

# Лазерно-индуцированная модификация прозрачных кристаллов и стекол

Н.М.Булгакова, Р.Стоян, А.Розенфельд

*Представлен теоретический анализ процессов, происходящих в прозрачных кристаллах и стеклах при воздействии ультракоротких импульсов лазерного излучения в режимах, обычно используемых для различных приложений в оптоэлектронике и фотонике. Рассмотрен ряд явлений, описанных ранее авторами в рамках разработанных ими модельных представлений: зарядка поверхности диэлектриков вследствие фотоэмиссии электронов с последствиями в виде кулоновского взрыва; шейпинг кратеров при использовании адаптивного управления формой лазерного импульса; оптимизация записи волноводных структур в материале, тяжело поддающемся лазерно-индуцированному уплотнению при обычных условиях облучения. Разработанные модели и анализ процессов на их основе включают в себя элементы физики твердого тела, оптики, физики плазмы, термодинамики, теории упругости и пластичности. Обобщены некоторые важные экспериментальные наблюдения, требующие объяснения и адекватного описания.*

**Ключевые слова:** ультракороткие лазерные импульсы, прозрачные кристаллы, оптические стекла, волноводные структуры, численное моделирование, многофотонная ионизация, лавинная ионизация, фотоэмиссия, кулоновский взрыв, шейпинг кратеров, упругопластические деформации.

## 1. Введение

Воздействие лазерного излучения на прозрачные кристаллические и аморфные материалы является мощным инструментом модификации свойств облучаемого вещества [1, 2], использование которого приводит к образованию поверхностных [3–8] и объемных [9–13] периодических структур (нанорешеток), к денсификации и изменению показателя преломления с формированием волноводных структур [14–19], к возникновению микрополостей [10, 20–23], к фазовым переходам (кристаллизация или, наоборот, аморфизация) [21, 24] и др. Такого рода модификации уже используются для ряда приложений в оптоэлектронике и фотонике (передача оптического сигнала и манипуляции оптическими пучками, трехмерная запись информации) [25] и микрофлюидике [26], и спектр потенциальных применений стремительно расширяется. Для успешного развития областей исследований и приложений, основанных на лазерно-индуцированных микро- и наномодификациях прозрачных кристаллов и стекол, необходимо глубокое понимание сложной взаимосвязи инициируемых в диэлектриках импульсным лазерным излучением процессов, приводящих к образованию конечных механически деформированных и/или химически модифицированных состояний.

Сложность теоретических исследований лазерно-индуцированной модификации прозрачных материалов за-

ключается в том, что цепочка разнообразных процессов, вызываемых поглощением излучения на фемтосекундных временах, простирается на времена вплоть до миллисекунд, когда конечное состояние материала «вмораживается» в диэлектрическую матрицу. На временах лазерного импульса эти процессы включают в себя фотоионизацию материала, развитие лавинной ионизации с соответствующим изменением оптического отклика облучаемой области образца, эффекты самофокусировки лазерного пучка (при достижении пороговой мощности) и его рассеяния на им же созданной плазме. Уже на субпикосекундных временах начинается активная рекомбинация этой «твердой» плазмы с формированием многочисленных дефектных состояний, что приводит к стремительному нагреву зоны фотовозбуждения. Тем не менее максимальные уровни нагрева достигаются уже на временах от нескольких пикосекунд до десятков пикосекунд. Резкий нагрев на этих временных масштабах сопровождается формированием термоупругих волн, которые в зависимости от степени нагрева и его локализации могут либо бесследно затухать, либо приводить к значительным пластическим деформациям окружающего материала или даже к формированию механических повреждений в виде микро- или нанопор в зоне выделения энергии. Условно можно считать, что эффекты механического отклика материала на фотовозбуждение завершаются к  $\sim 10$  нс, когда трехмерная упругая волна сжатия проходит расстояние в десятки микрометров и значительно затухает. Однако при некоторых экспериментальных условиях продолжение «механического сценария» возможно на временах в десятки микросекунд, когда за счет эффектов теплопроводности локально выделившаяся энергия, расплываясь, достигает зон «холодной» деформации. При плавлении (размягчении) деформированной зоны формируются волны разгрузки напряжений, которые могут приводить к значительному вто-

Н.М.Булгакова. Институт теплофизики СО РАН, Россия, 630090 Новосибирск, просп. акад. Лаврентьева, 1; e-mail: nbul@itp.nsc.ru  
R.Stoian. Laboratoire Hubert Curien, UMR 5516 CNRS, Universite Jean Monnet, 42000 Saint Etienne, Universite de Lyon, 42023 Saint Etienne, France

A.Rosenfeld. Max-Born-Institut für Nichtlineare Optik und Kurzzeit-spektroskopie, Max-Born-Strasse 2a, D-12489 Berlin, Germany

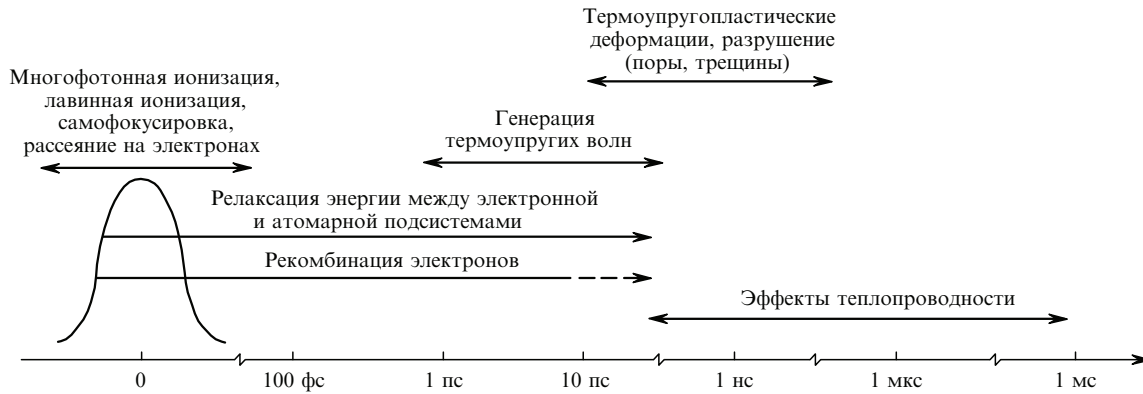


Рис. 1. Характерные временные масштабы протекания различных процессов, вызванных воздействием фемтосекундного лазерного импульса на прозрачный диэлектрик.

ричному перераспределению материала, как показано в [19], и даже к испусканию вторичных термоупругих волн. Окончательное остывание зоны лазерного воздействия происходит на временах в сотни микросекунд. При использовании многоимпульсных режимов облучения, контролируя временной интервал между импульсами, можно значительно влиять на общую картину модификации вещества, достигая его желаемых состояний [19]. На рис. 1 схематически проиллюстрированы временные масштабы отклика прозрачного материала на воздействие фемтосекундными лазерными импульсами.

В настоящее время большинство теоретических исследований направлено на изучение механизмов генерации плазмы в кристаллах и стеклах, ее динамики и последующей релаксации. Основными механизмами формирования свободных носителей в диэлектриках при воздействии фемтосекундных импульсов лазерного излучения видимого и ближнего ИК диапазонов длин волн являются многофотонная и лавинная ионизации [27–29]. При достижении плотностей мощности  $\sim 5 \times 10^{13}$  Вт/см<sup>2</sup> доминирующим фактором в формировании свободных носителей становится туннельная ионизация [30,31]. Однако она может играть значительную роль лишь в поверхностном слое материала, поскольку при фокусировке в глубину материала потери излучения на фотовозбуждение и поглощение формируемой плазмой приводят к насыщению плотности мощности на таком уровне, когда механизм многофотонной ионизации преобладает (эффект клампинга) [32, 33]. Дебаты о роли лавинной ионизации в пробое диэлектриков ультракороткими импульсами (УКИ) лазерного излучения [34–37] – от полного отрицания ее существования для импульсов субпикосекундной длительности [36] до утверждения, что этот эффект усиливается с уменьшением длительности импульса за счет уменьшения потенциального барьера в сильном поле волны (холодная лавинная ионизация) [37] – ведутся до сих пор. Наибольшее согласие достигнуто относительно рекомбинации электронов, протекающей в диэлектриках в виде их захвата в локализованные состояния с формированием центров окраски, экситонов и других дефектов [38–40]. Формирование дефектов приводит к инкубационным эффектам, например к снижению порога пробоя при последующих лазерных импульсах в многоимпульсных режимах [40]. Можно, однако, ожидать, что инкубация, т. е. накопление дефектов и их преимущественная ионизация, может проявиться уже в течение импульса, нарастая к его концу, когда длительность им-

пульса превышает характерное время рекомбинации  $\tau_{tr}$ . Так, для плавленого кварца  $\tau_{tr} \approx 150$  фс [41], и можно предположить, что снижение «подгоночной» величины коэффициента лавинной ионизации с увеличением длительности импульса [37] обусловлено вторичным возбуждением электронов, захваченных в дефектные состояния. Эффектам, связанным с накоплением тепла в зоне облучения и перераспределением материала под действием термоупругих и ударных волн, в теоретических исследованиях пока уделяется недостаточно внимания, хотя аккумуляция тепла часто приводит к необратимым изменениям структуры диэлектрика [16, 42], а воздействие волн напряжений – к значительным перераспределениям плотности вещества [19], к аморфизации в кристаллах и формированию полостей и трещин [10, 20–23]. В ряде работ указывается на возможность достижения закритических состояний и давлений  $\sim 10$  ТПа [22].

В данном обзоре представлены наши работы последних лет, направленные на понимание процессов, происходящих при воздействии на диэлектрические материалы фемтосекундными импульсами лазерного излучения на длине волны 800 нм. Рассматриваются материалы, являющиеся ключевыми во многих оптических технологиях, такие как плавленый кварц (в частности легированный ULE) и сапфир.

Работа построена следующим образом. В разд. 2–4 рассмотрены условия фокусировки излучения на поверхность материала. В разд. 2 приведены основные уравнения, используемые для описания фотовозбуждения прозрачных материалов на относительно больших пространственных и временных масштабах, позволяющих проследить формирование скин-слоя при пробое, динамическое изменение оптических свойств, зарядку поверхности в результате фотоэмиссии электронов и энергетику всей зоны облучения. Поскольку ввиду чрезвычайной трудоемкости задачи уравнения во многом сильно упрощены, даны комментарии о применимости тех или иных положений и возможных путях улучшения модельных представлений. В разд. 3 на основе модельных представлений исследован процесс зарядки поверхностного слоя материала под действием УКИ лазерного излучения и показано, что фотоэмиссия электронов может приводить к разрушению поверхностного слоя облучаемого образца вследствие сил электростатического отталкивания (кулоновский взрыв). Продемонстрирован самосогласованный характер фотоэмиссии электронов в диэлектриках, что приводит к насыщению тока фотоэмиссии как

при увеличении плотности энергии импульса, так и при фиксированной плотности энергии с уменьшением длительности импульса. В разд.4 рассмотрены результаты двумерного моделирования, позволившие пролить свет на природу характерных различий форм кратеров, которые формируются на поверхности сапфира и плавленого кварца под действием последовательностей УКИ. Разд.5 посвящен вопросам объемной модификации материалов, когда излучение фокусируется в глубь образца. Анализируется вся цепочка процессов (от фотовозбуждения на фемтосекундных временах до остывания вещества на временах  $\sim 0.2$  мс), протекающих в оптических стеклах при лазерной записи волноводных структур. Показано, как можно «сшить» эффекты фотовозбуждения и термомеханических модификаций для создания полной картины эволюции материала. Наконец, в Заключение дан краткий обзор ряда удивительных экспериментальных фактов, изучение и использование которых может открыть новые возможности в фотонике и оптоэлектронике.

## 2. Фотовозбуждение и релаксация прозрачных диэлектриков под действием УКИ лазерного излучения

Как отмечено во Введении, лазерное излучение иницирует в диэлектрических материалах множество процессов, протекающих на различных временных масштабах. В этом разделе проанализированы процессы, происходящие в течение УКИ и некоторое время спустя на стадии релаксации электронного возбуждения. Рассмотрен случай фокусировки излучения на поверхность образца, предполагающий возможность фотоэмиссии электронов, которая сопровождается возникновением электрических полей и индуцированных токов.

Теоретическое описание динамики носителей заряда, индуцированной воздействием лазерного излучения, является сложной задачей. На рис.2 представлена схема, демонстрирующая взаимосвязь между различными процессами, которые условно можно разделить на две ветви. Одна ветвь, начинающаяся процессом фотоионизации, более универсальна и не зависит от того, на поверхности материала или в его глубине сфокусировано излучение. Вторая ветвь процессов соответствует условиям фокуси-

ровки излучения на поверхность образца и начинается с фотоэмиссии электронов. Большинство процессов являются взаимозависимыми, что отмечено стрелками.

Итак, в результате многофотонной ионизации, порядок которой определяется отношением между шириной энергетической щели  $E_g$  и энергией кванта  $\hbar\omega$ , происходит возбуждение электронов из валентной зоны в зону проводимости. Эти свободные электроны активно поглощают лазерное излучение вследствие тормозного механизма, и при достаточной поглощенной энергии они могут ионизовать нейтральные атомы материала в столкновениях. Развитие лавинной (столкновительной) ионизации с резким увеличением концентрации свободных электронов вызывает изменение оптических свойств материала. В свою очередь фотоэмиссия электронов приводит к нарушению квазинейтральности облучаемого образца с накоплением положительного заряда в поверхностном слое и формированием самосогласованного электрического поля. Под действием поля электроны перераспределяются, стремясь нейтрализовать избыточный заряд в «теле» мишени. В результате тока электронов положительный заряд локализуется в поверхностном слое в соответствии с балансом между диффузионной и дрейфовой компонентами тока. Перераспределение заряда в поверхностном слое облучаемого материала влияет на процессы фотоэмиссии и лавинной ионизации. В то же время фотоэмиссия приводит к обеднению поверхностного слоя электронами и соответственно уменьшает эффективность лавинной ионизации в обедненной области. По окончании лазерного импульса происходит рекомбинация электронов в виде их захвата в возбужденные локализованные состояния.

Как показано в [43 – 46], рассмотренная выше взаимосвязь процессов может быть адекватно описана в рамках дрейфово-диффузионного подхода, основные положения которого приведены ниже. Следует отметить, что такое описание, будучи достаточно трудоемким, во многом является упрощенным. Так, используется простое выражение для скорости многофотонной ионизации [28, 29] без учета зависимости эффективной массы электрона от его квазиимпульса [47]. Развитие лавинной ионизации описывается эмпирическим выражением [29]. В последние годы для описания развития лавинной ионизации в



Рис.2. Схематичное представление лазерно-индуцированных процессов в диэлектрических материалах (в овальных рамках). В квадратных рамках даны соответствующие подходы к описанию процессов. Стрелками показаны основные взаимосвязи между различными процессами (сплошные линии – для прямых эффектов, штриховые – для обратного влияния).

диэлектриках разработан ряд интересных подходов, например поуровневая кинетика поглощения излучения свободными электронами (multiple rate equation (MRI) [48], или более строгий подход, основанный на зависящем от времени уравнении Шредингера [49]. Однако по ряду причин (необходимость рассмотрения поверхностного слоя образца толщиной порядка радиуса пятна облучения, в котором плотность свободных электронов может испытывать резкие градиенты; динамическое поведение коэффициента отражения, зависящее от распределения свободных электронов в поверхностном слое и др.) использование этих подходов для самосогласованного описания лазерно-индуцированной динамики возбуждения, переноса и энергетики носителей заряда в диэлектриках не представляется в настоящее время технически возможным и целесообразным ввиду резкого увеличения громоздкости и трудоемкости и без того исключительно сложной модели.

### 2.1. Динамика возбуждения и релаксации «твердой» плазмы и ее оптический отклик

В прозрачных диэлектрических материалах с широкой энергетической щелью поглощение энергии лазерного импульса можно условно разделить на две стадии. На начальной стадии генерация свободных электронов обусловлена процессом многофотонной ионизации, а при достижении некоторой «затравочной» концентрации свободных электронов развивается механизм лавинной (столкновительной) ионизации. Как отмечено выше, при достаточно больших интенсивностях лазерного излучения туннельный механизм ионизации может стать доминирующим, что определяется параметром Келдыша  $\gamma = \omega \sqrt{2m_{\text{eff}} E_g} / (e E_L)$  ( $m_{\text{eff}}$  и  $e$  – эффективная масса и заряд электрона,  $E_L$  – электрическое поле лазерной волны,  $E_g$  – ширина энергетической щели в диэлектрике либо потенциал ионизации отдельных атомов или молекул) [30, 31, 47, 50]. Параметр Келдыша по сути является отношением характерного времени, необходимого электрону для преодоления энергетического барьера (потенциала ионизации с учетом его поправки в поле сильной волны), к периоду электромагнитной волны. При  $\gamma \gg 1$  преобладает механизм многофотонной ионизации, при  $\gamma \ll 1$  – туннельной. Считается, что для заметного влияния туннельной ионизации необходимо выполнение условия  $\gamma < 0.5$ , хотя имеется ряд экспериментальных фактов, указывающих на доминирование многофотонной ионизации и при  $\gamma \ll 1$ . Эти факты послужили толчком для многочисленных обобщений теории Келдыша в отношении ионизации диэлектриков [47], а также атомов и молекул в газовой фазе [50].

