

Нетепловое свечение поверхности вольфрама, при воздействии лазерных импульсов

© А.Ф. Банишев, В.Я. Панченко, А.В. Шишков

Научно-исследовательский центр по технологическим лазерам Российской академии наук,
140700 Шатура, Московская обл., Россия

E-mail: center@laser.nictl.msk.su

(Поступила в окончательном виде 29 января 1999 г.)

Представлены результаты исследования нетеплового свечения поверхности вольфрама, инициируемого термомодеформациями, возникающими при воздействии лазерных импульсов. Исследовался спектральный состав и временная зависимость отдельных спектральных компонент свечения. Обнаружены осцилляции интенсивности свечения, которые интерпретируются определенной последовательностью выхода дислокаций на поверхность.

В работах [1–3] исследовалось нетепловое свечение (механолюминесценция — МЛ) металлических образцов из Ag, Au, Pt, Cu в результате воздействия на них импульсов YAG:Nd лазера. Регистрация сигнала проводилась с тыльной по отношению к воздействию лазерных импульсов стороны образца. Было установлено, что МЛ обусловлена выходом подвижных дислокаций на поверхность, а ее интенсивность зависит от начальной плотности дислокаций в образце и от плотности мощности I_{las} воздействующего лазерного импульса. Указывалось, что возбуждение МЛ возможно как за счет термонапряжений, так и за счет генерации достаточно мощных акустических волн (плотность мощности лазерного импульса I_{las} при этом выше порога плазмообразования). Увеличение I_{las} приводит к росту интенсивности МЛ, который объяснялся увеличением потока дислокаций, выходящих на поверхность за счет повышения термонапряжений в образце. В работе [3] были проведены расчеты и измерения температуры исследуемой части поверхности, согласно которым температура, например для медных образцов, при воздействии на них лазерными импульсами с $I_{\text{las}} \approx 10^5 \text{ W/cm}^2$ не превышала нескольких десятков градусов, и поэтому вкладом теплового свечения в наблюдаемый сигнал, вероятно, можно пренебречь.

Следует заметить, что механоэмиссия фотонов наблюдалась также в работах [4,5], где исследовалось деформационное свечение щелочно-галлоидных кристаллов. Установлено, что механоэмиссия фотонов в них связана с движением и пересечением дислокаций определенного типа.

Спектральный состав и временная зависимость интенсивности МЛ имеют довольно сложный вид. Насколько нам известно, в особенности для металлов, нет общепринятой модели, позволяющей описать механизм испускания фотонов при генерации и движения дефектов, а также зависимости интенсивности свечения от концентрации дефектов, температуры и упругих напряжений.

В данной работе представлены результаты исследований нетеплового свечения образцов из вольфрама при воздействии на них импульсов YAG:Nd лазера. Вольфрам отличается хрупкостью и высокими значе-

ниями упругих модулей, и, вероятно, поэтому низкой подвижностью дислокаций. Следовательно, если МЛ металлов связана с выходом на поверхность подвижных дислокаций, то можно ожидать, что в вольфраме она будет затруднена из-за низкой подвижности последних. Измерения проводились в вакуумной камере, что позволяло значительно уменьшить вклад, возможно, имеющих место окислительных процессов в наблюдаемый сигнал. Исследовались спектральный состав и временная зависимость отдельных спектральных компонент свечения.

1. Схема проведения эксперимента

На рис. 1 показана схема экспериментальной установки. Исследуемый образец (3) устанавливался в вакуумную камеру (2), давление в которой могло меняться от 10^{-2} Торр до одной атмосферы. Образцы подвергались воздействию импульсов YAG:Nd лазера (1) с параметрами выходного излучения $\tau_p = 1.4 \text{ ms}$, $E_{\text{max}} = 3.5 \text{ J}$ (режим свободной генерации). Излучение лазера фоку-

