УДК 539.104:537.311.33:535.1

ПРОБЛЕМА МОДЕЛИРОВАНИЯ ФИЛАМЕНТОВ ПРИ ЛАЗЕРНО-ИНДУЦИРОВАННОМ ПРОБОЕ СРЕДЫ

П. П. ТРОХИМЧУК¹⁾

¹⁾Восточноевропейский национальный университет им. Леси Украинки, пр. Воли, 4, 43025, г. Луцк, Украина

Обсуждаются проблемы возникновения лазерно-индуцированных филаментов в среде. Проведен детальный анализ образования таких структур в различных средах – от воздуха до карбида кремния. Показано влияние спектрального состава, числа импульсов и длительности облучения и среды на геометрические размеры полученных структур и на их фазовые состояния. При этом величина филаментов изменяется от сотен нанометров для карбида кремния до сотен метров для воздуха. Спектр излучения непрерывный и напоминает спектр излучения Вавилова – Черенкова. Поэтому было развито представление о том, что излучение филаментов и излучение Вавилова – Черенкова имеют одну и ту же природу. Обсуждаются проблемы механизмов образования лазерно-индуцированного каскада разрушений в карбиде кремния. Для объяснения экспериментальных результатов были использованы модифицированные модели Рэлея (дифракционного расслоения лазерного луча и критических размеров нановоидов), физико-химические модели определения критических значений энергии для соответствующих процессов и модели для оптически индуцированного черенковского излучения.

Ключевые слова: объемные лазерно-индуцированные структуры; черенковское излучение; карбид кремния; филаменты; оптический пробой; дифракционное расслоение; модифицированные модели Рэлея; каскадная модель; релаксационная оптика.

PROBLEM OF THE MODELING THE FILAMENTS AFTER LASER-INDUCED BREAKDOWN THE MATTER

P. P. TROKHIMCHUCK^a

^aLesya Ukrayinka East European National University, 4 Voly Avenue, Lutsk 43025, Ukraine

The problems of the appearance of laser-induced filamets in the matter are discussed. A detailed analysis of the formation of such structures in various media: from air to silicon carbide, is represented. The influence of the spectral composition, the number of pulses and the duration of the irradiation and the medium on the geometric dimensions of the resulting structures and on their phase states is shown. In this case, the sizes of filaments vary from several hundred nanometers for silicon carbide to several hundred meters for air. The emission spectrum is continuous, and resembles the Cherenkov radiation. Therefore, the idea was developed that the radiation of filaments and the radiation of Cherenkov are of the same nature. The problems of the mechanisms of the formation of laser-induced destruction cascades in silicon carbide are discussed. To explain the experimental results, we used modified Rayleigh models (diffraction stratification of the laser beam and critical sizes of nanovoids), physicochemical models for determining critical energy values for the corresponding processes, and models for optically-induced Cherenkov radiation.

Keywords: volume laser-induced structures; Cherenkov radiation; silicon carbide; filaments; optical breakdown; diffraction separation; modified Rayleigh models; cascade model; relaxation optics.

Образец цитирования:

Трохимчук ПП. Проблема моделирования филаментов при лазерно-индуцированном пробое среды. *Журнал Белорусско- го государственного университета.* Физика. 2020;1:16–27. https://doi.org/10.33581/2520-2243-2020-1-16-27

Автор:

Петр Павлович Трохимчук – кандидат физико-математических наук, доцент; доцент кафедры теоретической и математической физики им. А. В. Свидзинского факультета информационных систем.

For citation:

Trokhimchuck PP. Problem of the modeling the filaments after laser-induced breakdown the matter. *Journal of the Belarusian State University. Physics.* 2020;1:16–27. Russian. https://doi.org/10.33581/2520-2243-2020-1-16-27

Author:

Petro P. Trokhimchuck, PhD (physics and mathematics), docent; associate professor at the A. V. Svidzinskii department of theoretical and mathematical physics, faculty of information systems.

trope1650@gmail.com



Введение

Моделирование механизмов лазерно-индуцированных объемных неравновесных и необратимых явлений представляет собой сложную задачу [1–12]. В зависимости от условий облучения образуются филаменты длиной от сотен нанометров для твердого тела [3; 4] до сотен метров для воздуха [5]. При этом процессы могут быть неравновесными и необратимыми [3; 4].

Первые результаты по выяснению причины образования лазерно-индуцированных филаментов были получены при экспериментальном исследовании явления самофокусировки [5; 11]. Возникновение филаментов связывали с генерацией одного или нескольких волноводов вследствие самоканалирования и изменения модовой структуры излучения [5; 11]. Также приводились объяснения с помощью модели движущихся фокусов Лугового – Прохорова [5; 11], которая может рассматриваться как дифракционное расслоение оптического пучка [5; 6]. Однако движущиеся фокусы перемещаются по оптической оси, а множество филаментов может возникать и на расстояниях от нее, бо́льших, чем диаметр падающего пучка [5; 6].

Кроме того, по оптической оси наблюдались чередование темных и светлых областей в воздухе [12] либо каскады разрушений в карбиде кремния [3; 4]. Это позволяет предположить, что образование каскадов филаментов и их «наноструктурирование» – два взаимосвязанных процесса [6–8].

Нами предложена модифицированная модель дифракционных колец Рэлея с последующей фокусировкой излучения, которая позволила выявить причину возникновения каскада разрушений [6–8].

