

09,13

## Волнообразные разрушения на входной поверхности оптических сред мощными наносекундными лазерными импульсами, как проявление вынужденного радиального рассеяния в поверхностном слое

© Н.Е. Быковский

Физический институт им. П.Н. Лебедева РАН,  
Москва, Россия

E-mail: bykovskijne@lebedev.ru

Поступила в Редакцию 13 апреля 2022 г.

В окончательной редакции 2 июня 2022 г.

Принята к публикации 14 июня 2022 г.

Анализируются волнообразные разрушения на входной поверхности лазерных сред, образованные при воздействии на них мощными наносекундными лазерными импульсами, которые наблюдались в различных экспериментальных работах. Иногда эти разрушения проявлялись в виде системы прямых, пересекающихся под определенными углами линий. На основе анализа предлагается механизм их образования — как проявление в поверхностном слое вынужденного радиального рассеяния.

**Ключевые слова:** вынужденное радиальное рассеяние, биение волн в поверхностном слое, пластическая деформация.

DOI: 10.21883/FTT.2022.10.53102.350

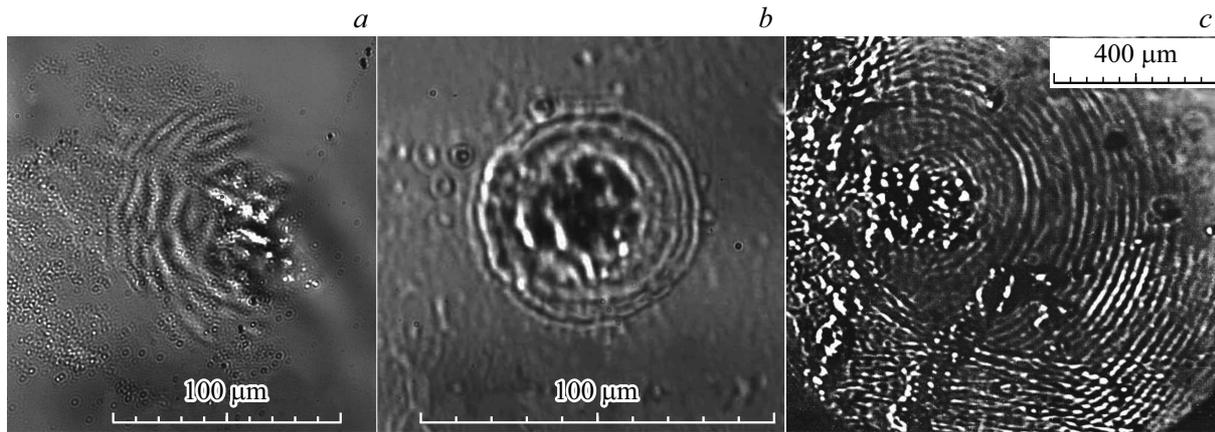
### 1. Введение

Образующиеся на поверхности различных сред волнообразные повреждения в виде периодических волн или системы концентрических колец в результате мощного лазерного воздействия наблюдаются в различных экспериментальных работах. Как правило, наибольший интерес, как для теоретиков, так и экспериментаторов, представляют волны на поверхности металлических пленок, образующихся под действием фемтосекундных импульсов [1–3]. Их образование связывают с плазмон-поляритонным рассеянием от границ поверхностных неоднородностей, в результате которого поверхностная волна периодически взаимодействует с волной накачки в точках совпадения их фаз, образуя стоячие волны, в пучностях которых происходит выделение энергии, приводящее к искажению поверхности. Выделение энергии, приводящее к абляции среды при плазмон-поляритонном рассеянии, происходит за счет рассеяния взаимодействующих волн на свободных электронах, образующихся за счет многофотонной ионизации. Необходимые для этого высокие потоки ( $I \sim 10^{13} \text{ W/cm}^2$ ) реализуются при фемтосекундных импульсах. Так как в этом случае не возникает разницы в частотном распределении взаимодействующих волн, то поверхностные волны образуются с периодом близким периоду световой волны.

В настоящей работе рассматриваются волны не на металлической поверхности, а на входной поверхности прозрачных оптических сред, образующихся за счет фонон-поляритонного рассеяния в поверхностном слое, которое по сути, является комбинационным рассеяни-

ем, выделение энергии при котором происходит за счет разностной энергии между стоксовой волной и волной накачки, идущей на резонансное возбуждение молекулярных колебаний, и происходящее при гораздо меньших по интенсивности наносекундных импульсах ( $I \sim 10^8 - 10^9 \text{ W/cm}^2$ ). В качестве источника стоксовых волн, распространяющихся вдоль поверхности, предлагается механизм их образования в прозрачных диэлектриках, основанный на проявлении радиального рассеяния [4] в поверхностном слое. В результате радиально рассеиваемые от центра или границы неоднородности стоксовые волны, идущие вдоль поверхности, ортогонально взаимодействуют с падающей на поверхность волной накачки в точках их биений. Это делает период образующихся волн намного большим периода волны накачки, а усиление стоксовых волн в процессе резонансного взаимодействия и возбуждения новых фононов существенно замедляет процесс их затухания. В результате у нас образуются слабо затухающие волны с большим числом периодов. В принципе, это результат интерференции поля, создаваемого фонон-поляритонным рассеянием в поверхностном слое с ортогонально падающим полем волны накачки.

В предыдущей работе [4] были описаны поверхностные кратеры с волнообразной поверхностью, образованные не в результате абляции, а в результате пластической деформации среды под действием интерференции периодической последовательности ударных волн, образующихся при совместном развитии бриллюэновского и комбинационного рассеяния. Никакого дополнительного рассеяния, которое можно было бы связать с лавинной



**Рис. 1.** Кольцевые структуры: *a–b* — на поверхности YAG при воздействии на нее лазером на центрах окраски ( $\tau \sim 20$  ns,  $\lambda \sim 920$  nm,  $I \sim 5 \cdot 10^9$  W/cm<sup>2</sup>), и *c* — на поверхности Ge ( $\tau \sim 1$  μs,  $\lambda = 10.6$  μm,  $I \sim 4 \cdot 10^8$  W/cm<sup>2</sup>).

ионизацией (оптическим пробоем) в работе [4] обнаружено не было. В работе [4] показано, что подобный механизм при рассеянии на микронеоднородностях приводит к образованию продольно-радиальных периодических волн, радиальный период которых определяется периодом стоксовой волны рассеяния из центра наружу. В результате их ортогонального взаимодействия с волной накачки у нас образуются сходящиеся на ось ударные волны.

