

- [1] O s a m u M i c h i k a m i, H i d e f u m i A s a n o, Y u j i r o K a t o h, S h u g o K u b o. // Jap. Journ. of Appl. Phys. 1987. V. 26. N 7. P. L1199-L1201.
- [2] H e l l m a n E.S., S c h l o m D.G., M i s s e r t N., C h a r K., H a r - r i s J.S. // J. Vac. Sci. and Technol. 1988. B 6. N 2. P. 799-803.
- [3] B u d h a n i R.C., T z e n g S.H., D o - e r r H.J., B u h s h a h R.F. // Appl. Phys. Lett. 1987. V. 51. P. 1277-1281.
- [4] M a y P., J e d a m z i k D., M i l l e r P. // Supercond. Sci. Technol. 1988. V. 1. P. 1-4.

Физико-технический
институт им. А.Ф. Иоффе
АН СССР, Ленинград

Поступило в Редакцию
13 марта 1989 г.

Письма в ЖТФ, том 15, вып. 8

26 апреля 1989 г.

02; 05.2

НИЗКОЭНЕРГЕТИЧЕСКИЙ МЕХАНИЗМ ЛАЗЕРНОЙ АБЛЯЦИИ ВЫСОКОТЕМПЕРАТУРНЫХ СВЕРХПРОВОДНИКОВ

Э.Н. С о б о л ь

Одной из особенностей высокотемпературных сверхпроводников (ВТСП) является относительно низкое значение порога лазерной абляции W_0 , при воздействии лазерных импульсов длительностью $\tau = 30$ нс на пленки $YBa_2Cu_3O_x$ $W_0 = 0.11$ Дж·см⁻², что не может быть объяснено существующими моделями плавления и испарения вещества [1, 2].

В настоящей работе рассмотрен механизм лазерного разрушения ВТСП, связанный с выделением кислорода при термическом разложении керамики. Установлено, что при достижении некоторой плотности энергии излучения W возникает колебательный режим, при котором температура T и давление кислорода P на фронте химической реакции меняются со временем немонотонно, причем в определенных условиях процесс носит неустойчивый характер, что приводит к значительному перегреву поверхности и к резкому увеличению P . Показано, что кинетика лазерного разложения, механизм и величина порога абляции зависят от пористости керамики θ , от характерного размера пор r , а также от τ .

Процесс нагрева ВТСП лазерным излучением описывается известным решением задачи теплопроводности с объемным источником тепла $A W/cm^2 \alpha \exp(-\alpha x)$, где A — поглощательная способность, α — коэффициент поглощения. Пусть разложение материала начинается при достижении на поверхности температуры T_0 . Представив химическую реакцию в виде $C \rightleftharpoons B + kO_2$, где B — твердые продукты разложения, k — число молекул кислорода, соответствующих одной молекуле исходного вещества C , получим величину давления кислорода

$$P = P_0 \exp(-E_1 T^{-1}), \quad P_0 = \exp(\Delta S R^{-1} k^{-1}). \quad (1)$$

Здесь $E_1 = \Delta H R^{-1} k^{-1}$, R — газовая постоянная, ΔH и ΔS — соответственно изменения энтальпии и энтропии при разложении ВТСП.

В начале процесса слой твердых продуктов не оказывает заметного сопротивления выносу кислорода, кинетика разложения определяется энергией активации перехода атомов через границу раздела фаз и темпом подвода тепла. Тогда в первом приближении, аналогично [3], запишем для скорости движения фронта химической реакции:

$$v = c_0 \exp(-E_1 T^{-1}) \quad (2)$$

c_0 — константа порядка скорости звука в керамике.

С увеличением толщины слоя $s(t)$ удаление кислорода затрудняется. Анализ механизмов и кинетики переноса газов в растущих слоях новой фазы с учетом их пористости дает [4]:

$$v = \frac{ds}{dt} = F s^{-1}, \quad F = DPM(kRT\gamma)^{-1}. \quad (3)$$

Здесь D — эффективный коэффициент переноса, M — молекулярный вес γ — плотность ВТСП. В соответствии с [4]

$$D = D_0 T^\epsilon P^{-1} + D_1 r^2 P T^{-\epsilon}, \quad v = B_1 s^{-1} T^{\epsilon-1} + B_2 s^{-1} \exp(-2E_1 T^{-1}), \quad (4)$$

где $D_0, D_1, B_1, B_2, \epsilon$ — постоянные. В формулах (4) первые члены отвечают газовой диффузии в порах, которая определяет кинетику массопереноса при относительно небольших T , а вторые члены описывают процесс фильтрации, преобладающий при $T > T_f$.

