

Моделирование фемтосекундной интерферометрии при исследовании воздействия интенсивного лазерного излучения на прозрачную среду

Е.В.Заведеев, В.В.Кононенко, В.М.Гололобов, В.И.Конов

На основе компьютерного воспроизведения фотографий, получаемых с помощью фемтосекундной интерферометрии, предложен метод сопоставления экспериментальных и модельных результатов, получаемых при прохождении фемтосекундного лазерного импульса через вещество. Представлен численный анализ пространственно-временной эволюции интенсивного ($\sim 10^{13}$ Вт/см²) импульса при его распространении в объеме иттрий-алюминиевого граната.

Ключевые слова: фемтосекундное лазерное излучение, быстрые процессы в твердом теле, фемтосекундная интерферометрия.

1. Введение

Возможность лазерного структурирования объема прозрачных материалов стимулирует неослабевающий научный интерес к процессам взаимодействия мощного излучения с твердым телом. Нелинейное поглощение в области фокальной перетяжки способно вызвать сильное возбуждение среды и привести к перманентной модификации (например, к уплотнению [1], окрашиванию [2], аллотропной трансформации [3, 4], аморфизации [5], наномасштабному структурированию [6]) или к разрушению материала [7]. При этом нелинейное взаимодействие излучения со средой значительно меняет траекторию распространения и пространственно-временную форму интенсивного ультракороткого лазерного импульса, сфокусированного в объеме вещества. Актуальной является задача измерения, предсказания и контроля светоиндуцированного возбуждения среды.

Фемтосекундная интерферометрия [8, 9] представляет собой удобный инструмент для таких измерений, поскольку позволяет оценивать изменение показателя преломления в зоне лазерного воздействия. Данные, получаемые этим методом, содержат информацию о локальной интенсивности излучения, о концентрации возбужденных носителей заряда, о переходных связанных состояниях и т. д. По сути, интерференционные фотографии представляют собой пространственно-временную свертку распределения светоиндуцированного изменения показателя преломления (Δn) и электромагнитного поля пробного импульса в веществе. При этом пространственное разрешение получаемых изображений ограничено дифракционным пределом, а временное соответствует длительности импульса.

Е.В.Заведеев, В.В.Кононенко, В.М.Гололобов, В.И.Конов. Институт общей физики им. А.М.Прохорова РАН, Россия, 119991 Москва, ул. Вавилова, 38; Национальный исследовательский ядерный университет «МИФИ», Россия, 115409 Москва, Каширское ш., 31; e-mail: dodeskoden@gmail.com

Поступила в редакцию 24 ноября 2019 г., после доработки – 12 декабря 2019 г.

Расшифровка информации, содержащейся в интерференционных фотографиях, требует операции обратной свертки. Однако обратная свертка является некорректно поставленной задачей, т. е. задачей, в которой небольшие неточности в исходных данных приводят к сильному искажению решения. Поскольку на интерференционных фотографиях присутствует довольно много артефактов, связанных с абберациями оптической системы, шумами матрицы и дифракцией пробного пучка, непосредственное извлечение информации о распределении поля и состоянии среды из них трудноосуществимо, что препятствует прямому сравнению теории и эксперимента.

Ранее для сопоставления результатов численного моделирования и данных фемтосекундной интерферометрии был предложен метод, основанный на сравнении динамики набега фаз пробного пучка $\Delta\varphi(t)$ в выбранной точке оптической оси [10]. Теоретические зависимости получались интегрированием полученного в результате расчетов Δn . Недостатком такого метода является то, что из всего объема данных в нем используется только малая их часть, относящаяся к выбранной точке.

В настоящей статье мы рассматриваем альтернативный метод сопоставления модельных и экспериментальных данных при фемтосекундной интерферометрии. На основе расчетов производится компьютерное воспроизведение интерферометрических изображений, которые затем сравниваются с экспериментальными. Применимость этого метода рассматривается на примере распространения фемтосекундного лазерного импульса в иттрий-алюминиевом гранате (YAG).

