

ВОЗДЕЙСТВИЕ ЛАЗЕРНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ НА ВЕЩЕСТВО

Процессы взаимодействия лазерного излучения с пористыми прозрачными материалами при их абляции

В.В.Осипов, В.В.Лисенков, В.В.Платонов, Е.В.Тихонов

Теоретически исследовано воздействие излучения волоконного иттербиевого лазера с $\lambda = 1.07$ мкм на прессованные микрочастицы из прозрачных оксидов и фторидов (CaF_2 , Y_2O_3 , Al_2O_3 , YSZ и др.), имеющих низкие показатели поглощения ($10^{-3} - 10^{-4} \text{ см}^{-1}$). Путём численного моделирования установлено, что рассеяние излучения в среде из частиц диаметром 0.5–4.6 мкм приводит к его концентрированию в локальных участках среды до уровня интенсивности, превышающей интенсивность падающего излучения (0.46 МВт/см²) во много раз. Показано, что с ростом показателя преломления n материала частиц с 1.38 (MgF_2) до 2.12 (YSZ) интенсивность излучения в области самого сильного локального максимума увеличивается с 3.8 до 31 МВт/см². По нашему мнению, данный фактор может оказывать решающее влияние на возможность достижения абляции такой среды с помощью излучения с интенсивностью не более 1 МВт/см². Это предположение было проверено экспериментально на примере получения нанопорошка из CaF_2 ($n = 1.43$) и 1% Nd:Y₂O₃ ($n = 1.91$) путём испарения прессованной мишени с пористостью 50% непрерывным излучением волоконного иттербиевого лазера с мощностью 600 Вт и интенсивностью 0.4 МВт/см². Внутри мишени из CaF_2 интенсивность рассеянного излучения была меньше порога оптического разрушения, и мишень не испарялась. При тех же условиях мишень из более тугоплавкого 1% Nd:Y₂O₃ хорошо испарялась, а производительность получения нанопорошка составляла 23 г/ч.

Ключевые слова: лазерная абляция высокодисперсных прозрачных материалов, уравнение Гельмгольца, рассеяние лазерного излучения, оптический резонанс, волоконный иттербиевый лазер, наночастицы.

1. Введение

Исследование процессов, сопровождающих абляцию мишеней из прозрачного пористого диэлектрика, важно для создания модели и совершенствования технологий лазерной резки, получения нанопорошков, разработки 3D технологий с использованием таких материалов. Важными в ходе этих исследований представляются ответы на следующие вопросы: чем обусловлены различия в абляции материалов с близкими теплофизическими свойствами и прозрачностью, а также почему пороговые мощности абляции в пористых прозрачных материалах, как правило, на порядок ниже, чем в монокристаллах, и каковы основные причины возникновения абляции в этих материалах?

Эти вопросы возникают и при воздействии на Nd:Y₂O₃, Nd:YAG, ZrO₂:Y₂O₃ (YSZ) или Al₂O₃ лазерного излучения с длиной волны, попадающей в область прозрачности этих материалов, общим свойством которых является то, что в монокристаллическом виде они имеют малый показатель поглощения ($10^{-3} - 10^{-4} \text{ см}^{-1}$) на $\lambda = 1.07$ мкм [1–3] и, соответственно, достаточно высокий порог лучевого разрушения. В частности, порог разрушения поверхности монокристаллов рубина или сапфира излучением с $\lambda = 0.69$ мкм, также попадающим в область

их прозрачности, при длительности импульсов $\tau = 10 - 400$ мкс составляет 1–10 МВт/см² [4]. Пороговая интенсивность разрушения данных монокристаллов хорошего оптического качества ещё выше [5]. В этих условиях разрушение реализуется за счёт поглощения лазерного излучения микродефектами их структуры или примесями. Однако мишени из плохо припеченных микрочастиц Al₂O₃, Nd:Y₂O₃ или YSZ, имеющие пористость ~50%, хорошо испаряются и при гораздо меньшей интенсивности излучения (0.46 МВт/см²) с $\lambda = 1.07$ мкм и $\tau = 50 - 4000$ мкс [6–10].

Ранее нами была предложена модель начальной фазы (до момента образования лазерного факела) абляции полупрозрачного оплавленного слоя, образующегося на поверхности пористой мишени из оксида иттрия при получении нанопорошка [6, 7]. В модели рассматривалось поглощение излучения волоконного лазера некоторыми содержащимися в мишени дефектами структуры с более высоким показателем поглощения, чем у окружающего их вещества. Это позволило качественно объяснить многократное увеличение времени задержки образования лазерного факела при испарении полупрозрачной мишени по сравнению с аналогичной величиной для прессованной мишени тем, что полупрозрачная мишень содержит меньше дефектов. Однако в модели не учитывались имеющие место процессы рассеяния и интерференции лазерного излучения на поглощающих дефектах или каких-либо других оптических неоднородностях мишени.

Необходимость учета этих процессов была продемонстрирована в ряде работ на примере взаимодействия лазерного излучения с одной частицей. Авторами [11, 12] показано, что при определённом сочетании длины волны падающего света, показателя преломления и диаметра частицы она может выступать в роли высокодобротного

В.В.Осипов, В.В.Платонов, Е.В.Тихонов. Институт электрофизики УрО РАН, Россия, 620016 Екатеринбург, ул. Амундсена, 106; e-mail: osipov@ier.uran.ru, platonov@ier.uran.ru

В.В.Лисенков. Институт электрофизики УрО РАН, Россия, 620016 Екатеринбург, ул. Амундсена, 106; УрФУ имени первого Президента России Б.Н.Ельцина, Россия, 620002 Екатеринбург, ул. Мира, 19; e-mail: lisenkov@ier.uran.ru

Поступила в редакцию 7 декабря 2017 г.

резонатора. При этом резонансно увеличивается амплитуда сферических мод рассеянного электромагнитного поля, собственная частота которых совпадает с частотой падающего света. Это может привести к росту интенсивности света внутри частицы на два порядка, а также к возникновению резонанса Фано при интерференции этих резонансных мод вне частицы со светом, рассеянным её поверхностью. Это приводит к модуляции как угла рассеяния, так и суммарной интенсивности рассеянного излучения. Аналогичные процессы происходят и при образовании фотонной струи – увеличении интенсивности света в узкой локальной области, расположенной в ближней дифракционной зоне освещённой лазерным излучением прозрачной микрочастицы [13]. Подобные расчёты проведены и при изучении фотонных кристаллов [14]. Нужно отметить, что теоретические исследования [11–14] ограничиваются выяснением распределения интенсивности излучения внутри или вне одиночной частицы или их ансамбля, а влияние фактора рассеяния на поглощение изучения микрочастицами, их последующий нагрев и испарение не рассматривается.