Неоднородность распределения излучения по длине филамента может быть объяснена также на основании теории движущихся фокусов Лугового – Прохорова [6] и модифицированной модели Рэлея дифракционного расслоения лазерного пучка [6]. Но при этом каждый фокус является источником черенковского излучения, и поэтому дальнейшее высвечивание имеет непрерывный спектр, также происходит интерференция черенковского излучения [6]. Максимумы интерференционных картин и есть причина образования микро- и нанокартин фазовых трансформаций материала [6]. Особенно хорошо это прослеживается в экспериментах группы Т. Окады по облучению гексагонального карбида кремния сфокусированным лазерным излучением [3; 4; 6–8]. С помощью этой модели удовлетворительно объясняются результаты по получению филаментов в воздухе, образованных при облучении фемтосекундными лазерными импульсами [12]. Итоги этих исследований могут служить подтверждением существования оптически генерируемого излучения Вавилова – Черенкова и основанием для выяснения его роли в фазовых превращениях облучаемой среды [6–8]. В пользу черенковского излучения как излучения филаментов говорит тот факт, что непрерывность спектра излучения филамента не зависит от природы облучающей среды (твердое тело, жидкость или газ) [2; 9; 10]. Характеристики черенковского излучения (черенковский угол и т. п.) более наглядно прослеживаются при облучении твердого тела [6].

Однако следует отметить, что ударный характер черенковского излучения с оптической накачкой с квантовой точки зрения заключается в том, что локальные квантовые процессы должны происходить быстрее, чем электромагнитная «коллективизация» возбуждения или переход к дальнодействию (нестрого говоря, это процесс образования плазменных колебаний). Реально использование тепловых моделей, которые позволяют объяснить цитируемые экспериментальные результаты, рассматривать не приходится [1; 6–8].

Само появление филамента может быть представлено с помощью кинетической каскадной модели поэтапного возбуждения химических связей в режиме насыщения возбуждения облучения (лазерный эффект) [1; 6–8]. В этом случае можно учитывать и механизмы релаксации (излучательная или безызлучательная). Кроме того, эта модель описывает и ударные процессы с физико-химической точки зрения [6]. При этом главную роль играет скорость накоплений локальных возбуждений, и она в принципе может быть меньше среднестатистической фазовой скорости света в среде, на что указывалось при изучении возможности возникновения черенковского излучения с оптической накачкой в любой среде [6; 9].

Основные экспериментальные результаты

Приведем краткий обзор основных итогов экспериментов по образованию объемных лазерно-индуцированных филаментов, включая фазовые трансформации облучаемого материала.

Первые результаты по самофокусировке были получены Н. Ф. Пилипецким и А. Р. Рустамовым [5; 6; 11]. Кюветы с органическими жидкостями подвергались сфокусированному лазерному облучению. В данном случае изучались вторичные процессы взаимодействия указанного излучения с веществом.

Позже самофокусировка исследовалась в различных газах, жидкостях и твердых телах [5; 11]. Основные особенности этих экспериментов – генерация лазерно-индуцированных филаментов и коническое излучение с непрерывным спектром от ультрафиолетового до инфракрасного диапазона [2; 9; 10]. Непрерывные спектры изучались группой К. Нагуры, и спектры белого света были получены для различных сред [2]. Титан-сапфировая лазерная система, основанная на методе усиления чирпированного импульса, обеспечивала энергию импульса 1 мДж, длительность 70 фс с частотой повторения 10 Гц. Средняя длина волны составляла 785 нм, а полуширина линии лазерного излучения – 20 нм. Этот основной луч, имеющий диаметр 7 мм, был преобразован в импульсы второй и третьей гармоник путем удвоения и утроения частоты двумя кристаллами бората бария толщиной 100 мкм. Максимальная выходная энергия импульсов второй и третьей гармоник – 180 и 30 мкДж соответственно.

Согласно [2] ширина запрещенной зоны облучаемых материалов равна 4,7; 7,5; 7,5; 10,2 и 11,8 эВ для стекла ВК7, воды, плавленого кварца, CaF_2 и LiF соответственно. Лазерный луч фокусировался на передней поверхности среды, которая помещалась в фокальной плоскости. Когда интенсивность лазера накачки постепенно увеличивалась, ширина спектра резко возрастала с пороговой интенсивностью и сами спектры быстро насыщались. Было установлено, что материалы с большой запрещенной зоной, такие как CaF_2 и LiF, имеют тенденцию к асимметричному уширению, так как спектр в антистоксовой области расширяется гораздо больше, чем в стоксовой [2].

Природа конического излучения исследовалась в [9; 10]. Для облучения [10] использовался синхронизированный лазер Quantel YG-471 (*Quantel Laser*, Франция), который генерировал импульсы длительностью 22 мкс с длиной волны 1,06 мкм и энергией до 35 мДж и импульсы длительностью 15 мкс второй гармоники с энергией 12 мДж. Лазерное излучение фокусировалось на кюветы длиной 1–10 см с H₂O и D₂O. С помощью набора линз с фокусными расстояниями от 2 до 25 см получали интенсивность в фокусном пятне до 10^{12} BT/см². Несколько (обычно от 5 до 10) филаментов генерировались каждым импульсом. Суперконтинуум более эффективно генерировался при фокусировке лазерного излучения с помощью линз с большими фокусами на длинные кюветы облучаемого материала. Пороговая энергия образования суперконтинуума в D₂O ниже, чем в H₂O. Суперконтинуум распространялся в кольце, и при облучении с длиной волны 1,06 мкм генерируемая энергия фотона возрастала с углом вне оси, тогда как при возбуждении излучением с 0,53 мкм картина была более сложной. Из экспериментальных данных видно (рис. 1, *a*), что пространственное распределение излучения суперконтинуума в конусе не зависит от моды фокусировки. Это позволяет сделать вывод, что источник излучения находится на поверхности филаментов. Аналогичные результаты были получены на парах натрия [10] (рис. 1, δ).

В [3; 4] для минимизации получаемых структур кристаллы 4H-SiC облучались импульсами фемтосекундного лазера (продолжительность импульса 130 фс, длина волны 800 нм, частота импульсов 1 кГц, энергия 200–300 нДж на импульс) с помощью микроскопа (рис. 2, *a*, *б*). Облучение проводилось сфокусированными фемтосекундными лазерными импульсами по линиям внутри монокристаллов 4H-SiC на глубине 30 мкм путем перемещения образца со скоростью сканирования 10 мкм/с. Расстояние между соседними линиями 20 мкм. Лазерный луч был направлен под прямым углом к поверхности (0001) кристалла. Направление облучения – почти параллельное этому направлению. Схема облучения приведена на рис. 2, *a*.



