

УДК 535.21:621.375.826

©1994

КИНЕТИКА ЛОКАЛЬНОГО ОПТИЧЕСКОГО ПРОБОЯ В ОБЪЕМЕ ЩЕЛОЧНО-ГАЛОИДНЫХ КРИСТАЛЛОВ: I. РАЗВИТИЕ ПОЛОСТИ

А.В.Горбунов, М.Ю.Максимук

Изучена кинетика развития полости и напряжений вокруг нее при оптическом пробое на изолированном микровключении в объеме NaCl под импульсом TEA CO₂-лазера. Наблюдается анизотропия формы полости, связанная с пластической деформацией окружающего кристалла при ее росте. Распространение полус краевых дислокаций достигает скоростей по крайней мере порядка 100 м/с, а потом переходит в режим релаксации, заканчиваясь при миллисекундных временах. Обнаружена сильная неоднородность свечения пара в полости, связываемая со структурой поля лазерного излучения.

Картина локального оптического пробоя на поглощающих микровключениях в объеме щелочно-галлоидных кристаллов под одиночным импульсом TEA CO₂-лазера — округлая полость, микро- и макротрещины вокруг, дислокационная розетка и остаточные напряжения как результат пластической деформации — хорошо известна (см., например, [1–4]). В то же время динамика процессов, приводящих к такой структуре, изучена гораздо меньше. В [2,5] сопоставлялась кинетика вспышки свечения при пробое и рассеяния в зондирующем лазерном пучке. В [6] с помощью подсветки 10-пс лазерным импульсом с варьируемой задержкой и регистрации в микроскоп в рассеянном свете была изучена кинетика микроразрушений и измерена характерная скорость их роста—150 см/с. Однако изображения очагов оптического повреждения не приводились и такие их характеристики, как форма и ее эволюция во времени, не обсуждались. Это и неудивительно, поскольку в рассеянном свете вообще трудно разобраться в сложной картине разрушения, а при освещении лазерным пучком дополнительно мешает интерференция. Но наиболее существенно то, что место будущего пробоя, по-видимому, не было известно заранее и применить оптический микроскоп с увеличением, достаточным для более детальных наблюдений, было сложно.

В [7] была использована характерная для щелочно-галлоидных кристаллов возможность многократными импульсами с мощностью, на порядок меньшей пороговой, инициировать и развить небольшое повреждение [8], а потом мощным одиночным импульсом реализовать типичный режим «однократного» пробоя. Основанная на этом методика позволила исследовать геометрические характеристики вспышки свечения. При этом регистрировалась интегральная по времени картина

свечения и предполагалось, что контуры вспышки отражают форму полости.

В настоящей работе с помощью наблюдения пробоя в оптический микроскоп по методу [7] и импульсной подсветки с временем экспозиции около 15 нс проведены теневые съемки области разрушения и регистрации в поляризованном свете распределения механических напряжений вокруг нее в различные моменты времени и таким образом получена новая информация о кинетике процессов пробоя. Кроме того, в [7] были изучены главным образом внешний контур и периферия области свечения. Теперь же за счет ослабления света вспышки при теневых съемках удалось не только наблюдать ее внутренние области, но и фиксировать очертания полости и других деталей разрушения. Полученные результаты используются для проверки и дополнения картины пробоя, предложенной в [4,7].

1. Методика эксперимента

Схема экспериментальной установки показана на рис. 1. Луч CO_2 лазера 1 с параметрами, описанными в [4,7], фокусировался линзой из BaF_2 (2) в пятно диаметром 100–150 μ в объеме образца (3), размещенного на предметном столике микроскопа под его объективом (4). Встречный пучок аргонового лазера (5) (длина волны $\lambda = 488 \text{ nm}$) фокусировался линзой (6) в то же место образца. Наблюдение в микроскоп велось при освещении в проходящем свете. Для создания импульса подсветки использовалось излучение эксимерного лазера на XeCl (7) ($\lambda = 308 \text{ nm}$, длительность импульса $\cong 15 \text{ ns}$). С его помощью либо производилась накачка лазера на красителе родамин 6Ж ($\lambda = 590 \pm 10 \text{ nm}$), либо возбуждалась флуоресценция красителя курмарин 102 ($\lambda = 485 \pm 15 \text{ nm}$) в кювете (8). В обоих случаях длительность подсветки составляла те же 15 нс. Флюоресценцию красителя использовать предпочтительней луча-лазера, поскольку из-за ее некогерентности микроскопное изображение не искажено интерференцией, однако яркости бывает недостаточно. Для получения теневых фотографий полости использовалась только флюоресценция, а для карти-

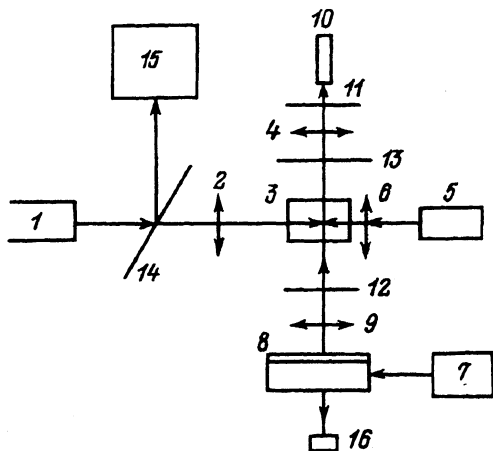


Рис. 1. Схема экспериментальной установки.

