

# Численное исследование влияния временной формы импульса на модификацию плавленого кварца фемтосекундными импульсами

А.В.Достовалов, А.А.Вольф, С.А.Бабин, М.В.Дубов, В.К.Мезенцев

*Представлены результаты численного исследования воздействия сфокусированных в глубь материала фемтосекундных импульсов с асимметричным временным профилем на фемтосекундную модификацию плавленого кварца. Показано, что такие импульсы приводят к локализации поглощения в процессе фемтосекундной модификации, уменьшению порога модификации по энергии. Установлено, что оптимальные параметры асимметричности для достижения максимальной плотности плазмы в области фокусировки зависят от энергии импульса: при начальной энергии около 100 нДж предпочтительнее использовать импульсы с положительным параметром асимметрии TOD, а при увеличении энергии предпочтительнее использовать импульсы с отрицательным TOD. Это объясняется различиями в динамике процессов поглощения энергии импульса при распространении в материале.*

**Ключевые слова:** фемтосекундная модификация, лазерная микрообработка, показатель преломления, нелинейное уравнение Шредингера.

## 1. Введение

Фемтосекундные лазерные технологии, позволяющие получать сверхкороткие импульсы с высокой энергией, находят все большее применение в области лазерной обработки материалов, получившее название фемтосекундной микрообработки. По сравнению с другими хорошо развитыми методами лазерной обработки (резка, абляция, полимеризация и др.) ключевым преимуществом фемтосекундной микрообработки является возможность локального изменения показателя преломления в нефоточувствительных прозрачных материалах, что позволяет создавать элементы интегральной оптики – трехмерные волноводные структуры в диэлектриках (преимущественно плавленый кварц). Уже продемонстрированы различные оптические элементы, созданные с помощью данного метода: волоконные брэгговские решетки [1], фазовые маски [2], ответвители [3], планарные волноводы в различных материалах [4, 5], устройства для биомедицинских применений [6].

Исследование влияния характеристик излучения на параметры модификации (форма, размер, изменение показателя преломления) представляется актуальной задачей. К настоящему времени изучено влияние условий фокусировки [7], скорости записи [8], поляризации [9], энергии [10] и длины волны [11] излучения на параметры модификации. Временные характеристики излучения являются дополнительными важными факторами, определяющими процесс записи, поскольку именно временная динамика

взаимодействия различных физических процессов (многофотонная ионизация, лавинообразная ионизация, плазменное поглощение, температурная релаксация) определяет режим записи. Так, было показано, что использование излучения с высокой частотой повторения импульсов (более 1 МГц) при создании волноводных структур позволяет получать более качественные волноводы при меньшей энергии импульса по сравнению со случаем киллогерцевых частот повторения. Это объясняется следующим образом: когда время между импульсами меньше времени температурной релаксации ( $\sim 1$  мкс), начинает сказываться эффект накопления, поэтому последующие импульсы воздействуют уже на разогретый участок и требуется меньшая энергия для модификации [12].

В работе [13] представлены экспериментальные результаты по абляции плавленого кварца фемтосекундным импульсом с асимметричной временной формой. Использовался тип асимметрии, эквивалентный накопленной хроматической дисперсии третьего порядка (Third-Order Dispersion, TOD). Показано, что при определенных значениях TOD можно получать размеры модификации меньше дифракционного предела и меньше, чем при воздействии симметричного импульса. Воздействие импульсов зависит также и от знака TOD: при положительном значении (когда сначала приходит основной импульс) требуется меньшая энергия импульса для формирования такой же области, чем при отрицательном значении. Объясняется это тем, что для процесса абляции важно достичь определенного критического значения плотности электронов. В первом случае ( $TOD > 0$ ) основной максимум создает посредством многофотонной ионизации определенное количество электронов, которого может быть недостаточно для достижения критического значения, а второстепенные максимумы (меньшие по амплитуде) увеличивают количество электронов посредством лавинной ионизации до критического значения. Во втором случае ( $TOD < 0$ ) сначала воздействуют второстепенные максимумы с меньшей амплитудой, которой недостаточно для

А.В.Достовалов, С.А.Бабин. Институт автоматики и электрометрии СО РАН, Россия, 630090 Новосибирск, просп. Акад. Коптюга, 1; e-mail: dostovalov@iae.nsk.su

А.А.Вольф. Новосибирский государственный университет, Россия, 630090 Новосибирск, ул. Пирогова, 2

М.В.Дубов, В.К.Мезенцев. Aston Triangle, Birmingham, B4 7ET, UK

Поступила в редакцию 27 июля 2012 г.

