

535.39+538.9.004.74+621.378.325

ЛАЗЕРНОЕ РАЗРУШЕНИЕ ПРОЗРАЧНЫХ ТВЕРДЫХ ТЕЛ**A. A. Маненков, A. M. Прохоров****СОДЕРЖАНИЕ**

1. Введение	179
2. Экспериментальные методы и условия исследования лазерного разрушения	181
3. Механизмы лазерного разрушения, связанные с нагревом поглощающих дефектов	188
3.1. Модели теплового разрушения	188
3.2. Статистические закономерности лазерного разрушения	193
3.3. Эффект накопления	195
4. Собственные механизмы лазерного разрушения, связанные с ударной и многофотонной ионизацией	196
4.1. Ударная ионизация	197
4.2. Многофотонная ионизация	205
5. Заключение	207
Список литературы	208

1. ВВЕДЕНИЕ

Явление оптического пробоя в прозрачных твердых телах было обнаружено в 1964 г.^{1,2} вскоре после создания лазеров с гигантскими импульсами излучения. С тех пор выполнено очень большое число исследований этого явления в материалах различного класса (широкозонные диэлектрические кристаллы, стекла, полимеры, полупроводники). Интерес к нему обусловлен прежде всего практическими потребностями лазерной техники, поскольку пробой приводит к необратимому разрушению оптических элементов лазеров и, по существу, является одним из основных физических факторов, ограничивающих предельную мощность лазеров.

В связи с этим очевидно, что выяснение механизмов лазерного разрушения (л.р.) представляет важную задачу физики взаимодействия интенсивного электромагнитного излучения с веществом.

Цель нашей статьи — представить современное состояние исследований по проблеме л.р. с акцентом на физические аспекты, касающиеся выяснения механизмов л.р. При этом из-за ограниченности объема статьи мы не стремились дать максимально полный обзор работ, относящихся к этой области (это практически невозможно), а ставили целью представить основные направления исследований и достигнутые успехи в понимании механизмов л.р. По той же причине изложение как теоретических, так и экспериментальных результатов будет дано в сжатой форме, а для более детального ознакомления мы будем отсылать к оригинальным работам. Укажем также на ряд публикаций обзорного характера, в которых содержится обширная информация по отдельным аспектам проблемы л.р.: серию кратких обзоров (см. ³ и ссылки там) работ, доложенных на симпозиумах по оптическим материалам для мощных лазеров ⁴, обзор работ по л.р. тонкопленочных оптических покрытий ⁵, а также обзор экспериментальных работ ⁶.

С начала исследований проблемы л.р. до настоящего времени в литературе обсуждалось довольно большое число возможных механизмов и моделей разрушения прозрачных оптических материалов различного класса под действием мощного лазерного излучения, включая такие эффекты, как световое давление, электрострикция, генерация гиперзвука при вынужденном мандельштам-бриллюэновском рассеянии (ВРМБ) света, ударная (электронная лавина) и многофотонная ионизация, различного рода тепловые эффекты (термоупругие напряжения, тепловая ионизация, фотоионизация излучением нагретых включений, термохимические и механохимические реакции и др.), инициируемые в оптическом материале поглощающими включениями и дефектами. Указанные тепловые эффекты обусловливают так называемый несобственный пробой, поскольку характеристики его существенно определяются разного рода дефектами и включениями в материале, в отличие от отмеченных в начале процессов, собственных самой матрице материала и обуславливающих так называемый 'собственный пробой'.

Вредная роль поглощающих включений (металлические частицы платины) в разрушении лазерных стекол была обнаружена уже довольно давно⁷. Дальнейшие исследования показали, что поглощающие дефекты и включения, всегда присутствующие в том или ином количестве в реальных оптических материалах, в большинстве случаев являются доминирующим источником л.р. как поверхностей, так и объемов оптических элементов из различных материалов, понижая (иногда очень значительно) пороговую интенсивность, при которой наступает разрушение.

Особый интерес представляет вопрос о собственных механизмах, определяющих предельную стойкость оптических материалов к лазерному излучению. Исследования показали, что из отмеченных выше собственных механизмов л.р. наиболее вероятными являются ударная и многофотонная ионизация^{*}), причем эффективность первого из этих процессов — электронной лавины — была надежно подтверждена экспериментально при исследованиях л.р. в особо чистых щелочно-галоидных кристаллах⁸⁻¹⁰.

Важным аспектом проблемы л.р. является вероятностный характер процессов разрушения, причем он относится как к несобственному, так и к собственным механизмам разрушения: для первого он обусловлен случайным пространственным распределением поглощающих дефектов, обладающих различными характеристиками (и в силу этого приводящих к различным порогам теплового пробоя), а для второго он связан с вероятностным характером рождения затравочных электронов, инициирующих развитие лавинной ионизации. С вероятностной природой тесно связана одна из характерных особенностей л.р. — зависимость порога разрушения от размера области взаимодействия (так называемый размерный эффект).

В связи с этим (изучение статистических закономерностей (пространственных вариаций порога разрушения, размерного эффекта, вероятности разрушения как функции интенсивности лазерного излучения) представляется большой интерес как с принципиальной точки зрения для выяснения механизмов л.р., так и с практической точки зрения для оценки лазерной стойкости оптических элементов в различных экспериментальных условиях (например, для определения надежности лазерных устройств при заданных уровнях интенсивности излучения и диаметра лазерных пучков).

В процессах лазерного разрушения очень важную роль играет эффект накопления, заключающийся в том, что макроразрушения на поверхности или в объеме оптического материала образуются в результате воздействия

*). Другие собственные механизмы, обсуждавшиеся в литературе, связанные со световым давлением, электрострикцией, генерацией гиперзвука при ВРМБ, оказываются недостаточно эффективными, чтобы вызвать разрушение^{11, 12}. Более того, последний процесс (ВРМБ) даже препятствует образованию разрушения, поскольку приводит к уменьшению локальной интенсивности распространяющегося лазерного пучка вследствие обратного рассеяния¹³.

серии импульсов лазерного излучения при интенсивностях, ниже порога одноимпульсного разрушения.

Исследования показали, что в некоторых классах материалов, особенно в полимерах¹⁴, эффект накопления выражен очень сильно: он наблюдается даже при интенсивностях на два порядка величины ниже порога одноимпульсного разрушения. Отсюда очевидно, что изучение природы эффекта накопления очень важно как для понимания механизмов взаимодействия лазерного излучения с оптическими материалами различного класса, так и с практической точки зрения для оценки ресурса оптических элементов в лазерах и поиска эффективных методов подавления этого эффекта, ограничивающего указанный ресурс.

Весьма существенную роль в процессах л.р. могут играть эффекты самоиздействия: самофокусировка, самодефокусировка, вынужденное рассеяние излучения в исследуемой среде. Влияние первого эффекта, приводящего к сильному увеличению интенсивности на оси пучка распространяющегося в среде излучения, обнаруживается в разрушении многих оптических материалов, в частности в лазерных стеклах и кристаллах, и оно детально изучено в литературе. Порог разрушения в этом случае определяется не собственно оптической стойкостью материала, а порогом самофокусировки (см., например,¹⁵).

Самодефокусировка и вынужденное рассеяние, наоборот, приводят к уменьшению интенсивности в среде и препятствуют возникновению разрушения^{18,16}.

Отсюда очевидно, что учет влияния самофокусировки, самодефокусировки и вынужденного рассеяния очень важен в исследованиях л.р. для корректной оценки пороговых интенсивностей и адекватной интерпретации механизмов разрушения.

Следует отметить еще один аспект, важный при исследовании механизмов л.р., — это необходимость проведения экспериментов в тщательно контролируемых и воспроизводимых условиях. Такая постановка экспериментов требует, в частности, применения лазеров с заданными пространственными, временными и спектральными характеристиками, анализа степени чистоты исследуемых образцов и т.п.

Для надежности выводов о механизмах разрушения весьма важны целенаправленные эксперименты, результаты которых могут быть адекватно проанализированы (не только качественно, но и количественно) с последовательно разработанными теоретическими моделями.

Исследования, выполненные с учетом отмеченных аспектов, привели в последние годы к значительному прогрессу в понимании механизмов лазерного разрушения прозрачных твердых тел и разработке различных материалов и элементов лазерной оптики, обладающих высокой стойкостью к мощному излучению.

2. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ МЕТОДЫ И УСЛОВИЯ ИССЛЕДОВАНИЯ ЛАЗЕРНОГО РАЗРУШЕНИЯ

Пороговые интенсивности лазерного излучения, при которых наблюдается разрушение прозрачных твердых тел, варьируют в очень широких пределах для различных материалов и образцов одного и того же материала и существенно зависят от частоты Ω и длительности импульса излучения τ_i , а также от размеров области облучения r . Для корректного определения этих пороговых интенсивностей I_d и установления основных закономерностей л.р. (зависимости I_d от Ω , τ_i , r , температуры образца T_0 , статистические закономерности и т.п.) с целью выяснения механизмов разрушения и решения практических задач поиска эффективных путей повышения лазерной стойкости оптических материалов и элементов, должны быть выполнены определенные условия. Такими условиями прежде всего являются: применение

лазеров со стабильными частотными, временными и пространственными характеристиками излучения, контроль этих характеристик в процессе эксперимента, учет возможных эффектов самовоздействия излучения (самофокусировки, самодефокусировки, вынужденного рассеяния) и эффекта накопления, контроль характеристик образцов, применение адекватных методик регистрации разрушения.

В качестве источников излучения в экспериментах по л.р. обычно применяются импульсные лазеры, работающие на фиксированных частотах основного излучения или его гармониках, полученных методами преобразования частоты в нелинейных кристаллах. Наиболее распространеными лазерами, применяемыми в таких экспериментах, являются: лазеры на кристаллах рубина ($\lambda = 0,69$ мкм), иттрий-алюминиевого граната, активированного ионами Nd^{3+} (YAG-Nd³⁺, $\lambda = 1,06$ мкм), лазеры на стеклах, активированных ионами Nd³⁺ ($\lambda = 1,06$ мкм), газовые лазеры на молекулах CO₂ ($\lambda = 10,6$ мкм), HF ($\lambda = 2,7$ мкм), DF ($\lambda = 3,8$ мкм). Используются 2-я, 3-я и 4-я гармоники излучения YAG-Nd³⁺-лазера ($\lambda_2 = 0,53$ мкм, $\lambda_3 = 0,35$ мкм, $\lambda_4 = 0,27$ мкм). В ряде экспериментов применялись также лазеры на кристаллах CaF₂-Er³⁺ ($\lambda = 2,76$ мкм) и иттрий-алюминиевого граната, активированного ионами Er³⁺ ($\lambda = 2,94$ мкм). Длительности импульсов излучения этих лазеров могут варьироваться в широких пределах в зависимости от режима работы: в режиме свободной генерации $\tau_{ii} = 10^{-2} - 10^{-4}$ с, в режиме модуляции добротности $\tau_{ii} = 10^{-7} - 10^{-9}$ с, в режиме синхронизации мод $\tau_{ii} = 10^{-10} - 10^{-12}$ с.

Для корректных измерений интенсивности излучения и получения воспроизводимых и сопоставимых результатов экспериментов по л.р. весьма важно применение лазеров с заданными и контролируемыми временными и пространственными характеристиками пучков. Такому условию хорошо удовлетворяют одномодовые по поперечным и продольным индексам лазеры, обладающие гауссовым распределением интенсивности излучения в поперечном сечении пучка:

$$I(x, y) = I_0 \exp\left(-\frac{x^2 + y^2}{a^2}\right), \quad (1)$$

где I_0 — максимальная интенсивность на оси пучка ($x = 0, y = 0$), x и y — поперечные координаты, a — характерный поперечный размер пучка.

Временные характеристики излучения лазеров для миллисекундного и наносекундного диапазонов длительностей достаточно просто и надежно анализируются обычными методами осциллографирования, тогда как для анализа пикосекундных импульсов требуются более сложные методы, включающие применение электрооптических камер высокого разрешения¹⁷. Для импульсов наносекундного диапазона длительностей, генерируемых в лазерах с модуляцией добротности резонатора, временная форма обычно близка к гауссовой¹⁸, тогда как для импульсов излучения в режимах свободной генерации (миллисекундный диапазон) и синхронизации мод (пикосекундный диапазон) она может быть другой. В частности, импульсы свободной генерации часто имеют сложную пичковую структуру. Поскольку распределение амплитуды отдельных пичков обычно хаотическое, такие пичковые импульсы непригодны для исследований процессов лазерного разрушения. Поэтому в этом случае требуются специальные методы формирования безструктурных лазерных импульсов. Такие импульсы могут быть получены, в частности, в лазерах с резонатором, образованным плоскими зеркалами и сферическими линзами¹⁹.

В экспериментах по выяснению механизмов л.р. важно плавно варьировать длительность импульсов излучения τ_{ii} в возможно широком диапазоне при сохранении пространственного распределения интенсивности и спектра излучения. Такое варьирование τ_{ii} наиболее просто можно получить путем вырезания части достаточно длинного импульса излучения лазерного генера-

тора внешним электрооптическим затвором с последующим усилением в лазерном усилителе. Такой метод был использован в работе¹⁹, в которой были получены импульсы излучения рубинового лазера с формой, близкой к прямоугольной (фронты $\Delta t = 30-40$ нс) и плавной вариацией длительности в диапазоне $\tau_{\text{и}} = 3 \cdot 10^{-7} - 4 \cdot 10^{-4}$ с.

Применение такого метода изменения длительности импульсов в области более коротких импульсов затруднительно, поскольку требует формирования высоковольтных электрических импульсов управления электрическим затвором с короткими фронтами.

В работе²⁰ была предложена и реализована другая схема формирования плавно изменяемых по длительности лазерных импульсов наносекундного диапазона (1–10 нс), основанная на варьируемом по времени выводе излучения из резонатора с модулированной добротностью.

Для получения пространственно однородного распределения интенсивности излучения лазера применяются методы селекции поперечных мод резонатора (выделение пиззетого типа колебаний TEM_{00}) и пространственной фильтрации выходного пучка. Последнее особенно важно, когда применяются многокаскадные лазерные усилители, активные элементы которых обладают оптической неоднородностью (обычно лазерные, кристаллы).

Селекция поперечных мод осуществляется путем помещения в лазерный резонатор круглой диафрагмы малого диаметра (1–2 мм), а пространственная фильтрация излучения на выходе усилительной системы — пропусканием пучка через пространственный фильтр — систему диафрагм²⁰ либо софокусных сферических линз, в общем фокусе которых помещена диафрагма малого размера (порядка дифракционного размера пучка в фокальной плоскости)^{21,22}.

Селекция продольных мод в лазерах осуществляется путем помещения в лазерный резонатор дополнительных интерференционных элементов Фабри — Перо, выполняемых обычно в форме стопы плоскопараллельных пластин (см., например,²³). Выделение одной продольной моды важно не только с точки зрения получения одночастотного спектра генерации, но и для исключения флуктуаций мощности излучения, обусловленных биением мод.

