

УДК 535.21: 538.915

Нарушение зарядового равновесия как причина собственного оптического пробоя диэлектрика

© 2020 г. **В. Л. Комолов, канд. физ.-мат. наук**

Университет ИТМО, Санкт-Петербург

E-mail: vlkomolov@gmail.com

Поступила в редакцию 21.10.2019

DOI:10.17586/1023-5086-2020-87-03-10-16

В рамках предложенной ранее модели проведен анализ процессов в решетке твердого тела, приводящих к необратимому нарушению в ней зарядового равновесия при воздействии внешнего электрического поля. Дана простая интерпретация причин необратимого разрыва связей в кристаллической решетке вследствие движения заряда внутри диэлектрика, обсуждаются пути и условия возникновения неустойчивости решетки под действием интенсивных лазерных импульсов.

Ключевые слова: оптический пробой, энергия связи решетки, пространственное перераспределение заряда.

Коды OCIS: 140.3330, 320.2250

ВВЕДЕНИЕ

В статье проведен анализ модели собственного оптического пробоя (СОП) в стеклах и плавленом кварце. В предыдущей работе [1] было отмечено, что оптический пробой прозрачных диэлектриков, изучавшийся в условиях, полностью исключающих самофокусировку излучения [2–4], характеризуется рядом необычных закономерностей, не находящихся объяснения в рамках традиционных моделей пробоя — ударной лавинной ионизации [5] или многофотонного поглощения [6].

Проблема адекватного описания процессов, протекающих в прозрачных диэлектриках при воздействии световых импульсов большой интенсивности и приводящих к разрушению материалов (оптическому пробую), возникла еще в начале 60-х гг. прошлого века практически одновременно с появлением твердотельных лазеров. Исследованию интенсивного светового воздействия посвящено огромное число статей [7–18], выпущено несколько монографий [6, 19, 20]. Были достигнуты значитель-

ные успехи в понимании причин разрушения кристаллов и стекол, содержащих микроскопические дефекты, на основе этого понимания были созданы новые материалы с большой оптической прочностью.

Однако до сих пор не решен вопрос о причинах так называемого СОП, когда разрушение решетки твердого тела обусловлено не дефектами, а свойствами самой матрицы материала. Анализ поглощения света в прозрачной среде в процессе лазерного воздействия проводился на основе предположений о генерации в веществе значительной концентрации свободных носителей, обеспечивающих сильный рост поглощения света и, в конечном счете, термическое разрушение материала. Традиционно в качестве процессов, обеспечивающих генерацию свободных электронов, рассматривались процессы ударной лавинной ионизации и многофотонного поглощения [5, 6]. Однако в рамках этих моделей не удастся дать адекватное описание целого ряда экспериментальных закономерностей пробоя.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ ЗАКОНОМЕРНОСТИ И ТРАДИЦИОННЫЕ МОДЕЛИ СОБСТВЕННОГО ОПТИЧЕСКОГО ПРОБОЯ

Трудности экспериментального исследования закономерностей СОП в объеме материала обусловлены в значительной мере самофокусировкой светового пучка. Она вносит искажения в измерения порога пробоя даже в случае острой фокусировки [21] и не позволяет судить об истинных закономерностях пробоя (зависимостях порога от облучаемого объема, длительности импульса и др.).

Единственным известным нам циклом экспериментальных исследований СОП, в котором возможность развития самофокусировки пучка исключена полностью, являются работы [2–4, 8], на результатах которых и базируется предлагаемая модель.

Основные экспериментальные закономерности СОП были сформулированы в работах [2–3] и подтверждены в дальнейшем в более широком диапазоне длительности воздействия [4]. Ниже перечислены наиболее поразительные из них, не находящие объяснения в рамках упомянутых традиционных моделей:

1. Пробой возникает в области максимальной плотности мощности излучения и развивается за очень короткое время (менее десяти пикосекунд). При уменьшении пиковой интенсивности на несколько процентов ниже пороговой разрушения не происходит, хотя эффективная длительность и полная энергия светового воздействия возрастает более чем на порядок.

2. Пороговая плотность мощности q^* определяется свойствами матрицы стекла и сохраняет свое значение с точностью $\pm 2\%$ при изменении времени воздействия излучения в диапазоне 10^{-13} – 10^{-8} с (рис. 1) и в случае стекла К8 имеет значение порядка $(6\text{--}9)\times 10^{12}$ Вт/см² ($(6\text{--}8)\times 10^7$ В/см) [2–4].