При теоретических исследованиях силового воздействия излучения лазера с достаточно высокой средней мощностью на порошковые или пористые оптические среды последние представляются в виде непрерывного континуума с усредненными характеристиками. Примером может служить работа [15], где рассматриваются нагрев и плавление керамики из SiO_2 с пористостью 50% лазерным излучением с интенсивностью 10^2 – 10^5 Вт/см². В [16] моделировалось проникновение лазерного излучения в однородный слой порошка из непрозрачных зеркально отражающих металлических частиц, характеризующийся некоторым эффективным коэффициентом рассеяния. Эти исследования не учитывают дифракционные и интерференционные эффекты, которые могут возникнуть в подобных средах на микроуровне. Единственным известным нам исключением является работа [17], в которой проведены экспериментальное и теоретическое исследования прохождения лазерного излучения через среду из порошка, содержащего сферические металлические частицы диаметром 1–12 мкм. Согласно развитой двумерной численной модели, базирующейся на уравнении Гельмгольца, рассеяние света частицами приводит к образованию множества локальных максимумов интенсивности излучения между ними. В то же время эта модель не учитывает прозрачность частиц и, соответственно, преломление ими излучения, поскольку она разработана для металлических непрозрачных микрочастиц.

Целью настоящей работы является создание численной модели распространения пучка лазерного излучения с $\lambda = 1.07$ мкм в прессованном порошке из прозрачных микрочастиц (Al_2O_3 , SiO_2 , Y_2O_3 , YSZ, CaF_2 , MgF_2 , BaF_2 и т.п.) на основе решения волнового уравнения Гельмгольца, которая учитывает преломление, отражение и интерференцию излучения внутри такой среды, а также качественная проверка её основных выводов на примере получения нанопорошков из этих материалов с помощью излучения волоконного иттербиевого лазера.

2. Экспериментальные установки и методики

Для получения нанопорошков флюорита (CaF_2) и 1%Nd:Y₂O₃ использовались волоконный иттербиевый лазер ЛС-07Н и импульсно-периодический СО₂-лазер

(ЛАЭРТ). Конструкция и принцип работы установки для получения наночастиц подробно описаны в [6, 7, 18]. В обоих случаях мишень устанавливалась в испарительную камеру, снабжённую фокусирующей линзой. Испарение мишени проводилось в потоке аргона атмосферного давления, поскольку при температуре выше 900 °С флюорит гидролизуетсся содержащимися в атмосферном воздухе парами воды с образованием газообразного HF [19]. Технический аргон (чистота 99.993 об.%) подавался из стандартного баллона с помощью редуктора. При испарении флюорита излучением волоконного лазера объёмный расход аргона составлял 4.5 м³/ч, а в случае СО₂-лазера – 5.3 м³/ч. В случае использования волоконного лазера нанопорошок оксида иттрия получали в воздухе, который прокачивался мембранным компрессором через испарительную камеру. Давление воздуха в ней было равно 1 атм, а его расход составлял 4.5 м³/ч. Образующиеся в лазерном факеле наночастицы, микронные капли и осколки мишени вместе с потоком газа переносились сначала в циклон для улавливания микронных частиц, а затем в рукавный фильтр, где осаждалась подавляющая часть наночастиц. Для обеспечения однородной выработки мишени она перемещалась с помощью механического привода.

При воздействии на мишени из флюорита СО₂-лазер генерировал импульсы излучения с длительностью ~330 мкс и энергией 0.9 Дж при пиковой мощности 7 кВт. Средняя мощность излучения составляла 450 Вт при частоте следования импульсов 500 Гц. Линза из KCl с $F = 107$ мм фокусировала лазерный пучок на мишень в эллиптическое пятно с размерами 0.75 × 0.9 мм, пиковая интенсивность излучения составляла 1.3 МВт/см². Линейная скорость перемещения лазерного пучка по мишени равнялась 35 см/с.

Непрерывное излучение волоконного иттербиевого лазера фокусировалось на поверхность мишени кварцевой линзой с $F = 400$ мм в круглое пятно диаметром 430 мкм. При этом усреднённая по пятну интенсивность лазерного излучения была равна 0.4 МВт/см². Скорость перемещения пучка по мишени составляла 67 см/с. Дополнительно проводились эксперименты по испарению неподвижной мишени из флюорита одиночными прямоугольными импульсами мощностью 600 Вт с длительностью от 100 мкс до 10 мс. В этих опытах фокусировка излучения осуществлялась линзами с фокусным расстоянием F , равным 200, 400 или 600 мм. Диаметры пятен фокусировки при использовании двух последних линз составляли 250 и 700 мкм, а интенсивности излучения в пятнах – 1.2 и 0.16 МВт/см² соответственно. После каждого лазерного импульса мишень передвигалась.

Мишени из флюорита изготавливались из микропорошка с содержанием основного вещества 98.6% (квалификация «Ч»). Порошок прессовался одноосным прессом в цилиндры диаметром 65 мм, которые спекались на воздухе в камерной печи в течение четырёх часов. Чтобы избежать пирогидролитического разложения CaF_2 в мишени её температура спекания была выбрана равной 740 °С, что заведомо меньше температуры, при которой начинается этот процесс (900 °С). После спекания относительная плотность мишени составила ~60% от теоретической плотности. Мишени из 1% Nd:Y₂O₃ были приготовлены из механической смеси микропорошков простых оксидов Y₂O₃ и Nd₂O₃ аналогичным образом. Их относительная плотность после спекания при температуре 1300 °С составила ~55%.

3. Теоретическая модель

Воздействие излучения волоконного лазера на прозрачную порошковую диэлектрическую среду исследовалось путём численного решения волнового уравнения Гельмгольца для электромагнитной волны, распространяющейся в двумерной среде, состоящей из прозрачных частиц с показателем преломления n_p и воздуха с $n_{air} = 1$:

$$\Delta E + k^2 \epsilon_r E = 0,$$

где E – амплитуда напряжённости электрического поля; $k = 2\pi/\lambda$ – волновое число; ϵ_r – диэлектрическая проницаемость материала.

В качестве материалов для исследования были выбраны MgF_2 ($n_p = 1.38$), CaF_2 (1.43), BaF_2 (1.47), SiO_2 (1.54), BeO (1.71), $MgAl_2O_4$ (1.70), Al_2O_3 (1.75), Y_2O_3 (1.90) и YSZ (2.12). Их показатели поглощения на $\lambda = 1.07$ мкм имеют достаточно малые значения ($10^{-2} - 10^{-4} \text{ см}^{-1}$), т.е. характерная глубина проникновения излучения в идеальные монокристаллы из этих материалов составляет $10^2 - 10^4$ см. Поэтому при размерах частиц в прессованной мишени ~ 1 мкм и размерах расчётной области ~ 200 мкм собственное поглощение материалом лазерного излучения практически не влияет на общую картину его рассеяния. Кроме того, на данном этапе расчётов не учитывался нагрев частиц лазерным излучением и, соответственно, температурная зависимость их показателя преломления n_p .

В качестве граничных условий задачи использовалось условие сохранения тангенциальной составляющей электрического поля на границе раздела двух сред с различными показателями преломления:

$$\mathbf{n} \times \mathbf{E} = \mathbf{n} \times \mathbf{E}_0,$$

где \mathbf{E}_0 и \mathbf{E} – векторы напряжённости электрического поля до и после границы раздела этих сред соответственно; \mathbf{n} – вектор нормали к границе раздела. Кроме того, было принято, что границы расчётной области не отражают излучение и являются полностью прозрачными.