многофотонной ионизации. При этом многофотонную ионизацию могут вызвать только последующие (с большей амплитудой) второстепенные максимумы, поэтому только оставшаяся часть импульса может с помощью лавинообразной ионизации создать электроны. Энергии в данном случае требуется больше, чем в случае  $TOD > 0$ . По этой причине для абляции материала наиболее предпочтительно использование импульса с  $TOD > 0$ .

При фемтосекундной модификации материалов необходимо также достичь определенной концентрации свободных электронов, которые обеспечивают локальный разогрев материала и последующее изменение его физических свойств (например, изменение показателя преломления). А так как при создании многих оптических компонентов (волноводы, брэгговские решетки) необходимо воздействовать в глубь материала, то исследование влияния временной формы импульса с  $TOD \neq 0$ , сфокусированного в глубь материала, на фемтосекундную модификацию представляется актуальной задачей.

## 2. Математическая модель

Для численного исследования распространения фемтосекундного импульса внутри материала была выбрана модель, учитывающая образование плазмы в области фокусировки посредством многофотонной и лавинообразной ионизации, предложенная в работе [14] и широко используемая для проведения подобных расчетов [15]:

$$i\epsilon_z + \frac{1}{2k} \Delta_{\perp} \epsilon - \frac{k''}{2} \frac{\partial^2 \epsilon}{\partial t^2} + k_0 n_2 |\epsilon|^2 \epsilon + \frac{i\sigma}{2} (1 + i\omega\tau) \rho \epsilon + \frac{i\beta^{(K)}}{2} |\epsilon|^{2(K-1)} \epsilon = 0, \quad (1)$$

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = \frac{1}{n_b^2} \frac{\sigma_{bs}}{E_g} \rho |\epsilon|^2 + \sigma^{(K)} |\epsilon|^{2K}, \quad (2)$$

где  $k = n_b k_0$  – волновой вектор в среде;  $k_0 = \omega/c$ ;  $n_b$  – показатель преломления, вычисляемый по формуле Зельмейера [16] для плавленого кварца при 800 нм;  $k''$  – параметр дисперсии групповых скоростей;  $n_2$  – нелинейный коэффициент, описывающий керровскую нелинейность;  $\sigma_{bs}$  – сечение обратного тормозного излучения;  $\tau$  – время релаксации электронов;  $E_g$  – энергия ионизации;  $\beta^{(K)} = K\hbar\omega\sigma^{(K)}$  – параметр многофотонного поглощения;  $K$  – коэффициент многофотонности;  $\sigma^{(K)}$  – параметр, характеризующий многофотонную ионизацию.

Волновое уравнение (1) для комплексной амплитуды  $\epsilon$  электрического поля в парааксиальном приближении описывает распространение фемтосекундного импульса внутри материала вдоль координаты  $z$  с учетом дифракции (второе слагаемое), дисперсии групповых скоростей (третье слагаемое), керровской нелинейности (четвертое слагаемое), лавинообразного и многофотонного поглощения (слагаемые 5 и 6 соответственно). Уравнение (2) для плотности плазмы  $\rho$  содержит члены, отвечающие за лавинообразную ионизацию (первое слагаемое) и многофотонную ионизацию (второе слагаемое).

В качестве начального условия для уравнения (1) был выбран сфокусированный гауссов пучок с отличной от нуля компонентой  $TOD$ . Выражение для такого импульса в частотной области имеет вид [17]

$$\epsilon(z=0, r, \omega) = \epsilon_0 \Delta t \sqrt{\pi/(2 \ln 2)} \times \exp\left(-\frac{r^2}{r_0^2} - \frac{ikr^2}{2f} - \frac{\Delta t^2}{8 \ln 2} \omega^2 - i\frac{1}{6} \phi_3 \omega^3\right), \quad (3)$$

где  $\epsilon_0$  – начальная амплитуда поля;  $\Delta t$  – длительность импульса (на полувысоте по интенсивности);  $r_0$  – начальный радиус пучка;  $f$  – длина фокуса объектива;  $\phi_3$  – параметр  $TOD$ , определяющий асимметричность пучка во времени (далее по тексту  $TOD = \phi_3/6$ ). При  $TOD > 0$  наблюдается уменьшение амплитуды модуляции с течением времени (рис.1), при  $TOD < 0$  наблюдается обратная зависимость – увеличение амплитуды модуляции поля со временем.