Для определения интенсивности излучения и ее пространственного распределения в лазерном пучке (как в коллимированном, так и в сфокусированном пучках) применяются различные методы, среди которых методы, основанные на измерении доли энергии, прошедшей при частичном перекрытии пучка сканируемым плоским экраном или проволокой, и на измерении размера ожога фотопластины при различных уровнях мощности падающего излучения^{24,25}, являются достаточно простыми и надежными.

Например, при перекрытии пучка плоским экраном (обычно используется лезвие бритвы) прошедшая мощность

$$F(x) = \int_{-\infty}^x \int_{-\infty}^{+\infty} I(x, y) dx dy \quad (2)$$

для гауссова поперечного распределения интенсивности $I(x, y)$ равна

$$F(x) \approx P_0 \left(\frac{1}{2} + \frac{3a^2x - x^3}{3\pi^{1/2}} \right), \quad (3)$$

где $P_0 = \pi a^2 I_0$ — полная мощность пучка.

Измеряя $F(x)$ при различных положениях экрана, можно выяснить истинное распределение $I(x, y)$ и довольно просто определить характерный радиус пучка a .

Эксперименты по л. р. проводятся обычно с применением фокусировки излучения лазера на поверхность или внутрь образца с помощью внешней линзы. Это позволяет достигать больших интенсивностей, достаточных для получения разрушения в фокусе линзы, при относительно умеренных уровнях

мощности выходного излучения лазера и разделять эффекты поверхностного и объемного разрушения. При этом, если используются образцы с плоской входной поверхностью, при исследовании объемного разрушения необходимо учитывать aberrации пучка на этой поверхности. Для исследуемых веществ с небольшим показателем преломления (сюда относятся большинство прозрачных диэлектриков типа стекол, полимеров, ионных кристаллов) этот aberrационный эффект приводит лишь к незначительным искажениям пучка в фокальной области. В случае же веществ с большой величиной показателя преломления (например, для полупроводников типа Ge) эти aberrации на плоской поверхности значительно искажают распределение интенсивности в фокальной области внутри образца. Их можно исключить, сделав входную поверхность сферической.

Кроме указанного aberrационного эффекта, который является линейным, т. е. не зависит от интенсивности лазерного пучка, при исследованиях объемного разрушения необходимо учитывать возможные искажения пространственного распределения интенсивности вследствие нелинейных эффектов в образце (самофокусировка, самодефокусировка, вынужденное рассеяние, многофотонное поглощение). Хотя анализ влияния этих эффектов на процесс лазерного разрушения проводился во многих работах (см. ^{13, 15, 16} и ссылки в них), количественный учет их при измерениях порогов разрушения в большинстве случаев практически невозможен, что связано с недостаточным развитием теоретических моделей и неопределенностью механизмов этих эффектов и связанных с ними материальных констант (коэффициентов нелинейности показателя преломления и т. п.). Поэтому в большинстве работ по л. р. прибегают к качественным оценкам наличия указанных нелинейных эффектов и проведению экспериментов в условиях, исключающих их значительное влияние на измеряемые интенсивности разрушения.

Так, часто наблюдаемый нитевидный характер разрушений обычно связывают с самофокусировкой и объясняют движением нелинейного фокуса в среде, если лазерный импульс имеет колоколообразную временную форму ²⁶.

При наличии самофокусировки могут наблюдаться, однако, и точечные разрушения, если лазерный импульс имеет прямоугольную временную форму ²⁷, что, согласно многофокусной модели самофокусировки ²⁸, объясняется стоячей картиной нелинейных фокусов. Чтобы исключить влияние самофокусировки в экспериментах по л. р., для фокусировки излучения в объем исследуемого образца применяют короткофокусные линзы, что обосновывается ²⁹ тем, что в этом случае необходимая для разрушения интенсивность в фокусе достигается при мощности входного излучения P_i , меньшей критической мощности самофокусировки P_c . Последняя для керровского механизма нелинейности показателя преломления, который обычно является доминирующим во многих твердых прозрачных диэлектриках при коротких длительностях импульсов оптического излучения, равна ³⁰

$$P_c = \frac{0,942 c \lambda^2}{8\pi^2 n_2}; \quad (4)$$

здесь c — скорость света, λ — длина волны излучения, n_2 — коэффициент нелинейности показателя преломления.

На начальной стадии самофокусировки (до катастрофического схлопывания пучка и образования многофокусной структуры) интенсивность в фокусе линзы в нелинейной среде можно представить формулой ^{29, 30}

$$I \approx I_L \left(1 + \frac{P_i}{P_c} \right); \quad (5)$$

здесь I_L — интенсивность в линейном фокусе сечения S_L .

В ряде работ (см., например, 25, 29, 31, 32) формула (5) была использована для определения P_c по измеряемым пороговым значениям мощности P_i ,

при которых получается разрушение, при разных фокусных расстояниях линз f (т. е. различных величинах S_1). В такой процедуре предполагается, что пороговые интенсивности разрушения I_d не зависят от размера области взаимодействия (фокального пятна). Однако, как показывают эксперименты, в большинстве реальных прозрачных оптических материалов наблюдается размерная зависимость $I_d(r)$ и в отсутствие самофокусировки, что, как было отмечено выше, связано с пространственной флуктуацией порога разрушения из-за наличия поглощающих дефектов, инициирующих разрушение. По этой причине, а также из-за неопределенности доминирующих механизмов самофокусировки и возможного влияния других эффектов самовоздействия, описанная процедура определения P_c оказывается некорректной.

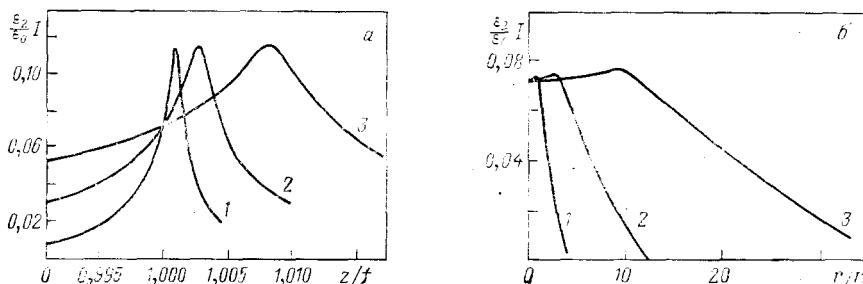


Рис. 1. Аксимальное при $r = 0$ (а) и радиальное при $z = f$ (б) распределения интенсивности лазерного пучка в фокальной области линзы в среде с отрицательной нелинейностью показателя преломления, обусловленной генерацией неравновесных носителей, при различных интенсивностях входного гауссова пучка I_1 ($\text{МВт}/\text{см}^2$) = 0,3 (1), 3 (2) и 30 (3).

Интенсивность I и расстояния вдоль оси пучка z и по радиусу r нормированы соответственно на параметр нелинейности среды $|\epsilon_2/\epsilon_0|$ (ϵ_0 — линейная часть диэлектрической проницаемости, $\epsilon = \epsilon_0 + \epsilon_2 I$, $\epsilon_2 < 0$ — коэффициент нелинейности, фокусное расстояние линзы f и размер фокального пятна r_0 в линейной среде). Расчеты выполнены для герmania при $f = 1,5$ см, $r_0 = 3$ мкм¹⁶.

В отличие от самофокусировки, которая облегчает пробой в среде, самофокусировка излучения, которая может быть связана, в частности, с генерацией неравновесных носителей вследствие какого-либо механизма (многофотонная и ударная ионизация и др.), должна препятствовать пробою. Действительно, проведенный теоретический анализ¹⁶ показывает, что в среде с отрицательной нелинейностью вследствие самофокусировки происходит уширение пучка и насыщение интенсивности в фокальной области фокусирующей линзы (рис. 1).

Максимальная интенсивность насыщения определяется углом фокусировки излучения:

$$I_{\max} \approx \frac{5\epsilon_0}{\epsilon_2} \left(\frac{a_0}{f} \right)^2; \quad (6)$$

здесь ϵ_2 — коэффициент нелинейности диэлектрической проницаемости среды ($\epsilon = \epsilon_0 + \epsilon_2 |E|^2$), a_0 — радиус гауссова пучка на входе фокусирующей линзы с фокусным расстоянием f . При этом существенно искажается радиальное и аксиальное распределения интенсивности: радиальное распределение сильно отклоняется от гауссова, приобретая форму с плоской вершиной; аксиальное распределение также уширивается и его максимум смещается за геометрический фокус.

Предсказываемый теорией эффект насыщения интенсивности в фокальной области вследствие самофокусировки объясняет отсутствие разрушения в кристаллах герmania при фокусировке в них излучения импульсного CO₂-лазера ($\tau_i = 100$ нс) даже при очень больших мощностях входного излучения, соответствующих интенсивности в линейном фокусе $I_L \approx 10^{12}$ Вт/см²¹⁶, при которых в других полупроводниках и диэлектриках

заведомо происходит разрушение. Самодефокусировка излучения СО₂-лазера в Ge была объяснена в ¹⁶ генерацией неравновесных носителей. Оцененные при этом максимальные концентрация носителей и интенсивность в фокусе линзы с $a_0/f = 0,13$ составили соответственно $N_{e,\max} \approx 10^{18} \text{ см}^{-3}$, $I_{\max} \approx 3 \cdot 10^8 \text{ Вт/см}^2$.

Приведенные результаты показывают, насколько важен учет эффектов самодефокусировки при исследованиях лазерного разрушения. Однако, как и в случае самофокусировки, количественная оценка влияния самодефокусировки на распределение интенсивности затруднена из-за неопределенности ее механизмов в исследуемых средах.

Экспериментальные методы исследования самодефокусировки мало разработаны. В этой связи отметим недавнюю работу ³³, где для выяснения роли самодефокусировки применялась двухпучковая методика: изучалось взаимное влияние двух близко расположенных пучков на порог разрушения.

Вынужденное рассеяние может также существенно изменять распределение интенсивности в фокальной области фокусирующей линзы. Было выяснено ¹³, что при изучении л. р. в стеклах необходимо учитывать обратное рассеяние излучения вследствие ВРМБ, которое может значительно ослабить интенсивность в фокусе. Этот эффект существенно зависит от ширины спектра Δv лазерного излучения и фокусного расстояния f фокусирующей линзы: он максимальен для излучения с малой величиной Δv и больших f .

Наблюдалась конкуренция эффектов ВРМБ и самофокусировки в процессах лазерного разрушения при определенных значениях Δv и f : при больших f и малых Δv в ряде стекол ВРМБ оказывается доминирующим процессом и препятствует разрушению даже при больших входных мощностях, превышающих критическую мощность самофокусировки. Эти результаты находят качественное объяснение на основе существующих теоретических представлений, хотя для количественных оценок величин порогов разрушения при заданных Δv и f необходимы теоретические расчеты распространения лазерного пучка в среде с учетом обоих эффектов, что, очевидно, представляет очень сложную задачу. Проведенные исследования ¹³ показали, что влияние ВРМБ на процесс л. р. удается исключить, если применять короткофокусные линзы.

При исследованиях л. р. применяются разнообразные экспериментальные методы регистрации разрушения, которые подробно описаны в литературе (см., например, ^{4, 14, 34, 35}). Наиболее простыми из них являются наблюдение видимого свечения (искры) и рассеяния зондирующего излучения Не — Нелазера ($\lambda = 0,63 \text{ мкм}$), возникающих сразу же по достижении пороговой интенсивности разрушающего излучения, что позволяет, как правило, четко и точно фиксировать порог разрушения. Для изучения морфологии образующихся разрушений применяются методы оптической микроскопии, в том числе в режиме последействия (наблюдение остаточных разрушений) и в динамическом режиме (в процессе разрушения) ^{34, 35}. Довольно содержательная информация о процессах л. р. получается при исследованиях характеристик рассеяния (интенсивности, поляризации, пространственного распределения) собственного (разрушающего) излучения ³⁵, характеристик свечения в видимой и УФ областях (интенсивности, спектра, кинетики свечения). Эти последние методы позволяют изучить процессы, происходящие в исследуемом материале при воздействии мощного лазерного излучения в широком диапазоне интенсивностей как ниже, так и выше порога разрушения. В частности, такими методами удается детально изучить динамику разрушения, установить наличие допороговых изменений в материале и проследить процесс их накопления, приводящий к видимому макроразрушению (см. ^{35, 14} и ссылки там).

При выяснении механизмов л. р. в оптических материалах большое значение имеют предварительные исследования характеристик конкретных

образцов. Сюда прежде всего относится оценка степени оптической чистоты образцов — наличия примесей, включений, дефектов, которые могут существенно влиять на процесс разрушения.

В качестве достаточно простого теста оптической чистоты материалов естественно использовать рассеяние света на инородных включениях и дефектах (рэлеевское рассеяние).

В работе³⁴ в качестве количественного критерия оптической чистоты было предложено использовать сравнение интенсивности рэлеевского рассеяния и рассеяния Мандельштама — Бриллюэна в том же веществе или в каком-либо эталонном. Такое сравнение позволяет избежать трудно осуществимых абсолютных измерений интенсивности рассеяния. Заметим, что такие исследования позволяют обнаружить наличие включений и дефектов очень малого (10—100 нм) размера, которые в той или иной степени всегда присутствуют в оптических материалах и, как показывают эксперименты, могут оказывать влияние на лазерное разрушение. Что касается крупных включений, играющих наиболее вредную роль в лазерном разрушении, то они легко обнаружимы и более простыми методами. Исследования³⁴ показали, что для ряда материалов (кристаллический кварц, сапфир, стекла) наблюдается определенная корреляция интенсивности рэлеевского рассеяния с порогами их объемного лазерного разрушения.

Рассеяние света может быть также использовано для оценки оптического качества поверхностей оптических элементов, поскольку различные методы полировки (абразивная, ионная, лазерная и др.) создают различную степень дефектности приповерхностного слоя, которая сказывается на лазерной стойкости.

Вместе с тем следует заметить, что рэлеевское рассеяние света при малых интенсивностях падающего излучения не всегда может дать однозначную информацию об оптическом качестве и корреляции с лазерной стойкостью, поскольку последняя чувствительна к сильно поглощающим дефектам, а рассеяние определяется всеми дефектами. В этой связи значительный интерес представляют исследования рассеяния света при высоких (но неразрушающих) уровнях интенсивности падающего излучения.

Были предприняты попытки³⁶ оценить по характеристикам наблюдаемого при таких интенсивностях нелинейного рассеяния коэффициенты поглощения рассеивающих дефектов, определяющих порог л.р. Однако требуются дальнейшие исследования, чтобы более уверенно выяснить возможность определения коэффициентов поглощения и других параметров дефектов по характеристикам нелинейного рассеяния.

Учитывая исключительную практическую важность прогнозирования лазерной стойкости оптических материалов, поиск других неразрушающих методов определения характеристик дефектов представляется весьма актуальным.

