

С. Н. Иванов, Е. Ю. Локтионов,
Ю. Ю. Протасов

ИССЛЕДОВАНИЕ ОПТИЧЕСКИХ ХАРАКТЕРИСТИК КОНСТРУКЦИОННЫХ МАТЕРИАЛОВ ФОТОННЫХ ЭНЕРГОУСТАНОВОК НА ИСТОЧНИКЕ СИНХРОТРОННОГО ИЗЛУЧЕНИЯ. Ч. 2

Приведены описание разработанного оптического модуля с зондирующим синхротронным излучателем и результаты экспериментального определения спектральных коэффициентов отражения и поглощения ряда конструкционных материалов фотонных энергоустановок (Mo, Nb, Ti, Zr) в коротковолновом диапазоне спектра на источнике синхротронного излучения Курчатовского центра при допороговых для развитого поверхностного испарения значениях плотности мощности синхротронного излучения и температуре поверхности конденсированных мишеней 300...77° К. Полученные результаты использованы в создаваемой базе данных оптических свойств материалов.

E-mail: stcpe@bmstu.ru

Ключевые слова: спектральные коэффициенты отражения и поглощения, конструкционные материалы, фотонные энергоустановки, вакуумный оптодиагностический модуль, синхротронное излучение.

Экспериментальное определение спектральных коэффициентов отражения и поглощения конструкционных материалов в коротковолновой области спектра представляет большой научный и практический интерес, что связано с разработкой широкого спектра плазменно-оптических устройств и систем высокой плотности мощности, где конструкционные материалы находятся в непосредственном контакте с излучающей в вакуумном ультрафиолете активной средой. Следует отметить, что в настоящее время отсутствуют экспериментальные данные о спектральных коэффициентах отражения и поглощения применяемых конструкционных материалов в вакуумной ультрафиолетовой (ВУФ) области спектра как в условиях интенсивной светозероэрозии, так и в условиях плазменной экранировки падающего излучения [1, 2]. Отметим, что и для относительно хорошо изученных материалов с зеркально-диффузным характером отражения (и тонкопленочных структур на их основе) значения направленно-полусферических коэффициентов отражения $R(\lambda, T)$, полученные разными экспериментальными группами, существенно отличаются, особенно в коротковолновой области спектра [3].

Так, для количественного анализа радиационно-газодинамических процессов взаимодействия мощного оптического излучения с конденсированными активными средами и конструкционными материалами

плазменно-фотонных энергетических установок высокой плотности мощности, использующих активные светоэрозионные процессы генерации и нагрева газоплазменных потоков, для изучения динамики импульсных фазовых переходов, характеризующих эффективность преобразования энергии излучения в них, необходимы экспериментальные данные о температурных и частотных зависимостях оптических характеристик облучаемых мишеней.

В настоящей работе дано описание техники эксперимента по исследованию оптических характеристик конденсированных сред в условиях высокого вакуума и приведены результаты экспериментального определения частотной зависимости коэффициентов отражения и поглощения ряда конструкционных материалов (Mo, Nb, Ti, Zr) в коротковолновом (УФ–ВУФ)-диапазонах спектра на источнике синхротронного излучения Курчатовского центра синхротронного излучения и нанотехнологий при допороговых для развитого поверхностного испарения значениях плотности мощности зондирующего излучения ($I_0 \sim 10^{12}$ фотон/(см²·с) и температурах поверхности конденсированных мишеней 300...77 К.

Экспериментальные условия и методика эксперимента. Экспериментальное исследование спектральных зависимостей коэффициентов отражения конструкционных материалов в вакууме проводилось на разработанном оптодиагностическом модуле, позволяющем определять энергию и мощность зондирующего коротковолнового излучения и излучения, прошедшего в апертуру приемника, а также рассеянного под различными углами по отношению к поверхности мишени.