Рис. 1. Генерация суперконтинуума в D_2O при лазерном облучении с длиной волны 0,53 мкм, фокусируемом на ячейку сферической линзой (*a*); коническое излучение для паров натрия с плотностью 1,8 · 10¹⁵ см⁻³ и лазерной отстройкой от 0,2 нм до синего цвета перехода D_2 [10] (δ) *Fig. 1.* Supercontinuum pattern generation in D_2O by 0.53 µm laser excitation. The laser is focused by cell (*a*) by spherical lens or (*b*) the pattern of the conical emission at sodium density of 1.8 · 10¹⁵ cm⁻³ and laser detuning of 0.2 nm to the blue of the D_2 transition. The laser radiation is focused into the sodium cell by a spherical lens [10] Изображения, полученные с помощью просвечивающей электронной микроскопии при облучении с энергией 300 нДж на импульс, приведены на рис. 2, *в*, *д*.

В этом случае были получены не поверхностные, а трехмерные периодические структуры. Поперечные размеры секций этих структур ~22 мкм, глубина ~50 мкм. Как видно из рис. 2, *в*, имеются пять степеней каскада неупорядоченных областей, расположенных на расстоянии от 2 до 4 мкм друг от друга по вертикали. Толщина групп каскада от 150 до 300 нм. Присутствуют также нитевидные образования диаметром от 10 до 20 нм. Кроме того, в этих нитях образуются нановоиды (пузырьки) с тем же диаметром. Обнаружено, что облученные структуры сохраняют кристаллографическую симметрию исходной структуры.

Лазерная филаментация была получена при облучении воздуха фемтосекундными лазерными импульсами (длина волны 800 нм, длительность импульса 85 фс, энергия 230 мДж и пиковая мощность 2,3 ТВт [12]). Образуется кольцевая пятнистая зона деформированного исходного пучка (глубина 30 м). Эти «горячие» точки (пятна) самофокусируются еще на несколько метров, в то же время они возбуждают вторичные мелкомасштабные расслоения в своей окрестности (глубина 35 м) [12]. Избыточная мощность передается в центральную зону луча, которая служит резервуаром энергии для возбуждения новых последовательностей небольших пятен (глубина 50 м).



Рис. 2. Принципиальная схема лазерного облучения с указанием направлений распространения света k и ориентации напряженности электрического поля E (a). Изображение, полученное с помощью электронной просвечивающей микроскопии по сечению лазерного пучка облучения (200 нДж на импульс) (б). Изображение, полученное с помощью электронной просвечивающей микроскопии по сечению лазерного пучка облучения (200 нДж на импульс) (б). Изображение, полученное с помощью электронной просвечивающей микроскопии для плотности энергии 300 нДж на импульс (в). Иллюстрация геометрии облучения (г). Увеличенное изображение отмеченной на рис. 2, в, прямоугольной площадки (лазерно-модифицированные слои с межслойным промежутком 150 нм обозначены стрелками) (д). Изображение, полученное с помощью электронной просвечивающей микроскопии части сечения линии для плотности энергии 200 нДж на импульс (е). Изображения с нулевой потерей той же области, что и на рис. 2, е, с нановоидами (светлые области); соответствие с рис. 2, е, задается стрелками
в обоих электронограммах (ж). Схематические иллюстрации микроструктуры лазерно-модифицированной линии: показаны направления k, E и направление сканирования SD; приведены только две группы (I и II) лазерно-модифицированной микроструктуры [3; 4] (з)

Fig. 2. Schematic illustration of the laser irradiated pattern; the light propagation direction kand electric field E are shown (a). Optical micrograph of the mechanically thinned sample to show cross sections of laser-irradiated lines (200 nJ per pulse) (b). Bright-field TEM image of the cross section of a line written with pulse energy of 300 nJ per pulse (c). Schematic illustration of a geometric relationship between the irradiated line and the cross-sectional micrograph (d). Magnified image of a rectangular area in fig. 2, c (laser-modified layers with a spacing of 150 nm are indicated by arrows) (e). Bright-field TEM image of a portion of the cross section of a line written with a pulse energy of 200 nJ per pulse (f). Zero-loss image of a same area as in fig. 2, f, with nanovoids appearing as bright areas; correspondence with fig. 2, f, is found by noting the arrowheads in both micrographs (g). Schematic illustrations of the microstructure of a laser modified line. Light-propagation direction (k), electric field (E), and scan direction (SD) are shown; only two groups (I and II) of the laser-modified microstructure are drawn [3; 4] (h) Были выделены три характерные особенности экспериментальных результатов [12]:

• образование «горячих» (ярких) пар точек на дальнем расстоянии;

 наличие в активной области пучка зоны, где интенсивные нити распадаются на мелкомасштабные ячейки;

• наличие области, включающей поперечную структуру, которая сохраняет видимую картину нитей на длине более 5 м.

Моделирование, объяснение результатов

В основу моделирования положены результаты, представленные на рис. 2, *в*, с привлечением других данных. Оно было разбито на следующие стадии:

1) выявление причины возникновения каскада объемных разрушений и оценка его размеров (см. рис. 2, в);

2) оценка размеров каждой группы каскада и объяснение образования ниточной структуры, а также соответствующие численные оценки;

3) создание модели генерации нановоидов и оценка их размеров и формы.

Наличие пяти групп нановоидов (см. рис. 2, *в*) может быть объяснено дифракционным расслоением лазерного луча как с помощью теории подвижных фокусов Лугового – Прохорова, так и по модифицированной модели Рэлея [6]. Стратификация дифракционного кольца на нитях обусловлена формированием новых фаз, которые «создают» эти застывшие нанопровода. Поэтому стратификация лазерного облучения на различные зоны в модели Лугового – Прохорова подвижных фокусов может быть объяснена с помощью теории создания дифракционной картины [6]. Но максимумы более высоких порядков этой картины для сфокусированного излучения в нелинейном случае могут иметь бо́льшую интенсивность по сравнению с линейным.