В этой связи представляет большой интерес развитие различных методов, применяемых для измерения малых поглощений (в частности, методов лазерной калориметрии³⁷⁻³⁹, фотоакустики⁴⁰, модуляционной спектроскопии⁴¹), для определения коэффициента поглощения дефектов. До настоящего времени этими методами удавалось измерять лишь усредненные по объему или поверхности коэффициенты поглощения материалов ($\bar{\alpha}$), тогда как для импульсного лазерного разрушения важно знание поглощающих характеристик локальных дефектов (α_{loc}). В достаточно чистых оптических материалах, применяемых в лазерной оптике, типичные величины $\bar{\alpha}$ очень малы ($\bar{\alpha} = 10^{-8}-10^{-5} \text{ см}^{-1}$) и для импульсного излучения длительностью $\tau_{\text{п}} \leq 10^{-7} \text{ с}$ не могут вызвать нагрев, достаточный для разрушения. В процессах лазерного разрушения локальные температуры в области взаимодействия достигают величин $T \geq 10^3 \text{ К}$, что может быть обеспечено достаточно большими величинами $\alpha_{loc} \geq 10^2 \text{ см}^{-1}$ (см. ниже).

3. МЕХАНИЗМЫ ЛАЗЕРНОГО РАЗРУШЕНИЯ, СВЯЗАННЫЕ С НАГРЕВОМ ПОГЛОЩАЮЩИХ ДЕФЕКТОВ

В прозрачных твердых телах могут присутствовать дефекты разнообразной природы: инофазные включения (металлические, полупроводниковые, керамические и др.), скопления примесей и кластеры в объеме, частицы абразивного материала и адсорбированные вещества на поверхности. Все эти дефекты могут обладать значительным коэффициентом поглощения и вызывать локальный нагрев, производящий посредством различных механизмов к разрушению материала в окрестности дефекта. Возможными процессами в окружающей поглощающей дефект матрице являются плавление, термоупругие напряжения, приводящие посредством механохимических реакций к разрушению материала, термохимические реакции, фотопионизация тепловым излучением нагретого дефекта и образованию плазмы. Эффективность того или иного процесса в лазерном разрушении, естественно, зависит как от параметров дефекта, так и от физико-химических и механических характеристик материала матрицы.

3.1. Модели теплового разрушения

Первая теоретическая модель теплового разрушения на поглощающих дефектах была рассмотрена в⁴² в связи с анализом л.р. поверхностей кристаллов рубина. В этой модели на основе решения уравнения теплопроводности рассматривался процесс нагрева лазерным излучением поглощающих дефектов со средним размером q и средним расстоянием между ними l , содержащихся в поверхностном слое кристалла, с учетом теплоотвода в окружающую среду.

Решение уравнения теплопроводности было получено в приближении независимости коэффициента поглощения дефекта α и тепловых параметров дефекта и среды (коэффициента теплопроводности и др.) от температуры (хотя отмечалась важность учета температурной зависимости этих параметров).

В качестве критерия разрушения принималось достижение в области дефекта некоторой критической температуры T_k , при которой происходят какие-либо необратимые изменения поверхности (плавление, растрескивание и т. п.). Были получены следующие простые выражения для пороговой мощности разрушения:

$$P_d \approx (T_k - T_0) \left[\frac{\alpha V}{4\pi k q} + \frac{\alpha V}{l^2} \left(\frac{\tau_u}{c_0 \rho_0 k_0} \right)^{1/2} \right], \quad \tau_u > \tau_x, \quad (7)$$

$$P_d \approx \frac{c_0 \rho_0 (T_k - T_0)}{\alpha \tau_u}, \quad \tau_u < \tau_x, \quad (8)$$

где $\tau_x = c\rho q^2/k$ — среднее характерное время распространения тепла внутри поглощающих центров, c — теплоемкость, ρ — плотность, k — коэффициент теплопроводности вещества, образующего центр (соответствующие величины с индексом 0 относятся к матрице кристалла), V — объем поглощающего центра, T_0 — начальная температура кристалла.

Эти формулы качественно хорошо объяснили наблюдаемую зависимость $P_d(\tau_u)$, а также вариацию величины P_d со степенью обработки поверхности (зависимость P_d от параметров дефектов α и q) (рис. 2). Отметим, что приведенные здесь результаты применимы и к объемному разрушению.

Аналогичный подход к анализу теплового разрушения на поглощающих включениях был развит в работах^{43,44} применительно к объемному разрушению в стеклах, содержащих металлические или керамические частицы. Решалась задача о нагреве частицы с учетом теплоотвода в окружающую матрицу и возникновении термоупругих напряжений в ней. Так же как и в⁴², пред-

полагалась независимость теплофизических параметров частиц и среды от температуры.

В результате показано⁴⁴, что при плотности энергии лазерного излучения 20 Дж/см² и длительности импульса 30 нс температура поглощающей частицы может достигать 10⁴ К, что создает напряжения в окружающей матрице стекла, превышающее предел прочности. Было установлено также, что имеется характерный размер частицы, для которого достигается максимальная температура при заданной интенсивности излучения. Это означает, что в рамках рассмотренной модели должен существовать наиболее «опасный размер» поглощающих включений, приводящий к минимальному порогу лазерного разрушения.

Эта модель обсуждалась во многих работах (см.⁴⁵ и ссылки там) в связи с анализом объемного и поверхностного лазерного

разрушения в различных материалах, содержащих включения разнообразной природы (металлические, керамические и др.). В⁴⁵ было найдено, что она хорошо объясняет экспериментальные данные по зависимости порогов разрушения тонкопленочных диэлектрических покрытий от длительности импульса и толщины пленок.

Хотя приведенные результаты показывают, что рассмотренные модели теплового разрушения⁴²⁻⁴⁴ качественно объясняют некоторые важные закономерности лазерного разрушения, они не являются, очевидно, вполне адекватными, так как в них не учитывалась температурная зависимость теплофизических параметров частиц и среды. Действительно, вряд ли можно считать независящими от температуры при столь высоких ее значениях ($\sim 10^4$ К), которые реализуются в процессах лазерного разрушения, такие параметры, как коэффициент оптического поглощения включений, теплоемкость и теплопроводность включения и окружающей матрицы. Важно отметить, что в рамках этих моделей остаются неопределенными величины критических температур и напряжений из-за динамического характера процесса разрушения (особенно в области коротких лазерных импульсов), и в силу этого остается неопределенным критерий порога лазерного разрушения.

Анализ теплового механизма л.р. с учетом указанных зависимостей как для поглощающих включений, так и для окружающей матрицы был выполнен в^{46,47}. Процесс нагрева поглощающей частицы описывался уравнением теплопроводности

$$\frac{\partial}{\partial t} (c\rho) = \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 k \frac{\partial T}{\partial r} \right) + Q(I, T), \quad (9)$$

где c , ρ , k — теплоемкость, плотность и коэффициент теплопроводности, различные для вещества включения и окружающей матрицы и зависящие от температуры; $Q(I, T)$ — мощность тепловых источников в частице, зависящая от интенсивности лазерного излучения I и температуры T .

Для температурной зависимости $Q(T)$ и $k(T)$ в качестве примера были взяты известные аппроксимации, реализующиеся для ряда диэлектриков и металлов в области > 300 К:

$$Q(I, T) = Q(I) \exp \left(\xi \frac{T - T_0}{T_0} \right), \quad (10)$$

$$k(T) = \frac{d}{T},$$

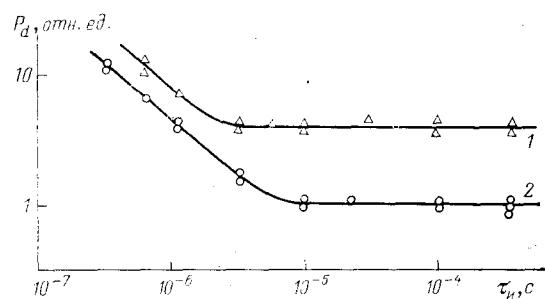


Рис. 2. Зависимость пороговой мощности поверхности разрушения P_d от длительности импульсов лазерного излучения для двух типичных образцов рубина (1 и 2)⁴²

где T_0 — начальная температура образца, ξ — параметр температурной нелинейности коэффициента поглощения вещества включения, d — константа вещества включения или основного материала.

Решение уравнения (9) показало, что процесс нагрева включений носит во времени сильно нелинейный, взрывной, характер. Это позволяет по асимптотически быстрому нарастанию температуры включения определить пороговую мощность разрушения:

$$Q_{\text{п}} = \frac{2d}{a^2 \beta} \frac{\ln \xi}{\xi - 1}, \quad (11)$$

где a — размер частицы,

$$\beta = \frac{1}{3} \left(1 + 2 \frac{d_1}{d_2} \right),$$

индексы 1 и 2 относятся к веществу частицы и окружающей матрицы соответственно. Это выражение справедливо для прямоугольных лазерных импульсов длительности $\tau_{\text{и}} \gg \tau_x$, где $\tau_x = \tau_0 c_1 \rho_1 a^2 / d_1$ — характерное время распространения тепла в частице.

В случае коротких лазерных импульсов ($\tau_{\text{и}} \ll \tau_x$) из решения (9) для $Q_{\text{п}}$ было получено другое выражение

$$Q_{\text{п}} (I) = \frac{c_1 \rho_1 T_0}{\xi \tau_{\text{и}}} \left\{ 1 - \exp \left[-\xi \left(\frac{T_{\text{k}}}{T_0} - 1 \right) \right] \right\}, \quad (12)$$

где T_{k} — некоторая критическая температура, при которой происходит разрушение материала.

Поскольку $T_{\text{k}} \gg T_0$, то при не очень малом параметре нелинейности ξ (измерения показывают, что для металлов $\xi \approx 0,1$ ⁴⁷) $Q_{\text{п}}$ практически не зависит от T_{k} .

Пороговая интенсивность лазерного излучения I_{d} , которая приводит к разрушению материала, может быть определена из соотношения

$$Q_{\text{п}} = \frac{\sigma I_{\text{d}}}{V}, \quad (13)$$

где σ — сечение поглощения частицей объема V .

Для конкретных оценок I_{d} необходимо знать механизм поглощения. Если мы имеем дело с включениями полупроводникового или металлического типа, обладающими линейным (однофотонным) поглощением на частоте лазерного излучения, то для σ можно воспользоваться известными соотношениями (для $a \ll \lambda$)⁴⁸

$$\sigma = \frac{12\pi\Omega a^3 \epsilon''}{c [(\epsilon' + 2)^2 + \epsilon''^2]} \quad (14)$$

— полупроводниковая частица,

$$\sigma = \frac{12\pi\Omega a^3 \epsilon''}{c} \left(\frac{1}{|\epsilon'|^2} + \frac{\Omega^2 a^2}{90c^2} \right) \quad (15)$$

— металлическая частица с плохой проводимостью,

$$\sigma = 6\pi a^2 (\epsilon')^{-1/2} \quad (16)$$

— металлическая частица с хорошей проводимостью; здесь Ω — частота поглощаемого излучения, $\epsilon = \epsilon' + i\epsilon''$ — диэлектрическая проницаемость среды.

Оценки по приведенным формулам для кристаллов рубина и стекла, содержащих металлические включения никеля и платины, дают величины I_{d} , близкие к наблюдаемым⁴⁷.

Как видно из приведенных результатов, в модели нелинейного теплового разрушения в средах с поглощающими включениями для определения порога разрушения не требуется знание конкретных величин критических темпера-

тур и напряжений в окружающей матрице и порог разрушения определяется из условия быстрого нарастания температуры включения (теплового взрыва).

Однако для развития каких-либо необратимых изменений в окружающей матрице, которые можно рассматривать как макроразрушение (плавление, трещинообразование и т. п.), необходимо, конечно, выделение определенной энергии. Для того чтобы это условие было выполнено для включений даже очень малого размера ($a \sim 10^{-6}$ см), необходим дополнительный механизм, обеспечивающий увеличение области поглощения за пределы включения. В работе ⁴⁹ показано, что таким эффективным механизмом может быть фотоионизация окружающей матрицы тепловым излучением нагретого лазерным излучением включения. Действительно, простые оценочные расчеты, основанные на законах излучения малой частицы как черного тела ⁴⁸, показывают, что температура частицы, нагретой излучением с частотой Ω и интенсивностью I_d , определяется выражением

$$T = k^{-1} \left(\frac{\hbar^4 \pi^2 c^2 \Omega I_d}{25} \right)^{1/5} \quad (17)$$

и при $\Omega = 2,73 \cdot 10^{15}$ с⁻¹ (частота рубинового лазера), $I_d = 10^{10}$ Вт/см² равна $T \approx 7 \cdot 10^4$ К.

При такой температуре максимум в спектральном распределении теплового излучения частицы лежит при $\Omega_m = (3,92/\hbar) kT = 3,9 \cdot 10^{16}$ с⁻¹ ($\lambda_m \approx \approx 500$ Å), а мощность излучения на этой частоте $P_m = 4\pi c \sigma(\Omega_m) e_0(\Omega_m) \approx \approx 3 \cdot 10^{-2}$ Вт (здесь $\sigma(\Omega_m)$ — сечение, $e_0(\Omega_m)$ — спектральная плотность излучения). Это УФ излучение поглощается в прилегающем слое диэлектрика (размером $l \sim 2 \cdot 10^{-5}$ см), производя эффективную генерацию свободных носителей со скоростью $dn/dt \approx 10^{30}$ с⁻¹ см⁻³, которые в свою очередь становятся источником поглощения. Нагрев этого слоя плазмы, качественно аналогичный нагреву исходного поглощающего включения, приведет к фотоионизации следующих слоев диэлектрика. Распространение такой фотоионизационной волны поглощения, которое, как показывают оценки, происходит достаточно быстро (характерное время теплового взрыва ионизированного слоя при указанных выше условиях составляет $\sim 5 \cdot 10^{-11}$ с ⁴⁹) и должно привести к макроразрушению в среде.

В литературе рассматривались и другие механизмы возникновения дополнительного поглощения в окружающей поглощающей включения среде: термическая ионизация ^{50,51}, термохимические реакции с образованием поглощающих продуктов (см. ⁵² и ссылки там), механохимические реакции с образованием возбужденных частиц ⁵³.

В механизме термической ионизации, в котором источником поглощения являются равновесные свободные носители в зоне проводимости твердого тела, нагретого поглощающим включением, скорость распространения волны поглощения и условия возникновения тепловой неустойчивости (условие порога разрушения) определяются механизмом теплопроводности. В работах ⁵⁴ показано, что при лазерном пробое доминирующую роль играет электронная теплопроводность.

Механизм термической ионизации в рассмотренной «полупроводниковой модели» ^{50,51}, очевидно, может быть эффективным лишь в лазерном разрушении узкозонных материалов, так как для широкозонных материалов степень термической ионизации будет незначительной даже при высоких температурах (ближких к температуре плавления).

