

РАЗВИТИЕ ОБЪЕМНОГО РАЗРУШЕНИЯ В СИЛИКАТНЫХ СТЕКЛАХ И ПОЛИМЕРАХ ПОД ДЕЙСТВИЕМ ИЗЛУЧЕНИЯ ОПТИЧЕСКОГО КВАНТОВОГО ГЕНЕРАТОРА

А. А. Орлов, П. И. Уляков

(Москва)

Исследована кинетика объемного разрушения в силикатных стеклах К-8 и Ф-5 и в полиметилметакрилате (ПММА) и сняты энерго-временные характеристики начальной стадии образования повреждений лучом оптического квантового генератора (ОКГ) в этих материалах. Рассмотрена модель разрушения силикатных стекол за счет поглощения света на микродефектах, а также модель образования трещин из высокотемпературных очагов в полимерах с учетом долговечности материала. Оценена роль плотности мощности q и энергии ϵ в предложенных механизмах разрушения прозрачных диэлектриков.

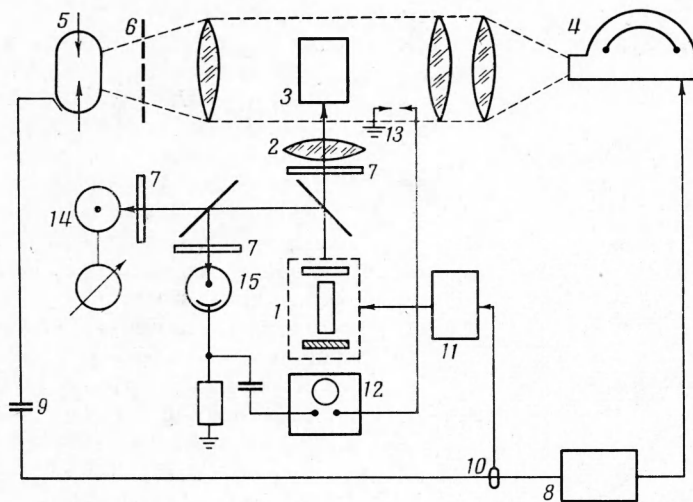
В ряде работ, например [1-4], посвященных исследованию механизма взаимодействия лазерного излучения с оптически прозрачными диэлектриками, определялись пороговые параметры разрушения. Обычно за порог разрушения, или оптическую прочность, принимают минимальную плотность мощности $\langle q_0 \rangle$ или энергии $\langle \epsilon_0 \rangle$, вызывающую в материале необратимые фиксируемые визуально или оптически изменения. При этом величины $\langle q_0 \rangle$ и $\langle \epsilon_0 \rangle$ усредняются за время всего импульса. Такое усреднение, удовлетворяющее требованиям некоторых технических задач, не всегда правомерно (особенно для миллисекундных импульсов) при оценке роли того или иного физического процесса в механизме взаимодействия, так как разрушение диэлектрика начинается через достаточно короткое время после начала генерации. Кроме того, остается невыясненным влияние на развитие разрушения мощности и энергии светового импульса.

В данной работе исследовалась роль этих характеристик в процессе объемного разрушения силикатных стекол К-8 и Ф-5 и полиметилметакрилата (ПММА), а также определялись значения пороговых величин q_0 и ϵ_0 в зависимости от времени облучения. Экспериментальное исследование позволило предложить физические модели начальной стадии разрушения выбранных классов диэлектриков.

Принципиальная схема экспериментальной установки изображена на фиг. 1.

