

## Формирование волновода в кристалле LiF световой пучей среднего ИК диапазона

А.В.Кузнецов, А.Е.Дормидонов, В.О.Компанец, С.В.Чекалин, В.П.Кандидов

*Экспериментально и численно исследована динамика возникновения микромодификаций в кристалле LiF при филаментации фемтосекундного излучения среднего ИК диапазона в условиях аномальной дисперсии групповой скорости с увеличением числа воздействующих импульсов. Установлено, что длина волновода возрастает с увеличением числа воздействующих импульсов как в направлении распространения излучения, так и во встречном направлении, достигая около 5 мм при экспозиции в несколько тысяч импульсов. Предложена модель формирования волноводной структуры при накоплении изменений показателя преломления в LiF, вызванных образованием центров окраски в условиях насыщения их концентрации. Показано, что поперечное распределение показателя преломления в структуре имеет столбовую форму диаметром более 4 мкм, что приводит к локализации излучения при отражении от границ волновода.*

**Ключевые слова:** филаментация, фемтосекундные импульсы, световые пучи, микроволноводы, центры окраски, LiF.

### 1. Введение

Высокая плотность мощности и малая длительность импульсов фемтосекундного излучения позволяют осуществлять фотоиндуцированную микромодификацию оптических материалов, не вызывая их термического разрушения. Впервые возможность записи оптического волновода в объеме оптических материалов излучением ближнего ИК диапазона продемонстрирована в [1, 2]. Микромодификация среды в остросфокусированных пучках позволяет формировать планарные и трехмерные элементы интегральной оптики, такие как делители [3] и волоконные брэгговские решетки [4, 5]. При филаментации фемтосекундного излучения в результате динамического баланса керровской самофокусировки и дефокусировки в лазерной плазме высокая интенсивность поддерживается на расстоянии, значительно превышающем рэлеевскую длину [6, 7]. В этом режиме канал микромодификаций образуется в филаменте и с увеличением времени экспозиции удлиняется вдоль направления распространения излучения [8]. С помощью индуцированных филаментами микромодификаций получены волноводные ответвители [9–11], гексагональные массивы связанных волноводов [12], дифракционные решетки [13], фокусирующие транспаранты [14] и другие элементы микрооптики [15].

**А.В.Кузнецов.** Иркутский филиал Института лазерной физики СО РАН, Россия, 664033 Иркутск, ул. Лермонтова, 130а; e-mail: a.v.kuznetsov@bk.ru

**А.Е.Дормидонов, В.О.Компанец, С.В.Чекалин.** Институт спектроскопии РАН, Россия, 108840 Москва, Троицк, ул. Физическая, 5; e-mail: chekalin@isan.troitsk.ru

**В.П.Кандидов.** Институт спектроскопии РАН, Россия, 108840 Москва, Троицк, ул. Физическая, 5; Московский государственный университет им. М.В.Ломоносова, физический факультет, Россия, 119991 Москва, Воробьевы горы; e-mail: kandidov@physics.msu.ru

Поступила в редакцию 9 июня 2021 г.

Значительная часть исследований микромодификации материалов выполнена для кварца, и увеличение показателя преломления в нем при воздействии интенсивного излучения объясняется с использованием различных моделей на основе процессов быстрого остывания расплавленного стекла в фокальной области [16], а также релаксации свободных носителей, возникающих в лазерной плазме [17]. Влияние накопления микромодификации показателя преломления в плавленом кварце на множественную филаментацию фемтосекундного излучения исследовано в [18].

Перспективными материалами для создания элементов микрооптики являются фториды щелочных металлов, среди которых особое место занимает кристалл LiF, обладающий наиболее широкой областью прозрачности и запрещенной зоной (порядка 14 эВ) среди всех прозрачных диэлектриков [19]. Кроме того, LiF характеризуется высокой термической и оптической стабильностью, малой гигроскопичностью и имеет удобные для механической обработки свойства.