3. Пороги оптического пробоя стекла К8 и плавленого кварца одинаковы в пределах погрешности измерений (менее 5%) [2, 3], несмотря на то, что ширина их запрещенных зон различается почти в 2 раза.

Наличие чрезвычайно резкого порога СОП и его независимость от длительности воздействия и ширины запрещенной зоны материала не могут быть объяснены в рамках многофотонной (туннельной) или лавинной моделей оптического пробоя.

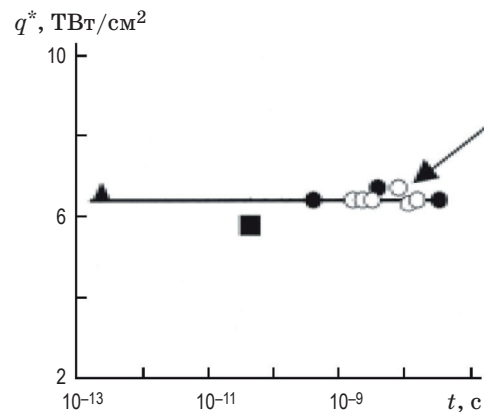


Рис. 1. Зависимость пороговой плотности мощности излучения боросиликатного стекла К8 (ВК7) от длительности импульсов t (График взят из работы [4]).

Обе упомянутые модели имеют в основе предположение, что для развития СОП необходимо возникновение в зоне проводимости диэлектрика большого числа свободных электронов, поглощение света которыми приведет к разогреву среды и ее последующему термическому разрушению.

В рамках упомянутых моделей концентрация носителей в зоне проводимости определяется скоростью их генерации и при заданной интенсивности света зависит от времени воздействия излучения, что подразумевает зависимость значения порога от длительности импульса, не наблюдающуюся экспериментально.

Кроме того, параметром, определяющим значение порога в обеих моделях, является ширина запрещенной зоны диэлектрика E_g , в то время как согласно результатам [2, 3] пороги для стекла и плавленого кварца одинаковы, несмотря на значительное различие значений E_g . Эти факты ставят под сомнение любые модели описания пробоя, основанные на предположении, что начальной его стадией является появление в материале свободных носителей.

ДВИЖЕНИЕ ЗАРЯДОВ В РЕШЕТКЕ

Традиционные модели не учитывают важное обстоятельство, влияющее на процесс фотовозбуждения среды, а именно — пространственное перераспределение связанных зарядов, в частности валентных электронов, под действием внешнего поля и как следствие нарушение зарядового равновесия в среде.

Модель, предложенная в работе [1], основана на предположении, что именно движение валентных электронов в поле световой волны может инициировать необратимые процессы в решетке, приводящие в конечном итоге к ее разрушению.

Хорошо известно, что осцилляция связанных электронов под действием внешнего поля умеренной интенсивности приводит к возникновению в среде поляризационных токов. Наличие таких токов было зафиксировано в плавленом кварце в работе [22], но некорректно интерпретировано как появление свободных носителей в зоне проводимости. В случае генерации свободных носителей затухание тока должно происходить за времена, сравнимые со временем рекомбинации носителей. В то же время в экспериментах [22] ток практически безынерционно отслеживает изменение напряженности в каждом полупериоде поля световой волны, что указывает на его поляризационную природу.

С ростом напряженности внешнего поля амплитуда осцилляций растет, что приводит к значительному пространственному перераспределению заряда в среде. В частности, становится возможным движение узлов решетки, приводящее к ее деструкции.

В обоснование этого утверждения ниже приводятся простые оценки движения связанных зарядов в диэлектрике с ковалентной связью при воздействии высокочастотного электрического поля, подтверждающие возможность такого необратимого нарушения зарядового равновесия.

Электронная пара, осуществляющая ковалентную связь, распределена по объему ячейки неравномерно: на линии между ядрами имеется сгущение электронной плотности, приводящее к образованию химической связи, энергия которой существенно зависит от степени перекрытия атомных орбиталей атомов.

Как уже говорилось, под действием света электроны начинают осциллировать, создавая поляризационный ток.

Грубый анализ поведения связанных электронов можно провести в рамках классических представлений о вынужденных колебаниях гармонического осциллятора.