Оптический пробой вещества может основываться на каскадной модели – многофотонных процессах поглощения света в режиме насыщения возбуждения соответствующих центров рассеяния (многофотонное поглощение) [6].

Размеры (диаметры) групп каскада d_{nir} пропорциональны соответствующим дифракционным диаметрам d_{ndif} [6]:

$$d_{\rm nir} = k d_{\rm ndif}$$

где *k* – коэффициент пропорциональности.

Дифракционные диаметры *d*_{ndif} могут быть определены с помощью соотношений Рэлея для дифракционных кружков [6]:

$$d_{\rm ndif} = n\lambda$$
,

где *n* – номер дифракционного кольца (натуральное число).

Оценки дифракционных диаметров d_{ndif} для $\lambda = 800$ нм приведены в табл. 1.

Таблица 1

Диаметры первых пяти дифракционных колец Рэлея

Table 1

Diameters of first five Rayleygh diffractive rings

Номер дифракционного кольца	Диаметр, нм
1	800
2	1600
3	2400
4	3200
5	4000

Расстояние между дифракционными пятнами и соответствующими фокусами можно найти по формуле [6]

$$l_{\rm nf} = \frac{d_{\rm ndif}}{2 \, {\rm tg} \frac{\phi}{2}},$$

где ф – угол фокусировки луча.

Величины l_{nf} для двух значений углов $\phi_1 = 20^\circ$ и $\phi_2 = 30^\circ$ приведены в табл. 2. Разность этих расстояний дает расстояние между соответствующими группами каскада.

Таблица 2

Расстояние от дифракционных колец до точек фокусировки, нм

Table 2

Distances from diffraction rings to their focus points, nm

Номер дифракционного кольца	Угол фокусировки	
	20°	30°
1	2269	1493
2	4538	2985
3	6807	4478
4	9076	5970
5	11 345	7463

Качественное объяснение образования каскада разрушений следующее. Фокус каждой дифракционной зоны (пятна) является основой для формирования источника черенковского излучения. Но фокусы от дифракционных колец более высокого порядка могут размещаться в зоне влияния предыдущих фокусов. Поэтому только первая группа каскада разрушений (см. рис. 2, в, д) представлена чистым ударным механизмом (конус Маха). Конусы Маха характерны и для второй и третьей групп каскада разрушений (см. рис. 2, в), но их максимумы смещены от центра, что может быть результатом взаимодействия второй и третьей ударных волн с предыдущими ударными волнами (с первой – для второй волны и с первой и второй – для третьей волны). Ударный механизм разрушения подтверждается линейным направлением оптического пробоя. Оно параллельно направлению ударной волны, а излучаемый спектр является континуумом как для излучения Вавилова – Черенкова [6–10], так и для наблюдаемых лазерных филаментов в воде и воздухе [6-10]. Таким образом, основная причина оптического каскада разрушений – вторичное черенковское излучение (электромагнитные ударные волны), которое поглощается более эффективно, чем исходное лазерное, так как лежит в области собственного поглощения карбида кремния. Поэтому создание оптических следов пробоя более эффективное для вторичного черенковского излучения, чем для исходного лазерного. Для исходного излучения с длиной волны 800 нм карбид кремния практически прозрачен. При проверке этой гипотезы следует измерить спектр вторичного излучения [6]. В этом случае можно использовать физико-химическую каскадную модель возбуждения соответствующих химических связей облученного вещества в режиме насыщения возбуждения [6].

Причина появления нанорасслоения в каждой группе каскада разрушений – интерференция черенковского излучения или самоиндуцированное образование дифракционных решеток [6].

Можно выделить главные особенности распределения энергии в конусе Маха. Оценим основные энергетические характеристики экспериментальных данных, которые представлены на рис. 2, *в*. Пусть каждый этап каскада имеет ~200 нанотрубок диаметром $d_{\rm nt} = 20$ нм и длиной $l_{\rm nt} = 500$ нм. Общее количество этих нанотрубок $N_{\rm 1snt} \sim 1000$, а их полный объем

$$V_{\rm 1snt} = N_{\rm 1snt} \frac{\pi d_{\rm nt}^2}{4} l_{\rm nt} = 0,63 \text{ MKm}^3$$

Атомная плотность (плотность кристаллических узлов) для 4H-SiC может быть определена с помощью формулы [7; 8]

$$N_a = \frac{2\rho N_A}{A},$$

где ρ – плотность материала; N_A – число Авогадро; A – вес грамм-молекулы SiC. Для 4H-SiC атомная плотность есть $N_{aSiC} = 2.4 \cdot 10^{22}$ см⁻³.

Число атомов в полном объеме

$$N_{asnt} = N_{aSiC}V_{1snt} = 1,51 \cdot 10^{10}$$

Энергию, необходимую для оптического пробоя в объеме образованных нанотрубок, можно оценить исходя из следующих соображений [6; 7]. Пороговая энергия Зейтца (суммарная энергия разрыва всех

связей одного атома в кристалле) для 4H-SiC равна E_{Zth} ~ 25 эВ. Пусть эта энергия соответствует энергии оптического пробоя. Тогда суммарная энергия есть

$$E_{1ob} = N_{asnt} E_{Zth} = 30,2$$
 нДж.

Это значение составляет 10 % от энергии лазерного импульса (300 нДж) [6], а с учетом отражения – примерно 30 % от эффективной поглощенной энергии. Таким образом, мы имеем более высокую эффективность преобразования исходного излучения в излучение Вавилова – Черенкова. Основной особенностью экспериментальных данных, представленных на рис. 2, является преобразование исходного лазерного излучения (длина волны 800 нм) в непрерывное излучение Черенкова. Если предположить, что длина одной нанонити соответствует оптической толщине, то коэффициент поглощения будет составлять ~10⁴ см⁻¹. Это значение отвечает фиолетово-синему диапазону спектра поглощения 4H-SiC. Необратимость достигается за счет многофотонного поглощения в максимумах наведенной интерференционной картины.