Затравками для развития как продольного, так и радиального рассеяния служат любые неоднородности в оптической среде, у которых энергия связи образующих их атомов отличается от энергии связи атомов в однородной среде. Это приводит к возбуждению колебаний атомов на их резонансных частотах в поле волны накачки, а, следовательно, изменению частоты рассеиваемых на них фотонов, что означает выделение энергии. Стоксовые волны рассеяния при достаточной интенсивности накачки приводят к возбуждению как бриллюэновского рассеяния навстречу волне накачки с формированием акустических волн, так и комбинационного рассеяния. В случае, если у нас одновременно развивается рассеяние Мандельштама–Бриллюэна, которое при большой длительности импульса приводит к прорастанию акустических волн навстречу волне накачки до самой поверхности с одновременным ростом интенсивности рассеяния, а в максимумах акустических волн происходит комбинационное рассеяние, то из-за большого передаваемого атомам среды импульса происходит их трансформация в периодическую последовательность ударных волн. При большой интенсивности этих волн они могут привести к продавливанию поверхности, описанному в работе [5], которое наиболее ярко проявляется в средах с низким порогом фазового перехода. Но стоксовое комбинационное рассеяние может одновременно происходить и в поперечной (радиальной) плоскости, в которой, ортогонально взаимодействуя с бегущей волной накачки в точках совпадения их фаз, возбуждать вынужденное

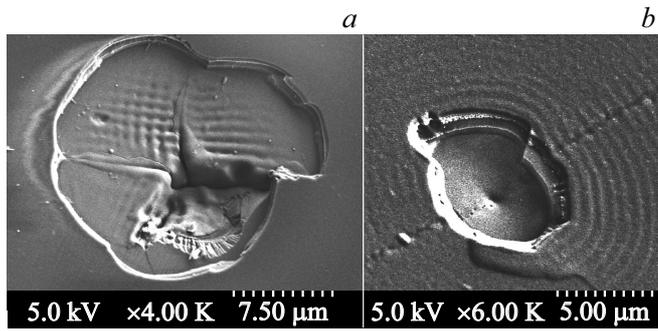
радиальное рассеяние. В этом случае сложение их импульсов приводит к формированию периодической последовательности ударных волн, сходящихся на ось под углом  $\sim 45^\circ$ , вызывая на ней резкое повышение температуры и давления. Как правило, происходит одновременное развитие продольного и радиального рассеяния. Так как ударные волны сходятся на ось в виде концентрических волн, то в оптических средах с низким порогом фазового перехода (YAG, Si, Ge, AsGa) они могут образовывать на поверхности симметричные лунки продавливания (микрократеры) малого размера  $\varnothing \sim 3\text{--}10$  μm, показанные в работе [4].

В настоящей работе речь пойдет о механизме формирования на поверхности вокруг образованного кратера концентрических волн с постоянным или непрерывно меняющимся по радиусу периодом [6]. Подобные концентрические волны на поверхности склонов образующегося кратера наблюдаются вокруг его центра [7], являющегося, как правило, центром радиального рассеяния в виде стоксовых волн. Иногда концентрические волны бывают окаймлены системой параллельных линий пересекающихся под определенными углами.

В настоящей работе сделана попытка объяснить механизм их образования радиальным рассеянием.

## 2. Возбуждение концентрических поверхностных волн

В работе [4] был описан механизм формирования радиальных волн в случае плоского волнового фронта волны накачки, рассеиваемой на микронеоднородностях среды. Если этот процесс приводил к прорастанию радиальных волн от затравочной неоднородности до входной поверхности, то вокруг образованного на поверхности кратера с резкими границами иногда (при повышенной интенсивности, при которой превышает порог) возникала система концентрических колец с различным периодом (рис. 1, *a–c*). На рис. 1, *a–b* — показаны



**Рис. 2.** *a* — волны на поверхности S–FAP после абляции с нес просветляющих слоев, *b* — периодические волны на поверхности просветляющих слоев, развивающиеся от границ кратера, образованного в результате абляции этих слоев ( $\tau \sim 3.5$  ns,  $\lambda \sim 1064$  nm,  $I \sim 5.7 \cdot 10^9$  W/cm<sup>2</sup>).

кольцевые структуры на поверхности кристалла YAG, при накачке наносекундным импульсом с широким спектром, полученные на установке, описанной в работе [4].

Структуры на поверхности Ge, представленные на рис. 1, *c*, получены при накачке микросекундным лазером на CO<sub>2</sub> из работы [6]. На этих рисунках, на фоне колец, видны и отдельные микролунки продавливания. Поверхностные волны развиваются от границ, являющихся источником рассеяния стоксовых волн, распространяющихся вдоль поверхности, на которую перпендикулярно падает взаимодействующая с ними волна накачки. Эти волны, развиваясь от границ вдоль поверхности, отслеживают кривизну этих границ.

Наглядно это показано на рис. 2 из работы [8]. На рис. 2, *a* видны периодические волны, идущие параллельно трещинам, образованным на поверхности кристалла S–FAP — [Yb<sup>3+</sup>:Sr<sub>5</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>3</sub>F] после абляции слоев просветляющего покрытия (HfO<sub>2</sub>–SiO<sub>2</sub>). Видно, что в случае размытости границ сравнимых с периодом волн (вертикальная трещина справа) волны не образуются. Достаточно четкая система периодических волн, изгибы которых отражают изгибы границ кратера, представлена на рис. 2, *b*, которая наблюдалась на поверхности просветляющего покрытия нанесенного на поверхность S–FAP. Образец подвергался воздействию излучения Nd:YAG лазера на длине волны 1064 nm с длительностью 3.5 ns и плотностью энергии 20 J/cm<sup>2</sup>.