Как известно, измерение спектральных коэффициентов отражения/поглощения в ВУФ области спектра представляет собой значительную сложность, во-первых, из-за отсутствия достаточно ярких (не менее 1 мкВт/(мрад²·нм)) и широкополосных источников излучения в этой области спектра, во-вторых, из-за необходимости проведения прецизионных измерений в вакууме. Исследования по спектроскопии конденсированных сред в ВУФ области спектра выполняются в основном с использованием газоразрядных источников с линейчатым эмиссионным спектром, что ограничивает экспериментальные возможности в этом спектральном диапазоне как по числу доступных частот, так и по спектральной яркости зондирующих источников; решить эту задачу помогает использование синхротронного излучения.

Синхротронное излучение — высокоинтенсивное, широкополосное, поляризованное, с непрерывным спектром — идеально для таких измерений и позволяет получать данные, которые с традиционными источниками зондирующего излучения получить крайне сложно, а в ряде случаев и невозможно.

В ВУФ области спектра, вследствие сильного поглощения излучения веществом, необходимые толщины образцов для измерения спектра поглощения оказываются крайне малыми, как с точки зрения практических возможностей приготовления образцов, так и с точки зрения несходства их структуры со структурой массивного вещества. Поэтому наиболее целесообразно изучение оптических свойств твердых тел в этой области спектра проводить методом отражательной спектроскопии на основе измерения спектров отражения. На параметры отраженного света существенное влияние оказывает состояние и структура поверхности, в связи с чем при исследовании отражения важно тщательно готовить поверхность образцов и измерения проводить в условиях высокого вакуума, так как по отражению излучения можно выявить особенности поверхности чистого вещества, роль поверхностных уровней и состояний, поверхностных экситонов и плазмонов, поляритонов и т.д., а также кинетику адсорбции, окисления и других процессов на поверхности.

Оптическая схема диагностического модуля. Специализированный синхротронный источник ВУФ-излучения Курчатовского центра на основе электронного накопителя “Сибирь-1” характеризуется следующими параметрами: энергия линейного ускорителя электронов 80 МэВ; энергия промежуточного накопителя электронов 450 МэВ; критическая длина волны 6,13 нм; ток 100 мА; давление $10^{-7} \dots 10^{-8}$ Па; радиус электронной орбиты 1 м; время жизни электронного пучка при токе 100 мА ~ 1 ч.

В диагностическом модуле установлен монохроматор нормального падения, собранный по схеме Водсворта с вертикальной плоскостью дисперсии и горизонтальной щелью. Такой выбор щели монохроматора обусловлен фиксированным положением источника синхротронного излучения (СИ), размеры которого по горизонтали составляют 3 мм и по вертикали 0,3 мм, что обеспечивает более высокое разрешение монохроматора; интенсивность излучения в плоскости орбиты составляет 7/8 общей интенсивности излучения; излучение имеет высокую степень линейной поляризации. Излучение накопителя направляется на вогнутую сферическую дифракционную решетку с вольфрамовым покрытием (радиус кривизны 1 м, $V = 600$ штрих/мм, размер рабочей поверхности 50×40 мм, максимум концентрации энергии приходится на длины волн около 60 нм). Монохроматор диагностической станции рассчитан для работы в спектральной области от 3,5 до 35 эВ. Дифрагмированное излучение фокусируется на выходной щели, за которой установлен азотный криостат. Расстояние от излучающего сгустка электронов до дифракционной решетки ~ 10 м; угол между направлениями падающего и отраженного излучения составляет $\sim 10^\circ$.

Сканирование по спектру осуществляется через электромеханический привод шаговым двигателем, поворачивающим решетку с большой точностью (погрешность $\sim 0,02$ нм/шаг) вокруг оси, проходящей через центр решетки и параллельной плоскости орбиты.

Для устранения высших порядков перед выходной щелью вводили полосовые фильтры из кварцевого стекла (SiO_2), интервал длин волн $\lambda > 180$ нм) и фторида магния (MgF_2) на длинах волн 115...200 нм; градуировку прибора по длинам волн осуществляли с помощью уравнения решетки. Проверку градуировки и разрешающей способности проводили по линиям поглощения различных инертных газов при $\lambda > 115$ нм при напуске газа в криостат, отделенный от вакуума в канале окном из кристалла MgF_2 . Специализированный азотный криостат, установленный за выходной щелью монохроматора, позволяет измерять спектры пропускания, отражения и возбуждения люминесценции в интервале температур 77...300 К.