Оценим цепочку критических значений энергии для SiC с физико-химической точки зрения. Критическое значение энергии, которая необходима для начала самофокусировки, можно определить следующим образом. Объемная плотность энергии, требуемой для возникновения процесса самофокусировки, может быть вычислена по формуле

$$W_{\rm crvol} = E_a N_{\rm nc},$$

где E_a – энергия активации соответствующих «нелинейных центров»; $N_{\rm nc}$ – их концентрация. Воспользуемся следующим приближением: $E_a = hv = 1,5$ эВ; $N_{\rm nc} = 10^{14} - 10^{16}$ см⁻³. Тогда для SiC величина $W_{\rm crvol}$ составляет от 2,4 · 10⁻⁵ до 2,4 · 10⁻³ Дж/см³. Поверхностная плотность может быть определена как

$$W_{\rm crsur} = \frac{W_{\rm crvol}}{\alpha},$$

здесь α – коэффициент поглощения. Для SiC имеем: $\alpha = 0,1$ см⁻¹ и $W_{\text{crsur}} = 2,4 \cdot 10^{-4} - 2,4 \cdot 10^{-2}$ Дж/см². Интегральное значение энергии определяется как

$$W_{\rm crin} = W_{\rm crsur} S$$
,

где *S* – площадь облучения.

Для рис. 2, *в*, $S = 1,256 \cdot 10^{-7}$ см² при r = 2 мкм, поэтому $W_{crin} = 3 \cdot 10^{-11} - 3 \cdot 10^{-9}$ Дж. При r = 1 мм по-лучим $W_{crin} = 1,9 \cdot 10^{-6} - 1,9 \cdot 10^{-4}$ Дж. Эти оценки согласуются с таковыми, которые найдены исходя из электродинамических соображений (керровская среда и т. п. [11]). Однако предлагаемый метод более общий, так как не зависит от среды облучения, а лишь связан с концентрацией центров, приводящих к изменению коэффициента поглощения при лазерном облучении [15].

Следующим этапом определения плотности энергии является выявление условий дифракционного расслоения, которые находятся, например, с помощью размеров дифракционных колец. Мы можем оценить дифракционное расслоение для n = 5.

Максимальный диаметр дифракционной картины грубо оценивается диаметром пятого дифракционного кольца. Средняя плотность энергии в плоскости дифракционных колец

$$W_{\text{avdr}} = \frac{E_p}{S},$$

где E_p – энергия лазерного импульса. Для $S = 1,256 \cdot 10^{-7}$ см² и $E_p = 200$ нДж или $E_p = 300$ нДж получим значения W_{avdr} , равные 1,6 или 2,4 Дж/см² соответственно. Если последние величины умножить на коэффициент поглощения SiC $(\alpha = 0,1 \text{ см}^{-1})$, то найдем объемную плотность энергии – 0,16 или 0,24 Дж/см³. Действительное значение составляет 0,4 от приведенного (коэффициент отражения ~0,6) и равно 0,064 или 0,096 Дж/см³. Соотношение $\frac{W_{\text{avdrvol}}}{W_{\text{crvol}}}$ для этих величин колеблется от 27 до 2700. Плотность энергии оптического пробоя

 $W_{\rm ob}$ для SiC равна 48 кДж/см³, соотношение $\frac{W_{\rm ob}}{W_{\rm avdrvol}}$ составляет 5 · 10⁵ или 7,5 · 10⁵.

Эту методику расчета можно использовать и для других материалов. В зависимости от того, что требуется получить (непрерывный спектр излучения или фазовые превращения облученного материала). можно оценить условия облучения.

Вопрос о суперконтинуальном излучении в процессе лазерной филаментации обсуждается в [9]. В воздухе суперконтинуальные спектры имеют диапазон от ультрафиолетового до инфракрасного.

Конусный вид одной группы (см. рис. 2, в, д, и 3) может быть представлен как замороженная картина черенковского излучения с оптической накачкой [6]. Угол 20 при вершине конуса на рис. 3

соответствует углу Черенкова [6–8]. Из этого можно сделать следующий вывод: создание каскада разрушений связано с ударной ионизацией, и данный эффект аналогичен микроскопическому механизму излучения Черенкова [6]. Но этот угол может быть и больше, и меньше угла Черенкова

$$\cos\theta_{\rm ch}=\frac{1}{\beta n},$$

где *n* – показатель преломления; $\beta = \frac{v}{c}$, *v* – скорость налетающей частицы (для лазера – скорость соответствующего процесса поляризации среды). Угол может быть определен, согласно теории Нильса и Оге Боров, и как угол между оптической осью и перпендикуляром к огибающей поверхности лазерного луча [6; 14]. Для 4H-SiC $\theta_{ch} = 69^{\circ}$ [6]. Иное значение угла может быть объяснено двумя причинами: 1) нелинейной дефокусировкой выходного излучения; 2) увеличением черенковского угла для нелинейного режима облучения [6; 9].



Рис. 3. Увеличенное изображение первой группы каскада, представленной на рис. 2, в. Угол 20 примерно равен углу черенковского излучения [6]
 Fig. 3. Increased image of the first group of the cascade fig. 2, c. The angle 20 is approximately equal to the Cherenkov irradiation angle [6]

Подобные процессы происходят во время облучения среды ультракороткими импульсами. Это позволяет сделать вывод, что широкополосная часть спектра самофокусировки соответствует черенковскому излучению. Здесь общим является изменение поляризационных свойств вещества как при пролете высокоэнергетической частицы, которая проходит через вещество, так и во время самофокусировки. Гиперболоид торможения частицы в теории Нильса и Оге Боров [13; 14] может быть заменен гауссовым распределением излучения в лазерной моде TEM₀₀ или же сфокусированным лазерным лучом. Однако если во время прохождения высокоэнергетических частиц с одинаковой энергией имеется много гиперболоидов, то при прохождении лазерного импульса, вызывающего появление самофокусировки, такой «гиперболоид» лишь один. Следовательно, лазерное излучение вызывает неодинаковую поляризацию по своему сечению, поэтому модель Нильса и Оге Боров [13; 14] можно успешно использовать для объяснения конического излучения при самофокусировке. В этом случае необходимо учитывать изменение диэлектрической проницаемости при фотоионизации среды лазерным излучением и тот факт, что его поперечная часть – это то же излучение, что и для высокоэнергетических частиц. Иными словами, конусное излучение самофокусировки можно рассматривать как излучение Черенкова с «оптической накачкой».