При филаментации фемтосекундных лазерных импульсов в LiF происходит образование различных видов возбуждений электронной подсистемы, таких как анионные электронно-дырочные пары и экситоны, распад которых приводит к образованию наблюдаемых долгоживущих центров окраски (ЦО) [20–23]. Энергия электронно-дырочных пар и экситонов в LiF высвобождается по трем физическим каналам: в виде тепла, люминесценции и образования первичных радиационных дефектов – так называемых френкелевских пар, часть которых в последовательности ряда реакций [23] превращается в более сложные дефекты кристаллической решетки – агрегатные ЦО, включая стабильные люминесцирующие в видимом диапазоне  $F_2^-$ - и  $F_2^+$ -центры.

Показатель преломления окрашенного LiF отличается от исходного показателя преломления LiF на некоторую величину  $\Delta n_c$ , зависящую от длины волны и концентраций различных видов ЦО. Модификация показателя преломления, наведенная при многоимпульсном воздей-

ствии, способна сформировать волновод в объеме кристалла LiF [24]. При филаментации в LiF импульсов излучения на длинах волн 2600–3500 нм, которые относятся к области аномальной дисперсии групповой скорости (АДГС), формируются одноцикловые высокоинтенсивные световые пули (СП) [25–27], на длине пробега которых генерируются ЦО. С увеличением числа воздействующих импульсов протяженность наведенного в LiF волновода возрастает, а спектр суперконтинуума, генерируемого СП, претерпевает качественную трансформацию вследствие возникновения волноводного режима распространения [28].

В настоящей работе экспериментально и численно исследована динамика формирования протяженного волновода в кристалле LiF при увеличении числа воздействующих фемтосекундных импульсов среднего ИК диапазона в условиях АДГС. Предложена модель формирования волновода при изменении показателя преломления в LiF, вызванном образованием ЦО в условиях насыщения их концентрации и волноводного захвата излучения структурой, наведенной при филаментации фемтосекундных импульсов среднего ИК диапазона и образования СП.

## 2. Методика измерений и экспериментальные результаты

Запись волноводов в кристалле LiF осуществлялась излучениями фемтосекундного генератора Tsunami (Ti:сапфировый лазер) с непрерывным твердотельным лазером накачки Millenia Vs, регенеративного усилителя Spitfire Pro с накачкой импульсным твердотельным лазером Empower 30 и перестраиваемого параметрического усилителя TOPAS-C. Использовались импульсы излучения на  $\lambda = 3200$  нм с длительностью на полувысоте 100 фс и радиусом пучка 4 мм при малой частоте следования (4 Гц) для исключения тепловых эффектов. Энергия импульсов измерялась фото- и пироприемниками, калиброванными по детектору PS-10. Лазерные импульсы фокусировались на переднюю грань образца из LiF тонкой линзой из CaF<sub>2</sub> с фокусным расстоянием  $F = 10$  см, при котором диаметр пучка на входной грани образца составлял 120–150 мкм. Для получения СП в режиме одиночной филаментации использовались импульсы с энергией 25 мкДж.

Волноводы из ЦО в LiF записывались при последовательном увеличении числа воздействующих импульсов от одного-двух до 2500. Анализ получаемых волноводов осуществлялся по люминесцентному излучению ЦО при возбуждении непрерывным лазерным излучением на  $\lambda = 450$  нм. Люминесценция регистрировалась цифровой камерой Nikon D800 с микроскопом Eufotech Oxion 5. При этом рассеянное возбуждающее излучение отсекалось желто-зеленым светофильтром. Расстояние от входной грани образца до начала волновода составляло около 4 мм в одноимпульсном режиме воздействия и сокращалось с увеличением числа импульсов.

Люминесцирующие волноводы из долгоживущих ЦО, записанные в LiF под действием разного количества фемтосекундных лазерных импульсов с указанными выше параметрами, приведены на рис. 1.

Видно, что с увеличением числа импульсов длина наведенных волноводов возрастает как в направлении распространения излучения (направо), так и в противополо-



Рис. 1. Фотографии люминесцирующих волноводов из долгоживущих ЦО, записанных в LiF под действием различного числа фемтосекундных импульсов лазерного излучения с  $\lambda = 3200$  нм. Вклад в видимую люминесценцию вносят ЦО, возбуждаемые непрерывным лазером с длиной волны излучения 450 нм. Фемтосекундные импульсы идут слева направо, цифры слева – число импульсов.