Регистрация излучения от облучаемой мишени производилась фотоэлектронным умножителем ФЭУ-100, работающим в режиме счета фотонов, перед фотокатодом которого были установлены сменные оптические фильтры. Поскольку ширина выходной щели монохроматора при сканировании по спектру не меняется, то интенсивность падающего на исследуемый образец излучения в рабочей спектральной области изменялась примерно на порядок. Максимум спектра за выходной щелью монохроматора приходился на область ≈ 60 нм, при этом поток фотонов на образец в спектральном интервале $\Delta\lambda \approx 1$ нм при $\lambda \sim 100$ нм ($h\nu \sim 12,4$ эВ) составлял $\sim 10^{10}$ фотон/с.

Методика исследования спектров отражения конденсированных сред. В применяемой схеме измерения спектров отражения синхротронное излучение, отражаясь от поверхности мишени, попадает на пластину из салицилата натрия ($\text{C}_7\text{H}_5\text{NaO}_3$), закрепленную на стенке вакуумной камеры. Салицилат натрия выбран в качестве эталонного материала, так как в спектральном диапазоне (3,5...80 эВ) имеет постоянный квантовый выход люминесценции $\eta \sim 0,6$. Поэтому поток фотонов от люминесценцирующего кристалла салицилата натрия используется не только для измерения отраженного сигнала, но и для регистрации распределения спектральной плотности мощности потока излучения, падающего на мишень после прохождения монохроматора (рис. 1). Во входном тракте ВУФ-монохроматора установлен ФЭУ, характеризующий силу тока электронов в канале ускорителя; результаты измерений спектра отражения нормировались по этому опорному сигналу. Спектральные измерения проводились при температуре 298 К и при температуре жидкого азота (77 К).

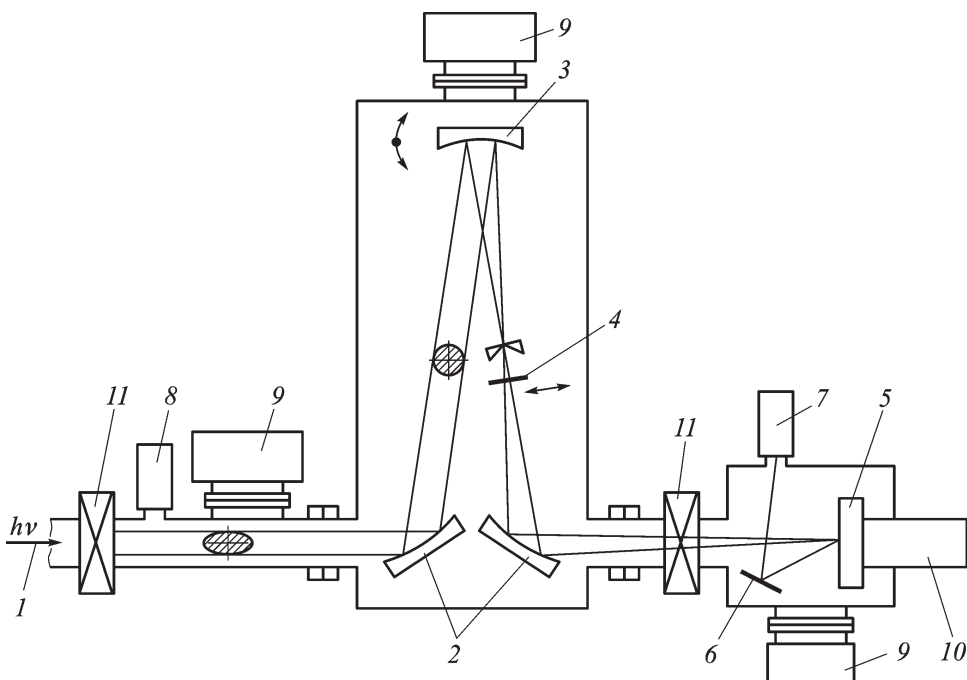


Рис. 1. Схема оптического модуля для измерения спектральных коэффициентов отражения:

