спрямлять в координатах Вина, что позволяет определять температуру шероховатой поверхности.

Однако нам не удалось подобрать режим облучения, при котором температура достигла бы точки плавления при малой скорости нагревания ( $dT/dt \approx 0$ ) и оставалась постоянной в течение времени, необходимого для расплавления всего кристалла. Оценка показывает, что время, требуемое для расплавления кристаллического образца, почти в 2 раза больше времени нагревания от  $T = 300 \text{ К}$  до точки плавления (при той же подводимой мощности). Но при постепенном увеличении мощности лазера происходило значительное увеличение

температуры (от  $T \approx 1550$  К до значений, на 100–200 К превышающих точку плавления  $T_{пл} = 1685$  К). При этом наблюдались большие хаотические осцилляции температуры. Основным каналом тепловых потерь является теплоотвод в подложку (теплоотвод в подложку в 2–4 раза превышает радиационные потери), причем тепловое сопротивление контакта образца с подложкой плохо воспроизводится.

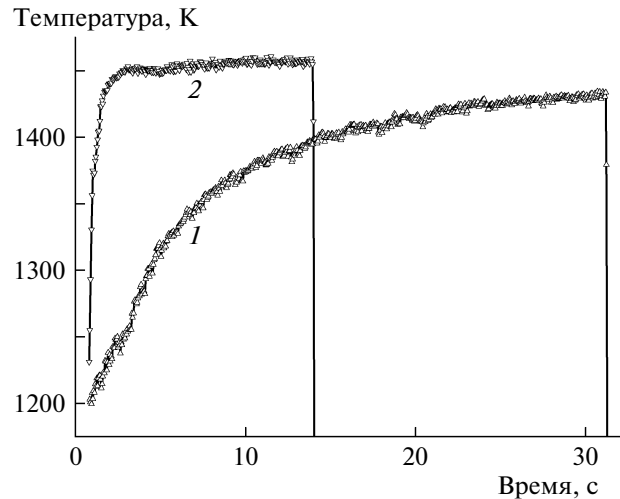
Поиск режима с температурной стабилизацией при непрерывном облучении кристалла будет продолжен, так как достижение точки плавления и регистрация участка  $T(t) = \text{const}$  позволяет точно определить систематическую погрешность измерения температуры по спектру излучения.

Итак, тепловые спектры монокристалла Si с температурами  $>1000$ – $1100$  К, а также спектры расплава Si при  $T \geq 1685$  К надежно регистрируются кремниевыми п.з.с.-линейками. Возможность измерения температур в интервале 2500–8000 К по спектрам излучения различных объектов (конденсированных сред, малых частиц) продемонстрирована в ряде работ [14–16], однако задача регистрации большого числа спектров и определения нестационарной температуры ранее не ставилась.

В данной работе нам не удалось достичь максимальной частоты записи спектров, которая для выбранного типа п.з.с.-линейек составляет 1000 Гц при минимальном времени накопления спектра 1 мс, поскольку яркость исследованного образца монокристаллического кремния недостаточно высока. Вблизи точки плавления кристалла интенсивность излучения велика и близка к насыщению п.з.с.-спектрометра при выбранном времени накопления и геометрии эксперимента. При такой температуре возможно существенное увеличение частоты регистрации спектров при уменьшении времени накопления. Например, при лазерном нагревании и горении микрочастиц Ti и Fe на воздухе удается накапливать спектры за 3–5 мс и достичь частоты регистрации спектров 200–330 Гц. Экспериментальную проблему представляет то, что наибольшее разрешение по времени желательно достигать при сравнительно низких температурах и малой интенсивности теплового излучения, т.е. на той стадии нагревания, когда скорость  $dT/dt$  велика. Очевидно, за время накопления спектра температура не должна существенно изменяться, иначе регистрироваться будет только самое интенсивное излучение в течение короткого времени, когда температура наиболее высока.

### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Спектральная пирометрия позволяет измерять нестационарную температуру монокристалла, нагреваемого лазерным излучением, независимо от фазового состояния его поверхности (ниже



**Рис. 4.** Зависимость температуры монокристалла кремния толщиной 0.4 мм от времени после включения и выключения лазера для двух уровней мощности накачки  $P$  при плотностях мощности  $D$  на образце: 1 –  $P = 12$  Вт,  $D = 130$  Вт/см<sup>2</sup>; 2 –  $P = 16$  Вт,  $D = 180$  Вт/см<sup>2</sup>.

или выше температуры плавления) и от состояния поверхности (полированная или шероховатая). Достаточным условием для определения температуры является регистрация достаточно широкого спектра теплового излучения и его подобие спектру черного тела. Подобие спектров заранее не постулируется, а проверяется в каждом эксперименте – насколько хорошо зарегистрированный спектр спрямляется в координатах закона Вина. В данной работе достигнуто временное разрешение 15 мс, которое определяется временем накопления спектров в п.з.с.-линейке, при этом определены температуры кристалла в диапазоне ( $\approx 1100$ – $\geq 2500$ ) К. Полученные зависимости  $T(t)$  включают от 200 до 1300 точек, каждая из которых получена обработкой одного спектра излучения. При сравнительно небольших мощностях лазера, когда не достигается точка плавления кремния, зависимости  $T(t)$  являются монотонными. Эти результаты создают методическую основу для изучения неизотермических высокотемпературных режимов и особенностей теплообмена при оптическом нагревании монокристаллов в быстрых термических процессах в микротехнологии.

