

УДК 536.2.083

## ОПТИЧЕСКИЙ МЕТОД И УСТРОЙСТВО ДЛЯ ИЗМЕРЕНИЯ ТЕМПЕРАТУРОПРОВОДНОСТИ ТВЕРДОТЕЛЬНЫХ МАТЕРИАЛОВ

*Киселёв И.Г., Ивакин Е.В.*

Институт физики им. Б.И. Степанова НАН Беларуси, г. Минск, Республика Беларусь

*Приводится принцип измерения температуропроводности твердых тел, в том числе тонких пленок, с помощью наведенных светом тепловых динамических решеток. Дается описание созданного лазерно-оптического комплекса, позволяющего производить на основе метода динамических решеток бесконтактные измерения температуропроводности. (E-mail: i.kisialiou@gmail.com)*

**Ключевые слова:** теплопроводность, температуропроводность, оптические методы измерения, динамические решетки.

### Введение

Задача измерения теплопроводности материалов имеет большое значение по многим причинам. Знание этого параметра необходимо, например, для прогнозирования характера распределения и отвода тепла в системах и устройствах, диагностики морфологии поверхности и объемной структуры материала, обнаружения скрытых дефектов. Кроме того, измерение теплопроводности позволяет судить о качестве и особенностях многих технологических процессов.

Традиционные методы являются контактными, т.е. требуют подсоединения к поверхности образца источников тепла и датчиков температуры. Они не подходят для диагностики твердых тел малого размера или толщины. В то же время измерение теплопроводности можно выполнить, используя разнообразные оптические методы, которые обладают рядом принципиальных преимуществ. Бесконтактный характер оптических измерений позволяет производить локальное исследование материалов, в том числе слоистых, таких как тонкая пленка на подложке. Кроме того, манипулируя пространственным масштабом и конфигурацией измерений, можно добиться раздельного измерения вертикальной и горизонтальной теплопроводности анизотропных или неоднородных материалов.

Как правило, оптические методы являются нестационарными и не требуют длительного времени для установления теплового равновесия. Лазерный источник света создает тепловой дельта-импульс, затем исследуется динамика распределения температуры в образце и таким образом определяется температуропроводность. Температуропроводность материала  $\chi$  является важным тепловым параметром, определяющим скорость переходных процессов нагревания и охлаждения. Она связана с теплопроводностью  $K$  соотношением:

$$\chi = K(\rho C)^{-1}, \quad (1)$$

где  $\rho$  – это плотность материала;  $C$  – его удельная теплоемкость.

В настоящее время для определения температуропроводности применяются такие оптические методы, как «flash-метод» Паркера [1], методы бегущей волны [2], термоотражения [3], тепловых динамических решеток [4], а также фотоакустические методы в различных вариантах [5, 6]. Однако в Республике Беларусь практически отсутствуют какие-либо средства измерения температуропроводности, применимые для пленок и образцов малого размера.

В настоящей работе описывается лазерно-оптический комплекс для измерения температуропроводности, созданный в Институте физики им. Б.И. Степанова НАН Беларуси и ре-

лизирующий оптический метод тепловых динамических решеток.

### Описание принципа измерения

В методе тепловых динамических решеток в образце создается источник тепла в пространственно-периодическом виде. На образец падает короткий световой импульс в форме интерференционных полос, образованных сходящимися когерентными лазерными пучками. В случае когда излучение поглощается в тонком приповерхностном слое, в начальный момент времени образуется поверхностная тепловая решетка. При слабом поглощении создается объемная решетка, т.е. выделившееся тепло изначально распределено по всей глубине и синусоидально вдоль оси, параллельной поверхности образца. Периодический профиль температуры вызывает пространственную модуляцию оптических характеристик образца, таких как показатель преломления, коэффициент отражения, а также смещение поверхности. Таким образом, тепловая решетка может быть считана по дифракции прошедшего или отраженного луча зондирующего лазера.