Имея в виду, что осцилляции в линейном приближении описываются уравнением

$$m d^2 x / dt^2 = eF \cos(\omega t),$$

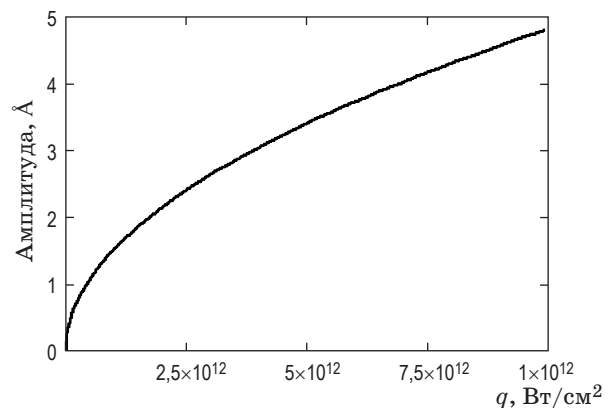


Рис 2. Амплитуда колебаний электронов связи при различных плотностях мощности q лазерного излучения.

(где m и e — масса и заряд электрона, x — его текущая координата, F и ω — напряженность и частота электрического поля) получаем, что максимальная амплитуда колебаний B есть

$$B = \frac{eF}{m\omega^2}$$

и в интересующем нас интервале интенсивностей света достигает нескольких ангстрем, что сравнимо с размером элементарной ячейки материала a (рис. 2).

Если первоначально валентные электроны с большой вероятностью находились вблизи центра связи, то под действием высокочастотного внешнего поля они существенную часть времени проводят на ее периферии (вблизи точки поворота), принадлежа лишь одному из узлов решетки. Действительно, вероятность dP обнаружить электрон на участке траектории $(x, x + \Delta x)$ в течение полупериода $T/2$ световой волны ($T = 2\pi/\omega$) есть

$$dP = \frac{dt}{(T/2)} = 2 \frac{dt}{dx} \frac{dx}{T} = \frac{2}{T} \left| \frac{d}{dt} x(t) \right| dx,$$

или после подстановки координаты $x(t) = B \cos(\omega t)$

$$\frac{dP}{dx} = \frac{2}{T} \frac{1}{\omega |B \sin(\omega t)|} = \frac{1}{\pi} \frac{1}{\sqrt{B^2 - x^2}}.$$

График рис. 3 наглядно иллюстрирует, что вероятность того, что электрон значительное время занимает неравновесную позицию

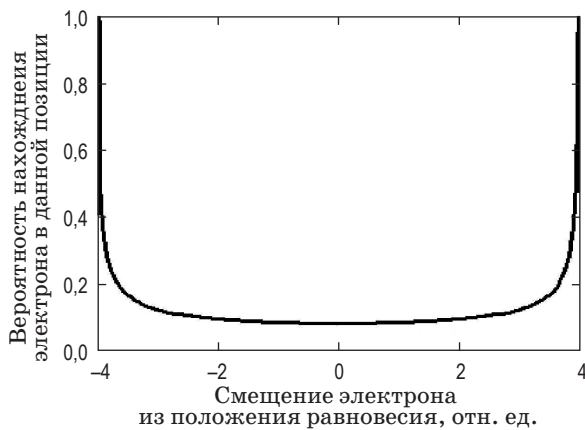


Рис. 3. Вероятность смещения электрона от положения равновесия за один период колебаний.

вблизи одного из узлов, тем самым значительно ослабляя связь, чрезвычайно велика.

В дальнейшем развитие процессов, обусловленных нарушением зарядового равновесия решетки, может протекать по двум сценариям.

а) Электростатическое разрушение

Благодаря значительному пространственному перераспределению валентных электронов в решетке происходит, по сути, гетеролитический разрыв связи, приводящий к появлению двух соседних заряженных ионов.

Поскольку в каждой полуволне внешнего поля этот процесс повторяется, ионы в течение значительного времени находятся под действием нескомпенсированных кулоновских сил. Возникающее пространственное перераспределение заряда приводит к тому, что тяжелые частицы, составляющие решетку, получают возможность двигаться.

Смещение узлов решетки приводит к появлению в ней больших механических напряжений и, в конечном итоге, к разрушению кристалла.

При анализе СОП широкозонных материалов следует иметь в виду, что внешние электрические поля на пороге пробоя, $F_{br} \approx 10^7\text{--}10^8$ В/см [3–5], близки к внутрикристаллическим. Анализ воздействия столь сильных полей требует пересмотра предположений о том, какие основные характеристики среды ответственны за возникновение оптического пробоя.