Отметим, что для интенсивности излучения  $I_0 = 10^{14}$  Вт/см<sup>2</sup> параметр  $\gamma \approx 0.85$  (в предположении, что  $m_{\text{eff}}$  равно массе электрона в вакууме  $m_e$ ). Поскольку в большинстве интересующих нас режимов облучения  $I_0 \leq 10^{14}$  Вт/см<sup>2</sup>, для описания процесса возбуждения электронов воспользуемся упрощенным уравнением [28, 29]

$$\frac{\partial n_e}{\partial t} = (W_{\text{mph}} + Q_{\text{av}}) \frac{n_a}{n_{\text{lat}}} - \frac{n_e}{\tau_{\text{tr}}}. \quad (1)$$

Здесь  $W_{\text{mph}} = \sigma_m I^m$  – скорость многофотонной ионизации с порядком  $m$  и сечением  $\sigma_m$ ;  $m = E_g / \hbar \omega + 1$  (для сапфира и плавленого кварца  $E_g \approx 9$  эВ и, следовательно,  $m = 6$  на длине волны 800 нм);  $Q_{\text{av}} = \alpha I n_e$  – скорость

лавинной ионизации;  $\alpha$  – коэффициент лавинной ионизации. Последний член в (1) описывает рекомбинацию электронов с характерным временем  $\tau_{\text{tr}}$ . Отметим, что в этом выражении ионизационные члены поправлены с учетом уменьшения концентрации нейтральных атомов  $n_a$  ( $n_{\text{lat}}$  – концентрация атомов в невозмущенном образце), что может оказаться важным при достижении значительных степеней ионизации (например, в условиях кулоновского взрыва [43–46]). Временная форма лазерного импульса может быть описана гауссовой функцией:

$$I(t) = [1 - R(t)] \frac{2F_0}{\tau_L} \sqrt{\frac{\ln 2}{\pi}} \exp \left[ -4 \ln 2 \left( \frac{t}{\tau_L} \right)^2 \right], \quad (2)$$

где  $F_0$  – плотность энергии импульса;  $\tau_L$  – длительность импульса (ширина на полувысоте);  $R$  – коэффициент отражения материала, являющийся сильной функцией концентрации свободных электронов. Расчет оптических свойств диэлектрика, облучаемого мощным лазерным импульсом, приводящим к пробое и металлизации зоны облучения, основывается на теории Друде и формулах Френеля. Комплексную диэлектрическую проницаемость материала  $\varepsilon^*(n_e)$  можно представить в виде вкладов от невозмущенного образца и отклика газа свободных электронов в виде [29, 51]

$$\varepsilon^*(n_e) \simeq 1 + (\varepsilon_g - 1) \left( 1 - \frac{n_e}{n_{e0}} \right) - \frac{n_e}{n_{cr}} \left( 1 + i \frac{1}{\omega \tau_c} \right)^{-1}. \quad (3)$$

Здесь  $\varepsilon_g$  – диэлектрическая проницаемость невозмущенного образца ( $\varepsilon_g = n^2$ ;  $n = 1.75$  и  $1.45$  для сапфира и плавленого кварца [52]);  $n_e$ ,  $n_{cr} = \varepsilon_0 m_e \omega^2 / e^2$  и  $n_{e0}$  – концентрация электронов в зоне проводимости, критическая концентрация электронов (для длины волны  $\lambda = 800$  нм  $n_{cr} = 1.74 \times 10^{21}$  см<sup>-3</sup>) и концентрация валентных электронов соответственно;  $\tau_c$  – характерное время столкновений электронов (мы принимаем, что демпфирующий фактор  $\omega \tau_c = 3$  [44]). Для адекватного описания динамики отражения при пробое диэлектрика необходимо учитывать формирование неравномерного профиля свободных электронов в поверхностном слое. Для этой цели обычно используется многослойная модель отражения [51], заключающаяся в решении рекуррентных комплексных соотношений вида

$$R_{i,k} = \frac{R_{i,i+1} + R_{i+1,k} \exp(-i4\pi h_{i+1} \sqrt{\varepsilon_{i+1}} / \lambda)}{1 + R_{i,i+1} R_{i+1,k} \exp(-i4\pi h_{i+1} \sqrt{\varepsilon_{i+1}} / \lambda)}, \quad (4)$$

где  $R_{i,k}$  – коэффициент отражения от слоя, состоящего из слоев от  $i$  до  $k$ ;  $h_{i+1}$  – толщина  $(i+1)$ -го слоя.

Динамика распределения концентрации свободных электронов в глубь облучаемого образца напрямую связана с локальным значением интенсивности электромагнитной волны, ослабление которой в материале определяется потерями на многофотонную ионизацию и обратное тормозное поглощение и описывается уравнением вида

$$\frac{\partial I(z, t)}{\partial z} = -W_{\text{mph}} \frac{n_a}{n_{\text{lat}}} \hbar \omega m - a_{\text{ab}}(z, t) I(z, t), \quad (5)$$

где  $a_{\text{ab}}(z, t)$  – коэффициент тормозного поглощения, рассчитываемый по комплексной диэлектрической проницаемости (3);  $z$  – расстояние от поверхности в глубь обра-



зца. Отметим, что в работах [43–46] использовался демпфирующий фактор  $\omega\tau_c = 3$ , дающий для свехкритических концентраций электронов коэффициент отражения  $\sim 70\%$ , что согласуется с экспериментальными данными [53].

## 2.2. Фотоэмиссия электронов, самосогласованное электрическое поле, дрейф и диффузия

В случае поверхностной обработки материалов УКИ резкий выброс электронов с поверхности в результате фотоэмиссии может приводить к далеко идущим последствиям, таким как абляция материала до достижения точки плавления материала (механизм кулоновского взрыва) [43–46], значительное влияние на динамику абляции материала электронного облака над поверхностью [54], ускорение ионов, эмиттированных с поверхности, уже при токах фотоэмиссии, меньших порогового тока кулоновского взрыва [54, 55]. Так, для характерных условий кулоновского взрыва абляция материала приводит к формированию исключительно гладкой поверхности без каких-либо следов плавления [56], что может быть использовано для ультратонкой лазерной обработки поверхностей. Напомним, что кулоновский взрыв – это механизм лазерной абляции, при котором за счет эффективной фотоэмиссии электронов в поверхностном слое материала создается избыточный положительный заряд, достаточный для разрушения этого слоя силами электростатического отталкивания ионов.

В [43–46] показано, что механизм кулоновского взрыва реализуется при определенных условиях облучения диэлектрических материалов, в поверхностном слое которых значительный положительный заряд накапливается вследствие малой подвижности электронов и пространственной ограниченности зоны пробоя. Вопрос о кулоновском взрыве полупроводниковых и металлических материалов все еще активно обсуждается [55, 57]. Критерием кулоновского взрыва является превышение энергии квазистатического электрического поля, создаваемого избыточным положительным зарядом, над энергией связи поверхностных атомов облучаемого образца. Это условие может быть записано в следующем виде [45]:

$$E_{\text{th}}|_{z=0} = \sqrt{\frac{2(A_{\text{at}} - 3kT_{\text{lat}})n_{\text{lat}}}{\epsilon\epsilon_0}}. \quad (6)$$

Здесь  $E_{\text{th}}$  – пороговое значение электрического поля, необходимого для инициирования механизма кулоновского взрыва;  $A_{\text{at}}$  – энергия связи атомов в решетке в расчете на один атом;  $T_{\text{lat}}$  – температура «тяжелой» составляющей образца (решетки для кристалла и молекулярной «матрицы» в стеклах). Следует отметить, что условие (6) может быть слишком жестким, поскольку в ионизованном материале (электрон-дырочной плазме) происходит так называемое размягчение связей за счет их частичного разрыва. Тем не менее условие (6) должно правильно предсказывать порядок величины электрического поля, которое может вызвать макроскопический кулоновский взрыв (абляцию по крайней мере нескольких монослоев материала, а не вероятностный выброс с поверхности отдельных ионов).

Для описания лазерно-индуцированной зарядки поверхности материала уравнение (1) должно быть существенно модифицировано с целью учета фотоэмиссии

электронов из поверхностного слоя облучаемого образца и переноса электронов под действием формирующегося самосогласованного электрического поля. При этом (1) принимает вид

$$\frac{\partial n_e}{\partial t} + \frac{1}{e} \frac{\partial J_e}{\partial z} = (W_{\text{mph}} + Q_{\text{av}}) \frac{n_a}{n_{\text{lat}}} - \frac{n_e}{\tau_{\text{tr}}} - \text{PE}, \quad (7)$$

где PE – член, описывающий процесс фотоэмиссии электронов из поверхностного слоя мишени;  $J_e$  – плотность индуцированного тока электронов в образце. Выражение для плотности тока вида  $J_e = en_e v_e$ , где  $v_e$  – направленная скорость электронов, может быть записано в дрейфово-диффузионном приближении:

$$J_e = -en_e \mu_e E - eD_e \nabla n_e. \quad (8)$$

Зависящий от времени коэффициент диффузии  $D_e$  может быть рассчитан согласно соотношению Эйнштейна:  $D_e = k_B T_e \mu_e / |e|$ , где  $\mu_e$  и  $T_e$  – подвижность и температура электронов;  $k_B$  – постоянная Больцмана. Электрическое поле  $E$ , возникающее в образце вследствие нарушения квазинейтральности в результате фотоэмиссии электронов, определяется в рамках уравнения Пуассона разностью локальных концентраций ионов  $n_i$  и электронов  $n_e$ :

$$\frac{\partial E}{\partial z} = \frac{|e|}{\epsilon\epsilon_0} (n_i - n_e). \quad (9)$$

Отметим, что на фоне поля электромагнитной волны лазерного излучения это поле является квазистатическим.

Описание фотоэмиссионного члена PE( $z, t$ ) в выражении (7) представляет собой непростую задачу. В основу нашей модели заложено предположение о статистическом распределении импульсов свободных электронов в диэлектриках с широкой запрещенной зоной, у которых минимум зоны проводимости находится на уровне вакуума, так что электроны, расположенные близко к поверхности и имеющие направленную в сторону вакуума компоненту импульса, могут покинуть образец. Таким образом, мы полагаем, что вследствие мгновенного установления углового распределения по импульсам в среднем половина свободных электронов, рождаемых в процессах многофотонной и столкновительной ионизации, немедленно эмиттируется с поверхности и из тонкого подповерхностного слоя толщиной  $l_{\text{PE}}$  (для диэлектриков можно положить  $l_{\text{PE}} \sim 1$  нм [58]). Считаем, что с максимальной вероятностью фотоэмиссия происходит непосредственно с поверхности, и эта вероятность экспоненциально уменьшается в глубь материала. Таким образом, можно записать:

$$\text{PE}(z, t) = \frac{1}{2} (W_{\text{mph}} + Q_{\text{av}}) \frac{n_a}{n_{\text{lat}}} \exp\left(-\frac{z}{l_{\text{PE}}}\right). \quad (10)$$

Как нами показано, такая конструкция фотоэмиссионного члена дает при моделировании интегральный ток фотоэмиссии, который хорошо согласуется с имеющимися экспериментальными данными для диэлектриков [59].

## 2.3. Упрощенное энергетическое представление

Важным вопросом моделирования воздействия УКИ лазерного излучения на диэлектрические материалы является описание динамики их нагрева и плавления (в случае аморфных материалов – размягчения). Кроме того,

поскольку коэффициент диффузии электронов зависит от их температуры (энергии), энергетическое представление является важным и для рассмотрения случаев ниже порога плавления, когда механизм абляции вследствие кулоновского взрыва доминирует. Для описания динамики нагрева диэлектриков нами использовано упрощенное представление, основанное на двухтемпературной модели [60, 61] в предположении, что сильно ионизованный диэлектрик можно рассматривать как двухтемпературную плазму:

$$C_e \left( \frac{\partial T_e}{\partial t} + \frac{J_e}{en_e} \frac{\partial T_e}{\partial z} \right) = \frac{\partial}{\partial z} K_e \frac{\partial T_e}{\partial z} - g(T_e - T_{\text{lat}}) + \Sigma(z, t), \quad (11)$$

$$\left[ C_{\text{lat}} + L_{\text{melt}} \delta(T_{\text{lat}} - T_{\text{melt}}) \right] \frac{\partial T_{\text{lat}}}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} K_{\text{lat}} \frac{\partial T_{\text{lat}}}{\partial z} + g(T_e - T_{\text{lat}}). \quad (12)$$

В работе [31] на основе уравнения Больцмана показано, что уже на временах  $\sim 20$  фс от начала воздействия лазерного излучения на мишень из плавленого кварца распределение электронов по энергиям является достаточно гладким, с едва заметным пиком на малых энергиях. Таким образом, даже если полного равновесия внутри электронной подсистемы не достигнуто, величину  $T_e$  можно рассматривать как меру средней энергии электронов. В уравнениях (11) и (12)  $C_e$ ,  $C_{\text{lat}}$  и  $K_e$ ,  $K_{\text{lat}}$  – теплоемкости и теплопроводности электронной и решеточной подсистем соответственно (здесь для удобства мы используем термин «решетка» и для аморфных веществ, подразумевая при этом атомарный остов материала);  $g$  – константа электрон-решеточной релаксации;  $\Sigma(z, t)$  – член, описывающий поглощение энергии лазерного импульса. Отметим, что в уравнения двухтемпературной модели нами введены два дополнительных члена, один из которых описывает перенос энергии за счет тока электронов (11), а второй член вида  $L_{\text{melt}} \delta(T_{\text{lat}} - T_{\text{melt}})$  в уравнении (12) позволяет проводить сквозной расчет движения границы плавления ( $T_{\text{melt}}$  и  $L_{\text{melt}}$  – температура и теплота плавления соответственно,  $\delta$  –  $\delta$ -функция). Отметим, что при наличии ультрабыстрых процессов возможен значительный (до температуры выше точки плавления) перегрев твердого материала [62, 63], что, однако, не исследовано для диэлектрических материалов и выходит за рамки представленных здесь работ.

Источник энергии лазерного излучения в уравнении (11) строится на основе детального рассмотрения энергетического баланса электронов, который включает в себя начальную энергию свободных электронов, рождаемых в процессе многофотонной ионизации, затраты энергии на развитие лавинной ионизации, обратное тормозное поглощение излучения, а также энергию, локализуемую в решетке при захвате электронов и уносимую из образца фотоэлектронами. Таким образом, изменение полной кинетической энергии  $E_f$  электронной подсистемы может быть записано в виде

$$\frac{\partial E_f}{\partial t} = (m\hbar\omega - E_g) W_{\text{mph}} \frac{n_a}{n_{\text{lat}}} - E_g Q_{\text{av}} \frac{n_a}{n_{\text{lat}}} + a_{\text{ab}} I(z, t) -$$

$$- E_e \frac{n_e}{\tau_{\text{tr}}} - E_e PE(z, t). \quad (13)$$

Здесь  $E_e$  – средняя кинетическая энергия в расчете на один электрон (предполагается, что  $E_e = 3k_B T_e/2$ ). Источник энергии лазерного излучения в уравнении (11) имеет следующий вид:

$$\Sigma(z, t) = n_e \frac{\partial E_e}{\partial t} = \frac{\partial E_f}{\partial t} - \frac{3}{2} k_B T_e \frac{\partial n_e}{\partial t}. \quad (14)$$

Термодинамические параметры электронной подсистемы можно представить в следующем виде:  $C_e = 3k_B n_e/2$ ,  $K_e = 2k_B^2 \mu_e n_e T_e/e$  [64]. Для ультракоротких времен, составляющих  $\sim 1$  пс при рассмотрении процесса лазерно-индуцированной зарядки образца и  $\sim 10$  пс при рассмотрении задачи шейпинга (см. разд.4), теплопроводностью решетки можно пренебречь. Величину  $g$  можно определить по известным данным о характерных временах электрон-решеточной релаксации  $\tau_r$  как  $g = C_e/\tau_r$  (для прозрачных диэлектриков  $\tau_r \sim 1$  пс).

