

УДК 535.21:621.375.826

©1994

КИНЕТИКА ЛОКАЛЬНОГО ОПТИЧЕСКОГО ПРОБОЯ В ОБЪЕМЕ ЩЕЛОЧНО-ГАЛОИДНЫХ КРИСТАЛЛОВ: II. СВЕЧЕНИЕ И ЕГО СПЕКТР

А.В.Горбунов, М.Ю.Максимум

Исследована спектральная и яркостная кинетика вспышки оптического пробоя на микровключении в объеме NaCl и KCl под импульсом ТЕА СО₂ лазера. Образующаяся полость со светящимся газом непрозрачна в видимом диапазоне. Однако спектр свечения соответствует испусканию черного тела только на поздних стадиях вспышки, отличаясь от него вначале дополнительным излучением в синей области, предположительно, нетепловой природы. При остывании полости обнаружены всплески свечения, связываемые с колебаниями температуры на ее поверхности.

Данная работа продолжает исследование процессов локального оптического пробоя под импульсом ТЕА СО₂ лазера на изолированном поглощающем микровключении в объеме щелочно-галлоидных кристаллов [1]. В ее основе лежит использование обнаруженного в работах [2,3] и более подробно исследованного в [4] режима «мягкого» оптического разрушения в объеме щелочно-галлоидных кристаллов при лазерной интенсивности существенно ниже пороговой. В этом режиме повреждение размером несколько микрон весьма медленно увеличивается с числом лазерных импульсов и можно в любой момент реализовать обычный режим «однократного» пробоя, просто подняв мощность. Таким образом, поскольку место будущего пробоя известно заранее, его можно детально исследовать с помощью микроскопа.

В работе [1] с помощью оптического многоканального анализатора изучались проинтегрированные по времени спектры одиночных вспышек лазерного пробоя. В основном они были близки к планковской кривой, отличаясь от нее наличием плато или даже подъема в красной области, но некоторые из полученных спектров демонстрировали также широкие особенности в виде полос испускания или поглощения. Эти результаты свидетельствовали в пользу тепловой природы свечения, связанного с образованием на месте поглощающей микрочастицы полости, заполненной разогретым и частично ионизированным паром вещества матрицы. Однако причины отклонений спектра вспышки от планковского оставались невыясненными. Для ответа на этот и ряд других вопросов в настоящей работе изучалась как кинетика свечения, так и динамика его спектра.

1. Методика эксперимента

Для спектральных измерений использовались методика и установка на базе оптического микроскопа с призмным спектрографом (450–850 nm), описанные ранее в [1], которые позволяют регистрировать излучение вспышки от отдельного локального очага пробоя. Отличие заключалось в том, что многоканальный детектор (SIT-видикон с возможностью установки «временных ворот» (B&M Spektronik, FRG)) держался постоянно в запертом состоянии и открывался в момент времени t_1 , а закрывался в момент времени t_2 , отсчитывая от начала импульса CO_2 лазера. В результате регистрировались «мгновенные» спектры излучения в течение заданного временного интервала вспышки свечения. Параметры $t_1 : t_2$ менялись от 0 : 1 μs до 18 : 118 μs с увеличением длительности экспозиции по мере ослабления свечения со временем. Точность установки t_1 и t_2 менялась от 100 ns при $t = 0$ до 1 μs при $t = 100 \mu\text{s}$. Кроме того, для сопоставления спектральных и кинетических особенностей вспышки ее изображение, сформированное в микроскопе, с помощью светоделительного кубика проецировалось одновременно на входную щель спектрографа и приемный элемент ФЭУ-79. Сигнал с последнего наблюдался на экране запоминающего осциллографа С8-12.

Для исследования кинетики вспышки ее излучение передавалось из микроскопа одновременно на два ФЭУ-79: на один — через интерференционный светофильтр с полосой пропускания вблизи 440 nm, а на другой — около 695 nm. Сигналы с этих ФЭУ регистрировались с помощью цифрового запоминающего осциллографа С1-115 со сменным блоком ЯЧС-122, обрабатывались и фотографировались.