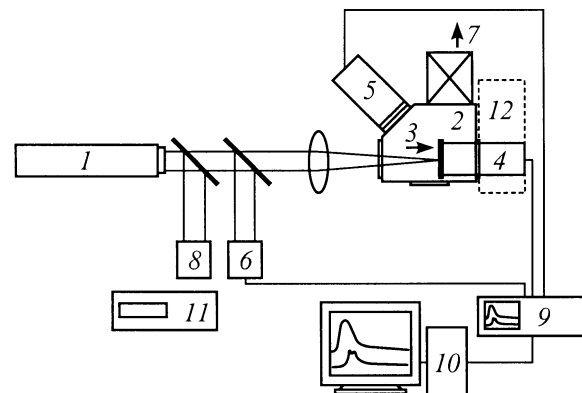


Рис. 1. Схема экспериментальной установки: 1 — YAG:Nd лазер ($E_{\text{max}} = 3.5 \text{ J}$, $\tau_p = 1.4 \text{ ms}$); 2 — вакуумная камера ($P = 10^{-2}$ Торр); 3 — образец; 4, 5 — фотоумножитель ФЭУ-79; 6 — фотоприемник; 7 — к насосу; 8 — измеритель энергии; 9 — цифровой осциллограф; 10 — персональный компьютер; 11 — импульсный вольтметр; 12 — спектрометр.

сировалось на поверхность образца в пятно размером 1.2–2 mm. В эксперименте исследовалось свечение тыльной поверхности (далее, чтобы придерживаться единой терминологии с предшествовавшими работами, будем использовать термин — МЛ). Для этого с тыльной стороны образца на расстоянии примерно 18 см соосно лазерному лучу устанавливался фотоумножитель (ФЭУ-79, 4), на который подавалось излучение поверхности. Измерений температуры образцов не проводилось, однако с помощью второго фотоумножителя (ФЭУ-79, 5), установленного с передней стороны образца под углом 45° к его поверхности, и набора светофильтров контролировалось тепловое свечение облучаемого участка поверхности в спектральном интервале 0.5–0.7 μm и порог плазмообразования. Сигналы с обоих фотоумножителей подавались на цифровой осциллограф и далее на персональный компьютер. Исследование спектрального состава свечения проводилось на спектрометре ДФС-452 (12). В работе использовались образцы из вольфрама толщиной от 100 до 300 μm. Поверхности образцов очищались путем полировки алмазным порошком, а затем протирались этиловым спиртом.

2. Экспериментальные результаты и их обсуждение

На рис. 2, *a* показаны осциллограммы сигналов интегрального (в диапазоне 0.4–0.8 μm) свечения тыльной поверхности (МЛ) образца из вольфрама при воздействии на него миллисекундных лазерных импульсов в вакууме ($P = 10^{-2}$ Torr). Рис. 2, *b* и *c* иллюстрируют зависимость задержки свечения от $I_{\text{las.}}$, при этом на рис. 2, *b* задержка Δt_1 измерялась относительно переднего фронта лазерного импульса, а на рис. 2, *c* задержка Δt_2 измерялась относительно переднего фронта теплового сигнала, регистрируемого от передней поверхности образца. Как следует из рис. 2, *b* и *c* величина задержек Δt_1 и Δt_2 уменьшается с увеличением $I_{\text{las.}}$.

Значительные изменения с увеличением $I_{\text{las.}}$ происходят с амплитудой и формой сигнала МЛ. При воздействии на образец лазерных импульсов с $I_{\text{las.}} \cong 4.0 \times 10^4 \text{ W/cm}^2$ сигнал представляет собой как правило один пикочок. По мере увеличения $I_{\text{las.}}$ наблюдается быстрый рост амплитуды (рис. 3) и изменение формы сигнала на фоне общего роста амплитуды появляются два, три и большее число пикочков (рис. 2, *a*). Вероятно, поэтому при большой амплитуде сигнала его пикочковое строение практически не проявляется. При многократном облучении участка поверхности импульсами с заданным значением $I_{\text{las.}}$ амплитуда сигнала уменьшается примерно на 20–25% после 3–5 кратного облучения, а далее остается в среднем постоянной, хотя от импульса к импульсу значительно флуктуирует. Следует заметить, что как правило наибольшая амплитуда сигнала наблюдается при первом облучении.