В качестве граничных условий приняты закон Гаусса для уравнения Пуассона и свободное втекание электронов через границу расчетной зоны в глубине образца. Глубина расчетной зоны выбиралась меньшей либо примерно равной радиусу пятна облучения. При расчетной зоне свыше 1 мкм наблюдалось лишь небольшое изменение времени удержания заряда на поверхности [45], тогда как основные черты процесса зарядки сохранялись. Уравнения (2)–(14) с упомянутыми граничными условиями представляют собой основу модели, разработанной в [43–45] и использованной для описания эффектов лазерно-индуцированной зарядки [43–46, 65] (см. разд.3) и шейпинга кратеров [65, 66] (разд.4) на поверхностях диэлектриков.

### 3. Лазерно-индуцированная зарядка поверхности и кулоновский взрыв

#### 3.1. Моделирование и эксперимент

Достаточно давно известно, что в зависимости от условий облучения возможны два сценария лазерной абляции сапфира ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ): «мягкая» абляция, когда с поверхности удаляется слой материала толщиной в несколько нанометров, и «жесткая» абляция, характеризующаяся резким увеличением толщины аблированного слоя [56, 67–70]. Мягкая абляция характерна для таких режимов облучения, когда плотность лазерной энергии лишь слегка превышает порог абляции при малом количестве импульсов, воздействующих на фиксированное пятно на поверхности образца. При этом поверхность материала после абляции становится очень гладкой, часто существенно более гладкой, чем у исходного образца (рис.3,а). С ростом плотности энергии лазерного импульса либо с увеличением числа импульсов при относительно низкой плотности энергии происходит переход к режиму жесткой абляции (рис.3,б), когда на поверхности после облучения видны характерные следы плавления, течения расплава и взрывного «вскипания» (так называемого фазового взрыва [71, 72]). Анализ экспериментальных данных показывает, что при облучении диэлектрических материалов УКИ с плотностями энергии вблизи порога абляции выброс материала с поверхности имеет черты,

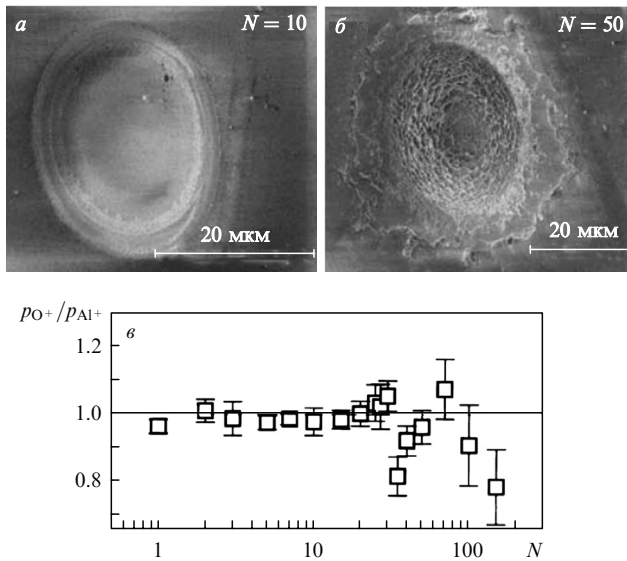


Рис.3. Вид поверхности сапфира при переходе от мягкой (а) к жесткой (б) абляции с увеличением числа лазерных импульсов  $N$  (200 фс, 4 Дж/см<sup>2</sup>);  $\rho$  – отношение импульсов ионов кислорода и алюминия, рассчитанное по максимумам распределений их скоростей [70].

указывающие на электростатический механизм абляции. Во-первых, степень ионизации продуктов абляции и их распределения по скоростям для мягкой и жесткой абляции значительно различаются. При мягкой абляции ионы, являющиеся основной составляющей продуктов абляции, имеют узкое угловое распределение вдоль нормали к поверхности и высокую ( $\sim 2 \times 10^4$  м/с) среднюю направленную скорость. При переходе к жесткой абляции угловое распределение ионов становится шире, а их характерная скорость составляет  $\sim 1.2 \times 10^4$  м/с, что соответствует тепловой скорости испаряемых частиц [56]. Более того, в случае мягкой абляции различные ионные компоненты факела ( $Al^+$  и  $O^+$ ) имеют одинаковый импульс, не зависящий от массы (рис.3,в), тогда как при жесткой абляции у них наблюдается тенденция к одинаковой энергии [56, 70]. Еще более сильное различие имеет место в поведении ионов  $F^+$  и  $F^-$  в случае мягкой абляции фторида бария, когда отрицательные ионы значительно замедляются относительно положительно заряженных частиц [73].

Эти факты указывают на то, что в режиме мягкой абляции существует механизм ускорения ионов электрическим полем, формируемым в мишени в результате воздействия лазерного излучения. Причинами нарушения квазинейтральности облучаемого материала, приводящими к формированию поля, могут служить значительная фотоэмиссия электронов с поверхности и уменьшение скорости переноса горячих электронов в мишени для нейтрализации избыточного заряда.

Модель, описанная в разд.2, позволила изучить динамику носителей заряда в облучаемых материалах и сделать важные выводы о физических процессах, ответственных за накопление избыточного заряда в поверхностном слое облучаемого образца, и о возможных последствиях этого явления. Следует отметить, что эта модель является достаточно универсальной, и при соответствующем изменении ряда ее параметров и учитываемых в ней механизмов (механизм поглощения лазерного излучения, описание генерации и релаксации носителей заряда, вид фотоэмиссионного члена) она может исполь-

зоваться для любого типа материалов [43–45]. Сравнительное моделирование, проведенное для диэлектриков, полупроводников и металлов (в качестве типичных представителей своих классов использовались  $Al_2O_3$ , Si и Au), показало, что в диэлектриках при плотностях энергии лазерного импульса вблизи порога абляции электрическое поле, возникающее за счет фотоэмиссии, может превышать пороговую величину (6), что говорит в пользу реализации механизма кулоновского взрыва [43–45]. В то же время в полупроводниках и металлах вследствие высокой подвижности носителей заряда кулоновский взрыв маловероятен, т.к. генерируемые электрические поля на несколько порядков ниже соответствующих пороговых значений.

Расчеты показывают, что электрическое поле на поверхности облучаемого материала достигает пикового значения в процессе воздействия импульса, после чего вследствие притока заряда к поверхности из глубины образца поле постепенно уменьшается. На рис.4 приведены пространственные распределения электрического поля в мишенях  $Al_2O_3$ , Si и Au в момент достижения пикового значения поля для экспериментальных условий работ [43, 56] (длина волны 800 нм, длительность импульса 100 фс). Плотности энергии лазерного импульса соответствуют пороговым значениям, при которых во времяпролетных распределениях продуктов абляции появляется заметное количество ионов (4, 0.8 и 1.2 Дж/см<sup>2</sup> для  $Al_2O_3$ , Si и Au соответственно). Пороговые значения электрического поля  $E_{th}$ , оцененные по латентной теплоте испарения в пересчете на одну частицу для холодных материалов, равны  $\sim 5 \times 10^{10}$  ( $Al_2O_3$ ),  $2.65 \times 10^{10}$  (Si) и  $2.76 \times 10^{10}$  В/м (Au). Лишь в сапфире генерируемое электрическое поле заметно превышает пороговое значение. Более того, толщина слоя с надпороговым полем, где материал должен распасться за счет сил электростатического отталкивания (т.е. должен произойти кулоновский взрыв), равна  $\sim 40 \text{ \AA}$ , что прекрасно согласуется с экспериментальными наблюдениями [56]. В кремнии и золоте вследствие высокой подвижности свободных носителей заряда на поверхности образцов накапливается значительно более низкий положительный заряд, недостаточный для инициирования кулоновского взрыва. Максимальные значения электрических полей для условий рис.4 равны  $4.1 \times 10^7$  (золото) и  $3.4 \times 10^8$  В/м (кремний).

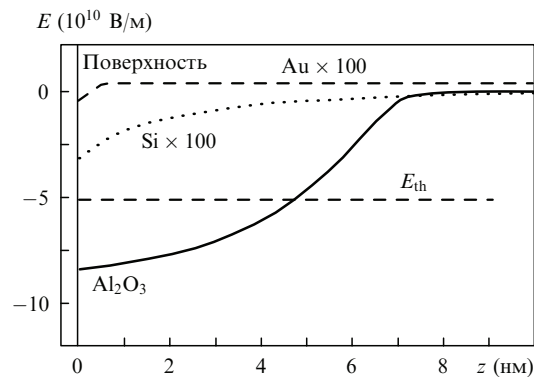


Рис.4. Пространственные профили электрических полей в мишенях из сапфира, кремния и золота в момент достижения их максимальных значений, рассчитанные для экспериментальных условий работ [43, 56]. Плотности энергии лазерных импульсов длительностью 100 фс с длиной волны излучения 800 нм соответствуют порогам эмиссии ионов для каждого материала (4, 0.8 и 1.2 Дж/см<sup>2</sup> для  $Al_2O_3$ , Si и Au соответственно).

Следует отметить несколько важных моментов. При высоких плотностях энергии импульса, когда доминирует тепловой режим абляции и формируется развитый плазменный факел, наблюдаемые в факеле ионы часто также имеют одинаковый импульс. Однако нельзя утверждать определенно, что эти ионы возникли в результате кулоновского взрыва поверхностного слоя материала, поскольку они могут ускоряться вследствие разделения заряда в расширяющейся плазме (формирования двойного слоя) [74, 75]. Экспериментальное подтверждение кулоновского взрыва в металлах получено лишь при экстремальных интенсивностях лазерного импульса ( $\sim 10^{19}$  Вт/см<sup>2</sup>), воздействующего на танталовую проволоку диаметром 50 мкм [76]. При плотностях энергии в импульсе ниже порога плавления наблюдаемая эмиссия отдельных ионов из металлов может быть объяснена механизмом оптической ректификации [77]. Электронный механизм эмиссии ионов с поверхности кремния исследован в работах [78, 79] для наносекундных лазерных импульсов в УФ диапазоне длин волн. Однако следует отметить, что лишь прозрачные диэлектрики обладают свойствами, приводящими к накоплению большого заряда на поверхностях под действием УКИ. Более того, как будет показано ниже, накопление заряда в поверхностном слое диэлектрика приводит к насыщению фотоэмиссии и ограничению глубины кулоновской абляции.

**3.2. Эффект насыщения фотоэмиссии**

Рассматривается влияние условий облучения (плотности энергии и длительности импульса) на формирование лазерно-индуцированного электрического поля в диэлектриках в режимах, когда порог плавления не достигается (мягкая абляция). Результаты моделирования приведены для сапфира и легированного плавленого кварца (ULE), состоящего из SiO<sub>2</sub> (92.5 %) и TiO<sub>2</sub> (7.5 %). Параметры материалов, использованных при моделировании, приведены ниже.

	Сапфир	ULE
Концентрация атомов		
$n_{lat} = n_a + n_i$ (см <sup>-3</sup> )	$1.17 \times 10^{23}$	$6.4 \times 10^{22}$
Концентрация валентных электронов $n_{e0}$ (см <sup>-3</sup> )	$5.6 \times 10^{23}$	$3.4 \times 10^{23}$
Ширина запрещенной зоны $E_g$ (эВ)	9	9
Коэффициент многофотонной ионизации $\sigma_6$ (см <sup>-3</sup> ·пс <sup>-1</sup> (см <sup>2</sup> /ТВТ) <sup>6</sup> )	$8 \times 10^9$	$6 \times 10^8$
Коэффициент лавинной ионизации $\alpha$ (см <sup>2</sup> /Дж)	6	4
Показатель преломления $n$	3.0983	3.99
Подвижность электронов $\mu_e$ (м <sup>2</sup> ·В <sup>-1</sup> ·с <sup>-1</sup> )	$3 \times 10^{-5}$	$3 \times 10^{-5}$
Время рекомбинации (захвата) электронов $t_{tr}$ (с)	$10^{-10}$	$0.15 \times 10^{-12}$
Характерное время релаксации $\tau_r$ (с)	$10^{-12}$	$10^{-12}$

Поскольку ряд параметров для ULE неизвестен, при моделировании использовались известные данные для плавленого кварца (коэффициенты многофотонной и лавинной ионизации взяты из работы [80]). Подвижность электронов для сапфира и ULE была взята одинаковой на основе наблюдений [81] с поправкой для плотной возбужденной плазмы [44, 82].

Электрическое поле в сапфире, представленное на рис.4, получено при суммарном числе электронов  $\sim 7 \times$

$10^8$ , эмиттировавших с пятна облучения площадью  $S_{ir} = 470$  мкм<sup>2</sup> [44]. Такой ток фотоэлектронов хорошо согласуется с экспериментальными значениями для диэлектрических материалов [59]. На рис.5,а представлена зависимость выхода фотоэлектронов с поверхности сапфира от плотности энергии импульса (длина волны 800 нм, длительность 100 фс, интегральная по времени плотность тока электронов с поверхности умножена на площадь пятна облучения (470 мкм<sup>2</sup>)). Очевидно, что зарядка поверхности увеличивает работу выхода электронов [83]. Хотя этот эффект в нашей модели не учитывается, тем не менее наблюдается саморегуляция фотоэмиссии, начиная с некоторого значения плотности энергии ( $\sim 3.5$  Дж/см<sup>2</sup> для импульсов длительностью 100 фс). При таких плотностях энергии сильная фотоэмиссия электронов в процессе активной многофотонной ионизации в максимуме лазерного импульса приводит к обеднению электронами поверхностного слоя материала (в пределах слоя фотоэмиссии толщиной  $l_{FE}$ ). В результате эффективность лавинной ионизации в этом слое уменьшается и, начиная с некоторой плотности энергии, общий выход фотоэлектронов стремится к насыщению (рис.5,а). Интересно, что в моделировании плотность энергии при насыщении фотоэмиссии практически совпадает с экспериментально определенным порогом кулоновского взрыва, который для сапфира немного ниже 4 Дж/см<sup>2</sup> [43]. Вследствие насыщения выхода фотоэлектронов максимальное электрическое поле, генерируемое на поверхности материала, с увеличением плотности энергии лазерного импульса растет слабо (рис.5,б).

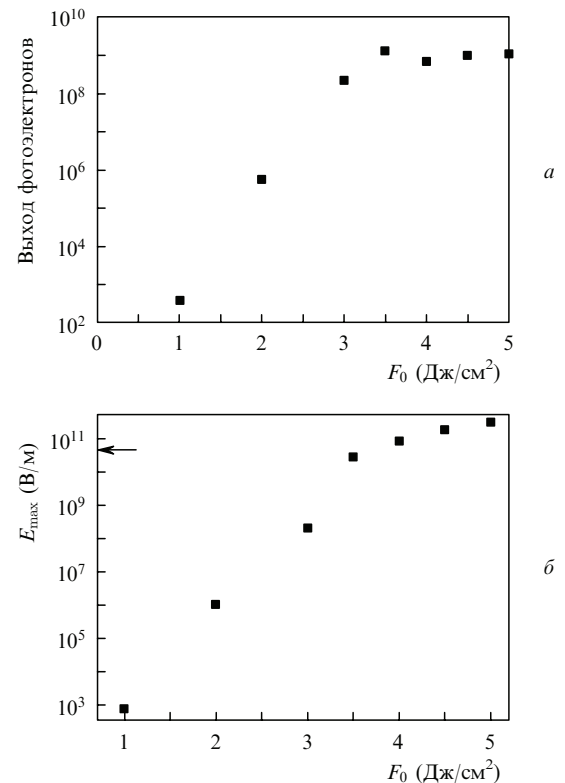


Рис.5. Количество фотоэлектронов, покидающих поверхность сапфира в течение лазерного импульса (а), и максимальное значение электрического поля, формируемого на поверхности образца в процессе облучения (б), в зависимости от плотности энергии в импульсе [46]. Длительность импульса 100 фс, площадь пятна облучения 470 мкм<sup>2</sup>. Величина критического поля, необходимого для возникновения кулоновского взрыва, указана стрелкой.