Расчеты проводились при следующих значениях параметров: длина волны излучения  $\lambda = 800$  нм; параметр многофотонности  $K = 5$ ; длительность импульса  $\Delta t = 50$  фс; начальный радиус пучка  $r_0 = 2.5$  мм; числовая апертура объектива  $NA = 0.5$ ; энергия ионизации  $E_g = 7.6$  эВ [18]; параметр дисперсии групповых скоростей  $k'' = 361 \times 10^{-28}$  с<sup>2</sup>/м [18]; нелинейный коэффициент  $n_2 = 3.2 \times 10^{-20}$  Вт/м<sup>2</sup> [16]; параметр многофотонной ионизации  $\sigma^{(5)} = 1.3 \times 10^{-75}$  м<sup>10</sup>·с<sup>-1</sup>·Вт<sup>-5</sup> [18]; время релаксации электронов  $\tau = 1.7$  фс [19]; критическая плотность плазмы  $\rho_{BD} = \epsilon_0 m_e e^{-2} \omega^2 = 1.74 \times 10^{27}$  м<sup>-3</sup>. Энергия импульса составляла 115 нДж,  $TOD$  – от  $\pm 10^6$  фс<sup>3</sup> до 0.

## 3. Результаты расчетов

Зависимости интенсивностей асимметричных импульсов с  $TOD = 3 \times 10^5$ ,  $6 \times 10^5$  и  $1 \times 10^6$  фс<sup>3</sup> при  $z = 0$ , нормированных на интенсивность многофотонного поглощения  $I_{mpa} = 2.72 \times 10^{17}$  Вт/м<sup>2</sup>, от времени представлены на рис.1. Время  $t$  нормировано на величину  $t_p = \Delta t/\sqrt{2 \ln 2}$ . Распределение для  $TOD < 0$  имеет аналогичный вид, но является зеркально отраженным относительно нуля. На вставке рисунка показано сравнение приведенных амплитуд интенсивностей с амплитудой симметричного импульса ( $TOD = 0$ ). Видно, что амплитуда симметричного импульса в семь раз выше, чем у асимметричных импульсов, что связано с перераспределением энергии импульса в дополнительные максимумы, меньшие по амплитуде.

На рис.2 показаны зависимости энергии импульса от координаты распространения  $z$  для различных значений

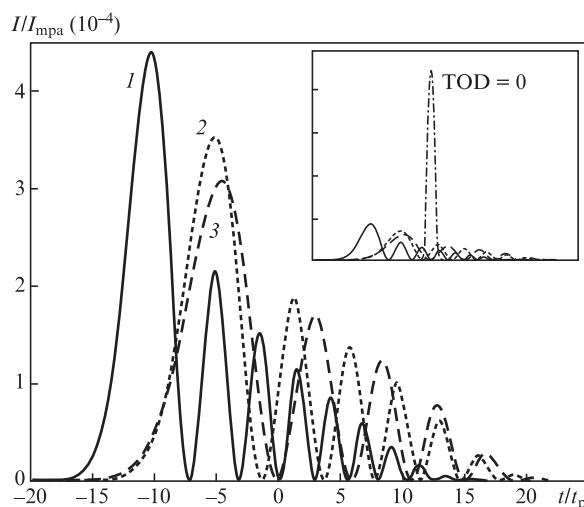


Рис.1. Временные зависимости амплитуд интенсивностей импульсов с  $TOD = 3 \times 10^5$  (1),  $6 \times 10^5$  (2) и  $1 \times 10^6$  фс<sup>3</sup> (3).

