

**ВОЗДЕЙСТВИЕ ЛАЗЕРНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ НА ВЕЩЕСТВО**

PACS 42.70.Ce; 79.20.Ds

**Влияние частоты следования лазерных импульсов на порог оптического пробоя кварцевого стекла****Т.В.Кононенко, С.Шонезайфен, В.И.Конов, Ф.Даусингер**

*Измерены пороги оптического пробоя в объеме кварцевого стекла в зависимости от числа импульсов при облучении ультракороткими лазерными импульсами с различной частотой следования (1–400 кГц). Обнаружено, что увеличение этой частоты с 10 до 400 кГц вызывает значительное снижение порога пробоя для импульсов длительностью 500 фс (на длине волны 1030 нм) и в меньшей степени – для импульсов длительностью 5 пс (515 нм). Сильная зависимость порога пробоя от частоты наблюдается при тех же условиях, что и многократное падение порога пробоя при увеличении числа импульсов в серии. Зависимость порога пробоя от числа импульсов объясняется накоплением точечных дефектов при многократном подпороговом облучении, что влияет на процесс ударной ионизации. При этом зависимость порога пробоя кварцевого стекла от частоты определяется включением в процесс ионизации короткоживущих дефектов.*

**Ключевые слова:** ультракороткие импульсы, оптический пробой, кварцевое стекло.

**1. Введение**

Все более активное технологическое использование лазерных систем с ультракороткими импульсами, в том числе для микрообработки прозрачных материалов [1], создает потребность в повышении их производительности путем увеличения частоты следования импульсов  $f$  вместе с ростом средней мощности. Большая часть исследований по микромодификации стекла фемтосекундными импульсами проводится при  $f > 100$  кГц [2], а в некоторых случаях – при  $f = 25$  МГц [3–5]. При таких условиях тепло, выделяющееся в фокальном объеме, не успевает полностью рассеиваться в окружающее пространство за время между лазерными импульсами. Накопление тепла приводит к постепенному разогреву, плавлению и в итоге – к модификации материала вне зоны поглощения лазерного излучения [4]. Обнаружены различия в структурах модифицированного кварца при облучении импульсами с  $f = 1$  МГц и 1 кГц, что также предположительно объясняется более сильным и длительным нагревом материала при воздействии импульсов с высокой частотой следования [6].

Может ли высокая частота следования влиять на сам процесс нелинейного поглощения излучения в кварце и, как следствие, изменять порог оптического пробоя? Экспериментальное доказательство такой возможности было представлено в [7] путем сравнения порогов оптического пробоя кварца для одиночного импульса длительностью  $\tau = 25$  фс и пары таких же импульсов с варьируемой задержкой между ними. При минимальной задержке (70 фс)

порог пробоя для двойного импульса снижался в 2.3 раза по сравнению с одиночным импульсом, но быстро вновь возрастал (в  $\sim 1.8$  раза) при увеличении задержки до 200 фс и окончательно возвращался к исходному значению, когда задержка возрастала до 2.5 нс. Снижение порога пробоя для двойного импульса можно объяснить тем, что остаточное фотовозбуждение материала после первого импульса способствует развитию электронной лавины во время действия второго импульса. Максимальное падение порога наблюдается в том случае, когда «затравкой» для развития лавины служат оставшиеся свободные электроны, время жизни которых в кварце составляет около 200 фс. Более слабый эффект при увеличении задержки между импульсами до нескольких наносекунд предположительно обеспечивается автолокализованными экситонами [8], создающими в запрещенной зоне дефектные уровни с пониженной энергией ионизации. Заметим, что максимальная задержка между двумя импульсами (2.5 нс), при которой достигалось уменьшение порога пробоя, эквивалентна очень высокой частоте следования импульсов (400 МГц), недоступной для современных мощных лазерных систем.

Представленные в настоящей статье экспериментальные результаты демонстрируют, что относительное снижение порога пробоя кварцевого стекла под действием ультракоротких импульсов может наблюдаться и при намного более низких частотах следования – 400 кГц. Определяющими факторами для реализации данного эффекта являются большое количество импульсов в серии и параметры импульсного излучения (длительность и длина волны).

