

## ИЗМЕРЕНИЕ ТЕМПЕРАТУРНОЙ ЗАВИСИМОСТИ ОПТИЧЕСКИХ ХАРАКТЕРИСТИК МАТЕРИАЛОВ В ВАКУУМЕ

© 2012 г. Е. Ю. Локтионов, Ю. Ю. Протасов, В. Д. Телех

Московский государственный технический университет им. Н.Э. Баумана

Россия, 105005, Москва, ул. 2-я Бауманская, 5

E-mail: stcp@bmstu.ru

Поступила в редакцию 28.03.2011 г.

Описан диагностический модуль для экспериментального анализа температурной зависимости спектральных коэффициентов отражения от материалов с использованием зондирующего когерентного излучения лазерной системы с параметрическим генератором частоты ( $\lambda \sim 213\text{--}1188$  нм) и лазерным нагревом исследуемого твердотельного образца (до температур  $T \sim 2500$  К) в вакууме. Результаты экспериментального определения спектральных коэффициентов отражения внесены в создаваемый раздел базы экспериментальных и расчетно-теоретических данных теплофизических, оптических и транспортных свойств конструкционных материалов фотонных энергодвигательных и технологических установок высокой плотности мощности.

### ВВЕДЕНИЕ

Динамичное развитие систем фотоники высокой плотности мощности в последнее время приводит к тому, что все чаще конструктивные элементы фотонных энергодвигательных и технологических установок, содержащих газопоплазменные активные среды ( $T_e \sim 0.2\text{--}5$  эВ), работают при интенсивных температурных и оптических нагрузках. К таким установкам относятся, в частности, оптические ускорители и плазмотроны, плазменно-лазерные инжекторы, термоэмиссионные плазменно-оптические преобразователи и др. [1].

Температура конструкционных элементов подобных установок в различных импульсно-периодических режимах оптического воздействия может изменяться от криогенных до температур фазовых переходов “твердое тело–газ–плазма”, поэтому для анализа характеристик тепло- и массообмена в их рабочих циклах необходимы экспериментальные данные по спектральным коэффициентам отражения и поглощения конструкционных материалов в в.у.ф.–б.и.к.-областях спектра в широком диапазоне температур ( $T \sim 10\text{--}3 \cdot 10^3$  К).

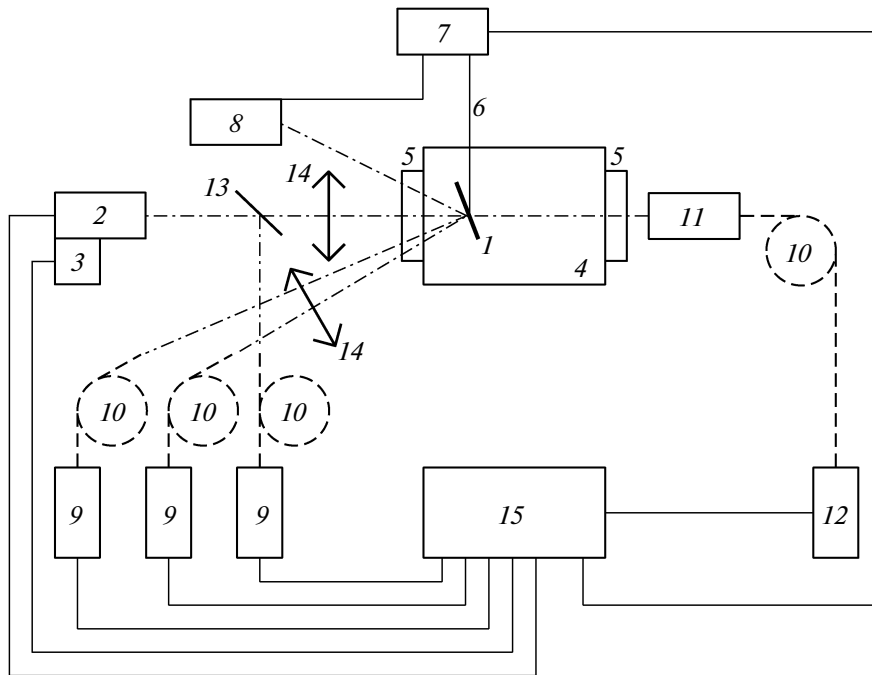
Следует отметить, что экспериментальные данные об изменении оптических характеристик веществ (особенно в коротковолновой области спектра) при различных температурах разрозненны и немногочисленны (за исключением ряда материалов микроэлектроники [2, 3] и отражающей оптики для мощных и.к.-лазеров [4]) и относятся преимущественно к специально подготовленным образцам [5–9]. Несмотря на существование ряда разработок спектрофотометров, предназначенных для массового анализа оптических характеристик веществ, находящихся в различном агрегатном со-

стоянии [10], задачи по определению оптических характеристик конденсированных веществ в широком температурном диапазоне с их использованием оказываются трудно осуществимыми.