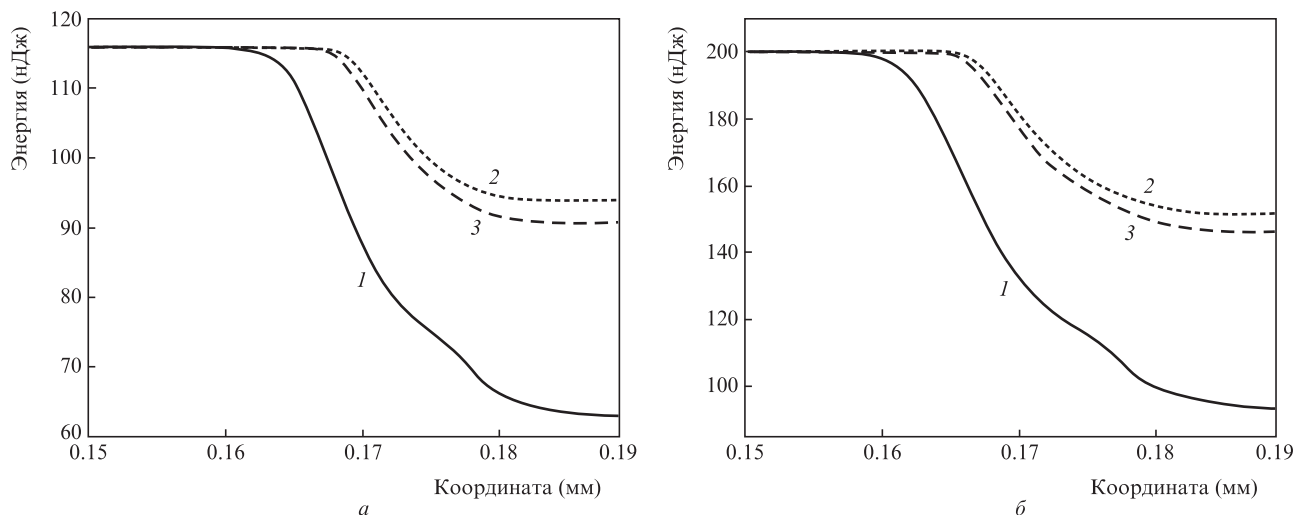


Рис.2. Зависимости энергии импульса от координаты  $z$  для начальных энергий импульсов 115 (а) и 200 нДж (б) и  $TOD = 0$  (1),  $-10^6$  (2) и  $10^6$  фс<sup>3</sup> (3).

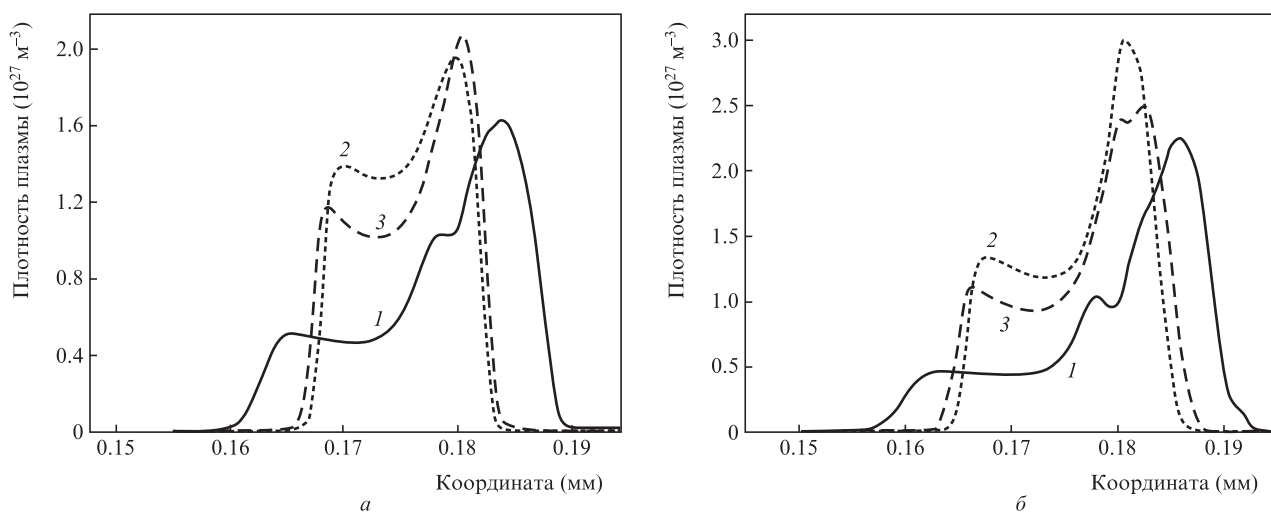


Рис.3. Продольные распределения плотности плазмы на оси пучка ( $r = 0$ ) для энергий 115 (а) и 200 нДж (б) и  $TOD = 0$  (1),  $-10^6$  (2) и  $10^6$  фс<sup>3</sup> (3).