Радиальные волны, развивающиеся внутри оптической среды, сами выбирают угол, под которым они будут в синхронизме с волной накачки. В среде, взаимодействии стоксовой волны рассеяния и бегущей волны накачки происходит в точках совпадения их фаз. Так как период стоксовой волны ( $T_{st}$ ) больше периода волны накачки ( $T_p$ ), то совпадение их фаз происходит со смещением от вертикали (от перпендикуляра к оси). Это смещение в продольном направлении за период их взаимодействия, выраженное через их периоды, равно  $T_{st} - T_p$ . Эта разница, деленная на период стоксовой волны

(прямоугольный треугольник с гипотенузой равной  $T_{st}$ ) определяет угол наклона стоксовой волны относительно перпендикуляра к оси

$$\sin \alpha = \frac{T_{st} - T_p}{T_{st}}.$$

Так как периоды стоксовой волны и волны накачки равны

$$T_{st} = \frac{\lambda_{st}}{cn_{st}} \text{ и } T_p = \frac{\lambda_p}{cn_p}, \text{ то } \alpha = \arcsin \left( 1 - \frac{\lambda_p n_{st}}{\lambda_{st} n_p} \right).$$

Этот угол автоматически подстраивается под изменение интенсивности взаимодействующих волн, изменяющих показатель преломления среды.

Стоксовые волны, рассеивающиеся от границ неоднородностей вдоль поверхности, не имеют такой возможности, и совпадение их фаз с фазой волны накачки, падающей по нормали на поверхность, происходит в точках биения этих волн. Частота биений  $\nu_{be}$  (frequency of wave beats) равна разности пространственных частот  $\nu_{be} = \nu_{st} - \nu_p$ , стоксовой волны в среде ( $\nu_{st} = n_{st}/\lambda_{st}$ ) и волны накачки ( $\nu_p = n_p/\lambda_p$ ). При этом каждый максимум волн биений промодулирован с частотой

$$\nu = \frac{\nu_{st} + \nu_p}{2}.$$

Величина, обратная частоте биений

$$\frac{1}{\nu_{be}} = \lambda_{be} = \frac{1}{\frac{n_p}{\lambda_p} - \frac{n_{st}}{\lambda_{st}}}$$

определяет период образующихся поверхностных волн.

В результате ортогонального взаимодействия этих волн, происходящего, когда разница их фаз равна  $2\pi m$ , где  $m$  — целое число, получаем стоячую поверхностную волну, период которой равен периоду биений взаимодействующих волн. Начальная фаза стоксовой волны равна фазе волны накачки в момент ее рассеяния, поэтому при когерентной волне накачки их фазы сохраняют взаимную корреляцию. В принципе, это тоже комбинационное рассеяние в поперечном или радиальном направлении, только не внутри среды, а в ее поверхностном слое, при котором волна, идущая вдоль поверхности и взаимодействующая с волной накачки, является стоксовой волной комбинационного рассеяния. Это можно назвать вынужденным фонон-поляритонным радиальным рассеянием на границе раздела двух сред, подчиняющемся дисперсионным соотношениям, отличным от нормальной дисперсии.

Т.е. волны накачки, рассеивающиеся на фонах, возбуждаемых при радиальном рассеянии уже в виде стоксовых волн, сами взаимодействуют с волной накачки в поверхностном слое в точках совпадения их фаз. Но для того, чтобы образовались поверхностные волны необходимо, чтобы источник стоксового поверхностного

рассеяния имел резкую неподвижную границу. Происходящая при этом передача поверхностным молекулам разностной энергии и импульса приводит к образованию поверхностных волн. Так как начальная фаза этих волн не меняется (границы горячих областей считаются неподвижными), то точки, в которых происходит взаимодействие волн с образованием фононов и стоксовых фотонов, будут неподвижными. В случае смещения границ (границ кратера) в процессе воздействия импульса накачки, на эту же величину смещаются и максимумы образующихся волн.

Для определения периода образующихся поверхностных волн необходимо знать показатель преломления для стоксовой волны и характер его изменения. Диэлектрическая проницаемость в общем случае равна

$$\varepsilon = \varepsilon_0(1 + N\alpha) = \varepsilon_0 \left\{ 1 + N \left[ \alpha_0 + \left( \frac{\partial \alpha}{\partial X} \right)_0 X \right] \right\},$$

где  $N$  — концентрация участвующих в распространении света осцилляторов, а  $(\partial \alpha / \partial X)_0$  — дифференциальная поляризуемость. Максимальное изменение диэлектрической поляризуемости из-за резонансного взаимодействия волн связано с нелинейным членом

$$\varepsilon_0 N \left( \frac{\partial \alpha}{\partial X} \right)_0 X.$$

Для его определения необходимо получить выражение для нормальной колебательной координаты осцилляторов, которое можно получить из макроскопической теории вынужденного комбинационного рассеяния, развитой в классической работе Ярива [9]. В приведенной работе используется модель рассеивающей среды, состоящей из  $N$  гармонических осцилляторов (на единицу объема), каждая из которых соответствует одной молекуле. Осцилляторы независимы друг от друга, т.е. ансамбль осцилляторов не может поддерживать волнового движения с отличной от нуля групповой скоростью. Каждый осциллятор характеризуется своим положением  $z$  и нормальной колебательной координатой  $X(z, t)$ . Из решения уравнения движения для одного осциллятора, из работы [9] для случая радиального рассеяния получаем

$$X(r, t) = \frac{\varepsilon_0 (\partial \alpha / \partial X)_0 E_p E_{st}^* e^{i[\omega_0 t - (k_p - k_{st})r]}}{8m[\omega_0^2 - (\omega_p - \omega_{st})^2 + i(\omega_p - \omega_{st})\gamma]} + \text{к.с.},$$

где  $E_p$  и  $E_{st}$  — поле волны накачки и стоксовой волны,  $\omega_p$  и  $\omega_{st}$  — их частоты, а  $\gamma$  — постоянная затухания. Для нашего случая  $\omega_0 = \omega_p - \omega_{st}$ , где  $\omega_0$  — резонансная частота осциллятора, выражение для координаты преобразуется в

$$X(r, t) = -i \frac{\varepsilon_0 (\partial \alpha / \partial X)_0 E_p E_{st}^* e^{i[\omega_0 t - (k_p - k_{st})r]}}{8m\omega_0 \gamma} + \text{к.с.}$$

Фаза колебания молекул  $(k_p - k_{st})r$  не является следствием волнового распространения на частоте  $\omega_0$ , а отражает

