

ОПТИКА И СПЕКТРОСКОПИЯ. ЛАЗЕРНАЯ ФИЗИКА

Оптоакустическое исследование лазерно-индуцированных околоскритических состояний тонких алюминиевых пленок

А. А. Карабутов^{1,2}, А. Г. Капительный³, А. Ю. Ивочкин⁴, Д. М. Ксенофонтов⁵,
А. Д. Трофимов^{5,a}

¹ *Международный учебно-научный лазерный центр МГУ имени М. В. Ломоносова. Россия, 119991, Москва, Ленинские горы, д. 1, стр. 62.*

² *Институт проблем лазерных и информационных технологий РАН. Россия, 140700, Московская область, г. Шатура, ул. Святоозерская, д. 1.*

³ *Объединенный институт высоких температур РАН. Россия, 125412, Москва, ул. Ижорская, д. 13, стр. 2.*

⁴ *Институт общей физики имени А. М. Прохорова РАН. Россия, 119991, Москва, ул. Вавилова, д. 38.*

⁵ *Московский государственный университет имени М. В. Ломоносова, физический факультет, кафедра общей физики и волновых процессов. Россия, 119991, Москва, Ленинские горы, д. 1, стр. 2.
E-mail: ^a alexey.d.trofimov@gmail.com*

Статья поступила 05.06.2013, подписана в печать 24.06.2013.

Представлены результаты исследования состояний алюминия в диапазоне температур 3–14 кК и давлений 0.1–4 кбар. Высокоэнергетические состояния достигались за счет нагрева субмикронной пленки металла, зажатой прозрачным диэлектриком, наносекундными лазерными импульсами с плотностью энергии до 11 Дж/см². Исследовалась динамика температуры, давления и отражающей способности алюминия с наносекундным временным разрешением.

Ключевые слова: околоскритические состояния металлов, нерезонансное взаимодействие излучения с веществом.

УДК: 534.2. PACS: 81.30.Bx, 64.60.Fr.

Введение

Исследование высокоэнергетических состояний веществ при давлениях в единицы-десятки килобар и температурах в единицы-десятки килокельвин представляет интерес как с фундаментальной, так и с прикладной точек зрения. В этой области параметров находятся в том числе критические точки многих металлов. Понимание процессов, происходящих с веществом в таких состояниях, важно в металлообработке (в частности, лазерной) и иных технологических процессах, связанных с лазерной абляцией вещества [1, 2]. Экспериментальное исследование таких состояний затруднено из-за сложности реализации в опыте одновременно условий высокого давления и высокой температуры. Тем не менее существуют экспериментальные техники, позволяющие работать в данной области параметров [3], в частности динамические (ударно-волновые) методы [4], электрический нагрев проводников [5] и лазерный нагрев вещества [6, 7]). Лазеры обеспечивают высокую плотность вложенной энергии (до 10⁶–10⁷ Дж/см³ при наносекундной длительности импульса) и возможность легко варьировать ее в широком диапазоне значений. При этом эксперимент может быть реализован на установке настольного формата.

К недостаткам лазерного нагрева обычно относят поверхностный характер нагрева вещества, затрудняющий диагностику и ограничивающий ее, как правило, оптическими методами, а также образование над поверхностью вещества экранирующего ее плазменного

факела [3]. Применяемая нами методика позволяет избавиться от этих ограничений за счет использования в качестве образцов тонких, полностью прогреваемых лазером пленок, помещенных между прозрачными подложками, которые препятствуют образованию плазменного факела. К достоинствам данной методики следует отнести и то, что все искомые величины непосредственно измеряются в эксперименте, а не рассчитываются с использованием считающегося априори известным уравнения состояния вещества или его следствий. Также наряду с термодинамическими параметрами вещества (температура, давление) проводится измерение и оптических характеристик (отражательной способности).

1. Описание методики

Исследуемые образцы (тонкие пленки алюминия) помещались между прозрачными диэлектрическими подложками (рис. 1). Лазерный импульс направлялся на образец сквозь подложку под углом 45°. Часть энергии падающего импульса поглощается в металле, нагревая его, часть — отражается. Нестационарное повышение температуры металла приводит к генерации термоупругих напряжений, которые создают волны давления, распространяющиеся от границы металла в противоположные стороны (на рис. 1 указана только волна, распространяющаяся вправо). Эта волна,