$TOD$  и начальных энергий 115 и 200 нДж. Как видно из рисунка, поглощенная энергия при  $TOD > 0$  выше, чем при  $TOD < 0$ , что согласуется с результатами по абляции плавленного кварца [13]. Однако поглощенная энергия для симметричного импульса значительно выше, чем у асимметричных импульсов, и поглощение начинается при меньших  $z$ .

В то же время данные, представленные на рис.3, свидетельствуют о том, что плотность сгенерированной плазмы на оси ( $r = 0$ ) максимальна как в случае положительного значения  $TOD$  и энергии импульса 115 нДж, так и при отрицательном  $TOD$  и энергии импульса 200 нДж. Проинтегрированные по времени распределения плот-

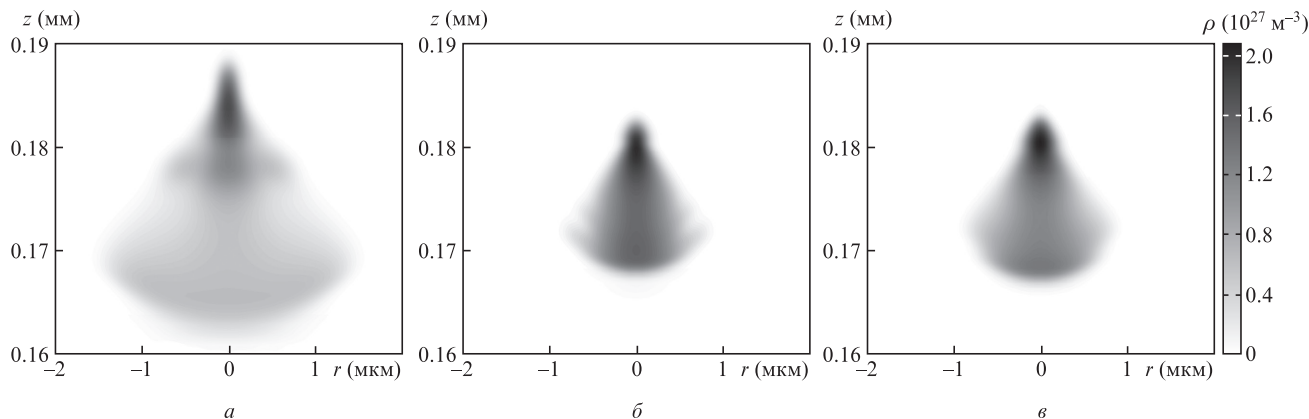


Рис.4. Распределение плотности плазмы для энергии импульса 115 нДж и  $TOD = 0$  (а),  $-10^6$  (б) и  $10^6$  фс<sup>3</sup> (в).