Излучение ОКГ 1 с длиной волны $\lambda = 1.06$ мкм, работающего в пиковом режиме, фокусировалось линзой 2 с фокусным расстоянием 120 мм в объем испытуемых образцов 3, которые имели линейные размеры 20—60 мм, значительно превышающие диаметр фокусного пятна. Процесс разрушения регистрировался с помощью кадровой съемки фокальной области камерой СФР-2М 4 со скоростью до 125 000 об/мин. Подсветка осуществлялась импульсной лампой типа ИСКХ 5 через рассеивающий экран 6. Поток в опыте изменялся калиброванными фильтрами 7. Одновременно со съемкой осциллографировалась энергия излучения ОКГ для измерения величины прошедшей через образец энергии к началу возникновения разрушения. Иницирующий импульс с пульта СФР 8 через разделительный конденсатор 9 поджигал источник подсветки и одновременно с ним с по-

мощью ферритового кольца 10 включал трехканальный усилительный блок 11. Это устройство запускало осциллограф 12, поджигало лампы накачки ОКГ и искровой разрядник 13, свечение которого фотографировалось одновременно с процессом разрушения для временного совмещения с осциллограммой. Измерение энергии калориметром 14 и регистрация разряда емкости фототоком фотоэлемента 15 осуществлялись путем ответвления части излучения в каждом опыте.



Фиг. 1

Таким образом, в результате фотографирования определялось время от вспышки искрового разрядника (поджиг ОКГ) до появления разрушения, а по осциллограмме — время от поджига до начала излучения. Разность этих времен t^* характеризует период образования видимого повреждения в образце и позволяет найти из осциллограммы энергию облучения E^* за этот период. Тогда пороговая плотность потока, усредненная за время t^* , $q^* = E^* / t^*s$, где s — площадь фокусного пятна.

Экспериментальные точки, полученные при облучении ПММА, представлены на графике (фиг. 2). Пунктиром проведена гиперболическая зависимость вида $t_0 = \langle \epsilon_0 \rangle / q$ в предположении, что процесс разрушения определяется только величиной поглощенной энергии и не зависит от плотности потока. За величину $\langle \epsilon_0 \rangle$ принималась пороговая плотность энергии, усредненная за весь импульс и равная ≈ 15 Дж/см².

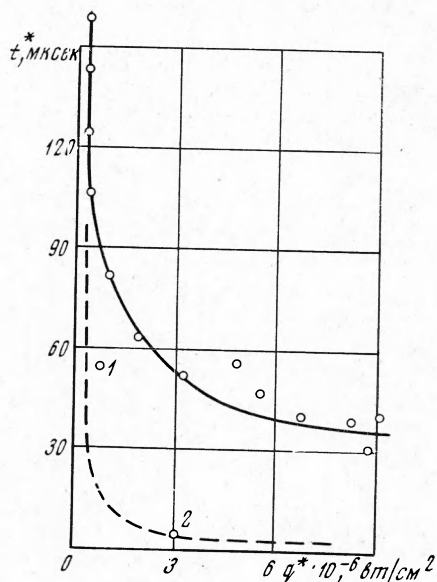
Из графика видно, что почти все экспериментальные точки лежат выше гиперболы $\langle \epsilon_0 \rangle = \text{const}$. Как показывают исследования кинетики развития разрушений в полимерах [5], в частности в ПММА [6, 7], на начальном этапе образуется высокотемпературный очаг, представляющий собой полость в материале, заполненную продуктами разложения и испарения полимера. Поглощение излучения в очаге приводит к повышению давления внутри него, нарастанию напряжений в окружающем полость веществе и последующему образованию трещины. Процесс хрупкого разрушения полимера, к которому приводит рост давления в полости, является термофлуктуационным. А время развития трещины из очага, или долговечность материала, подчиняется зависимости [8]

$$\tau = \tau_0 \exp \{ \alpha [U_0 - \gamma \sigma (q^*)] \}$$

где $\alpha = R^{-1} (1/T_0 - 1/T_1)$, τ_0 , U_0 , γ — константы, имеющие для ПММА следующие значения [8, 9]: $10^{-3} T_1^{-1} [K^{-1}] = 1.5$, $U_0 = 57$ ккал/моль, $\gamma = 2.6$ ккал · мм²/моль · кг, $\tau_0 = 10^{-13}$ сек; R — универсальная газовая постоянная, $T_0 \approx 390^\circ$ К — температура размягчения ПММА. Тогда

$$t^* = t_0 + \tau = \frac{\langle \epsilon_0 \rangle}{q^*} + \tau_0 \exp \{ \alpha [U_0 - \gamma \sigma (q^*)] \} \quad (1)$$