1 — TEA CO_2 лазер, 2 — линза из BaF_2 , 3 — образец, 4 — объектив микроскопа, 5 — Ar^+ лазер, 6 — линза, 7 — XeCl лазер, 8 — кювета с красителем, 9 — конденсорная линза, 10 — телекамера, 11 — интерференционный фильтр, 12 и 13 — поляризаторы, 14 — пластина из BaF_2 , 15 — фотоприемник на увеличении носителей, 16 — лавинный фотодиод.

ны распределения напряжений- и то, и другое. Свет от кюветы фокусировался конденсорной линзой 9 снизу в то же место образца, что и луч CO_2 -лазера. Микроскопное изображение области пробы принималось телекамерой 10 и записывалось на видеоманитофон. Излучение вспышки подавлялось интерференционным фильтром 11 с полосой пропускания 484 ± 4 нм. Таким образом, телекамера фиксировала мгновенную теневую фотографию области пробы, на которую накладывалось ослабленное интегральное изображение вспышки. Для съемки мгновенного распределения напряжений использовались скрещенные поляризаторы 12 и 13, ориентированные вдоль направлений в кристалле типа $\langle 100 \rangle$.

Часть излучения CO_2 лазера отводилась клиновидной пластиной из BaF_2 (14) на германиевый фотоприемник на увлечении носителей ФПУ-50 (15). Импульс подсветки контролировался лавинным фотодиодом ЛФД-2а (16). С помощью ФЭУ-79, расположенного на месте телекамеры, регистрировалась кинетика вспышки свечения. Сигналы со всех фотоприемников наблюдались на экране запоминающего осциллографа С8-12, что позволяло измерять задержку импульса подсветки относительно импульса CO_2 лазера (точность не хуже 10%) и длительность вспышки. Запуск лазера и регулировка задержки осуществлялись с помощью генератора импульсов Г5-56.

Среди субмикронных центров светорассеяния, выявляемых в объеме кристалла при подсветке Ag^+ лазером, путем предварительного тестирования одиночными импульсами CO_2 лазера малой мощности, как описано в [7], подбирались и выводились в центр поля зрения микроскопа тот рассеивающий центр, на котором затем осуществлялся пробой. Из-за нестабильности задержки импульса CO_2 лазера относительно импульса его запуска ($\pm 1 \mu\text{s}$) удалось получить результаты лишь для моментов времени начиная со 100 ns от начала лазерного импульса.

Исследовались такие же кристаллы NaCl промышленной чистоты, что и в работах [4,7,8]. Полированные образцы в виде прямоугольных параллелепипедов с размерами $20 \times 5 \times 5$ мм имели пару параллельных больших граней типа $\{100\}$, а все остальные — типа $\{100\}$. В основном пучок CO_2 лазера направлялся по нормали к соответствующей большой грани $\{100\}$, а наблюдение велось под углом 90° , через грань $\{001\}$, но часть снимков сделана при наблюдении вдоль $\langle 110 \rangle$ и направлении луча вдоль $\langle 100 \rangle$.

Использовались два типа импульса, легко получаемые от ТЕА CO_2 лазера: «длинный», состоящий из пика шириной около 100 ns по полувысоте и «хвоста», на порядок менее интенсивного, но с длительностью 1.0–1.5 μs (активная смесь лазера содержит азот), и «короткий», колоколообразный импульс с длительностью 80 ns (смесь без азота).

2. Экспериментальные результаты

Типичные результаты теневой съемки для режима разрушения без образования макротрещин приведены на рис. 2. Видно, что сначала размер полости, заполненной разогретым паром d , меньше окончательного размера d_0 (рис. 2, *a, b*), но впоследствии d заметно превышает d_0 (рис. 2, *c, d*).