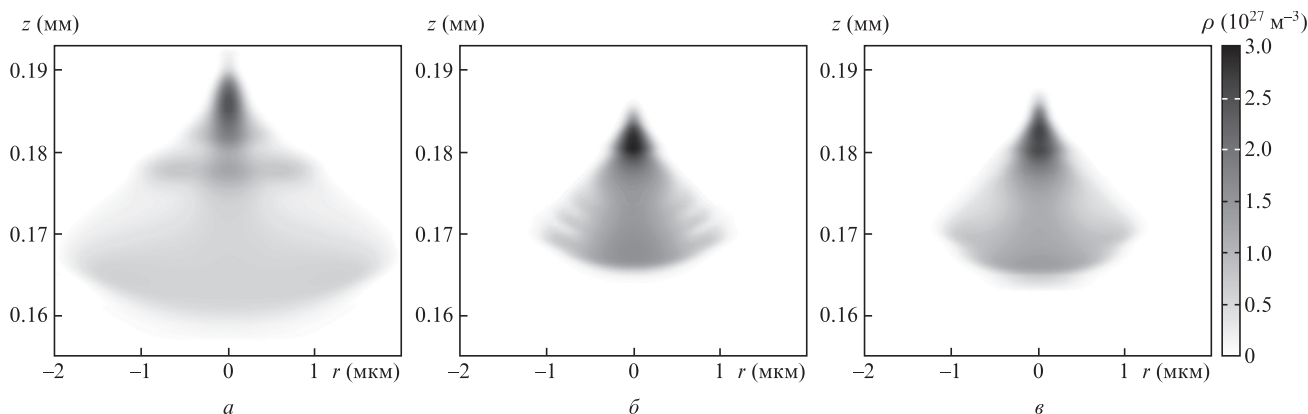


Рис.5. Распределение плотности плазмы для энергии импульса 200 нДж и TOD = 0 (а),  $-10^6$  (б) и  $10^6$  фс<sup>3</sup> (в).

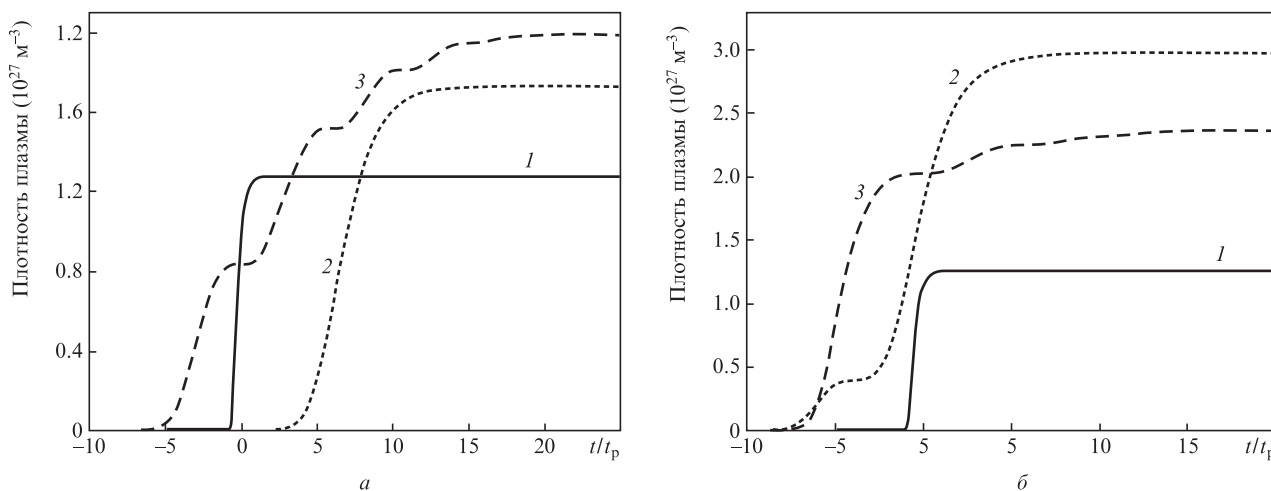


Рис.6. Зависимости плотности плазмы от времени при  $z = 0.181$  мм для TOD = 0 (1),  $-10^6$  (2) и  $10^6$  фс<sup>3</sup> (3) и начальной энергии 115 (а) и 200 нДж (б).

ности сгенерированной плазмы приведены на рис.4 и 5 для обоих случаев. Плотность плазмы для симметричного импульса локализована в большем объеме, поэтому вследствие плазменного поглощения импульс поглощается сильнее и суммарная поглощенная энергия будет выше.

На рис.6 показано изменение плотности плазмы во времени при  $z = 0.181$  мм (в области пика плотности плазмы, см. рис.3). При энергии импульса 115 нДж плотность плазмы для TOD > 0 больше, чем для TOD < 0, что объясняет большее поглощение на начальном этапе распространения импульса (рис.2). Видно, что при TOD < 0 плотность плазмы нарастает только в окрестности нуля, что обусловлено образованием плазмы при воздействии основного максимума; при этом меньшие по амплитуде пики не вносят заметного вклада в генерацию плазмы. В случае TOD > 0 дело обстоит иначе: после воздействия пика с максимальной амплитудой происходит генерация определенной плотности электронов, которая увеличивается под воздействием последующих меньших по амплитуде пиков за счет лавинообразной ионизации. Таким образом, результирующая плотность плазмы в случае TOD > 0 становится выше.