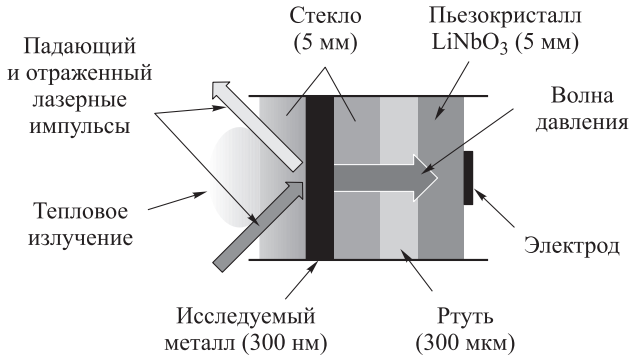


Рис. 1. Схема экспериментальной мишени

несущая информация о давлении в образце, измеряется пьезодатчиком на тыльной стороне подложки.

Диэлектрические подложки пропускают излучение видимого и ближнего ИК-диапазона и создают механическую нагрузку, препятствующую свободному тепловому расширению металла, что позволяет значительно повысить эффективность генерации давления при нагревании. Кроме того, прозрачные подложки препятствуют образованию плазменного факела, который экранирует металл в случае облучения свободной поверхности металла, позволяя таким образом измерять температуру пленки по ее тепловому излучению. Использование пьезодетекторов, в отличие от оптических схем регистрации [8], обеспечивает более широкий динамический диапазон и позволяет регистрировать наряду с волнами килобарного диапазона импульсы с амплитудой около 1 бар, возбуждаемые в линейном режиме до фазовых переходов [9]. Предложенная схема позволяет одновременно измерять динамику температуры, давления и отражательной способности металла с наносекундным временным разрешением.

Детальное описание методики измерения давления и температуры образцов можно найти в [10]. При наносекундном нагреве металла глубина прогрева мала по сравнению с расстоянием, пробегаемым акустической волной. Поэтому в области нагрева распределение давления можно считать однородным, хотя и меняющимся со временем. Ранее нами использовались термически «толстые» металлические образцы, что приводило к неоднородности распределения температуры по образцу и затрудняло интерпретацию результатов измерений.

Поэтому было предложено использовать термически «тонкие» образцы, полностью прогреваемые лазерным излучением так, что распределение температуры и давления в нем можно считать однородным и весь образец — находящимся в одном термодинамическом состоянии. Это можно считать выполненным, если за время действия лазерного импульса температура и давление успеют полностью установиться по толщине образца, т.е. толщина образца l должна быть меньше характерной длины диффузии тепла в образце $L_T = \sqrt{\chi\tau_L}$ и акустической длины волны $L_A = C_L\tau_L$ (здесь $\chi = \lambda/\rho C_p$ — температуропроводность образца, λ — теплопроводность, ρ — плотность, C_p — изобарическая теплоемкость, C_L — скорость продольных акустических волн, τ_L — длительность лазерного импульса). В нашем эксперименте (алюминиевые об-

разцы, лазерные импульсы длительностью $\tau_L \approx 6$ нс) $L_T = \sqrt{\chi\tau_L} \approx 0.8$ мкм, $L_A = C_L\tau_L \approx 36$ мкм, толщина образца $l \approx 300$ нм $< L_T < L_A$, т.е. условия однородности нагрева образца выполняются.

2. Схема эксперимента

На рис. 1 представлена схема используемой в эксперименте мишени (цилиндр из нержавеющей стали) с исследуемым образцом (металлической пленкой). Пленка помещена между подложками из стекла, создающими механическую нагрузку. Сквозь внешнее стекло (использованы стекла марки К8) лазерный импульс направляется на пленку исследуемого металла, нагревая его и вызывая повышение давления. Волна давления далее проходит через второе стекло и слой ртути до пьезокристалла (LiNbO_3), служащего детектором акустических волн. Слой ртути играет роль иммерсионной среды, требуемой для создания акустического контакта между стеклом и пьезокристаллом и обеспечивает корректную передачу акустического импульса субмикросекундной длительности. Нагревание металла приводит к испусканию им теплового излучения, которое регистрируется пирометром.

На рис. 2 представлена схема экспериментальной установки. В работе использован лазер на кристалле Nd:YAG (Quantel Ultra 50; длина импульса $\tau_L = 6$ нс, энергия в импульсе до 40 мДж, длина волны излучения $\lambda = 1.06$ мкм). Лазер излучает импульс, временной профиль которого измеряется фотодиодом и датчиком энергии. Импульс может ослабляться блоком нейтральных светофильтров на выходе из лазера. Далее импульс фокусируется собирающей линзой ($f = 10$ см) на мишень в пятно диаметром $a \approx 0.6$ мм. Отраженный от поверхности мишени лазерный импульс также регистрируется фотодиодом и датчиком энергии, что позволяет измерить коэффициент отражения мишени и его динамику в процессе нагрева.