1 – канал ввода синхротронного излучения; 2 – поворотные и фокусирующие тороидальные зеркала; 3 – дифракционная решетка; 4 – сменный фильтр из кварца или MgF_2 ; 5 – мишень; 6 – люминесцентная пластинка из салицилата натрия; 7 – ФЭУ регистрации пропущенного сигнала; 8 – ФЭУ регистрации опорного сигнала; 9 – магнитоэлектрические вакуумные насосы; 10 – криостат; 11 – отсечные клапаны

Результаты расчета характерного спектра СИ в канале электронного накопителя синхротрона “Сибирь-1” приведены в работе [6]. Несмотря на то, что параметры собственно СИ рассчитываются достаточно точно, метрология излучения непосредственно в зоне воздействия представляет собой сложную задачу, так как после прохождения оптической схемы ВУФ-монокроматора параметры излучения существенно изменяются. Зеркала и дифракционная решетка монокроматора имеют нестабильные спектры отражения, состояние их поверхности изменяется с течением времени, поэтому для определения спектральных плотностей мощности излучения, падающего на мишень, используются ВУФ-детекторы и люминофоры с постоянным квантовым выходом люминесценции в рассматриваемом диапазоне возбуждающего излучения (и сравнение с поверенными ВУФ-спектрометрами).

Профилограммы, характеризующие состояние поверхности исследуемых образцов и спектры отражения в видимом диапазоне длин волн ($h\nu = 1,2 \dots 3,1$ эВ), приведены на рис. 2.

Экспериментальные результаты. Для исследуемых конструкционных материалов в атмосферных условиях имеет место определенная

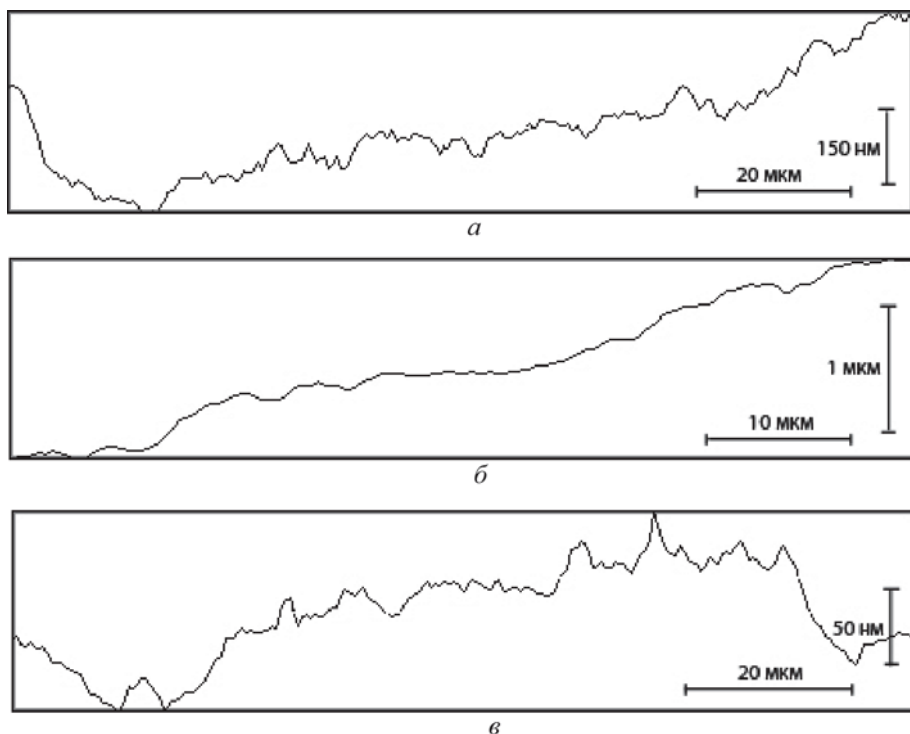


Рис. 2. Профилотграммы поверхностей исследованных образцов:
a – Mo, *б* – Nb, *в* – Ti