Проведенное исследование демонстрирует как перспективность применения спектральной пирометрии для регистрации нестационарных температур, так и ограниченные возможности универсальных спектрометров для решения этой задачи. Использование в пирометрии тепловых оптических спектров, в которых интенсивность излучения растет экспоненциально как с длиной волны, так и с температурой, требует специальной организации оптической и электронной схем пирометра.

Один спектрометр с фиксированным интервалом длин волн не позволяет зарегистрировать всю кинетику нагревания (увеличение интенсивности на длине волны 760 нм в пределах всего динамического диапазона фотоприемника соответствует изменению температуры от 1000 до 1600 К). Для того чтобы записывать спектры в широком интервале температур, необходимо регистрировать излучение с помощью нескольких параллельно включенных спектральных пирометров, охватывающих широкий диапазон длин волн, выбирая, по мере увеличения температуры, все более коротковолновые участки для ее вычисления. Для измерения температур <1000 К кремниевые линейки, чувствительность которых ограничена диапазоном длин волн  $\lambda = 200\text{--}1080$  нм, непригодны.

Для регистрации зависимости  $T(t)$ , начиная от комнатной температуры, необходим дополнительный спектрометр с линейкой фотоприемников, чувствительных к излучению в интервале длин волн  $\lambda \approx 1\text{--}3$  мкм. В настоящее время созданы спектральные пирометры с высокой чувствительностью в интервале длин волн  $\lambda = 1.3\text{--}1.6$  мкм для измерения температур  $T \geq 500$  К [17], а также в интервале  $\lambda = 1.2\text{--}3.4$  мкм для измерения температур  $T \geq 400$  К [18].

Для исследования нестационарных процессов при лазерном нагревании материалов требуется регистрировать спектры теплового излучения за время порядка микросекунд. Для решения этой задачи необходимо не только повысить быстродействие п.з.с.-линеек, но и существенно увеличить светосилу спектрометра, которая оказывается недостаточно высокой при использовании волоконно-оптического входа в отсутствие собирающей оптики.

Авторы признательны Н.И. Тимченко за разработку программы для обработки спектров и вычисления температуры.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Мерджанов А.Г. // Физика горения и взрыва. 1973. Т. 9. № 1. С. 4.
2. Александров В.В., Болдырев В.В. // Изв. СО АН СССР. Сер. Хим. наук. 1974. № 9. Вып. 4. С. 59.
3. Гонтовская В.Т., Перегудов А.Н. // Инж.-физ. журн. 1993. Т. 65. № 4. С. 439.
4. Michaelsen C., Barmak K., Weihs T.P. // J. Phys. D: Appl. Phys. 1997. V. 30. P. 3167.
5. Ozawa T. // J. Thermal Analysis and Calorimetry. 2001. V. 64. P. 109.
6. Прохоров А.М., Конов В.И., Урсу И., Михэйлеску И.Н. Взаимодействие лазерного излучения с металлами. М.: Наука, 1988. С. 143.
7. Карлов Н.В., Кириченко Н.А., Лукьянчук Б.С. Лазерная термохимия. М.: Наука, 1992. С. 147.
8. Розенбанд В.И., Макарова Е.А. // Физика горения и взрыва. 1976. Т. 12. № 5. С. 669.
9. Мельников В.К., Заке М.В., Ковалев В.Н. Перенос тепла и заряда на поверхности металлов в химически активных потоках. Рига: Зинатне, 1980. С. 49.
10. Магунов А.Н. Теплообмен неравновесной плазмы с поверхностью. М.: Физматлит, 2005. С. 71.
11. Магунов А.Н. // ПТЭ. 2009. № 4. С. 5.
12. Takasuka E., Tokizaki E., Terashima K., Kimura S. // Appl. Phys. Lett. 1995. V. 67. № 2. P. 152.
13. Watanabe H., Susa M., Fukuyama H., Nagata K. // High Temperatures – High Pressures. 1999. V. 31. P. 587.
14. Boehler R. // Hyperfine Interactions. 2000. V. 128. P. 307.
15. Benedetti L.R., Loubeyre P. // High Pressure Research. 2004. V. 24. № 4. P. 423.
16. Teghil R., De Bonis A., Galasso A. et al. // Appl. Surf. Sci. 2009. V. 255. № 10. P. 5220.
17. Shuker P., Melchior A., Assor Y. et al. // Rev. Sci. Instrum. 2008. V. 79. № 7. 073908.
18. Shen G., Wang L., Ferry R. et al. // J. Phys.: Conf. Ser. 2010. V. 215. № 1. 012191.