10,09

О механизме деформации поверхности кристалла иттрий-алюминиевого граната под действием наносекундного лазерного импульса с широким спектром

© Н.Е. Быковский¹, Е.В. Заведеев^{2,3}, Ю.В. Сенатский¹

 ¹ Физический институт им. П.Н. Лебедева РАН, Москва, Россия
 ² Институт общей физики им. А.М. Прохорова РАН, Москва, Россия
 ³ Национальный исследовательский ядерный университет "МИФИ", Москва, Россия
 E-mail: nbykovsky@sci.lebedev.ru

(Поступила в Редакцию 7 июля 2014 г. В окончательной редакции 20 октября 2014 г.)

Исследованы кратеры на поверхности пластинки из кристалла иттрий-алюминиевого граната при облучении ее наносекундными лазерными импульсами с интенсивностью $10^9 - 10^{10}$ W/cm² и широким (~ 500 Å) спектром. Обсуждается механизм формирования кратеров в результате пластической деформации поверхности в процессе лазерного воздействия. Предложенный механизм учитывает особенности протекания нелинейных эффектов при воздействия широкополосного излучения на среду. При вынужденном рассеянии Мандельштама-Бриллюэна излучения накачки акустические волны трансформируются в ударные волны, а на их фронтах развивается вынужденное комбинационное рассеяние накачки. В результате дефекты кристаллической решетки, образующиеся на фронтах ударных волн, увлекаются по направлению накачки, что приводит к деформации поверхности кристалла, протекающей с высокой скоростью.

1. Введение

В настоящее время значительное внимание уделяется исследованиям активных сред на основе кристаллов и керамики Nd: YAG и Yb: YAG (YAG — иттрий-алюминиевый гранат), которые находят применение в мощных лазерах [1-7]. Исследованиям разрушений в кристаллах и керамике YAG при взаимодействии со средой наносекундных и фемтосекундных импульсов излучения посвящены публикации [3-7]. В наших экспериментах по взаимодействию наносекундных лазерных импульсов с кристаллами ҮАС и другими материалами в качестве источника использовался лазер на центрах окраски (ЛЦО) LiF: F_2^+ [8–11]. Пучок широкополосного (~ 500 Å) излучения ЛЦО (импульсы длительностью 20-30 ns с энергией до 100 mJ в спектральном диапазоне 0.89-0.95 µm с максимумом на $\lambda_l \approx 0.91 \,\mu\text{m}$) фокусировался в пятно диаметром 100-300 µm на поверхность образцов кристаллов YAG, Yb: YAG, кварца, LiF и др. Фотографии разрушений в образцах при плотностях энергии 100-200 J/cm² опубликованы в [9-11]. Было отмечено, что морфология структурных изменений на поверхности образцов из кристалла ҮАС под действием импульсов излучения ЛЦО с ограниченной когерентностью отличается от наблюдаемой в случае разрушений с признаками плавления и абляции вещества, которые нередко имеют место при воздействии на образцы импульсов от традиционных когерентных источников, таких как Nd: YAGлазер. В настоящей работе сообщается о результатах исследования на оптическом профилометре кратеров на

поверхности полированной пластинки из кристалла YAG толщиной 4 mm, возникших под действием импульсов ЛЩО с плотностью мощности $10^9 - 10^{10}$ W/cm². Обсуждается механизм деформации поверхности и формирования кратеров в кристалле.

2. Результаты эксперимента

Были получены фотографии и профили сканирования нескольких кратеров диаметром 50-350 µm и глубиной до $3\,\mu m$ на поверхности кристалла YAG, а также кратеров в пластинке из кристалла Yb: YAG толщиной 1 mm с концентрацией ионов Yb³⁺ 20 at.% (полоса поглощения в области $\lambda_l \approx 0.9 \,\mu m$), образованных импульсами ЛЦО с энергией до 60 mJ. На рис. 1 представлены фотографии кратеров под микроскопом, а на рис. 2 — фотографии и результаты сканирования кратеров в кристалле YAG на профилометре ZYGO New View-5000. Вытянутая форма кратеров обусловлена аберрацией пучка при наклоне $(\sim 10^{\circ})$ линзы, фокусировавшей излучение на образцы $(f \approx 12 \,\mathrm{cm})$. Выявлены следующие примечательные особенности кратеров на поверхности YAG: наличие по периметру кратеров бортика высотой 200-500 нм и шириной $5-10\,\mu m$, волнообразного рельефа внутри кратеров, а также отсутствие признаков плавления материала в кратере и выплесков расплава из кратера (рис. 1, a, b). На рис. 1, b за пределами кратера на необлученной поверхности кристалла YAG видны царапины, имеющие продолжение на облученной поверхности внутри крате-