тот факт, что колебания молекул возбуждаются произведением электрических полей с частотами  $\omega_{st}$  и  $\omega_p$  и, следовательно, фаза этих колебаний определяется фазой возбуждающей силы  $E_p E_{st}^* e^{i(k_p - k_{st})r}$ . Так как пространственное положение максимумов определяется разницей волновых чисел:  $(k_p - k_{st})r$ , то  $(k_p - k_{st})^{-1}$  определяет их период, откуда определяем расстояние между ними, равное обратной частоте биений взаимодействующих волн:

$$\lambda_{be} = \frac{2\pi}{k_p - k_{st}}.$$

Так как осцилляторы (фононы) у нас независимы, их энергии квантованы, а групповая скорость равна нулю, то выражение для амплитуды колебаний осцилляторов  $X(r, t)$  показывает распределение их плотности  $N(r)$ . Подставив выражение для  $X(r, t)$  в выражение для диэлектрической проницаемости получаем

$$\varepsilon = \varepsilon_0(1 + N\alpha) = \varepsilon_0(1 + N\alpha_0) + \left[ -i\varepsilon_0^2 N \left( \frac{\partial \alpha}{\partial X} \right)_0^2 \frac{E_p E_{st}^* e^{i[\omega_0 t - (k_p - k_{st})r]}}{8m\omega_0 \gamma} + \text{к.с.} \right],$$

которое можно представить как  $n^2 = n_1^2 + n_2^2$ , где  $n_1^2 = \varepsilon_0(1 + N\alpha_0)$ , а

$$n_2^2 = -i\varepsilon_0^2 N \left( \frac{\partial \alpha}{\partial X} \right)_0^2 \frac{E_p E_{st}^* e^{i[\omega_0 t - (k_p - k_{st})r]}}{8m\omega_0 \gamma} + \text{к.с.}$$

Таким образом,  $n_2^2$  пропорционален произведению взаимодействующих полей:  $n_2^2 \propto E_p E_{st}^* e^{i[\omega_0 t - (k_p - k_{st})r]}$ , и непрерывно изменяется, отслеживая биения волн. Т.е. это произведение полей определяет распределение концентрации резонансно возбужденных молекул в поверхностном слое.

Таким образом, любое изменение интенсивности волны накачки, вызванное ее радиальной неоднородностью, или интенсивности стоксовой волны, которая тоже может быть связана с ее радиальным ослаблением при удалении от источника, приводит к изменению показателя преломления. Несмотря на то, что у нас происходит резонансное возбуждение молекулярных колебаний (осцилляторов) это не приводит к сингулярности с отражением волны накачки от поверхности, но при этом происходит интенсивная перекачка энергии от волны накачки в стоксовую волну, распространяющуюся вдоль поверхности, происходящая со значительным ростом коэффициента преломления в максимумах биений волн. Т.о. показатель преломления, распространяющейся вдоль поверхности стоксовой волны, будет периодически меняться от его минимального значения в минимумах поверхностных волн, до максимального значения в их максимумах, в которых происходит ее максимальное взаимодействие с волной накачки. Из-за ортогонального взаимодействия волны накачки и стоксовой волны возбуждение молекул происходит с передачей им суммарного импульса  $p = \hbar(k_p + k_{st})$ , который направлен под

углом  $\sim 45^\circ$  к поверхности, вызывая ее пластическую деформацию в максимумах взаимодействия и абляции.

Для определения периода поверхностных волн необходимо знать показатель преломления для стоксовой волны, в то время как показатель преломления для волны накачки, воздействующей на поверхность с совпадающей со стоксовой волной фазой и постоянной амплитудой, не влияет на период возбуждаемых колебаний в поверхностном слое, и его можно принять равным единице. Можно облегчить себе жизнь, считая, что нам известен усредненный по периоду образуемых волн показатель преломления и его зависимость от интенсивности. В этом случае можно качественно показать зависимость периода максимумов взаимодействующих волн от стоксового сдвига и угла, под которым они взаимодействуют вдоль поверхности.

Как было показано выше расстояние между максимумами результирующей волны вдоль поверхности равно

$$\lambda_{be} = \frac{1}{\frac{n_p}{\lambda_p} - \frac{n_{st}}{\lambda_{st}}}.$$

Эта формула, в силу неопределенности значений показателя преломления, не позволяет точно определить период образующихся поверхностных волн, но качественно показывает влияние на них стоксового сдвига и показателя преломления.

Понятно, что для однородной среды при превышении порога и равномерной по сечению интенсивности накачки период образующейся поверхностной волны будет постоянным. Это наглядно видно на рис. 1, *c*, который получен при равномерной по сечению интенсивности. Но так как показатель преломления зависит от интенсивности взаимодействующих волн, то в случае неравномерности их интенсивности в поперечном направлении период поверхностных волн будет ее отслеживать. Это относится в равной степени как к радиальному рассеянию внутри среды, изменяя период радиальных волн, равный  $\lambda_{st}/n_{st}$ , так и к рассеянию в поверхностном слое, изменяя период поверхностных волн.

Так как в нашем случае нас интересуют стоксовые волны, рассеивающиеся вдоль поверхности, то рост коэффициента преломления для них, зависящий от интенсивности накачки, приводит к уменьшению пространственного периода их биений с волной накачки, или периоду образующихся поверхностных волн.

Как правило, распределение интенсивности накачки по радиусу пучка неравномерно, и с увеличением радиуса интенсивность уменьшается, что должно приводить к увеличению периода волн.

Образование большого числа периодов поверхностных волн, покрывающих практически всю область лазерного воздействия (рис. 1, *c*), несмотря на то, что из-за рассеяния в радиальном направлении происходит ослабление стоксовых волн, возможно только за счет усиления стоксовой волны — вынужденного фонов-поляритонного радиального рассеяния.

В случае, если между нормалью к поверхности и падающим на нее лучом имеется угол  $\beta$ , то взаимодействие волны накачки с распространяющейся вдоль поверхности стоксовой волной будет определяться эффективной длиной волны накачки, как  $\lambda_p^{ef} = \lambda_p \cos \beta$ . В этом случае формула для периода полос запишется как

$$\lambda_{be} = \frac{\lambda_p \lambda_{st}}{\frac{n_p \lambda_{st}}{\cos \beta} - n_s \lambda_p},$$

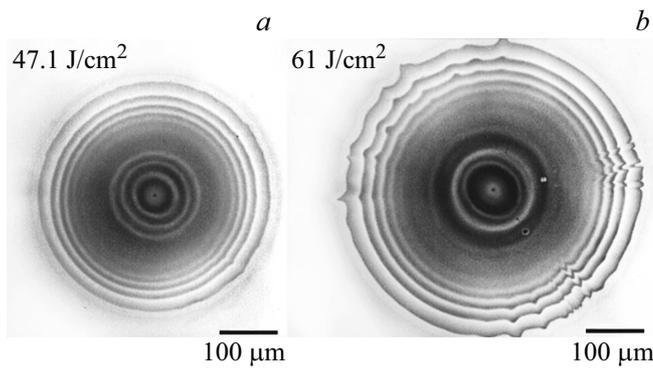
и, в зависимости от направления распространения вдоль поверхности стоксовой волны, период волн будет изменяться в положительную или отрицательную сторону.