В случае объемной решетки ее затухание происходит исключительно за счет горизонтальной (т.е. параллельной поверхности) диффузии тепла и подчиняется простому экспоненциальному закону. Горизонтальная теплопроводность  $\chi_x$  определяется из времени релаксации решетки  $\tau$  и заранее известного периода решетки  $\Lambda$  согласно соотношению:

$$\chi_x = \frac{\Lambda^2}{4\pi^2 \tau}. \quad (2)$$

В случае поверхностной решетки дифракция отраженного луча происходит либо за счет формирования рельефа, либо вследствие температурного изменения коэффициента отражения. При этом затухание решетки обусловлено как горизонтальным теплопереносом, так и оттоком тепла вглубь образца. Для решетки термоотражения ее амплитуда есть функция температуры поверхности в областях горячего и холодного штриха. Температура поверхности изменяется по следующему закону [4]:

$$T(x, t) \propto \frac{1}{\sqrt{t}} \left( 1 + \exp\left(-\frac{4\pi^2 \chi_x}{\Lambda^2} t\right) \cos\left(\frac{2\pi}{\Lambda} x\right) \right). \quad (3)$$

Здесь и далее ось  $x$  направлена вдоль вектора решетки и параллельна поверхности образца, ось  $z$  перпендикулярна поверхности.

Амплитуда рельефной решетки пропорциональна смещению поверхности, которое, согласно теории, для изотропного материала ( $\chi_x = \chi_z = \chi$ ) меняется во времени как функция  $\operatorname{erfc}$ :

$$\frac{\partial u_z}{\partial x} \propto \operatorname{erfc}\left(\sqrt{\frac{4\pi^2 \chi}{\Lambda^2} t}\right). \quad (4)$$

При этом надо иметь в виду, что хотя дифракционная эффективность рельефной решетки обычно значительно превышает эффективность решетки термоотражения, для некоторых материалов их вклады могут быть сопоставимы. В этом случае следует применять более сложную модель или разделять по фазе сигналы от различных решеток, используя принцип оптического гомодинного усиления [7].

Отдельного внимания заслуживает задача измерения теплопроводности слоистых материалов, в частности тонких пленок на подложке. Как известно, подложка может оказывать значительное влияние на результаты измерений. Если теплопроводность подложки сопоставима с теплопроводностью пленки  $\chi$  или превышает ее, то за время измерения ( $\tau \sim \Lambda^2 \chi^{-1}$ ) тепло успевает проникнуть вглубь на некоторое расстояние, зависящее от теплопроводности подложки. Поэтому, если рассматривать образец как квазиоднородный, вместо истинной теплопроводности при зондировании рефракционной (в прошедшем свете) или рельефной отражающей решетки будет измеряться некоторая эффективная величина, усредненная по глубине проникновения тепла. В предельном случае, когда глубина проникновения тепла в подложку за время измерения намного превышает толщину пленки  $d$ , кинетика дифракции почти не зависит от свойств пленки и в основном определяется подложкой. Данное обстоятельство удобно использовать для работы с образцами, прозрачными в широком диапазоне длин волн и при этом обладающими высокой теплопроводностью. Образец в этом случае предварительно покрывается тонкой пленкой, полупрозрачной в видимой области и служащей для поглощения лазерного импульса. Если подложка эффективно отводит тепло, оно успевает сохранить про-

странственно-периодическое распределение, проникнув в образец на глубину, значительно превышающую толщину пленки. Таким образом, в эксперименте определяется искомая температуропроводность подложки.

В другом предельном случае ( $\Lambda \ll d$ ) подложка не влияет на кинетику дифракции. Очевидно, что по мере проникновения в глубину образца, тепловая решетка теряет контраст из-за термодиффузии в поперечном направлении. Теоретически показано, что даже при  $d \sim \Lambda/2\pi$  ( $\Lambda \sim 2\pi d$ ) подложка слабо влияет на измерения [4]. Кроме того, рельеф формируется преимущественно за счет смещения приповерхностного материала, особенно в случае сильного поглощения, а для решетки термоотражения имеет значение только температура поверхности. В случае пленки, хорошо проводящей тепло, на подложке с малой теплопроводностью (например, металл на стекле) поперечный теплоперенос в пленке в основном определяет всю кинетику дифракции.