**2. Эксперимент**

В экспериментах использовались две лазерные системы. Мультирежимная лазерная система VaryDisk50 (Dausinger+Giesen) генерировала импульсы с длительностью  $\tau = 500$  фс на длине волны 1030 нм и максимальной частотой  $f = 400$  кГц. Максимальная средняя мощность состав-

**Т.В.Кононенко, В.И.Конов.** Центр естественно-научных исследований Института общей физики РАН им. А.М.Прохорова, Россия, 119991 Москва, ул. Вавилова, 38; e-mail: kononen@nsc.gpi.ru  
**S. Schöneiseiffen, F. Dausinger.** Dausinger + Giesen GmbH, Rotebühlstr. 87, D- 70178 Stuttgart, Germany

Поступила в редакцию 1 февраля 2013 г., после доработки – 6 марта 2013 г.

ляла 45 Вт. Лазер TruMicro 5050 (TRUMPF) генерировал импульсы с  $\tau = 5$  пс на длинах волн 1030 и 515 нм с той же максимальной частотой следования. Максимальная средняя мощность на частоте основной гармоники составляла 42 Вт, на частоте второй гармоники – 10 Вт. Обе лазерные системы были оборудованы встроенным оптическим селектором импульсов, который позволял понижать частоту их следования до 1–10 кГц, а также формировать цуги импульсов заданной длины. Линза ( $F = 100$  мм), интегрированная с двухкоординатным угловым сканером, фокусировала лазерное излучение внутрь полированного со всех сторон бруска ( $10 \times 10 \times 20$  мм) из кварцевого стекла КУ1 на расстояние около 1 мм от передней поверхности. Гауссов диаметр пятна (20–30 мкм) определялся из размера отпечатков на поверхности SiC-керамики при различной энергии импульсов. Образец облучался сериями импульсов разной длины, каждый раз направленными в новое место, чтобы определить их минимальное количество, вызывающее разрушение в объеме стекла при заданных частоте следования и энергии импульсов.

Основным критерием оптического пробоя кварцевого стекла считалось появление свечения плазмы в фокальной области, обнаруживаемое визуально при наблюдении зоны облучения с помощью микроскопа. Для предотвращения попадания в микроскоп рассеянного лазерного излучения использовалось узкополосное диэлектрическое зеркало ( $\lambda = 515$  нм). Аналогичный подход применялся в работах [7, 9], однако свечение там фиксировалось с помощью фотодетектора. При  $\tau = 5$  пс данный критерий строго коррелировал с обнаружением микроскопических дефектов в объеме образца с помощью оптической микроскопии. В случае  $\tau = 500$  фс видимые в микроскоп повреждения возникали при существенно большем числе импульсов, чем требовалось для появления свечения. Данное расхождение объясняется, по-видимому, разным характером возникающего повреждения материала: микротрещины и/или пузырек в случае  $\tau = 5$  пс и слабое изменение коэффициента преломления при  $\tau = 500$  фс [2].

### 3. Результаты измерений и их обсуждение

Экспериментальные зависимости порога пробоя кварцевого стекла от количества импульсов для трех протестированных комбинаций лазерных параметров (длина волны + длительность импульса) и различных частот их следования представлены на рис. 1–3. Пороги пробоя выражены через максимальные плотности энергии в фокальной плоскости, рассчитанные исходя из размера лазерной перетяжки в воздухе, т.е. без учета трансформации лазерного пучка в стекле вследствие эффекта самофокусировки, хотя пиковая мощность на пороге пробоя в наших экспериментах (5–200 МВт при  $\tau = 500$  фс и 4–20 МВт при  $\tau = 5$  пс) заметно превышала мощность самофокусировки для кварцевого стекла на длине волны 1.06 мкм, равную 5.2 МВт [10]. Такой упрощенный подход, очевидно, неприменим при определении абсолютного значения порога пробоя, но представляется вполне допустимым при отслеживании относительного уменьшения порога пробоя с ростом частоты следования импульсов. Отметим, что полученные нами значения сопоставимы с данными других авторов [9, 11, 12], которые для интересующих нас длительностей импульса различаются между собой в два-три раза.