Поскольку для интерпретации полученных результатов весьма важен вопрос о степени прозрачности светящегося вещества, то для ответа на него был поставлен специальный эксперимент. В нем через область вспышки свечения пропускалось вдоль оптической оси микроскопа зондирующее излучение лазера на красителе (кумарин 102, длина волны $\lambda = 480$ nm, длительность импульса $\tau \cong 15$ ns), задержка которого относительно начала импульса CO_2 лазера могла быть установлена с точностью 1 μs . Этот луч фокусировался в пятно размером около 10 μ на месте будущего пробоя. С помощью расположенной в плоскости изображения микроскопа диафрагмы с двумя парами подвижных шторок поле зрения ограничивалось так, чтобы образующаяся впоследствии полость перекрыла его целиком. Импульс зондирующего лазера фиксировался с помощью либо ФЭУ-79, либо упомянутой выше спектральной измерительной системы. На экране запоминающего осциллографа С8-12 можно было наблюдать одновременно импульс вспышки свечения и прошедший через светящуюся область импульс лазера на красителе, а на дисплее компьютера — спектр свечения и лазерную линию 480 nm.

Исследовались такие же, как в работе [1], выращенные из расплава монокристаллы NaCl и KCl промышленной чистоты со светорассеивающими центрами, служащими в качестве центров зарождения оптического пробоя в объеме. Мощность CO_2 лазера поддерживалась на таком уровне (интенсивность в фокусе 0.1–1.0 GW/cm^2), чтобы разрушение представляло собой полость без макротрещин диаметром от 10

до 100μ (характерный вид описан, например, в [1,2]). Вид разрушения постоянно контролировался наблюдением в микроскоп, и результаты, если это специально не оговорено, относятся именно к такому режиму повреждения.

2. Экспериментальные результаты

Типичная кинетика свечения при пробое в режиме образования полости без микротрещин демонстрируется на рис. 1. Характерное время затухания вспышки находится в диапазоне $5-50 \mu\text{s}$, причем в красной области спектра свечение всегда затухает медленнее, чем в синей (рис. 1, *c, d*). Наиболее интересная особенность кинетики состоит в том, что после максимума свечения, приходящегося примерно на момент окончания импульса CO_2 лазера, яркость может вновь возрасти, иногда в два раза по сравнению с достигнутым минимумом (рис. 1, *a, b*). На этом этапе поведение интенсивности свечения во времени может быть весьма разнообразным. Довольно часто данный эффект выражается в широком втором максимуме, отстоящем от начала вспышки от 2 до $20 \mu\text{s}$. Но могут быть видны и два дополнительных максимума. Обычно яркость подрастает в них на десятки процентов, а порой наблюдается горизонтальное плато (рис. 1, *c*) или даже просто замедление спада свечения (рис. 1, *d*). Ширина дополнительных максимумов тем больше, чем позже от начала пробоя они наблюдаются. Вероятность наблюдения второго максимума варьируется от образца к образцу, но если он есть, то прослеживается тенденция к увеличению его амплитуды с размером образующейся при пробое полости. Обсуждаемые особен-