Грубую оценку условий, при которых происходит необратимое нарушение зарядового

равновесия можно провести, руководствуясь следующими соображениями.

Одной из важнейших характеристик твердого тела, определяющей его оптические, теплофизические и механические свойства (показатель преломления, температуру плавления, модуль Юнга и пр.), является энергия связи кристаллической решетки.

Существование корреляции между порогом пробоя (в том числе оптического!) и энергией решетки отмечалось еще в работе [9]. Отметим, что энергии связи решеток стекла К8 и плавленого кварца совпадают, поскольку связь Si=O, определяющая свойства структуры, одинакова у обоих материалов. Таким образом, если порог пробоя связан с энергией связи, то совпадение порогов СОП стекла и кварца становится естественным.

На рис. 4 приведены энергии электронов в максимуме отклонения от равновесного состояния при заданных интенсивностях света.

Из графика на рис. 4 видно, что при плотности мощности порядка $8 \times 10^{12}\text{--}10^{13}$ Вт/см² электроны приобретают энергию, превышающую энергию связи кристаллической решетки (порядка 3,8 эВ).

Учитывая, что значительную часть каждого полупериода колебаний электроны находятся вблизи точек поворота, имея максимальную кинетическую энергию, можно полагать, что условие $U_{bond} = E_{el\ max} = eFB$ является, по сути, критерием необратимого разрыва связи решетки. Здесь U_{bond} — энергия связи решетки, $E_{el\ max}$ — максимальная энергия осциллирующего электрона.

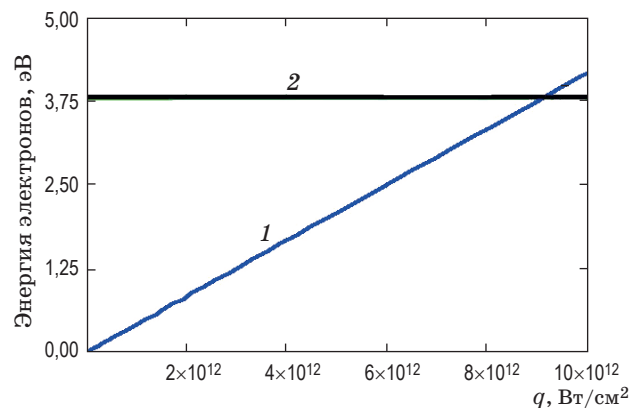


Рис. 4. Зависимость максимальной энергии осциллирующих электронов от плотности мощности света q (линия 1). Горизонтальной линией 2 обозначена энергия связи решетки U_{bond} .

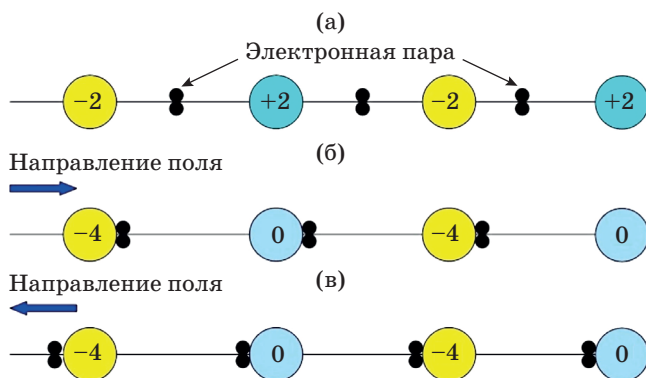


Рис 5. 1D-цепочка заряженных узлов (A^{-2} , B^{+2}). Равновесное положение в отсутствии поля (а), смещение электронной пары под действием поля световой волны (б) и (в). В кружках приведен полный заряд узла в максимумах каждой полуволны.

Картину происходящего можно проиллюстрировать на примере цепочки узлов, состоящих из ионов с зарядами разных знаков (A^{-2} и B^{+2}), между которыми имеется ковалентная связь (рис. 5).

Для структур более высокой размерности ситуация аналогична: смещение электронов также приводит к значительному пространственному перераспределению заряда внутри структуры, вызывая его движение.