Термохимические процессы при взаимодействии мощного лазерного излучения с твердыми телами могут быть довольно разнообразными: реакция разложения сложных соединений (полупроводников, многокомпонентных неорганических стекол, полимеров), образование окислов атомарных полупроводников (Ge, Si) и т. п. Эффективность этих процессов в лазерном разрушении прозрачных сред с поглощающими включениями определяется многими факторами ⁵², прежде всего коэффициентом поглощения на частоте

лазерного излучения возможных в данной системе продуктов реакций и его температурной зависимостью, скоростью соответствующих химических реакций, коэффициентами диффузии продуктов разложения и др.

Роль термохимических процессов особенно много обсуждалась в связи с выяснением механизмов л. р. полимеров. По-видимому, можно считать установленным, что термохимический механизм, связанный с пиролизом и образованием сильно поглощающих сажевых частиц, реализуется в л. р. полиметилметакрилата (ПММА) при воздействии непрерывного лазерного излучения^{55, 56}. Что касается разрушения под действием коротких (наносекундных и пикосекундных) импульсов излучения, указанный термохимический механизм с образованием сажевых частиц, по-видимому, не реализуется⁵³. Это связано с тем, что реакция пиролиза требует достаточно большого времени (соответствующая константа скорости $v = 10^{-1} - 10^{-2}$ с⁻¹, а энергия активации $E \approx 3 \cdot 10^3$ К⁵⁶).

Вместо этого для объяснения наблюдаемых закономерностей лазерного разрушения полимеров, включая эффект накопления, был предложен⁵³ механохимический механизм, суть которого заключается в следующем. При лазерном нагреве поглощающих дефектов возникают термоупругие напряжения в матрице, которые приводят к разрывам химических связей и образованию «горячих» (колебательно-возбужденных) радикалов. Горячие радикалы поглощают лазерное излучение при переходах между возбужденными колебательными подуровнями основного и высших электронных состояний. Константа скорости механохимических реакций образования горячих радикалов существенно зависит от импульсных (σ) и остаточных (σ_s) термоупругих напряжений⁵³:

$$k_{\text{mx}} = k_0 \exp \left[- \frac{E}{A\tau_0 (1 + \delta\sigma_s) \sigma} \right], \quad (18)$$

где E — энергия активации, A и δ — параметры, зависящие от теплофизических характеристик и структуры полимера, τ_0 — время колебательной релаксации выделенных химических связей в макромолекулах (так называемых активных осцилляторов), при разрыве которых образуются горячие радикалы. Термоупругие напряжения возрастают в процессе лазерного нагрева поглощающих дефектов, что в силу зависимости k_{mx} (σ) приводит к увеличению концентрации горячих радикалов и, следовательно, к возрастанию коэффициента поглощения. По существу, это означает возникновение механохимической волны поглощения, в результате которой в матрице происходит потеря тепловой устойчивости и образуется разрушение. Если интенсивность падающего лазерного излучения недостаточна, чтобы такая неустойчивость развилась в течение одного импульса, то она может возникнуть в серии последовательных импульсов благодаря накоплению остаточных напряжений.

Отметим, что, в отличие от термохимического механизма, связанного с накоплением поглощающих продуктов (типа сажи), в описанном механохимическом процессе частицы — горячие радикалы — возникают лишь в момент прохождения лазерного импульса и не накапливаются от импульса к импульсу.

В рамках механохимического механизма находят объяснение основные наблюдаемые закономерности лазерного разрушения полимеров: зависимость порогов разрушения в режимах однократного (I_1) и многократного (I_N) облучения от вязкоупругих свойств матрицы и концентрации вводимых в нее низкомолекулярных добавок. Вязкоупругие свойства, характеризуемые пределом прочности полимера к механическим напряжениям, непосредственно влияют на скорость образования горячих радикалов вследствие механохимических реакций (в соответствии с (18)). Что касается низкомолекулярных добавок, то их роль двоякая: с одной стороны, они влияют на вязкоупругие свойства (эффект пластификации), а с другой — на время колебательной релаксации τ_0 активных осцилляторов (АО) вследствие взаимодействия их

с молекулами добавки, которое в свою очередь влияет на скорость образования горячих радикалов (см. (18)). Последний эффект особенно сильный, если имеют место резонансные взаимодействия (резонансная кроссрелаксация) между колебательными состояниями АО и молекул добавки.

На рис. 3 и 4 приведены экспериментальные данные для порогов лазерного разрушения полиметилметакрилата, иллюстрирующие указанные закономерности: влияние вязкоупругих свойств и низкомолекулярных добавок⁵³. На рис. 3 видна четкая корреляция между температурными зависимостями порога N -импульсного разрушения (I_N) и параметра вязкоупругих свойств и низкомолекулярных добавок⁵³. На рис. 4 — селективность влияния низкомолекулярных добавок на величину I_N .

Основываясь на кратко описанных здесь представлениях о механохимическом механизме лазерного разрушения, удалось синтезировать полимеры, обладающие высокой стойкостью к лазерному излучению, сравнимой с тако-

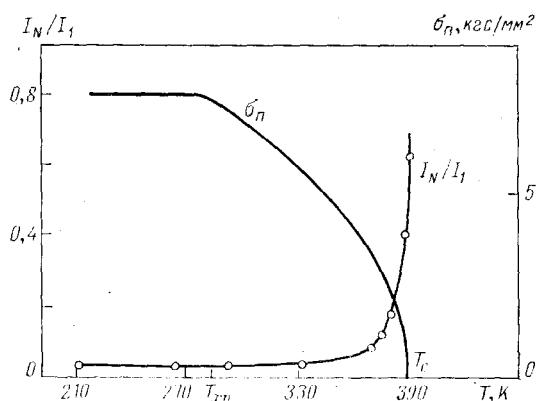


Рис. 3. Зависимость порога N -импульсного разрушения I_N ($N = 200$) и предела прочности σ_n для полиметилметакрилата (ПММА) от температуры⁵³.

I_1 — порог одноимпульсного разрушения, T_{xp} и T_c — температуры хрупкости и стеклования

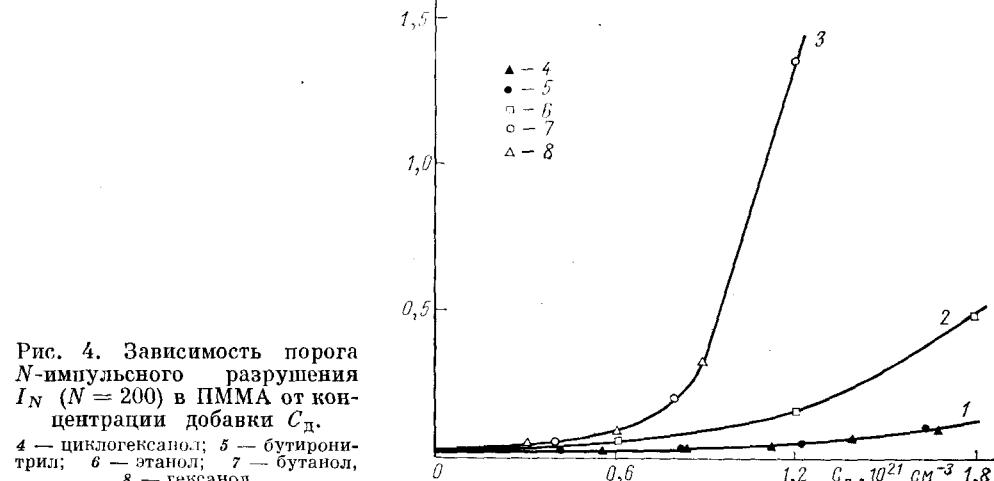


Рис. 4. Зависимость порога N -импульсного разрушения I_N ($N = 200$) в ПММА от концентрации добавки C_d .
4 — циклогексанол; 5 — бутиронитрил; 6 — этанол; 7 — бутанол; 8 — гексанол

вой для других оптических материалов (неорганические стекла, кристаллы). Это позволило создать прочные элементы полимерной оптики для лазерных применений (пассивные модуляторы добротности, активные элементы для лазеров на красителях и др.).⁵⁷⁻⁵⁹

3.2. Статистические закономерности лазерного разрушения

Зависимость порога разрушения от характеристик дефектов (коэффициента поглощения и его температурной зависимости, размера дефектов) обуславливает статистический характер л. р., связанный с пространственным

распределением дефектов в объеме взаимодействия и вероятностью попадания того или иного дефекта в этот объем. Даже из качественного анализа этих эффектов следует, что порог л. р. I_d должен зависеть от размеров области взаимодействия r с заданным уровнем интенсивности излучения I , а вероятность разрушения P при фиксированных размерах лазерного пучка должна зависеть от интенсивности.

Выяснению количественных соотношений для этих зависимостей посвящено довольно большое число работ (см. ⁶⁰⁻⁶⁴ и ссылки там). Целью этих исследований являлось выяснение общих закономерностей для $I_d(r)$ и $P(I)$, что представляет интерес как для выяснения механизма разрушения, так и определения характеристик дефектов (концентрации, распределения по величине I_d), которые могут быть извлечены из сравнения указанных теоретических зависимостей с наблюдаемыми.

Приведем основные результаты этих исследований.

В простейшей статистической модели л. р., рассмотренной в ⁶⁰, предполагается, что в исследуемом образце имеются поглощающие дефекты одного сорта, обладающие одинаковым порогом разрушения I_1 . В этой постановке вероятность разрушения P есть вероятность того, что дефект попадает в объем V_{eff} , в котором интенсивность превышает I_1 , и записывается в виде

$$P = 1 - \exp(-\rho V_{\text{eff}}), \quad (19)$$

где ρ — средняя концентрация дефектов.

Вычисление V_{eff} в области каустики сфокусированного гауссова пучка, пространственное распределение интенсивности которого имеет вид

$$I(r, z) = I_L \left(1 + \frac{z}{z_R}\right)^{-1/2} \exp\left\{-\frac{2r^2}{\omega_0^2 [1 + (z/z_R)]}\right\}, \quad (20)$$

где ω_0 — минимальный размер пучка в каустике, $z_R = \pi \omega_0^2 / \lambda$ — рэлеевская длина, приводит к следующему выражению для P :

$$P = 1 - \exp\left\{-\rho \frac{(\pi \omega_0^2)^2}{\lambda} \left[\frac{2}{9} (\gamma - 1)^{1/2} (\gamma + 5) - \frac{4}{3} \operatorname{arctg}(\gamma - 1)^{1/2}\right]\right\}, \quad (21)$$

где $\gamma = I_L/I_1 \gg 1$.

Если определить порог разрушения $I_d = I_L$ при $P = 0,5$, то, исследуя размерную зависимость $I_d(\omega_0)$, с помощью этой формулы можно найти два характерных параметра поглощающих дефектов I_1 и ρ . Если в образце имеются дефекты разного сорта, отличающиеся порогом разрушения, то статистическое описание лазерного разрушения формулируется аналогичным образом с тем лишь отличием, что вместо средней концентрации дефектов одного сорта вводится функция распределения дефектов по порогам ^{61,63,64}. Вероятность разрушения, как функция интенсивности излучения, в этом случае может быть записана в виде

$$P(I) = 1 - \exp\left[-\int_0^I V(I, x) c(x) dx\right], \quad (22)$$

где $c(x)$ — концентрация включений в среде, инициирующих пробой при интенсивности излучения x , $V(I, x)$ — объем области каустики, в которой интенсивность превосходит x , I — интенсивность в центре каустики. Поскольку $c(x)$ неизвестна, то представляют интерес определить ее по экспериментальным данным о вероятности пробоя $P(I)$. Процедура определения $c(x)$ заключается в решении интегрального уравнения (22), которое приводит к виду ⁶⁴

$$c(x) = \frac{2}{\pi} \frac{d}{dx} \left[x^{5/2} \frac{d}{dx} \int_0^x \frac{\Phi'(x)}{I(x-I)^{1/2}} dI \right], \quad (23)$$

где

$$\Phi(I) = \frac{1}{2\pi\rho_0 z_0} \ln [1 - P(I, c(x))]^{-1},$$

ρ_0 и z_0 — параметры каустики сфокусированного гауссова пучка.

Анализу этой так называемой задачи обращения в статистике л. р. посвящен ряд работ (см. ^{63, 64} и ссылки в них). Показано, что решение (23) неустойчиво по отношению к малым изменениям $P(I)$, и, следовательно, задача обращения относится к классу некорректно поставленных задач ^{63, 64}.

Для получения устойчивого решения, а следовательно, физически корректных распределений $c(x)$ по формуле обращения (23), был предложен ^{63, 64} ряд методов. В частности, в ⁶⁴ показано, что для этого необходимо, чтобы функция $P(I)$, определяемая в экспериментах, удовлетворяла условиям гладкости.

Исследования по определению $c(x)$ из статистических закономерностей л. р. представляют большой интерес как для выяснения механизмов л. р. в оптических материалах разного класса, так и для совершенствования технологии производства оптических материалов.

3.3. Эффект накопления

Одним из важнейших вопросов физики лазерного разрушения является вопрос о природе эффекта накопления. К настоящему времени эффект накопления обнаружен в различных материалах (силикатных стеклах, щелочно-галоидных кристаллах, сегнетоэлектрических кристаллах и полимерах (см. ¹⁴ и ссылки там)), причем в последних он выражен наиболее ярко: наблюдается при интенсивностях ниже порога разрушения с одной вспышки до 100 раз.

Все имеющиеся к настоящему времени экспериментальные данные по л.р. указывают на то, что обсуждаемый эффект связан с необратимыми изменениями в матрице вокруг инициирующих поглощающих дефектов, которые накапливаются от вспышки к вспышке. Эти необратимые изменения могут происходить вследствие фотохимических, термохимических, механохимических реакций и различного рода фазовых переходов.

Все эти процессы привлекались при анализе экспериментальных данных по л.р. в различных материалах ¹⁴. Однако надежных данных о реализуемости того или иного механизма еще очень мало и требуются дальнейшие целенаправленные исследования, чтобы выяснить их роль в конкретных материалах и условиях эксперимента (длина волны и длительность лазерного излучения). Можно только отметить, что наиболее изученным к настоящему времени является вопрос о природе эффекта накопления в полимерах ^{14, 53}, где наиболее вероятной его причиной (при облучении короткими импульсами) является образование горячих радикалов вследствие механохимических реакций. Последние протекают вследствие накапливающихся от импульса к импульсу термоупругих напряжений в окрестности поглощающих дефектов.

Эксперименты показывают, что л.р. в режиме многократного облучения, когда проявляется четко выраженный эффект накопления, имеет, так же как и в режиме однократного разрушения, статистический характер.

В связи с этим было предложено ¹⁴ статистическое описание эффекта накопления, аналогичное тому, которое используется при анализе статистических закономерностей однократного разрушения. При таком описании вводятся следующие основные понятия, которые адекватно характеризуют процесс накопления: усредненное по большому числу облученных точек критическое число импульсов $\bar{N}_k(I)$, которое при фиксированной интенсивности I приводит к макроразрушению в образце; пороговая интенсивность разрушения с N -й вспышки, I_N , при которой разрушение возникает за фиксированное число импульсов N с заданной вероятностью $P_N(I)$; функция распределения

по порогам разрушения с N -й вспышки, $f(I_N)$. Величины $P_N(I)$ и $f(I_N)$ связаны соотношением, аналогичным (22):

$$P_N(I) = 1 - \exp \left[- \int_A^I dA \int_0^I f(I_N) dI_N \right], \quad (24)$$

где A — облучаемые объем или поверхность образца.