Напряжение σ на границе полости пропорционально давлению или температуре продуктов разложения, зависящей от подводимой плотности потока излучения. При лазерном облучении полимера реализуется высоко-



Фиг. 2

температурный линейный пиролиз, который для ПММА отличается большой скоростью собственно химического процесса. С увеличением размеров полости возрастает поглощенная в ней энергия, что приводит к быстрому росту объема очага. Поэтому давление газов в полости увеличивается медленнее, чем обуславливающая его возрастание плотность мощности. Об этом свидетельствуют наблюдаемые под микроскопом при слабых потоках излучения отдельные неразвившиеся в трещину полости в зоне облучения после действия лазерного импульса.

Оценим изменение температуры и, соответственно, напряжения с потоком.

Макрокинетика разложения характеризуется энергией активации E_a по обычной экспоненциальной формуле

$$V = V_0 \exp \{ -E_a / RT \}$$

и величиной V_0 , пропорциональной константе реакции K_0 , которая имеет порядок частоты колебаний молекулы 10^{14} сек^{-1} , причем значение K_0 при высоких температурах сильно зависит от величины T . В частности, при 750° К $K_0 \approx 10^{24} \text{ сек}^{-1}$ и $E_a \approx 70-80$ ккал/моль [10].

Такой рост $K_0(T)$ с температурой можно аппроксимировать зависимостью вида

$$V_0 = V_k \exp \{ -E_k / RT \}$$

Тогда

$$V = V_k \exp \{ -(E_a + E_k) / RT \} \quad (2)$$

и величина $E_k = 63$ ккал/моль определяется по значениям K_0 при 600 и 750° К [10].

С другой стороны, из закона сохранения энергии, пренебрегая теплоотводом и считая среднюю плотность потока постоянной, при квазистационарном развитии сферического очага можно определить радиальную скорость расширения полости

$$V \approx q / 4\rho c T \quad (3)$$

где ρ — плотность материала, c — теплоемкость.

При высокотемпературном разложении ПММА величиной удельной энергии деструкции можно пренебречь по сравнению с величиной cT . Тогда, приравнявая (2) и (3), получаем трансцендентное уравнение вида

$$\ln q = \ln 4V_k \rho c T - \frac{E_a + E_k}{RT} \quad (4)$$

Величина $A = \ln 4V_k \rho c T$ слабо зависит от температуры, поэтому ее можно считать постоянной. Решая уравнение (4) относительно T , получаем

$$T = E_a + E_k / R (A - \ln q)$$

Величина V_k определяется из (2) подстановкой средней экспериментальной скорости роста полости $V \approx 1$ см/сек [7] вблизи порога разрушения. Полученное слабое изменение температуры с потоком и ее величина $\sim (2-3) \cdot 10^3$ °К хорошо согласуется с экспериментальными данными при лазерном облучении ПММА [11].

Напряжение σ , пропорциональное температуре, можно определить как

$$\sigma = \frac{B}{A - \ln q}$$

Константа B для ПММА определяется из условия достижения напряжением σ величины σ_0 при значении $q = \langle q_0 \rangle$. Значение σ_0 рассчитывается из формулы долговечности по известным характеристикам ПММА [8, 9]. При предельной температуре упругого состояния $T \sim 100-120$ °С и длительности импульса $\approx 2 \cdot 10^{-3}$ сек величина σ_0 достигает значения 6 кг/мм², что не противоречит результатам, полученным при нагружениях длительностью ≈ 1 сек [12].

Тогда

$$\sigma = \sigma_0 \frac{A - \ln \langle q_0 \rangle}{A - \ln q^*} \quad (5)$$

Таким образом, подставляя (5) в (1), получим связь между полным временем облучения до разрушения среды с средней плотностью мощности

$$t^* = \frac{\langle \varepsilon_0 \rangle}{q^*} + \tau_0 \exp \left\{ R^{-1} \left(\frac{1}{T_0} - \frac{1}{T_1} \right) \left(U_0 - \gamma \sigma_0 \frac{A - \ln \langle q_0 \rangle}{A - \ln q^*} \right) \right\} \quad (6)$$

Результаты расчета для ПММА по этой формуле даны сплошной линией на фиг. 2. Согласование расчетных и экспериментальных данных вполне удовлетворительное, имея в виду принятое усреднение светового потока. Постоянство q в проведенных экспериментах имело место в течение первых 250 мксек излучения.