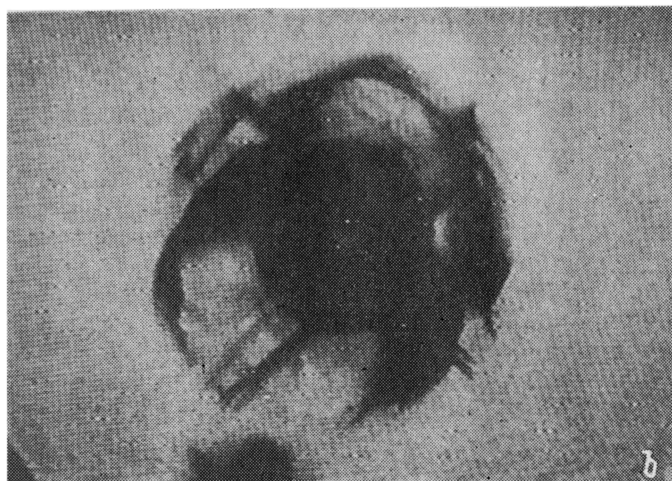
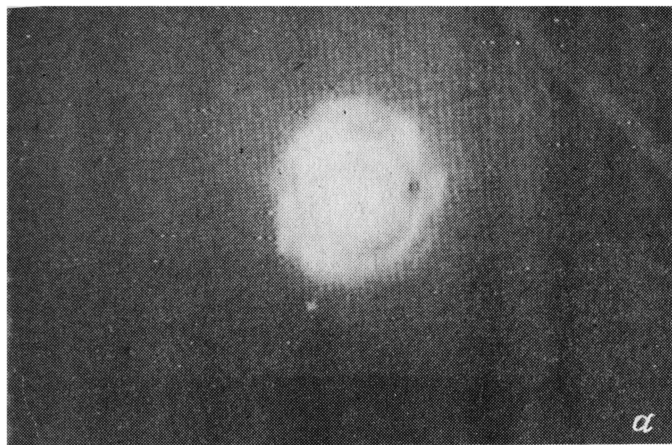


Рис. 2. Образование полости без макротрещин: теневая съемка в моменты времени $t = 480$ ns (a) и $5 \mu\text{s}$ (c) от начала лазерного импульса.

b и d — соответствующие окончательные картины разрушения.

На рис. 3 показана зависимость от времени t отношения d/d_0 . Нормировка текущего размера на конечный совершенно необходима, поскольку даже при постоянной мощности размер разрушения меняется от импульса к импульсу в несколько раз. Из сравнения результатов измерений при коротком и длинном лазерном импульсе можно видеть, что полость быстрее всего растет, пока действует лазерное излучение. Для случая короткого импульса максимальную скорость движения ее границы v_b можно оценить снизу как $2 \cdot 10^4$ см/с, а для длинного как $1 \cdot 10^4$ см/с. Причем на вставке к рис. 3 хорошо видно, что после окончания пика, в течение «хвоста» лазерного импульса, полость успевает вырасти еще примерно в два раза. Поэтому можно предположить, что $v_b(t)$ приблизительно пропорциональна интенсивности лазерного излучения $I(t)$. Если для короткого импульса полость вырастает до размера d_0 примерно за $0.3\text{--}0.4 \mu\text{s}$, то для длинного — за $\cong 1 \mu\text{s}$. В обоих случаях максимум d/d_0 находится в области $7\text{--}8 \mu\text{s}$, а окончательный

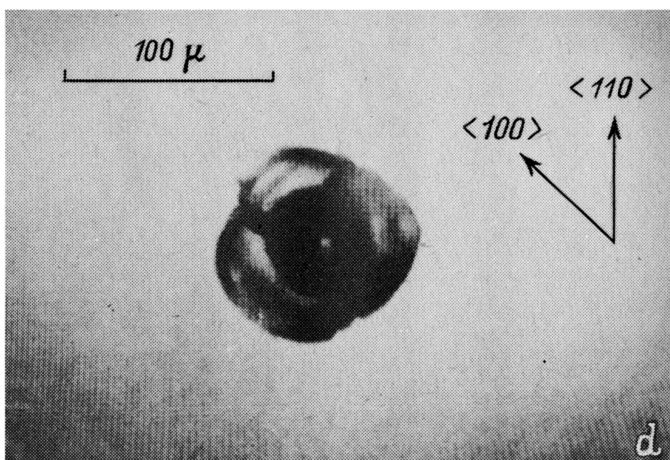
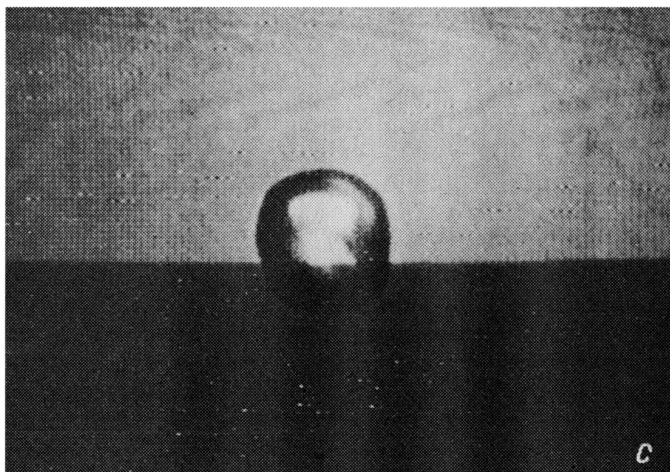


Рис. 2. Продолжение.