Систематическое исследование оптических и теплофизических свойств ряда металлов (Fe, Cu, различные стали, медные и алюминиевые сплавы) и керамик (AlN, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, SiC, Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>) в диапазоне температур  $T \sim 300\text{--}2800$  К при лазерном нагреве в вакууме выполнено О.Г. Царьковой [6], однако температурные зависимости коэффициентов комбинированного отражения (с применением интегрирующей сферы) и преломления были определены лишь для длины волны излучения греющего лазера  $\lambda \sim 1064$  нм.

Существует ряд методических и инструментальных особенностей выполнения оптических измерений при повышенных температурах и в коротковолновой области спектра. Так, для уменьшения влияния сигнала термолюминесценции при высоких температурах исследуемых мишеней (а также фотолюминесценции, например, полимеров) необходимо использовать источники зондирующего излучения с высокой спектральной яркостью. Необходимость исследования температурной зависимости спектральных коэффициентов отражения металлов в вакууме обусловлена тем, что скорость образования оксидных пленок на поверхности мишени экспоненциально зависит от температуры.

Ниже кратко описаны разработанные измерительная оптическая схема и методика эксперимента по исследованию оптических характеристик материалов в в.у.ф.–б.и.к.-областях спектра при температуре исследуемых образцов  $T \sim 300\text{--}$



**Рис. 1.** Схема экспериментального модуля для исследования температурной зависимости спектральных коэффициентов отражения: 1 – мишень; 2 – наносекундный лазерный комплекс с параметрическими генераторами света; 3 – шаговый двигатель перестройки длины волны зондирующего лазерного излучения; 4 – вакуумная камера; 5 – кварцевое окно вакуумной камеры; 6 – хромель-копелевая термопара; 7 – осциллограф; 8 – двухслойный фотодиод; 9 – широкодиапазонный спектрометр; 10 – оптоволоконно; 11 – коллиматор; 12 – волоконный иттербиевый лазер для нагрева мишени; 13 – кварцевая светоделительная пластинка; 14 – кварцевая линза; 15 – персональный компьютер.

2500 К при допороговых для развитого поверхностного испарения значениях плотности мощности зондирующего излучения ( $I_0 \sim 10^{12}$  фотон/(см<sup>2</sup> · с)). Описание методики и экспериментальной установки для определения оптических характеристик в в.у.ф.-диапазоне спектра в вакууме при температурах  $T \sim 77\text{--}300$  К нами приведено в [11].

### ОПИСАНИЕ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЙ УСТАНОВКИ

Разработанная экспериментальная установка (рис. 1) состоит из источника зондирующего излучения – Nd:YAG лазерного комплекса 2 (на основе LQ529A, Solar LS:  $\tau_{0,5} \sim 10^{-8}$  с;  $\lambda \sim 213, 266, 355, 532, 1064$  нм;  $f \sim 1\text{--}10$  Гц) с параметрическими генераторами света ( $\lambda \sim 260\text{--}420, 520\text{--}1188$  нм); приемников излучения – широкодиапазонных ( $\lambda \sim 190\text{--}1100$  нм) компактных волоконных спектрометров 9 (S-100, Solar LS), регистрирующих длину волны и интенсивность (динамический диапазон 12 бит) как зондирующего, так и отраженного излучения; греющего непрерывного (с возможностью модуляции до  $\sim 5$  кГц) волоконного иттербиевого лазера 12 (ЛК-100-В, НТО “ИРЭ-Полус”:  $P_{\max} \sim 100$  Вт,  $\lambda \sim 1070$  нм); вакуумной камеры 4 ( $V \sim 5 \cdot 10^{-4}$  м<sup>3</sup>), откачиваемой

безмасляным вакуумным агрегатом (TSH071E, Pfeiffer vacuum) до давления  $p \sim 10^{-4}$  Па.