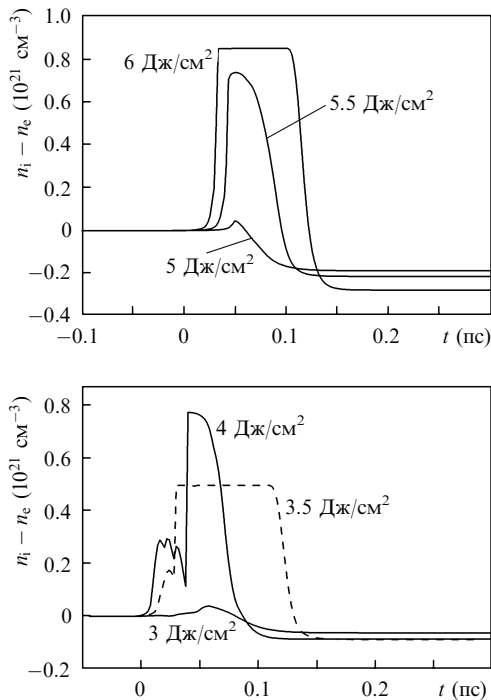


Рис.6. Эволюция во времени избыточного заряда на поверхности стекла ULE, облучаемого на длине волны 800 нм импульсами длительностью 100 (а) и 30 фс (б) с разной плотностью энергии [46]. Максимум лазерного импульса соответствует  $t = 0$ .

Такие же особенности зарядки поверхности получены при моделировании облучения ULE, где эффект саморегуляции фотоэмиссии электронов для импульсов длительностью 100 фс наблюдается, начиная с 5.2 Дж/см<sup>2</sup>, и, как можно ожидать, с уменьшением длительности импульса «порог» саморегуляции снижается ( $\sim 3.2$  Дж/см<sup>2</sup> для длительности импульса 30 фс). Процесс зарядки поверхности также имеет явную тенденцию к насыщению (рис.6). На этом рисунке показана эволюция во времени избыточного заряда на поверхности ULE для длительностей импульса 100 и 30 фс. При росте плотности энергии с 5 до 5.5 Дж/см<sup>2</sup> (рис.6,а) амплитуда зарядки возрастает примерно в 10 раз, тогда как с дальнейшим увеличением плотности энергии на 0.5 Дж/см<sup>2</sup> эффект увеличения избыточного заряда значительно меньше. Более того, в случае более коротких лазерных импульсов (рис.6,б) с плотностью энергии выше порога кулоновского взрыва пик зарядки растет с увеличением плотности энергии импульса, становясь при этом короче. Отметим еще одну интересную особенность зарядки поверхности диэлектриков: ее пик наблюдается в конце лазерного импульса. Это связано с упомянутой выше задержкой лавинной ионизации.

Интересно, что согласно расчетам глубина проникновения надпорогового (сверхкритического) электрического поля в материал не превышает 4–5 нм вне зависимости от плотности энергии импульса, что является следствием насыщения фотоэмиссии электронов. Таким образом, толщина слоя материала, эмиттировавшего с поверхности вследствие кулоновского взрыва, не превышает нескольких нанометров. Для случая, представленного на рис.5, при плотностях энергии  $F_0 \geq 5$  Дж/см<sup>2</sup> материал плавится. Если разрушение поверхности на субпикосекундных временах вследствие кулоновского взрыва и происходит, то в результате плавления матери-

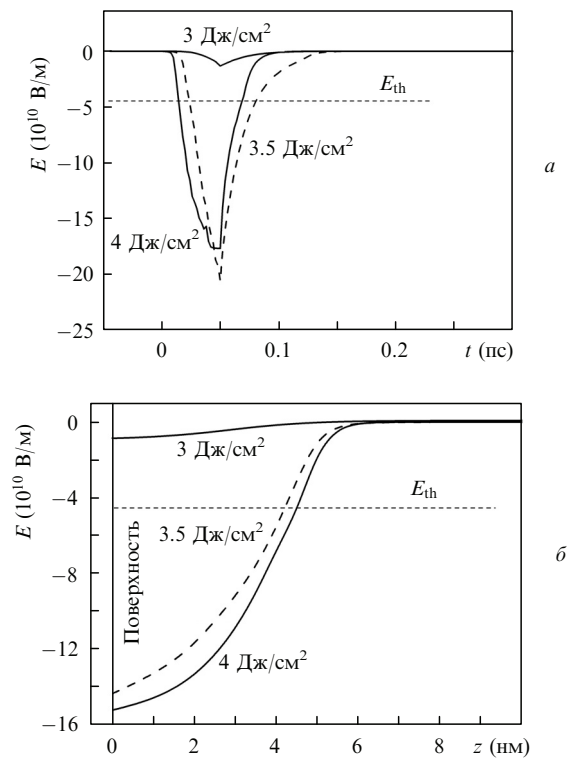


Рис.7. Эволюция во времени напряженности электрического поля, формируемого на поверхности ULE (а), и пространственное (по глубине) распределение напряженности электрического поля в момент времени 30 фс после максимума лазерного импульса (максимум совпадает с  $t = 0$ ) (б). Условия облучения те же, что и на рис.6,б (по данным работы [46]).

ала и последующей грубой абляции (тепловой или термомеханической [84]) следы кулоновского взрыва стираются (см. рис.3,б). На рис.7 представлен эффект ограничения глубины кулоновского взрыва, сопровождающийся резким пороговым эффектом формирования сверхкритического поля в образце. При увеличении плотности энергии импульса с 3 до 3.5 Дж/см<sup>2</sup> поле резко возрастает от существенно допорогового до превышающего пороговое значение в четыре раза (согласно оценке пороговое поле для ULE составляет  $\sim 4.5 \times 10^{10}$  В/м). Дальнейшее повышение плотности энергии до 4 Дж/см<sup>2</sup> практически не приводит к изменению поведения электрического поля ни во времени (рис.7,а), ни в пространстве (рис.7,б). Это указывает на очень узкий диапазон условий облучения, в котором механизм кулоновского взрыва может эффективно использоваться для сверхточной обработки прозрачных материалов. Отметим, что при более коротких импульсах существует тенденция к увеличению времени существования надпорогового электрического поля, что увеличивает также вероятность кулоновского взрыва в диэлектриках.

#### 4. Двумерное моделирование: шейпинг кратеров

Выше речь шла в основном о процессах, проходящих в прозрачных материалах в условиях, когда порог их плавления/размягчения не достигается. Здесь мы коснемся вопросов моделирования более жестких режимов облучения, приводящих к абляции прозрачных материалов. Хотя описанная выше модель не предназначена для мо-

делирования самого процесса абляции, т. е. уноса материала с поверхности, тем не менее, как будет показано ниже, она предоставляет возможности для детального термодинамического анализа состояния вещества.

Формирование лазерных импульсов с заданной временной структурой посредством фурье-синтеза спектральных компонент является мощным инструментом контроля над различными физическими и химическими системами, позволяющим направлять течение процессов к желаемым результатам [85, 86]. В частности, адаптивное управление формой лазерного импульса дает уникальные возможности для обработки прозрачных материалов. Управляя временной формой лазерного импульса, можно синхронизировать введение энергии в материал с его характерным откликом на ввод энергии. Когда диэлектрический материал облучается модулированным по времени импульсом лазерного излучения, ввод определенных порций энергии может подготовить облучаемую поверхность либо объем (например, путем создания определенной плотности свободных электронов или фононной температуры) к последующим порциям лазерного излучения, существенно изменяя тем самым процесс его поглощения. Таким образом можно уменьшать возникающие в материале напряжения, достигая более чистой обработки или желаемой модификации, что зависит от свойств конкретного материала и особенно полезно в случае хрупких образцов.

Глубокое понимание физических процессов, протекающих в диэлектриках под действием модулированных по времени лазерных импульсов, и их взаимосвязи может открыть дополнительные пути оптимизации и управления технологиями микрообработки. Ввод энергии в облучаемый образец зависит от его способности передавать электронные возбуждения в колебательные моды либо в локализованные деформационные состояния атомов, связанные с захватом носителей заряда. С этой точки зрения два материала, рассматриваемых в данном разделе, значительно различаются по временам релаксации свободных электронов. В таких материалах, как  $\alpha$ -кварц ( $c\text{-SiO}_2$ ) или плавленый кварц ( $a\text{-SiO}_2$ ), происходит быстрый захват электронов (характерное время  $\sim 150$  фс) с формированием относительно долгоживущих экситонов (характерное время жизни порядка нескольких миллисекунд [87]). В других оксидах, таких как сапфир ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) или окись магния ( $\text{MgO}$ ), свободные электроны сохраняются на дне зоны проводимости вплоть до нескольких десятков пикосекунд.

Как показано в [88, 89], эти характерные особенности электронно-решеточной системы можно использовать для улучшения обработки и структурирования поверхностей диэлектриков. В этих работах экспериментально показано, что, используя специальным образом модулированные во времени лазерные импульсы, можно получить на поверхности плавленого кварца кратеры пространственно-модулированной формы. С помощью адаптивной техники получены оптимальные лазерные импульсы титан-сапфирового лазера ( $\lambda = 800$  нм), состоявшие из последовательности трех импульсов длительностью 100 фс с временным разделением  $\sim 1$  пс и позволившие получить кратеры ступенчатой структуры. С уменьшением скважности между импульсами эффект модуляции кратеров исчезает. При этом на поверхности сапфира модуляции кратеров получить не удалось ни при каких условиях облучения. Разработанная нами модель

на основе описанного выше дрейфово-диффузионного подхода позволила пролить свет на природу лазерно-индуцированной модуляции кратерных структур [66].

#### 4.1. Замечания о двумерности модели; учет накопления дефектов

В ряде работ показано [91, 92], что с помощью численного моделирования можно не только детально анализировать процессы, проходящие в диэлектриках под действием лазерных УКИ, но и предсказывать глубину и форму кратеров, формируемых на поверхностях облучаемых образцов.

Разработанная двумерная модель описывает поглощение и перенос энергии лазерного излучения в диэлектриках под действием импульсного лазерного излучения, в частности для импульсов сложной модулированной пространственно-временной формы. Целью построения этой модели было моделирование пространственных структур возбуждения электронной системы диэлектрика для условий обработки поверхности [88, 89]. Модель позволила выявить основные физические процессы, отвечающие за модуляцию структур, и получить дополнительную информацию о динамике оптического пробоя диэлектриков, учитывая временную и пространственную эволюцию концентрации свободных электронов, накопление дефектов, энергетику электронной и решеточной систем и оптический отклик мишени на действие модулированных лазерных импульсов. Расширение одномерной модели, описанной в разд.2, на двумерный случай было мотивировано необходимостью прямого сравнения результатов моделирования с экспериментальными данными по формам индуцированных кратеров. Несмотря на тот факт, что радиальный перенос энергии в рассматриваемых условиях, когда радиус пятна облучения намного превышает глубину оптического пробоя, не играет заметной роли, с помощью двумерного моделирования в одном варианте расчетов можно описать все пространственное распределение лазерного импульса по пятну облучения и избежать многовариантной, шаг за шагом, серии одномерных расчетов. Кроме того, при анализе данных выяснилось, что модуляции, полученные в серии одномерных расчетов, не учитывают эффект двумерности электронной теплопроводности, которая стремится сгладить изолинии температурного распределения, в частности в промежутки времени между последовательными импульсами. Радиальный перенос тепла, пренебрежимо малый на масштабах пятна облучения, может оказаться важным на более мелких масштабах модуляции структур.

Таким образом, одномерное моделирование может привести к переоценке модуляции параметров, которая в случае более реалистичного двумерного подхода может оказаться существенно сглаженной либо исчезнуть вовсе. Двумерное моделирование недвусмысленно продемонстрировало, что именно процесс захвата электронов с формированием дефектных состояний и связанная с этим динамика оптических свойств возбуждаемой в диэлектрике плазмы играют фундаментальную роль в формировании результирующего пространственного профиля кратеров.

Для целей двумерного моделирования модель, описанная в разд.2, претерпела ряд модификаций. Так, уравнения переноса энергии (11) и (12) записаны для случая цилиндрически-симметричного лазерного пучка,

падающего на поверхность образца по нормали. В работе [92] показано, что лазерно-индуцированный ток носителей заряда очень слабо влияет на конечный нагрев образца, а потому эффекты зарядки поверхности, электрического поля и тока электронов не учитывались (члены, содержащие поле и ток, были удалены из всех уравнений). Уравнения непрерывности носителей заряда модифицированы с учетом накопления дефектов и имеют следующий вид:

$$\frac{\partial n_e}{\partial t} = (W_{\text{mph}} + Q_{\text{av}}) \frac{n_a}{n_{\text{lat}}} - \frac{n_e}{\tau_{\text{tr}}}, \quad (15)$$

$$\frac{\partial n_d}{\partial t} = \frac{n_e}{\tau_{\text{tr}}}, \quad (16)$$

$$n_a = n_{\text{lat}} - n_e - n_d, \quad (17)$$

где  $n_d$  – концентрация дефектов; предполагается, что  $n_i = n_e$ . Отметим, что здесь не учитывается возбуждение дефектов, сформированных после первых импульсов, последующими импульсами, что, однако, может быть сделано при дальнейшем улучшении модели. Так, в случае плавного кварца формирование экситонов характеризуется пиком поглощения 5.2 эВ [41], что для  $\lambda = 800$  нм означает четырехфотонный процесс возбуждения захваченных электронов назад в зону проводимости. Таким образом, член уравнения (15)  $W_{\text{mph}}$  должен учитывать скорости шестифотонного процесса ионизации нейтральных атомов и четырехфотонного процесса возбуждения дефектов в зону проводимости. Известно, что экситоны в плавном кварце имеют малый размер – порядка атомного радиуса ( $\sim 0.17$  нм [87]). Ввиду отсутствия данных по их столкновительной ионизации, для получения качественной картины можно предположить, что сечение их ионизации в столкновениях такое же, как и в случае нейтральных атомов. Тогда член  $Q_{\text{av}}$  (вместе с нормировочным множителем) также должен быть заменен на член, учитывающий лавинную ионизацию атомов и экситонов. Соответствующим образом должно быть модифицировано уравнение теплового баланса (13). Однако из-за отсутствия достоверных данных по упомянутым константам мы ограничиваемся здесь моделиро-

ванием без учета перевозбуждения захваченных электронов назад в зону проводимости. Оптическая часть модели (разд.2) используется в неизменном виде, описывая в данном случае динамику оптических свойств не только в глубь материала, но и по радиусу пятна облучения. Более детально двумерная модель и параметры моделирования описаны в [66]. Ниже приведены результаты моделирования для экспериментальных условий облучения сапфира и плавного кварца [88, 89].

#### 4.2. Термодинамический анализ двумерной динамики нагрева: сапфир и плавный кварц

Предполагая, что выброс материала с поверхности ограничен некоторым уровнем его температуры, достигнутым в процессе лазерного нагрева, выше которого вещество претерпевает фазовый переход, конечную форму кратеров можно проанализировать на основе изоповерхностей температуры в облучаемых образцах. Следует отметить, что в случае ступенчатой формы изоповерхностей выброс материала вследствие сил отдачи может привести к некоторому сглаживанию дна кратера. Однако если изоповерхности гладкие, трудно ожидать ступенчатой формы кратеров, как в экспериментах [88, 89]. На рис.8 представлены изолинии температуры в поверхностном слое сапфира и плавного кварца после воздействия последовательности трех фемтосекундных импульсов длительностью 100 фс каждый с временем задержки между ними 1 пс. Плотности энергии в каждом из трех импульсов одинаковы и в сумме составляют 14 Дж/см<sup>2</sup>. Напомним, что геометрия облучения предполагается цилиндрической. В сапфире формируются гладкие овальные изолинии температуры, тогда как в плавном кварце в форме изолиний отмечается некоторая модуляция с тенденцией к углублению в центре пятна облучения. На вставках для сравнения приведены поперечные сечения кратеров, полученных экспериментально [89]. Очевидно, что в целом расчетные изолинии температур и экспериментальные формы кратеров имеют общие черты. Однако на рис.9,а, где к температуре образца добавлена энергия дефектов ( $T_{\text{tot}} = T_{\text{lat}} + E_d/(3k_B n_0)$ ), модуляции видны более отчетливо (ср. рис.8,б и 9,а). Энергия дефектов  $E_d$  рассчитывается по уравнению

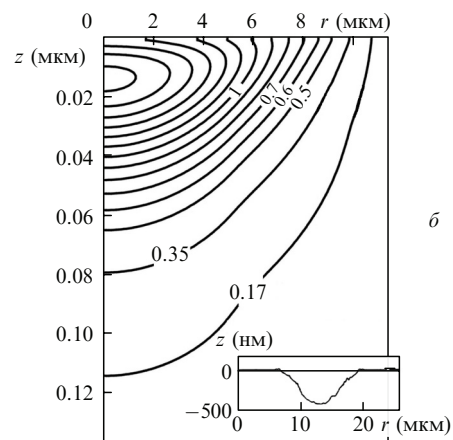
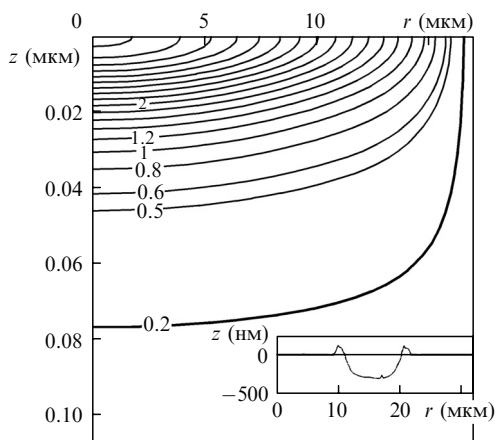


Рис.8. Распределения температуры в мишенях  $\text{Al}_2\text{O}_3$  (а) и  $\text{a-SiO}_2$  (б) после воздействия на них последовательности трех одинаковых лазерных импульсов длительностью 100 фс (время между импульсами 1 пс, общая плотность энергии 14 Дж/см<sup>2</sup>) на момент времени 3 пс относительно максимума первого импульса;  $r$  – радиус,  $z$  – расстояние в глубь материала,  $(r, z) = (0, 0)$  соответствует центру пятна облучения на поверхности, уровни температуры даны в эВ (по данным работы [66]). На вставках – поперечные сечения кратеров, полученных экспериментально в [89].