Появление сигнала свечения с тыльной стороны образца может быть обусловлено следующими основными

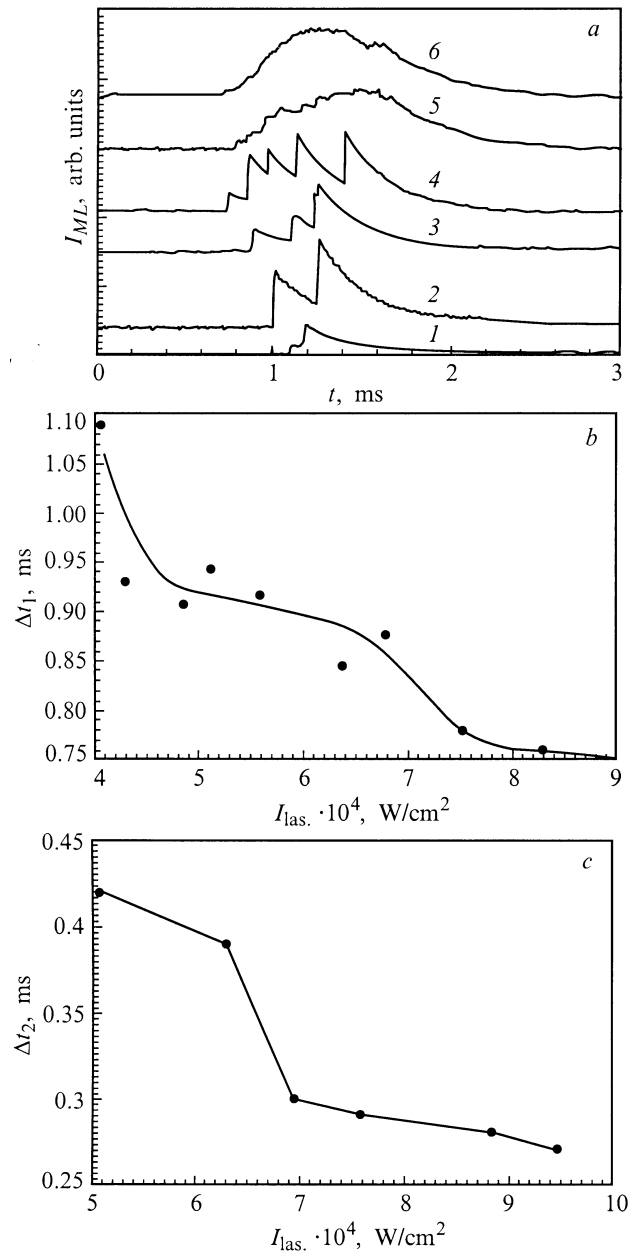


Рис. 2. *a* — осциллограммы сигнала МЛ (токовый режим) при увеличении плотности мощности лазерного импульса. Образец вольфрам. 1 — $I_{\text{las.}} = 4.05 \times 10^4$, 2 — $I_{\text{las.}} = 4.32 \times 10^4$, 3 — $I_{\text{las.}} = 4.67 \times 10^4$, 4 — $I_{\text{las.}} = 5.01 \times 10^4$, 5 — $I_{\text{las.}} = 5.63 \times 10^4 \text{ W/cm}^2$ (сигнал уменьшен в 50 раз), 6 — $I_{\text{las.}} = 7.52 \times 10^4 \text{ W/cm}^2$ (сигнал уменьшен в 100 раз). *b* — зависимость временной задержки сигнала МЛ относительно переднего фронта лазерного импульса от $I_{\text{las.}}$. Образец *W*. *c* — зависимость временной задержки сигнала МЛ относительно переднего фронта тепловой волны от $I_{\text{las.}}$. Образец *W*.