Таким образом, метод динамических решеток обладает широкими возможностями и универсальностью, в том числе за счет возможности манипулировать пространственным масштабом измерений. В то же время интерпретация насыщенных информацией данных может потребовать глубокого понимания, правильной постановки эксперимента и наличия тщательно разработанных моделей.

### Лазерно-оптический комплекс «Оптопикотест»

Метод тепловых динамических решеток реализован в лазерно-оптическом комплексе «Оптопикотест», созданном в Институте физики им. Б.И. Степанова НАН Беларуси. В соответствии с функциональным назначением можно мысленно выделить три логические части установки: блок источников излучения, оптико-механический блок и блок регистрации.

Блок источников излучения включает в себя лазеры и нелинейные преобразователи частот излучения (генераторы гармоник, оптический параметрический генератор и др.) и служит для генерации лазерных импульсов, возбуждающих тепловую решетку в образце, а также для генерации непрерывного лазерного излучения зонда.

Оптико-механический блок представляет собой совокупность оптических, механических,

оптоэлектронных и электронных элементов, предназначенных для управления оптическими параметрами и направлением лазерного излучения. Он включает в себя линии возбуждения и зондирования динамических решеток, узел для крепления образца, сам образец и оптическую линию, обеспечивающую попадание зондирующего излучения на фотоприемник.

Блок регистрации – это оптоэлектронные детекторы и устройства для аналого-цифрового преобразования сигнала и записи данных (например, цифровой осциллограф).

На рисунке 1 показана оптическая схема установки, выполненная в двух вариантах: для работы с большими (сверху) и малыми (снизу) периодами.

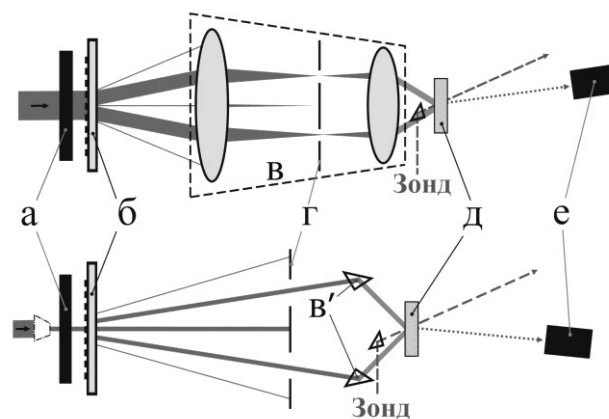


Рисунок 1 – Оптическая схема комплекса «Оптопикотест»: а – аттенюатор; б – светоделитель; в – телескоп; в' – поворотные призмы; г – пространственный фильтр; д – образец; е – фотоприемник

Луч лазера возбуждения после ослабления аттенюатором (а) проходит через дифракционный светоделитель (б), имеющий заданный период  $\Lambda_0$  и специально рассчитанный профиль, при котором для данной длины волны основная часть энергии переходит в  $\pm 1$ -ый порядки. Изображение светоделителя на образце формируется с увеличением  $M = 0,5$  конфокальным телескопом (в) на основе двух положительных линз из кварца марки КУ. В перетяжке телескопа расположен пространственный фильтр (г), который пропускает два пучка, соответствующие  $\pm 1$ -ому порядкам дифракции на светоделителе. Далее пучки возбуждения сходятся на образце (д) и интерферируют, приводя к синусоидальному в поперечном направлении распределению интенсивности падающего света. Период формируемой динамической решетки пропорционален периоду штрихов светоделителя:

$$\Lambda = \frac{1}{2} M \Lambda_0. \quad (5)$$

Множитель 1/2 возникает из-за того, что в записи динамической решетки не участвует пучок, соответствующий нулевому порядку дифракции на светоделителе. Сами светоделители (б) являются сменными, что дает возможность варьировать период решетки  $\Lambda$  для каждой конкретной длины волны возбуждения. Они устанавливаются на столик с возможностью точно контролируемого движения вдоль вектора решетки. Поперечный сдвиг светоделителя на расстояние  $\Lambda_0/4$  эквивалентен сдвигу динамической решетки на половину ее периода. Возможность сдвига необходима для контроля разности фаз между дифрагированным и рассеянным на образце когерентными пучками, поскольку их интерференция значительно влияет на результирующий сигнал [8].