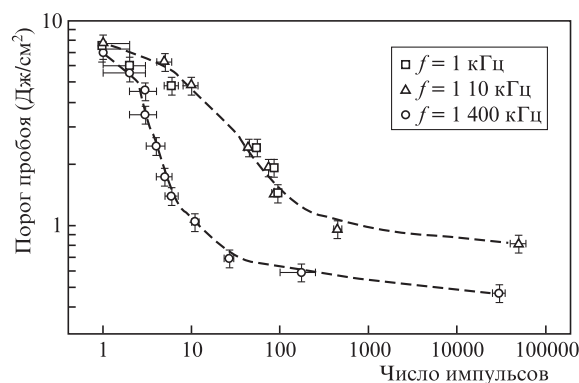


Рис. 1. Зависимости порога пробоя кварцевого стекла от числа импульсов с различными частотами следования при  $\tau = 500$  фс ( $\lambda = 1030$  нм).

При  $\tau = 500$  фс ( $\lambda = 1030$  нм) (рис. 1) обнаружено многократное снижение порога пробоя кварцевого стекла с ростом числа импульсов (так называемый кумулятивный эффект) для всех протестированных частот их следования. Пороги пробоя для частот 1 и 10 кГц лежат на одной и той же кривой, соответствующей «низкочастотному» кумулятивному эффекту. Однако увеличение  $f$  до 400 кГц сопровождается заметным уменьшением порогов пробоя для серий из более чем трех-четырех импульсов. Напротив, при  $\tau = 5$  пс на той же длине волны (рис. 2) мы не только не обнаружили каких-либо признаков влияния частоты на порог пробоя, но и «низкочастотный» кумулятивный эффект оказался гораздо скромнее по своим масштабам. При этом основное снижение порога пробоя (всего на 20%) наблюдается уже во втором импульсе; дальнейшее его падение при многократном облучении составляет всего около 5% от начального уровня. Результаты для второй гармоники излучения и длительности импульсов 5 пс (рис. 3) занимают промежуточное положение между этими двумя крайними вариантами. Небольшое понижение порога для высокой частоты следования наблюдается только для очень длинных серий импульсов ( $N > 100$ ), а различие между порогами пробоя при однократном и многократном облучении больше, чем в случае пикосекундных ИК импульсов, но меньше, чем для фемтосекундных импульсов. Из полученных данных можно сделать вывод, что зависимость порога пробоя от частоты следования оказывается тем значительней, чем сильнее выражен «низкочастотный» кумулятивный эф-

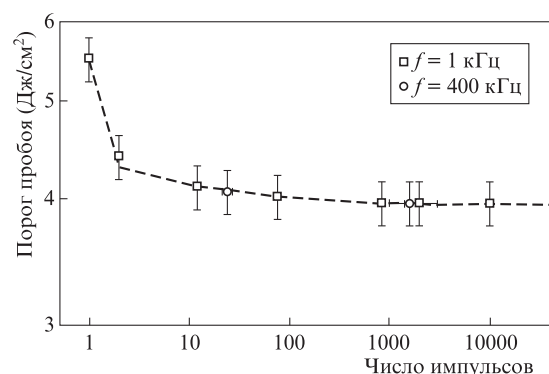


Рис. 2. Зависимости порога пробоя кварцевого стекла от числа импульсов с различными частотами следования при  $\tau = 5$  пс ( $\lambda = 1030$  нм).

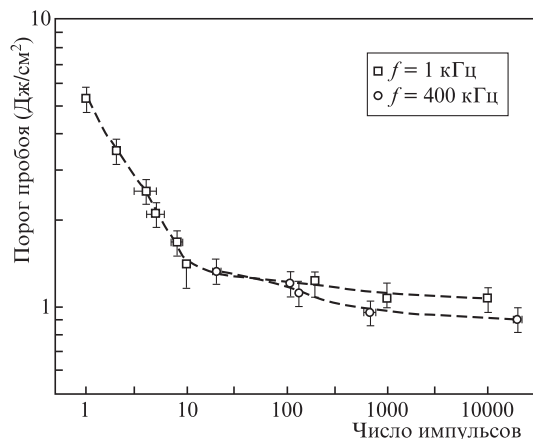


Рис.3. Зависимости порога пробоя кварцевого стекла от числа импульсов с различными частотами следования при  $\tau = 5$  пс ( $\lambda = 515$  нм).