Тепловое излучение мишени собирается в объектив пирометра с диафрагмой 1.4. Набор светофильтров блокирует рассеянное лазерное излучение и формирует требуемый спектральный диапазон регистрируемого теплового излучения. В качестве детекторов теплового излучения использованы PIN-диоды со временем нарастания ~ 1 нс. Сигналы фотоприемников и датчика давления регистрируются двумя цифровыми четырехканальными осциллографами типа «Tektronix TDS 3034B».

Измерение температуры мишени производится методом пирометрии полного излучения, т.е. по интенсивности испускаемого поверхностью мишени теплового излучения в широкой спектральной полосе. Использование в эксперименте термически тонких пленок позволяет считать их температуру неизменной по всей толщине и равной температуре поверхности. Если считать мишень серым телом, то, согласно закону Стефана–Больцмана, $I(T) = \varepsilon(T)\sigma T^4$ (здесь I — интенсивность теплового излучения мишени, T — температура металла, ε — излучательная способность, σ — постоянная Стефана–Больцмана) [11]. Излучательная способность металла $\varepsilon(T)$ определяется из коэффициента отражения мишени $r(T)$ по закону Кирхгофа $\varepsilon(T) = 1 - r(T)$ [11]. Пирометр предварительно проходит процедуру калиб-

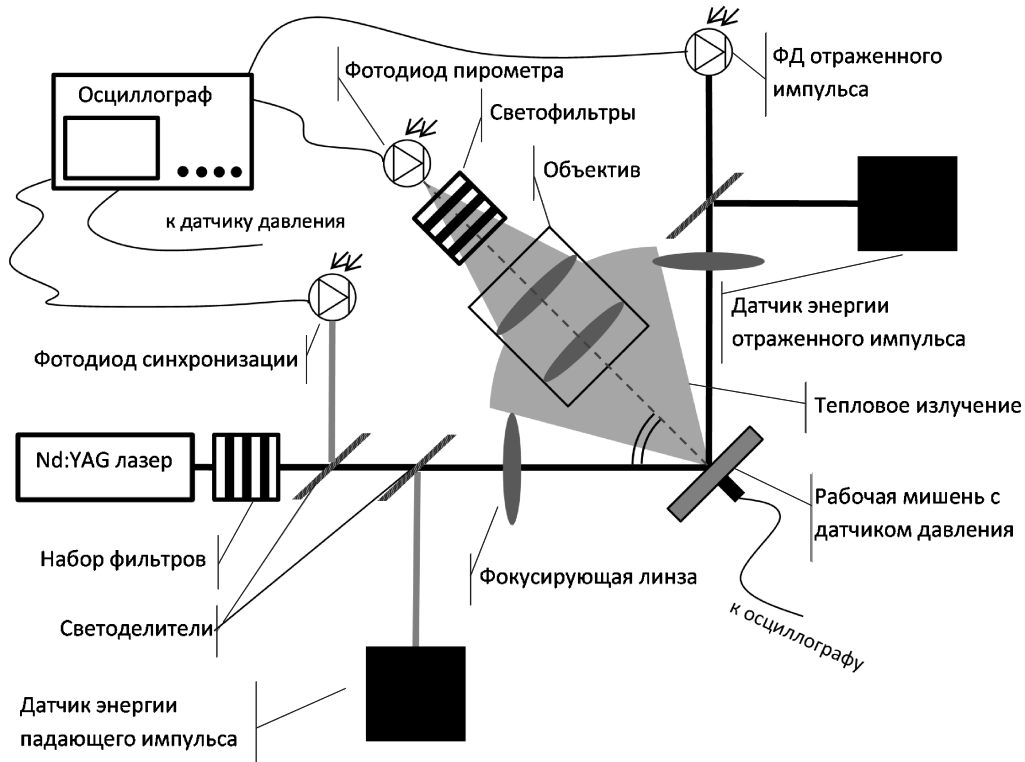


Рис. 2. Схема экспериментальной установки

ровки, связывающей показания его фотодиода с полным световым потоком, испускаемым мишенью (подробнее см. [12]).

Давление в пленке металла находится по сигналу пьезодатчика после компенсации дифракционных искажений и временной задержки, вносимых в сигнал

при его распространении в акустическом тракте. Калибровка переходной характеристики акустического тракта производится опико-акустическими методами [13], а абсолютная чувствительность определялась по нелинейным искажениям импульсов в эталонной жидкости (дистиллированная вода) [14].