Соотношение между амплитудой напряжённости электрического поля $E(x, y)$ и интенсивностью лазерного излучения задавалось известной формулой для линейно-поляризованного излучения [20], которая в системе СИ имеет следующий вид:

$$E = \sqrt{\frac{2I}{c\epsilon_0}},$$

где I – интенсивность лазерного излучения; c – скорость света в вакууме; ϵ_0 – электрическая постоянная.

Во всех расчётах интенсивность падающего лазерного излучения I_0 была одинаковой и составляла 0.46 МВт/см^2 , поскольку именно эта величина реализовывалась в эксперименте при фокусировке излучения линзой с фокусным расстоянием 400 мм в пятно диаметром 430 мкм. Согласно приведённой выше формуле, эта интенсивность соответствует напряжённости электрического поля $E_0 = 1.81 \times 10^6 \text{ В/м}$. Варьируемыми параметрами являлись показатель преломления материала частиц n_p и их диаметр D . Все расчёты проводились для излучения волоконного итербиевого лазера с $\lambda = 1.07$ мкм.

При расчётах использовались два варианта конфигурации расчётной области. На рис.1,а изображена цент-

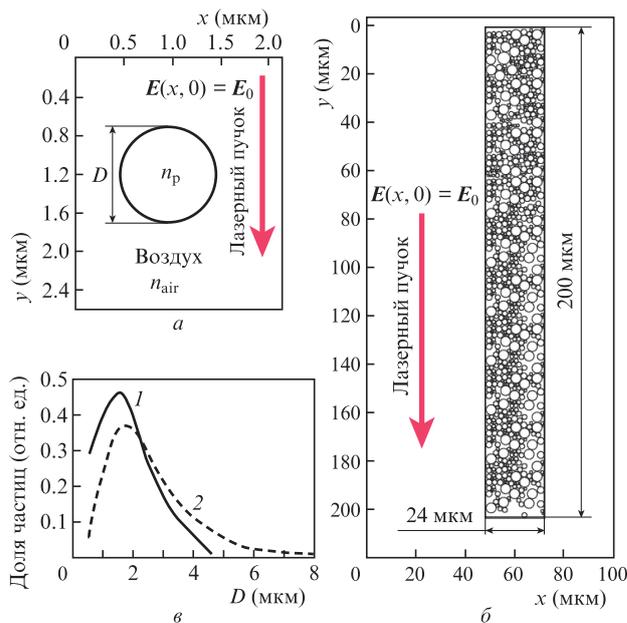


Рис.1. Геометрия расчётной области для случаев одиночной частицы (а) и прессованного порошка (б), а также распределения по размерам (в) частиц в расчётной области (1) и частиц исходного сырья Y_2O_3 (2).

ральная часть расчётной области, используемая для моделирования взаимодействия излучения с одиночной круглой частицей диаметром D с показателем преломления n_p , окружённой воздухом с $n_{air} = 1$. Частица помещалась в прямоугольную расчётную область с размерами 50×100 мкм. Данная конфигурация расчётной области использовалась, главным образом, для тестирования модели. Кроме того, некоторые полученные закономерности имеют более наглядный вид, поскольку в этом случае на конфигурацию поля не влияет рассеяние излучения соседними частицами. Это облегчило нам анализ результатов в случае порошковой среды.

Для численных расчётов рассеяния лазерного излучения прессованными порошками использовалась модель с геометрией расчётной области, которая качественно является аналогом реальных мишеней, используемых в экспериментах по получению нанопорошка (рис.1,б). В этом случае прямоугольная область с размерами 24×200 мкм заполнялась круглыми частицами, имеющими одинаковый показатель преломления n_p . Для обоснованного выбора среднего размера этих частиц исходный порошок Y_2O_3 был сфотографирован с помощью оптического микроскопа OLYMPUS BX51TRF-5. Построенное на основе полученных фотографий распределение частиц по размерам (рис.1,в, кривая 2) показало, что диаметры большинства частиц в исходном микропорошке составляют от 400 нм до 5 мкм, однако имелись отдельные частицы с диаметрами до 8 мкм. В соответствии с этим расчётная область была в случайном порядке заполнена частицами с диаметрами 0.55–4.6 мкм (рис.1,в, кривая 1). Построенные распределения имеют нормально-логарифмический вид, при этом их максимумы практически совпадают и соответствуют диаметру частиц 1.5–1.7 мкм. Плотность упаковки частиц в расчётной области составляла 55%, что соответствует относительной плотности мишеней, используемых в экспериментах. Необходимо отметить, что данная модель только качественно описывает реальную мишень из прессованного микропорошка, поскольку

в реальных порошках и прессованных компактах частицы имеют форму скорее неправильных многогранников.

На верхней границе обеих расчётных областей задавалось значение амплитуды напряжённости электрического поля для падающего лазерного излучения $E_0 = 1.81 \times 10^6$ В/м. Излучение внутри расчётной области распространялось в направлении, указанном на рис.1 стрелками.

4. Обсуждение результатов расчётов и эксперимента

На первом этапе решалась задача о рассеянии излучения волоконного лазера на одиночных частицах. На рис.2 показаны распределения интенсивности излучения волоконного лазера при его рассеянии частицами из CaF_2 (рис.2,а) и Y_2O_3 (рис.2,б) с $D = 10$ мкм. Для наглядности показана увеличенная центральная часть расчётной области, содержащая частицу. В обоих случаях обращает на себя внимание то, что в некоторых локальных участках расчётной области интенсивность рассеянного излучения значительно превышает интенсивность излучения, падающего на частицу. Условно назовём такие области с повышенной интенсивностью областями локальных макси-

мумов. Их возникновение обусловлено интерференцией двух составляющих лазерного излучения при его взаимодействии с частицей. Появление одной из них вызвано рассеянием излучения наружной поверхностью частицы, а другой – преломлением проходящего сквозь частицы излучения и его переотражением внутри неё. На рис.2 видно, что с изменением показателя преломления меняется как пространственная локализация области с повышенной интенсивностью, так и максимальная интенсивность излучения в данной области. Так, для CaF_2 ($n_p = 1.43$) область локального максимума представляет собой «хвост» протяжённостью $\sim 10\lambda$, похожий на фотонную струю [13], максимальная интенсивность излучения в котором I_{\max} составляет 5.37×10^6 Вт/см². При увеличении показателя преломления материала до 1.90 (Y_2O_3) область локального максимума пространственно уже практически не выходит за пределы частицы – излучение фокусируется или внутри неё, или очень близко от поверхности. При этом область локального максимума уже не имеет форму ярко выраженной струи. Протяжённость данной области составляет $\sim 2\lambda$, а максимальная интенсивность в ней $I_{\max} = 1.04 \times 10^7$ Вт/см², что почти в два раза больше, чем в случае флюорита (CaF_2).