Интересно отметить, что форма некоторых очагов при большом увеличении отличается от сферической и имеет резко выступающие границы, концентрация напряжений на которых существенно выше среднего значения.

В этом случае время долговечности оказывается малым, а величина t^* близка к значению t_0 . Такие точки иногда наблюдаются экспериментально (точки 1 и 2 на графике) и практически лежат на гиперболической кривой.

В стеклах развитие разрушения носит существенно иной характер. Скоростная съемка показывает, что через некоторое время t^* от начала

излучения в фокальной области в стеклянных образцах возникает протяженная ярко светящаяся зона, которая в дальнейшем растет навстречу лучу. На фиг. 3 представлена типичная кинограмма разрушения для стекла К-8 (излучение действует слева, время кадра 16 мксек, масштаб 1 : 2). Продольный рост сопровождается развитием поперечных трещин, исходящих из зоны под разными углами. Начальный размер продольного следа сравним с длиной фокальной области. В зависимости от условий фокусировки разрушение может достигать переднего торца образца, что со-

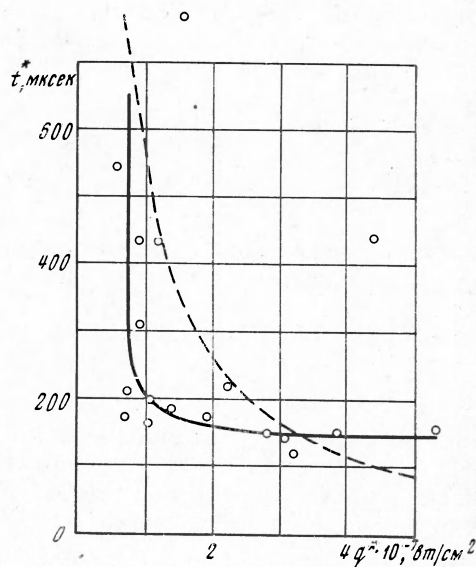


Фиг. 3

провождается интенсивным лицевым отколом. В том случае, когда продольный след не достигает передней границы, образец раскалывается по поперечным трещинам, выходящим на боковые поверхности. Изучение зоны разрушения при большом увеличении показало, что она имеет форму,

близкую к цилиндрической, и заполнена внутри спекшимися частицами материала.

Несмотря на внешнее сходство, экспериментальные кривые $t^*(q^*)$ для ПММА и стекл имеют принципиальное физическое различие. Энерго-временные характеристики разрушения силикатных стекол представлены на фиг. 4 и фиг. 5 для К-8 и Ф-5 соответственно. Сплошной линией нанесены ориентировочные экспериментальные графики, а пунктиром — по-прежнему зависимость $t_0 = \langle \epsilon_0 \rangle / q$, построенная по пороговым параметрам этих стекол за весь импульс: для стекла К-8 $\langle \epsilon_0 \rangle \approx 6 \text{ кдж/см}^2$, для Ф-5 $\langle \epsilon_0 \rangle \approx 11 \text{ кдж/см}^2$. Почти все экспериментальные точки на фиг. 4 и фиг. 5 лежат ниже гиперболической зависимости. Это означает, что разрушение стекол начинается раньше достижения порого-



Фиг. 4

вой плотности энергии $\langle \epsilon_0 \rangle$, усредненной за все время импульса.