размер d_0 достигается примерно к $100 \mu\text{s}$. Превышение d над d_0 в максимуме составляет в среднем 20 %, но в отдельных случаях достигает даже 50 %.

Длительность вспышки пробоя τ_0 растет с увеличением конечного диаметра полости d_0 . Вид этой зависимости показан на рис. 4.

Из рис. 2, а, с ясно видно, что сначала вокруг полости никаких трещин нет. Характерное «кольцо», сформированное из микротрещин по плоскостям спайности $\{100\}$ (рис. 2, b, d и 5, b, d, f), появляется значительно позже. Специально проведенные измерения с большими задержками показали, что типичное время их образования τ_m составляет от 50 до $100 \mu\text{s}$ в зависимости от размера полости. Если же реализуется режим пробоя с образованием характерных «лепестков» радиальных макротрещин по $\{100\}$, то они наблюдаются уже на самых ранних стадиях, на временах порядка 100 ns (рис. 5, а, с). В ряде случаев при наиболее коротких задержках удалось зафиксировать эти трещины в процессе движения. Нижняя оценка их скорости дает значение $4 \cdot 10^4 \text{ cm/s}$. Наконец, возможно образование трещин другого рода, окаймляющих

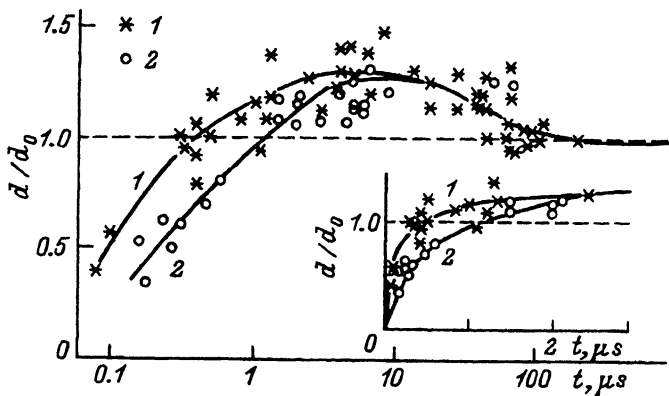


Рис. 3. Эволюция во времени размера полости d (поперек лазерного пучка), нормированного на ее конечный диаметр d_0 .
 1 — 80 ns лазерный импульс, 2 — 100 ns импульс с хвостом $\cong 1 \mu\text{s}$. На вставке — начальный участок с линейной шкалой времени.

полость в виде «гипербол» с лучами вдоль направлений типа $\langle 110 \rangle$ (рис. 5, e, f). Такие трещины тоже образуются на стадии наиболее быстрого роста полости.

На любом этапе своего развития до появления кольца микротрещин проекция полости на плоскость $\{100\}$ представляет собой нечто среднее между кругом и квадратом с диагональю вдоль $\langle 010 \rangle$ (рис. 2, c и 5, a). Зачастую она похожа на овал, слегка вытянутый вдоль направления лазерного пучка, как на рис. 2, c. Проекция полости на плоскость типа $\{110\}$ близка к ромбу с длинной диагональю вдоль лазерного луча и сильно скругленными углами (рис. 5, c). По сравнению с полостью форма вспышки может быть значительно более причудливой. В частности, она может быть невыпуклой или вообще состоять из нескольких пятен.

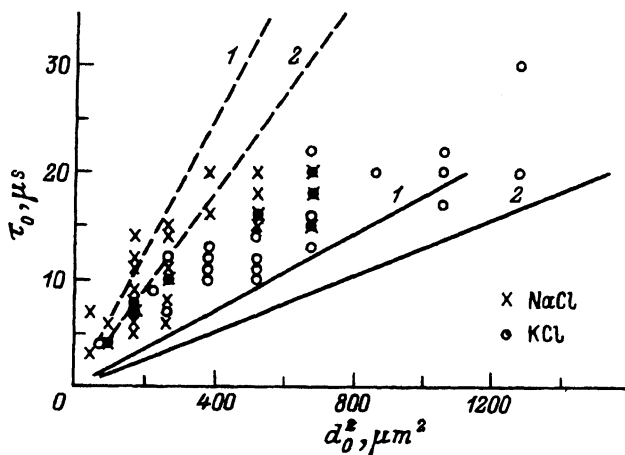


Рис. 4. Взаимосвязь между длительностью вспышки τ_0 и конечным размером полости d_0 .
 Точки — эксперимент, прямые — расчет по теплопроводности NaCl (1) и KCl (2) при комнатной температуре (сплошные) и вблизи плавления (штриховые).