В случае фокусировки излучения в среду, угол наклона лучей к поверхности в фокусируемой волне со сферическим фронтом определяется из условия  $\cos \alpha = R/r$ , где  $R$  — глубина фокусировки под поверхность, а  $r$  — радиус, на котором луч достигает поверхности, что при большой числовой апертуре ( $NA = 2r/f$ ) и интенсивности, не зависящей от радиуса, должно приводить к уменьшению периода колец с увеличением их радиуса.

Но обычно в экспериментах пучки направляются по нормали к поверхности, и фокусировка осуществляется достаточно длиннофокусными линзами, что делает угол  $\beta$  достаточно малым.

С другой стороны, уменьшение показателя преломления из-за ослабления волны накачки с удалением от оси фокусируемого пучка (обычно гауссово распределение) гораздо сильнее сказывается на увеличении периода образующихся поверхностных волн, что мы и видим на рис. 3 из работы [7]. В этой работе исследовалось образование концентрических колец на поверхности кратера в  $\text{SiO}_2$ , образованных при воздействии на нее лазерным импульсом с длительностью 12 ns на длине волны 1064 nm. Лазер излучал пучок с гауссовым профилем в режиме ТЕМ<sub>00</sub>. Если судить по профилю поверхности кратера, представленному в работе [4], то его образование, в основном, происходило не за счет абляции, а за счет пластической деформации поверхности с выдавливанием среды в виде бортика на его края, что сказывалось на ширине краевых колец.

Регулярные концентрические круги наблюдались при изменении лазерной энергии от 19.6 J/cm<sup>2</sup> до 61 J/cm<sup>2</sup>. Глубина пятен повреждения в центре, в зависимости от интенсивности накачки, составляла от 38.1 до 79.8 nm. Отсюда угол наклона склонов кратера на рис. 3 составляет несколько сотых долей градуса, поэтому основной вклад в изменение периода образующихся на них колец с радиусом оказывает экспоненциальное ослабление (гауссово распределение) интенсивности волны накачки с радиусом, уменьшающее нелинейный показатель преломления. А так как характер изменения интенсивности от радиуса при изменении энергии накачки не меняется, то зависимость периода колец от радиуса при одинаковом наклоне склонов кратера остается постоянной, только зона их образования с ростом энергии смещается



**Рис. 3.** Концентрические кольца, образованные на поверхности склонов кратера в  $\text{SiO}_2$  при фокусировке лазерного пучка с гауссовым распределением интенсивности в режиме  $\text{TEM}_{00}$ .  $\tau = 12 \text{ ns}$ ,  $\lambda = 1.064 \mu\text{m}$ .

в сторону больших радиусов рис. 3, *a, b*, а в центральной области проявляются кольца с другим периодом. Возможно, это связано с возбуждением стоксовых волн с различным частотным сдвигом, что и дает две системы колец с различным периодом.

В работе [7] высказано предположение, что кольца на рис. 3. являются результатом интерференции волны накачки в промежутке между ударной волной, распространяющейся вглубь среды, и поверхностью образца. В этом случае мы бы имели картину интерференции подобную кольцам Ньютона с уменьшающимся их периодом к краю, а не увеличивающимся, как на указанных рисунках. Это связано с тем, что в центре глубина проникновения ударной волны вглубь среды и ее амплитуда максимальна. Т.е. мы должны были бы наблюдать картину интерференции, примерно соответствующую, образуемой при просвечивании пробными импульсами разлетающейся жидкой оболочки с поверхности образца под воздействием фемтосекундных импульсов [10]. А так как картина интерференции динамичная, то смещающиеся за время действия импульса полосы, при смещении ударной волны в максимуме на  $\sim 100 \mu\text{m}$ , сгладили бы результат интерференции.

На рис. 1, *c* фокусировка производилась длиннофокусной линзой, и интенсивность в плоскости накачки была практически постоянной, что приводило к практически постоянному шагу концентрических колец. Кольца на рис. 3, образованные на поверхности кратера при острой фокусировке, увеличивают свой период за счет непрерывного ослабления интенсивности с радиусом.

Таким образом, кольца на поверхности — это результат ортогонального взаимодействия волны накачки с рассеянными стоксовыми волнами от границ центрального кратера (в случае рис. 3 это кратер  $\varnothing \sim 5 \mu\text{m}$ ) в поверхностном слое, в то время, как сами кратеры — это результат развития вынужденного радиального рассеяния, прорастающего внутри среды от затравочной неоднородности до поверхности.

На рис. 3, *b* видно, что концентрические кольца не гладкие, подчиняющиеся гармоническому закону, а имеют резкий край с внутренней стороны. Это объясняется тем, что силы, воздействующие на поверхность при радиальном рассеянии, направлены не по нормали к поверхности, а под углом  $\sim 45^\circ$  к ней в направлении их центра, что и приводит к асимметрии гребней волн, делая их передний фронт направленный внутрь более крутым.

Источником стоксовых волн, в данном случае, является центральный микрократер диаметром  $\sim 5 \mu\text{m}$ , размер которого растет с ростом накачки, являющийся продолжением канала, образованного при прорастании волн радиального рассеяния к поверхности. С ростом интенсивности накачки превышает порог развития радиального рассеяния на более мелких неоднородностях в центральной области пятна фокусировки [4]. Появляются новые, смещенные от оси кратеры — центры рассеяния. При большом увеличении недалеко от центра кратера наблюдалось много крошечных ямок [7]. Рассеяние от них при наложении на рассеяние от центрального кратера приводит к интерференционным волнообразным искажениям внешних колец. Влияние дополнительных микрократеров справа от центрального, искажающих края колец, видно на рис. 3, *b*, что лишний раз указывает на механизм их образования: взаимодействие волны накачки со стоксовым рассеянием от стенок различных кратеров вблизи оси, которые являются результатом воздействия вынужденного радиального рассеяния.