Рис. 1. Микрофотографии кратеров на поверхности пластинки из кристалла YAG толщиной 4 mm (шкала — 11.8 µm на деление) (*a, b*) и пластинки из Yb: YAG толщиной 1 mm (*c*), образованных импульсами ЛЦО с энергией 60 mJ.



Рис. 2. Микрофотографии кратеров на поверхности кристалла YAG и их профилограммы вдоль прямых, помеченных треугольниками. Кратеры (*a*) и (*b*) соответствуют кратерам на рис. 1, *a*, *b*; кратер (*c*) образован импульсом ЛЦО с энергией ~ 10 mJ; штриховая линия соответствует невозмущенной поверхности. Темная область вокруг кратера на левой части *c* — область выпучивания поверхности.



Рис. 3. Осциллограммы импульсов ВРМБ (*a*) и стоксового сигнала ВКР (*b*) излучения ЛЦО в кристалле YAG.

ра, что указывает на отсутствие плавления или испарения материала на этих участках. При плавлении силы поверхностного натяжения сгладили бы поверхность, испарение также привело бы к исчезновению следов царапин в кратере.

На поверхности пластинки из Yb: YAG наблюдались кратеры, подобные присутствующим на рис. 1, а, b. Однако в отличие от YAG в Yb: YAG при острой фокусировке и увеличении интенсивности излучения ЛЦО наблюдались кратеры с явными признаками плавления. На рис. 1, с представлена фотография кратера в Yb: YAG с расплавленной поверхностью, трещинами и каплями расплава за пределами кратера. В Yb: YAG с концентрацией Yb 20 at.% коэффициент поглощения излучения ЛЦО при переходах с основного уровня ${}^{2}F_{7/2}$ на метастабильный уровень ${}^2F_{5/2}$ составляет $\sim 20\,{\rm cm}^{-1}$. Около 10% энергии накачки переходит в тепло при безызлучательных переходах между штарковскими компонентами этих уровней. Дополнительное выделение тепла в Yb: YAG приводило к плавлению материала в кратере. Этого никогда не наблюдалось в наших экспериментах с кристаллом YAG во всем диапазоне интенсивностей накачки. Отсутствие признаков плавления в кристалле YAG позволяет предположить, что структурные изменения на поверхности обусловлены не плавлением или испарением, а скорее перемещениями вещества, т.е. механизмом пластической деформации кристалла. При пластической деформации перемещение вещества в кристалле происходит за счет движения дислокаций [12]. При выделении энергии импульса ЛЦО в среде продавливание материала в глубь образца с образованием кратера могло произойти за счет движения дислокаций по направлению лазерного воздействия.

Выделение энергии, повышение температуры, давления и сдвиг материала в прозрачном для излучения с $\lambda_l \approx 0.9 \,\mu$ m кристалле YAG могли происходить за счет нелинейных явлений: вынужденного рассеяния Мандельштама—Бриллюэна (ВРМБ) и вынужденного комбинационного рассеяния (ВКР) накачки, наблюдавшихся в экспериментах [9–11]. На рис. 3 представлены осциллограммы импульсов рассеяния назад (навстречу накачке) в кристалле YAG, зарегистрированные под

углами 180° (кривая a) и в диапазоне углов от ~ 170° до ~ 140° (кривая b) [9]. Пространственно-угловые характеристики излучения и сопоставление параметров рассеяния с импульсами ЛЩО позволили связать рассеяние с процессами ВРМБ и ВКР накачки [9–11].