ложном направлении. По направлению распространения импульса длина треков существенно возрастает, достигая 5 мм при экспозиции в несколько тысяч импульсов. Увеличение длины свидетельствует о том, что прозрачные в среднем ИК диапазоне структуры из ЦО не только не препятствуют образованию СП, но и улучшают условия для их возникновения и распространения при создании волновода. Появление одноцикловой СП на выходе наведенного волновода, зарегистрированное по осцилляциям концентрации ЦО в наблюдаемом треке, имело место чаще на первых десятках импульсов и более редко – с их последующим увеличением. При воздействии 200 и большего числа импульсов изменение концентрации ЦО в направлении распространения импульса меняется немонотонно. Это, видимо, связано с делокализацией излучения СП на выходе волновода и повторной ее компрессией, что отчетливо регистрируется по осцилляциям концентрации ЦО, характерным для одноцикловой СП [25]. Следует отметить, что в наведенном волноводе СП формируется в импульсе, пиковая мощность которого лишь незначительно превышает критическую мощность самофокусировки. Удлинение волновода навстречу распространению излучения с увеличением числа импульсов составляет около 1 мм и происходит в основном при накоплении модификации, вызванной первыми несколькими десятками импульсов. С увеличением их числа смещение начала волновода замедляется и выходит на стационарное значение после воздействия нескольких тысяч импульсов (рис. 2).

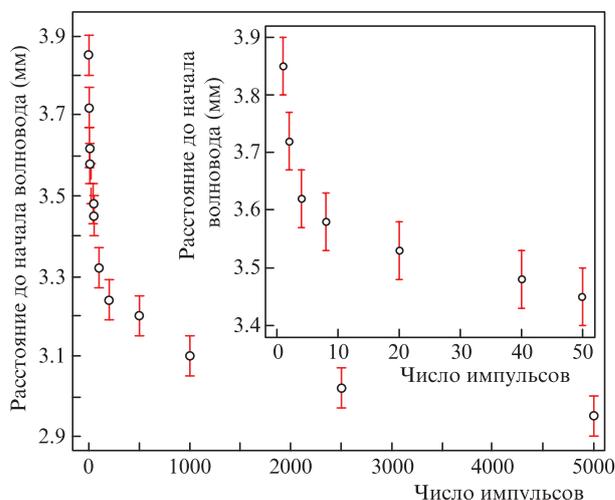


Рис. 2. Смещение начала волновода навстречу направлению распространения импульсов в LiF при увеличении числа воздействующих импульсов излучения на  $\lambda = 3200$  нм.

### 3. Модель изменения показателя преломления при генерации ЦО в LiF

Численное исследование основывается на модели, которая описывает при фемтосекундной филаментации изменения показателя преломления в LiF, вызванные образованием ЦО в условиях насыщения их концентрации, волноводного захвата излучения структурой, наведенной импульсами, и влияния флуктуации их энергии. Пространственное распределение стабильных ЦО описывается эффективной концентрацией  $\rho_c$  всех видов ЦО, которая аккумулируется импульс за импульсом и достигает насыщения  $\rho_{c_{\max}}$  при достаточно большом их числе. Наведенное приращение показателя преломления  $\Delta n_c$  пропорционально концентрации ЦО:

$$\Delta n_c = \beta \rho_c, \quad (1)$$

где  $\beta$  – коэффициент пропорциональности. В модели каждый импульс серии, начиная со второго, распространяется при измененном показателе преломления в среде с ЦО, которые предполагаются полностью сформировавшимися из электронно-дырочных пар и экситонов, наведенных предыдущими импульсами. При этом последующие лазерные импульсы не разрушают структуру из ЦО, созданную предыдущими.