Однако при энергии импульса 200 нДж максимальная плотность плазмы достигается при TOD < 0, что можно объяснить следующим образом. При возрастании начальной энергии импульс испытывает деформацию при распро-

странении (рис.7), зависящую от знака TOD. Для TOD > 0 (рис.7, слева) импульс из-за плазменного поглощения и дефокусировки испытывает деформацию в радиальном направлении, вследствие чего второстепенные пики при  $r = 0$  уменьшаются практически до нуля и не вносят вклад в генерацию плазмы посредством лавинообразной ионизации. В то же время для TOD < 0 (рис.7, справа), когда первыми воздействуют второстепенные максимумы с меньшей амплитудой и эффект поглощения последующих пиков меньше, остается эффект воздействия второстепенных пиков и их вклад в генерацию плазмы через лавинообразную ионизацию. По этой причине результирующая плотность плазмы в этом случае выше.

#### 4. Выводы

Показано, что использование импульсов с TOD  $\neq 0$  приводит к локализации поглощения в процессе фемтосекундной модификации. Плотность генерируемой плазмы становится в данном случае выше, что говорит о возможности получения модификации при меньшей энергии импульса, чем в случае симметричного импульса. При этом оптимальные значения TOD зависят от энергии импульса. При начальной энергии около 100 нДж предпочтительнее использовать импульсы с TOD > 0, при увеличении энергии выше этого значения предпочтительнее использовать импульсы с TOD < 0, т.е. при меньшей энер-