факт, т. е. чем больше снижается порог пробоя при многократном облучении с  $f = 1$  кГц.

Известно, что одним из результатов многоступенчатого процесса релаксации фотовозбуждения в кварце является формирование точечных структурных дефектов, некоторые из которых имеют практически неограниченное время жизни и способны накапливаться при многократном облучении [13]. Существует мнение, что именно эти долгоживущие дефекты с пониженной энергией ионизации вызывают снижение порога пробоя при многоимпульсном облучении ультракороткими импульсами [9, 11, 14, 15]. Предполагаемый механизм снижения порога пробоя заключается в генерации дополнительных свободных электронов при многофотонной ионизации с участием дефектных уровней, что способствует ускоренному развитию лавинного процесса ударной ионизации.

Ударный механизм ионизации считается определяющим для формирования поглощающей плазмы при облучении кварца и других широкозонных диэлектриков пико- и наносекундными лазерными импульсами [12, 16]. С уменьшением длительности импульса до нескольких пикосекунд и менее, т. е. при переходе в фемтосекундный диапазон, эффективность электронной лавины заметно снижается из-за ограниченного времени ее развития, тогда как вклад нелинейной фотоионизации (туннельной или многофотонной) возрастает. Тем не менее электронная лавина остается важной составляющей ионизационного процесса, без которой невозможно достижение критической плотности плазмы. Согласно расчетам различных авторов [12, 16], лишь в случае очень коротких импульсов (менее 10 фс) туннельная ионизация из валентной зоны способна самостоятельно обеспечить генерацию сильно поглощающей плазмы в кварце, так что вкладом ударной ионизации можно пренебречь.

Опубликованные результаты численного моделирования развития электронной лавины в кварце свидетельствуют о чувствительности порога пробоя (повреждения), хотя и довольно слабой, к начальной концентрации свободных электронов. Согласно [17] пиковая интенсивность, необходимая для нагрева кварца импульсами с  $\tau = 100$  пс ( $\lambda = 1064$  нм) до температуры 1500 К и выше, снижается с  $\sim 240$  до  $\sim 130$  ГВт/см² при увеличении начальной концентрации электронов от  $10^{15}$  до  $1.5 \times 10^{18}$  см<sup>-3</sup>. В [12] порог пробоя кварца определялся исходя из критерия достижения критической плотности плазмы при облучении лазерными импульсами различной длительности (20 фс –

100 пс) на длине волны 800 нм. В расчетах учитывались механизмы ударной ионизации и фотоионизации – как по отдельности, так и вместе. Согласно представленным результатам, увеличение начальной концентрации электронов от  $10^8$  до  $10^{15}$  см<sup>-3</sup> вызывает снижение порога пробоя в 1.5–2 раза для импульсов длительностью 0.2–100 пс. Для импульсов короче 70 фс порог пробоя не зависит от начальной концентрации электронов из-за мощного вклада фотоионизации. По некоторым оценкам [18, 19], эффективность генерации точечных дефектов в кварце составляет примерно  $10^{-3}$  от числа создаваемых электрон-дырочных пар. Исходя из этого максимальная концентрация дефектов, создаваемых при многократном подпороговом облучении, может достигать  $\rho_{\text{crit}} 10^{-3} = 10^{18}$  см<sup>-3</sup>, где  $\rho_{\text{crit}} \approx 10^{21}$  см<sup>-3</sup> – критическая плотность плазмы. С учетом приведенных результатов расчетов [18, 19] такое повышение начальной концентрации электронов (от  $10^8$  до  $10^{18}$  см<sup>-3</sup>) должно вызывать трех-четырёхкратное снижение порога пробоя, что вполне сравнимо с полученными нами экспериментальными данными.