причинами: тепловым свечением поверхности, экзоэмиссией частиц [6–8] и собственно самой МЛ. Для измерения интенсивности МЛ использовалась схема регистрации, при которой ФЭУ работал в режиме счета фотонов. Максимальная плотность мощности воздействующего на

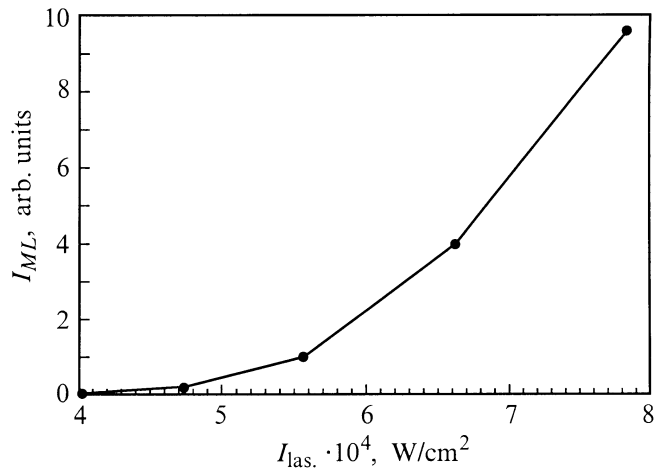


Рис. 3. Зависимость амплитуды сигнала МЛ от I_{las} . Образец W .

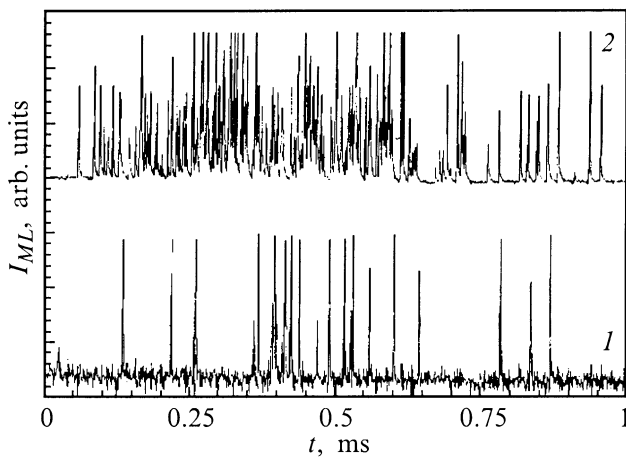


Рис. 4. Осциллограммы сигнала МЛ (режим счета фотонов) при увеличении плотности мощности лазерного импульса. 1 — $I_{\text{las}} = 2.7 \times 10^4$, 2 — $I_{\text{las}} = 3.6 \times 10^4$ W/cm².

образец лазерного излучения, при которой еще надежно разрешались импульсы, соответствующие отдельным фотонам в сигнале МЛ, составляла $I_{\text{las}} \approx 2.7 \times 10^4$ W/cm².

Оценим величину интенсивности сигнала МЛ при $I_{\text{las}} \approx 2.7 \times 10^4$ W/cm². Из рис. 4 видно, что на ФЭУ попадает порядка 20 фотонов. Тогда интенсивность сигнала МЛ

$$I_{\text{ML}} \approx \frac{2R^2nhc}{r^2St_s\lambda_m}, \quad (1)$$

где $R = 18$ см — расстояние от тыльной поверхности образца по ФЭУ, $n = 2$ — число фотонов, попавших на ФЭУ, h — постоянная Планка, c — скорость света, $r = 0.3$ см — радиус фотокатода ФЭУ, $S \approx \pi[r_0 + (\chi\tau_p)^{1/2}]^2$ — площадь излучающего пятна, $r_0 \approx 6 \times 10^{-2}$ см — радиус пятна, в которое сфокусировано лазерное излучение, $\chi = 0.54$ см²/с — температуропроводность вольфрама, $\tau_p \approx 1.4 \times 10^{-3}$ с — длительность лазерного импульса, $t_s \approx 0.7 \times 10^{-3}$ с — длительность свечения

МЛ, $\lambda_m \approx 6 \times 10^{-5}$ см — длина волны излучения, соответствующая середине регистрируемого спектрального диапазона, получаем $I_{\text{ML}} \approx 2.8 \times 10^{-9}$ W/cm².