В общем случае при воздействии лазерного излучения происходит образование как экситонов с концентрацией  $\rho_{ex}(r, t)$ , так и электронно-дырочных пар с концентрацией  $\rho_{eh}(r, t)$ , равной концентрации свободных электронов  $\rho_e(r, t)$  в наведенной лазерной плазме. Кинетические уравнения, описывающие изменение концентраций свободных электронов  $\rho_e(r, t)$  и экситонов  $\rho_{ex}(r, t)$  в световом поле с амплитудой  $A(r, t)$ , имеют следующий вид:

$$\frac{\partial \rho_e(r, t)}{\partial t} = (1 - \alpha) \times \left[ W_E(|A|) \left( 1 - \frac{\rho_e(r, t) + \rho_{ex}(r, t)}{\rho_0} \right) + v_i \rho_e(r, t) \right], \quad (2a)$$

$$\frac{\partial \rho_{ex}(r, t)}{\partial t} = \alpha \left[ W_{ex}(|A|) \left( 1 - \frac{\rho_e(r, t) + \rho_{ex}(r, t)}{\rho_0} \right) \right], \quad (2b)$$

где  $v_i \approx 10^{15} \text{ с}^{-1}$  – частота неупругих столкновений электронов и ионов кристаллической решетки;  $\rho_0 = 6.1 \times 10^{22} \text{ см}^{-3}$  – концентрация анионов фтора в LiF. Ионизацией катионов лития можно пренебречь, т.к. она требует большей энергии и потому менее вероятна. Скорость полевой ионизации  $W_E(|A|)$  описывается формулой Келдыша [29]. Уравнение (2a) не учитывает рекомбинацию электронно-дырочных пар. Функция  $W_{ex}(|A|)$  в (2b) является скоростью прямой генерации экситонов в единице объема. Энергия экситонного поглощения  $U = 12.8 \text{ эВ}$ , что близко к ширине запрещенной зоны в LiF, которая оценивается в  $13.5 \text{ эВ}$  [30]. На длине волны среднего ИК диапазона прямой канал генерации экситонов в LiF является многофотонным процессом. В настоящее время модели прямого канала генерации экситонов неизвестны. При энергии экситонного поглощения, близкой к ширине запрещенной зоны, можно принять, что функции, описывающие скорость генерации экситонов  $W_{ex}(|A|)$  и скорость полевой ионизации  $W_E(|A|)$ , совпадают. Уравнения

(2a) и (2b) описывают уменьшение скорости полевой ионизации с образованием электронов и скорости прямой генерации экситонов при увеличении их суммарной концентрации вследствие убыли невозбужденных анионов в кристаллической решетке. Параметр  $\alpha$  в (2a) и (2b), определяющий относительный вклад экситонного и электронно-дырочного каналов генерации ЦО, принимает значения от нуля до единицы;  $\alpha = 0$  соответствует формированию ЦО только по электронно-дырочному каналу, тогда как  $\alpha = 1$  – только по экситонному.

Приращение концентрации ЦО  $\delta \rho_c(r)$ , создаваемое одним импульсом, пропорционально сумме накопленных за время прохождения импульса концентраций электронно-дырочных пар  $\delta \rho_{eh}(r)$  и экситонов  $\delta \rho_{ex}(r)$ , соответствующих двум каналам возбуждения электронной подсистемы, вклады которых можно считать равными:

$$\delta \rho_c = h(\delta \rho_{eh} + \delta \rho_{ex}), \quad (3)$$

где  $h < 1$  – коэффициент трансформации электронно-дырочных пар и экситонов в приращение концентрации ЦО.

При насыщении концентрация ЦО  $\rho_c^j(r)$ , накопленная после воздействия  $j$ -го импульса, представляется в следующем виде:

$$\rho_c^j = \rho_c^{j-1} + \delta \rho_c \left( 1 - \frac{\rho_c^{j-1}}{\rho_{c_{\max}}} \right). \quad (4)$$

После умножения на  $\beta$  и использования (1) выражение (4) принимает вид

$$\Delta n_c^j = \Delta n_c^{j-1} + \delta n_c \left( 1 - \frac{\Delta n_c^{j-1}}{\Delta n_{c_{\max}}} \right), \quad (5)$$

где  $\delta n_c = \beta \delta \rho_c$ ,  $\Delta n_c^{j-1} = \beta \rho_c^{j-1}$  и  $\Delta n_{c_{\max}} = \beta \rho_{c_{\max}}$  – приращение показателя преломления после воздействия первого и  $j - 1$  импульсов и при насыщении в условиях многоимпульсного возбуждения соответственно.