Для возбуждения динамической решетки возможно использование не только телескопической линзовой системы, но и других вариантов оптической схемы, например на основе поворотных призм (в' на рисунке 1). Такие схемы обычно требуются для достижения больших углов схождения лучей, т.е. малых (менее 5 мкм) периодов динамической решетки.

Решетки зондируются лучом непрерывного лазера (гелий-неоновый лазер с  $\lambda = 633$  нм) в геометрии на пропускание или на отражение. Угол падения зондирующего пучка может подбираться в соответствии с условием Брэгга для объемной дифракционной решетки. Пятно зонда на образце совмещается с пятном возбуждения. Для уменьшения засветки фотоприемника луч зондирования модулируется акустооптическим затвором синхронно с импульсом накачки. Первый порядок дифракции на динамической решетке направляется на вход оптоволокна и далее регистрируется фотозатвором умножителем (ФЭУ). Временная развертка сигнала с ФЭУ производится цифровым осциллографом Tektronix TDS3032B с полосой пропускания 300 МГц. Фотометрирование первого порядка дифракции относительно ослабленного нейтральными светофильтрами нулевого порядка позволяет получать данные о дифракционной эффективности динамической решетки. Средняя по пятну плотность энергии возбуждения измеряется в плоскости образца с помощью детектора сред-

ней мощности 11XLP-12-3S-H2 производства Standa Ltd.

Основные технические характеристики лазерно-оптического комплекса «Оптопикотест» приведены в таблице.

Таблица

**Технические характеристики комплекса «Оптопикотест»**

Длины волн импульсного лазерного излучения	213, 266, 355, 532, 700–1500 нм
Минимальная толщина измеряемой пленки	1 мкм (до 50 нм для металлической пленки на стеклянной подложке)
Минимальные размеры образца/подложки	диаметр 2 мм, толщина 0,1 мм
Временное разрешение	3 нс
Диапазон характерных времен процессов	10 нс–100 мс
Диапазон измеряемой температуропроводности (теплопроводности)	$10^{-4}$ – $30$ см <sup>2</sup> /с ( $\approx 10^{-2}$ –4000 Вт/м*К)

Комплекс аттестован по теплопроводности с помощью рабочих эталонов из стали марки 12X1810Т (работа на отражение) и стекла К8 ГОСТ 13658-68 (работа на пропускание), изготовленных и паспортизованных во ВНИИ метрологии им. Д.И. Менделеева (г. Санкт-Петербург). Для сигналов конкретной формы, являющихся следствием известных внутренних процессов, комплекс «Оптопикотест» можно рассматривать как измерительную систему для определения времени релаксации различной физической природы и связанных с ним величин. Правильность измерения времени релаксации и влияние аппаратуры (аппаратной функции) контролируется с помощью эталона. Предварительная калибровка измерительной системы по стандартному эталону позволяет осуществлять метрологически обеспеченные измерения температуропроводности твердых материалов в широком интервале значений [9]. На рисунке 2 показан график, на котором сопоставлены измеряемое характеристическое время релаксации тепловой решетки в эталонном образце и время релаксации, рас-

считанное по известной температуропроводности эталона.