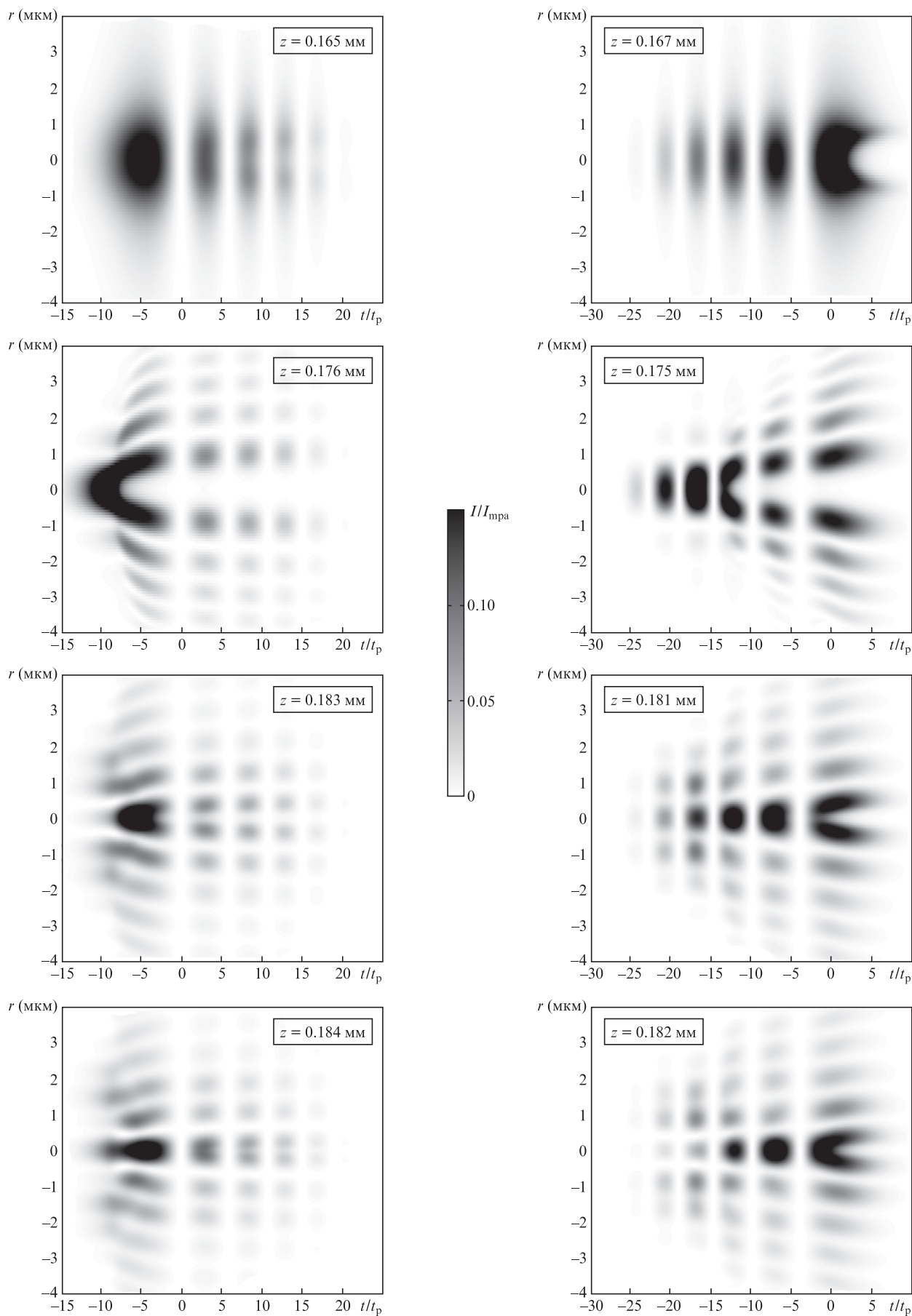


Рис.7. Распределение интенсивности при энергии импульса 200 нДж, различных координатах  $z$  и  $TOD = 10^6$  (слева) и  $-10^6$  фс<sup>3</sup> (справа).



гии характер зависимости такой же, что и в случае абляции материала, в то время как при повышении энергии начинают проявляться эффекты, связанные именно с распространением импульса в веществе.

1. Martinez A., Dubov M., Khrushchev I., Bennion I. *Electron. Lett.*, **40** (19), 1170 (2004).
2. Smith G.N., Kalli K., Bennion I., Sugden K. *Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Eng.*, **7205**, 720511 (2009).
3. Streltsov A.M., Borrelli N.F. *Opt. Lett.*, **26** (1), 42 (2001).
4. Minoshima K., Kowalevich A.M., Hartl I., Ippen E.P., et al. *Opt. Lett.*, **26** (19), 1516 (2001).
5. Kowalevich A.M., Sharma V., Ippen E.P., Fujimoto J.G., et al. *Opt. Lett.*, **30** (9), 1060 (2005).
6. Schafer D.N., Gibson E.A., Salim E.A., Palmer A.E., et al. *Opt. Express*, **17**, 6068 (2009).
7. Shaffer C., Brouder A., Garcia J., Mazur E. *Opt. Lett.*, **26** (2), 93 (2001).
8. Wong Y., Furniss D., Tikhomirov V.K., Romanova E.A., et al. *Proc. Int. Conf. on Transparent Optical Networks* (Athens, 2008, p.234).
9. Ams M., Marshall G., Withford M. *Opt. Express*, **14** (26), 13158 (2006).
10. Petrovic J., Schmitz H., Mezentsev V., Bennion I. *Opt. Quantum Electron.*, **39** (10), 939 (2007).
11. Dostovalov A., Babin S., Dubov M., Baregheh M., Mezentsev V. *Laser Phys.*, **5**, 930 (2012).
12. Schaffer C.B., Garcia J.F., Mazur E. *Appl. Phys. A*, **76** (3), 351 (2003).
13. Englert L., Wollenhaupt M., Haag L., Sarpe-Tudoran C., et al. *Appl. Phys. A*, **92** (4), 749 (2008).
14. Feit M., Fleck J. *Appl. Phys. Lett.*, **24** (4), 169 (1974).
15. Sudrie L., Couairon A., Franco M., Lammouroux B. *Phys. Rev. Lett.*, **89**, 186601 (2002).
16. Агравал Г. *Нелинейная волоконная оптика* (М.: Мир, 1996).
17. Wollenhaupt M., Assion A., Baumert T. *Handbook of Lasers and Optics* (New York: Springer, 2007).
18. Tzortzakis S., Sudrie L., Franco M., Prade B., et al. *Phys. Rev. Lett.*, **87** (21), 213902 (2001).
19. Mezentsev V., Petrovic J., Dubov M., Bennion I. *Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Eng.*, **6459**, 64590B (2007).