Угол черенковского излучения в нелинейной среде был изучен в работе [9], согласно которой сходство торможения заряженной частицы и черенковского излучения света объясняется исходя из аналогии между законами Снелла и черенковского излучения. Это естественно, поскольку оба явления можно получить из интерференционного принципа Гюйгенса (рис. 4).

На рис. 4, *a*, точка пересечения светового луча, падающего под углом ϕ на границу между двумя средами (в данном случае это граница сред с линейной и нелинейной поляризациями), вдоль которой

распространяется нелинейная поляризация, движется со скоростью $v = \frac{c}{n_1 \cos \phi}$. Применяя это соот-

ношение и закон Снелла, получим формулу для черенковского излучения $\cos\theta = \frac{c}{n_2 v}$ (см. рис. 4). Та-

ким образом, закон преломления света на границе между двумя средами аналогичен условию черенковского излучения источником, движущимся по границе. В нелинейной среде излучаемые частоты



Рис. 4. Аналогия между законами Снелла и черенковского излучения (*a*). Вывод формулы для черенковского угла из закона сохранения продольной составляющей импульса на границе между средами, вдоль которых распространяется нелинейная поляризация [9] (*б*)

Fig. 4. Analogy between Snell's law and Cherenkov radiation (a).

The point of intersection of a light pulse impinging upon a boundary two media moves with velocity $v = \frac{c}{n_1 \cos \phi}$. Combining this relation with Snell's law one obtains the Cherenkov relation, $\cos \theta = \frac{c}{n_2 v}$ [9] (a).

The Cherenkov angle relation can be obtained from the conservation of the longitudinal component of a linear momentum at a boundary between to media along which a nonlinear polarization is propagated [9] (b)

могут отличаться от частоты возбуждения, но отношение Черенкова все еще справедливо, поскольку интерференция происходит под заданным углом Черенкова для каждой составляющей частоты Фурье с нелинейной поляризацией, вызванной светом. В определенном смысле можно говорить о нелинейном эффекте Снелла – Черенкова.

Формула для черенковского угла может быть получена из закона сохранения продольной составляющей импульса на границе между средами, вдоль которых распространяется нелинейная поляризация

(см. рис. 4, δ). Используя выражение для волнового числа $k = \frac{\omega}{v}$, получим [9]

$$\cos \theta = \cos \varphi = \frac{k_{\rm nl \, pol}(\omega)}{k_{\rm em}(\omega)} = \frac{v_{\rm em}}{v_{\rm nl \, pol}} = \frac{c}{n_2(\omega)v_{\rm nl \, pol}}$$

Роль границы может играть поверхность самоканалированного филамента. Нелинейная поляризация, которая распространяется вдоль этой поверхности, приведет к черенковскому излучению. Несохранение поперечной составляющей импульса может быть связано с принципом неопределенности $\Delta x \Delta k > 1$, где Δx – толщина границы [9].

В целом микроскопический механизм лазерно-индуцированного черенковского излучения может быть представлен как неравновесный спектр всех возможных нелинейных оптических явлений в локальных точках распространения лазерного луча. Это рамановское и бриллюэновское рассеяния, up- и down-конверсия, генерация гармоник и разнообразные взаимодействия этих процессов, которые формируют непрерывный спектр от ультрафиолетовой до инфракрасной области [6].

Черенковское излучение при оптической накачке представимо как нелинейный оптический процесс со скоростью, меньшей, чем фазовая скорость света в облученном веществе. В этом случае последняя имеет физическую природу – это электромагнитная скорость «коллективного» движения заряженных частиц или заряда в веществе. Следовательно, в локальном масштабе имеют место нелинейные оптические процессы, которые ограничены конусом Маха черенковского излучения (см. рис. 2, *в*). Именно это позволяет расширить теорию Нильса и Оге Боров о микроскопическом механизме черенковского излучения на оптический диапазон возбуждения [6].

Причиной филаментации (образование нитей диаметром 50-80 мкм и длиной несколько десятков метров при распространении коллимированных фемтосекундных лазерных импульсов в воздухе, диаметром 10–20 мкм – в карбиде кремния) служит возникновение мелкомасштабной структуры самофокусировки, которое может быть вызвано образованием индуцированных дифракционных решеток и подвижных фокусов. Это явление также связано с пробоем воздуха и по своей природе, очевидно, схоже с возникновением молнии, только в нашем случае ионизация (пробой) воздушного слоя выполняется с одной стороны за счет многократной узконаправленной фотоионизации с учетом процесса облучения.

Упрощенно объяснить экспериментальные данные, представленные на рис. 2, *в*, можно следующим образом. Каскад разрушений в объеме – это след подвижных фокусов или сфокусированных колец Рэлея. Каждая стадия этого каскада (см. рис. 3) является следствием возникновения ударного оптического пробоя в конусе Маха. Механизм создания новой фазы облученного вещества схож с плоским случаем, когда имеет место генерация поверхностных нано- или микроколон, ориентированных перпендикулярно к облученной поверхности [7]. Для объемного случая (см. рис. 2, *в*, и 3) нанонити ориентированы параллельно оси конуса Маха. Волновой характер этих нанонитей определяется кристаллической структурой облученного вещества.