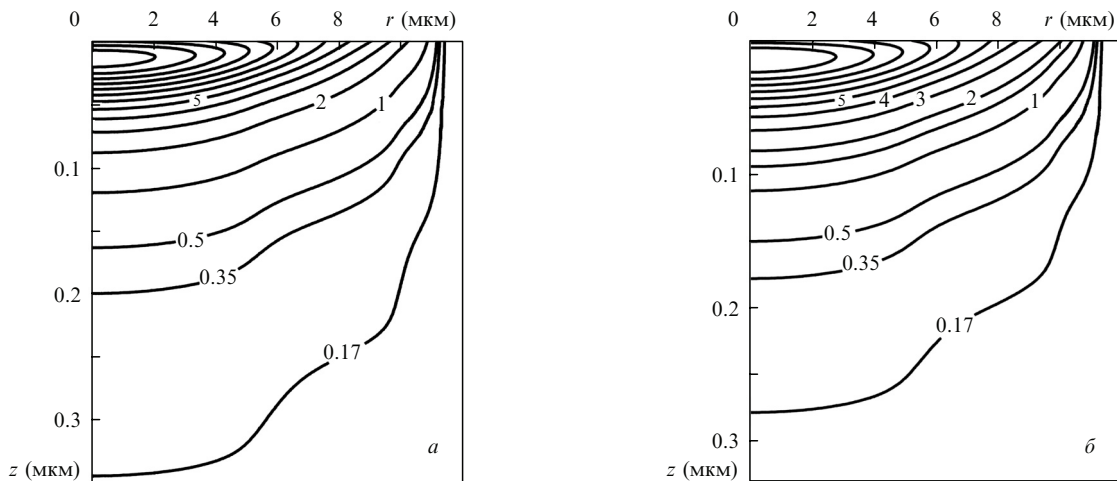


Рис.9. Результаты моделирования для плавленого кварца [66]: изолинии полной энергии (в пересчете на температуру), накопленной в образце, с учетом энергии дефектов (а) и энергия дефектов в расчете на 1 атом образца (б) в момент времени 3 пс после максимума первого импульса. Уровни энергии даны в эВ. Условия облучения те же, что и на рис.8.

$$\frac{\partial E_d}{\partial t} = E_e \frac{n_e}{\tau_{tr}}. \quad (18)$$

Вклад дефектов в локальное накопление энергии (изолинии  $T_d = E_d / (3k_B m_{\text{ат}})$ ) представлен на рис.9,б. Видно, что именно накопление дефектов определяет наблюдаемую модуляцию в плавленом кварце. Подчеркнем, что в сапфире концентрация дефектов очень мала на временных масштабах в несколько пикосекунд, и учет их энергии при построении изолиний не изменяет картины, представленной на рис.8,а. При этом вид изолиний температуры в сапфире не зависит от времени задержки между импульсами, и при моделировании с меньшей, в несколько сотен фемтосекунд, задержкой получено такое же распределение, как и на рис.8,а. Более того, и в моделировании для плавленого кварца с малой задержкой между импульсами (0.3–0.5 пс) получены гладкие овалы без следов пространственной модуляции (см. [66]), что свидетельствует об определяющей роли дефектов в наблюдаемом явлении.

Возвращаясь к рис.8, отметим, что в центральных частях пятна облучения некоторый объем вещества (и в сапфире, и в плавленом кварце) нагрет выше термодинамической критической температуры  $T_{cr}$ . Для оценки  $T_{cr}$  можно использовать один из методов, обсуждаемых в [72]. Для большинства материалов ожидаемая величина  $T_{cr}$  в полтора-два раза превышает их температуру кипения при нормальных условиях (2270 К для  $\text{SiO}_2$  и 3250 К для  $\text{Al}_2\text{O}_3$  [93]). Следовательно, можно ожидать, что критическая температура составляет  $\sim 4000$  К для плавленого кварца и 5000–6000 К для сапфира. Согласно термодинамическим представлениям [72, 94, 95], расплавленный материал при быстром нагреве в окрестность  $T_{cr}$  в результате сильного перегрева переходит в метастабильное состояние и распадается на парокапельную смесь. Более того, высказываются предположения, что при экстремально быстрых нагревах, как в случае воздействия УКИ, перегретый жидкий материал может пересечь спинодаль и перейти в газообразное состояние, минуя капельную фазу [96, 97]. Можно грубо полагать, что вещество с температурой выше  $T_{cr}$  покинет поверхность (возможно, через спинодальный распад), формируя тем самым кратер, форма которого соответствует

«критической» изоповерхности температуры в образце ( $\sim 0.5$  эВ для сапфира и  $\sim 0.35$  эВ для плавленого кварца, см. рис.8). Из рис.8 видно, что «критические» контуры качественно хорошо согласуются с экспериментальными данными по геометрии кратеров (см. вставки).

С термодинамической точки зрения можно понять и другой эффект, наблюдаемый в экспериментах [89], а именно наличие выпуклого ободка по краям кратера на поверхности сапфира и его полное отсутствие на поверхности плавленого кварца (см. вставки на рис.8). Хотя температуры плавления этих материалов различаются не слишком сильно (2006 К для  $\text{SiO}_2$  [98] и 2320 К для  $\text{Al}_2\text{O}_3$  [93], крайние изолинии на рис.8), процессы их плавления принципиально различны. В сапфире, где плавление является фазовым переходом первого рода, оно сопровождается резким изменением свойств материала: жидкая и твердая фазы разделены достаточно резкой границей плавления, на которой происходит поглощение теплоты плавления. В стеклах же вообще и в плавленом кварце в частности плавление является фазовым переходом второго рода (без необходимости в затратах теплоты плавления на этот процесс), не предполагающим резких изменений свойств вещества (например, плотности или вязкости). Таким образом, вязкость стекла с нагревом меняется плавно, тогда как расплав в сапфире имеет низкую вязкость и чувствителен к малым возмущениям [99]. При спинодальном распаде частицы пара, выбрасываемые с поверхности, имеют очень высокую кинетическую энергию [97], и давление отдачи паров выдавливает маловязкий расплав из кратера, формируя вокруг него ободок, быстро застывающий при контакте с холодной твердой поверхностью [98, 100]. Именно такая картина наблюдается на поверхности сапфира. В плавленом кварце, где расплав гораздо более вязок, чем в сапфире, формируемое давление отдачи, видимо, не способно привести к «выплескиванию» вязкого материала за пределы кратера.

Следует отметить, что при более подробном анализе необходимо учитывать дополнительные факторы (например, качество поверхности, поверхностное натяжение, теплопроводность), которые могут влиять на формирование кратеров и других микроструктур на поверхности материалов. К сожалению, поведение термодина-



мических параметров отдельных веществ при экстремальных температурах до сих пор остается малоизученным. Согласно динамической масштабной теории [101], в сверхбыстрых процессах физические свойства вещества не успевают релаксировать к равновесным значениям, а потому мы ограничиваемся рассмотрением результатов, полученных моделированием на основе известных из литературы параметров.

#### 4.3. «Твердая» плазма как причина шейпинга

Выше показано, что в плавленом кварце при его облучении последовательностями лазерных импульсов с определенной задержкой между ними формируются модулированные изоповерхности температуры. В чем же действительная причина их формирования? Ответ на этот вопрос дает рис.10, где приведены изолинии (изоповерхности) концентрации свободных электронов, соответствующие рис.8, но для момента времени перед третьим лазерным импульсом. В сапфире (рис.10,а) вследствие медленной рекомбинации электронов, формируемых при последовательном воздействии импульсов, максимум концентрации свободных электронов соответствует центру пятна облучения, что обуславливает более эффективное поглощение энергии лазерного излучения в этой области и, следовательно, больший нагрев материала. В целом изолинии температуры (рис.8,а) и концентрации свободных электронов (рис.10,а) для сапфира подобны. В плавленом кварце картина изолиний концентрации электронов (см. рис.10,б) более сложна. Вследствие быстрого захвата электронов в локализованные состояния в поверхностном слое в центре пятна облучения плотность электронов ниже, чем на периферии пятна. Таким образом, в поверхностном слое облучаемого кварца под действием последовательных импульсов формируется кольцевая зона с повышенной концентрацией свободных электронов, в которой при последующем импульсе энергия поглощается более эффективно, тогда как в центральной части лазерное излучение проникает глубже в образец. Следовательно, реальной причиной пространственной модуляции кратеров является формирование особого пространственного распределения плотности свободных электронов, обуславливающее сложную геометрию поглощения последующих импульсов лазерного излучения. Можно ожидать, что с увеличением количества

импульсов в последовательности возможно формирование более отчетливых ступенчатых структур. В разд.5 ряд представленных здесь выводов будет использован для анализа процессов, происходящих в стеклах при записи в них волноводных структур.

### 5. Моделирование формирования волноводных структур в оптических стеклах

В предыдущих разделах представлены основные положения модели, разработанной для описания воздействия УКИ при фокусировке излучения на поверхность прозрачных материалов, и представлены результаты одномерного и двумерного моделирования. Облучение поверхности прозрачных материалов широко используется для целого ряда оптических приложений, включая очистку, структурирование и модификацию поверхностей оптических элементов. Однако больший интерес представляют режимы фокусировки УКИ излучения в глубь прозрачных кристаллов и стекол, приводящие к важной для фотоники и оптоэлектроники локальной модификации свойств облучаемого образца. Главная область приложений здесь – формирование световодных структур, основанное на контролируемом изменении показателя преломления среды в области лазерно-индуцированной модификации. Формирование встроенного в диэлектрик фазового объекта обуславливается перестройкой связей в образце со смещением атомов и соответствующим изменением плотности, накоплением напряжений и появлением центров окраски [14–19, 102–105]. Для контроля над трансформацией материала под действием импульсного лазерного излучения и создания желаемых модификаций оптических свойств материала необходимо детальное изучение как отдельных лазерно-индуцированных процессов, так и их взаимосвязи на всем пути от фотовозбуждения материала до получения пространственной оптической структуры, встроенной в матрицу исходного материала.

В работах [19, 106–108] предприняты основанные на моделировании попытки проследить цепочку процессов, ведущих к лазерно-индуцированной трансформации оптических свойств материала, включая пространственно-временную динамику поглощения излучения [19, 106, 107], распространение термоупругопластических волн и

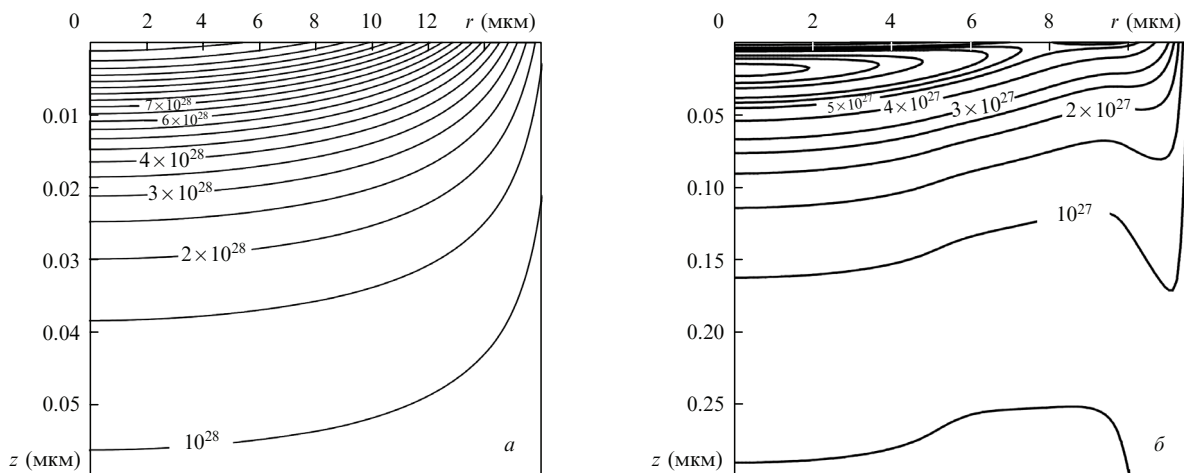


Рис.10. Изолинии концентрации свободных электронов в образцах  $\text{Al}_2\text{O}_3$  (а) и  $\text{SiO}_2$  (б) при тех же условиях облучения, что и на рис.8 и 9 [66]. Момент времени – 1.2 пс после максимума первого импульса. Уровни концентраций даны в  $\text{м}^{-3}$ .

вызванных ими пластических деформаций [19, 108], а также выявить роль тепловых процессов (накопление тепла, плавление и затвердевание отдельных областей материала) [19]. В экспериментах [19] с помощью адаптивного алгоритма управления формой лазерного импульса удалось подобрать режимы записи волноводных структур высокого качества в боросиликатном стекле (ВК6), которое, имея высокий коэффициент линейного расширения, склонно к формированию под действием фемтосекундных импульсов больших областей с пониженным показателем преломления [102, 109]. Разработанная модель позволила понять механизмы, с помощью которых стало возможным заставить материал изменить своему природному поведению, что открывает пути оптимизации записи волноводных структур в оптических материалах в зависимости от их оптических, термодинамических и механических свойств. Кратко представим основные положения модели.