Естественно предположить, что разрушение начинается, когда энергия E_{crit} , которую приобретают валентные электроны в пределах элементарной ячейки, превысит энергию связи решетки U_{bond} , т.е. при напряженности поля импульса выше критического значения $E_{\text{crit}} = U_{\text{bond}}/(ea)$, где a – параметр решетки. В таких полях атомам В становится энергетически выгодно находиться в нейтральном состоянии, и процесс «разбегания» узлов А с ненулевым зарядом становится необратимым. В макроскопических терминах этот критерий означает, что за счет движения узлов в решетке возникают напряжения, превышающие предел прочности материала.

Реальная картина сложнее — решетка является трехмерной, а связи расположены под углами. Но можно утверждать, что при любом направлении внешнего поля, приводящего к нарушению пространственной конфигурации зарядов, качественная картина движения электронов сохраняется.

Существенно отметить, что в рамках модели для зарождения пробоя не требуется ге-

нерация свободных носителей. Необходимо лишь создать условия, приводящие к пространственному перераспределению валентных электронов, обеспечивающих связи отдельных узлов решетки. В результате происходит частичное разрушение связей между узлами в твердом теле, вызывающее потерю устойчивости кристаллической матрицы.

б) Тепловое разрушение

Помимо такого, чисто электростатического механизма СОП, имеется другая возможность развития событий, обусловленная накоплением энергии электронным ансамблем. Как уже отмечено, в процессе осцилляций электроны приобретают значительную энергию. Поскольку речь идет о связанных электронах, последние имеют возможность «сбрасывать» энергию за счет взаимодействия с фононами. При таком механизме перераспределения энергии происходит быстрый (за времена электрон-фононных столкновений $\tau_{\text{eph}} \approx 10^{-13} - 10^{-12}$ с) разогрев решетки с последующим ее тепловым разрушением. Выяснение того, какой механизм СОП является доминирующим, требует дальнейшего исследования.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В заключение перечислим кратко утверждения, вытекающие из проведенного выше анализа.

1) Традиционные модели описания собственного оптического пробоя, основанные на предположении, что начальной его стадией является появление в материале свободных носителей (ударная лавинная и многофотонная ионизация), не в состоянии описать совокупность экспериментальных данных, полученных для боросиликатного стекла К8 (BK7) и плавленого кварца.

2) Адекватное описание процессов, приводящих к собственному оптическому пробую, возможно при учете осцилляций связанных электронов в поле световой волны. При этом происходит пространственное перераспределение валентных электронов, которые обеспечивают связь отдельных узлов решетки.

3) При плотности мощности света порядка $8 \times 10^{12} - 10^{13}$ Вт/см² амплитуда колебаний связанных электронов становится сравнима с размерами элементарной ячейки, а приобретаемая

ими энергия превышает энергию связи решетки. При этом основную часть времени электроны «зависают» вблизи точек поворота, т.е. реально принадлежат лишь одному из узлов. Фактически в течение значительной части каждого периода колебаний поля наблюдается гетеролитический разрыв связей решетки.

4) Когда энергия E_{crit} , которая приобретает валентными электронами в элементарной ячейке, превышает энергию связи решетки U_{bond} (т.е. когда напряженность поля импульса выше критического значения $E_{\text{crit}} = U_{\text{bond}}/(ea)$), пространственное перераспределение заряда приводит к частичному разрушению связей

между отдельными узлами. Узлы решетки получают возможность двигаться, что приводит к ее необратимым изменениям (разрушению).

5) Альтернативным вариантом зарождения собственного оптического пробоя является передача энергии, накопленной связанными электронами, в решетку, что приводит к ее быстрому разогреву и термическому разрушению.

6) Вопрос о том, какой из предложенных сценариев будет преобладающим, нуждается в дальнейшем изучении.

Автор благодарит М.И. Трибельского за полезные замечания и рекомендации при обсуждении модели.