Нагрев мишени 1 осуществляется с тыльной стороны. На лицевой (отражающей) стороне мишени закреплена хромель-копелевая термопара 6 (измеряемая разность температур горячего и холодного спаев  $\Delta T$  до  $10^3$  К). Для регистрации более высоких температур применены методики оптической пирометрии спектрального отношения [12] с использованием двойного фотодетектора (ФДПК-2, ЗАО “Техноэксан”) и анализа спектра излучения нагретого тела (с помощью одного из спектрометров 9, рассинхронизованного с импульсами зондирующего излучения). Размещение термопары на расстоянии  $\sim 1$  мм от отражающей площадки при тыльном нагреве мишени позволяет минимизировать разницу между истинной и измеряемой температурами. Диаметр пятна диафрагмированного зондирующего излучения на исследуемой поверхности составляет  $\sim 2$  мм, диаметр пятна нагревающего излучения  $\sim 6$  мм.

В экспериментальном цикле регистрировалось изменение спектрального коэффициента отражения  $R(\lambda, T)$  мишени по сравнению с нормальными условиями. Температурные и спектральные измерения синхронизованы с импульсом зондирующего лазерного излучения посредством внутреннего генератора синхроимпульсов лазерного

комплекса 2. Исследуемый образец 1 для уменьшения теплоотода фиксировался тонкостенными керамическими трубками.

Сканирование по спектру зондирующего излучения осуществлялось при стационарной температуре, которая поддерживалась изменением интенсивности нагревающего лазерного излучения при наличии обратной связи с сигналом термомпары. Контроль деградации исследуемой поверхности осуществлялся путем периодической повторной регистрации оптических характеристик при нормальной температуре. Длина волны зондирующего излучения изменялась по заданному алгоритму (при наличии обратной связи со спектрометром опорного сигнала) поворотом нелинейного оптического кристалла (ВВО) при помощи микрометрического винта с приводом от шагового двигателя 3.

С учетом быстродействия спектрометров ( $\sim 7 \text{ с}^{-1}$ ) и шагового двигателя ( $\sim 50 \text{ нм/с}$ ), а также частоты следования импульсов зондирующего лазерного излучения ( $10 \text{ с}^{-1}$ ) измерения осуществлялись с частотой  $5 \text{ с}^{-1}$ . При осреднении регистрируемых значений по результатам нескольких (как правило, 5) измерений время определения оптических характеристик во всем доступном спектральном ( $\lambda \sim 213\text{--}1188 \text{ нм}$ ) и температурном ( $T \sim 300\text{--}2500 \text{ К}$ ) диапазонах с шагом по длине волны  $\Delta\lambda \sim 10 \text{ нм}$  и по температуре  $\Delta T \sim 100 \text{ К}$  составило  $\sim 35 \text{ мин}$ . Использование спектрографа с линейной п.з.с.-матрицей, позволяющей увеличить частоту регистрации спектра до  $10^3 \text{ с}^{-1}$ , и зондирующего лазера с аналогичной частотой следования импульсов позволяет на 2 порядка сократить время регистрации.

Угол падения зондирующего излучения на исследуемую поверхность может изменяться от нормального до скользящего, что обеспечивает возможность определения оптических констант исследуемых мишеней с использованием соотношений Крамерса–Кронига [13]. Разработанная оптическая схема может быть без существенных изменений использована для определения спектральной и температурной зависимостей квантового выхода и спектра фотолюминесценции и с незначительными изменениями – для регистрации спектров пропускания (поглощения) материалов. Без существенных изменений установки также может быть расширен и температурный диапазон измерений при подведении хладагента.

Существенной особенностью использования лазерного излучения в качестве зондирующего является возможность регистрации также зависимости оптических характеристик от интенсивности падающего излучения. (При максимальной пиковой мощности излучения используемой установки в уф.-области спектра  $\sim 10^6 \text{ Вт}$  интенсивность излучения на поверхности мишени может быть доведена до пороговой для большинства металлов при на-

носекундном воздействии  $\sim 10^8\text{--}10^9 \text{ Вт/см}^2$ .) Абсолютная погрешность определения температуры мишеней в диапазоне  $T \sim 300\text{--}2500 \text{ К}$  составляет  $\Delta T \sim \pm 25 \text{ К}$ , паспортное спектральное разрешение используемых спектрометров  $\Delta\lambda \sim 1 \text{ нм}$ , относительная погрешность определения изменения коэффициента отражения  $\sim \pm 5\%$ .