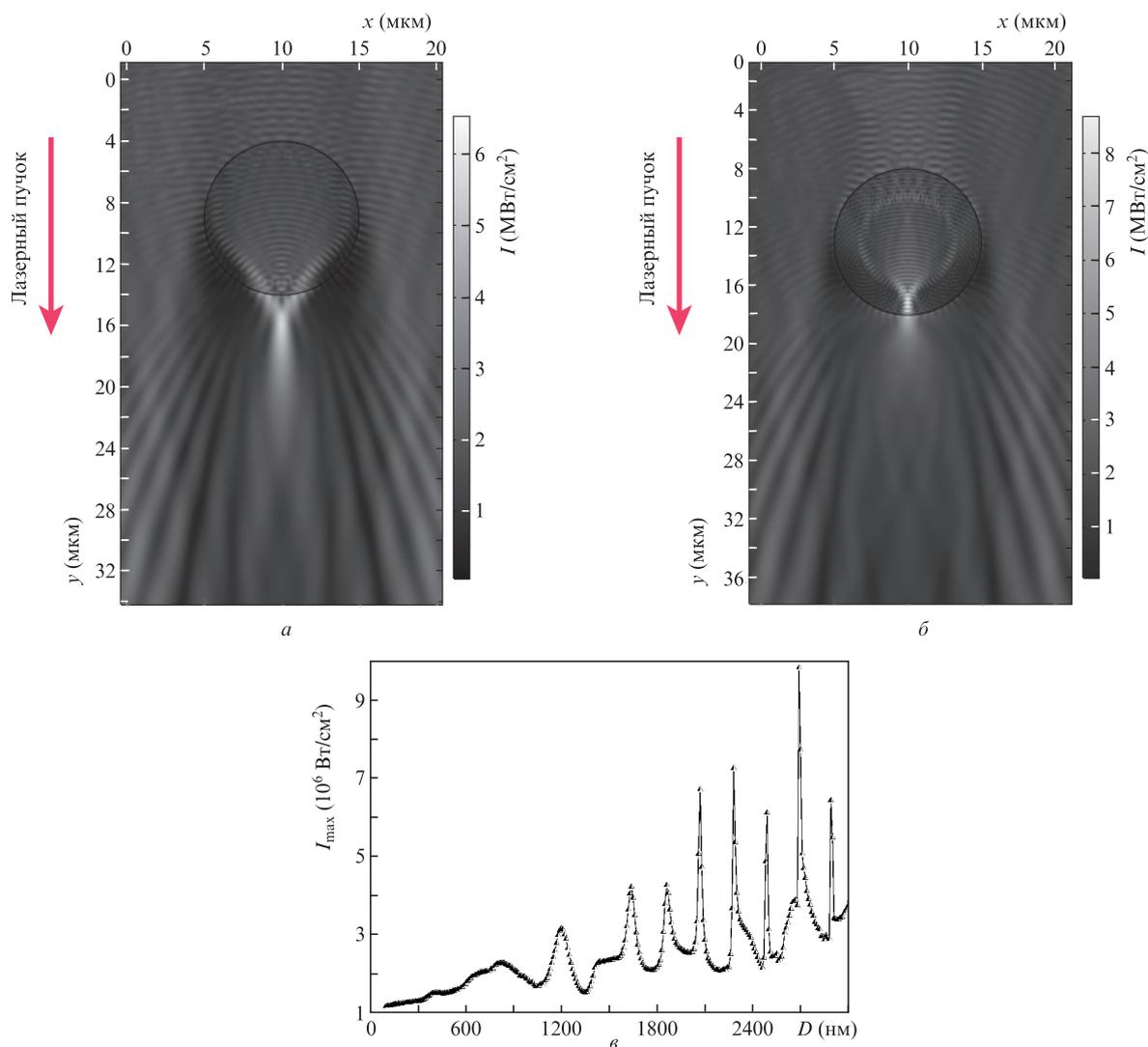


Рис.2. Распределения интенсивности излучения волоконного лазера ($\lambda = 1.07$ мкм, $I_0 = 0.46$ МВт/см²) при рассеянии на одиночных частицах из CaF_2 ($n_p = 1.43$) (а) и Y_2O_3 ($n_p = 1.90$) (б), а также зависимость максимальной интенсивности рассеянного излучения I_{\max} от диаметра частицы D из Y_2O_3 (в).

Таким образом, в случае рассеяния излучения прозрачными микрочастицами при определённом соотношении длины волны излучения, диаметра частицы и её показателя преломления могут возникать оптические резонансы, способные существенно изменять пространственное распределение интенсивности рассеянного излучения. Превышение её в локальных максимумах над пороговым значением может значительно увеличить вероятность развития оптического пробоя внутри или на поверхности микрочастицы (в общем случае – в порошковой среде). Поэтому нами была рассчитана зависимость максимальной интенсивности излучения с $\lambda = 1.07$ мкм в локальных максимумах от диаметра одиночной рассеивающей частицы (на примере Y_2O_3). Как видно из рис.2,в, эта зависимость имеет немонотонный характер. При диаметре частицы менее $\lambda/5$ (~ 200 нм) излучение рассеивается её поверхностью согласно теории Рэлея, не проникая внутрь. При этом по мере роста диаметра частицы практически линейно возрастает и максимальная интенсивность излучения в локальных максимумах. При диаметре частицы более $\lambda/4$ (~ 270 нм) начинается заметное проникновение электромагнитного поля внутрь её объёма. При диаметрах частиц 240–400 нм максимальная интенсивность лазерного излучения внутри частицы составляет $\sim 10^6$ Вт/см². С дальнейшим увеличением диаметра частицы ($D > 3\lambda/4$) зависимость приобретает резко резонансный характер. Так, для частицы из Y_2O_3 диаметром 2690 нм интенсивность в области локального максимума достигает $\sim 10^7$ Вт/см², что примерно в 20 раз больше интенсивности падающего на частицу лазерного излучения. Таким обра-

зом, прозрачная микрочастица при определённом соотношении между n_p , D и λ может выступать в роли оптического резонатора. В этом случае интерференция падающего излучения с излучением, рассеянным и преломлённым поверхностью частицы, а также переотражённым внутри микрочастицы, приведёт к резонансному увеличению интенсивности излучения в некоторых участках расчётной области. При этом в зависимости от величин n_p , D и λ пространственная структура в области локального максимума и максимальная интенсивность излучения в нём могут существенно различаться.

Реальные порошковые среды, в том числе и прессованные мишени, используемые нами для испарения, состоят из множества частиц, имеющих разные размеры. С одной стороны, в такой среде всегда найдётся частица, для которой будет выполнено условие оптического резонанса. С другой стороны, говорить о локальном максимуме от одной частицы в данном случае нецелесообразно, поскольку общая картина распределения рассеянного излучения формируется всем ансамблем частиц, образующим мишень. В связи с этим на втором этапе расчётов рассматривалось взаимодействие лазерного излучения с порошковой средой, состоящей из круглых частиц с показателем преломления n (геометрия расчётной области показана рис.1,б). На рис.3 приведены распределения интенсивности излучения в порошковой среде из CaF_2 и Y_2O_3 для того участка расчётной области, на который первоначально падает излучение волоконного лазера ($\lambda = 1.07$ мкм). Видно, что рассеяние излучения в порошковой среде носит хаотичный характер из-за случайного распо-