Это соотношение может быть использовано для нахождения размерной зависимости I_N либо для определения функции распределения $f(I_N)$ аналогично тому, как это было описано выше для однократного разрушения.

В силу близкой природы процессов, приводящих к разрушению при однократном и многократном облучении, можно ожидать определенной связи между характеристиками л.р. в этих двух случаях. Для нахождения этой связи необходимо знание конкретного механизма эффекта накопления, в результате которого происходит эволюция инициирующих поглощающих дефектов в процессе последовательных лазерных облучений (а значит, и эволюция функции $f(I_1) \rightarrow f(I_N)$). Последовательная статистическая теория эффекта накопления с учетом (24) и эволюции $f(I_1)$ пока не развита. Вместе с тем отметим, что экспериментальные данные по л.р. в полимерах¹⁴ определенно указывают на эволюцию функции распределения $f(I_1)$ в процессе многоимпульсного разрушения (наблюдалась трансформация размерной и вероятностной зависимостей порогов разрушения).

В заключение этого раздела отметим, что все обсуждавшиеся выше механизмы и закономерности объемного лазерного разрушения, связанные с поглощающими дефектами, в общем относятся и к разрушению поверхностей и прозрачных тонкопленочных покрытий оптических элементов. Некоторое количественное и функциональное различие для порогов объемного и поверхностного разрушения может быть связано с характеристиками дефектов и пространственным распределением интенсивности лазерного пучка в этих двух случаях. Так, для поверхностей и тонких пленок, помимо точечных дефектов, имеющихся в приповерхностных слоях, существенную роль в лазерном разрушении могут играть адсорбированные пленки поглощающих окислов или других веществ (например, воды). Более высокая степень дефектности особенно характерна для многослойных тонкопленочных покрытий (диэлектрических зеркал и просветляющих покрытий), что, естественно, приводит к понижению порогов л.р. по сравнению с объемными материалами (подробную информацию о л.р. тонких пленок см. в⁵). Пространственное распределение интенсивности лазерного пучка на поверхности твердого элемента может существенно отличаться от объемного в силу эффектов отражения и интерференции волн на границе оптических сред с различным показателем преломления. Это, в частности, обусловливает различие порогов л.р. передней и задней поверхностей оптических элементов и многослойных полуволновых и четвертьволновых покрытий (см., например,^{65, 66}).

4. СОБСТВЕННЫЕ МЕХАНИЗМЫ ЛАЗЕРНОГО РАЗРУШЕНИЯ, СВЯЗАННЫЕ С УДАРНОЙ И МНОГОФОТОННОЙ ИОНИЗАЦИЕЙ

Электронная ударная ионизация широко обсуждалась в литературе (см.⁶⁷⁻⁷⁷ и ссылки там) как один из наиболее вероятных механизмов лазерного разрушения предельно чистых прозрачных твердых тел. К настоящему времени детально развита последовательная теория этого механизма^{70-73, 75, 76 *}, описывающая л.р. в широкой области частот (от постоянных полей до УФ диапазона) и длительностей импульсов излучения (10^{-7} — 10^{-11} с). Основываясь на предсказаниях этой теории проведены целенаправленные экспериментальные исследования⁷⁻¹⁰ л.р. в различных диэлектрических кристаллах

* Краткий обзор этих работ приведен в⁷⁷.

и показано, что электронный лавинный механизм разрушения реализуется в предельно чистых образцах.

Что касается многофотонной ионизации, то ее роль как механизма л.р. менее изучена. Можно лишь отметить работы^{76,78-81}, в которых анализируется этот вопрос и показано, что в определенных условиях (особенно на высоких частотах лазерного излучения) многофотонная ионизация может быть доминирующим механизмом разрушения.

Приведем основные результаты теоретических и экспериментальных исследований, полученные в цитированных выше работах относительно роли ударной и многофотонной ионизации в лазерном разрушении.

4.1. Ударная ионизация

В^{70,73} показано, что наиболее строгое рассмотрение задачи о лавинном пробое прозрачных диэлектриков должно основываться на решении квантового кинетического уравнения для электронов зоны проводимости, которое описывает процесс размножения электронов вследствие ударной ионизации

$$\frac{\partial f(P, t)}{\partial t} = \frac{2\pi}{\hbar} \sum_q^r B(q) \sum_{n=-\infty}^{\infty} J_n^2 \left(\frac{eE\tau(p)}{\hbar m \Omega [1 + \Omega^2 \tau^2(p)]^{1/2}} \right) \times \\ \times \{ [f(p+q)(N_q + 1) - f(p)N_q] \delta(\varepsilon(p+q) - \varepsilon(p) - \hbar\omega_q - n\hbar\Omega) + \\ + [f(p+q)N_q - f(p)(N_q + 1)] \delta(\varepsilon(p+q) - \varepsilon(p) + \hbar\omega_q - n\hbar\Omega) \}, \quad (25)$$

где e и m — заряд и масса электрона, p (ε) — импульс электрона с энергией e , $B(q)$ — матричный элемент электрон-фононного взаимодействия, N_q — число фононов с волновым вектором q , $\hbar\omega_q$ — энергия фонона, $\tau(\varepsilon)$ — время релаксации продольной компоненты импульса электрона с энергией ε в отсутствие поля. Критерий пробоя находится из совместного решения уравнений, описывающих кинетику концентрации электронов n и температуры решетки T :

$$\frac{dn}{dt} = \gamma n, \quad \frac{dT}{dt} = \beta n T^{3/2}; \quad (26)$$

β — коэффициент, зависящий от параметров электрон-фононной связи, потенциала ионизации и других характеристик решетки, γ — постоянная развития лавины, определяемая из решения уравнения (25):

$$f(x, t) = e^{\gamma t} f(x). \quad (27)$$

Процесс развития лавины был детально исследован в^{70,71,73,75,76} с учетом рассеяния электронов на акустических и оптических фонах и для различных температур решетки T_0 , частот электромагнитного поля Ω по сравнению с эффективной частотой электрон-фононных столкновений ν_{eff} ($\Omega/\nu_{\text{eff}} \ll 1$, $\Omega/\nu_{\text{eff}} \geq 1$) и потенциалом ионизации I ($\hbar\Omega/I \ll 1$, $\hbar\Omega/I \leq 1$). В результате находятся постоянной развития лавины γ как функции поля E и определенного из (26) критерия пробоя

$$\gamma \tau_{\text{ii}} = \ln \left(1 + \frac{2\gamma}{\beta n_0} \right), \quad (28)$$

где τ_{ii} — длительность импульса излучения, n_0 — начальная концентрация электронов, были получены формулы для критического поля пробоя E_k , позволяющие рассчитывать как его величину, так и зависимость от параметров излучения (Ω и τ_{ii}) и решетки (в частности, температуры кристалла T_0). Последние функциональные зависимости особенно цепны при сравнении экспериментальных данных с теорией, поскольку они позволяют делать обоснованные заключения о механизме лазерного разрушения в конкретных условиях эксперимента.

Приведем некоторые из этих формул и функциональных зависимостей.

При рассеянии на акустических фононах (область высоких температур $kT > (1/2) v_s (2mI)^{1/2}$, v_s — скорость звука) в случае, когда выполняется так называемое диффузионное приближение квантового кинетического уравнения, т.е. при $\hbar\Omega/I \leq 0,2$, для критического поля пробоя имеем^{71,73}

$$E_c^2 = \frac{Im^2 v_s^2}{2kTe^2} \left(\Omega^2 + \frac{I}{ml_{ac}^2} \right), \quad (29)$$

где l_{ac} — длина свободного пробега электрона.

При рассеянии на нулевых колебаниях решетки (область низких температур $kT < (1/2) v_s (2mI)^{1/2}$) для того же диапазона частот критическое поле равно

$$E_c^2 = \frac{mv_s (2mI)^{1/2}}{2e^2} \left(\Omega^2 + \frac{2I}{5ml_{ac}^2} \right). \quad (30)$$

Из (29) и (30) следуют весьма характерные частотная и температурная зависимости порогов лазерного пробоя, обусловленного лавинной ионизацией. Так как длина свободного пробега l_{ac} обратно пропорциональна температуре, то температурная зависимость E_c оказывается существенно разной для частот $\Omega > v_{eff}$ и $\Omega < v_{eff}$: в первом случае $E_c^2 \propto T^{-1}$, тогда как при $\Omega < v_{eff}$ $E_c^2 \propto T$. Для $\hbar\Omega/I \geq 0,2$, когда диффузионное приближение не выполняется и необходимо решать дифференциально-разностное кинетическое уравнение^{8,76}, частотная зависимость E_c изменяется по сравнению с (29) и (30), и ее характер существенно определяется длительностью импульса излучения. На рис. 5 построены рассчитанные на основе дифференциально-разностного кинетического уравнения зависимости критического поля от частоты излучения для двух различных значений постоянной развития лавины γ_0 , соответствующих (в силу критерия пробоя $\gamma\tau_i = \gamma_0 Q$ (1) $\tau_i = L \approx \text{const}$, Q (1) — характерная скорость электрон-фононных процессов $\sim 10^{12} - 10^{13} \text{ с}^{-1}$) импульсам наносекундного и пикосекундного диапазона

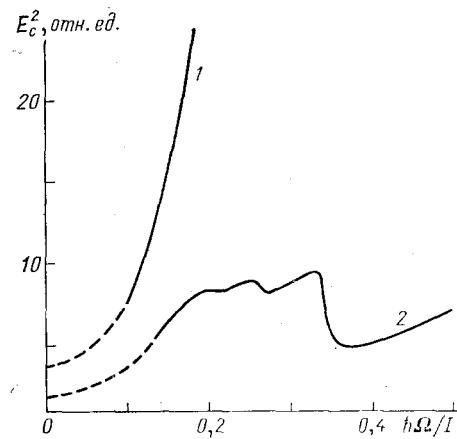


Рис. 5. Зависимость квадрата критического поля E_c^2 от величины кванта лазерного излучения для различных значений постоянной развития лавины⁷⁶.
1 — $\gamma_0 = 3 \cdot 10^{-2}$ (пикосекундные импульсы, $\tau_i = 30$ пс); 2 — $\gamma_0 = 10^{-6}$ (наносекундные импульсы, $\tau_i = 100$ нс)

длительностей τ_i . Видно, что для наносекундных импульсов при $\hbar\Omega/I \geq 0,3$ частотная зависимость порога разрушения заметно ослабляется и даже может падать при увеличении частоты, обнаруживая осцилляционную зависимость. Анализ^{8,76} решения дифференциально-разностного кинетического уравнения показал, что температурная зависимость критического поля в этом случае остается такой же, как и в диффузионном приближении: при $\Omega > v_{eff}$ $E_c^2 \propto T^{-1}$.

Предсказываемые теорией характерные частотная и температурная зависимости критического поля для лавинного механизма пробоя были использованы для экспериментальной проверки реализуемости этого механизма лазерного разрушения в щелочно-галоидных кристаллах^{8,9}. Эксперименты проводились на большом числе образцов кристаллов NaCl, KCl, KBr, LiF, NaF и др. в широком диапазоне частот лазерного излучения (использовались лазеры на CO₂ ($\lambda = 10,6$ мкм), YAG.Nd³⁺ ($\lambda = 1,06$ мкм) и 2-я гармоника $\lambda =$

= 0,53 мкм), рубине ($\lambda = 0,69$ мкм), $\text{CaF}_2\text{Er}^{3+}$ ($\lambda = 2,76$ мкм)) и температур ($T = 100-900$ К).

Были обнаружены значительные вариации порогов разрушения и их температурных зависимостей от образца к образцу для каждого типа кристаллов. Это свидетельствовало о влиянии примесей и дефектов на процесс разрушения, однако в особо стойких к излучению образцах NaCl , KCl и KBr наблюдалась воспроизводимые частотные и температурные зависимости I_d , которые на некоторых частотах излучения соответствовали теоретически предсказанным для лавинного механизма пробоя. На рис. 6 для примера приведены указанные зависимости порога пробоя одного из таких образцов NaCl . Анализ этих экспериментальных данных показал, что частотная зависимость в диапазоне длин волн 10,6—0,69 мкм достаточно хорошо согласуется с обсуждавшейся выше теоретической зависимостью для механизма электронной лавины при значении эффективной частоты электрон-фононных столкновений $v_{\text{eff}} = 6 \cdot 10^{14}$ с⁻¹. Температурные зависимости порога разрушения, наблюдаемые на $\lambda = 1,06$ и 0,69 мкм, также хорошо объясняются в рамках описанной теории лавинного механизма. Однако эта теория не объясняет наблюдаемые зависимости $I_d(T)$ для $\lambda = 10,6$; 2,76 и 0,53 мкм.

Такое несоответствие привело к предположению о том, что для длинноволнового излучения (10,6 и 2,76 мкм) процесс лавинной ионизации сдерживается недостатком затравочных электронов⁸² (вышеизложенная теория лавинного механизма л.р. строилась в предположении достаточной концентрации начальных электронов), что должно отразиться как на величине, так и на частотно-температурных зависимостях порога пробоя. Что касается наблюдаемого отсутствия температурной зависимости порога пробоя на $\lambda = 0,53$ мкм, то оно может быть связано с другим механизмом разрушения — многофотонной ионизацией.

В связи с отмеченными аномалиями в температурных зависимостях порога пробоя был проведен теоретический анализ особенностей лавинной ионизации диэлектриков лазерным излучением в условиях недостатка затравочных электронов^{82,83} и относительной роли механизмов ударной и многофотонной ионизации в лазерном разрушении⁷⁶. Остановимся кратко на результатах этого анализа.

4.1.1. Сдерживание лавины недостатком затравочных электронов

Согласно общепринятым представлениям затравочные электроны, необходимые для развития электронной лавины, обусловленной ударной ионизацией, возникают вследствие фотоионизации примесей, дефектов или многофотонной ионизации основных атомов решетки кристалла. Если в результате этих процессов концентрация электронов n_0 в объеме взаимодействия уже на начальных участках лазерного импульса окажется достаточно большой, так что $n_0 V > 1$, то критическое поле пробоя определяется скоростью развития электронной лавины, которая очень слабо зависит от n_0 ^{70,73}. В противоположном случае, т. е. при $n_0 V < 1$, критическое поле будет определяться не столько скоростью развития лавины, сколько скоростью рождения затравочных электронов. Иными словами, «узким горлом» в процессе лазерного разрушения, связанным с ударной ионизацией, в этом случае является рождение затравочных электронов. При этом процесс разрушения приобретает существенно статистический характер: порог пробоя определяется вероятностью появления затравочного электрона.