Величина T_f находится из условия $\frac{\partial D}{\partial T} = 0$.

Значение s_0 , при котором разложение начинает лимитироваться переносом кислорода, найдем, приравнявая величины v из формул (2) и (4).

$$s_0 = B_1 c_0^{-1} T^{\epsilon-1} \exp(E_1 T^{-1}) + B_2 c_0^{-1} \exp(-E_1 T^{-1}).$$

Для определения функции $T(t)$ необходимо рассмотреть соответствующую задачу теплопроводности в области с движущейся

границей, на которой выполняется кинетическое условие (2) либо (4) [5]. Чтобы не усложнять анализ второстепенными деталями, пренебрежем различием теплофизических свойств пленки и подложки (характеристики $YBa_2Cu_3O_x$ и фанита отличаются незначительно [6]). Тогда при $s \ll \min \left\{ s_0, \frac{1}{\alpha}, \frac{W}{c \gamma T_0} \right\}$, где c — теплоемкость керамики, процесс разложения может быть описан аналогично задаче о сублимации твердого тела [7], из решения которой следует существование области немонотонного изменения со временем температуры и скорости движения границы раздела фаз. Используя условие существования колебательных режимов [7], найдем для $YBa_2Cu_3O_x$ (при $\Delta H = 43.7$ КДж моль⁻¹, $\Delta S = 32.8$ Дж·моль⁻¹, $k = 0.25$, $c_0 = 3 \cdot 10^5$ см·с⁻¹, $A = 0.8$, $\alpha = 5 \cdot 10^4$ см⁻¹, температуропроводности $a = 7 \cdot 10^{-3}$ см² с⁻¹, теплопроводности $\kappa = 2.2 \cdot 10^{-2}$ Вт·см⁻¹ град⁻¹ [6, 8], $\tau = 30$ нс) диапазон значений W , в котором должны происходить осцилляции температуры и давления, от 0.1 до 10 Дж·см⁻². Таким образом, порог абляции 0.11 Дж см⁻² соответствует границе области колебательных режимов. В процессе разложения ВТСП температура фронта химической реакции существенно превышает равновесное значение T_0 , то в соответствии с (1) обуславливает резкое увеличение давления газа, которое приводит к разрушению поверхностного слоя.

При анализе кинетики разложения (до наступления момента разрушения) следует учитывать затраты энергии на нагрев слоя новой фазы, а при $s > s_0$ использовать вместо (2) граничное условие (4), что приводит к изменению кинетики процесса при сохранении его колебательного характера. Как показывает анализ, при $T < T_f$ функции $T(t)$ и $s(t)$ возрастают, а $\sigma(t)$ слабо убывает со временем. При $T > T_f$ изменение преобладающего механизма массопереноса газов обуславливает возникновение положительной обратной связи: увеличение T приводит к повышению ρ , что вызывает ускорение фильтрации и увеличивает скорость движения фронта химической реакции, который перемещается в более нагретую область; при этом температура фронта повышается еще сильнее, и происходит резкое возрастание давления. В отличие от затухающих колебаний параметров лазерной сублимации [7] колебательные режимы разложения ВТСП при $T > T_f$ становятся неустойчивыми.

Поскольку величина s_0 растет с температурой быстрее, чем S , то в процессе роста слоя при определенном значении T_2 (при котором $s = s_0$) массоперенос перестанет лимитировать кинетику разложения, и колебания $T(t)$ и $\rho(t)$ (если они не привели к разрушению) приобретут затухающий характер. Поэтому рассмотренная неустойчивость развивается в определенном диапазоне температур $T_f < T < T_2$. Оценки для $YBa_2Cu_3O_x$ при $r = 0.4$ мкм, $T_0 = 1250$ К дают $T_f = 1700$ К; $T_2 = 2600$ К; $\rho(T_f) = 30$ атм; $\rho(T_2) \approx 2000$ атм.

Температура плавления продуктов разложения керамики составляет ~ 1600 К [2], и наиболее вероятным механизмом начальной

стадии абляции является разбрызгивание оплавленного слоя под действием всплесков давления выделяющегося кислорода. При увеличении W и τ перегрев поверхности должен привести к развитию процесса испарения. В этом случае кинетика абляции может быть описана с помощью модели [9]. Энергоемкость такого процесса на порядок величины больше W_0 , что соответствует экспериментальным результатам [1, 2].

Таким образом, для начала разрушения поверхности ВТСП достаточно обеспечить колебательный режим разложения. Однако расчет нагрева полуограниченного тела для рассмотренного выше примера дает максимальное значение температуры $1150 \text{ K} < T_0$, т.е. величины $0.11 \text{ Дж} \cdot \text{см}^{-2}$ недостаточно для начала химической реакции.