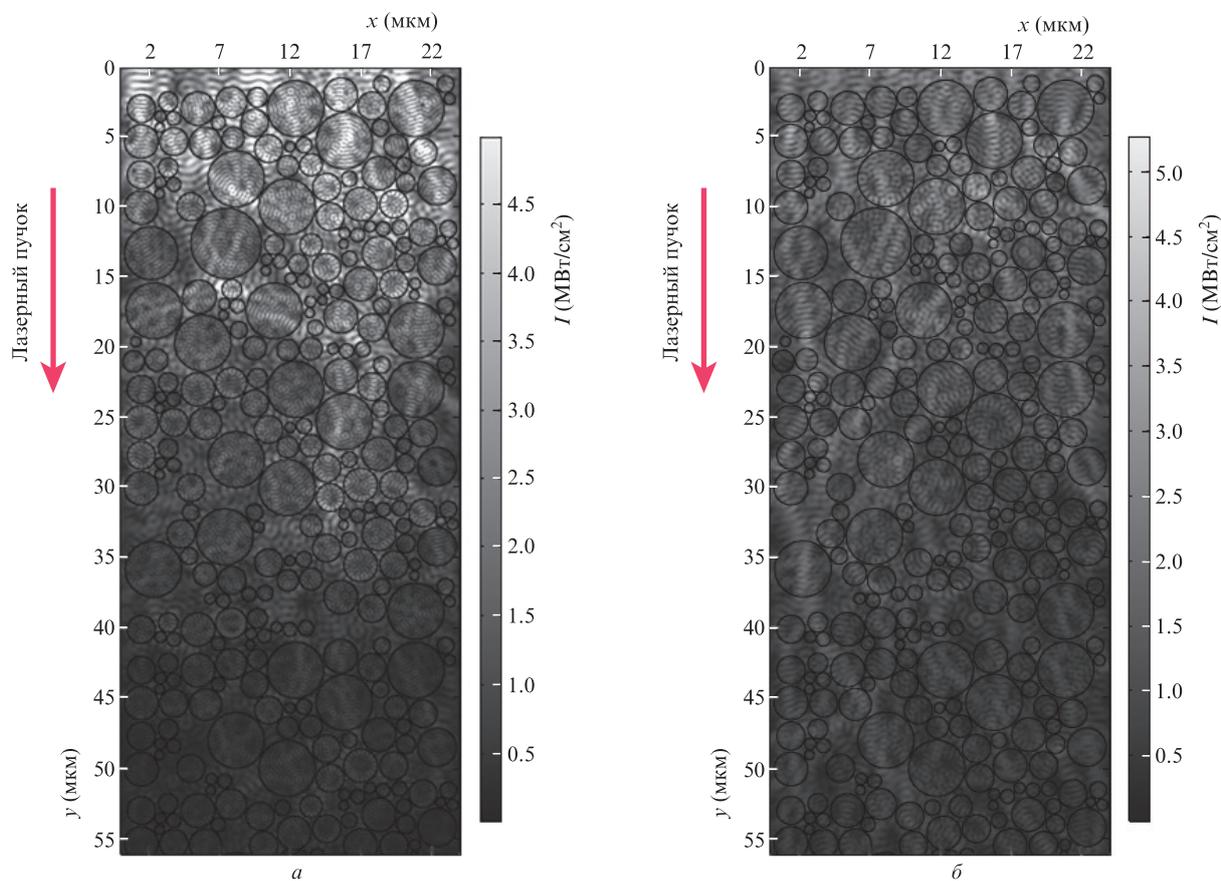


Рис.3. Распределения интенсивности излучения волоконного лазера с $I_0 = 0.46$ МВт/см², рассеянного в прессованных порошках из CaF_2 ($n_p = 1.43$) (а) и Y_2O_3 ($n_p = 1.90$) (б).

ложения частиц. Очевидно, что при изменении их расположения и размеров значительно изменится и распределение лазерного излучения в порошке. Поскольку диаметр большинства частиц находится в диапазоне $(1-3)\lambda$, то лазерное излучение хорошо проникает в них. В целом наблюдается более сложная по сравнению со случаем одиночной частицы интерференционная картина ослабления лазерного пучка за счёт его преломления и рассеяния. Однако и здесь в некоторых локальных участках расчётной области интенсивность излучения в результате его концентрации превышает интенсивность падающего на мишень лазерного излучения I_0 . При этом существенно рассеяние излучения не только вперёд, но и в боковых направлениях, а также назад (соседними или более глубоко расположенными микрочастицами). С ростом показателя преломления частиц усиливаются преломление и отражение лазерного пучка на их границах, что приводит к увеличению интенсивности излучения в областях локальных максимумов, расположенных вблизи поверхности мишени.

Для более наглядного исследования характера изменения интенсивности распространяющегося в порошке лазерного излучения мы разделили расчётную область с прессованным порошком на слои, перпендикулярные направлению распространения падающего лазерного пучка. Усреднение величины интенсивности рассеянного излучения в каждом слое позволило нам численно охарактеризовать спад интенсивности излучения по мере его распространения в мишени. На рис.4 приведены зависимости, полученные для CaF_2 , Al_2O_3 , Y_2O_3 и YSZ. Видно, что интенсивности излучения по всей глубине затухания сильно флуктуируют, однако в целом уменьшаются по мере увеличения глубины. Этот спад оказалось возможным оценить количественно путём аппроксимации обработанных таким образом данных расчёта с помощью закона Бугера $I = I_0 \exp(-\alpha y)$, где α (см^{-1}) – эффективный показатель затухания, учитывающий только рассеяние излучения частицами.

Обработка данных расчёта вышеописанным способом позволила численно оценить характерную глубину ослабления излучения y_α в прессованных порошках из всех исследуемых нами материалов. На рис.5 показана зависимость данного параметра от коэффициента преломления материала частиц для длины волны падающего из-

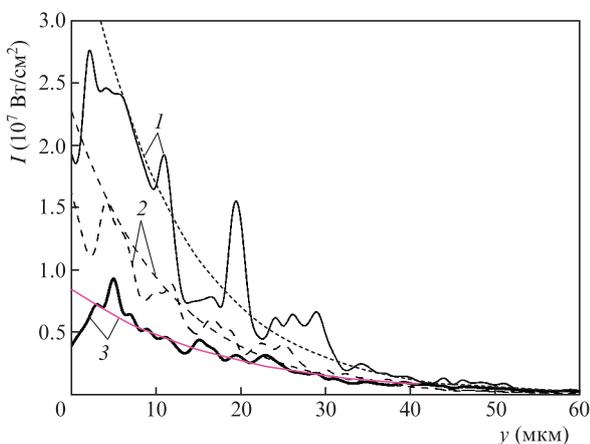


Рис.4. Усредненные по слоям расчётной области распределения интенсивности рассеянного излучения по глубине для порошков из YSZ (1), Al_2O_3 (2) и CaF_2 (3) и их аппроксимации законом Бугера ($\lambda = 1.07$ мкм, $I_0 = 0.46$ МВт/см²).