Основные статистические закономерности пробоя в этом случае можно установить, рассматривая одновременно процесс образования затравочных электронов и формирования лавины.

Предполагается, что первый процесс связан с многофотонной ионизацией основных атомов решетки, примесных атомов или дефектов. Тогда, полагая,

что оба процесса являются пуассоновскими и каждый из них описывается вероятностью вида

$$p_k = \frac{t/\tau}{k!} \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right), \quad (31)$$

можно получить следующее выражение для вероятности появления в области взаимодействия с излучением n электронов в результате совместного действия многофотонной и ударной ионизации ⁸²:

$$S_n = \frac{\Gamma(n + (\tau/\tau_1))}{\Gamma(\tau/\tau_1) \Gamma(n+1)} \left[1 - \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right)^n \exp\left(-\frac{t}{\tau_1}\right) \right], \quad (32)$$

где τ и τ_1 — характерные времена ударной и многофотонной ионизации соответственно. Вероятность пробоя за время t вследствие нарастания лавины электронов равна

$$P = \sum_{k=n}^{\infty} S_n(t) = \frac{\Gamma(\alpha + n \exp(-t/\tau))}{\Gamma(\alpha)}, \quad (33)$$

где $\Gamma(\alpha, x)$ — неполная Г-функция, $\alpha = \tau/\tau_1$.

При известных соотношениях, определяющих зависимость τ и τ_1 , от интенсивности излучения I , соотношение (33) позволяет рассчитать порог пробоя I_d при заданном значении вероятности P . Зависимость $\tau(I) \approx \approx \gamma^{-1}(I)$ (γ — постоянная развития лавины) определяется уравнением, следующим из теории электронной лавины в случае, когда она не сдерживается недостатком затравочных электронов ⁷⁶:

$$2\Delta \exp\left(-\frac{\beta}{2}\right) = \Delta \operatorname{ch} \frac{\Delta}{2} - \beta \operatorname{sh} \frac{\Delta}{2}, \quad (34)$$

где $\Delta = (\beta^2 + 4\gamma_0\beta)$, $\gamma_0 = \gamma/Q$, Q — характерная скорость электрон-фононных процессов, $\beta = 1/QqS [1 + (v^2\Omega^2/\Omega^2)]$, $\delta_0 = kT_0/\epsilon_i$, $q = e^2E^2/6m^2v_s^2\Omega^2 \propto \infty I$, $\theta = T/T_0$; ϵ_i — потенциал ионизации, v_s — скорость звука, m и e — масса и заряд электрона, T_0 — начальная температура кристалла.

Зависимость $\tau_1(I)$ определяется известным соотношением для многофотонной ионизации

$$\frac{1}{\tau_1} = Aq^k, \quad (35)$$

где A — константа, k — число квантов излучения (степень многофотонности). Анализ соотношения (33) показывает ⁸², что область $\alpha < I$ соответствует сильному сдерживанию лавины отсутствием затравочных электронов. В этом случае вероятность пробоя определяется соотношением

$$P = 1 - \exp\left(-\frac{t}{\tau_1}\right), \quad (36)$$

т. е., как это видно из (32), вероятностью появления за время действия импульса излучения хотя бы одного затравочного электрона вследствие многофотонной ионизации.

В области $\alpha > 1$ порог разрушения соответствует обычному лавинному механизму пробоя и определяется, как это было описано выше.

Важным следствием приведенного статистического анализа лавинного пробоя является то, что в случае сдержанной лавины не только возрастает величина порога пробоя I_d по сравнению с обычным порогом несдержанной лавины, но и изменяются характерные зависимости I_d от температуры образца и объема облучаемой области. Действительно, если рождение затравочных электронов связано с многофотонной ионизацией, то, как следует из (35) и (36), в случае сдержанной лавины I_d не зависит от температуры при

любом соотношении частот электромагнитного излучения Ω и электрон-фононных столкновений v_{eff} .

Это существенно отличается от температурной зависимости в случае обычной электронной лавины, как было обсуждено выше *).

Зависимость I_d от объема области взаимодействия в случае обычного лавинного процесса пробоя определяется в основном пространственной диффузией электронов. Характерный размер области взаимодействия, для которого диффузия электронов становится существенной, равен ⁷⁰

$$d_k = 4 \left(\frac{DG\tau_n}{E_c^2} \right)^{1/2}, \quad (37)$$

где D — коэффициент пространственной диффузии, τ_n — длительность импульса излучения,

$$G = \begin{cases} \frac{6I}{kT} \left(\frac{mv_s\Omega}{e} \right)^2, & kT \gg v_s p(\varepsilon), \\ \frac{15(2mI)^{1/2}}{2mv_s} \left(\frac{mv_s\Omega}{e} \right)^2, & kT \ll v_s p(\varepsilon), \end{cases}$$

I — потенциал ионизации, $p(\varepsilon)$ — квазимпульс электрона с энергией ε остальные величины определены выше. Если диаметр лазерного пучка в исследуемом образце $d > d_k$, то порог лавинного пробоя не зависит от d , тогда как в противоположном случае (при $d < d_k$) он должен возрастать при уменьшении d : $E_c^2 \sim d^{-2}$. Оценки для широкозонных диэлектриков типа кристаллов NaCl показывают, что для $\Omega \approx 10^{15} \text{ с}^{-1}$ и $\tau_n \approx 10^{-8} \text{ с}$ d_k составляет несколько микрон.

Если процесс лавинной ионизации сдерживается недостатком затравочных электронов, то характер размерной зависимости порога пробоя существенно меняется: он определяется вероятностью появления хотя бы одного затравочного электрона в области взаимодействия. В работе ⁸³ размерная зависимость для механизма сдержанной лавины была детально проанализирована на основе статистического подхода, аналогичного тому, который используется в статистической модели разрушения на поглощающих дефектах. В этом анализе предполагалось, что источником затравочных электронов являются ионизуемые излучением примеси или дефекты, равномерно распределенные в образце со средней плотностью ρ_i . Для вероятности пробоя было получено следующее выражение:

$$P = 1 - \exp \left[\sum_i \rho_i \int_V (e^{-t/\tau_i} - 1) dV \right], \quad (38)$$

где τ_i — время ионизации примеси i -го типа, V — объем области взаимодействия, в котором интенсивность $I(r, z)$ превосходит критическую I_A для лавинного пробоя. Это выражение было проанализировано для определения характера размерной зависимости в двух предельных случаях: 1) для легко ионизуемых примесей, когда $\tau_n/\tau_{iA} \gg 1$ ($\tau_{iA} = \tau_i(I_A)$) и 2) для трудно ионизуемых примесей или дефектов ($\tau_n/\tau_{im} \ll 1$, $\tau_{im} = \tau_i(I_m)$, I_m — максимальная интенсивность в пучке).

В первом случае, как это следует из (38), размерная зависимость порога пробоя определяется лишь геометрией пучка (пространственным распределением

*) В приведенном выше анализе обычного лавинного процесса не учитывалась рекомбинация электронов во время действия импульса излучения (т. е. предполагалось, что время рекомбинации τ_p много больше длительности импульса τ_n). В противном случае (при $\tau_p < \tau_n$) рекомбинация носителей приводит к существенному ослаблению зависимости I_d от T ⁷⁶.

нием интенсивности в пучке). Например, для сфокусированного гауссова пучка она легко вычисляется из соотношения

$$V \sum_i \rho_i = -\ln(1-P) \quad (39)$$

при заданных величинах P и I_A , поскольку V — известная функция:

$$V = \frac{4}{3} \pi k b^4 \left[\frac{1}{3} \left(\frac{I_m}{I_A} + 5 \right) \left(\frac{I_m}{I_A} - 1 \right)^{1/2} - 2 \operatorname{arctg} \left(\frac{I_m}{I_A} - 1 \right)^{1/2} \right], \quad (40)$$

где $k = 2\pi/\lambda$, b — радиус пучка.

Во втором случае характер размерной зависимости определяется не только геометрией пучка, но и зависимостью $\tau_i(I)$, которая определяется механизмом ионизации примесей. Если этим механизмом является многофотонная ионизация, то введя результирующую скорость ионизации $1/\tau = V_{\text{eff}} \sum_i \rho_i / \tau_{im}$, из (38) можно получить, что размерная зависимость будет определяться эффективным объемом

$$V_{\text{eff}} = \frac{4}{3} \pi k b^4 \int_0^{[(I_m/I_A)-1]^{1/2}} \frac{\xi^2}{(1+\xi^2)x-1} d\xi, \quad (41)$$

где x — степень многофотонности.

Из приведенных результатов следует, что изучение размерной зависимости порога пробоя может дать информацию о механизме разрушения и, в частности, об источниках затравочных электронов. Однако надо иметь в виду,

что в некоторых случаях (например, при однофотонной ионизации примесей или дефектов) характер размерной зависимости порога пробоя для механизма сдержанной лавинной ионизации может не отличаться от таковой для механизма разрушения, связанного с обычным тепловым нагревом лазерным излучением поглощающих дефектов (см. раздел 3.2).

Развитые представления о сдерживании лавинной ионизации недостатком затравочных электронов качественно объясняют наблюдаемые аномалии в температурных зависимостях порога лазерного разрушения щелочно-галоидных кристаллов на длинах волн 10,6 и 2,76 мкм (рис. 6). Действительно, отсутствие температурной зависимости порога пробоя I_d на $\lambda = 10,6$ мкм вместе с падающей в диапазоне $T = 300-600$ К зависимостью $I_d(T)$, выходящей на «плато» при $T > 600$ К, непротиворечивым образом объясняются⁸²

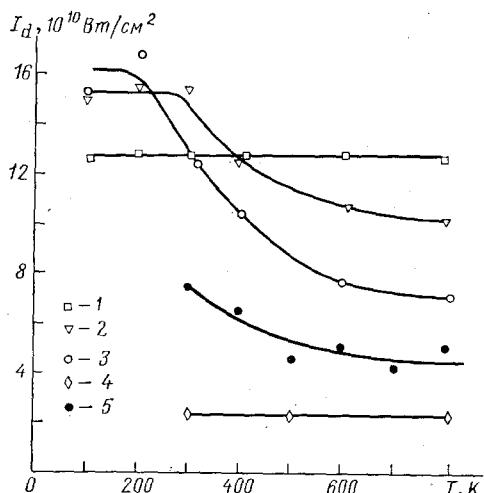


Рис. 6. Зависимость пороговой интенсивности лазерного разрушения I_d кристалла NaCl от температуры при различных длинах волн излучения λ (мкм) = 0,53 (1), 0,69 (2), 1,06 (3), 10,6 (4)⁸ и 2,76 (5)⁹

на основе лавинного механизма, если допустить, что для 10-мкм излучения лавинного механизма, если допустить, что для 10-мкм излучения лавина сдерживается во всем исследованном температурном интервале, а для $\lambda = 2,76$ мкм она начинает сдерживаться при $T > 600$ К. Последнее связано с температурной зависимостью параметра α в теории сдержанной лавины (см. выше).

Эффект сдерживания лавины был непосредственно подтвержден в эксперименте с двумя скрещенными пучками¹⁰: было обнаружено влияние УФ подсветки на порог пробоя NaCl излучением CO_2 -лазера ($\lambda = 10,6 \text{ мкм}$). В качестве источника УФ излучения, которое возбуждало затравочные электроны, в этом эксперименте использовался N_2 -лазер ($\lambda = 0,337 \text{ мкм}$), синхронизированный с импульсом CO_2 -лазера. Измеренная по фотопроводимости концентрация электронов, возбужденных излучением N_2 -лазера, составляла $N_0 \approx 5 \cdot 10^9 \text{ см}^{-3}$, что обеспечивало необходимое число $n_0 = N_0 V > 1$ затравочных электронов в объеме каустики короткофокусной линзы (диаметр фокального пятна $d = 23 \text{ мкм}$), фокусирующей излучение CO_2 -лазера.

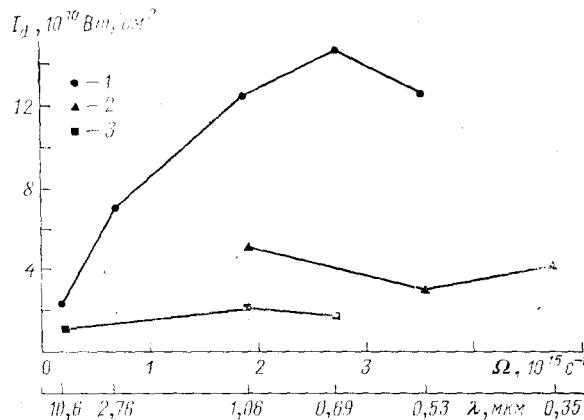


Рис. 7. Зависимости порога разрушения I_d кристалла NaCl от частоты излучения при $T_0 = 300 \text{ К}$, полученные различными исследователями: ^{8,9} (1), ^{88,89} (2), ^{88,69} (3)

УФ подсветка приводила к значительному (до 6 раз) снижению порога разрушения до уровня $I_d = 1,5 \cdot 10^{10} \text{ Bt}/\text{cm}^2$. Это явно свидетельствовало о сдерживании лавинного пробоя до подсветки, а величина I_d соответствовала обычному лавинному порогу пробоя.

Аналогичный двухпучковый эксперимент для NaCl был проведен⁸⁴ на длине волны разрушающего излучения $\lambda = 1,06 \text{ мкм}$ (YAG:Nd-лазер) и подсветке излучением с $\lambda_1 = 0,266 \text{ мкм}$ (4-я гармоника того же лазера). Было обнаружено, что УФ подсветка не влияет на порог разрушения на λ_1 . Это показывает, что для излучения с $\lambda < 1 \text{ мкм}$ лавинная ионизация не сдерживается недостатком затравочных электронов (они образуются в достаточной концентрации самим этим излучением без вспомогательной УФ подсветки). Этот вывод согласуется с приведенными выше данными (см. рис. 6) по температурной зависимости порога разрушения на $\lambda = 1,06 \text{ мкм}$, которые указывали на обычный лавинный механизм пробоя в этом случае.

Отметим, что механизм ударной ионизации неоднократно в литературе привлекался для объяснения экспериментальных данных как по объему, так и по поверхностному лазерному разрушению широкозонных диэлектриков в ИК и видимом диапазоне (см., например,^{69,85-89}). Однако заключения о реализуемости этого механизма часто основывались лишь на некоторых качественных закономерностях (корреляция с порогами пробоя в постоянных полях, независимость порога от частоты излучения в широком диапазоне, морфология разрушения и др.) и сравнением с простыми теоретическими моделями. Анализ экспериментальных результатов, полученных в упомянутых работах, по лазерному разрушению щелочно-галоидных кристаллов и сопоставление их с данными, полученными позднее⁷⁻⁹ для того же типа кристаллов (рис. 7), показал, что в⁸⁵⁻⁸⁹ авторы имели дело, по-видимому, с недостаточно чистыми образцами и разрушение в них было связано скорее с тепловым пробоем на поглощающих включениях, чем с лавинной ионизацией. На это указывают более низкие пороги разрушения и отсутствие их частотной зависимости для образцов, исследованных в⁸⁵⁻⁸⁹, тогда как на более

стойких образцах, изученных в $7-9$, частотная зависимость в диапазоне 10,6—0,53 мкм наблюдается в соответствии с предсказываемой теорией лавинной ионизации.