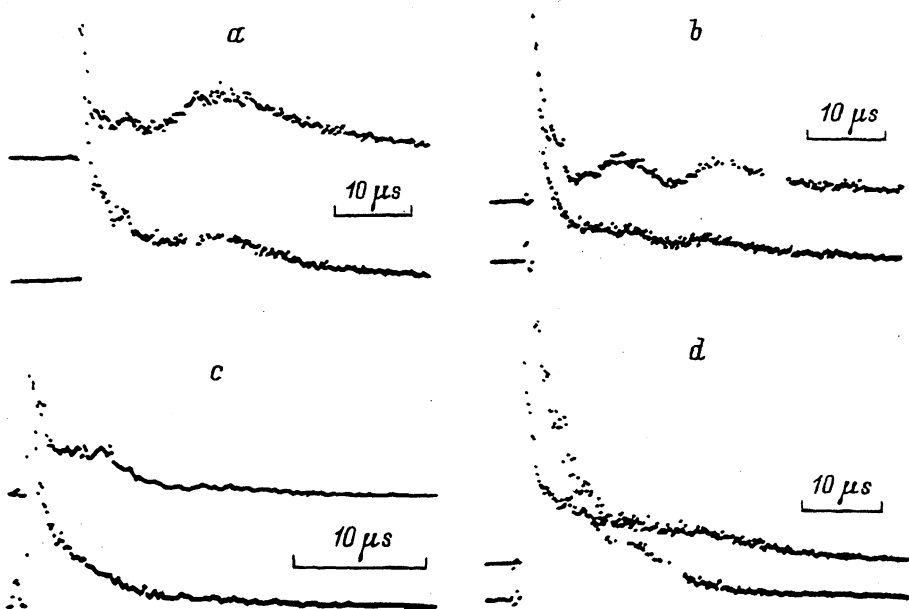


Рис. 1. Типичный вид кинетики вспышки при локальном пробое с образованием полости в объеме NaCl .

a — со вторым максимумом, *b* — с двумя дополнительными максимумами, *c* — с плато, *d* — с изломом на спаде. Везде верхняя осциллограмма соответствует свечению на длине волны 695 nm , а нижняя — на длине волны 440 nm .

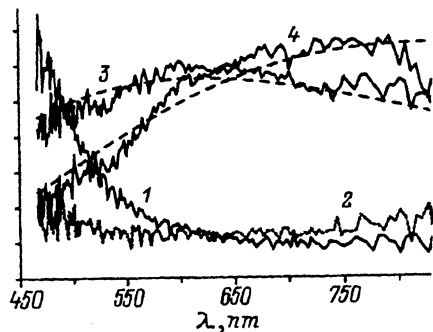


Рис. 2. Характерный вид спектров свечения при локальном лазерном пробое в объеме NaCl и KCl для временных интервалов 0-1 (1), 4-5 (2), 9-11 μ s (3) (штриховая линия — спектр излучения черного тела с $T = 4700$ K) и после 18 μ s (4) (штриховая линия соответствует $T = 3500$ K) от начала лазерного импульса.

ности кинетики видны как на красном, так и на синем крае спектра и в основных деталях подобны, однако в красной области они всегда выражены более отчетливо (рис. 1, a, b).

С повышением лазерной интенсивности размер полости растет. Однако получить полость диаметром существенно больше 100 μ было невозможно без образования обширных радиальных макротрещин по плоскостям типа {100}. Более того, при сильном превышении порога пробоя полость уменьшается или вообще отсутствует, а кинетика свечения кардинально меняется: длительность вспышки сокращается до ≤ 1 μ s, и обрывается она очень резко, зачастую еще в течение лазерного импульса.

Типичные результаты спектральных изменений показаны на рис. 2. Если для изучавших в [1] интегральных по времени спектров близость к излучению черного тела была скорее исключением, то среди регистрировавшихся в данном случае «мгновенных» спектров такие встречаются весьма часто. Соответствующие температуры варьируются от $2 \cdot 10^3$ до $\cong 10^4$ K, и, как правило, более высокая температура соответствует более раннему моменту свечения. Тем не менее обнаруживается, что для любого кристалла даже при не очень большой статистике измерений регистрируются и спектры, явно не лежащие на планковскую зависимость. Обычно они соответствуют промежутку времени первых 5-6 μ s от начала лазерного импульса, в то время как более позднее свечение, как правило, хорошо ею описывается (рис. 2). Отличие измеренного спектра от излучения черного тела всегда можно интерпретировать как чрезмерный подъем в синей области, зачастую слишком крутой для описания любой разумной планковской кривой.

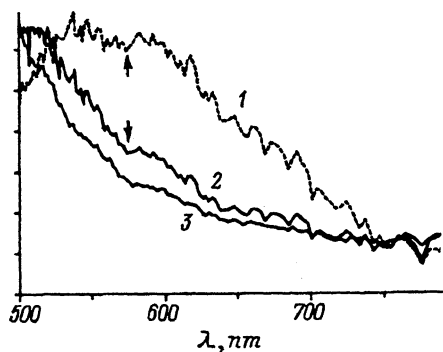


Рис. 3. Спектр вспышки в KCl с особенностью.

1 — необработанный спектр; 2 — тот же спектр с учетом спектральной чувствительности аппаратуры; 3 — аналогично 2, но получен при пробое на другом включении.

Экспозиция 1-2 μ s от начала лазерного импульса.