2. Эксперимент

Источником излучения служил титан-сапфировый лазер Tsunami (Spectra Physics) с регенеративным усилителем Spitfire (Spectra Physics) с длиной волны излучения 800 нм. Длительность импульса составляла 140 фс. Импульс накачки фокусировался асферической линзой с фокусным расстоянием $f = 30$ мм внутрь полированного образца YAG на глубину 300 мкм от поверхности.

Для изучения наведенной поляризуемости среды использовалась фемтосекундная интерферометрия. Проб-

ный пучок после линии задержки проходил через область фокальной перетяжки излучения накачки перпендикулярно его оптической оси. Объектив (NA = 0.40) и линза ($f = 500$ мм), расположенные в конфигурации телескопа, использовались для отображения фокальной области на CCD-матрицу. После телескопа параллельный пробный пучок проходил через интерферометр Саньяка, который формировал широкополосную интерференционную картину. На вставке рис.1 демонстрируются два изображения, соответствующие плечам интерферометра. Локальное изменение показателя преломления в облучаемой зоне вызывало локальный фазовый сдвиг волнового фронта пробного пучка, что, в свою очередь, приводило к изменению яркости обоих изображений. Подробное описание этой методики можно найти в [10].

3. Моделирование

Полученные в эксперименте данные сравнивались с результатами численного моделирования. Прохождение лазерного импульса через среду и возбуждение электронной подсистемы кристалла YAG описывалось с помощью системы уравнений

$$\frac{\partial E}{\partial z} = \frac{i}{2k_0} \left(\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} + \frac{\partial^2}{\partial r^2} \right) E - \frac{ik''}{2} \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} + \frac{ik_0 n_2}{n_0} |E|^2 E - \frac{1}{2} \beta^{(5)} |E|^8 E + \frac{ik_0}{n_0} n_t \rho_t E, \quad (1)$$

$$\frac{\partial \rho_t}{\partial t} = \frac{\beta^{(5)}}{5\hbar\omega_0} |E|^{10}. \quad (2)$$

Уравнение (1) – волновое уравнение для комплексной амплитуды электромагнитного поля E в приближении медленно меняющихся амплитуд (см., напр., [11]). Первое слагаемое в правой части отвечает за дифракцию, второе – за дисперсию групповой скорости, третье – за нелинейную фокусировку излучения под действием оптического эффекта Керра, четвертое – за пятифотонное поглощение. Пятое слагаемое описывает действие короткоживущих связанных состояний в YAG, наведенных излучением. Как показано в [10], связанные состояния в YAG рождаются непосредственно при поглощении света, а не через релаксацию свободных носителей заряда (так же как и, предположительно, в кристаллах CaWO_4 [12]). Уравнение (2) описывает рождение этих состояний. Поскольку экспериментально определенное время их жизни составило 150 пс [13], релаксация не учитывалась.

В уравнениях (1), (2) $t' \equiv t - n_0 z/c$; k_0 и ω_0 – волновое число и угловая частота света; $k'' = 98.5$ фс²/см отвечает за дисперсию групповой скорости [14]; $n_0 = 1.82$ – линейный и $n_2 = 6.5 \times 10^{-16}$ см²/Вт – нелинейный [15] показатели преломления в YAG; $\beta^{(5)} = 3.1 \times 10^{-51}$ см⁷/Вт⁴ – коэффициент пятифотонного поглощения [16]; ρ_t – концентрация связанных состояний; $n_t \rho_t$ – вклад связанных состояний в показатель преломления. Параметр n_t при расчетах варьировался. В приведенных далее результатах расчетов $n_t = 1.5 \times 10^{-24}$ см³. Нужно отметить, что изменение n_t в окрестностях этого значения или ниже не приводило к заметному изменению результатов решения системы (1), (2).