ЛИТЕРАТУРА

1. Комолов В.Л. Собственный оптический пробой диэлектриков при электростатическом разрыве связей кристаллической решетки // Оптический журнал. 2018. Т. 85. № 5. С. 7–12.
2. Ефимов О.М. Нелинейное поглощение лазерного излучения и оптический пробой силикатных стекол // Диссерт. уч. ст. к.ф.-м.н. Л., ГОИ, 1985; Ефимов О.М. Нелинейная генерация дефектов в силикатных стеклах // Диссерт. уч. ст. д.ф.-м.н. СПб., ГОИ, 1995.
3. Глебов Л.Б., Ефимов О.М. Исследование закономерностей и механизм собственного оптического пробоя // Известия АН СССР. 1985. Т. 49. № 6. С. 1140–1145.
4. Ефимов О.М. Собственный и многоимпульсный оптический пробой прозрачных диэлектриков в фемто-наносекундной области длительностей лазерного излучения // Оптический журнал. 2004. Т. 71. № 6. С. 6–17.
5. Маненков А.А., Прохоров А.М. Лазерное разрушение прозрачных твердых тел // УФН. 1986. Т. 148. С. 179–211.
6. Вейко В.П., Либенсон М.Н., Червяков Г.Г., Яковлев Е.Б. Взаимодействие лазерного излучения с веществом (Силовая оптика). М.: Физматлит, 2008. 309 с.
7. Gruzdev V.E. New aspects of laser-induced ionization of wide band-gap solids // in Laser Ablation / Ed. by Phipps C.H. Springer, 2006. P. 99–121.
8. Глебов Л.Б., Ефимов О.М., Либенсон М.Н., Петровский Г.Т. Новые представления о собственном пробое прозрачных диэлектриков // Доклады АН СССР. 1986. Т. 287. № 5. С. 1114–1118.
9. Имас Я.А. Оптический пробой прозрачных диэлектриков (обзор экспериментальных работ) // Препринт № 13 Института тепло- и массообмена АН БССР. Минск, 1982. 32 с.
10. Manenkov A.A. Fundamental mechanisms of laser-induced damage in optical materials: Today's state of understanding and problems // Opt. Eng. 2014. V. 53. № 1. P. 010901.
11. Kuzuu N., Yoshida K., Yoshida H., Kamimura T., and Kamisugi N. Laser-induced bulk damage in various types of vitreous silica at 1064, 532, 355, and 266 nm: Evidence of different damage mechanisms between 266-nm and longer wavelengths // Appl. Opt. 1999. V. 38. P. 2510–2515.
12. Homoelle D., Wielandy S., and Gaeta A.L. Infrared photosensitivity in silica glasses exposed to femtosecond laser pulses // Opt. Lett. 1999. V. 24. № 18. P. 1311–1313.
13. Efimov O.M., Juodkazis S., and Misawa H. Intrinsic single and multiple pulse laser-induced damage in silicate glasses in the femtosecond-to-nanosecond region // Phys. Rev. A. 2004. V. 69. № 4. P. 042903.
14. Gamaly E., Luther-Davies B., Rode A., Juodkazis S., Misawa H., Hallo L., Nicolai Ph., Tikhonchuk V. Laser-matter interaction in the bulk of transparent dielectrics: Confined micro-explosion // J. Phys.: Conf. Ser. 2007. V. 59. P. 5–10.
15. Smith A.V., Do B.T., and Soderlund M. Nanosecond laser-induced breakdown in pure and Yb³⁺ doped fused silica // Proc. SPIE. 2007. V. 6403. P. 640321.
16. Smith V. and Do B.T. Bulk and surface laser damage of silica by picosecond and nanosecond pulses at 1064 nm // Appl. Opt. 2008. V. 47(26). P. 4812.

17. Sozet M., Neauport J., Lavastre E., Roquin N., Gallais L., and Lamaignère L. Laser damage growth with picosecond pulses // *Opt. Lett.* 2016. V. 41. № 10. P. 2342.
18. Jin Huang, Hongjie Liu, Fengrui Wang, Xin Ye, Laixi Sun, Xiaoyan Zhou, Zhiqing Wu, Xiaodong Jiang, Wanguo Zheng, and Dunlu Sun. Influence of bulk defects on bulk damage performance of fused silica optics at 355 nm nanosecond pulse laser // *Opt. Exp.* 2017. V. 25. P. 33416–33428.
19. Рэди Дж. Действие мощного лазерного излучения. М.: Мир, 1974. 470 с.
20. Анисимов С.И., Имас Я.А., Романов Г.С., Ходыко Ю.В. Действие излучения большой мощности на металлы. М.: Наука, 1970. 272 с.
21. Efimov O.M. Self-focusing of tightly focused laser beams // *Appl. Opt.* 2015. V. 54. № 22. P. 6895-6903.
22. Schiffrin A., Paasch-Colberg T., Karpowicz N., Apalkov V., Gerster D., Muhlbrandt S., Korbman M., Reichert J., Schultze M., Holzner S., Barth J.V., Kienberger R., Ernstorfer R., Yakovlev V.S., Stockman M.I., Krausz F. Optical-field-induced current in dielectrics // *Nature*. 2013. V. 493. P. 70–74.