Необходимые условия локального перегрева реализуются при наличии в керамике пор размерами $r \gg \sqrt{2\tau}$, которые способны теплоизолировать лежащие над ними слои. Иначе говоря, существует предельная длительность лазерного импульса $\tau_0 = r^2(4\alpha)^{-1}$, при которой может проявляться рассмотренный механизм абляции. Значения τ_0 составляют 60 нс при $r = 0.4 \text{ мкм}$ и 6 мкс при $r = 4 \text{ мкм}$. При $\tau > \tau_0$ следует ожидать существенного увеличения порога абляции.

Если среднее расстояние между порами $l \gg 4r$, то разрушение должно носить очаговый характер. Поскольку $l \approx N^{-1/2}$; $N = \theta(\pi r^2)^{-1}$, где N – число пор на единице площади, то данное условие выполняется при $\theta \ll 0.2$. В противном случае отдельные очаги могут объединяться, и разрушению подвергнется большая доля облучаемой площади.

В заключение сделаем два замечания. Возникновение осцилляций давления кислорода возможно не только при разложении, но и при низкотемпературных фазовых переходах, происходящих в ВТСП с выделением кислорода. Оценки показывают, что вследствие относительно небольших значений энергии активации [8] возникающие давления невелики и не могут привести к разрушению. Конкурирующий механизм абляции может быть связан с термическими напряжениями. Оценки показывают, что в процессе лазерного нагрева до температуры плавления сжимающие напряжения не превышают предела прочности керамики, а растягивающие напряжения, обусловленные разницей коэффициентов линейного расширения пленки и подложки могут привести к отслаиванию пленок толщиной $h \approx \sqrt{\alpha \tau}$. Для рассмотренного выше примера $\tau = 30 \text{ нс}$, $h = 1 \text{ мкм}$ выполняется соотношение $\sqrt{\alpha \tau} < \alpha^{-1} \ll h$, то есть хрупкого разрушения быть не должно.

Автор выражает признательность С.И. Анисимову, А.Н. Жерихину и Ф.А. Чудновскому за плодотворное обсуждение работы.

С п и с о к л и т е р а т у р ы

- [1] I n a m A., W u X.D., V e n k a t e s a n T
O g a l e S.B. // Appl. Phys. Lett. 1987. V. 51.
N 14, P. 1112–1114.

- [2] Venkatesan T., Wu X.D., Inam A., Wachtman J.B. // Appl. Phys. Lett. 1988. V. 52. N 14. P. 1193-1195.
- [3] Анисимов С.И., Имас Я.А., Романов Г.С., Ходыко Ю.В. Действие излучения большой мощности на металлы. М.: Наука, 1970. 272 с.
- [4] Соболев Э.Н. // Письма в ЖТФ. 1984. Т. 10. № 1. С. 40-44.
- [5] Любов Б.Я., Соболев Э.Н. // ИФЖ. 1983. Т. 45. № 4. С. 670-687.
- [6] Fischer H.E., Watson S.K., Cahill D.G. // Comments on Condensed Matter Physics. 1988. V. 14. N 2. P. 65-128.
- [7] Анисимов С.И., Гольберг С.М., Соболев Э.Н., Трибельский М.И. // Письма в ЖТФ. 1981. Т. 7. № 14. С. 882-887.
- [8] Fitzner K., Chang Y.A. - High-Temperature Superconductors II, Pittsburgh, USA, 1988. P. 285-288.
- [9] Соболев Э.Н. // ЖТФ. 1982. Т. 52. № 8. С. 1697-1699.

Поступило в Редакцию
8 февраля 1989 г.

Письма в ЖТФ, том 15, вып. 8

26 апреля 1989 г.

07; 12

ПСЕВДОГЛУБОКАЯ ГОЛОГРАММА

Ю.Н. Денисюк

Глубокие трехмерные голограммы, как известно, обладают рядом весьма полезных свойств: высокой спектральной и угловой селективностью, отсутствием сопряженного изображения, возможностью ассоциативной выборки информации, а также допускают реконструкцию обычным источником со сплошным спектром и т.д. [1-4]. К сожалению, получение таких голограмм связано с очень большими трудностями, обусловленными, в основном, ограниченными возможностями создания необходимых светочувствительных сред.

Ниже рассматривается возможность получения так называемых псевдоглубоких голограмм, т.е. записанных и восстановленных по специальной схеме тонкослойных голограмм, оптические свойства которых идентичны свойствам трехмерных голограмм, имеющих практически неограниченную толщину. Эта возможность появляется в результате ограничения класса регистрируемых объектов одно-