Исходный лазерный импульс имел гауссову пространственно-временную форму с длительностью $\tau_{\text{FWHM}} =$

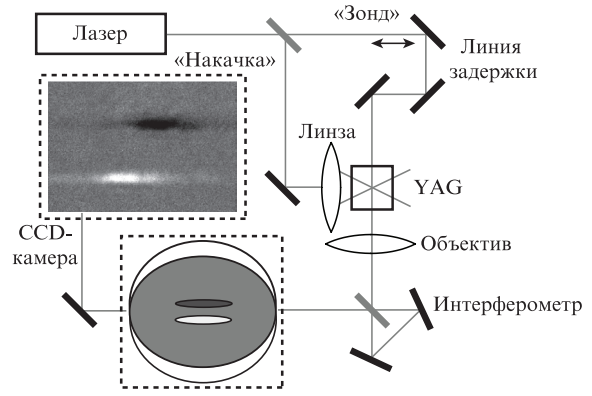


Рис.1. Схема облучения при фемтосекундной интерферометрии. На вставке – типичная интерференционная картина, наблюдаемая на экране CCD-камеры.

140 фс и фокусировался линзой с числовой апертурой NA = 0.1 на глубине 300 мкм от поверхности образца.

4. Воспроизведение результатов фемтосекундной интерферометрии

Для сопоставления результатов численных расчетов с экспериментальными данными проводился расчет прохождения пробного импульса через область лазерного воздействия при различных временных задержках t_d . Для этого рассчитывалось распределение наведенного показателя преломления в YAG $\Delta n(r, z, t) = n_2 |E(r, z, t)|^2 + n_t \rho_t(r, z, t)$ с переходом к лабораторному времени. Затем для тонкого временного слоя пробного импульса, распространяющегося вдоль оси Y , определялась фазовая задержка

$$\Delta\varphi(x, z, t) = \frac{2\pi}{\lambda} \int_{-\infty}^{\infty} \Delta n(\sqrt{x^2 + y^2}, z, t + \frac{n_0 y}{c}) dy \quad (3)$$

и проводилась временная свертка:

$$B(x, z, t_d) = I_0^p \int_{-\infty}^{\infty} \sin[\Delta\varphi(x, z, t)] \exp\left[-\frac{(t + t_d)^2}{\tau^2}\right] dt. \quad (4)$$

Полученные таким образом массивы данных $B(x, z)$ представляли собой воспроизведенные в расчетах интерференционные фотографии, соответствующие получаемым с помощью представленной на рис.1 экспериментальной схемы. Следует отметить, что такие расчетные фотографии являлись идеализированными, поскольку не учитывали дифракцию на тонких объектах, поглощение и несовершенство оптической системы.

5. Результаты и их обсуждение

Интерференционные фотографии, снятые с различными временными задержками пробного пучка, показаны на рис.2,а. Энергия импульса накачки была равна 0.52 мкДж. Светлые области соответствуют положительному набегу фаз пробного пучка, т.е. положительному наведенному показателю преломления. Двигающееся справа налево светлое широкое «облако» соответствует оптическому эффекту Керра и является изображением импульса накачки. Узкая полоса в центре фотографий отвечает области, содержащей светоиндуцированные связан-