Физическая модель взаимодействия широкополосной накачки с кристаллом

Рассмотрим физическую модель, которая может объяснить продавливание поверхности кристалла. Возможно следующее феноменологическое описание взаимодействия широкополосной накачки с кристаллом. Широкий спектр ЛЦО (~ 500 Å) при длительности импульса 20-30 ns свидетельствует о том, что излучение накачки состояло из огромного числа субимпульсов (пичков-spikes) с длительностями $\tau_{sp} \ge 10$ fs, не сфазированных между собой. Взаимодействие таких импульсов со средой происходит в пределах соответствующей им длины когерентности. В отличие от известной схемы возбуждения акустических (гиперзвуковых) волн при ВРМБ когерентной накачки на флуктуациях плотности в среде [13] при ВРМБ широкополосной накачки в среде возникают акустические волны, затравками для которых могут служить любые стационарные неоднородности: дефекты кристаллической решетки, микропоры, внутренние трещины [9,11]. При рассеянии на неоднородности первичный световой пичок с длительностью τ_{sp} меньше периода акустической волны образует в среде (на половине длины когерентности) стоячую световую волну. В пучностях этой волны за счет роста давления возрастает концентрация атомов, т.е. образуется периодическая структура, соответствующая стоячей акустической волне. Время жизни возникшей структуры определяется временем жизни возбужденных акустических фононов: $au_{\rm ph} \gg au_{\rm sp}$. Структуре соответствуют два встречных потока фононов с широким спектром. При воздействии на структуру следующего светового пичка фотоны взаимодействуют (рассеиваются) как со встречными акустическими фононами, так и с убегающими. Взаимодействие приводит к гашению встречных фононов (излучение отнимает у них энергию) и росту интенсивности убегающих фононов. В результате выживает только бегущая по направлению накачки акустическая волна, на которой рассеиваются все последующие импульсы из хаотической последовательности пичков накачки. Для усиления акустической волны интервалы между пичками должны быть меньше времени релаксации фононов. Тогда с каждым следующим пичком акустическая волна усиливается и прорастает навстречу накачке на половину длины когерентности пичка. Широкий спектр фононов в максимумах акустической волны содержит и ее гармоники, которые имеют начальную фазу, совпадающую с фазой исходной волны. Гармоники, двигаясь вместе с первичной волной, в точках, где их фазы совпадают, увеличивают амплитуду первичной волны. Присутствие гармоник сжимает максимумы акустической волны в продольном направлении. Таким образом, наличие в спектре фононов гармоник трансформирует первичную акустическую волну в периодическую последовательность ударных волн. Этот процесс подобен процессу самосинхронизации мод в резонаторе лазера, где за счет нелинейности пропускания среды формируется периодическая последовательность световых импульсов.

Механизм продавливания поверхности кристалла в условиях ВРМБ и ВКР широкополосной накачки и распространения ударных акустических волн можно описать следующим образом. В результате возбуждения ВРМБ накачки зона проникновения излучения ЛЦО в кристалл ограничивается (из-за отражения накачки на решетке акустических волн) слоем в несколько десятков микрометров под поверхностью образца. В этом слое на фронтах ударных волн под действием сжимающих и растягивающих напряжений непрерывно происходят локальные нарушения ближнего порядка кристаллической решетки, т.е. образуются дефекты. В результате в узком приповерхностном слое возникает множество центров с собственными частотами колебаний. Все атомы на фронтах ударных волн при взаимодействии с короткими импульсами света ($\tau_{\rm sp}$ — меньше половины периода возбуждаемых колебаний) получают синхронизованные по времени и направлению импульсы. Следовательно, возбуждаемые при этом колебания имеют одинаковые начальные фазы (когерентные оптические фононы), что и облегчает развитие ВКР на периодических ударных волнах. Синхронизованное действие когерентных фононов в сочетании со значительной деформацией решетки на фронтах ударных волн способствует направленным перескокам междоузельных атомов. При этом междоузельные атомы перемещаются не хаотически (как при тепловой диффузии), а по направлению накачки, что способствует высокой скорости их перемещения. Концентрация междоузельных атомов в конце области взаимодействия излучения со средой нарастает. Поверхность кристалла за счет ухода от нее атомов в глубь и движения вакансий в обратном направлении продавливается. Избыток междоузельных атомов благодаря создаваемым в решетке высокочастотным периодическим нагрузкам выдавливается на периферию области возбуждения, образуя бортик (рис. 2, *a*, *b*).