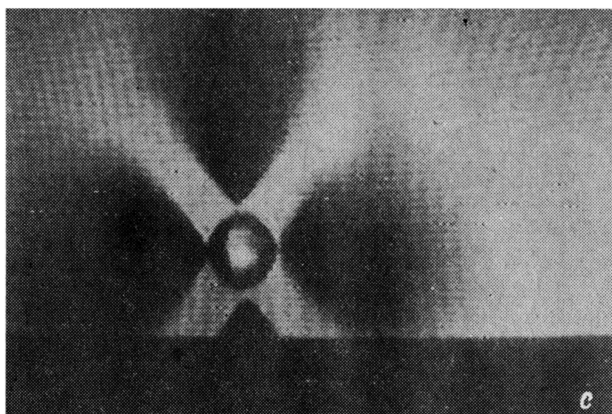
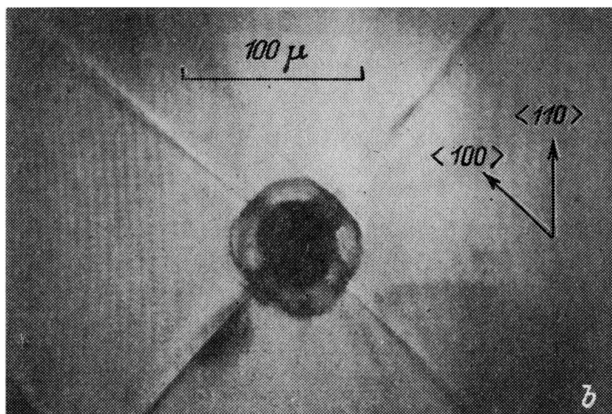
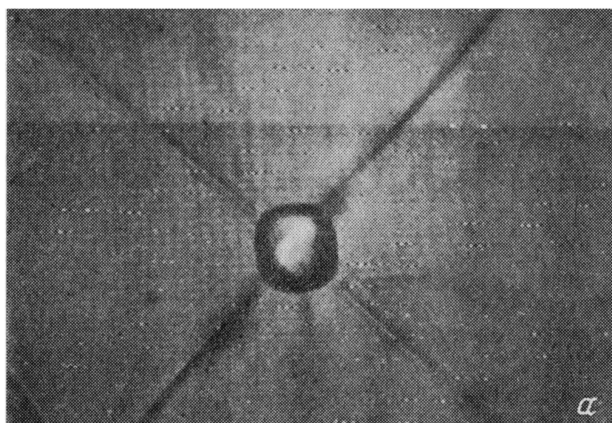


Рис. 5. Пробой в NaCl с образованием макротрещин: мгновенные теневые снимки в моменты $t = 2$ (a), $6 \mu\text{s}$ (c) и 400 ns (e) от начала лазерного импульса. b, d и f — соответствующие окончательные картины. Плоскость снимков a, b, f — $\{100\}$; c, d — $\{100\}$.

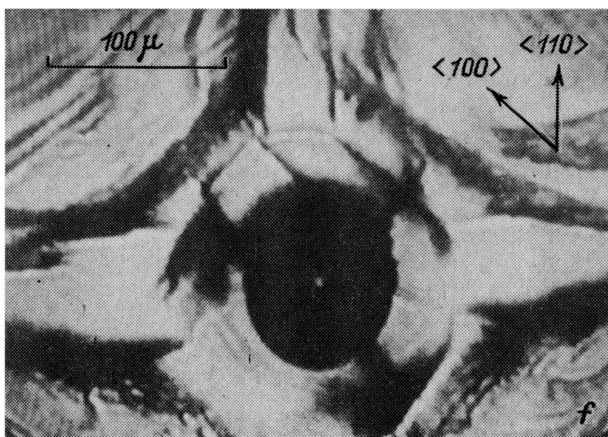
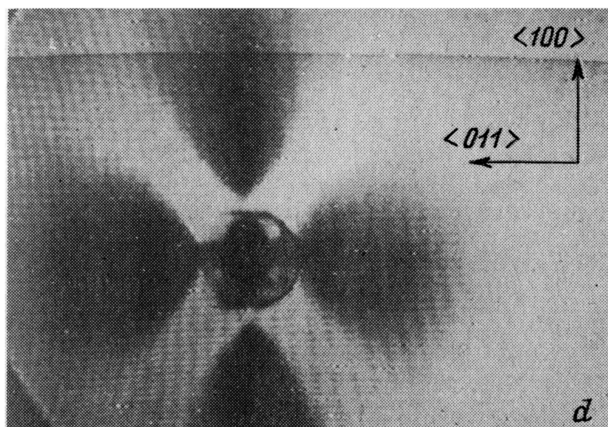


Рис. 5. Продолжение.

Зачастую вспышка имеет слабые выступы в направлениях $\langle 100 \rangle$. Как правило, вытянутость вдоль лазерного луча у нее выражена сильнее, чем у полости. Ни разу не было замечено признаков свечения внутри трещин.