спектральная зависимость коэффициентов отражения $R(\lambda, T)$ в ближней ИК–УФ области спектра. Спектральные коэффициенты отражения исследуемого ряда образцов конструкционных материалов определены при температурах ($T_1 \sim 300$ К, $T_2 \sim 77$ К) мишеней с учетом эффективности дифракционной решетки, найденной по спектральному выходу в первом порядке. При нагреве в условиях даже высокого вакуума на поверхности мишеней модификация приповерхностной структуры приводит к существенному изменению спектров отражения в ВУФ области: для нагретых мишеней коэффициенты отражения в ВУФ области спектра значительно снижаются с увеличением температуры. Исследование взаимосвязи между значениями индикатрисы силы излучения, отраженного под выбранным углом при подсветке по нормали изотропных поверхностей мишеней, и эквивалентным телесным углом отраженного потока позволило определить оптимальные углы зондирования для исследуемого диапазона длин волн (при одинаковой обработке поверхности образцов) и сравнивать индикатрисы силы отраженного излучения.

Некоторые результаты экспериментального определения спектральных коэффициентов отражения $R(\lambda)$ в ВУФ области спектра (при температуре $T \sim 300$ К) для ряда образцов конструкционных

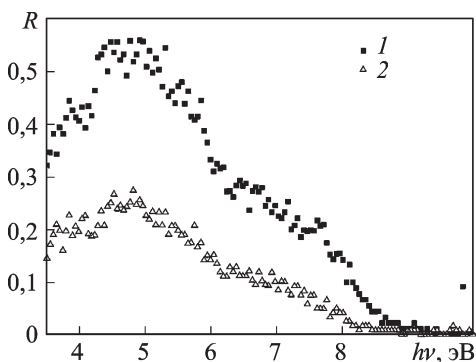


Рис. 3. Зависимость спектрального коэффициента отражения при температуре 298 К для Mo (1), Zr (2)

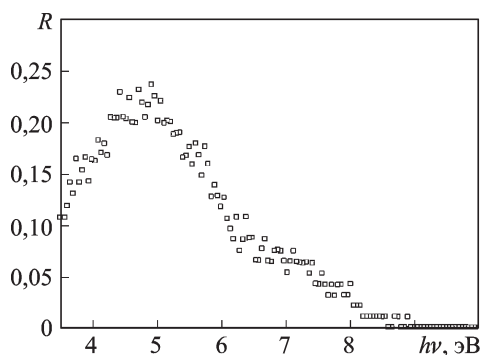


Рис. 4. Зависимость спектрального коэффициента отражения при температуре 77 К для Mo

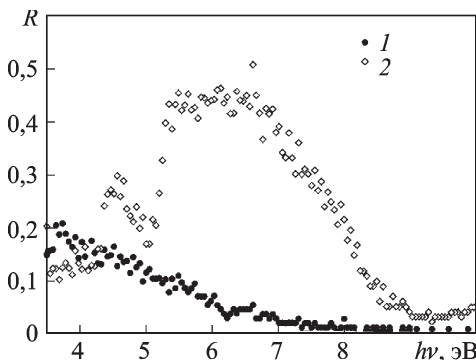


Рис. 5. Зависимость спектрального коэффициента отражения при температуре 298 К для Ti (1), Nb (2)

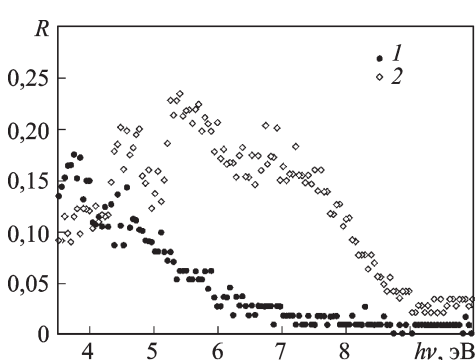


Рис. 6. Зависимость спектрального коэффициента отражения при температуре 77 К для Ti (1), Nb (2)