Следует особо отметить, что спектры, снятые в момент дополнительного максимума на вспышке свечения, качественно никак не выделяются из множества остальных спектров, не имеют каких-то характерных только для этого момента спектральных особенностей и подчиняются вышеприведенным закономерностям.

Кроме того, в области максимальной чувствительности $\cong 600$ нм порой удается различить особенность в виде максимума/минимума амплитудой порядка 10% от уровня континуума (рис. 3).

Каких-либо достоверных различий в спектрах в зависимости от типа щелочно-галлоидных кристаллов (NaCl или KCl) данные измерения выявить не позволяют: регистрируемые спектры при одинаковых параметрах «временных ворот» в гораздо большей степени могут измениться при переходе к образцу того же типа кристалла, но из другого источника или из другой части кристаллической були.

Изменения степени прозрачности области вспышки, сопровождающей локальный оптический пробой в объеме щелочно-галлоидных кристаллов, показали, что зондирующий импульс лазера на красителе начинает проходить через эпицентр разрушения лишь тогда, когда свечение, связанное с оптическим пробоем, уже закончилось. Во время же вспышки вещество сильно непрозрачно: его коэффициент пропускания никак не выше 1%.

3. Обсуждение результатов

Наши исследования показывают, что светящееся вещество непрозрачно. Об этом также свидетельствует большое количество спектров, удовлетворительно описывающихся планковской зависимостью $u(\lambda) \propto \lambda^{-5}/(e^x - 1)$, где $x = hc/\lambda T$, c — скорость света. Таким образом, столь гладкие спектры объясняются, на наш взгляд, не слиянием уширенных линий, а высокой оптической плотностью полости. Как нам кажется, красный подъем в интегральных спектрах [1] вполне объясним как результат суперпозиции «мгновенных» спектров, зарегистрированных в настоящей работе, поскольку свечение с более низкой температурой более продолжительно. Однако возник вопрос о природе отклонений «мгновенных» спектров от $u(\lambda)$ в синей области.

Одно из возможных объяснений состоит в том, что светящийся газ при достаточно высокой плотности может заметно отражать свет видимого диапазона, причем в различных частях спектра по-разному. В этой области диэлектрическая проницаемость газа $\varepsilon = \varepsilon_a + \varepsilon_b + \varepsilon_c$, где ε_a — вклад свободных электронов, ε_b — вклад связанно-свободных переходов (главным образом фотоионизация с возбужденных уровней атома щелочного металла или отрицательного иона галогена), ε_c — вклад дискретных линий атомов и ионов [5]. В данных условиях ε_c должно быть наибольшим.

В самом деле, в стандартной модели Друде

$$\varepsilon_a = -\omega_e^2/(\omega^2 + i\nu\omega),$$

где ν — частота столкновений; ω — частота; $\omega_e^2 = 4\pi N_e e^2/m$ — плазменная частота; N_e , m и e — концентрация, масса и заряд электронов. Для линии с центром на частоте ω_0

$$\varepsilon_c = f\omega_a^2/(\omega_0^2 - \omega^2 - i\gamma\omega),$$

где f — сила осциллятора, γ — ширина линии, $\omega_a^2 = 4\pi N_a e^2 / m$, N_a — концентрация атомов. Видно, что для интенсивных линий с $f \cong 1$

$$\varepsilon_c / \varepsilon_a \cong N_a / N_e.$$

По формуле Саха

$$(N_a / N_e)^2 = 1 + P(2\pi m)^{-3/2} h^3 \exp(E/T) T^{-5/2} [6],$$

где давление $p \cong N_a T$, подставив характерную для Na и K энергию ионизации $E = 5eV$, $T = 10^4$ K и $N_a = 20^{20} \text{ cm}^{-3}$ [1], получим даже в этом предельном случае $N_a / N_e > 6$. Таким образом, вклад линий в диэлектрическую проницаемость превалирует над вкладом свободных электронов.