Для определения оптических характеристик металлов, как правило, используются тонкие пленки (толщиной  $\delta \sim 1\text{--}100 \text{ нм}$ ), нанесенные на массивные подложки. Однако ряд особенностей отражения пленок (структура поверхности, увеличение рассеяния зондирующего излучения при уменьшении толщины пленки [14]) не позволяют использовать результаты этих измерений при анализе режимов радиационного теплообмена с реальными поверхностями конструкционных материалов.

Для проведения тестовых экспериментов нами использована механически полированная ( $R_z = 0.45 \text{ мкм}$ ) Мо-мишень ( $6 \times 6 \times 1.2 \text{ мм}$ ). Молибден выбран в качестве экспериментального образца, во-первых, из-за высокой температуры плавления ( $T_{\text{пл}} \sim 2890 \text{ К}$ ), а во-вторых, из-за того, что значение температуры Дебая  $T_D \sim 470 \text{ К}$  [15] для него попадает в исследуемый температурный интервал (для  $T \geq T_D$  известна аналитическая зависимость изменения коэффициента отражения от температуры [16]). Согласно теории Друде [17], коэффициент поглощения металлов, как и поглощательная способность тел вне зависимости от их природы в соответствии с законом Кирхгофа, возрастает с увеличением температуры, что подтверждается результатами [5, 14, 18], полученными в и.к.-области спектра при низких температурах.

## РЕЗУЛЬТАТЫ ИЗМЕРЕНИЙ

На рис. 2 представлены температурные зависимости спектральных коэффициентов отражения Мо-мишени. При нагреве мишени спектральные коэффициенты отражения в видимом диапазоне спектра при  $T \geq T_D$  снижаются обратно пропорционально температуре в соответствии с зависимостью [16]:

$$\frac{dR}{dT} = -\frac{2}{\omega_p \tau T},$$

где  $\omega_p$  – плазменная частота (для Мо  $\omega_p \sim 2.13 \times 10^{14} \text{ рад/с}$  [19]),  $\tau$  – время электронной релаксации (для Мо  $\tau \sim 6 \cdot 10^{-15} \text{ с}$  [19]).

Характер этой зависимости показывает, что изменение спектральных коэффициентов отражения в абсолютном выражении остается неизменным (при  $\omega < \omega_p$ ), так как  $\omega_p$  и  $\tau$  не зависят от длины волны падающего излучения. Соответственно в работе [8] при  $T \sim 300\text{--}1000 \text{ К}$  не выявлено существенной температурной зависимости коэффициентов отражения металлов в диапазоне

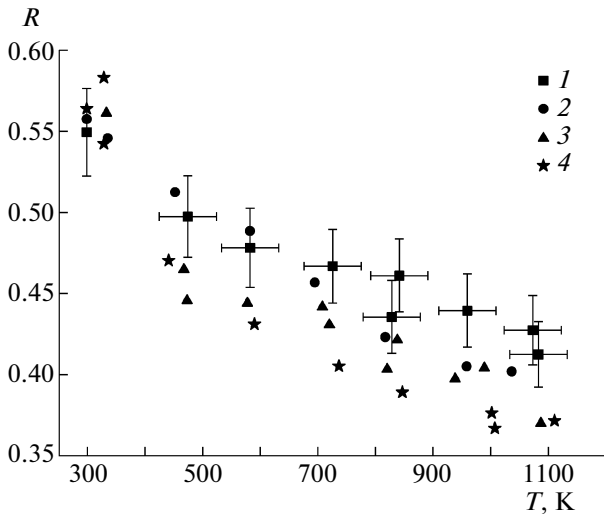


Рис. 2. Измеренные спектральные коэффициенты отражения Мо-мишени в зависимости от температуры: 1 –  $\lambda \sim 500$  нм, 2 –  $\lambda \sim 550$  нм, 3 –  $\lambda \sim 600$  нм, 4 –  $\lambda \sim 631$  нм.