Оценим температуру $T(\tau_p)$, до которой нагревается тыльная сторона образца к концу лазерного импульса, и интенсивность теплового свечения I_h при $I_{\text{las}} \approx 2.7 \times 10^4$ W/cm². Поскольку в данном эксперименте выполняются условия $d \leq (\chi t)^{1/2} \ll r_0$, где $d \approx 220$ мкм — толщина образцов, то к концу импульса для температуры тыльной поверхности можно написать

$$T(\tau_p) \approx T_0 + \frac{AI_{\text{las}}S_0\tau_p}{\pi[r_0 + (\chi\tau_p)^{1/2}]^2d\rho c_m}, \quad (2)$$

подставляя $T_0 = 293$ К — комнатная температура, $A = 0.38$ — коэффициент поглощения вольфрама, $S_0 = \pi r_0^2$ — площадь пятна, в которое сфокусировано лазерное излучение, $\rho = 18.6$ г/см³ — плотность вольфрама, $c_m = 0.13$ Дж/г·К — удельная теплоемкость вольфрама, получаем $T(\tau_p) \approx 430$ К.

Используя выражение для интенсивности теплового свечения нагретого тела, можно написать

$$I_h \approx 2\pi\varepsilon_\lambda hc^2 \int_{\lambda_1}^{\lambda_2} \frac{1}{\lambda^5} \exp\left(-\frac{hc}{\lambda kT(\tau_p)}\right) d\lambda, \quad (3)$$

подставляя значения: $\lambda_1 = 4 \times 10^{-5}$, $\lambda_2 = 8 \times 10^{-5}$ см, $\varepsilon_\lambda = 0.4$ — спектральный коэффициент теплового излучения вольфрама, $k = 1.38 \times 10^{-23}$ Дж·К⁻¹ — коэффициент Больцмана, получаем $I_h \sim 10^{-16}$ W/cm².

Из оценок видно, что вкладом теплового свечения при измерении интенсивности МЛ при $I_{\text{las}} \approx 2.7 \times 10^4$ W/cm² можно пренебречь.

С помощью выражения (3) оценим температуру тыльной стороны, при которой I_h становится соизмеримой с I_{ML} . Подставляя $I_h = I_{\text{ML}} \approx 2.8 \times 10^{-9}$ W/cm², находим $T(\tau_p) \approx 650$ К. Подставляя это значение в выражение (2), находим плотность мощности воздействующего лазерного импульса $I_{\text{las}} \approx 7 \times 10^4$ W/cm², при которой достигается такая температура.

Оценим величину термонапряжений, возникающих в области воздействия лазерного излучения, к концу лазерного импульса при $I_{\text{las}} \approx 7 \times 10^4$ W/cm² [9]

$$\sigma(\tau_p) \sim \alpha GT(\tau_p)/(1 - \nu). \quad (4)$$

Подставляя $\alpha = 4.45 \times 10^{-6}$ К⁻¹ — температурный коэффициент расширения, $G = 1.5 \times 10^{11}$ Н/м² — модуль сдвига, $T(\tau_p) \approx 650$ К, $\nu = 0.233$ — коэффициент Пуассона, получаем $\sigma(\tau_p) \approx 10^9$ Н/м².