Вклад связанно-свободных переходов тоже мал. Это видно из сравнения соответствующего поглощения с поглощением в линиях. Поглощение в максимумах линий $\mu_l \cong \omega_a^2 / \gamma c$ при концентрации атомов $10^{20} - 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ [1], даже если линии уширены до 50 nm, может быть на уровне $10^4 - 10^5 \text{ cm}^{-1}$. А для фотоионизации Na при температуре 10^4 K и той же концентрации с помощью формулы Унзольда-Крамерса [5] его можно оценить как $6 \cdot (10^2 - 10^3) \text{ cm}^{-1}$. Последняя оценка показывает, что экспериментально обнаруженная непрозрачность полости обеспечивается даже в промежутках между линиями (если отражение мало, то коэффициент поглощения пара в видимом диапазоне не ниже обратного размера полости: $\mu_{\min} \cong 1/d_0 \cong 2 \cdot 10^2 \text{ cm}^{-1}$).

Объяснение повышенного испускания пара в синей области пониженной отражательной способностью неплохо согласуется с рядом наших наблюдений. Во-первых, действительно, на поздних стадиях свечения, после того как испарение в полость сменится конденсацией (при $T \cong 3500$ K [1]), отражение должно заметно упасть, а спектр испускания приблизиться к планковскому $u(\lambda)$. Во-вторых, рекомбинация атомов щелочного металла и галогена, заканчивающаяся при температуре около 6000 K [1], должна приводить к заметному изменению спектра отражения, и с этим может быть связан второй максимум в кинетике свечения. В такой интерпретации отклонение спектра от $u(\lambda)$ никак не связано с появлением дополнительных всплесков в свечении, что также не противоречит эксперименту.

Однако, как показано выше, ε пара и соответственно его спектр отражения определяются в первую очередь линиями, и потому крайне сомнительно, чтобы он был одинаковым для KCl и NaCl. Линии Cl^- не должны мешать наблюдению линий Na и K с силами осцилляторов порядка единицы, поскольку энергия ионизации атома металла (5.13 eV для Na и 4.34 eV для K) больше 3.82 eV — сродства к электрону для Cl^- , и даже для KCl при $T \cong 10^4$ K концентрация Cl^- не превышает концентрации нейтрального K. Можно, правда, предположить, что действительная часть диэлектрической проницаемости ε_1 много больше мнимой ε_2 и именно плавное изменение ε_1 приводит к изменению отражения. При этом колебания ε_2 слабо сказываются на отражении. Однако наши расчеты для отражения параллельного пучка неполяризованного света от сферы внутри кристалла показали, что тогда для

объяснения как спектральных, так и кинетических результатов показатель преломления светящегося вещества должен меняться от 1.5 до $\cong 7$ от синего к красному краю видимого диапазона. Аналогичные выражения можно выдвинуть против предположения о том, что разный коэффициент поглощения света для разных длин волн приводит к разной глубине слоя, свет которого выходит наружу, и соответственно к различной эффективной поверхностной температуре.

Альтернативное объяснение связано с предположением о неравновесном свечении относительно холодных слоев вещества, прилегающих к полости. Вследствие высокого давления, интенсивного ультрафиолетового (УФ) излучения и, возможно, ударной волны их структура далека от идеального кристалла. Однако даже в идеальном кристалле излучение с энергией кванта порядка ширины запрещенной зоны ($\cong 8 \text{ eV}$), поглощаясь в слое толщиной $\cong 0.1 \mu$, должно породить различные электронные возбуждения, распад которых приводит к образованию разнообразных точечных дефектов и люминесценции преимущественно в УФ области [7]. Возможно, именно край такой люминесценции и регистрируется нами в виде синего подъема на спектрах. Данные возбуждения могут интенсивно поглощать излучение в различных диапазонах частот, в том числе и вблизи 10μ , как это предлагалось в [8] в качестве механизма пробоя. Разумеется, подобные процессы наиболее интенсивны на начальных стадиях пробоя, а их прекращение еще во время вспышки можно связать, например, с быстрым испарением дефектной области в полость.