### 5.1. Нелинейное уравнение Шредингера

Распространение электромагнитных волн в прозрачных материалах обычно моделируется на основе нелинейного уравнения Шредингера (НУШ), являющегося асимптотическим приближением уравнений Максвелла для описания распространения волнового пакета в нелинейной среде [110]. В случае формирования плазмы на пути лазерного пучка динамика распространения излучения меняется самоогласованным образом, и наряду с процессом самофокусировки пучка вследствие нелинейности среды существенным становится рассеяние излучения плазмой, формирующейся при пробое. Для моделирования таких режимов НУШ дополняется членами, учитывающими потери излучения на формирование плазмы и влияние плазмы на изменение диэлектрической проницаемости среды [107, 111–114]. Исследование именно этих процессов, т.е. формирования плазмы с определением пространственно-временной динамики поглощения лазерного излучения в оптическом стекле и последующего термомеханического отклика в условиях записи волноводных структур, и является целью работ [19, 107]. Численное моделирование основано на решении НУШ, записанного в цилиндрически-симметричном виде:

$$\begin{aligned} \frac{\partial \bar{\mathcal{E}}}{\partial z} = & \frac{i}{2k_0} T^{-1} \left( \frac{\partial^2}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \right) \bar{\mathcal{E}} - \frac{ik''}{2} \frac{\partial^2 \bar{\mathcal{E}}}{\partial t^2} + \frac{ik_0 n_2 T}{n_0} \\ & \times \left[ (1 - f_R) |\bar{\mathcal{E}}|^2 + f_R \int_{-\infty}^t R(t - \tau) |\bar{\mathcal{E}}|^2 d\tau \right] \bar{\mathcal{E}} \\ & - \frac{\sigma}{2} (1 + i\omega_0 \tau_c) T^{-1} (n_c \bar{\mathcal{E}}) - \frac{1}{2} \frac{W_{\text{mph}}(|\bar{\mathcal{E}}|) E_g}{|\bar{\mathcal{E}}|^2} \bar{\mathcal{E}}. \end{aligned} \quad (19)$$

Здесь  $\bar{\mathcal{E}}$  – комплексная амплитуда напряженности электрического поля световой волны. Для гауссова пучка с цилиндрической симметрией

$$\bar{\mathcal{E}}(r, t, 0) = \bar{\mathcal{E}}_0 \exp \left( -\frac{r^2}{w^2} - \frac{t^2}{\tau_{\text{las}}^2} - \frac{ik_0 r^2}{2f} \right), \quad (20)$$

где  $\bar{\mathcal{E}}_0^2 = 2E_{\text{in}}/(\pi w^2 \tau_{\text{las}} \sqrt{\pi/2})$  – входная интенсивность пучка;  $f = (d + z_f^2/d)$  – радиус кривизны лазерного пучка на расстоянии  $d$  до геометрического фокуса, с которого начинается расчет;  $z_f$  – длина Рэлея;  $E_{\text{in}}$  – энергия импульса;  $w$  – радиус фокусировки;  $\tau_{\text{las}}$  – длительность импульса (полуширина, определяемая по падению ин-

тенсивности поля в  $1/e$  раз);  $k_0 = n_0 \omega_0 / c$  и  $\omega_0$  – волновое число и частота несущей волны; параметр  $k''$  описывает дисперсию групповой скорости второго порядка;  $n_2$  – нелинейная составляющая показателя преломления;  $E_g = E_{g0} + e^2 \mathcal{E}^2 / (2cn_0 \epsilon_0 m_r \omega_0^2)$  – эффективный потенциал ионизации с учетом осцилляций энергии электронов в поле электромагнитной волны;  $E_{g0}$  – ширина запрещенной зоны диэлектрика;  $m_r$  – приведенная масса электрона и дырки. В уравнении (19) учтены дифракция пучка в поперечном направлении, дисперсия групповой скорости, оптический эффект Керра с членом, соответствующим запаздывающему (рамановскому) отклику нелинейного материала, который характеризуется параметром  $f_R$ , плазменная дефокусировка, поглощение энергии за счет фотоионизации и обратного тормозного рассеяния. Оператор  $T = 1 + (i/\omega_0)(\partial/\partial t)$  описывает укрупнение фронта импульса. Обратное тормозное поглощение описывается в рамках теории Друде (см. разд.2) с сечением поглощения  $\sigma = k_0 e^2 \omega_0 \tau_c / [n_0^2 \omega_0^2 \epsilon_0 m_e (1 + \omega_0^2 \tau_c^2)]$ , где характерное время столкновений электронов  $\tau_c$  имеет порядок нескольких фемтосекунд [115], и мы принимаем  $\omega_0 \tau_c = 3$ .

Следует отметить, что в (19) линейный член, описывающий поглощение, может несколько недооценивать эффективность поглощения при увеличении концентрации свободных электронов, поскольку не учитывается влияние концентрации электронов на сечение поглощения. Кроме того, не учитывается влияние многофотонного поглощения свободными электронами, что может оказаться важным при относительно высоких интенсивностях излучения [49], однако при фокусировке лазерного импульса в глубь мишени эффект клампинга ограничивает уровень достижимых интенсивностей [32, 33]. Уравнение, описывающее кинетику образования и рекомбинации свободных электронов, записывается подобно (1):

$$\frac{\partial n_e}{\partial t} = \left[ W_{\text{mph}}(|\bar{\mathcal{E}}|) + \frac{\sigma n_c}{(1 + m_r/m_e) E_g} |\bar{\mathcal{E}}|^2 \right] \frac{n_a}{n_{\text{lat}}} - \frac{n_e}{t_{\text{tr}}}. \quad (21)$$

Таким образом, в (21) учитывается рождение свободных электронов в процессах многофотонной и столкновительной ионизации и их гибель в результате захвата в локализованные состояния, связанные с локальными деформациями атомарной решетки (см. разд.2). Здесь мы не учитываем эффекты переноса тепла в электронной системе. Предполагается, что по окончании лазерного импульса поглощенная локально интегральная по времени энергия лазерного импульса  $\Delta E_L$  передается решетке за характерные времена в несколько пикосекунд, и уровень достигаемой температуры может быть оценен как  $\Delta E_L / C_{\text{lat}}$ . Таким образом, имея «карту» распределения поглощенной энергии в образце, получаем пространственное распределение температуры – исходные данные для дальнейшего моделирования упругопластических и тепловых процессов. Подчеркнем, что процессы поглощения излучения, генерации и распространения упругопластических волн и переноса тепла происходят на пико-, нано-, и микросекундных временных масштабах соответственно (см. рис.1), что позволяет рассматривать их поэтапно, упрощая задачу их моделирования.

### 5.2. Эффект фронта импульса: локализация поглощения, клампинг, рассеяние излучения

На первом этапе выполняется численное интегрирование уравнений (19)–(21). На рис.11 представлены ре-

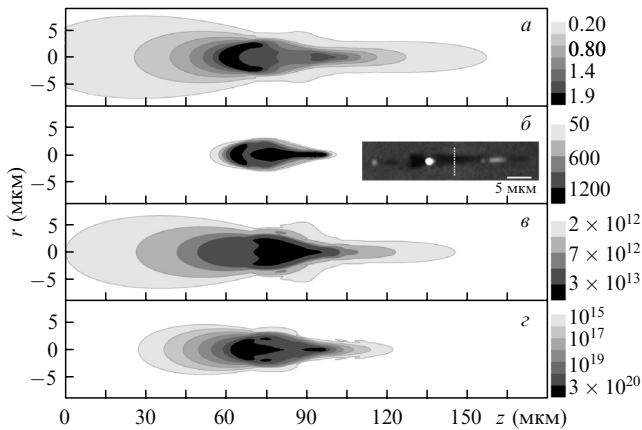


Рис.11. Результаты моделирования возбуждения a-SiO<sub>2</sub> импульсом титан-сапфирового лазера ( $\lambda = 800$  нм,  $\tau_L = 120$  фс,  $E_{in} = 1$  мкДж,  $w = 0.9$  мкм) [107]: интегральные по импульсу распределения плотности лазерной энергии (Дж/см<sup>2</sup>) (а) и энергии, поглощенной в образце в результате многофотонной ионизации и обратного тормозного поглощения (Дж/см<sup>3</sup>) (б); распределение локальной пиковой интенсивности (Вт/см<sup>2</sup>) (в); концентрация свободных электронов на момент времени 50 фс после максимума импульса (см<sup>-3</sup>) (г). На вставке приведено экспериментальное изображение модифицированной зоны (условия облучения те же, что и в расчете), полученное методом фазового контраста. Геометрический фокус отмечен белой линией.

ультаты такого расчета для плавленого кварца, облучаемого импульсом титан-сапфирового лазера ( $\lambda = 800$  нм) с  $E_{in} = 1$  мкДж,  $w = 0.9$  мкм и  $\tau_{las} = 100$  фс (что соответствует  $\tau_L = 120$  фс) [107]. В расчетах лазерный пучок фокусировался на глубине 90 мкм от поверхности образца. Для моделирования использовались следующие параметры плавленого кварца:  $n_{lat} = 6.6 \times 10^{22}$  см<sup>-3</sup>,  $k'' = 361$  фс<sup>2</sup>/см,  $n_2 = 2.48 \times 10^{-16}$  см<sup>2</sup>/Вт,  $E_{g0} = 9$  эВ,  $f_R = 0.18$ ,  $m_r = 0.5m_c$  и  $t_{tr} = 150$  фс. Скорость многофотонной ионизации рассчитывалась по теории Келдыша [30]. На рис.11 приведены интегральные по импульсу пространственные распределения плотности лазерной энергии (рис.11,а) и энергии, поглощенной в образце в результате многофотонной ионизации и обратного тормозного поглощения (рис.11,б), а также распределение локальной пиковой интенсивности (рис.11,в). Ввиду быстрой рекомбинации свободных электронов распределение их концентрации (рис.11,г) дано на момент времени 50 фс после максимума импульса. На вставке для сравнения приведено экспериментальное изображение (те же условия облучения, что и в расчете), полученное методом фазового контраста. При анализе результатов моделирования выявляются следующие общие особенности. Энергия лазерного излучения поглощается главным образом в области перед геометрическим фокусом (90 мкм). Именно в этой области к концу лазерного импульса достигается максимум концентрации свободных электронов. Отметим, что вследствие быстрой рекомбинации электронов приведенное на рис.11,г распределение отличается от распределений на более ранних этапах воздействия импульса, тем не менее концентрация электронов остается докритической в течение всего периода облучения. Белая точка на фазовом изображении (см. вставку) однозначно ассоциируется с областью, в которой происходит максимальное поглощение лазерной энергии (~60 мкм), приводящее к наибольшему тепловому расширению материала. Простая термодинамическая оцен-

ка, основанная на поглощенной электронами энергии ( $\Delta E_L / C_{lat}$ ), показывает, что температура в области максимального поглощения превышает температуру затвердевания (стеклования). Ввиду малой теплопроводности стекол такая оценка должна давать реалистичное распределение температуры, достигаемой в образце при воздействии фемто- и пикосекундных лазерных импульсов. Отметим, что энергия, запасаемая в дефектах, формируемых при рекомбинации электронов, здесь не рассматривается (см. разд.4). Граница зоны поглощения излучения на рис.11,б с уровнем плотности энергии 1200 Дж/см<sup>2</sup> соответствует увеличению температуры образца примерно на 700 К. Нагрев в этой зоне способствует структурным модификациям стекла. Вокруг зоны фокуса к концу лазерного импульса формируется канал с меньшей плотностью плазмы (заметим, что на рис.11 поперечный размер расчетных структур приведен в значительно меньшем масштабе, чем продольный, с целью показать детальную картину лазерного возбуждения). Формирование плазмы приводит к «размягчению» молекулярной матрицы и, следовательно, к лучшей ее сжимаемости, чем в невозмущенных областях стекла, и именно в область размягчения поступает сильно нагретый материал из зоны максимального возбуждения. Для рассматриваемого на рис.11 режима энергия электронов в области максимального поглощения излучения составляет согласно оценке ~ 13 эВ на один электрон, что указывает на эффективность плазменного поглощения и столкновительного механизма ионизации.

Как видно из вставки на рис.11,б, в экспериментах для представленных условий наблюдается значительный сдвиг формируемых структур от точки геометрического фокуса навстречу лазерному пучку. Входная мощность излучения для этих условий (8 МВт) превышает пороговую мощность самофокусировки для плавленого кварца (2.8 МВт). Тем не менее формирование плазмы должно играть роль сильного дефокусирующего фактора, что видно из рис.12, на котором представлена динамика поглощения энергии лазерного излучения электронами. Чтобы проследить, какие порции излучения поглощаются наиболее эффективно, лазерный импульс длительностью 120 фс (ширина на полувысоте) разбит на четыре части, и по этим частям проведено интегрирование поглощенной энергии. Любопытно, что лишь малая доля

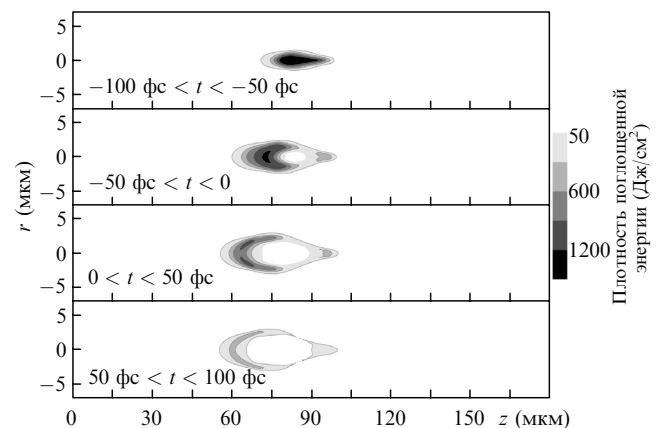


Рис.12. Картина последовательного поглощения энергии в a-SiO<sub>2</sub> для тех же условий облучения, что и на рис.11 [107]. Максимум импульса соответствует  $t = 0$ , импульс разбит на четыре временных отрезка, по которым выполнено интегрирование поглощенной энергии.



фронтальной части лазерного импульса, содержащая  $\sim 15\%$  его энергии, максимально эффективно поглощается вблизи геометрического фокуса и перед ним (ср. верхний график на рис.12 и рис.11,б). Следующая часть лазерного импульса уже практически не попадает в область вблизи геометрического фокуса, что обусловлено сильным дефокусирующим рассеянием плазмы, сформированной фронтом импульса. Однако вследствие самофокусировки эта часть импульса создает максимум поглощения в области  $z = 70$  мкм. Таким образом, две зоны максимального поглощения на рис.11,б формируются в течение первой половины лазерного импульса, тогда как вторая его половина «обтекает» эти зоны из-за сложной взаимозависимости эффектов самофокусировки и дефокусировки в области резких градиентов плотности плазмы. Важным следствием этой взаимозависимости является локальная интенсивность в образце не более  $5 \times 10^{13}$  Вт/см<sup>2</sup> (так называемый эффект клампинга). Следует подчеркнуть, что немаловажную роль в эффекте клампинга играет также ослабление излучения за счет многофотонной ионизации и обратного тормозного поглощения [32, 33]. В связи с эффектом клампинга до сих пор остается открытым вопрос о максимально эффективном введении энергии лазерного излучения локально в образец, что зависит от условий фокусировки и более благоприятно для больших углов фокусировки [22].

### 5.3. Упругоэластические деформации и динамика тепла; снятие деформаций плавлением

Зная распределение энергии, введенной лазерным импульсом в образец на фемто- или пикосекундных временах, можно попытаться проследить дальнейшую эволюцию материала. Создание резких градиентов температуры в зоне поглощения излучения приводит к формированию уже на пикосекундных временах упругоэластических (или даже ударных, в зависимости от условий нагрева) волн, распространяющихся от области нагрева. Как правило, на временах порядка нескольких десятков наносекунд упругоэластические деформации (если таковые имеют место) прекращаются, после чего дальнейшая эволюция материала обусловлена медленным остыванием зоны лазерного нагрева. Здесь мы покажем, что распространение тепла может послужить толчком для нового перераспределения плотности в материале и даже для возможного запуска вторичных волн сжатия.

С целью исследования термоупругоэластических процессов при лазерно-индуцированном нагреве стекол в условиях записи волноводных структур разработана модель, основанная на уравнениях упругоэластики и уравнении теплопроводности материала. В качестве исходных данных используется поле температур, полученное решением НУШ, как описано в п.5.1. Детали моделирования, проводимого методом конечных элементов для цилиндрической геометрии облучения, приведены в работе [116] в упрощенном случае тонких пленок, и полные уравнения могут быть найдены в [117]. В качестве критерия деформации используется критерий текучести Мизеса [116, 118]. На рис.13 представлены результаты моделирования воздействия излучения титан-сапфирового лазера ( $\lambda = 800$  нм,  $E_{in} = 0.5$  мкДж,  $w = 0.9$  мкм) на мишень из ВК7 – достаточно дешевого стекла, хорошо подходящего для оптических применений. Однако вследствие большого коэффициента линейного расширения в этом материале могут формироваться относительно большие

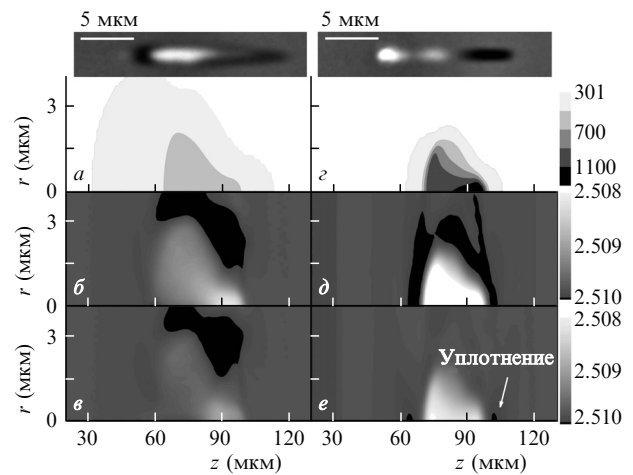


Рис.13. Картина нагрева и пластических деформаций в стекле ВК7 при облучении импульсом титан-сапфирового лазера ( $\lambda = 800$  нм,  $E_{in} = 0.5$  мкДж,  $w = 0.9$  мкм) [19] длительностью 150 фс (слева) и 4.5 пс (справа): распределения поглощенной энергии лазерного излучения в единицах температуры (см. текст) (а, з); распределения плотности (в г/см<sup>3</sup>) спустя 10 мкс после облучения (б, д); то же, что и (б, д), спустя 200 мкс после облучения (в, е). Вверху приведены экспериментальные изображения модификаций (условия облучения те же, что и в расчетах, накопление по  $5 \times 10^4$  импульсам), полученные методом фазового контраста.