4.1.2. Разрушение широкозонных диэлектриков УФ лазерным излучением

Большой интерес представляет вопрос о возможности реализации механизма электронной лавины в л.р. излучением УФ диапазона. Теория лавинной ионизации для этого диапазона предсказывает, как было описано выше, существенные особенности в частотной зависимости порогов разрушения. Кроме того, при разрушении УФ излучением более значительную, чем для ИК и видимого излучения, роль могут играть процессы фотоионизации примесей и основных атомов решетки за счет многофотонных (в частности, двухфотонных) межзонных переходов. Например, измеренные на $\lambda = 0,266$ мкм коэффициенты двухфотонного поглощения для большинства щелочно-галоидных кристаллов (ЩГК) составляют $\beta \sim 1$ см/ГВт ⁹⁰. Эти процессы фотоионизации могут оказывать существенное влияние на лазерное разрушение как непосредственно — в результате поглощения излучения, так и косвенно — за счет эффекта самодефокусировки на генерируемых свободных носителях.

Кроме этих процессов, на л.р. УФ излучением могут оказывать влияние различные радиационные дефекты, возникающие под действием этого излучения ⁹¹.

С этих позиций были проанализированы экспериментальные данные по л.р. на $\lambda = 0,266$ мкм для широкозонных прозрачных материалов различного класса ⁹¹, в том числе ЩГК, исследованных в ИК и видимом диапазонах. Оказалось, что для большинства материалов пороги разрушения на $\lambda = 0,266$ мкм существенно ниже, чем на $\lambda = 1,06$ и 0,69 мкм (табл. I). Этот

Таблица I
Пороги разрушения прозрачных диэлектриков на различных длинах волн, ГВт/см² ⁹²

Материал	NaCl	KCl	KBr	CsJ	KJ	RbCl	CsBr	NaF	LiF	SiO ₂ крист.	SiO ₂ плавл.	Al ₂ O ₃	CaF ₂	KDP
Длина волн, мкм:														
1,06	120	70	50	15	22	6	27	140	360	230	400	400	200	—
0,69	150	80	58	13	10	7	4	140	360	280	600	400	—	—
0,266	45	50	50	5,3	42	7	6	18	240	70	40	18	390	290 ^{*)}

^{*)} Без учета эффекта наведенной оптической неоднородности в кристалле.

факт вместе с обнаруженными значительными вариациями порогов разрушения от образца к образцу одного и того же материала и влиянием термической обработки на оптическую стойкость образцов привел к выводу о том, что в большинстве щелочно-галоидных кристаллов (NaCl, KCl и др.) и кристаллического кварца пороги разрушения на $\lambda = 0,266$ мкм даже в оптически наиболее прочных образцах определяются влиянием примесей и дефектов. Анализ частотной и температурной зависимости порогов разрушения плавленого кварца показал, что они согласуются с предсказываемыми теорией лавинной ионизации. Для кристаллов LiF и CaF₂ пороги разрушения на $\lambda = 0,266$ мкм близки к измеренным на $\lambda = 1,06$ и 0,69 мкм (см. табл. I), что не противоречит выводам теории лавинной ионизации при $\hbar\Omega/I = 0,3-0,4$ (см. рис. 5). Однако исследование температурной зависимости порогов раз-

рушения этих кристаллов на $\lambda = 0,266$ мкм показало ⁹², что она не согласуется с теоретической для лавинного механизма.

Таким образом, приведенные данные показывают, что лазерное разрушение широкозонных диэлектриков излучением УФ диапазона в большинстве исследованных материалов связано с влиянием примесей и дефектов, хотя в некоторых случаях возможно разрушение вследствие ударной ионизации.

4.1.3. Лазерное разрушение полупроводников

Механизм электронной лавины обсуждался при анализе экспериментальных данных по л.р. полупроводников (Si, GaAs) в ИК диапазоне ($\lambda = 10,6$; 2,94 и 2,76 мкм) ⁹³. Измеренные пороги разрушения E_k (табл. II) на 10,6 мкм

Таблица II

Пороговые интенсивности I_d и эффективные напряжения полей E_{eff} объемного лазерного разрушения Si и GaAs ⁹³

Материал	Длина волны излучения λ , мкм		
	10,6		2,76
	I_d , ГВт/см ²	E_{eff} , МВ/см	I_d , ГВт/см ²
Si	5,0	0,75	2,3
GaAs, частично компенсированный	16,5	1,4	0,82
GaAs:			
оптический № 1	1,27	0,39	—
» № 2	14,5	1,3	—
» № 3	10,3	1,1	—
» № 4	12,4	1,2	—
			E_{eff} , МВ/см
			0,51
			0,32
			0,15
			0,083
			0,13
			0,1

оказались выше значений критического поля пробоя в постоянных полях E_k^0 (Si) = $5 \cdot 10^5$ В/см, E_k^0 (GaAs) = $3,7 \cdot 10^5$ В/см, что дало основание интерпретировать результаты лазерного пробоя на этой длине волны как связанного с лавинной ионизацией (хотя наблюдался разброс порогов от образца к образцу, что указывало на влияние дефектов на процесс разрушения). Из сравнения E_k и E_k^0 с учетом частотной зависимости (29) была получена оценка величин эффективной частоты электрон-фононных столкновений v_{eff} : $1,6 \cdot 10^{14}$ с⁻¹ для Si и $5 \cdot 10^{13}$ с⁻¹ для GaAs. Эти величины кажутся разумными, однако для более надежного вывода о реализуемости механизма электронной лавины нужны более детальные экспериментальные данные (в частности, по температурной зависимости порогов разрушения). Что касается л.р. на $\lambda = 2,76$ и 2,94 мкм, то характер частотной зависимости порога (падение его с увеличением λ) связывался с трехфотонным поглощением. Мы обсудим этот результат в следующем разделе.

4.2. Многофотонная ионизация

В разделе 4.1.1 многофотонная ионизация рассматривалась как вспомогательный процесс, обеспечивающий поставку затравочных электронов, необходимых для развития ударной ионизации. Однако если вероятность многофотонной ионизации W_n высока, то скорость генерации электронов в зоне проводимости за счет этого процесса может превосходить таковую вследствие ударной ионизации и, следовательно, первый процесс может стать доминирующим в разрушении.

Теоретическому анализу условий реализации такой ситуации посвящен ряд работ^{76,78-81}. Были использованы различные подходы, из которых здесь мы остановимся на предложенном в⁷⁶, где были получены критерии пробоя для механизмов ударной и многофотонной ионизации и на основе их проанализирована относительная роль обоих процессов в лазерном разрушении.

Генерация свободных носителей в зоне проводимости за счет ударной и многофотонной ионизации описывается уравнением

$$\frac{dN}{dt} = \gamma N + W_n - R(N), \quad (42)$$

где $R(N)$ — член, описывающий рекомбинацию носителей.

Физически адекватный критерий разрушения должен быть получен из совместного решения этого уравнения и уравнения, описывающего нагрев решетки в результате электрон-фононных столкновений

$$\frac{d\theta}{dt} = \beta \theta \kappa N, \quad (43)$$

где $\theta = T/T_0$, T_0 — исходная температура решетки, β и κ — параметры, которые в случае, если доминирующим является рассеяние на акустических фононах, равны

$$\beta = \frac{4Q(1)(qS_0)^{3/2} I}{\pi^{1/2} c \rho T_0}, \quad \kappa = \frac{3}{2};$$

здесь $S_0 = kT_0/I$, $q = e^2 E^2 / 6m^2 v_s^2 \Omega^2$, I — потенциал ионизации, c — удельная теплоемкость решетки, ρ — плотность.

Чтобы выяснить относительную роль процессов ударной и многофотонной ионизации в л.р., необходимо предложенный «температурный критерий» получить для обоих процессов, т. е. решать совместно с (43) уравнение (42), оставляя в нем доминирующий член.

В результате такой процедуры были получены следующие критерии пробоя *):

$$\gamma \tau_n = \ln \left(1 + \frac{2\gamma}{\beta N_0} \right), \quad (44)$$

$$4(1 - Q_k^{-1/2}) = \beta W_n \tau_n^2; \quad (45)$$

здесь τ_n — длительность импульса, N_0 — начальная концентрация носителей, θ_k — критическая температура решетки, при которой наступает разрушение.

Поскольку γ и W_n — известные функции поля E и частоты электромагнитного излучения ($\gamma(E, \Omega)$ определяется из решения квантового кинетического уравнения, как это описано выше, а $W_n(E, \Omega)$ — из теории много-квантовых переходов), то (44) и (45) позволяют определить пороговые интенсивности пробоя соответственно для механизмов ударной и многофотонной ионизации.

Для W_n можно воспользоваться формулой Келдыша⁸¹:

$$W_n = \frac{2}{9\pi} \Omega \left(\frac{m\Omega}{\hbar} \right)^{3/2} \Phi \left(\left(2 \left\langle \frac{\Delta}{\hbar\Omega} + 1 \right\rangle - \frac{2\tilde{\Delta}}{\hbar\Omega} \right)^{1/2} \right) \times \\ \times \exp \left[2 \left\langle \frac{\Delta}{\hbar\Omega} + 1 \right\rangle \left(1 - \frac{e^2 E^2}{4m\Omega^2 \Delta} \right) \right] \left(\frac{e^2 E^2}{16m\Omega^2 \Delta} \right)^{\langle (\tilde{\Delta}/\hbar\Omega) + 1 \rangle}, \quad (46)$$

$$\tilde{\Delta} = \Delta + \frac{e^2 E^2}{4m\Omega^2}, \quad \Phi(z) = \int_0^z dy \exp(y^2 - z^2);$$

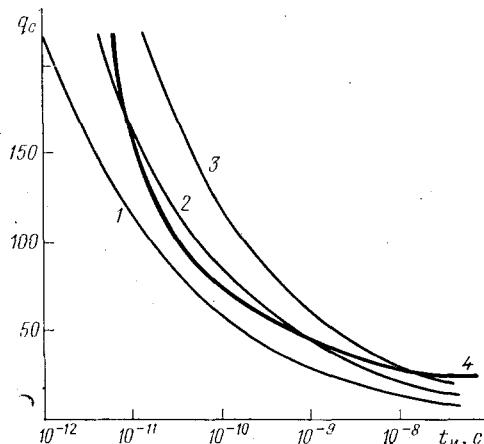
здесь Δ — ширина запрещенной зоны.

*.) Приводимые критерии соответствуют случаю, когда рекомбинацией носителей за время действия импульса пренебрегается (т. е. предполагается $\tau_p \gg \tau_n$). В работе⁷⁸ получены критерии пробоя и при учете рекомбинации.

Область применимости этой формулы обсуждалась в⁴⁵, где авторы привели к выводу, что она дает хорошие результаты для многофотонных процессов различного порядка (вплоть до одноквантовых).

Из (44) и (45) следует существенно различная зависимость порогов пробоя от длительности импульса для механизмов ударной и многофотонной ионизации. На рис. 8 в качестве примера приведены такие зависимости для NaCl.

Рис. 8. Зависимости параметра q_c , определяющего критическое поле ($q_c \sim E_c^2$) от длительности импульса лазерного излучения $t_{\text{и}}$ (кристалл NaCl, $n = 5$) для различных механизмов разрушения — для многофотонной ионизации (1–3, $W_{(1)} > W_{(2)} > W_{(3)}$) и для ударной монизаций (4)⁷⁶



при $n = 5$, рассчитанные с использованием формул (44) — (46) и результатов анализа⁷⁶ зависимости критического поля лавинной ионизации от частоты и длительности импульсов. Видна конкуренция механизмов ударной и многофотонной ионизации, которая зависит как от величины W_n , так от длительности импульса. В определенном диапазоне длительностей многофотонная ионизация может быть доминирующим процессом пробоя.

Целенаправленных экспериментальных исследований по выяснению реализуемости этого теоретического предсказания до сих пор не было сделано, хотя в литературе было несколько попыток анализа экспериментальных данных по л.р. на основе механизма многофотонной ионизации (см., например,^{45, 78–80, 93}).

В частности, в⁹³ было показано, что пороговая интенсивность лазерного разрушения в Si на $\lambda = 2,76 \text{ мкм}$ достаточно хорошо объясняется трехфотонной ионизацией.

5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Приведенный обзор показывает, что к настоящему времени достаточно поняты основные механизмы лазерного разрушения прозрачных твердых тел, особенно для наносекундных импульсов излучения.

Установлена доминирующая роль поглощающих дефектов, инициирующих разрушение в большинстве реальных оптических материалов различного класса. При этом более или менее выяснены возможные процессы в окружающей матрице, участвующие в процессах л.р. вследствие теплового нагрева поглощающих дефектов, такие, как фотоионизация собственным тепловым излучением нагретого дефекта, распространение ионизационной волны вследствие электронной теплопроводности, механохимические процессы.

Достаточно поняты статистические закономерности л.р., связанные с тепловым разрушением на поглощающих дефектах. Поняты основные черты эффекта накопления, однако требуются более детальные исследования этого очень важного эффекта в л.р. в режиме многократного облучения.

Выяснение вредной роли поглощающих дефектов, а в некоторых случаях и их природы, позволило найти эффективные методы повышения лазерной

стойкости оптических материалов различного класса (методы очистки исходных материалов от вредных поглощающих примесей, термическая обработка, приводящая к распаду поглощающих дефектов, введение специальных добавок, подавляющих механохимические реакции (в полимерах), разработка новых методов полировки оптических элементов, устраниющих поверхностные дефекты и др.).

Выяснено, что существенное влияние на процесс разрушения могут оказывать такие нелинейные эффекты, как самофокусировка, самодефокусировка, вынужденное мандельштам-брюллюэновское рассеяние.

Установлено, что в особо чистых оптических материалах лазерное разрушение обусловлено ударной ионизацией. Решающими в установлении этого факта явились эксперименты по исследованию основных закономерностей разрушения (частотная и температурная зависимости порога, влияние на порог УФ подсветки) и сравнение полученных данных с последовательно развитой теорией лавинной ионизации.

Что касается другого собственного механизма пробоя — многофотонной ионизации, то в настоящее время имеются лишь ограниченные данные, указывающие на ее роль в лазерном разрушении. Развитая теория этого механизма позволяет провести целенаправленные эксперименты в этом направлении.

Достигнутый прогресс в исследованиях механизмов лазерного разрушения позволил разработать различные материалы для лазерной оптики (активные элементы из лазерных стекол и кристаллов, нелинейные преобразователи частоты, электрооптические и пассивные модуляторы на кристаллах и полимерах, просветляющие и отражающие тонкопленочные покрытия, элементы проходной оптики и др.).