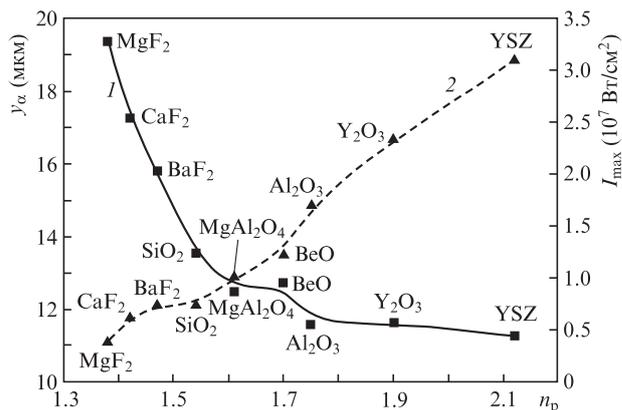


Рис.5. Зависимости характерной глубины ослабления лазерного излучения y_α (1) и максимальной интенсивности излучения в области самого сильного локального максимума I_{max} (2) от показателя преломления n_p для частиц из различных материалов ($I_0 = 0.46$ МВт/см²).

лучения 1.07 мкм (сплошная кривая). С ростом показателя преломления материала частиц n_p с 1.38 (MgF_2) до 2.12 (YSZ) характерная глубина ослабления лазерного пучка в среде вследствие более сильного рассеяния уменьшается с 19 до 11 мкм. Особенно резкий спад наблюдается в диапазоне коэффициентов преломления $n_p = 1.38-1.75$. Следовательно, для порошка флюорита (CaF_2) параметр $y_\alpha = 17$ мкм, что в 1.5 раза больше, чем для оксида иттрия.

С другой стороны, оптический пробой в порошковой среде в первую очередь должен возникать в тех местах, где интенсивность рассеянного излучения превышает пороговое значение. Поэтому важно исследовать не усреднённую по горизонтальным слоям интенсивность лазерного излучения, а её значение в локальных максимумах, возникающих при рассеянии излучения. На рис.5 представлена также зависимость максимальной интенсивности излучения, реализующейся в наиболее сильном локальном максимуме расчётной области, от показателя преломления материала частиц. Видно, что по мере уменьшения n_p с 2.12 (YSZ) до 1.38 (MgF_2) интенсивность в самом сильном локальном максимуме расчётной области уменьшается с ~ 31 МВт/см² (YSZ) до ~ 4.8 МВт/см² (MgF_2). Для флюорита и оксида иттрия I_{max} составляет ~ 6 и ~ 23 МВт/см² соответственно.

Таким образом, рассеяние излучения волоконного иттербиевого лазера в мишенях из порошков этих материалов приводит к тому, что его интенсивность в некоторых локальных областях мишени может, в зависимости от их коэффициента преломления, превышать интенсивность падающего излучения в 10–67 раз! Если это реализуется в объёме или на поверхности какой-либо частицы, то такая концентрация лазерного излучения должна способствовать её оптическому разрушению. Мы полагаем, что именно в этих локальных максимумах инициируется первоначальный нагрев мишени. Далее динамика нагрева может развиваться в соответствии с моделью [6, 7], в которой из-за нелинейной зависимости показателя поглощения от температуры возникает положительная обратная связь между поглощением излучения и температурой материала частиц. В результате происходит быстрый нагрев материала мишени в области фокального пятна лазерного пучка, его дальнейшее плавление и испарение. В том случае, когда интенсивность излучения в таких локальных максимумах оказывается меньше порогового

значения, нагрев этого участка мишени, с учётом потерь тепла на её теплопроводность, будет недостаточен для развития лазерной абляции.

Результаты наших расчётов свидетельствуют о том, что одним из важнейших факторов, влияющих на возможность лазерной абляции плотноупакованного порошка, является величина показателя преломления материала частиц. Хотя для YSZ и MgF_2 значения этого параметра различаются всего в 1.6 раза, максимальные уровни интенсивности излучения, которые реализуются в отдельных местах данных прессованных порошков, различаются уже в 6.4 раза (рис.5).

Всё вышесказанное имеет значение не только в фундаментальном плане, но и в практически важных применениях, когда возникает необходимость использовать непрерывный волоконный иттербиевый лазер или Nd:YAG-лазер средней или малой мощности в различных технологиях обработки прозрачных высокопористых диэлектриков. В этом случае интенсивность падающего на такую мишень излучения, как правило, оказывается сравнительно небольшой (~ 1 МВт/см² и менее), т.е. меньше порога лучевого разрушения этого же материала, не содержащего поры и прочие оптические неоднородности. Именно такие условия реализуются при получении нанопорошков из прозрачных оксидов YSZ, Nd:Y₂O₃, или Nd:YAG путём испарения спечённых из микропорошка мишеней с пористостью $\sim 50\%$ с помощью непрерывного волоконного лазера мощностью 0.6–1 кВт [6–8]. В этой связи исследовалось получение нанопорошка из CaF_2 ($n_p = 1.43$) с использованием волоконного лазера ЛС-07Н. Полученные при этом данные сравнивались с результатами аналогичного эксперимента для 1%Nd:Y₂O₃, имеющего гораздо более высокий показатель преломления ($n_p = 1.91$) [21]. Необходимо подчеркнуть, что монокристаллы из этих материалов на $\lambda = 1$ мкм имеют очень низкие показатели поглощения (3×10^{-3} см⁻¹ для 1%Nd:Y₂O₃ и 2×10^{-4} см⁻¹ для CaF_2) [3, 22].

Мишень из прессованного и плохо спечённого порошка 1%Nd:Y₂O₃ достаточно хорошо испаряется при мощности непрерывного излучения 600 Вт и его интенсивности на поверхности мишени ($I_0 = 0.4$ МВт/см²), меньшей порога разрушения монокристалла этого состава. Поверхность мишени становится очень неровной и покрывается слоем прозрачного оплава (рис.6,а). При распространении лазерного излучения внутри такой прессованной мишени излучение концентрируется в некоторых её областях до достаточно высокой интенсивности, вели-

чина которой I_{max} , согласно нашему расчёту, достигает 23 МВт/см², что превышает порог лучевого разрушения. Производительность получения образующегося в результате абляции мишени нанопорошка в этих условиях составила 23 г/ч. Полученные наночастицы имеют сферическую форму (рис.7,а), а их средний диаметр равен 13.6 нм.

В свою очередь при воздействии непрерывного излучения волоконного иттербиевого лазера мощностью 600 Вт с интенсивностями 0.4, 1.2 и 0.16 МВт/см² испарения мишени из CaF_2 не происходило и лазерный факел на её поверхности не возникал. После 10 минут воздействия излучения на поверхности мишени не видно практически никаких следов лазерной абляции (рис.6,б). Она даже не покрывалась оплавленным слоем, который всегда образуется при многократном испарении материала излучением с высокой средней мощностью. Видны только слабые следы нагрева поверхности мишени лазерным излучением. При этом на стенках испарительной камеры, в рукавном фильтре и в циклоне продукты абляции (нанопорошок, осколки мишени, капли) так и не появились. Необходимо отметить, что при получении нанопорошка в наших условиях лазерный пучок перемещается по мишени со скоростью 67 см/с, т.е. время его перемещения на величину диаметра пятна составляет 370–1000 мкс. За это время материал на данном участке мишени может просто не успеть нагреться и испариться. Чтобы исключить этот фактор, мы выполнили несколько экспериментов, в которых на неподвижную мишень из CaF_2 воздействовали одиночные прямоугольные импульсы излучения с длительностью 100 мкс–10 мс, мощностью 600 Вт и интенсивностью 0.16–1.2 МВт/см². После воздействия импульсов короче 10 мс видимых изменений на поверхности мишени не наблюдалось. По нашему мнению, флюорит имеет слишком маленький коэффициент преломления, и интенсивность рассеянного излучения внутри мишени даже в локальных максимумах не достигает величины, необходимой для быстрого плавления и испарения её материала. В этом случае излучение волоконного лазера полностью рассеивается в объёме мишени и нагревает её как целое.