Таким образом, из приведенных оценок следуют два важных вывода. Во-первых, интегральная интенсивность теплового сигнала в спектральном диапазоне 0.4–0.8 мкм становится соизмеримой с интенсивностью МЛ уже при температуре $T \approx 650$ К (реальное значение температуры, при котором $I_h \approx I_{\text{ML}}$, для исследуемых материалов, вероятно, еще меньше). Во-вторых, величина

термонапряжений достигает критического значения σ_c для дислокаций с размером $l \geq Gb/\sigma_c \approx 3 < 10^{-6}$ см, где b — вектор Бюргера, при превышении которого они могут стать источниками размножения дислокаций Франка–Рида. При $I_{\text{las.}} < 7.0 \times 10^4$ W/cm², вклад теплового свечения в наблюдаемый сигнал, согласно проведенным оценкам, незначителен. В противном случае, при $I_{\text{las.}} > 7.0 \times 10^4$ W/cm² наблюдаемый сигнал имеет довольно сложный вид и, вероятно, представляет собой суперпозицию сигналов теплового свечения и МЛ.

Согласно работам [1,2], МЛ металлов, наблюдаемая при воздействии лазерных импульсов, связана с выходом подвижных дислокаций на поверхность. Уменьшение интенсивности сигнала при каждом последующем облучении этого же участка авторы объяснили уменьшением концентрации дислокаций в образце вследствие выхода их на поверхность в результате предыдущего облучения. Однако, как отмечалось выше, действие достаточно больших термоупругих напряжений в кристалле ($\sigma > \sigma_c$) может не только вызвать направленное движение уже имеющихся дислокаций, но и генерацию новых дислокаций. Таким образом, если плотность мощности лазерного импульса такова, что будет выполнено условие $\sigma > \sigma_c$, то при каждом последующем импульсе воздействия лазерного излучения возможен как выход определенной части дислокаций на поверхность, так и рождение в образце новых дислокаций. Поэтому если принять, что выход дислокаций сопровождается испусканием квантов излучения, как это предполагалось в работах [1,2,10,11] для объяснения нетеплового свечения металлических образцов при механическом, термическом и лазерно-термическом воздействии, то следует ожидать, что после любого числа облучений, если выполняется условие $\sigma > \sigma_c$, возможно существование потока выходящих на поверхность дислокаций и связанной с ним МЛ. Вероятно, этим можно объяснить тот факт, что наблюдаемый в наших экспериментах сигнал не исчезал после многократного облучения в отличие от результатов работы [2], в которой авторы наблюдали уменьшение и даже исчезновение сигнала после нескольких актов облучения. Несмотря на ожидаемую малую интенсивность сигнала МЛ вольфрама в эксперименте сигнал МЛ надежно регистрировался от $I_{\text{las.}} = 4 \times 10^4$ W/cm² и выше в токовом режиме, а в режиме счета фотонов с $I_{\text{las.}} = 2.5 \times 10^4$ W/cm².

Обращает на себя внимание форма сигнала и зависимость его временной задержки от $I_{\text{las.}}$. Время распространения термонапряжений к тыльной стороне образца, а следовательно, и ожидаемая задержка излучательного выхода дислокаций за счет термонапряжений, определяется временем распространения температурного фронта $\Delta t_T \sim d^2/\chi$ от передней поверхности к задней (которое для вольфрамового образца толщиной $d \approx 220$ мкм составляет ≈ 0.9 мс). Поэтому в эксперименте измерять временную задержку МЛ, вероятно, следует относительно теплового сигнала, регистрируемого от передней

поверхности образца, а не относительно лазерного импульса, как это проводилось в работах [1,2]. Тепловой сигнал имел определенное запаздывание относительно лазерного импульса, и величина этого запаздывания в зависимости от $I_{\text{las.}}$ менялась в пределах 0.2–0.4 мс. В данной работе для сравнения задержка измерялась как относительно лазерного импульса, так и относительно теплового сигнала. Из рис. 2, b и c видно, что при увеличении $I_{\text{las.}}$ величины задержек Δt_1 и Δt_2 меняются в довольно широких пределах ($\Delta t_1 \approx 1.1$ – 0.7 мс, $\Delta t_2 \approx 0.45$ – 0.25 мс), принимая значения, значительно меньшие чем Δt_T . Это дает основание полагать, что передняя часть сигнала свечения тыльной стороны не связана с выходом дислокаций под действием термонапряжений и с тепловым свечением.