Рис. 6 иллюстрирует динамику развития напряжений вокруг полости. Уже через $1 \mu\text{s}$ после лазерного импульса наблюдается яркий крест с лучами вдоль $\langle 110 \rangle$ шириной до 100μ и длиной в $200\text{--}250 \mu$. При меньших задержках измерения не проводились, а при больших временах размеры креста (главным образом длина лучей) растут и яркость его соответственно снижается. Этот процесс продолжается вплоть до миллисекунд, и только через 10 ms результат скоростной съемки становится неотличимым от окончательной картины остаточных напряжений. При этом длина лучей в кресте составляет $\cong 1 \text{ mm}$. На концах лучи заметно шире, чем в центре, тогда как на ранних стадиях пробоя скорее наоборот (ср. рис. 6, *a, c* и 6, *b, d*). Область напряжений обратно-

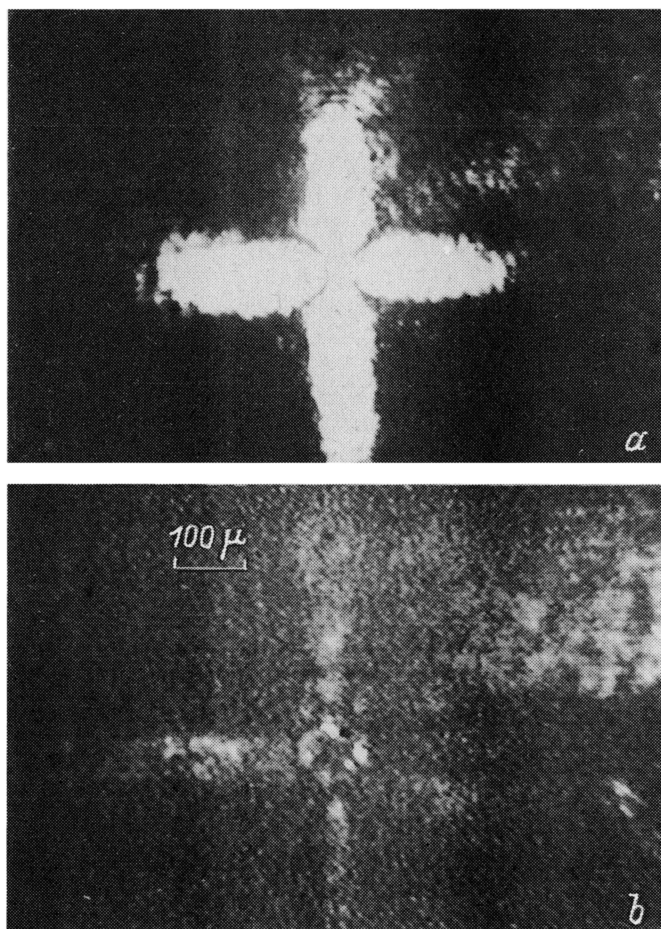


Рис. 6. Распределение напряжений вокруг полости пробоя: в момент времени $t = 1 \mu\text{s}$ (*a*), в момент $t = 4 \mu\text{s}$ после начала лазерного импульса (*c*). *b* и *d* — соответствующие окончательные картины. Скрещенные поляризаторы ориентированы вдоль направлений типа $\{100\}$, подсветка — лазером (*a, b*) или флуоресценцией красителя (*c, d*).

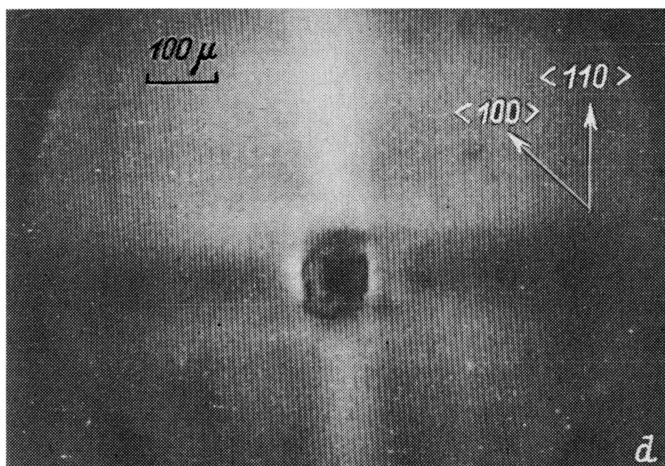


Рис. 6. Продолжение.

го знака вблизи полости [4] (рис. 6, d) появляется примерно через 50 μs после начала пробоя.

3. Обсуждение результатов

Как выяснилось, интерпретация результатов в [7] была не совсем правильной. Там регистрировалась форма не полости, а только вспышки. Последняя выглядела значительно более изотропной, чем в данных экспериментах. Это связано с тем, что внешние контуры вспышки вообще более изотропны, чем внутренние [7]. По-видимому, неоднородность вспышки является следствием структуры поля излучения CO_2 лазера, возмущенного полостью. По окончании лазерного импульса неоднородности начинают сглаживаться. Самые внешние контуры, полученные в [7], несомненно относятся к части полости, образовавшейся уже после импульса лазера, примерно через 10 μs (рис. 3).