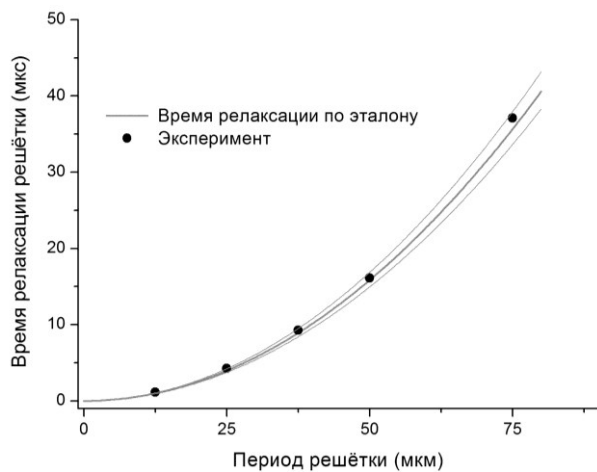


Рисунок 2 – Сопоставление измеренного времени релаксации тепловой решетки в рабочем эталоне из нержавеющей стали 12Х18Н10Т (ГОСТ 5632-72) с номинальным временем релаксации, рассчитанным из паспортного значения температуропроводности

### Заключение

Представлен лазерно-оптический комплекс, реализующий оптический метод динамических решеток для бесконтактного измерения температуропроводности твердотельных объемных и пленочных материалов в диапазоне от  $10^{-4}$  до  $30 \text{ см}^2/\text{с}$ .

### Список использованных источников

1. *Parker, W.J.* Method of Determining Thermal Diffusivity, Heat Capacity and Thermal Conductivity / W.J. Parker, R.J. Jenkins, C.P. Butler, G.L. Abbott // *J. Appl. Phys.* – 1961. – Vol. 32 (9). – P. 1679–1685.
2. *Bhusari, D.M.* Traveling wave method for measurement of thermal conductivity of thin films / D.M. Bhusari, C.W. Teng, K.H. Chen [et al.] // *Rev. Sci. Instrum.* – 1997. – Vol. 68. – P. 4180–4183.
3. *Taketoshi, N.* Observation of Heat Diffusion across Submicrometer Metal Thin Films Using a Picosecond Thermoreflectance Technique / N. Taketoshi, T. Baba, A. Ono // *Jpn. J. Appl. Phys.* – 1999. – Vol. 38. – P. 1268–1271.
4. *Käding, O.W.* Transient thermal gratings at surfaces for thermal characterization of bulk materials and thin films / O.W. Käding, H. Skurk, A.A. Maznev, E. Matthias // *App. Phys. A: Mat. Sc. Proc.* – 1995. – Vol. 61 (3). – P. 253–261.
5. *Charpentier, P.* Photoacoustic measurements of thermal diffusivity description of the drum effect / P. Charpentier, F. Lepourte, L. Bertrand // *J. Appl. Phys.* – 1982. – Vol. 53. – P. 608–614.
6. *Ivakin, E.V.* Out-of-plane thermal diffusivity measurement of transparent thin film by the acoustic grating excitation / E.V. Ivakin, M.U. Karelin, A.V. Sukhadolau // *J. Appl. Phys.* – 2009. – Vol. 105. – P. 113107.
7. *Johnson, J.A.* Phase-controlled, heterodyne laser-induced transient grating measurements of thermal transport properties in opaque material / J.A. Johnson, A.A. Maznev, M.T. Bulsara [et al.] // *J. Appl. Phys.* – 2012. – Vol. 111. – P. 023503.
8. *Ивакин, Е.В.* Измерение теплопроводности поликристаллического CVD-алмаза методом импульсных динамических решеток / Е.В. Ивакин, А.В. Суходолов, В.Г. Ральченко [и др.] // *Квант. электрон.* – 2002. – 32. – С. 367–372.
9. Патент на изобретение Республики Беларусь №16130, пер. 2012.04.10, Е.В. Ивакин, И.Г. Киселев.

Kisialiou I.G., Ivakin E.V.

### Optical method and set-up for the thermal diffusivity measurement of solid state materials

Application of light-induced thermal transient gratings for measurement of thermal diffusivity of solid state materials including thin films is presented. Laser-optical set-up, which allows non-contact measurement of thermal diffusivity by transient gratings' method is described. The set-up was designed in B.I. Stepanov Institute of Physics of NAS of Belarus. (E-mail: i.kisialiou@gmail.com)

**Key words:** thermal conductivity, thermal diffusivity, optical methods, transient gratings.

Поступила в редакцию 30.09.2013.