В работе [1] при облучении образцов лазерными импульсами с плотностью мощности $I_{\text{las.}}$ выше порога образования плазмы $I_{\text{thres.}}$, также наблюдалось свечение тыльной стороны, начинающееся раньше времени распространения термонапряжений. Для объяснения этого факта авторы обратили внимание на возможность участия акустических волн в процессах излучательного выхода дислокаций на поверхность. Так, по их мнению, при $I_{\text{las.}} > I_{\text{thres.}}$ происходит генерация достаточно мощной акустической волны, время распространения которой $t_a \sim d/v$ (где v — скорость распространения звуковой волны) значительно меньше времени распространения термонапряжений, и поэтому более раннее начало свечения тыльной стороны могло быть обусловлено излучательным выходом дислокаций под действием упругих напряжений, связанных с акустической волной. Однако в условиях нашего эксперимента плотность мощности лазерного импульса была ниже порога плавления поверхности, и поэтому импульсом давления паров, а следовательно и амплитудой акустической волны, связанной с давлением паров, можно пренебречь. Известно, что источником достаточно мощных акустических волн могут стать процессы рождения и аннигиляции дислокаций, а также смещение межзеренных границ при деформации. Таким образом, при распространении термоупругих напряжений от передней поверхности образца к тыльной может образоваться движущийся источник акустических волн. По мере приближения термодформаций к тыльной стороне амплитуда возбуждаемых таким образом акустических волн может оказаться достаточной для излучательного выхода дислокаций на поверхность, а так как скорость распространения их значительно выше, чем у термодформаций, то и свечение может начаться раньше, чем термодформации достигнут тыльной поверхности. Следует заметить, что как число акустических волн, так и моменты их возбуждения в период действия термоупругих напряжений являются скорее всего случайными событиями. Вероятно, этим можно объяснить то, что временные задержки Δt_1 и Δt_2 появления свечения тыльной стороны образца произвольно меняются на $\Delta t \leq (0$ – $0.2)$ мс при каждом акте облучения, а число пиков флуктуирует.

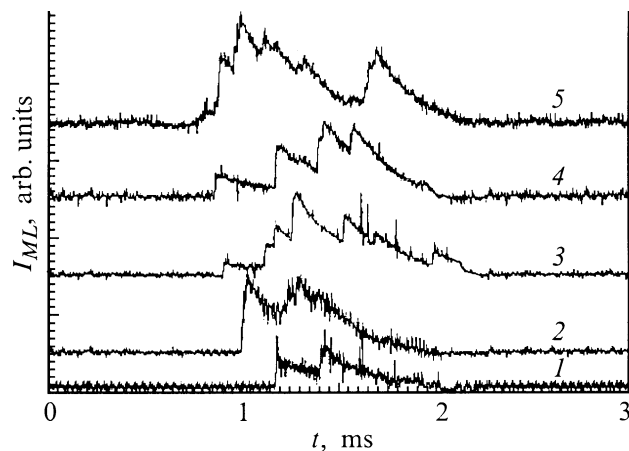


Рис. 5. Осциллограммы сигнала МЛ (токовый режим) при увеличении плотности мощности лазерного импульса ($\lambda = 600 \text{ nm}$). Образец — вольфрам. 1 — $I_{\text{las.}} = 4.02 \times 10^4$, 2 — $I_{\text{las.}} = 4.92 \times 10^4$, 3 — $I_{\text{las.}} = 5.81 \times 10^4$, 4 — $I_{\text{las.}} = 6.71 \times 10^4$, 5 — $I_{\text{las.}} = 7.62 \times 10^4 \text{ W/cm}^2$.