Данные о микроструктуре стекол [13, 14] свидетельствуют о наличии в них микро- и макродефектов, а также примесных уровней, которые обуславливают начальное поглощение излучения. Однофотонная ионизация микродефектов приводит к появлению свободных электронов. Их разгон в поле световой волны может вызвать рождение новых электронов путем ударной ионизации дефектов с мелких уровней в запрещенной зоне. Уп-

рощено будем считать, что рекомбинация уравнивает рост числа «однофотонных» электронов с потоком и «ударных» электронов с увеличением их концентрации. Пусть однофотонная ионизация микродефектов стекла приводит к рождению n_0 свободных электронов. Их разгон в поле световой волны до энергии

$$E_e(E) \geq E_e' = I$$

(E — напряженность поля, I — потенциал ионизации дефекта) вызывает ударную ионизацию части дефектов, т. е. увеличение концентрации n_e . Эффективность такого процесса связана с большим содержанием собственных и примесных дефектов в стеклах 10^{-6} — 10^{-3} от общего числа атомов, т. е. в одном измерении на каждые 10 — 100 атомов приходится в среднем один дефект. В рассматриваемом случае рассеяние на фонах сильнее набора энергии, и вся энергия фото- и ударно-рожденных электронов будет передана атомам вещества. Полная концентрация n_e складывается из концентрации фотоэлектронов n_0 и из концентрации электронов Δn , появившихся за счет возможной ионизации примесных уровней, т. е. $n_e = n_0 + \Delta n \eta (E_e - E_e')$, где $\eta (E_e - E_e')$ — функция Хэвисайда.

Вероятность ударной ионизации пропорциональна концентрации фотоэлектронов n_0 , их энергии и частоте столкновений с дефектами: $\Delta n \sim n_0 E_e \nu$. В первом приближении можно считать, что $E_e \sim E^2 \sim q$. Частота столкновений с ионизуемыми дефектами ν может только расти с повышением E_e . Рост температуры, вызывающей учащение колебаний атомов матрицы, также приводит к увеличению ν .

Приближенно зависимость частоты соударений дефекта и электрона можно считать зависящей только от энергии последнего

$$\nu \sim v_e \sim \sqrt{E_e} \sim q^{1/2}$$

где v_e — скорость электрона.

Тогда

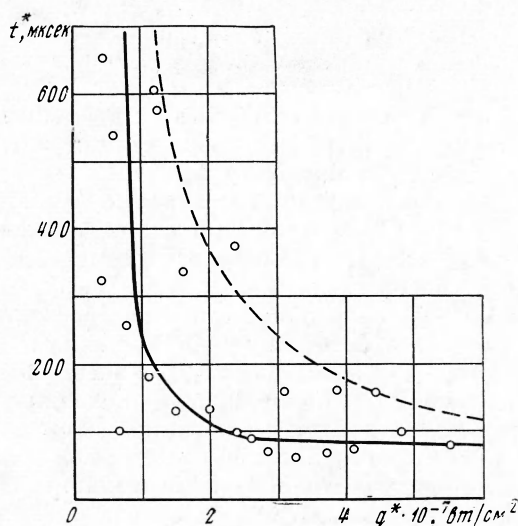
$$\Delta n \sim n_0 q^{3/2} \eta (q - q')$$

где плотность потока q' соответствует энергии E_e' и

$$n_e \approx n_0 [1 + \beta q^{3/2} \eta (q - q')] \tag{7}$$

где постоянная β является характеристикой дефектности материала.

Рост концентрации n_e приводит к нелинейному усилению поглощения в малом объеме, повышению его температуры и, начиная с некоторого момента, испарению вещества. Дальнейшее быстрое увеличение температу-



Фиг. 5

ры и давления в очаге вызывает повреждение материала вокруг него. Таким образом, условие зарождения очага источника хрупкого разрушения на микродефектах стекла можно характеризовать определенной величиной удельной энтальпии H пропорциональной поглощенной энергии E_1 .

В свою очередь, поглощенная за время t энергия

$$E_1 \sim qn_e (t - t_1) \geq H = \text{const} \quad (8)$$

Здесь $t_1 = t_1(q)$ — время, начиная с которого созданная потоком концентрация электронов может обеспечить накопление тепла в очаге.