Что касается периода волн на плоской поверхности, то он должен зависеть от величины стоксового смещения, и чем оно меньше, тем через большее число периодов стоксовых волн и волны накачки произойдет совпадение их фаз на плоской поверхности. Естественно, при этом необходимо учитывать коэффициент преломления для стоксовой волны, который в случае резонансного взаимодействия не совпадает с  $n_1$ .

Число периодов образующихся поверхностных волн и их размытость, кроме поверхности зоны облучения и интенсивности взаимодействующих волн, зависит от их спектральной ширины, и с увеличением ширины на больших периодах возможно перекрытие максимумов, приводящее к размыванию волн.

Но число периодов образуемых волн зависит и от кривизны границ, от которых происходит рассеяние стоксовых волн при одинаковом коэффициенте их усиления, так как чем меньше их кривизна ( $1/R$ ), тем меньше их радиальное ослабление (меньший угол рассеяния), что способствует увеличению числа периодов образующихся волн.

Преобразуя формулу биений к виду

$$n_{\text{st}} = \lambda_{\text{st}} \left( \frac{n_p}{\lambda_p} - \frac{1}{\lambda_{\text{be}}} \right)$$

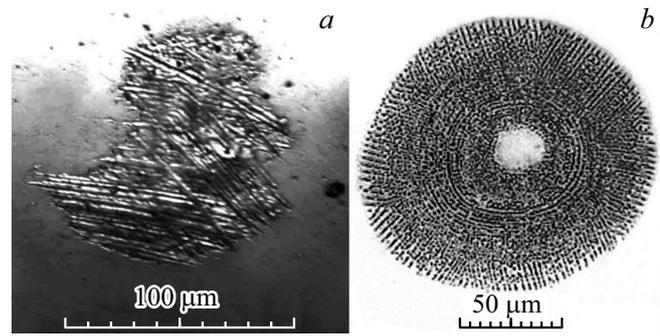
можно оценить показатель преломления, который позволил бы объяснить наблюдаемый период колец. Используя эту формулу для Ge ( $\Delta n = 300 \text{ cm}^{-1}$ ) на рис. 1, *c*,

периодом колец равным  $\sim 25 \mu\text{m}$  мы получим  $n_{st} \approx 5.2$ , что превышает показатель преломления для германия  $n = 4$ . При этом интенсивность накачки была  $I = 4 \cdot 10^8 \text{ W/cm}^2$ . Для колец в YAG ( $\Delta\nu = 370 \text{ cm}^{-1}$ ) на рис. 1, *a*, период которых равен  $\sim 10 \mu\text{m}$ , показатель преломления равен  $n_{st} \approx 11$  при интенсивности накачки  $I = 5 \cdot 10^9 \text{ W/cm}^2$ . Подобные оценки для аморфного SiO<sub>2</sub>, по рис. 2, *b* дают нам для периода  $\sim 6.7 \mu\text{m}$  показатель преломления  $n_{st} \approx 7.6$ . Такой высокий показатель преломления говорит об аномальной дисперсии в области резонансного взаимодействия стоксовой волны с волной накачки. Но это усредненный для данного периода показатель преломления, который аномально возрастает в максимумах волн и падает в минимумах.

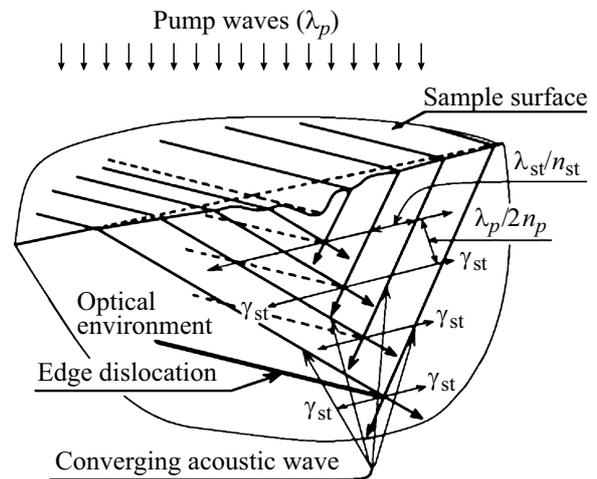
### 3. Поверхностные разрушения в виде пересекающихся прямых линий

Если рассеяние происходит не на точечном дефекте, а на линейной неоднородности — на поверхностной царапине или протяженной краевой дислокации, расположенной близко к поверхности, то у нас радиальное рассеяние от каждой точки неоднородности преобразуется в двунаправленное рассеяние поперек направлению неоднородности, и образует в среде не конусные сходящиеся на ось акустические волны, а клиновидные волны вдоль неоднородности, сходящиеся под тем же углом ( $\sim 45^\circ$ ), и образующие на поверхности продольные каналы продавливания. Развитию вынужденного рассеяния на краевых дислокациях способствует то, что упругие поля дислокаций приводят к повышенной концентрации вблизи ее оси точечных дефектов с уменьшенной их энергией связи, значительно увеличивающих рассеяние. Сами же краевые дислокации чаще образуются вдоль плоскостей спайности, вдоль которых энергия связи атомов ослаблена. В результате на поверхности иногда образуются разрушения в виде прямых пересекающихся линий, направленных вдоль плоскостей спайности (рис. 4, *a*), наблюдаемых на поверхности кристалла YAG при накачке наносекундным импульсом с широким спектром [4], и на поверхности кристалла Ge (рис. 4, *b*) из работы [6]. Подобные прямые пересекающиеся линии наблюдались на входной поверхности сапфира при воздействии на нее мощным наносекундным импульсом в давней работе [11].

Т.о. радиальные волны, формирующиеся в различных точках на узких поперечных неоднородностях среды, преобразуются в периодические волны поперечного рассеяния. Упрощенная схема образования продольных поверхностных канавок при их развитии от краевых дислокаций представлена на рис. 5. На рисунке показано формирование сходящихся продольных акустических (ударных) волн, развивающихся от взаимодействия волны накачки ( $\lambda_p$ ) и стоксовой волны ( $\lambda_{st}, \gamma_{st}$ )



**Рис. 4.** *a* — пятно разрушения на поверхности кристалла YAG с пересекающимися поверхностными линиями продавливания, расположенными вдоль плоскостей спайности.  $\lambda = 0.92 \mu\text{m}$ ,  $I \sim 5 \cdot 10^9 \text{ W/cm}^2$ , *b* — микроразрушения на поверхности Ge в виде концентрических колец и пересекающихся прямых линий, направленных под углами спайности [110].  $\lambda = 10.6 \mu\text{m}$ ,  $I \sim 4 \cdot 10^7 \text{ W/cm}^2$ .