Если материал мишени из прессованного порошка имеет низкую прозрачность или вовсе непрозрачен на длине волны лазерного излучения, то порог его лучевого разрушения будет значительно ниже, чем для прозрачных материалов. В этом случае лазерное излучение будет поглощаться на гораздо меньшей глубине, и фактор рассеяния излучения в такой среде уже не будет играть решающей роли при её абляции. В частности, на длине волны

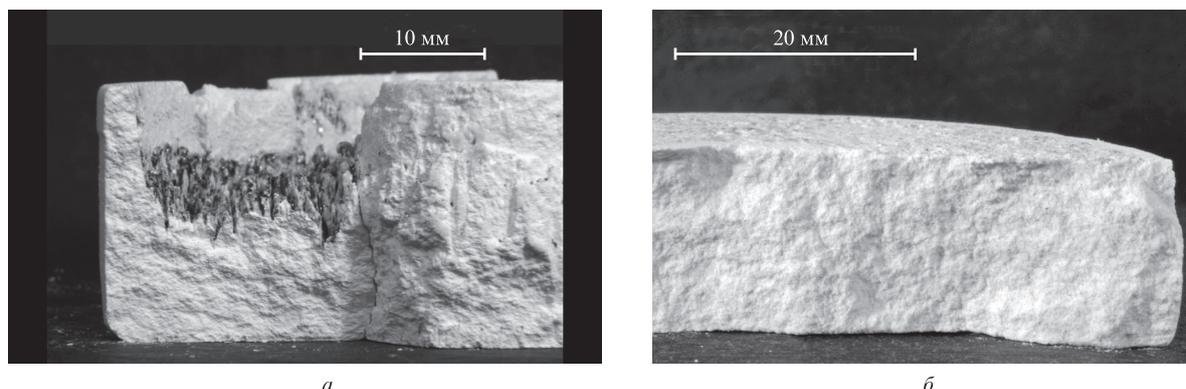


Рис.6. Фотографии разлома мишеней из 1%Nd:Y₂O₃ (а) и CaF_2 (б) после воздействия на них непрерывного излучения волоконного лазера с мощностью 600 Вт и интенсивностью $I = 0.4$ МВт/см².

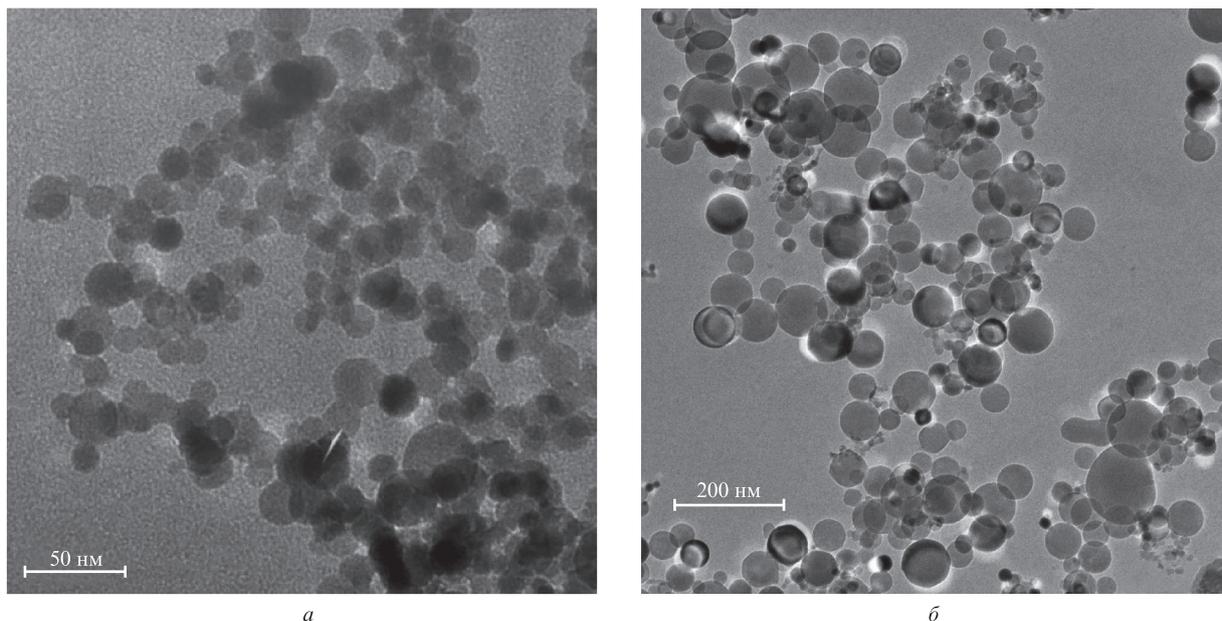


Рис.7. Фотографии наночастиц из 1%Nd:Y₂O₃, синтезированных с помощью волоконного иттербиевого лазера (а), а также наночастиц из CaF₂, полученных с помощью CO₂-лазера (б).

CO₂-лазера монокристалл из CaF₂ полупрозрачен, его показатель поглощения равен 7.2 см⁻¹ [23]. Это на четыре порядка больше, чем для излучения волоконного лазера. По этой причине изготовленная из микропорошка CaF₂ мишень с пористостью 61% в наших экспериментах хорошо испарялась с помощью излучения импульсно-периодического CO₂-лазера со средней мощностью 450 Вт и пиковой интенсивностью на мишени 1.3 МВт/см². В этом случае производительность получения нанопорошка флюорита составила 14.8 г/ч. На рис.7,б приведена фотография полученных наночастиц, сделанная с помощью просвечивающего электронного микроскопа JEM JEOL 2100. Видно, что наночастицы имеют практически сферическую форму, а их среднеарифметический диаметр равен 39 нм. По данным рентгенофазового анализа 96 масс.% нанопорошка имеет фазу флюорита (Fm-3m, $a = 5.468 \text{ \AA}$), а остальная часть – тетрагональную фазу (P4/mmm, $a = 3.74 \text{ \AA}$, $c = 2.68 \text{ \AA}$).

Таким образом, результаты наших экспериментов в целом качественно отвечают закономерностям и тенденциям, выявленным при моделировании прохождения излучения волоконного лазера сквозь плотноупакованные прозрачные микрочастицы. Более точные данные можно получить, если дополнить модель уравнением теплопроводности, учитывающим температурную зависимость показателя поглощения материала. Результаты этих расчётов можно будет сравнить с величинами задержки появления лазерного факела при облучении мишеней, спрессованных из микрочастиц с различными показателями преломления, что предполагается осуществить в будущем.