Их существенно более изотропный вид позволяет предположить, что характерное время выравнивания неоднородностей порядка τ_0 .

Судя по рис. 4, отвод энергии от полости вполне может определяться теплопроводностью кристалла. С этим неплохо согласуется время τ_m , если, следуя [7], считать, что кольцевые микротрещины — результат быстрой кристаллизации из расплава. Тем не менее вклад излучения в теплоперенос, особенно на ранних стадиях, может быть существенным. Оценим, например, среднее время свечения, считая, что энергия уходит только на излучение $t \cong nEd/\sigma T^4$, где T , n — температура и концентрация молекул в полости; $E \cong 5 \text{ eV}$ — отводимая энергия на одну молекулу; $\sigma = 5.7 \cdot 10^{-8} \text{ W} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{K}^{-4}$ — постоянная Стефана-Больцмана. Взяв $n = 10^{26} \text{ m}^{-3}$ [7], $T = 5000 \text{ K}$, $d = 50 \mu$, получим $t \cong 50 \mu\text{s}$. Полость непрозрачна в видимом диапазоне спектра, где она в основном и излучает [9]. Это позволяет включать перенос тепла излучением в общую температуропроводность внутри полости. В кристалле, разумеется, дело обстоит иначе.

На начальных стадиях роста полости не исключена ситуация, когда быстро растет d и одновременно температура в ней, а концентрация частиц падает. При этом появляется поток газа от центра к периферии полости. Его скорость может быть порядка скорости движения границы полости v_b . Число Рейнольдса этого потока $R = dv_b\rho/\eta$ (ρ и η — плотность и вязкость газа) можно оценить, воспользовавшись соотношением $\eta \cong \rho\kappa$, где κ — температуропроводность в полости без учета вклада излучения. Видно, что $R \cong v_b/(\kappa/d)$ — отношение v_b к скорости сглаживания термоградиентов. Из сравнения характерного времени роста полости 100 ns и типичного времени релаксации термо-неоднородностей $10 \mu\text{s}$ ясно, что R может заметно превосходить 100. Это делает возможным возникновение турбулентности, приводящей к появлению дополнительных температурных неоднородностей.

То, что $v_b \propto I(t)$ (под знаком \propto мы будем понимать линейную зависимость), свидетельствует, видимо, о непрозрачности полости на $\lambda = 10.6 \mu$. В противном случае резонно было бы ожидать, что ее сечение поглощения вследствие как увеличения объема, так и возрастания с температурой коэффициента поглощения газа будет расти в течение всего лазерного импульса, так что основной рост размера придется на его хвост. Рост полости можно рассмотреть чуть более детально, предположив, что газ в ней быстро разогревается до $T \cong 10^4 \text{ K}$, и в дальнейшем T меняется слабо. Давление в полости P в любом случае не должно сильно меняться, поскольку скорость пластической деформации зависит от P очень резко. Это означает, что скорость испарения пропорциональна скорости деформации. Энергетический баланс можно записать в виде

$$W_{las} = W_{rad} + W_{vap}.$$

Здесь W_{las} — поглощаемая лазерная мощность, W_{rad} — интенсивность излучения из полости, $W_{vap} \propto v_b r^2$ — затраты на испарение в полость и деформацию окружающего кристалла, r — радиус полости, $v_b = dr/dt$. Нагревом кристалла, по-видимому, можно пренебречь. Если полость непрозрачна как в видимом диапазоне, так и на 10.6μ , то $W_{las} \propto I(t)r^2$, а $W_{rad} \propto r^2$. Получим $v_b \propto I(t)$, что не противоречит нашим измерениям. Если полость прозрачна как в видимом диапазоне, так и на 10.6μ ,

то $W_{las} \propto I(t)r^3$, а $W_{rad} \propto r^3$, что приводит к $v_b/r \propto I(t)$ и $\ln(r(t)) \propto \int_0^t (I(\tau) - \text{const}) d\tau$. Промежуточный случай $W_{las} \propto I(t)r^3$ и $W_{rad} \propto r^2$ мало отличается от предыдущего. Вероятно, сначала полость растет экспоненциально быстро, а после потери прозрачности $\propto I(t)$.

Изучаемая картина двулучепреломления вокруг полости отражает поле напряжений от розетки краевых дислокаций в системах скольжения типа $\langle 110 \rangle \{ \bar{1}10 \}$, линии которых нормальны плоскости снимка. Обнаруженный характер эволюции напряжений вокруг полости в основном подтверждает выводы [4]. В частности, полностью подтвердились предсказанные там две стадии развития дислокационной структуры — образование полос протяженностью порядка 100μ за время менее $1 \mu\text{s}$ и последующая релаксация. Единственное, что, по нашему мнению, неправильно в [4] — это предположение о том, что релаксация полос определяется остыванием и происходит за время не более $100 \mu\text{s}$. Из наших измерений следует, что это время больше по крайней мере на порядок. Т.е. релаксация происходит вследствие взаимодействия дислокаций внутри полосы. Это согласуется и с результатами изучения движения дислокаций в LiF, инициированного импульсным нагревом с поверхности [10].