Тогда условие зарождения очага можно записать, учитывая (7) и (8)

$$t^* = t_1(q) + \frac{\text{const}}{q^* [1 + \beta (q^*)^{3/2} \eta (q^* - q')]} \quad (9)$$

Формула (9) не учитывает времени долговечности материала, так как в результате резкого возрастания энтальпии с потоком оно становится малым по сравнению с временем t^* .

Экспериментальные графики (фиг. 4, 5) хорошо описываются зависимостью (9) при эмпирических значениях $q' = 10^7 \text{ вт/см}^2$, $\text{const} = 6 \cdot 10^3 \text{ Дж/см}^2$, что соответствует пороговой плотности энергии $\langle \varepsilon_0 \rangle$ за весь импульс, $\beta = 3 \cdot 10^{-10} (\text{см}^2/\text{вт})^{3/2}$, $t_1 = 10^{-4} \text{ сек}$.

Большой разброс точек на графиках объясняется сильными флуктуациями локальной прочности стекла [14]. Качественное согласование приближенной зависимости (9) с экспериментом свидетельствует о правомерности очаговой модели возникновения разрушений в стеклах при потоках менее чем 10^{10} вт/см^2 на микродефектах за счет поглощения света появившимися в результате фото-ударной ионизации электронами.

В заключение авторы благодарят А. Е. Кузнецова за участие в постановке работы, В. Ф. Лоскутова и Л. Н. Нефедову за помощь в экспериментах.

Поступила 6 IX 1971

ЛИТЕРАТУРА

1. Ашкинадзе Б. М., Владимиров В. И., Лихачев В. А., Рывкин С. М., Салманов В. М., Ярошецкий И. Д. Разрушение прозрачных диэлектриков под действием мощного лазерного излучения. ЖЭТФ, 1966, т. 50, вып. 5.
2. Martinelli J. Laser-induced damage thresholds for various glasses. J. Appl. Phys., 1966, vol. 37, No. 4.
3. Miller R. A., Vogtelli N. F. Damage in glass induced by linear absorption of laser radiation. Appl. Optics, 1967, vol. 6, No. 1.
4. Шатилов А. В., Жулай В. Я., Смирнов Е. М. Исследование разрушения активных элементов ОКГ на неодимовом стекле. Оптико-механ. пром-сть, 1969, № 5.
5. Пономаренко Б. Ф., Самойлов В. И., Уляков П. И. Поляризационно-оптическое исследование разрушения прозрачных диэлектриков излучения ОКГ. ЖЭТФ, 1968, т. 54, вып. 3.
6. Баренблатт Г. И., Севолодов Н. Н., Миркин Л. И., Пилипецкий Н. Ф., Райзер Ю. П. О разрушении прозрачных материалов под действием лазерного излучения. Письма ЖЭТФ, 1967, т. 5, вып. 3.
7. Ильина К. Н., Ковалев А. А., Кузнецов А. Е., Орлов А. А., Уляков П. И. О начальном этапе развития трещин в полиметилметакрилате при действии излучения ОКГ. Механика полимеров, 1971, № 3.
8. Журков С. Н., Регель В. Р., Санфилова Т. П. Связь между температурно-временной зависимостью прочности и характером термической деструкции полимеров. Высокомолекулярные соединения, 1964, т. 6, вып. 6.

9. Ратнер С. Б., Блохин Ю. И. Температурно-временная зависимость предела вынужденной эластичности полимеров. Докл. АН СССР, 1969, т. 188, № 4.
 10. Штейнберг А. С., Улыбин В. Б. Высокотемпературное разложение и горение полимеров. Докл. 2-го Всес. симпозиума по горению и взрыву, Авторефераты докладов, Черноголовка, 1969.
 11. Лихачев В. М., Салманов В. М., Ярошечкий И. Д. Тепловое излучение прозрачных диэлектриков при разрушении их светом лазера. Физика твердого тела, 1968, т. 10, вып. 1.
 12. Francisco Castro Jañez. Los métodos de moldeo de materials plásticos. Metalurgia y Electricidad, 1953, Año 17, № 187.
 13. Стеклообразное состояние. М.—Л., Изд-во АН СССР, 1960.
 14. Прочность стекла. М., «Мир», 1969.
-