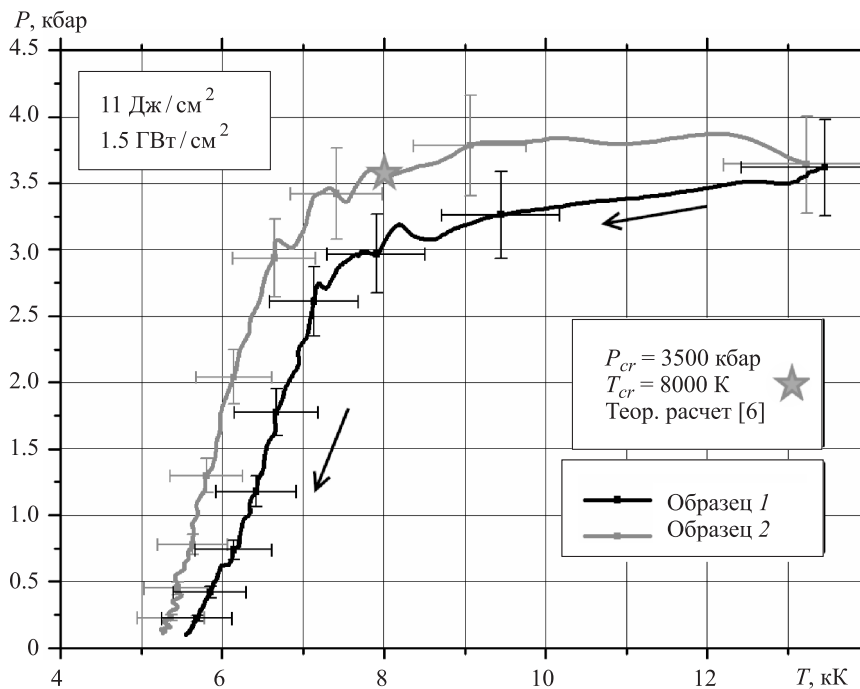


Рис. 3. Экспериментальная термодинамическая траектория алюминия. Указанная погрешность относится к абсолютному значению давления; точность определения формы кривой составляет 5–10%

3. Экспериментальные результаты

На рис. 3 представлены полученные термодинамические траектории остывания образцов после нагрева. Стрелками показано направление протекания процесса. Оба сигнала были сняты в одной серии экспериментов с различными образцами и приведены для возможности сравнения и демонстрации воспроизводимости результатов. Измерения проводились с временным интервалом 1 нс. Звездочкой отмечено положение критической точки алюминия по теоретическим оценкам [15]. Метки расставлены через равные промежутки времени $\Delta t = 20$ нс, что позволяет оценить относительную скорость протекания процесса на разных стадиях. На графике можно выделить три участка: прямые отрезки в начале и конце траектории и область излома между ними. Вначале металл претерпевает быстрое охлаждение при почти постоянном давлении, проходя через закритическую область диаграммы состояний. Затем металл проходит через околоскритическую область, где на траектории наблюдаются осцилляции, выражающие неустойчивости в поведении металла, которые могут быть вызваны пересечением термодинамической траекторией спинодалей [16]. После прохождения околоскритической области характер поведения металла меняется на медленное остывание. Спектральный диапазон и чувствительность пирометра позволяли надежно регистрировать температуры выше 2 кК с относительной точностью не хуже 3–5%. Возрастание сигнала в диапазоне температур свыше 3 кК обеспечивало динамический диапазон измерения температуры не хуже 39 дБ. Аналогичные характеристики имеет тракт регистрации акустических импульсов; порог детектирования составлял 0.1 атм; при давлениях выше 10 атм динамический диапазон составлял 39 дБ. Точность измерения давления составляла 5–10 %.

Заключение

В ходе работы были получены высокоэнергетические состояния тонких алюминиевых пленок с давлением до 4 кбар и температурой до 14 кК; достигнуты около- и сверхкритические состояния алюминия. Были измерены

динамика давления, температуры и отражательной способности алюминия в этих состояниях с наносекундным временным разрешением. По полученным данным построена термодинамическая траектория остывания металла из сверхкритического парового состояния.