Вместе с тем имеется ряд нерешенных задач в этой области, имеющих важное принципиальное и практическое значение: недостаточно изучены природы эффекта накопления в л.р. оптических материалов различного класса, механизмы л.р. в УФ области спектра и для сверхкоротких импульсов излучения. Последнее особенно актуально в связи с развитием в последние годы лазерной физики сверхбыстрых процессов, основанной на применении мощных пикосекундных и фемтосекундных лазеров.

Институт общей физики
АН СССР

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Giuliano C. R.— Appl. Phys. Lett., 1964, v. 5, p. 137.
2. Cullom G. H., Waynant R. W.— Appl. Opt., 1964, v. 3, p. 989.
3. Bennett H. E., Guenther A. H., Milam D., Newmann B. E.— Ibidem, 1983, v. 22, p. 3276.
4. Этот симпозиум ежегодно, начиная с 1962 г., проводится в США (г. Боулдер, Колорадо), и труды его издаются Национальным Бюро стандартов США; см.: Index of Papers: Laser Induced Damage in Optical Materials. Symposia 1969—1978/Eds A. H. Guenther, A.J. Glass. AFB. New Mexico 87117.— NBS Spec. Publ. 638.— Washington, D.C.: U.S. Goverment Printing Office, 1983.
5. Walker T. W., Guenther A. H., Nielsen P. E.— IEEE J. Quantum Electron., 1981, v. QE-17, p. 2041.
6. И мас Я. А. Оптический пробой прозрачных диэлектриков: Препринт Ин-та теплопи-
массообмена АН БССР № 13.— Минск, 1982.
7. Avizomis P. V., Farrington T.— Appl. Phys. Lett., 1965, v. 7, p. 205.
8. Горшков Б. Г., Данилек Ю. К., Епифанов А. С., Лобачев В. А.,
Маненков А. А., Сидорин А. В.— ЖЭТФ, 1977, т. 72, с. 1171.
9. Гомелаури Г. В., Маненков А. А.— Квант. электрон., 1979, т. 6, с. 45.
10. Горшков Б. Г., Данилек Ю. К., Епифанов А. С., Маненков
А. А., Прохоров А. М., Сидорин А. В.— Ibidem, 1981, т. 8, с. 155.
11. Sharmat B. S., Rieckhoff K. E.— Can. J. Phys., 1970, v. 48, p. 117.
12. Ритус А. И., Маненков А. А.— Письма ЖЭТФ, 1967, т. 6, с. 349.
13. Белькяничус П. И., Косенко Е. К., Луконюш И. П., Мал-
дутьис Э. К.— Квант. электрон., 1978, т. 5, с. 2032.

14. Маненков А. А., Матюшин Г. А., Нечитайло В. С., Прохоров А. М., Цаприлов А. С.— *Ibidem*, 1983, т. 10, с. 2426; Маненков А. А., Матюшин Г. А., Нечитайло В. С., Прохоров А. М., Цаприлов А. С.— *Opt. Eng.*, 1983, v. 22, p. 400.
15. Алешевич В. А., Ахманов С. А., Жданов Б. В., Сухорукова Н.— *Квант. электрон.*, 1975, т. 2, с. 1179.
16. Danileiko Yu. K., Manenkov A. A., Sidorin A. V.— NBS Spec. Publ. 541. Washington, D.C.: US Goverment Printing Office, 1978, p. 305.
Danileiko Yu. K., Lebedeva T. P., Manenkov A. A., Sidorin A. V. Nonlinear Absorption and Self-defocusing of Intense IR-laser Radiation in Semiconductors due to Generation of Free Carriers: P. N. Lebedev Physical Institute Preprint No. 285.— Moscow, 1982.
17. Сверхкороткие световые импульсы / Пер. с англ.— М.: Мир, 1981.
18. Илиинович В. А., Ковалев А. А. Оптические квантовые генераторы с просветляющимися фильтрами.— Минск: Наука и техника, 1975.
19. Данилек Ю. К., Маненков А. А., Прохоров А. М., Хаймов-Мальков В. Я.— Тр. ФИАН СССР, 1978, т. 101, с. 9.
20. Данилек Ю. К., Маненков А. А., Нечитайло В. С.— *Квант. электрон.*, 1974, т. 1, с. 124.
21. Laser Program Annual Report — 1975: Lawrence Livermore Laboratory Rept. UCRL-5001-75.
22. Данилек Ю. К., Маненков А. А., Прохоров А. М., Хаймов-Мальков В. Я.— Тр. ФИАН СССР, 1978, т. 101, с. 130.
23. Микаэлин А. Л., Тер-Микаэлин М. Л., Турков Ю. Г. Оптические генераторы на твердом теле.— М.: Сов. радио, 1967.
24. Giuliano C. R., Tseng D. Y.— NBS Spec. Publ. 387.— Washington, D.C.: US Governement Printing Office, 1973, p. 84.
25. Smith W. L., Bechtel J. H., Bloembergen N.— *Phys. Rev. Ser. B*, 1975, v. 12, p. 706.
26. Луговой В. Н., Прохоров А. М.— Письма ЖЭТФ, 1968, т. 7, с. 153.
27. Маненков А. А., Липатов Н. И., Прохоров А. М.— *Ibidem*, 1970, т. 11, с. 444.
28. Луговой В. Н., Прохоров А. М.— УФН, 1973, т. 111, с. 203.
29. Gradić D. F.— IEEE J. Quantum Electron., 1973, v. QE-9, p. 954.
30. Данилек Ю. К., Лебедева Т. П., Маненков А. А., Прохоров А. М.— ЖЭТФ, 1981, т. 80, с. 487.
31. Зверев Г. М., Пашков В. А.— ЖЭТФ, 1969, т. 57, с. 1128.
32. Дворников Г. Д., Шатилов А. В.— В кн.: Тезисы докладов IV Всесоюзного совещания по нерезонансному взаимодействию излучения с веществом.— Л.: ГОИ, 1978, т. 1, с. 162.
33. Горшков Б. Г., Данилек Ю. К., Минаев Ю. П., Николаев В. Н., Ритус А. И., Сидорин А. В.— *Квант. электрон.*, 1984, т. 11, с. 2019.
34. Данилек Ю. К., Маненков А. А., Нечитайло В. С., Ритус А. И.— *Ibidem*, 1974, т. 1, с. 1812.
35. Данилек Ю. К., Маненков А. А., Нечитайло В. С.— *Ibidem*, 1976, т. 3, с. 438.
36. Пилипецкий Н. Ф., Макшанцев Б. И., Ковалев А. А., Аграпнат М. Б., Голубцов А. А., Саванин С. Ю., Стоник О. Г.— ЖЭТФ, 1979, т. 76, с. 2026.
37. Rosenstock N. B.— *J. Appl. Phys.*, 1970, v. 50, p. 102.
38. Wu S.-T., Bass M.— NBS Spec. Publ. 620.— Washington, D.C.: US Governement Printing Office, 1981, p. 75.
Bass M., van Stryland E. M., Stewart A. F.— *Appl. Phys. Lett.*, 1979, v. 34 (a), p. 142.
39. Itoh M., Ochiai I.— NBS Spec. Publ. 669.— Washington, D.C.: US Governement Printing Office, 1984, p. 75.; *J. Appl. Phys.*, 1982, v. 53, p. 5140.
40. Itoh M., Saito H.— *Opt. Commun.*, 1983, v. 44, p. 229.
41. Braunstein R., Kim R. K., Braunstein M.— NBS Spec. Publ. 568.— Washington, D.C.: US Governement Printing Office, 1970, p. 99.
42. Данилек Ю. К., Маненков А. А., Прохоров А. М., Хаймов-Мальков В. Я.— ЖЭТФ, 1970, т. 58, с. 31.
43. Bennett H. S.— NBS Spec. Publ. 341.— Washington, D.C.: US Governement Printing Office, 1970, p. 51.
44. Horrige R. W., Uhlmann D. R.— *J. Appl. Phys.*, 1970, v. 41, p. 4023.
45. Walker T. W., Guenther A. H., Nielsen P. E.— IEEE J. Quantum Electron., 1981, v. QE-17, p. 2053.
46. Данилек Ю. К., Маненков А. А., Прохоров А. М., Хаймов-Мальков В. Я.— ЖЭТФ, 1972, т. 63, с. 1032.
47. Данилек Ю. К., Маненков А. А., Нечитайло В. С.— Тр. ФИАН СССР, 1978, т. 101, с. 32.

48. Ландau Л. Д., Лиfшиц Е. М. Электродинамика сплошных сред.—М.: Гостехиздат, 1957.
49. Данилеко Ю. К., Маненков А. А., Нечитайло В. С.—Квант. электрон., 1978, т. 5, с. 194.
50. Анисимов С. И., Макшанцев Б. И.—ФТТ, 1973, т. 15, с. 1090.
51. Алешин И. В., Анисимов С. И., Бонч-Бруевич А. М., Имас Я. И., Комолов В. Л.—ЖЭТФ, 1976, т. 70, с. 1214.
52. Бонч-Бруевич А. М., Либенсон М. Н.—Изв. АН СССР. Сер. физ., 1982, т. 46, с. 1104.
53. Дюмаев К. М., Маненков А. А., Маслюков А. П., Матюшин Г. А., Нечитайло В. С., Прохоров А. М.—Ibidem, 1985, т. 49, с. 1084.
54. Анисимов С. И., Гальбурт В. А., Трибельский М. И.—Квант. электрон., 1981, т. 8, с. 1671.
- Покровская И. Е., Трибельский М. И., Фишер В. И.—ЖЭТФ, 1982, т. 82, с. 1840.
55. Бутенин А. В., Коган Б. Я.—ЖТФ, 1979, т. 49, с. 870.
56. Goldberg S. M., Matyushin G. A., Pilipetsky N. F., Savanin S. Yu., Sudarkin A. N., Tribel'sky M. I.—Appl. Phys. Ser. B, 1983, v. 31, p. 85.
57. Дюмаев К. М., Маненков А. А., Маслюков А. П., Матюшин Г. А., Нечитайло В. С., Прохоров А. М.—Квант. электрон., 1983, т. 10, с. 810.
58. Громов Д. А., Дюмаев К. М., Маненков А. А., Маслюков А. П., Матюшин Г. А., Нечитайло В. С., Прохоров А. М.—Изв. АН СССР, Сер. физ., 1982, т. 46, с. 1959.
59. Громов Д. А., Дюмаев К. М., Маненков А. А., Маслюков А. П., Матюшин Г. А., Нечитайло В. С., Прохоров А. М.—Ibidem, 1984, т. 48, с. 1364.
60. Fradkin D. W., Bua D. P.—Appl. Phys. Lett., 1974, v. 24, p. 555.
61. Алешин И. В., Анисимов С. И., Бонч-Бруевич А. М., Имас Я. А., Комолов В. Л.—ЖЭТФ, 1976, т. 70, с. 1214.
62. Picard R. H., Milam D., Bradbury R. A.—Appl. Opt., 1977, v. 16, p. 1563.
63. Данилеко Ю. К.—Изв. АН СССР. Сер. физ., 1982, т. 46, с. 1119.
- Данилеко Ю. К., Минаев Ю. П., Сидорин А. В.—Квант. электрон., 1984, т. 11, с. 757.
64. Колдунов М. Ф.—ДАН СССР, 1984, т. 277, с. 1384.
65. Arfeli J. H.—NBS Spec. Publ. 509.—Washington, D.C.: US Government Printing Office, 1977, p. 254.
66. Newman B. E., Gill D. H.—Ibidem, p. 298.
67. Зверев Г. М., Михайлова Т. Н., Пашков В. А., Соловьева Н. М.—ЖЭТФ, 1967, т. 53, с. 1849.
68. Молчанов А. Г.—ФТТ, 1970, т. 12, с. 954.
69. Bloembergen N.—IEEE J. Quantum Electron., 1974, v. QE-10, p. 375.
70. Епифанов А. С.—ЖЭТФ, 1974, т. 67, с. 1805.
71. Епифанов А. С., Маненков А. А., Прохоров А. М.—Письма ЖЭТФ, 1975, т. 21, с. 483.
72. Захаров С. И.—ЖЭТФ, 1975, т. 68, с. 2167.
73. Епифанов А. С., Маненков А. А., Прохоров А. М.—ЖЭТФ, 1976, т. 70, с. 728.
74. Мапеков А. А.—In⁶⁵, p. 455.
75. Епифанов А. С., Маненков А. А., Прохоров А. М.—Тр. ФИАН СССР, 1978, т. 101, с. 87.
76. Горшков А. С., Епифанов А. С., Маненков А. А.—ЖЭТФ, 1979, т. 76, с. 617.
77. Еріфалов А. С.—IEEE J. Quantum Electron., 1981, v. QE-17, p. 2018.
78. Braunlich P., Schmid A., Kelley P.—Appl. Phys. Lett., 1975, v. 26, p. 150.
79. Schmid A., Kelley P., Braunlich P.—Phys. Rev. Ser. B, 1977, v. 16, p. 4569.
80. Kelley P., Schmid A., Braunlich P.—Ibidem, 1979, v. 20, p. 815.
81. Виноградов Ан. В., Файзуллов Ф. С.—Квант. электрон., 1977, т. 4, с. 1144.
82. Гомелаури Г. В., Епифанов А. С., Маненков А. А., Прохоров А. М.—ЖЭТФ, 1980, т. 79, с. 2356.
83. Еріфалов А. С., Гагнов С. В.—IEEE J. Quantum Electron., 1981, v. QE-17, p. 2023.
84. Горшков Б. Г., Епифанов А. С., Маненков А. А., Панов А. А.—Изв. АН СССР. Сер. физ., 1980, т. 44, с. 2062.
85. Беляев Л. М., Головастиков А. Н., Набатов В. В.—ФТТ, 1968, т. 10, с. 3733.

86. Yablonovich E.—Appl. Phys. Lett., 1971, v. 19, p. 495.
87. Fradin D. W., Yablonovich E., Bass M.—Appl. Opt., 1973, v. 12, p. 700.
88. Fradin D. F., Bass M.—In ²⁴, p. 225.
89. Аleshkevich B. A., Axmanov S. A., Жданов Б. В., Kovrigina A. I., Кузнецов В. И., Сухоруков А. П.—ЖТФ, 1976, т. 46, с. 1693.
90. Liu P., Lee Smith W., Lotem H., Bechtel J. H., Bloemberger N.—Phys. Rev. Ser. B, 1978, v. 17, p. 4620.
91. Панов А. А. Лазерное возбуждение неравновесных носителей в широкозонных диэлектриках: Автореферат канд. диссертации.—Москва; ИОФАН СССР, 1985.
92. Горшков Б. Г., Епифанов А. С., Маненков А. А., Панов А. А.—Квант. электрон., 1979, т. 6, с. 2415.
93. Данилек Ю. К., Лебедева Т. Н., Маненков А. А., Сидорин А. В.—ЖЭТФ, 1978, т. 74, с. 765.

(*Другие статьи, публикуемые в связи с 25-летием создания лазера, см. в последующих номерах журнала.*)