Появление примерно через $\cong 50 \mu\text{s}$ напряжений обратного знака (радиальное растяжение—тангенциальное сжатие) говорит о спаде давления и разгрузке за счет отталкивания между дислокациями в сильно деформированной центральной области. Возникающий массоперенос обратно в полость может объяснять сокращение ее размеров при остывании (рис. 3). С другой стороны, значительное сокращение неизбежно и при конденсации пара в расплав. Полость при этом становится шаром, что вызывает дополнительное уменьшение ее размера. Интересно, что на рис. 3 совершенно не видно признаков повторного увеличения полости при затвердевании слоя расплава вокруг нее: в щелочно-галлоидных кристаллах скачок плотности при плавлении составляет около 20%. Возможно, причина связана со значительным объемом, скрытым в кольцевых микротрещинах.

Вытянутость полости вдоль лазерного луча свидетельствует о неоднородности давления на ее стенки, поскольку наибольший вклад в ее формирование вносит пластическая деформация [7]. Характерное время выравнивания давлений в полости $\tau = d/c$, где c — скорость звука в полости, по порядку величины равная тепловой скорости молекул v . При $T = 10^4 \text{ K}$ и $d = 50 \mu$ получим $v \cong 10^5 \text{ cm/s}$ и $\tau \cong 50 \text{ ns}$, что в принципе достаточно много для образования анизотропной полости. Но, возможно, заметный вклад вносит и давление отдачи P_r при испарении твердого материала в полость. Оно пропорционально температуре на границе, т.е. весьма неоднородно. При постоянных T и P его можно оценить как $P_r \cong nmvv_b$, где m — масса молекулы. Т.е. $P_r/P \cong v_b/v$. Наши измерения дают максимальное $P_r > 0.07P$ при $T = 10^4 \text{ K}$.

То, что форма полости напоминает многогранник, может быть только следствием пластической деформации, так как испарение следует распределению температуры. При этом вынос материала должен быть в основном направлен нормально граням. Резонно предположить, что в кристалле NaCl, где направление плотной упаковки атомов и соответственно направление легкого сдвига есть $\langle 110 \rangle$, — это плоскости

типа $\{110\}$, а многогранник — это ромбододекаэдр. В этом случае в проекции на плоскость $\{100\}$ должен быть виден квадрат с вершинами в направлениях $\langle 100 \rangle$, а в проекции на $\{110\}$ — шестиугольник, вытянутый вдоль $\langle 100 \rangle$. Результаты наших съемок, как нам кажется, не исключают такую возможность, однако если судить только по ним, то больше похоже, что мы видим искаженный октаэдр, получая квадрат в проекции $\{100\}$ и ромб в $\{110\}$. Это соответствует максимальному выносу вещества в направлении $\langle 111 \rangle$.

Данная работа частично поддержана грантом Международного научного фонда Дж. Сороса.

Список литературы

- [1] Голубев В.С., Снопко В.И. // ФТТ. 1977. Т. 19. № 1. С. 293–296.
- [2] Крутякова В.П., Смирнов В.Н. // ЖТФ. 1978. Т. 48. № 4. С. 844–852.
- [3] Рогалин В.Е., Самойлова Т.И., Тищенко И.А. // ФТТ. 1980. Т. 22. № 12. С. 3549–3554.
- [4] Gorbunov A.V., Nadgornyi E.M., Val'kovskii S.N. // Phys. Stat. Sol.(a). 1981. V. 66. N1. P. 53–63.
- [5] Крутякова В.П., Смирнов В.Н. // ЖТФ. 1979. Т. 49. № 12. С. 2647–51.
- [6] Крутякова В.П., Смирнов В.Н. // ЖТФ. 1984. Т. 54. № 2. С. 323–326.
- [7] Горбунов А.В., Классен Н.В., Максимук М.Ю. // ЖТФ. 1992. Т. 62. № 12. С. 39–49.
- [8] Горбунов А.В., Емелин В.Я., Классен Н.В. // ЖТФ. 1984. Т. 54. № 7. С. 1383–1385.
- [9] Горбунов А.В., Максимук М.Ю. // ФТТ. Наст. вып. С. 1416–1428.
- [10] Головин Ю.И., Горбунов А.В., Шибков А.А. // ФТТ. 1988. Т. 30. № 7. С. 1931–1937.

Институт физики твердого тела РАН
Черноголовка
Московская область

Поступило в Редакцию
7 декабря 1993 г.