длин волн зондирующего синхротронного излучения ( $\lambda \sim 10^{-1} - 10^2$  нм). Расчетные значения  $dR/dT$  в диапазоне температур  $T_D \leq T < 1200$  К находятся в хорошем соответствии с результатами наших измерений (рис. 3).

Заметное изменение характера температурной зависимости спектральных коэффициентов отражения при  $T \sim T_D$  позволяет использовать описанную методику для приближенного определения температуры Дебая различных веществ (обычно для этого используются дорогостоящие методы

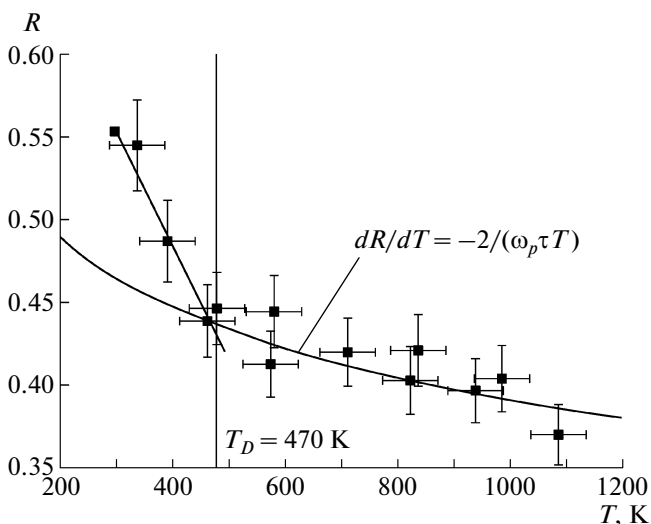


Рис. 3. Температурная зависимость спектрального ( $\lambda \sim 600$  нм) коэффициента отражения Мо-мишени по результатам измерений с использованием описанной методики.

рентгеновской дифракции [20]). Результаты наших исследований спектральных коэффициентов отражения для тех же образцов в у.ф.–в.у.ф.-диапазонах спектра [21] (где частоты электромагнитных колебаний волн зондирующего излучения меньше плазменной частоты) при температурах металлических мишеней  $T \sim 77 - 300$  К показывают, что в области низких температур знак  $dR/dT$  становится положительным, т.е. с уменьшением температуры мишени происходит уменьшение спектральных коэффициентов отражения (рис. 4).

Влияние образуемых на поверхности мишени оксидных пленок на результаты наших измерений оценено при повторном определении отражательной способности исследуемых образцов при комнатной температуре после отжига (нагрева). При температурах исследуемой поверхности до 1200 К этот эффект незначителен, при дальнейшем нагреве в среднем вакууме ( $p \sim 10^{-4}$  Па) происходит необратимое уменьшение спектральных коэффициентов отражения. Как показано в [22], эта деградация определяется глубиной вакуума в камере и практически исчезает при остаточном давлении  $p < 10^{-6}$  Па, т.е., очевидно, связана с образованием оксидных пленок на исследуемой поверхности.

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Экспериментально реализована измерительная оптическая схема для определения температурной зависимости оптических характеристик материалов в вакууме с одновременной регистрацией спектральных и энергомощностных характеристик падающего и отраженного зондирующего

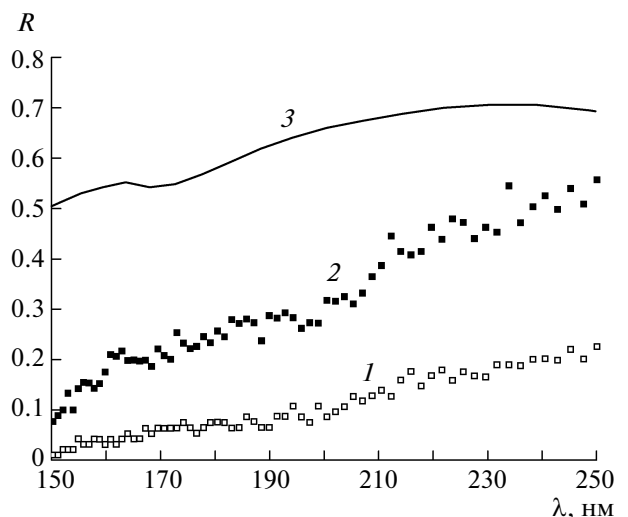


Рис. 4. Спектральные коэффициенты отражения Мо-мишени в у.ф.–в.у.ф.-диапазонах спектра при температурах  $T \sim 300$  К (1) и  $\sim 77$  К (2); 3 – справочные данные для монокристалла [23].