области с пониженным показателем преломления. С целью записи волноводных структур высокого качества в этом стекле в работе [19] использована техника адаптивного управления формой лазерного импульса. Начальный лазерный импульс длительностью 150 фс (ФИ) приводит к резкому расширению материала с формированием тонкой оболочки уплотнения вокруг зоны пониженной плотности. В результате применения адаптивной техники получен оптимальный лазерный импульс (ОИ) длительностью 4.5 пс, в результате воздействия которого удастся подавить естественную тенденцию материала к расширению и сформировать четкие волноводные структуры [19]. Изображения лазерных модификаций в ВК7, полученные методом фазового контраста, приведены в верхней части рис.13 для ФИ (слева) и ОИ (справа).

С помощью моделирования удалось проследить эволюцию материала в процессе и после воздействия импульсов и выявить различия, приводящие в случае ОИ к желаемому перераспределению плотности. Выявлен ряд основных различий между откликом материала на ФИ и ОИ. Так, размеры областей ионизации этими импульсами, имеющими изначально одинаковые радиусы фокусировки, существенно различны. Причина этого состоит в динамике ионизации. В случае ФИ (по аналогии с плавленым кварцем, см. п.5.2) сильная ионизация перед геометрическим фокусом, находящимся на глубине 90 мкм, в самом начале импульса приводит к плазменной дефокусировке его основной части. В результате рассеяния лазерная энергия поглощается более широкой областью вокруг фокуса, чем в случае ОИ. Для обоих случаев плотность создаваемой плазмы остается докритической, однако максимальная плотность электронов достигается при ОИ, причем к концу лазерного импульса. Очевидно, что это возможно вследствие более эффективного развития лавинной ионизации при более длинных импульсах [28, 29]. Кроме того, при фиксированной энергии импульса эффекты самофокусировки более выражены для ФИ, а потому область ионизации в этом случае является



более протяженной вдоль оси пучка (навстречу излучению). В случае же ОИ плазма концентрируется вблизи геометрического фокуса. Однако более важно то, что область развитой плазмы напрямую коррелирует с зоной эффективного поглощения энергии, а значит, определяет геометрию зоны модификации, развивающейся при достижении определенного порогового уровня концентрации энергии. На рис.13 представлены распределения поглощенной энергии в единицах температуры для ФИ и ОИ. Интересно, что доля энергии импульса, поглощенной при воздействии на стекло, значительно больше для ФИ, чем для ОИ (~65 % против 30 %), однако уровень нагрева и степень его локализация при ОИ существенно выше. Согласно моделированию максимальная температура, достигаемая вблизи фокуса при ОИ, составляет ~1600 К, т.е. она в 2.5 раза выше, чем при воздействии ФИ с той же энергией (отметим, что температура сублимации/испарения ВК7 равна ~2000 К).

Как отмечалось выше, полученные распределения поглощенной энергии, переведенные в пространственную карту температуры образца (рис.13,а, з), служат начальными данными для термоупругопластической модели, учитывающей такие эффекты, как перенос тепла, динамическая упругость и необратимые деформации материала. В модели предполагается, что вязкость стекла достаточно велика, так что при остывании материала не создается значительных волн напряжений. Ввиду этих упрощений и отсутствия информации о температурных зависимостях свойств материала, результаты данного моделирования дают лишь качественную картину его поведения. Основываясь на моделировании, можно дать следующий общий сценарий развития лазерно-индуцированных модификаций в ВК7 при рассматриваемых здесь условиях облучения. Резкий локальный нагрев приводит к повышению давления в нагретой области, достигающего 0.2 ГПа для ФИ и 0.7 ГПа для ОИ. Нагретый материал начинает расширяться, вследствие чего уже на пикосекундных временах после воздействия импульса формируется упругопластическая волна [119]. Амплитуда волны зависит от начального градиента температуры и механических свойств материала (в частности от коэффициента линейного расширения). Волна сжатия, распространяющаяся по материалу от области нагрева, создает пластические деформации в виде более плотной оболочки вокруг зоны разрежения [120]. Зона пластической деформации определяется по величине тангенциального напряжения при достижении им предела текучести материала (~7 МПа для ВК7). За пределами сформированной пластической оболочки материал испытывает упругое сжатие, т.е. формируется окружное напряжение. Вследствие низкой теплопроводности материала тепловая волна из горячей зоны достигает пластической оболочки лишь на микросекундных временах. Если тепла достаточно для нагрева зоны оболочки до температуры размягчения, то происходит снятие деформаций и окружного напряжения с новым перераспределением материала.

Переходя к сравнению модификаций, вызванных в ВК7 воздействием ФИ и ОИ, напомним, что при ФИ формируется широкая нагретая квазицилиндрическая область с температурой, не превышающей температуры размягчения стекла. На рис.13,б приведено распределение плотности материала, сформировавшееся к моменту времени 10 мкс после воздействия ФИ в результате рас-

ширения нагретой области и термоупругопластических деформаций. На расстоянии ~3 мкм от оси структуры вокруг разреженной зоны сформирована уплотненная оболочка деформированного материала. На более поздних временах вследствие остывания горячей зоны отмечается лишь незначительное перераспределение плотности. Картина деформаций, сформировавшаяся к моменту времени 200 мкс (рис.13,в), является окончательной для случая воздействия ФИ. Температура пластической оболочки остается ниже температуры размягчения стекла и потому в процессе остывания материала оболочка сохраняется, предотвращая снятие окружного напряжения, остающегося на уровне 0.8 МПа.

В случае воздействия ОИ вследствие большего нагрева плотность в области нагрева оказывается ниже, а пластическая оболочка формируется ближе к области максимального нагрева, включая торцевые зоны структуры (рис.13,д, 10 мкс после воздействия импульса). Последнее обусловлено значительными градиентами температуры не только в радиальном направлении, но и вдоль оси в области фокуса. Окружное напряжение вокруг области пластических деформаций на этот момент времени составляет ~3 МПа. Когда тепловая волна из горячей зоны достигает области пластической оболочки, то вследствие сильного нагрева в случае ОИ температура в этой области поднимается выше температуры размягчения. В этот момент окружное напряжение, действующее на область деформаций, толкает сжатый материал назад в центральную разреженную зону, приводя к значительному дальнейшему перераспределению материала (ср. рис.13,д и е, где приведена окончательная картина деформаций, вызываемых воздействием ОИ). Хотя моделирование выполнено для одиночных импульсов, на рис.13,е видна тенденция к увеличению плотности материала на оси структуры, наблюдаемая экспериментально при многоимпульсном воздействии оптимальными импульсами (рис.13, вверху справа).

#### 5.4. Эффект частоты следования импульсов

Возникает вопрос, насколько моделирование одноимпульсного режима может характеризовать реальные многоимпульсные режимы записи волноводных структур. Известно, что частота следования импульсов является важным параметром, влияющим на качество модификации показателя преломления. Это влияние обычно относят к эффектам скорости накопления тепла [42]. Отметим, что дополнительно к эффектам накопления тепла важную роль играет накопление деформационных состояний. Можно считать, что ко второму импульсу облучения картины деформаций, приведенные на рис.13, уже сложились при частоте следования 100 (б, д) и 5 кГц (в, е). Такое моделирование, когда на определенное время после данного импульса, наносилась «карта нагрева» от нового импульса, показало следующее. В случае воздействия ФИ накопление тепла при обеих частотах следования, 100 и 5 кГц, не оказывает заметного качественного влияния на конечную структуру деформаций, которая сохраняется в виде тонкой сжатой оболочки вокруг зоны расплава с постепенным накоплением добавочных деформаций от импульса к импульсу, что согласуется с экспериментальными данными [19]. Однако при воздействии ОИ влияние частоты следования весьма значительно. В этом случае моделирование воздействия

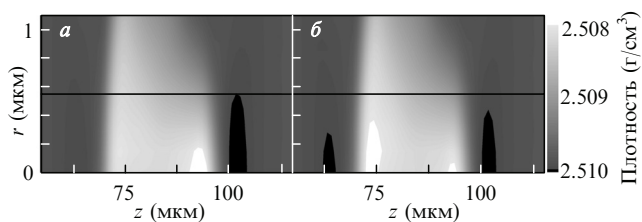


Рис.14. Структуры деформаций, вызванных воздействием четырех последовательных оптимальных импульсов с частотой следования 100 (а) и 5 кГц (б) [19]. Условия облучения те же, что и на рис.13. При более высокой частоте следования показатель преломления растет быстрее, и материал имеет тенденцию к сдвигу по ходу лазерного пучка.

четырьмя последовательными импульсами с задержкой по времени 10 и 200 мкс показало, что при низкой частоте следования картины деформаций при воздействии одного и нескольких импульсов (ср. рис.13,е и 14,б) различаются лишь небольшим накоплением материала в зонах деформации от импульса к импульсу. Однако с повышением частоты следования отмечается преимущественный сдвиг материала вдоль оси по ходу лазерного пучка, тогда как зона уплотнения, возникшая после первого лазерного импульса перед фокусом во фронте зоны модификации (рис.13,е), постепенно сглаживается и исчезает уже к четвертому импульсу (рис.14,а). При этом скорость роста показателя преломления (плотности в зоне денсификации) при высокой частоте следования заметно выше, что полностью согласуется с экспериментальными наблюдениями [19].

## 6. Заключение

В нашей статье мы коснулись лишь нескольких эффектов, происходящих как на поверхности, так и в глубине прозрачных материалов при их облучении УКИ. Разработанные модели (дрейфово-диффузионный подход к описанию эффектов, связанных с лазерно-индуцированной зарядкой облучаемой поверхности; двумерная модель пробоя и нагрева диэлектриков, созданная с целью изучения поверхностного структурирования; комбинированный оптический и термоупругопластический подходы к моделированию модификаций материала в условиях объемной записи информации и волноводных структур) позволяют выявить наиболее важные процессы, определяющие поведение материала под действием излучения в зависимости от условий лазерного воздействия. Тем не менее к настоящему времени накоплен большой объем впечатляющих экспериментальных данных, еще не нашедших убедительного объяснения либо не имеющих адекватного описания. Здесь мы отметим лишь несколько таких эффектов.

1. Формирование микро- и нанополостей внутри прозрачных материалов [10, 20–23, 26, 122] является общим эффектом, наблюдаемым в самых различных прозрачных кристаллах и стеклах начиная с некоторого порогового значения энергии импульса [121]. Эти полости рассматриваются обычно как следствие «микровзрыва» при локальном выделении энергии, когда достигаются давления вплоть до 10 ТПа [22]. При определенных условиях фокусировки могут возникать цепочки полостей уже в случае одноимпульсного воздействия [122, 123] при достаточно умеренных энергиях импульса. Остается открытым вопрос об уровне температур, достигаемых в зоне

разрыва материала, поскольку из материаловедения известно, что для разрушения материала достаточны напряжения, превышающие предел его прочности на разрыв, что обычно значительно меньше модуля Юнга для данного материала. Кроме того, при увеличении температуры материала (и тем более при приближении к точке плавления и ее превышении) предел прочности снижается.

2. Формирование объемных периодических структур (нанорешеток) в прозрачных материалах под действием УКИ с линейной поляризацией, впервые обнаруженное в работе [9], вызвало поток исследований этого удивительного явления [10–13, 124–128]. Этот эффект объясняют интерференцией падающего излучения с ленгмюровскими волнами в создаваемой им плазме [9, 10]. Отмечено, что период нанорешеток, который, как правило, существенно меньше длины волны облучения, уменьшается с увеличением числа лазерных импульсов, воздействующих на определенный объем материала, и с уменьшением энергии отдельного импульса [9]. Структура нанорешеток, формируемых только в нескольких «чистых» оксидных материалах ( $\text{SiO}_2$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{TeO}_2$ ), состоит из чередующихся областей, обедненных и обогащенных по кислороду [9]. Остается непонятным, почему нанорешетки не формируются в любых прозрачных материалах (по крайней мере, в оксидных), поскольку эффект интерференции должен быть присущ облучению любых материалов. Замечено, что при многоимпульсном облучении сапфира, когда образец сдвигается (сканируется) поперек лазерного пучка с одновременным смещением его фокуса к поверхности образца, нанорешетки выходят на поверхность без существенных изменений в периоде [124]. Возникает вопрос о взаимосвязи объемных нанорешеток и поверхностных периодических структур, возникающих при воздействии излучения на различные виды материалов (металлы, диэлектрики, полупроводники), для объяснения формирования которых разработан ряд теорий [3–8, 129–131].

3. Обнаружено, что при записи волноводных структур с помощью УКИ в изотропных материалах качество записи зависит от направления сканирования образца лазерным пучком, что связывают с небольшим наклоном фронта лазерного импульса [132]. В то же время в кристаллах этот эффект наблюдается и для импульсов, не имеющих наклона фронта, что объясняется действующими на электроны пондеромоторными силами и обусловленным ими переносом тепла [133]. Однако это явление требует дальнейшего как теоретического, так и экспериментального исследования.

Можно упомянуть еще ряд интересных явлений, наблюдаемых при воздействии лазерного излучения на прозрачные материалы. Это изменения фазового состояния (например, лазерно-индуцированная аморфизация или, наоборот, кристаллизация, формирование нанокластеров малых добавок и др.). Однако уже из перечисленного понятно, что взаимодействие УКИ с прозрачными материалами – явление, богатое физическим содержанием и открывающее широкие возможности для его применения в оптоэлектронике, фотонике и других областях. Попытки моделирования разнообразных процессов, сопровождающих это явление, относительно немногочисленны, и требуется много усилий для теоретических исследований, которые предполагают объединение знаний оптики, физики и химии твердого тела, физики плазмы, термодинамики, теории упругости и пластичности и др.