О том, что доля ВКР в энергобалансе взаимодействия импульса ЛЦО с образцом была значительна, можно судить по осциллограммам (рис. 3). Видно, что с развитием стоксового сигнала ВКР резко падала амплитуда сигнала ВРМБ, т.е. сигнал ВКР забирал значительную долю накачки. Всплеск ВКР и спад сигнала ВРМБ указывают на быстрый рост дефектов, рассеяние на которых преобладало над рассеянием от акустических волн. Таким образом, пластическая деформация поверхности кристалла, которая происходила при воздействии на образец лазерного импульса длительностью 20–30 пs с широким спектром, была обусловлена совместным действием ВРМБ и ВКР накачки. Захват дефектов бегущими вдоль кристалла волнами сжатия и разряжения и импульсы, передаваемые фотонами при ВКР, приводили к ускоренной пластической деформации кристалла. О скорости деформации можно судить по глубине продавливания поверхности до 3 μ m за время действия накачки. Это соответствует скорости пластической деформации 1.5 \cdot 10⁴ cm/s.

Неоднородная структура волнового фронта излучения накачки в области фокусировки, вызванная наклоном линзы, приводила к интерференции пересекающихся в фокусе участков лазерного пучка, что проявлялось при формировании волновых фронтов возбуждаемых акустических волн. Следы интерференции акустических волн в кристалле YAG — волнообразная структура поверхности внутри кратера (рис. 1, *a*, *b* и 2, *a*, *b*) [9–11]. Наибольшее продавливание поверхности соответствует максимумам интерференции волн. В областях максимального продавливания, соответствующих максимальным скоростям деформации и растяжения поверхности, происходило диспергирование вещества (множественное растрескивание поверхности и формирование мелких зерен кристалла YAG). Эти участки присутствуют на фотографиях (рис. 1, a, b) в виде темных (рассеивающих излучение) областей. По окончании накачки движение дефектов прекращалось, максимальная концентрация междоузельных атомов возникала в конце области взаимодействия, вызывая напряжения и повышение давления в тонком (десятки микрометров) слое среды. Направленное распространение фононов сменялось их хаотическим движением, что приводило к разогреву слоя. Известно, что при повышении температуры и давления в кристалле ҮАС может произойти фазовый (полиморфный) переход в более плотное состояние. Такой переход по схеме $Y_3Al_5O_{12}(YAG) \rightarrow 3YAlO_3(YAP) + Al_2O_3$ наблюдался в стационарных условиях при давлении 7.7 GPa и температуре свыше 500°С [14]. При температуре 800°С давление, при котором происходил фазовый переход, снижалось до 3 GPa [14]. Эти температуры заметно ниже температур плавления как YAG (1970°C), так и УАР (1875°С) и Al₂O₃ (2044°С). Объем области, в которой происходит фазовый переход, уменьшается, как показывает оценка с учетом удельного веса исходной среды и новой структуры, на ~ 10%. Представление о возможности фазового перехода кристалла YAG в более плотное состояние дополняет изложенную физическую модель, объясняющую продавливание поверхности кристалла и возникновение кратера в отсутствие абляции и плавления. Приведенные выше параметры среды при фазовом переходе в кристалле YAG соответствуют оценкам давления и температуры в тонком слое кристалла в наших экспериментах [9-11]. Предположим, что ВРМБ и ВКР накачки происходили в кристалле YAG в слое толщиной $10\,\mu m$ (на глубине $10-30\,\mu m$) при диаметре области взаимодействия 250 µm. Тогда площадь области взаимодействия $5 \cdot 10^{-4} \text{ cm}^{-2}$, объем $5 \cdot 10^{-7} \text{ cm}^3$, а масса вещества $2 \cdot 10^{-6}$ g. Для прироста температуры на 1000°С в этой области необходима энергия 1.2 mJ. Такая энергия вполне могла быть передана среде в результате ВКР импульса ЛЦО с энергией ~ 60 mJ. При диссипации этой энергии в слое толщиной 10 μ m плотность энергии в области взаимодействия составит 2.4 · 10³ J/cm³, что соответствует давлению 2.4 GPa. В этих условиях еще до наступления плавления в кристалле YAG (при 1970°С) в подповерхностном слое при температуре 500–1000°С (в зависимости от давления) мог произойти фазовый переход. Уплотнение кристалла в слое толщиной 10 μ m на ~ 10% соответствует наблюдавшемуся экспериментально продавливанию поверхности ~ 1 μ m.