Перейдем теперь к моделированию геометрических размеров и формы нановоидов в карбиде кремния. Нановоиды могут быть представлены как результат лазерно-индуцированного разрушения и создания кавитационных пузырьков. Световое давление можно найти по формуле [6–8]

$$p_0 = \frac{E_{ir}}{\tau_i cS},$$

где E_{ir} – энергия облучения; τ_i – длительность импульса; c – скорость света; S – площадь зоны облучения. Для сферической симметрии

$$S = \pi r^2$$
,

здесь *r* – радиус лазерного луча.

Оценка максимального радиуса нановоидов вычисляется по модифицированной формуле Рэлея [6-8]

$$R_{\max} = \frac{T_c}{0.915} \sqrt{\frac{p_0}{\rho_0}},$$

где T_c – время образования нановоида; ρ_0 – плотность облученного материала. Величина T_c определяется из соотношения

$$T_c \simeq \frac{d_c}{v_s},$$

здесь d_c – характерный размер нановоида (кавитационного пузырька); v_s – скорость звука. Для сферического случая $d_c = 2R$, где R – радиус нановоида.

Скорость звука определяется как

$$v_s = \sqrt{\frac{E}{\rho_0}},$$

где Е – модуль Юнга.

Окончательная формула для определения $R_{\rm max}$ имеет вид

$$R_{\max} \simeq \frac{2R}{0.915r} \sqrt{\frac{E_{ir}}{\pi \tau_i c E}}.$$

Если положить r = 250 нм, R = 10 нм, E = 600 ГПа [40; 41], $E_{ir} = 130$ нДж, $\tau_i = 130$ нс, $c = 3 \cdot 10^8$ м/с, то получим $R_{max} = 11$ нм.

Скорость ударных электромагнитных волн для фемтосекундного режима облучения меньше, чем фазовая скорость света в среде.

В идеальном упругом теле имеются две составляющие скорости звука: продольная и поперечная [8]. Их значения определяются с помощью следующих формул:

$$v_{ls} = \sqrt{\frac{E(1-\nu)}{\rho_0(1+\nu)(1-2\nu)}}, \quad v_{ls} = \sqrt{\frac{E}{2\rho_0(1+\nu)}},$$

где v – коэффициент Пуассона. Отношение этих двух составляющих

$$\alpha = \frac{v_{ts}}{v_{ls}} = \sqrt{\frac{(1-2v)}{2(1-v)}}.$$
(1)

Однако такое соотношение справедливо и для ударных волн. Тогда для карбида кремния $\alpha = 0,33$ при $\nu = 0,45$. Образно говоря, последнее соотношение определяет степень «эллипсоидальности» форм нановоидов (см. рис. 2).

Можно также определить среднюю скорость звука:

$$v_{ms} = \frac{1}{2} (v_{ls} + v_{ls}) = \frac{1}{2} \left[\frac{\sqrt{2E(1-\nu)} + \sqrt{E(1-2\nu)}}{\sqrt{2\rho_0(1+\nu)(1-2\nu)}} \right]$$

В общем случае это значение надо умножить на число Маха М.

После вышеуказанных замечаний формула для определения среднего максимального радиуса $R'_{\rm max}$ нановоидов принимает вид

$$R'_{\max} = \frac{4R\sqrt{2E_{ir}(1+\nu)(1-2\nu)}}{0.915r\sqrt{\pi c\tau_i M} \left[\sqrt{2E(1-\nu)} + \sqrt{E(1-2\nu)}\right]} = 2\frac{\sqrt{2(1+\nu)(1-2\nu)}}{\sqrt{M} \left[\sqrt{2(1-\nu)} + \sqrt{(1-2\nu)}\right]}R_{\max}.$$

Для M = 1 получаем $R'_{max} = 0,75R_{max}$. Поскольку число Маха большее для миллисекундного и наносекундного режимов облучения и меньшее для фемтосекундного режима, имеет место удовлетворительное согласование с экспериментом.

Оценим R_{max} для продольной v_{ls} и поперечной v_{ts} составляющих скорости звука:

$$R_{\max l} = \sqrt{\frac{(1+\nu)(1-2\nu)}{(1-\nu)}} R_{\max} \simeq 0,51R_{\max}, \ R_{\max l} = \sqrt{2(1+\nu)}R_{\max} \simeq 1,7R_{\max}.$$
 (2)

Тогда параметр α в (1) может быть определен также как

$$\alpha = \frac{R_{\max l}}{R_{\max t}} = 0,33.$$

По формулам (2) можно оценить максимальные продольные и поперечные радиусы – они составят 6 и 19 нм соответственно.

Здесь мы рассматривали 4H-SiC как изотропное упругое тело, а не кристаллическую гексагональную структуру. Но для качественного объяснения экспериментальных данных, представленных на рис. 2, эта модифицированная модель Рэлея позволяет также оценить размеры и формы нановоидов.

Таким образом, с помощью приведенной системы моделей можно исследовать основные особенности рассматриваемых экспериментальных данных.

Заключение

В данной работе проанализированы экспериментальные результаты по лазерно-индуцированному образованию филаментов в различных средах.

Для объяснения цепочки лазерно-индуцированных процессов, которые приводят к филаментации и каскаду разрушений в случае карбида кремния, разработан и приведен комплекс моделей – модифицированные модели Рэлея (дифракционного расслоения лазерного луча и образования нанонитей и нановоидов).

Показана роль черенковского излучения в формировании филаментов в различных средах и образовании фазовых трансформаций в карбиде кремния.

Выполнен энергетический физико-химический расчет цепочки взаимосвязанных процессов: порог возникновения самофокусировки – дифракционное расслоение пучка – необратимые фазовые превращения в облучаемом материале. Приведены соответствующие оценки для карбида кремния.

Сделан вывод, что с вышеописанной точки зрения следует анализировать экспериментальные результаты по образованию филаментов в жидкостях и газах.

Библиографические ссылки

1. Trokhimchuck PP. Problems of reradiation and reabsorption in nonlinear and relaxed optics. *International Journal of Advanced Research in Physical Science*. 2017;4(2):37–50.

2. Nagura C, Suda A, Kawano H, Obara M, Midorikawa K. Generation and characterization of ultrafast white-light continuum in condensed media. *Applied Optics*. 2002;41(18):3735–3742. DOI: 10.1364/AO.41.003735.