1. Mao S.S., Quere F., Guizard S., Mao X., Russo R.E., Petite G., Martin P. *Appl. Phys. A*, **79**, 1695 (2004).
2. Gattass R.R., Mazur E. *Nature Photon.*, **2**, 219 (2008).
3. Temple P.A., Soileau M.J. *IEEE J. Quantum Electron.*, **17**, 2067 (1981).
4. Emel'yanov V.I., Konov V.I., Tokarev V.N., Seminogov V.N. *J. Opt. Soc. Am. B*, **6**, 104 (1989).
5. Kerr N.C., Omar B.A., Clark S.E., Emmony D.C. *J. Phys. D*, **23**, 884 (1990).
6. Reif J., Costache F., Henyk M., Pandelov S. *Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Eng.*, **4760**, 980 (2002).
7. Dusser B., Sagan Z., Soder H., Faure N., Colombier J.P., Jourlin M., Audouard E. *Opt. Express*, **18**, 2913 (2010).
8. Das S.K., Dasari K., Rosenfeld A., Grunwald R. *Nanotechnology*, **21**, 155302 (2010).
9. Shimotsuma Y., Kazansky P.G., Qiu J.R., Hirao K. *Phys. Rev. Lett.*, **91**, 247405 (2003).
10. Shimotsuma Y., Hirao K., Qiu J.R., Kazansky P.G. *Mod. Phys. Lett. B*, **19**, 225 (2005).
11. Bhardwaj V.R., Simova E., Rajeev P.P., Hnatovsky C., Taylor R.S., Rayner D.M., Corkum P.B. *Phys. Rev. Lett.*, **96**, 057404 (2006).
12. Kazansky P.G., Yang W.J., Bricchi E., Bovatsek J., Arai A., Shimotsuma Y., Miura K., Hirao K. *Appl. Phys. Lett.*, **90**, 151120 (2007).
13. Taylor R.S., Hnatovsky C., Simova E., Rajeev P.P., Rayner D.M., Corkum P.B. *Opt. Lett.*, **32**, 2888 (2007).
14. Hirao K. *Ceram. Jpn.*, **30**, 689 (1995).
15. Miura K., Qiu J., Inouye H., Mitsuyu T., Hirao K. *Appl. Phys. Lett.*, **71**, 3329 (1997).
16. Schaffer C.B., Brodeur A., Garcia J.F., Mazur E. *Opt. Lett.*, **26**, 93 (2001).
17. Wang Z., Sugioka K., Hanada Y., Midorikawa K. *Appl. Phys. A*, **88**, 699 (2007).
18. Yang W., Corbari C., Kazansky P.G., Sakaguchi K., Carvalho I.C.S. *Opt. Express*, **16**, 16215 (2008).
19. Mermillod-Blondin A., Burakov I.M., Meshcheryakov Y.P., Bulgakova N.M., Audouard E., Rosenfeld A., Husakou A., Hertel I.V., Stoian R. *Phys. Rev. B*, **77**, 104205 (2008).
20. Glezer E.N., Mazur E. *Appl. Phys. Lett.*, **71**, 882 (1997).
21. Watanabe W., Itoh K. *Opt. Express*, **10**, 14 (2002).
22. Juodkazis S., Nishimura K., Tanaka S., Misawa H., Gamaly E.G., Luther-Davies B., Hallo L., Nicolai P., Tikhonchuk V.T. *Phys. Rev. Lett.*, **96**, 166101 (2006).
23. Graf R., Fernandez A., Dubov M., Brueckner H.J., Chichkov B.N., Apolonski A. *Appl. Phys. A*, **87**, 21 (2007).
24. Koubassov V., Laprise J.F., Theberge F., Forster E., Sauerbrey R., Muller B., Glatzel U., Chin S.L. *Appl. Phys. A*, **79**, 499 (2004).
25. Qiu J., Miura K., Hirao K. *J. Non-Cryst. Sol.*, **354**, 1100 (2008).
26. Sugioka K., Hanada Y., Midorikawa K. *Laser Photon. Rev.*, **4**, 386 (2010).
27. Arnold D., Cartier E. *Phys. Rev. B*, **46**, 15102 (1992).
28. Stuart B.C., Feit M.D., Rubenchik A.M., Shore B.W., Perry M.D. *Phys. Rev. Lett.*, **74**, 2248 (1995).
29. Stuart B.C., Feit M.D., Herman S., Rubenchik A.M., Shore B.W., Perry M.D. *Phys. Rev. B*, **53**, 1749 (1996).
30. Келдыш Л.В. *ЖЭТФ*, **47**, 1946 (1964).
31. Kaiser A., Rethfeld B., Vicanek M., Simon G. *Phys. Rev. B*, **61**, 11437 (2000).
32. Becker A., Akozbek N., Vijayalakshmi K., Oral E., Bowden C.M., Chin S.L. *Appl. Phys. B*, **73**, 287 (2001).
33. Sun Q., Liang F., Vallee R., Chin S.L. *Opt. Lett.*, **33**, 2713 (2008).
34. Lenzner M., Krüger J., Sartania S., Cheng Z., Spielmann C., Mourou G., Kautek W., Krausz F. *Phys. Rev. Lett.*, **80**, 4076 (1998).
35. Petrov G.M., Davis J. *J. Phys. B*, **41**, 025601 (2008).
36. Quéré F., Guizard S., Martin P. *Europhys. Lett.*, **56**, 138 (2001).
37. Rajeev P.P., Gertsvolf M., Corcum P.B., Rayner D.M. *Phys. Rev. Lett.*, **102**, 083001 (2009).
38. Jones S.C., Braunlich P., Casper R.T., Shen X.-A., Kelly P. *Opt. Engineer.*, **28**, 1039 (1989).
39. Tanimura K., Fujiwara H., Suzuki T. *Nucl. Instrum. Meth. B*, **116**, 26 (1996).
40. Kruger J., Lenzner M., Martin S., Lenner M., Spielman C., Fiedler A., Kautek W. *Appl. Surf. Sci.*, **208**, 233 (2003).
41. Martin P., Guizard S., Daguzan Ph., Petite G., D'Oliveira P., Maynadier P., Pedrix M. *Phys. Rev. B*, **55**, 5799 (1997).
42. Eaton S.M., Zhang H., Herman P.R., Yoshino F., Shah L., Bovatsek J., Arai A.Y. *Opt. Express*, **13**, 4708 (2005).
43. Stoian R., Rosenfeld A., Ashkenasi D., Hertel I.V., Bulgakova N.M., Campbell E.E.B. *Phys. Rev. Lett.*, **88**, 097603 (2002).
44. Bulgakova N.M., Stoian R., Rosenfeld A., Hertel I.V., Campbell E.E.B. *Phys. Rev. B*, **69**, 054102 (2004).
45. Bulgakova N.M., Stoian R., Rosenfeld A., Hertel I.V., Marine W., Campbell E.E.B. *Appl. Phys. A*, **81**, 345 (2005).
46. Bulgakova N.M., Rosenfeld A., Erentraut L., Stoian R., Hertel I.V. *Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Am.*, **6732**, 673208 (2007).
47. Gruzdev V.E. *Phys. Rev. B*, **75**, 205106 (2007).
48. Rethfeld B. *Phys. Rev. Lett.*, **92**, 187401 (2004).
49. Bachau H., Belsky A.N., Bogatyrev I.B., Gaudin J., Geoffroy G., Guizard S., Martin P., Popov Y.V., Vasil'ev A.N., Yatsenko B.N. *Appl. Phys. A*, **98**, 679 (2010).
50. Mishima K., Hayashi M., Yi J., Lin S.H., Selzle H.L., Schlag E.W. *Phys. Rev. A*, **66**, 033401 (2002).
51. Sokolowski-Tinten K., von der Linde D. *Phys. Rev. B*, **61**, 2643 (2000).
52. Driscoll W.G., Vaughan W. (Eds). *Handbook of Optics* (New York: McGraw-Hill Book Company, 1978).
53. Von der Linde D., Schuller H. *J. Opt. Soc. Am. B*, **13**, 216 (1996).
54. Gamaly E.G., Rode A.V., Luther-Davies B., Tikhonchuk V.T. *Phys. Plasmas*, **9**, 949 (2002).
55. Bulgakova N. M., Bulgakov A.V., Zhukov V.P., Marine W., Vorobyev A.Y., Guo C.L. *Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Am.*, **7005**, 70050C (2008).
56. Stoian R., Ashkenasi D., Rosenfeld A., Campbell E.E.B. *Phys. Rev. B*, **62**, 13167 (2000).
57. Bashir S., Rafique M.S., Husinsky W. *Appl. Surf. Sci.*, **255**, 8372 (2009).
58. Jones S.C., Fischer A.H., Braunlich P., Kelly P. *Phys. Rev. B*, **37**, 755 (1988).
59. Siekhaus W.J., Kinney J.H., Milam D., Chase L.L. *Appl. Phys. A*, **39**, 163 (1986).
60. Каганов М.И., Лифшиц И.М., Танатаров Л.В. *ЖЭТФ*, **31**, 232 (1956).
61. Анисимов С.И., Капелиович Б.Л., Перельман Т.Л. *ЖЭТФ*, **66**, 776 (1974).
62. Ivanov D.S., Zhigilei L.V. *Phys. Rev. Lett.*, **98**, 195701 (2007).
63. Ernstorfer R., Harb M., Hebeisen C.T., Sciaini G., Dartigalongue T., Miller R.J.D. *Science*, **323**, 1033 (2009).
64. Van Driel H.M. *Phys. Rev. B*, **35**, 8166 (1987).
65. Bulgakova N.M., Burakov I.M., Meshcheryakov Yu.P., Stoian R., Rosenfeld A., Hertel I.V. *J. Laser Micro/Nanoeng.*, **2**, 76 (2007).
66. Burakov I.M., Bulgakova N.M., Stoian R., Rosenfeld A., Hertel I.V. *Appl. Phys. A*, **81**, 1639 (2005).
67. Tam A.C., Brand J.L., Cheng D.C., Zapka W. *Appl. Phys. Lett.*, **55**, 2045 (1989).
68. Ashkenasi D., Rosenfeld A., Varel H., Warmer M., Campbell E.E.B. *Appl. Surf. Sci.*, **120**, 65 (1997).
69. Varel H., Wahmer M., Rosenfeld A., Ashkenasi D., Campbell E.E.B. *Appl. Surf. Sci.*, **127–129**, 128 (1998).
70. Stoian R., Ashkenasi D., Rosenfeld A., Wittmann M., Kelly R., Campbell E.E.B. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B*, **166–167**, 682 (2000).
71. Kelly R., Miotello A. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B*, **122**, 374 (1997).
72. Bulgakova N.M., Bulgakov A.V. *Appl. Phys. A*, **73**, 199 (2001).
73. Henyk M., Wolfram D., Reif J. *Appl. Surf. Sci.*, **168**, 263 (2000).
74. Bulgakova N.M., Bulgakov A.V., Bobrenok O.F. *Phys. Rev. E*, **62**, 5624 (2000).
75. Stoian R., Rosenfeld A., Hertel I.V., Bulgakova N.M., Campbell E.E.B. *Appl. Phys. Lett.*, **85**, 694 (2004).
76. Borghesi M., Romagnani L., Schiavi A., Campbell D.H., Haines M.G., Willi O., Mackinnon A.J., Galimberti M., Gizzi L., Clarke R.J., Hawkes S. *Appl. Phys. Lett.*, **82**, 1529 (2003).
77. Vella A., Deconihout B., Marucci L., Santamato E. *Phys. Rev. Lett.*, **99**, 046103 (2007).
78. Marine W., Bulgakova N.M., Patrone L., Ozerov I. *Appl. Phys. A*, **79**, 771 (2004).
79. Marine W., Bulgakova N.M., Patrone L., Ozerov I. *J. Appl. Phys.*,



- 103, 094902 (2008).
80. Li M., Menon S., Nibarger J.P., Gibson G.N. *Phys. Rev. Lett.*, **82**, 2394-2397 (1999).
81. Hughes R.C. *Phys. Rev. B*, **19**, 5318 (1979).
82. Miotello A., Dapor M. *Phys. Rev. B*, **56**, 2241 (1997).
83. Riffe D.M., Wang X.Y., Downer M.C., Fisher D.L., Tajima T., Erskine J.L., More R.M. *J. Opt. Soc. Am. B*, **10**, 1424 (1993).
84. Zhigilei L.V. *Appl. Phys. A*, **76**, 339 (2003).
85. Meshulach D., Silberberg Y. *Nature*, **396**, 239 (1998).
86. Assion A., Baumert T., Bergt M., Brixner T., Kiefer B., Seyfried V., Strehle M., Gerber G. *Science*, **282**, 919 (1998).
87. Glinka Y.D., Lin S.-H., Hwang L.-P., Chen Y.-T., Tolk N.H. *Phys. Rev. B*, **64**, 085421 (2001).
88. Stoian R., Boyle M., Thoss A., Rosenfeld A., Korn G., Hertel I.V., Campbell E.E.B. *Appl. Phys. Lett.*, **80**, 353 (2002).
89. Stoian R., Boyle M., Thoss A., Rosenfeld A., Korn G., Hertel I.V. *Appl. Phys. A*, **77**, 265 (2003).
90. Guizard S., Semerok A., Gaudin J., Hashida M., Martin P., Qutéré F. *Appl. Surf. Sci.*, **186**, 364 (2002).
91. Jiang L., Tsai H.L. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **37**, 1492 (2004).
92. Bulgakova N.M., Stoian R., Rosenfeld A., Marine W., Campbell E.E.B. *Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Eng.*, **5448**, 121 (2004).
93. *Физические величины. Справочник*. Под ред. И.С.Григорьева, Е.З.Мейлихова (М.: Энергоатомиздат, 1991).
94. Скрипов В.П. *Метастабильная жидкость* (М.: Наука, 1972).
95. Bulgakova N.M., Bourakov I.M. *Appl. Surf. Sci.*, **197-198**, 41 (2002).
96. Зельдович Я.Б., Тодес О.М. *ЖЭТФ*, **10**, 1441 (1940).
97. Мартынюк М.М., Кравченко Н.Ю. *Прикл. физика*, **1**, 79 (2003).
98. Siegel J., Ettrich K., Welsch E., Matthias E. *Appl. Phys. A*, **64**, 213 (1997).
99. Nubling R.K., Harrington J.A. *Appl. Opt.*, **36**, 5934 (1997).
100. Korner C., Mayerhofer R., Hartmann M., Bergmann H.W. *Appl. Phys. A*, **63**, 123 (1996).
101. Анисимов М.А. *Критические явления в жидкостях и жидких кристаллах* (М.: Наука, 1987).
102. Bhardwaj V.R., Simova E., Corkum P.B., Rayner D.M., Hnatovsky C., Taylor R.S., Schreder B., Kluge M., Zimmer J.J. *Appl. Phys.*, **97**, 083102 (2005).
103. Osellame R., Chiodo N., Maselli V., Yin A., Zavelani-Rossi M., Cerullo G., Laporta P., Aiello L., De Nicola S., Ferraro P., Finizio A., Pierattini G. *Opt. Express*, **13**, 612 (2005).
104. Chan J.W., Huser T.R., Risbud S.H., Hayden J.S., Krol D.M. *Appl. Phys. Lett.*, **82**, 2371 (2003).
105. Daguzan P., Martin P., Guizard S., Petite G. *Phys. Rev. B*, **52**, 17099 (1995).
106. Winkler S.W., Burakov I.M., Stoian R., Bulgakova N.M., Husakou A., Mermillod-Blondin A., Rosenfeld A., Ashkenasi D., Hertel I.V. *Appl. Phys. A*, **84**, 413 (2006).
107. Burakov I.M., Bulgakova N.M., Stoian R., Mermillod-Blondin A., Audouard E., Rosenfeld A., Husakou A., Hertel I.V. *J. Appl. Phys.*, **101**, 043506 (2007).
108. Mermillod-Blondin A., Bonse J., Rosenfeld A., Hertel I.V., Meshcheryakov Y.P., Bulgakova N.M., Audouard E., Stoian R. *Appl. Phys. Lett.*, **94**, 041911 (2009).
109. Ehrtd D., Kittel T., Will M., Nolte S., Tünnermann A. *J. Non-Cryst. Sol.*, **345-346**, 332 (2004).
110. Temam R., Miranville A. *Mathematical Modeling in Continuum Mechanics* (Cambridge: Cambridge University Press, 2005).
111. Gaeta A.L. *Phys. Rev. Lett.*, **84**, 3582 (2000).
112. Couairon A., Sudrie L., Franco M., Prade B., Mysyrowicz A. *Phys. Rev. B*, **71**, 125435 (2005).
113. Couairon A., Mysyrowicz A. *Phys. Rep.*, **441**, 47 (2007).
114. Кандидов В.П., Шлёнов С.А., Косарева О.Г. *Квантовая электроника*, **39**, 205 (2009).
115. Sun Q., Jiang H., Liu Y., Wu Z., Yang H., Gong Q. *Opt. Lett.*, **30**, 320 (2005).
116. Meshcheryakov Y.P., Bulgakova N.M. *Appl. Phys. A*, **82**, 363 (2006).
117. Тимошенко С.П. *Курс теории упругости* (Киев: Наукова Думка, 1972).
118. Wilkins M.L., in *Methods in Computational Physics., Fundamental Methods in Hydrodynamics* (New York: Acad. Press, 1964, v. 3, p. 211).
119. Sakakura M., Terazima M., Shimotsuma Y., Miura K., Hirao K. *Opt. Express*, **15**, 5674 (2007).
120. Hallo L., Bourgeade A., Tikhonchuk V.T., Mezel C., Breil J. *Phys. Rev. B*, **76**, 024101 (2007).
121. Hashimoto T., Juodkazis S., Misawa H. *New J. Phys.*, **9**, 253 (2007).
122. Sun H., Song J., Li C., Xu J., Wang X., Cheng Y., Xu Z., Qiu J., Jia T. *Appl. Phys. A*, **88**, 285 (2007).
123. Beresna M., Bulgakova N.M., Kazansky P.G. *Submitted*.
124. Hörstmann-Jungemann M., Gottmann J., Wortmann D. J. *Laser Micro/Nanoeng.*, **4**, 135 (2009).
125. Cheng G., Mishchik K., Mauclair C., Audouard E., Stoian R. *Opt. Exp.*, **17**, 9515 (2009).
126. Liang F., Sun Q., Gingras D., Vallée R., Chin S.L. *Appl. Phys. Lett.*, **96**, 101903 (2010).
127. Ramirez L.P.R., Heinrich M., Richter S., Dreisow F., Keil R., Korovin A.V., Peschel U., Nolte S., Tünnermann A. *Appl. Phys. A*, **100**, 1 (2010).
128. Beresna M., Kazansky P.G. *Opt. Lett.*, **35**, 1662 (2010).
129. Van Driel H.M., Sipe J.E., Young J.F. *Phys. Rev. Lett.*, **49**, 1955 (1982).
130. Dufft D., Rosenfeld A., Das S.K., Grunwald R., Bonse J. *J. Appl. Phys.*, **105**, 034908 (2009).
131. Голосов Е.В., Емельянов В.И., Ионин А.А., Колобов Ю.П., Кудряшов С.И., Лигачев А.Е., Новоселов Ю.Н., Селезнев Л.В., Синицын Д.В. *Письма в ЖЭТФ*, **90**, 116 (2009).
132. Yang W., Kazansky P.G., Shimotsuma Y., Sakakura M., Miura K., Hirao K. *Appl. Phys. Lett.*, **93**, 171109 (2008).
133. Yang W., Kazansky P.G., Svirko Y.P. *Nat. Photon.*, **2**, 99 (2008).