5. Заключение

В настоящей работе теоретически и экспериментально исследовано воздействие излучения мощного волоконного лазера с $\lambda = 1.07 \text{ мкм}$ на плотноупакованные порошки из прозрачных оксидов и фторидов с малыми показателями собственного поглощения (10^{-2} – 10^{-4} см^{-1})

и с различными коэффициентами преломления ($n_p = 1.38$ – 2.12).

Создана двумерная модель воздействия лазерного излучения на прессованный порошок прозрачного диэлектрика. Для этого численно решалось уравнение Гельмгольца, что позволило непосредственно описать преломление, переотражение и интерференцию лазерного излучения внутри этой среды. Моделирование проводилось для случаев одиночных и плотноупакованных сферических микрочастиц различных диаметров (0.5–4.6 мкм). При этом показано следующее.

1. Рассеяние лазерного излучения на одиночной частице или в порошке приводит к тому, что в некоторых локальных участках пространства интенсивность лазерного излучения во много раз превышает интенсивность падающего излучения. Образование этих локальных максимумов связано с интерференцией падающего излучения, отраженного от поверхности частиц, и преломлённого и переотражённого излучения, прошедшего сквозь них. В случае одиночной частицы диаметром более $3\lambda/4$ интенсивность излучения в таких локальных максимумах резонансно зависит от диаметра частицы и может изменяться в несколько раз. В порошке, содержащем микрочастицы различных размеров, распределение интенсивности рассеянного излучения становится гораздо более хаотичным.

2. При увеличении показателя преломления материала частиц интенсивность излучения в этих локальных максимумах в случае как одиночной микрочастицы, так и порошка увеличивается. При этом характерная глубина ослабления лазерного излучения в порошке из-за его рассеяния, наоборот, снижается. В частности, при рассеянии излучения с исходной интенсивностью $I_0 = 0.46 \text{ МВт/см}^2$ в порошке из CaF₂ ($n_p = 1.43$) интенсивность излучения в самом сильном локальном максимуме I_{\max} составляет 6 МВт/см². В случае порошка из Y₂O₃, имеющего больший коэффициент преломления ($n_p = 1.90$), I_{\max} увеличивается до $\sim 23 \text{ МВт/см}^2$.

3. Концентрирование рассеянного лазерного излучения в некоторых локальных участках прессованных мишеней может привести к существенному превышению порога их лучевого разрушения, даже если интенсивность падающего излучения ниже пороговой. Возможность реализации абляции в этом случае напрямую связана с величиной показателя преломления материала частиц, поскольку с его увеличением растёт и интенсивность излучения в локальных максимумах.

Результаты численных расчётов качественно подтверждены экспериментальными данными. Действительно, при реализации условий ($\lambda = 1,07$ мкм, $I_0 = 0,16$ – $1,2$ МВт/см², $D = 0,4$ – 8 мкм, пористость мишеней 55%–60%), приблизительно соответствующих расчёту, абляция мишени из CaF₂ отсутствовала. В этом случае интенсивность рассеянного лазерного излучения в области каждого локального максимума внутри этой мишени была меньше порога абляции, тогда как для мишени из 1% Nd:Y₂O₃ с большим показателем преломления ($n_p = 1,91$) наблюдалась устойчивая абляция и производительность получения нанопорошка достигала 23 г/ч.

Настоящая работа выполнена в рамках темы государственного задания № 0389-2014-0027, а также частично поддержана РФФИ (грант № 17-08-00064 А).

- Белов Н.Н. *Кристаллография*, **34** (5), 1185 (1989).
- Innocenzi M.E., Swimm R.T., Bass M., French R.H., Kokta M.R. *J. Appl. Phys.*, **68**, 1200 (1990).
- Hideyasu Tsuiki, Toshiaki Masumoto, Koichi Kitazawa, Kazuo Fueki. *Jpn J. Appl. Phys.*, **21** (7), 1017 (1982).
- Данилейко Ю.К., Маненков А.А., Прохоров А.М., Хаимов-Мальков В.Я. *ЖЭТФ*, **58** (1), 31 (1970).
- Данилейко Ю.К., Маненков А.А., Нечитайло В.С. *Труды ФИАН*, **101**, 31 (1978).
- Osipov V.V., Lisenkov V.V., Platonov V.V. *Appl. Phys. A*, **118**, 1133 (2015).
- Осипов В.В., Лисенков В.В., Платонов В.В. и др. *ЖТФ*, **84** (5), 88; 97 (2014).
- Котов Ю.А., Саматов О.М., Иванов М.Г., Мурзакаев А.М., Медведев А.И., Тимошенкова О.Р., Демина Т.М., Вьюхина И.В. *ЖТФ*, **81** (5), 65 (2011).
- Осипов В.В., Соломонов В.И., Спирина А.В., Лисенков В.В., Платонов В.В., Подкин А.В. *Оптика и спектроскопия*, **122** (1), 169 (2017).
- Осипов В.В., Евтушенко Г.С., Лисенков В.В., Платонов В.В., Подкин А.В., Тихонов Е.В., Тригуб М.В., Фёдоров К.В. *Квантовая электроника*, **46** (9), 821 (2016) [*Quantum Electron.*, **46** (9), 821 (2016)].
- Трибельский М.И. *Оптический журн.*, **84** (7), 4 (2017).
- Trübelsky Michael I., Miroshnichenko Andrey E. *Phys.Rev. A*, **93**, 053837 (2016).
- Гейнц Ю.Э., Землянов А.А., Панина Е.К. *Квантовая электроника*, **41** (6), 520 (2011) [*Quantum Electron.*, **41** (6), 520 (2011)].
- Rybin M.V., Khanikaev A.B., Inoue M., Samusev K.B., Steel M.J., Yushin G., Limonov M.F. *Phys. Rev. Lett.*, **103**, 023901 (2009).
- Галактионов А.В., Степанов С.В. *ТВТ*, **28** (1), 124 (1990).
- Гусаров А.В. *Квантовая электроника*, **40** (5), 451 (2010) [*Quantum Electron.*, **40** (5), 451 (2010)].
- Харанжевский Е.В., Костенков С.Н. *Вестник удмуртского ун-та. Сер. Физика, химия*, № 3, 33 (2012).
- Osipov V.V., Platonov V.V., Lisenkov V.V., in: *Handbook of Nanoparticles* (Switzerland: Springer Intern. Publ., 2015, Vol. 2); DOI 10.1007/978-3-319-13188-7_8-1.
- Раков Э.Г., Тесленко В.В. *Пирогидролиз неорганических фторидов* (М.: Энергоатомиздат, 1987, с. 46).
- Карлов Н.В. *Лекции по квантовой электронике* (М.: Наука, 1988, с. 30).
- Осипов В.В., Орлов А.Н., Каширин В.И., Лисенков В.В. *ПТЭ*, № 1, 90 (2013).
- Палашов О.В., Хазанов Е.А., Мухин И.Б., Смирнов А.Н., Миронов И.А., Дукельский К.В., Гарибин Е.А., Федоров П.П., Кузнецов С.В., Осико В.В., Басиев Т.Т., Гайнутдинов Р.В. *Квантовая электроника*, **39** (10), 943 (2009) [*Quantum Electron.*, **39** (10), 943 (2009)].
- Григорьев И.С., Мейлихов Е.З. *Физические величины: Справочник* (М.: Энергоатомиздат, 1991, с. 777).