В эндотермическом процессе фазового перехода при перестройке кристаллической структуры напряжения в ней в значительной степени должны были сниматься вместе со снижением температуры. Поскольку суммарный объем вновь образованной фазы был меньше исходного объема, возникшие изменения в кристаллической решетке консервировались. Результат произошедшей пластической деформации — кратеры на рис. 1, *а*, *b* и 2, а, b, которые могут быть объяснены именно таким развитием событий. При малой энергии накачки, когда условия для фазового перехода не достигались, возникавшие в среде после продавливания поверхности напряжения стремились восстановить объем кристаллической решетки, выпучивая поверхность образца. На рис. 2, с представлены результаты сканирования неглубокого кратера в кристалле ҮАС (поперечный размер $\sim 50\,\mu{
m m}$, глубина $\sim 300\,{
m nm}$), образованного под действием импульса ЛЦО с энергией ~ 10 mJ. Объем выпучивания окружающей кратер поверхности в радиусе $\sim 200\,\mu m$ примерно соответствует объему кратера. Процесс выпучивания (пластической деформации) поверхности протекал, по-видимому, в течение достаточно длительного времени по окончании экспериментов.

Влияние внутренних напряжений на поверхностные разрушения в кристалле

Следует отметить, что указанные выше особенности морфологии кратеров в YAG никогда не наблюдались для кратеров на поверхности кристаллов LiF и кварца (прозрачных для излучения с $\lambda \approx 0.9 \,\mu m$), сформированных в тех же, что и для YAG, условиях облучения ЛЦО [9–11]. На рис. 4 представлены фотографии кратеров на поверхности пластинки из кристаллического кварца толщиной 10 mm (a) и пластинки LiF толщиной 5 mm (b). На поверхности кварца наблюдаются отколы материала в виде "розочки" с уменьшающимися к центру кратера размерами "лепестков" (рис. 4, *a*). Эти отколы вызваны напряжениями, возникшими под поверхностью после лазерного воздействия. В LiF центральная область кратера окружена зоной растрескивания по кристаллографическим плоскостям, которая появлялась после окончания накачки при выпучивании поверхности



Рис. 4. Растрескивания внутри и вне кратеров на поверхности кристаллического кварца (a) и на по-верхности кристалла LiF (b). Масштаб — 11.8 μ m на деление.

(рис. 4, b). В работе [15] подобные структуры наблюдались при микроволновом разряде на поверхности LiF, в результате которого происходил разогрев тонкого слоя в глубине образца и возникали термомеханические напряжения, вызывавшие растрескивание холодной поверхности. В наших экспериментах для всех образцов кристаллов формирование тонкого слоя с высокой температурой и давлением под поверхностью происходило, как пояснялось, при ВРМБ и ВКР импульсов ЛЦО. Однако различия в прочностных характеристиках кристаллов приводили к различному протеканию процесса разрушения их поверхности. Прочность на разрыв для кристалла YAG достигает $S \approx 300$ MPa, в то время как для кварца $S \approx 55$ MPa, а для LiF $S \approx 11$ MPa [16–18]. В относительно "слабых" кварце и LiF после накачки релаксация напряжений в среде происходила (при отсутствии фазового перехода) за счет растрескивания и откола материала. В кристалле YAG подобные явления наблюдались очень редко, что связано с его большей механической прочностью и, возможно, с фазовым переходом, который снимал напряжения, сохраняя морфологию кратера после лазерного воздействия.