Список литературы

1. Анисимов С.И., Имас Я.А., Романов Г.С. Ходыко Ю.В. Действие излучения большой мощности на металлы. М., 1970.
2. Shafiev G.A. Phase Transitions Induced by Short Laser Pulses. N.Y., 2009.
3. Boivineau M., Pottlacher G. // Intern. J. of Materials and Product Technology. 2006. **26**, N 3. P. 217.
4. Фортвов В.Е. // Успехи физ. наук. 2007. **177**, № 4. С. 347.
5. DeSilva A.W., Rakhe, A.D. // Contributions to Plasma Physics. 2005. **45**, N 3–4. P. 236.
6. Анисимов С.И., Прохоров А.М., Фортвов В.Е. // Успехи физ. наук. 1984. **142**, № 3. С. 395.
7. Karabutov A.A., Kaptil'nyi A.G., Ivochkin A.Y. // High Temperature. 2007. **45**, N 5. P. 613.
8. Barker L.M., Hollenbach R.E. // J. Appl. Physics. 1972. **43**, N 11, P. 4669.
9. Oraevsky A.A., Karabutov A.A. // Proc. SPIE. Biomedical Optoacoustics. **3916**. P. 228.
10. Ivochkin A.Y., Kaptilniy A.G., Karabutov A.A., Ksenofontov D.M. // Laser Physics. 2012. **22**, N 7. P. 1220.
11. Свет, Д.Я. Объективные методы высокотемпературной пирометрии при непрерывном спектре излучения. М., 1967.
12. Ивочкин А.Ю., Карабутов А.А., Капильный А.Г. Ксенофонтов Д.М. Методика определения температуры исследуемых объектов до 10^5 К с наносекундным временным разрешением при специальной калибровке оптического тракта пирометра. Методика ГСССД № МЭ 179-2011.
13. Гусев В.Э., Карабутов А.А. Лазерная оптоакустика. М., 1991.
14. Карабутов А.А., Андреев А.Г., Руденко О.В. // Вестн. Моск. ун-та. Физ. Астрон. 1984. № 4. С. 74.
15. Faussurier G., Blancard C., Silvestrelli P.L. // Phys. Rev. B. 2009. **79**. P. 134202.
16. Самохин А.А., Вовченко В.И., Ильичев Н.Н., Шапкин П.В. // Квант. электроника. 2007. **37**, № 12. С. 1141.

Optoacoustic study of laser-induced near-critical states of thin aluminium films

A. A. Karabutov^{1,2}, A. G. Kaptilniy³, A. Yu. Ivochkin⁴, D. M. Ksenofontov⁵, A. D. Trofimov^{5,a}

¹ International Laser Center, M. V. Lomonosov Moscow State University, Moscow 119991, Russia.

² Institute on Laser and Information Technologies, Russian Academy of Sciences, Suyatoozerskaya str. 1, Shatura, Moscow Region 140700, Russia.

³ Joint Institute for High Temperatures, Russian Academy of Sciences, Izhorskaya str. 13-2, Moscow 125412, Russia.

⁴ A. M. Prokhorov Institute of General Physics, Russian Academy of Sciences, Vavilov str. 38, Moscow 119991, Russia.

⁵ Department of General Physics and Wave Processes, Faculty of Physics, M. V. Lomonosov Moscow State University, Moscow 119991, Russia.

E-mail: ^a alexey.d.trofimov@gmail.com.

The results of an optoacoustic study of aluminum in 3–14 kK temperature range and 0.1–4 kbar pressure range are presented. These high-energy states were achieved by heating a submicron metal film loaded with a transparent

dielectric by nanosecond laser pulses with fluence up to 11 J/cm^2 . Time-resolved study of temperature, pressure and reflectivity was performed with nanosecond time resolution.

Keywords: near-critical metal states, nonresonant interaction of light with matter.

PACS: 81.30.Bx, 64.60.Fr.

Received 5 June 2013.

English version: *Moscow University Physics Bulletin* 5(2013).

Сведения об авторах

1. Карабутов Александр Алексеевич — доктор физ.-мат. наук, профессор; тел.: (495) 939-53-09; e-mail: aak@ilc.msu.ru.
2. Капильный Александр Григорьевич — канд. физ.-мат. наук, ст. науч. сотрудник; e-mail: kalexandr48@gmail.com.
3. Ивочкин Александр Юрьевич — канд. физ.-мат. наук, ст. науч. сотрудник; тел.: (495) 939-53-09, e-mail: ivochkin@yandex.ru.
4. Ксенофонов Дмитрий Михайлович — аспирант; тел.: (495) 939-53-09; e-mail: ksenofontov@physics.msu.ru.
5. Трофимов Алексей Дмитриевич — аспирант; тел.: (495) 939-53-09, e-mail: alexey.d.trofimov@gmail.com.