излучения. Лазерное излучение в схеме используется в качестве как греющего, так и зондирующего. Полученные данные могут быть использованы для приближенного определения температуры Дебая новых материалов и для оценки распределения температуры по поверхности мишени с высоким пространственно-временным разрешением при импульсном лазерном воздействии [9]. Результаты внесены в создаваемую базу экспериментальных и расчетно-теоретических данных теплофизических, оптических и транспортных свойств конструкционных материалов фотонных энергоустановок высокой плотности мощности [24].

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Энциклопедия низкотемпературной плазмы. Вводный том в 4-х книгах / Под ред. В.Е. Фортова. М.: Наука, 2000.
2. *Gervais F., Lobo R.S.M., Licheron M. et al.* // *Ferroelectrics*. 1996. V. 177. № 1. P. 107.
3. *Furuse H., Mori N., Kubo H. et al.* // *Phys. Rev. B*. 2007. V. 75. № 20. P. 205101.
4. *Decker D.L., Hodgkin V.A.* // *Proc. ASTM*. 1981. V. STP759-EB. P. 190.
5. *Мотулевич Г.П.* // Труды ФИАН им. П.Н. Лебедева. 1971. Т. 55. С. 3.
6. *Царькова О.Г.* // Труды ИОФАН им. А.М. Прохорова. 2004. Т. 60. С. 30.
7. *Шестаков Е.Н., Латыев Л.Н., Чеховской В.Я.* // *ТВТ*. 1977. Т. 15. № 2. С. 292.
8. *Nagatsu M., Takada N., Tsukishima T. et al.* // *J. Nucl. Mat.* 1995. V. 220–222. P. 846.
9. *Maiti S., Banerjee A., Mitra C.* // *Proc. SPIE*. 2010. V. 7792. P. 77920D-7.
10. *Jansen E.D., van Leeuwen T.G., Motamedi M. et al.* // *Lasers in Surgery and Medicine*. 1994. V. 14. № 3. P. 258.
11. *Иванов С.Н., Локтионов Е.Ю., Протасов Ю.Ю.* // *ПТЭ*. 2010. № 3. С. 91.
12. *Фрунзе А.В.* // *Фотоника*. 2009. № 4. С. 32.
13. *Lucarini V., Saarinen J.J., Peiponen K.-E. et al.* *Kramers-Kronig Relations in Optical Materials Research*. Heidelberg: Springer, 2005.
14. *Brandt T., Huvel M., Gompf B. et al.* // *Phys. Rev. B*. 2008. V. 78. № 20. P. 205409.
15. *Великодный А.Н., Заварицкий Н.В., Игнатьева Т.А. и др.* // *Письма в ЖЭТФ*. 1986. Т. 43. № 12. С. 597.
16. *Ziman J.M.* *Electrons and Phonons. The Theory of Transport Phenomena in Solids*. Oxford: Oxford University Press, 2001.
17. *Борн М., Вольф Э.* *Основы оптики*. М.: Наука, 1973.
18. *Лексина И.Е.* // *Труды ФИАН им. П.Н. Лебедева*. 1974. Т. 72. С. 150.
19. *Foiles C.L.* 4.2 Drude parameters of pure metals / *Electrical Resistivity, Thermoelectrical Power and Optical Properties*. Heidelberg: Springer, 1985. P. 212–222.
20. *Herbstein F.H., Smuts J.* // *Philosophical Magazine*. 1963. V. 8. № 87. P. 367.
21. *Иванов С.Н., Локтионов Е.Ю., Протасов Ю.Ю.* // *ТВТ*. 2010. Т. 48. № 3. С. 361.
22. *Тимченко Н.А.* Дисс. ... доктора физико-математических наук. М.: НИИ ядерной физики им. Д.В. Скобельцына, 2004.
23. *CRC Handbook of Chemistry and Physics*. Boca Raton: Taylor and Francis, 2007.
24. Термодинамические, оптические и транспортные свойства рабочих веществ плазменных и фотонных энергетических установок (в 3-х томах) / Под ред. Ю.С. Протасова. М.: Изд-во МГТУ им. Н.Э. Баумана, 2002.