материалов также приведены на рис. 3–8. При этом были реализованы условия низкой спектральной плотности мощности зондирующего излучения — допороговой для начала развития волны испарения на поверхности мишеней. Хорошая воспроизводимость экспериментальных значений $R(\lambda)$ при ВУФ-узкополосном зондировании в диапазоне температур $T \sim 300 \dots 77$ К позволила выявить основные закономерности частотного распределения коэффициентов отражения в ВУФ области спектра данного класса конструкционных материалов и их корреляцию с зависимостями $R(\lambda, T)$ на лазерных частотах, которые могут быть использованы для спектрально-энергетического оптимизационного анализа плазменно-лучевых энергоустановок с лазерным воздействием применительно к ряду экспериментальных циклов стандартного фотометрического оборудования. При температурах ~ 77 К регистрируется незначительный (порядка 10 %) разброс значений $R(\lambda)$ в ВУФ области спектра, что требует статистического анализа инструментальной погрешности в каждом спектральном интервале и дальнейшего развития техники эксперимента при изучении

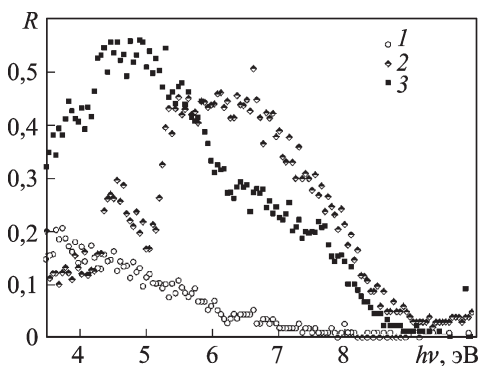


Рис. 7. Зависимость спектрального коэффициента отражения при температуре 298 К для Ti (1), Nb (2), Mo (3)

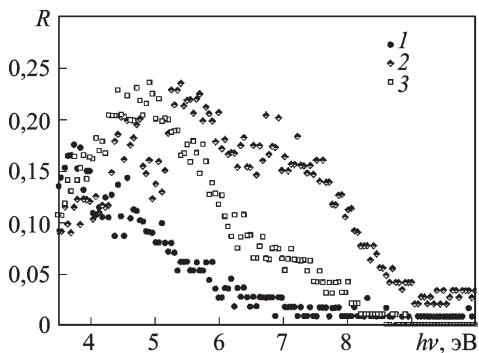


Рис. 8. Зависимость спектрального коэффициента отражения при температуре 77 К для Ti (1), Nb (2), Mo (3)

спектральных зависимостей $R(\lambda, T, I_0)$ с использованием вторичных метрологических эталонов в сверхвысоком вакууме.

В областях 3,5...5,6 и 7,5...8 эВ характерные особенности спектров отражения соответствуют данным, полученным на синхротроне NIST; качественный характер зависимости $R(\lambda)$ сохраняется в области спектра 5,5...7,5 эВ при температуре 300 К, что позволяет более надежно интерпретировать особенности в спектрах отражения, связанные со структурой энергетических зон. Например, для ниобия межзонные переходы, обусловленные тем, что d -состояния не заполнены, начинаются при энергиях меньших 1 эВ и определяют структуру в спектрах отражения и поглощения в видимой и ультрафиолетовой областях спектра. Переходы из заполненных $4d$ -состояний на свободные, запрещенные в свободных атомах в твердых телах, вследствие их перемешивания с состояниями с другой симметрией, разрешены, поэтому падающая частотная зависимость структуры спектров коэффициентов отражения и поглощения, имеющая минимум при $h\nu > 8$ эВ, может быть связана с плотностью состояний в d -полосе поглощения; при $h\nu > 10$ эВ подъем в спектрах $R(\lambda)$ может быть связан с переходами $4d \rightarrow f$. Как показывает анализ, f -полоса обладает достаточно высокой плотностью состояний (минимум при $h\nu \sim 27$ эВ).