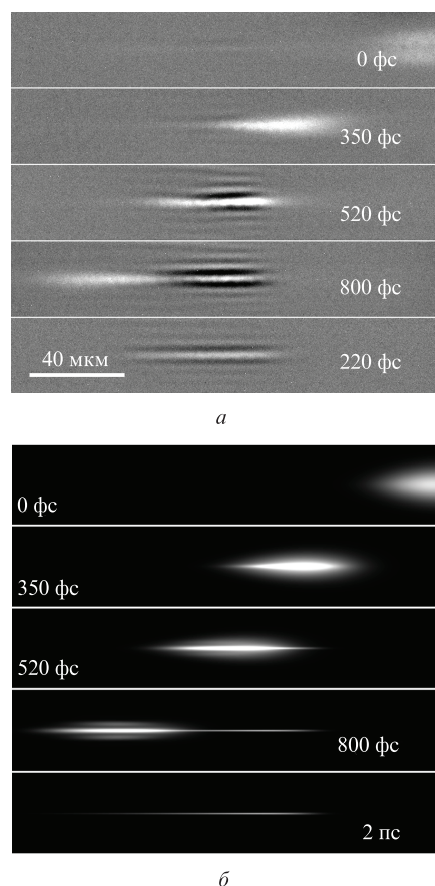


Рис.2. Интерференционные фотографии, полученные при распространении фемтосекундного лазерного импульса с энергией 0.52 мкДж в кристалле YAG: эксперимент (а) и моделирование (б). Импульс движется справа налево.

ные состояния. Подчеркнем, что при интенсивном фемтосекундном облучении кристалла YAG не наблюдаются области с уменьшенным показателем преломления, которые появляются в большинстве твердых тел в результате формирования свободных носителей заряда (см., напр., [17]).

Численно рассчитанные интерференционные фотографии приведены на рис.2,б. Для временных задержек 0 и 350 фс наблюдается хорошее соответствие расчетных и экспериментальных изображений. Видно, что импульс сужается и становится более интенсивным по мере приближения к области фокусировки. Отметим, что мощность импульса накачки при энергии 0.52 мкДж превышает критическую мощность самофокусировки почти в 4 раза, поэтому фокусировка пучка в данном случае является существенно нелинейной из-за оптического эффекта Керра.

При достижении импульсом области фокусировки (задержка 520 фс) на экспериментальных изображениях появляются дифракционные полосы. Наблюдаемая дифракция возникает из-за связанных электронных состояний в облученной зоне. Согласно расчетам, диаметр возмущенной области составляет ~500 нм. Сильная дифракция не позволяет количественно сопоставить экспериментальные и теоретические данные в области фокусировки, однако на качественном уровне они соответствуют друг другу.

Когда импульс покидает область фокусировки (задержка 800 фс), хорошее соответствие восстанавливается.

Однако, согласно результатам моделирования, в этот момент в пучке появляется вторичный максимум, который неразличим в эксперименте. Это, по-видимому, связано с тем, что недостаточное пространственное разрешение оптической системы скрывает мелкомасштабные детали в наблюдаемой картине.

Таким образом, низкое разрешение оптической системы является критической проблемой. Для сопоставления теории и эксперимента на количественном уровне необходим более аккуратный расчет интерференционных фотографий, учитывающий как дифракцию пробного пучка на субволновых объектах, так и aberrации самой оптической системы. Тем не менее приведенные данные свидетельствуют о том, что используемые уравнения (1), (2), учитывающие формирование короткоживущих связанных состояний непосредственно через пятифотонное поглощение, корректно описывают светоиндуцированные процессы в кристалле YAG.

Проведенные расчеты позволили, в частности, отследить изменение интенсивности и формы импульса накачки по мере его продвижения через область фокусировки. Отметим, что при мощностях, превышающих критическую, типичным режимом распространения импульса в среде является филаментация [11], основная причина которой – баланс самофокусировки излучения и его дефокусировки плазмой свободных носителей заряда. В случае кристалла YAG отсутствие дефокусировки привело к специфическому режиму распространения импульса, отличающемуся от режима классической филаментации.