Чувствительность порога пробоя к начальной концентрации свободных электронов во всем исследованном нами диапазоне длительностей импульса является одним из важных оснований, позволяющих связать наблюдаемое снижение порога пробоя с накоплением в кварце легкоионизируемых точечных дефектов. Другим важным фактором, на наш взгляд, является скорость генерации точечных дефектов при многократном подпороговом облучении. Согласно результатам численного моделирования лавинной ионизации кварца под действием пикосекундных ИК импульсов [17], при чисто лавинном процессе ионизации с небольшой начальной концентрацией свободных электронов пиковая плотность плазмы демонстрирует чрезвычайно быстрый скачкообразный рост с приближением лазерной интенсивности к порогу пробоя. Даже небольшое снижение интенсивности по сравнению с порогом пробоя приводит к резкому падению пиковой плотности плазмы, что делает практически невозможным накопление точечных дефектов при подпороговом облучении, поскольку, как указывалось выше, скорость их генерации (в расчете на один импульс) пропорциональна пиковой плотности плазмы. Однако зависимость пиковой плотности плазмы от интенсивности становится намного более пологой при удвоении частоты излучения [17] благодаря повышению эффективности многофотонного поглощения и значительному росту числа «затравочных» электронов на начальном этапе лавинной ионизации. Более пологая зависимость позволяет быстрее генерировать и накапливать точечные дефекты даже при значительном снижении интенсивности ниже порога пробоя. Аналогичного эффекта следует ожидать и при укорочении импульса от 5 пс до 500 фс, что также сопровождается усилением нелинейной фотоионизации, а значит, делает более пологой зависимость пиковой плотности плазмы от лазерной интенсивности. Таким образом, мы предполагаем, что именно зависимость скорости генерации точечных дефектов от параметров импульса является причиной обнаруженных в эксперименте особенностей «низкочастотного» кумулятивного эффекта.

Известно также, что в процессе релаксации электрон-дырочной плазмы генерируются и сравнительно короткоживущие точечные дефекты, время жизни которых составляет несколько микросекунд [20]. При достаточно высокой частоте следования импульсов (сотни килогерц)

эти дефекты также могут участвовать в процессе ионизации, вызывая дополнительное снижение порога пробоя. Степень такого снижения зависит от концентрации короткоживущих дефектов на момент прихода очередного импульса, которая должна возрастать с частотой следования и количеством импульсов в серии. Частотно-зависимое понижение порога пробоя должно проявляться при тех же условиях, что и «низкочастотный» кумулятивный эффект, т. е. при чувствительности процесса ионизации к наличию точечных дефектов и пологой зависимости пиковой плотности плазмы от лазерной интенсивности.

Может ли частотная зависимость порога пробоя быть в какой-то мере связана с нагревом материала? Исходя из температуропроводности кварцевого стекла  $\chi = 0.01 \text{ см}^2/\text{с}$ , характерное время диффузии тепла из области радиусом  $R = 10 \text{ мкм}$  есть  $\tau_d = R^2/\chi = 0.1 \text{ мс}$ . Очевидно, предпосылки для накопления тепла возникают в наших экспериментах уже при  $f = 10 \text{ кГц}$ . К сожалению, нам не удалось обнаружить надежных данных о поглощении лазерной энергии в кварце при подпороговом облучении, а значит, мы не можем оценить нагрев материала в фокальной области ни единичным импульсом, ни серией импульсов с высокой частотой следования. О принципиальной возможности влияния температуры материала на порог пробоя свидетельствуют следующие экспериментальные наблюдения. Прямые измерения порога повреждения кварцевой пленки импульсами длительностью 100 фс и 2 пс ( $\lambda = 800 \text{ нм}$ ) при внешнем нагреве [21] показали, что в диапазоне 300–500 К изменение порога не превышает ошибки эксперимента  $\sim 10\%$ . Но при увеличении температуры до 1300–1750 К и облучении импульсами с  $\tau = 7 \text{ нс}$  ( $\lambda = 355 \text{ нм}$ ) наблюдалось снижение порога повреждения поверхности на 30%–50% [22]. Указанные температуры близки к порогу плавления кварцевого стекла и, по видимому, могут достигаться лишь в непосредственной близости от порога оптического пробоя. Таким образом, в настоящий момент мы не можем полностью исключить влияние нагрева материала на порог пробоя при облучении лазерным излучением с высокой частотой следования импульсов, однако данный фактор едва ли способен самостоятельно обеспечить наблюдаемое в эксперименте снижение порога.