3. Okada T, Tomita T, Matsuo S, Hashimoto S, Ishida Y, Kiyama S, et al. Formation of periodic strain layers associated with nanovoids inside a silicon carbide single crystal induced by femtosecond laser irradiation. *Journal of Applied Physics*. 2009;106(5):054307. DOI: 10.1063/1.3211311.

4. Okada T, Tomita T, Matsuo S, Hashimoto S, Kashino R, Ito T. Formation of nanovoids in femtosecond laser irradiated single crystal silicon carbide. *Material Science Forum*. 2012:725(4):19–22. DOI: 10.4028/www.scientific.net/MSF.725.19.

5. Boyd RW, Lukishova SG, Shen Y-R, editors. *Self-Focusing: Past and Present*. New York: Springer Verlag; 2009. 605 p. (Topics in Applied Physics; volume 114).

6. Trokhimchuck PP. Problems of modeling diffraction and interference processes in nonlinear and relaxed optics. *International Journal of Advanced Research in Physical Science*. 2019;6(7):5–17.

7. Trokhimchuck PP. Problems of modeling the phase transformations in nonlinear and relaxed optics. *International Journal of Engineering Research and Development*. 2018;14(2):48–61.

8. Trokhimchuck PP. Some problems of modeling the volume processes of relaxed optics. *International Journal of Advanced Research in Physical Science*. 2018;5(11):1–14.

9. Golub I. Optical characteristics of supercontinuum generation. *Optics Letters*. 1990;15(6):305–307. DOI: 10.1364/OL.15.000305. 10. Golub I, Shuker R, Eres G. On the optical characteristics of the conical emission. *Optics Communications*. 1986;57(2):143–145.

DOI: 10.1016/0030-4018(86)90145-8.

11. Marburger JH. Self-fiocusing: theory. Progress in Quantum Electronics. 1975;4(1):35–110. DOI: 10.1016/0079-6727(75)90003-8.

12. Berge L, Skupin S, Lederer F, Mejean G, Yu J, Kasparian J, et al. Multiple filamentation of terawatt laser in laser. *Physical Review Letters*. 2004;92(22):225002. DOI: 10.1103/PhysRevLett.92.225002.

13. Франк ИМ. Излучение Вавилова – Черенкова. Вопросы теории. Москва: Наука; 1988. 288 с.

14. Бор Н. Прохождение заряженных частиц через вещество. Москва: Иностранная литература; 1950. 148 с.

15. Шен ИР. Принципы нелинейной оптики. Шумай НЛ, переводчик. Москва: Наука; 1989. 559 с.

References

1. Trokhimchuck PP. Problems of reradiation and reabsorption in nonlinear and relaxed optics. *International Journal of Advanced Research in Physical Science*. 2017;4(2):37–50.

2. Nagura C, Suda A, Kawano H, Obara M, Midorikawa K. Generation and characterization of ultrafast white-light continuum in condensed media. *Applied Optics*. 2002;41(18):3735–3742. DOI: 10.1364/AO.41.003735.

3. Okada T, Tomita T, Matsuo S, Hashimoto S, Ishida Y, Kiyama S, et al. Formation of periodic strain layers associated with nanovoids inside a silicon carbide single crystal induced by femtosecond laser irradiation. *Journal of Applied Physics*. 2009;106(5):054307. DOI: 10.1063/1.3211311.

4. Okada T, Tomita T, Matsuo S, Hashimoto S, Kashino R, Ito T. Formation of nanovoids in femtosecond laser irradiated single crystal silicon carbide. *Material Science Forum*. 2012;725(4):19–22. DOI: 10.4028/www.scientific.net/MSF.725.19.

5. Boyd RW, Lukishova SG, Shen Y-R, editors. *Self-Focusing: Past and Present*. New York: Springer Verlag; 2009. 605 p. (Topics in Applied Physics; volume 114).

6. Trokhimchuck PP. Problems of modeling diffraction and interference processes in nonlinear and relaxed optics. *International Journal of Advanced Research in Physical Science*. 2019;6(7):5–17.

7. Trokhimchuck PP. Problems of modeling the phase transformations in nonlinear and relaxed optics. *International Journal of Engineering Research and Development*. 2018;14(2):48–61.

8. Trokhimchuck PP. Some problems of modeling the volume processes of relaxed optics. *International Journal of Advanced Research in Physical Science*. 2018;5(11):1–14.

Golub I. Optical characteristics of supercontinuum generation. *Optics Letters*. 1990;15(6):305–307. DOI: 10.1364/OL.15.000305.
 Golub I, Shuker R, Eres G. On the optical characteristics of the conical emission. *Optics Communications*. 1986;57(2):143–145.
 DOI: 10.1016/0030-4018(86)90145-8.

11. Marburger JH. Self-fiocusing: theory. Progress in Quantum Electronics. 1975;4(1):35–110. DOI: 10.1016/0079-6727(75)90003-8.

12. Berge L, Skupin S, Lederer F, Mejean G, Yu J, Kasparian J, et al. Multiple filamentation of terawatt laser in laser. *Physical Review Letters*. 2004;92(22):225002. DOI: 10.1103/PhysRevLett.92.225002.

13. Frank IM. Izluchenie Vavilova - Cherenkova. Voprosy teorii [Cherenkov Radiation. Theoretical Aspects]. Moscow: Nauka; 1988. 288 p. Russian.

14. Bohr N. *Prokhozhdenie zaryazhennykh chastits cherez veshchestvo* [The passage of charged particles through matter]. Moscow: Inostrannaya literatura; 1950. 148 p. Russian.

15. Shen YR. Principles of nonlinear optics. New York: John Willey & Sons; 1984.

Russian edition: Shen YR. Printsipy nelineinoi optiki. Shumai NL, translation. Moscow: Nauka; 1989. 559 p.

Статья поступила в редколлегию 03.12.2019. Received by editorial board 03.12.2019.