**Рис. 5.** Схема, поясняющая механизм образования продольных канавок на поверхности вдоль имеющихся в среде краевых дислокаций за счет клиновидного схождения на них ударных волн.

комбинационного рассеяния на продольной неоднородности (краевой дислокации), воздействие которых приводит к образованию на поверхности продольных канавок.

Сам процесс продавливания, проходящий при воздействии на среду периодической последовательности ударных волн, происходит за счет интенсивной генерации в их поле точечных дефектов, и смещения образующихся междоузельных атомов под действием ударных волн вглубь среды. При этом одновременно идет процесс встречного движения вакансий на поверхности с образованием углублений. Наличие параллельных краевых дислокаций в среде проявляется на поверхности в виде параллельных линий. Дислокации, идущие под другими углами вдоль других плоскостей спайности, образуют пересекающиеся линии.

#### 4. Проявление в поверхностном слое волн радиального рассеяния

Микрофотография разрушения (рис. 4, *b*) на поверхности Ge из работы [6] получена при облучении образца широким слабо сходящимся пучком микросекундного лазера на  $\text{CO}_2$  с интенсивностью  $I \sim 4 \cdot 10^7 \text{ W/cm}^2$ . Видно, что вокруг центральной зоны имеется область, заполненная концентрическими кольцами, и окаймляющая их область пересекающихся линий, ориентированных в направлении [110]. Период этих колец и пересекающихся линий существенно меньше длины волны накачки, и они не могут быть результатом биения взаимодействующих волн. Остается предположить, что они являются результатом проявления в поверхностном слое волн радиального рассеяния внутри среды, которые имеют период  $\lambda_{\text{st}}/n_{\text{st}}$ . Так как взаимодействие стоксовых волн, рассеянных в радиальном направлении, с волной накачки в среде происходит под углами синхронизма с периодом  $\lambda_{\text{st}}/n_{\text{st}}$ , а не с периодом их биений, то пороговая интенсивность для радиального рассеяния будет существенно ниже, чем для возбуждения поверхностных волн. Это косвенно подтверждает то, что образование локальных разрушений на поверхности Ge (рис. 4, *b* из работы [6]) происходит при облучении образца широким слабо сходящимся пучком микросекундного лазера на  $\text{CO}_2$  с интенсивностью  $I \sim 4 \cdot 10^7 \text{ W/cm}^2$ , а образование значительных поверхностных разрушений с образованием периодических поверхностных концентрических колец (рис. 1, *c*) при одинаковых условиях фокусировки происходит при интенсивности  $I \sim 4 \cdot 10^8 \text{ W/cm}^2$ .

Обычно проявление радиального рассеяния на поверхности мы не замечаем из-за малой длины волны накачки, но в данном случае при  $\lambda_p = 10.6 \mu\text{m}$  их период становится заметен. Он плавно изменяется от  $\sim 2.25 \mu\text{m}$  для колец, расположенных на расстоянии  $\sim 25 \mu\text{m}$  от центра, до  $\sim 3.0 \mu\text{m}$  для пересекающихся линий на краях в  $\sim 65 \mu\text{m}$  от центра что, скорее всего, говорит об уменьшении показателя преломления при удалении от центра, вызванное ослаблением с радиусом интенсивности стоксовой волны. Усредненный показатель преломления в промежутке между максимумами образующихся волн ( $\Delta r$ ) можно определить, зная длину стоксовой волны  $n_{\text{st}} = \lambda_{\text{st}}/\Delta r$ . Если считать, что длина волны стоксового рассеяния для Ge при комбинационном сдвиге  $\sim 300 \text{ cm}^{-1}$  равна  $\lambda_{\text{st}} \sim 15.5 \mu\text{m}$ , то коэффициент преломления при изменении расстояния от центра с  $25 \mu\text{m}$  до  $65 \mu\text{m}$ , оцененный по этой формуле, меняется в пределах от  $\sim 7$  до  $\sim 5$ , в то время как нормальный показатель  $n = 4$ .

Если период возбуждаемых поперечных волн из-за изменения показателя преломления с удалением от центра меняется, то возбуждение радиальных волн на соседних дислокациях на расстояниях кратных периоду этих волн становится невозможным, и происходит их развитие на других дислокациях, расстояние между которыми больше соответствует периоду волн. Из-за

этого параллельные волны, при прорастании их от центра, развиваются не в виде сплошных линий, а в виде прерывистых (рис. 4, *b*), которые скачкообразно подстраиваются под новые условия. Это, в значительной мере, относится и к концентрическим кольцам, которым легче развиваться на дефектах кристаллической решетки (дислокациях). Поэтому мы видим, что часто кольца не образуют сплошных окружностей, а состоят из мелких прямых отрезков.

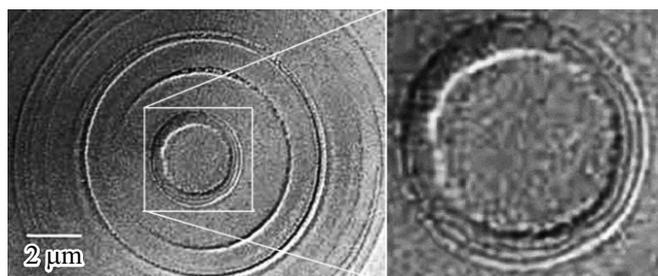
Эту картину можно считать наглядным проявлением вынужденного радиального рассеяния вблизи поверхности, которое становится доступным наблюдению благодаря большой длине волны излучения накачки.

#### 5. Образование системы узких концентрических колец на поверхности образующегося кратера

Образование колец на поверхности кратера возможно, если за время воздействия импульса накачки развивается радиальное рассеяние, являющееся интенсивным источником радиальных стоксовых волн. По мере углубления кратера, при наносекундных импульсах, условия фазового синхронизма между радиальными волнами и волной накачки меняются, и образуются кольцевые максимумы на вогнутой поверхности кратера со своим периодом. Период радиальных колец будет зависеть от крутизны склонов кратера, на которых происходит фазировка взаимодействующих волн. При этом, условия формирования радиальных колец на его поверхности непрерывно меняются, подстраивая под них период образующихся волн.