На рис.3 демонстрируется пространственное распределение интенсивности света в моменты времени, соответствующие показанным на рис.2. Хорошо видно, что форма импульса существенно изменялась при его движении через область фокусировки. Критическим фактором в этом процессе являлось пятифотонное поглощение, которое выступало в роли ограничителя интенсивности, не позволяющего ей превышать 3.5×10^{13} Вт/см². В результате взаимодействия процессов самофокусировки и поглощения импульс по мере распространения сужался в радиальном направлении и эффективно удлинялся как в аксиальном направлении, так и по времени. Так, при временной задержке 350 фс радиус (по уровню 1/e) и длительность (по половине максимума) импульса составляли 1 мкм и 100 фс. При задержке 800 фс радиус уменьшился до 0.8 мкм, а длительность увеличилась до 200 фс. Излучение распространялось в этом режиме, пока мощность не падала ниже критической, после чего происходило дифракционное расплывание пучка.

Как уже было сказано, ключевым условием для установления и поддержания описанного режима распространения излучения является ограничение интенсивно-

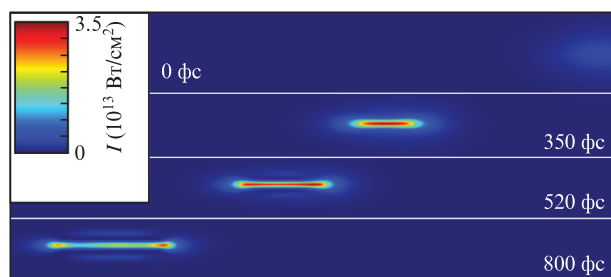


Рис.3. Изменение интенсивности импульса с энергией 0.52 мкДж по мере его продвижения через область фокусировки в объеме YAG.

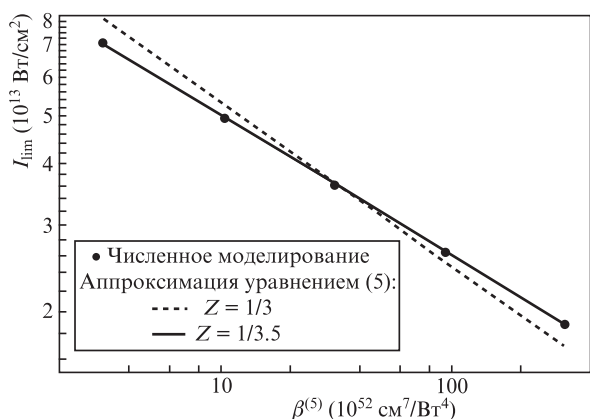


Рис.4. Расчетная зависимость интенсивности насыщения для импульса с энергией 0.52 мкДж от коэффициента пятифотонного поглощения.

сти многофотонным поглощением в условиях сильной самофокусировки. Характеристическая длина самофокусировки $L_{sf} = 1/(n_2 k_0 I)$ (см. [11]), где I – интенсивность на оси пучка. Характеристическая длина K -фотонного поглощения $L_{mра} = 1/(2\beta^{(K)} I^{K-1})$. Логично предположить, что рост интенсивности при фокусировке подавляется, когда значения L_{sf} и $L_{mра}$ становятся близкими. Пренебрегая дифракцией и другими эффектами, для $K \geq 3$ можно предложить оценочную формулу интенсивности, при которой установится баланс между поглощением и самофокусировкой:

$$I_{lim} = a^{(K)}(n_2 k_0 / (2\beta^{(K)}))^{1/Z}. \quad (5)$$

Здесь $Z = 1/(K - 2)$; $a^{(K)}$ – безразмерный коэффициент порядка единицы.

Для анализа применимости формулы (5) была рассчитана зависимость величины интенсивности насыщения I_{lim} от коэффициента пятифотонного поглощения (рис.4). Использовалось уравнение (1) без учета членов, ответственных за дисперсию групповой скорости и преломление вследствие появления связанных состояний. Значение $\beta^{(5)}$ варьировалось от 3.1×10^{-52} до 3.1×10^{-50} $\text{cm}^7/\text{Вт}^4$. Аппроксимация зависимости $I_{lim}(\beta^{(5)})$ формулой (5) при $Z = 1/3$ дана пунктирной линией, при этом $a^{(5)} = 1.48$. Аппроксимация с $Z = 1/3.5$ (сплошная линия) оказалась гораздо более точной. Наблюдаемое расхождение связано с дифракцией, которая при выводе оценочной формулы (5) не учитывалась.