Сравнительный анализ спектральных коэффициентов отражения $R(\lambda)$ исследуемых металлов показывает их удовлетворительное соответствие результатам для в УФ области спектра (4...6 эВ), полученным в NIST с использованием газоразрядных источников зондирующего излучения.

Выводы. Получены новые экспериментальные данные об оптических характеристиках конструкционных материалов плазменных и фотонных энергетических установок в спектральных областях, доступных для сравнения.

Следует отметить, что при исследовании временных разверток спектров отражения твердых тел, используя дисперсионные соотношения Камерса–Кронига и формулы Френеля, можно определить не только динамику электронных характеристик и ее особенности на поверхности, но и изменение этих характеристик при модификации состояния поверхности. Это достигается при нахождении из спектров отражения оптических констант вещества (показателя преломления и коэффициента поглощения), что позволяет определить спектр поверхностных и объемных плазмонов, энергия которых является характеристической для данного материала.

Исследования выполняются при поддержке РФФИ, грант № 08-08-12047.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. David R. Lide, ed. CRC Handbook of chemistry and physics / Internet version 2007, (87th Edition), <<http://www.hbcpnetbase.com>>.
2. Гинзбург В. Л., Мотулевич Г. П. // УФН. – 1955. – Т. 55 (4). – С. 469–535.
3. Weber M. J. Handbook of optical materials. – CRC press, 2003. – 499 p.
4. Зайдель А. Н., Шрейдер Е. Я. Спектроскопия вакуумного ультрафиолета. – М.: Наука, 1967. – С. 86–112.
5. Протасов Ю. Ю., Семенов А. М. // Журнал прикладной спектроскопии. – 2003. – Т. 70, № 3. – С. 49–56.
6. Иванов С. Н., Локтионов Е. Ю., Протасов Ю. Ю. // “Вестник МГТУ им. Н.Э. Баумана. Сер. “Естественные науки”. – 2009. - № 4. – С. 25–31.
7. Протасов Ю. Ю., Телех В. Д. Термодинамические, оптические и транспортные свойства рабочих веществ плазменных и фотонных энергетических установок: В 3 т. / Под ред. Ю.С.Протасова. – М.: Изд-во МГТУ им. Н.Э. Баумана, 2002.

Статья поступила в редакцию 20.08.2009

С.Н. Иванов родился в 1945 г., в 1968 г. окончил МГУ им. М.В. Ломоносова. Канд. физ.-мат. наук, главный специалист Курчатовского центра синхротронного излучения и нанотехнологий. Автор 27 научных работ в области люминесценции и исследования оптических свойств твердых тел.

S.N. Ivanov (b. 1945) graduated from the Lomonosov Moscow State University in 1968. Ph. D. (Phys.-Math.), chief specialist of the Kurchatov center of synchrotron radiation and nanotechnologies. Author of 27 publications. Specializes in the field of luminescence, study of optical properties of solid bodies.

Е.Ю. Локтионов родился в 1984 г., в 2007 г. окончил МГТУ им. Н.Э. Баумана. Аспирант кафедры “Газотурбинные и нетрадиционные установки”. Специализируется в области фотонной энергетики.

Ye.Yu. Loktionov (b. 1984) graduated from the Bauman Moscow State Technical University in 2007. Post-graduate of "Gas-turbine and Non-traditional Plants" of the Bauman Moscow State Technical University. Specializes in the field of photon energy.

Юрий Юрьевич Протасов — д-р техн. наук, профессор кафедры “Газотурбинные и нетрадиционные установки” МГТУ им. Н.Э. Баумана. Автор более 100 научных работ в области фотонной энергетики.

Yu.Yu. Protasov — D. Sc. (Eng.), professor of “Gas-Turbine and Non-Traditional Facilities” department of the Bauman Moscow State Technical University. Author of more than 100 publications in the field of photon energy.