В принципе один дополнительный максимум в кинетике свечения можно объяснить исчезновением экранировки вспышки окружающим ее дефектным слоем. Но при этом опять возникает все тот же вопрос о независимости спектра экранировки от элементного состава кристалла. Поэтому, скорее всего, особенности на спаде свечения связаны с вариациями температуры. Действительно, в излучении проявляется температура T_s , усредненная по слою, свет из которого выходит наружу. Внутри же T может быть в несколько раз выше. В процессе остывания T_s может возрасти, так как зависимость теплопроводности газа $k(T)$ должна иметь сильный максимум, возрастая, как правило, на порядок, при протекании рекомбинации атомов в молекулу [5]. Если T_s соответствует спаду этого максимума, то возникает сильный градиент k , приводящий к повышению T_s , если поток тепла изнутри полости превысит поток наружу. Наблюдаемой амплитуде второго максимума соответствует повышение T_s не более чем на 20%.

Наблюдение нескольких максимумов в кинетике нетрудно связать с отклонением распределения T в полости от сферически-симметричного: в работе [9] в картине вспышки нередко наблюдаются два горячих пятна, расположенных преимущественно вдоль оси луча CO_2 лазера. При остывании T_s может локально повышаться вне всякой связи с обсуждавшимся выше изменением k . Наличие трех пятен сделало бы возможным четвертый максимум и т.д. Со временем скорость тепловой релаксации падает и максимумы становятся шире, что и наблюдалось в эксперименте. Если в синей области, кроме теплового, есть заметный вклад неравновесного излучения, то становится понятным, почему дополнительные максимумы сильнее выражены в красной области.

Более быстрое затухание синего излучения по сравнению с красным естественно согласуется с представлением о преимущественно тепловой природе свечения. Действительно, на красном склоне планковской зависимости $u(\lambda)$ интенсивность зависит от температуры линейно, а на синем — экспоненциально. Пока максимум планковской кривой находится синее 0.44 nm , оба ФЭУ показывают одинаковую «медленную» скорость спада сигнала: $du/u = dT/T$. При снижении температуры, после прохождения максимума $u(\lambda)$ через 0.44 nm ($T \cong 6600 \text{ K}$), сигнал на «синем» ФЭУ начнет спадать быстрее: $du/u = x \cdot dT/T$. На «красном» же ФЭУ этот переход произойдет при $T \cong 4200 \text{ K}$. Действительно, в эксперименте всегда «красный» сигнал более затянут, а например, на рис. 1,с даже можно видеть переход от медленного спада к быстрому.

Спектральная особенность на рис. 3, на наш взгляд, является проявлением группы самообращенных линий калия вблизи 580 или 530 nm ; точнее определить затруднительно, поскольку величина спектрального сдвига не известна. Для самообращения необходим достаточно сильный рост концентрации излучающих атомов или температуры в глубь вещества [10]. В наших условиях всегда имеется некоторый градиент температуры, а при протекании рекомбинации создается и градиент концентрации атомов металла, направленный вглубь. Поскольку обнаруженная особенность, как правило, отсутствует, благоприятные для самообращения условия, видимо, реализуются не часто.

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

Список литературы

- [1] Горбунов А.В., Классен Н.В., Максимук М.Ю. // ЖТФ. 1992. Т. 62. № 12. С. 39–49.
- [2] Крутякова В.П., Смирнов В.Н. // Письма в ЖТФ. 1976. Т. 2. № 24. С. 1111–1114.
- [3] Крутякова В.П., Смирнов В.Н. // ЖТФ. 1978. Т. 48. № 4. С. 844–852.
- [4] Горбунов А.В., Емелин В.Я., Классен Н.В. // ЖТФ. 1984. Т. 54. № 7. С. 1383–1385.
- [5] Райзер Ю.П. Физика газового разряда. М.: Наука, 1987. 592 с.
- [6] Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М. Статистическая физика. М.: Наука, 1964. 568 с.
- [7] Лущик Ч.Б., Лущик А.Ч. Распад электронных возбуждений с образованием дефектов в твердых телах. М.: Наука, 1989.
- [8] Данилейко Ю.К., Маненков А.А., Нечитайло В.С. // Квантовая электроника. 1978. Т. 5. № 1. С. 194–195.
- [9] Горбунов А.В., Максимук М.Ю. // ФТТ. Наст. вып. С. 1429–1436.
- [10] Виберман Л.М. // ЖЭТФ. 1949. Т. 19. № 7. С. 584.

Институт физики твердого тела РАН
Черноголовка
Московская область

Поступило в Редакцию
7 декабря 1993 г.