#### 4. Заключение

Обнаружено значительное снижение порога многоимпульсного пробоя кварцевого стекла для импульсов с  $\tau = 500 \text{ фс}$  ( $\lambda = 1030 \text{ нм}$ ) при увеличении частоты их следования с 10 до 400 кГц. Влияние частоты, по крайней мере в диапазоне 1–400 кГц, уменьшается при переходе к более длинным импульсам (5 пс) с половинной длиной волны ( $\lambda = 515 \text{ нм}$ ) и полностью исчезает для импульсов с  $\tau =$

5 пс и  $\lambda = 1030 \text{ нм}$ . Одновременно уменьшается кумулятивный эффект в кварцевом стекле – снижение порога пробоя для длинных серий импульсов. Зависимость порога пробоя от числа импульсов может быть объяснена на качественном уровне накоплением точечных дефектов при многократном подпороговом облучении, что влияет на процесс ударной ионизации. При этом частотная зависимость порога пробоя кварцевого стекла определяется включением в процесс ионизации короткоживущих дефектов. Нельзя исключить также влияние нагрева материала на порог пробоя при высокочастотном лазерном облучении.

Авторы выражают благодарность В.В.Кононенко за предоставление образцов для исследований и заинтересованное обсуждение результатов, М.А.Ларионову – за неоценимую помощь в экспериментах. Исследования поддерживаются РФФИ (грант № 11-02-12242).

- Gattass R.R., Mazur E. *Nature Photon.*, **2**, 219 (2008).
- Poumellec B., Lancry M., Chahid-Er-raji A., Kazansky P.G. *Opt. Mater. Express*, **1**, 766 (2011).
- Schaffer C.B., Brodeur A., García J.F., Mazur E. *Opt. Lett.*, **26**, 93 (2001).
- Schaffer C.B., García J.F., Mazur E. *Appl. Phys. A*, **76**, 351 (2003).
- 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).
- Reichman W.J., Krol D.M., Shah L., Yoshino F., Arai A., Eaton S.M., Herman P.R. *J. Appl. Phys.*, **99**, 123112 (2006).
- Li M., Menon S., Nibarger J.P., Gibson G.N. *Phys. Rev. Lett.*, **82**, 2394 (1999).
- Petite G., Guizard S., Martin P., Quéré F. *Phys. Rev. Lett.*, **83**, 5182 (1999).
- Varel H., Ashkenasi D., Rosenfeld A., Herrmann R., Noack F., Campbell E.E.B. *Appl. Phys. A*, **62**, 293 (1996).
- Smith A.V., Do B.T. *Appl. Opt.*, **47**, 4812 (2008).
- Ashkenasi D., Lorenz M., Stoian R., Rosenfeld A. *Appl. Surf. Sci.*, **150**, 101 (1999).
- Tien A.-C., Backus S., Kapteyn H., Murnane M., Mourou G. *Phys. Rev. Lett.*, **82**, 3883 (1999).
- Guizard S., Martin P., Petite G., Oliveira P.D., Meynadier P. *J. Phys. Condensed Matter*, **8**, 1281 (1996).
- Rosenfeld A., Lorenz M., Stoian R., Ashkenasi D. *Appl. Phys. A*, **69**, S373 (1999).
- Lenzner M., Krüger J., Kautek W., Krausz F. *Appl. Phys. A*, **69**, 465 (1999).
- Stuart B.C., Feit M.D., Herman S., Rubenchik A.M., Shore B.W., Perry M.D. *Phys. Rev. B*, **53**, 1749 (1996).
- Arnold D., Cartier E. *Phys Rev B*, **46**, 15102 (1992).
- Arai K., Imai H., Hosono H., Abe Y., Imagawa H. *Appl. Phys. Lett.*, **53**, 1891 (1988).
- Rothschild M., Ehrlich D.J., Shaver D.C. *Appl. Phys. Lett.*, **55**, 1276 (1989).
- Papazoglou D.G., Tzortzakis S. *Opt. Mater. Express*, **1**, 625 (2011).
- Mikami K., Motokoshi S., Somekawa T., Jitsuno T., Fujita M., Tanaka K.A. *Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Eng.*, **8530**, 853005-1 (2012).
- Bude J., Guss G., Matthews M., Spaeth M.L. *Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Eng.*, **6720**, 672009-1 (2007).