Таким образом, для корректного сопоставления экспериментальных данных и результатов численного моделирования взаимодействия фемтосекундного импульса со средой предложен метод компьютерного расчета фотографий, получаемых методом фемтосекундной интерферометрии. Для иттрий-алюминиевого граната данный подход показал хорошее соответствие теории и эксперимента. Ключевой проблемой остается несовершенство интерференционных фотографий, связанное, прежде всего, с дифракцией пробного пучка. В численном эксперименте продемонстрирован режим распространения лазерного импульса в кристалле YAG, при котором керровская самофокусировка и отсутствие плазменной дефокусировки привели к сильному сужению пучка и удлинению импульса.

Работа выполнена при поддержке Министерства образования РФ (Проект № 3.2608.2017/ПЧ).

1. Davis K.M., Miura K., Sugimoto N., Hirao K. *Opt. Lett.*, **21**, 1729 (1996).
2. Griscom D.L., Gingerich M.E., Friebele E.J. *Phys. Rev. Lett.*, **71**, 1019 (1993).
3. Rothschild M., Arnone C., Ehrlich D.J. *J. Vac. Sci. Technol.*, **4**, 310 (1986).
4. Кононенко Т.В., Заведеев Е.В. *Квантовая электроника*, **46**, 229 (2016) [*Quantum Electron.*, **46**, 229 (2016)].
5. Pavlov I., Tokel O., Pavlova S., Kadan V., Makey G., Turnali A., Yavuz Ö., Ilday F.Ö. *Opt. Lett.*, **42**, 3028 (2017).
6. Shimotsuma Y., Kazansky P.G., Qiu J., Hirao K. *Phys. Rev. Lett.*, **91**, 247405 (2003).
7. Juodkazis S., Misawa H., Hashimoto T., Gamaly E.G., Luther-Davies B. *Appl. Phys. Lett.*, **88**, 201909 (2006).
8. Garnov S.V., Konov V.I., Malyutin A.A., Tsarkova O.G., Yatskovsky I.S., Dausinger F. *Laser Phys.*, **13**, 386 (2003).
9. Azechi H., Oda S., Tanaka K., Norimatsu T., Sasaki T., Yamanaka T., Yamanaka C. *Phys. Rev. Lett.*, **39**, 1144 (1977).
10. Zavedeev E.V., Kononenko V.V., Konov V.I. *Appl. Phys. A*, **123**, 499 (2017).
11. Couairon A., Mysyrowicz A. *Phys. Rep.*, **441** (2–4), 47 (2007).
12. Nagirnyi V., Geoffroy G., Grigonis R., Guizard S., Kirm M., Kotlov A., Nagornaya L.L., Nikl M., Sirutkaitis V., Vielhauer S. *Radiat. Meas.*, **45** (3–6), 262 (2010).
13. Kononenko V.V., Zavedeev E.V., Okhrimchuk A.G., Konov V.I. *Laser Phys. Lett.*, **14**, 066002 (2017).
14. Zelmon D.E., Small D.L., Page R. *Appl. Opt.*, **37**, 4933 (1998).
15. Takeuchi Y., Kawanaka J., Fujita M. *CLEO/Europe-EQEC 2009 Conf. Dig.* (Munich, 2009, CA_P24).
16. Okhrimchuk A.G., Mezentsev V.K., Schmitz H., Dubov M., Bennion I. *Laser Phys.*, **19**, 1415 (2009).
17. Кононенко В.В., Заведеев Е.В., Латушко М.И., Пашинин В.П., Конов В.И., Дианов Е.М. *Квантовая электроника*, **42**, 925 (2012) [*Quantum Electron.*, **42**, 925 (2012)].