В тех точках, где стоксовые волны, идущие от оси радиальных волн по касательной к искривленной поверхности, оказываются в фазе с волной накачки, происходит возбуждение резонансных молекулярных колебаний (фононов) с передачей молекулам разностных импульсов рассеяния. Именно в этих точках окружности, симметрично отстоящих от оси, за счет пластической деформации и абляции происходит образование на поверхности узких кольцевых зон.

Наиболее наглядно подобные структуры представлены на рис. 6, которые наблюдались на поверхности натрий-известкового стекла (soda-lime glass) при воздействии на нее 20 ns импульсов на  $\lambda = 1.064 \mu\text{m}$  в [12]. В данном случае поверхность образующегося кратера была близка к сферической, и из-за непрерывно изменяющегося наклона его стенок формирующиеся на его поверхности тонкие кольца не образовывали периодических структур, но образовывали группы из нескольких узких концентрических колец. Образование узких колец на этом рисунке, самые узкие из которых  $\leq 100 \text{ nm}$ , с минимальным расстоянием между ними  $\sim 150 \text{ nm}$ , что существенно меньше стоксовой длины волны, невозможно объяснить интерференцией, но объясняется как проявление



**Рис. 6.** Кольца на поверхности кратера в натрий-известковом стекле, образованные при воздействии импульсом  $\tau = 20$  ps,  $\lambda = 1.064 \mu\text{m}$ ,  $I = 5.8 \text{ W/cm}^2$ . Справа увеличенная центральная часть.

волн радиального рассеяния. Такие же узкие кольца, расстояние между которыми в группах меньше длины волны, с немного другим их распределением по радиусу наблюдались и на поверхности плавленного кварца. При этом на рисунках при большей зоне охвата на больших радиусах наблюдаются двоянные и строенные линии, что можно объяснить как проявление периода волн радиального рассеяния, который увеличивается при уменьшении интенсивности стоксовой волны при удалении от источника из-за уменьшения показателя преломления. Минимальный период колец, наблюдаемый на вставке рис. 6 из центральной области равен  $\Delta r \approx 150 \text{ nm}$ , что с учетом того, что  $\Delta r = \lambda_{\text{st}}/n_{\text{st}}$ , лишний раз указывает на аномально высокий показатель преломления для радиальных стоксовых волн.

## 6. Заключение

В работе, на основе анализа волнообразных разрушений на входных поверхностях различных оптических сред, образующихся под действием мощного лазерного излучения, предложен механизм, объясняющий их образование. Показывается, что образование волн происходит не за счет плазмон-поляритонного рассеяния, как в случае фемтосекундных импульсов, а за счет фонно-поляритонного, лежащего в основе вынужденного радиального рассеяния, что делает период поверхностных волн зависящим от стоксового смещения, а аномальная зависимость показателя преломления от интенсивности взаимодействующих волн вносит свой вклад в их период. Фазовая модуляция ортогонально взаимодействующих стоксовых волн радиального рассеяния в поверхностном слое и волны накачки приводит к неравномерному воздействию на поверхностный слой, вызывая его деформацию в виде концентрических поверхностных волн, в случае осесимметричного рассеяния, а в случае несимметричного рассеяния периодические волны отслеживают границы рассеивающей неоднородности. Этот же механизм, при наличии в среде поперечных краевых дислокаций, приводит к формированию на поверхности узких поперечных канавок, вытянутых вдоль плоскостей

спайности кристаллов. Малая ширина образующихся в этом случае на поверхности полос и колец, много меньшая длины волны воздействующих волн, как и расстояние между ними также меньше длины волны, позволяет сделать вывод, что мы наблюдаем проявление вынужденного радиального рассеяния в поверхностном слое, происходящее при значительном увеличении показателя преломления из-за резонансного взаимодействия волн (аномальная дисперсия). Отмечено, что в случае больших длин волн (раздел 4) или искривленной поверхности (раздел 5) возможно наблюдение поверхностных волн с периодом волн радиального рассеяния.

Естественно, подобные структуры не могли бы образоваться в случае оплавления поверхности, так как силы поверхностного натяжения сгладили бы поверхность.

## Конфликт интересов

Автор заявляет об отсутствии конфликта интересов.

## Список литературы

- [1] A.A. Kuchmizhak, A.A. Ionin, S.I. Kudryashov, S.V. Makarov, A.A. Rudenko, Yu.N. Kulchin, O.B. Vitrik, T.V. Efimov. *Opt. Lett.* **40**, 8, 1687 (2015).
- [2] A. Rudenko, C. Mauchair, F. Garrelie, R. Stoian, J.-P. Colombari. *Nanophotonics*, <https://DOI.org/10.1515/nanoph-2018-0206>
- [3] A.I. Ignatov, V.V. Zhakhovsky, A.M. Merzlikin, N.A. Inogamov. *J. Phys.: Conf. Ser.* **1092**, 012051 (2018). DOI: 10.1088/1742-6596/1092/1/012051
- [4] Н.Е. Быковский. *Оптика и спектроскопия* **129**, 7, 876 (2021).
- [5] Н.Е. Быковский, Е.В. Заведеев, Ю.В. Сенатский. *ФТТ* **57**, 4, 778 (2015).
- [6] В.Е. Роголин. *Лазерно-оптические системы и технологии. НПО Астрофизика*, М. (2009). С. 70.
- [7] W. Sun, H. Qi, Z. Fang, Z. Yu, Yi Liu, K. Yi, J. Shao. *Opt. Exp.* **22**, 3, 2948 (2014).
- [8] C.J. Stolz, J.A. Menapace, K.I. Schaffers, C. Bibeau, M.D. Thomas, A.J. Griffin. „UCRL-CONF-216925,„ Presented at: Boulder Damage Symposium, Boulder, CO, U.S. (2005).
- [9] А. Ярив. *Квантовая электроника и нелинейная оптика. Сов. радио*, М. (1973). С. 456. [A. Yariv. *Quantum Electronics*. John Wiley and Sons, Inc., N.Y. (1967). P. 478.]
- [10] Н.Е. Быковский, Ю.В. Сенатский. *ФТТ* **60**, 2, 396 (2018).
- [11] C.R. Giuliano. *NBS Special Publication* **372**, 46 (1972).
- [12] D. Nieto, J. Arines, G.M. O'Connor, M.T. Flores-Arias. *Appl. Opt.* **54**, 29, 8596 (2015).

Редактор Т.Н. Василевская