Не до конца ясным пока остается пиковая форма наблюдаемого сигнала. Если, как и выше, придерживаться дислокационной модели свечения, то форму сигнала можно было бы объяснить существованием групп дислокаций разного сорта, характеризующихся степенью закрепленности их в материале и определенной последовательностью выхода на поверхность. Тогда по мере приближения к тыльной стороне термонапряжений, под действием возбуждаемых при этом акустических волн первыми придут в движение и начнут выходить на поверхность наиболее слабо закрепленные группы дислокаций. Далее уже под действием термонапряжений будут выходить более сильно закрепленные и дальше расположенные от поверхности группы дислокаций. Однако вызывает определенные сомнения такая строгая дискретизация дислокаций по их энергии закрепленности в материале. Другой возможной причиной многопиковой формы сигнала может стать совместное действие на процесс выхода дислокаций термонапряжений и упругих напряжений, связанных с акустическими волнами. Действительно, достигая тыльной стороны, термонапряжения стимулируют одновременно как выход дислокаций на поверхность, так и возбуждение акустических волн непосредственно у тыльной поверхности образца. Таким образом, можно предположить, что пиковая форма сигнала есть результат совместного влияния на выход дислокаций термонапряжений и акустических волн, а число пиков при этом определяется числом наиболее интенсивных акустических волн, возбуждаемых у тыльной поверхности.

В работе исследовался спектральный состав МЛ в диапазоне $0.4\text{--}0.6 \mu\text{m}$. Из проведенного анализа следует, что свечение наблюдается во всем исследуемом спектральном диапазоне и не имеет каких-либо четко выраженных локальных максимумов, характерных для атомных или молекулярных переходов. Временная зави-

симость спектральной интенсивности свечения, так же как и временная зависимость интегральной интенсивности свечения, имеет пиковую форму. На рис. 5 приведены осциллограммы сигналов свечения тыльной стороны образца для длины волны $\lambda = 0.6 \mu\text{m}$. На основании представленных результатов трудно дать однозначную интерпретацию происхождения наблюдаемого свечения. Если оно связано с излучательными переходами, возникающими при перестройке поверхностных электронных состояний атомов вольфрама в момент выхода дислокации, то тогда должны наблюдаться максимумы в спектре излучения МЛ, соответствующие этим переходам. Однако в спектральном диапазоне $0.4\text{--}0.6 \mu\text{m}$ таковых не обнаружено. Возможно, в этом диапазоне расположен только "хвост" свечения, в то время как сами максимумы лежат за пределами этого диапазона. Возможно, также, что определенный вклад в свечение вносит возбуждаемая при выходе дислокаций механоэмиссия частиц. Известно, что при деформации поверхности или при нагреве ранее деформированной поверхности имеет место эмиссия заряженных частиц (как правило электронов) [3,7]. Тогда излучательное столкновение и прилипание электронов к атомам и молекулам окружающего газа может стать причиной наблюдаемого свечения.

Список литературы

- [1] А.М. Кондырев, И.П. Щербаков, К.Б. Абрамова, А.Е. Чмель. ЖТФ **62**, 1, 206 (1992).
- [2] К.Б. Абрамова, И.П. Щербаков, И.Я. Пухонто, А.М. Кондырев. ЖТФ **66**, 5, 190 (1996).
- [3] К.Б. Абрамова, А.И. Русаков, А.А. Семенов, И.П. Щербаков. ФТТ **40**, 6, 957 (1998).
- [4] В.А. Закревский, А.В. Шульдинер. Письма в ЖТФ **10**, 3, 139 (1984).
- [5] V.A. Zakrevskii, A.V. Shuldiner. Phyl. Mag. **V71**, 2, 127 (1995).
- [6] В.Н. Смирнов. Оптико-механическая промышленность **7**, 1 (1986).
- [7] J.T. Dickinson, L.B. Vrix, L.C. Jensen. J. Phys. Chem. **88**, 9, 1698 (1984).
- [8] Р.И. Минц, И.И. Мильман, В.И. Крюк. УФН **119**, 4, 749 (1976).
- [9] Дж. Кристиан. Теория фазовых превращений в металлах и сплавах. Мир, М. (1978). Ч. 1, 806 с.
- [10] М.И. Молоцкий. ФТТ **23**, 7, 2171 (1981).
- [11] М.И. Молоцкий. ФММ **55**, 1, 743 (1983).