5. Заключение

Таким образом, представленные данные позволяют предположить, что при взаимодействии импульса широкополосного излучения ЛЩО длительностью 20-30 ns с плотностью мощности 10^9-10^{10} W/cm² с кристаллом YAG образование кратеров на поверхности этого кристалла происходило не в результате плавления и абляции, а в результате пластической деформации материала, вызванной смещением атомов в глубь кристалла с последующим снятием возникавших напряжений за счет полиморфного перехода в среде или за счет выпучивания поверхности образца. В работе [19] экспериментальные данные по взаимодействию широкополосного излучения ЛЩО с кристаллами представлены в большем объеме.

Авторы выражают благодарность В.Г. Ральченко и Н.Н. Мельнику за полезные обсуждения и помощь в организации исследований кратеров.

Список литературы

- J. Sanghera, W. Kim, G. Villalobos, B. Shaw, C. Baker, J. Frantz, B. Sadowski, I. Aggarwal. Materials 5, 258 (2012).
- [2] J. Kawanaka, N. Miyanaga, T. Kawashima, K. Tsubakimoto, Y. Fujimoto, H. Kubomura, S. Matsuoka, T. Ikegawa, Y. Suzuki, N. Tsuchiya, T. Jitsuno, H. Furukawa, T. Kanabe, H. Fujita, K. Yoshida, H. Nakano, J. Nishimae, M. Nakatsuka, K. Ueda, K. Tomabechi. J. of Phys.: Conf. Ser. **112**, 032 058 (2008).
- [3] J. Bisson, Y. Feng, A. Shirakawa, H. Yoneda, J. Lu, H. Yagi, T. Yanagitani, K. Ueda. Jpn. J. Appl. Phys. 42, L 1025 (2003).
- [4] D.E. Zelmon, K.L. Schepler, S. Guha, D. Rush, S.M. Hegde, L.P. Gonzalez, J. Lee. Proc. SPIE 5647, 255 (2004).
- [5] M. Dubinskii, L.D. Merkle, J.R. Goff, G.J. Quarles, V.K. Castillo, K.L. Schepler, D. Zelmon, S. Guha, L.P. Gonzalez, M.R. Rickey, J.J. Lee, S.M. Hegde, J.Q. Dumm, G.L. Messing, S.-H. Lee. Proc. SPIE 5792, 1 (2005).
- [6] S. Xu, J. Qiu, T. Jia, Ch. Li, H. Sun, Zh. Xu. Opt. Commun. 274, 163 (2007).
- [7] A. Smith, B. Do. Appl. Opt. 48, 3509 (2009).
- [8] Т.Т. Басиев, Н.Е. Быковский, В.А. Конюшкин, Ю.В. Сенатский. Квантовая электроника **34**, 1138 (2004).
- [9] Н.Е. Быковский. Препринт ФИАН № 16. М. (2005). 40 с; Препринт ФИАН № 36. М. (2006). 42 с.
- [10] Н.Е. Быковский, Ю.В. Сенатский. Квантовая электроника 38, 813 (2008).
- [11] N.E. Bykovsky, Yu.V. Senatsky. In: Acoustic waves-from microdevices to helioseismology / Ed. M.G. Beghi. In Tech (2011). Cg. 17. P. 369.
- [12] А.М. Косевич. Физическая механика реальных кристаллов. Наук. думка, Киев (1981). 327 с.
- [13] В.С. Старунов, И.Л. Фабелинский. УФН 98, 441 (1969).
- [14] D. Hreniak, S. Gierlotka, W. Lojkowski, W. Strek, P. Mazur, R. Fedyk. Solid State Phenom. 106, 17 (2005).
- [15] В.А. Иванов, М.Е. Коныжев. Прикл. физика 6, 42 (2004).
- [16] L. Mezeix, D.J. Green. Int. J. Appl. Ceram. Technol. 3, 166 (2006).
- [17] E.T. Kvammea, J.C. Earthmanb, D.B. Levitonc, B.J. Freyc. Proc. SPIE **5904**, 59040N (2005).
- [18] The crystal handbook of IR and UV optical materials / Ed. K. Matthews. Crystran, Ltd., UK (2008). 112 p.
- [19] Н.Е. Быковский, Е.В. Заведеев, Ю.В. Сенатский. Препринт ФИАН № 20. М. (2014). 18 с.