Согласно экспериментам, выполненным в [31], после воздействия около десяти импульсов излучения на  $\lambda = 3100 \text{ нм}$  концентрация ЦО близка к насыщению и, соответственно, приращение  $\Delta n_c^{j < 10}$  близко к  $\Delta n_{c_{\max}}$ . При насыщении (5) вклад отдельного импульса  $\delta n_c (1 - \Delta n_c^{j-1} / \Delta n_{c_{\max}})$  в суммарное приращение уменьшается с увеличением его номера  $j$ . Изменение показателя преломления, накопленное после десятого импульса, близко к насыщенному ( $\Delta n_c^{j=10} \cong \Delta n_{c_{\max}}$ ), если приращение от первого импульса

$$\delta n_c = 0.1 \Delta n_{c_{\max}}. \quad (6)$$

Отсюда, в соответствии с (1), (3), при заданном максимальном приращении показателя преломления  $\Delta n_{c_{\max}}$  следует оценка для произведения введенных параметров  $\beta h$ :

$$\beta h = \frac{0.1 \Delta n_{c_{\max}}}{\delta \rho_{eh} + \delta \rho_{ex}}, \quad (7)$$

где  $\delta \rho_{eh}$  и  $\delta \rho_{ex}$  – средневзвешенные концентрации электронно-дырочных пар и экситонов, полученные численным решением уравнений (2a), (2b). Следует отметить, что произведение параметров  $\beta h$  определяет приращение показателя преломления  $\delta n_c$  и, соответственно, скорость

выхода на насыщение показателя преломления  $\Delta n_{c_{\max}}$  при увеличении числа импульсов. Однако численное значение  $\beta h$  не влияет на качественную картину процесса модификации.

Максимальное приращение показателя преломления в LiF при «окрашивании» зависит от спектрального диапазона, конкретных условий окрашивания и может достигать  $10^{-2}$ – $10^{-4}$ . В работе [19] измеренное в спектральном диапазоне 600–850 нм увеличение показателя преломления LiF, окрашенного пучком электронов, достигало 0.05. Для LiF, окрашенного фемтосекундными лазерными импульсами, приращение показателя преломления согласно оценкам, выполненным в [32], составило порядка  $10^{-4}$ , тогда как в соответствии с измерениями в [33] по наведенной дифракционной решетке оно достигает 0.01. Результаты эксперимента, представленные на рис. 1, свидетельствуют о формировании волноводной структуры, увеличении ее протяженности с ростом числа импульсов и о существовании на выходе из нее СП с характерными осцилляциями, наведенными ЦО. При керровской нелинейности проявление волноводного захвата излучения возможно, если в наведенной структуре положительное приращение показателя преломления не меньше изменения, вызванного нелинейностью. Последнее превышает 0.02 при пиковой интенсивности излучения примерно  $3 \times 10^{14}$  Вт/см<sup>2</sup>, достигаемой в случае пространственно-временной компрессии импульса и образования СП. В настоящей работе формирование микромодификации в LiF численно исследовано при максимальном приращении показателя преломления  $\Delta n_{c_{\max}} = 0.025$  для насыщенной концентрации  $\rho_{c_{\max}}$  стабильных ЦО.

В приближении медленно меняющейся амплитуды распространение  $j$ -го импульса в системе координат, бегущей с групповой скоростью, имеет при АДГС следующий вид:

$$2i \frac{\partial A^j}{\partial z} = \left[ \frac{\Delta_1}{k_0} + k_2 \frac{\partial^2}{\partial \tau^2} + \frac{2k_0}{n_0} (n_2 I^j + \Delta n_p^j + \Delta n_c^{j-1}) - i \frac{U}{I^j} \left( \frac{\partial \rho_c^j}{\partial \tau} + \frac{\partial \rho_{ex}^j}{\partial \tau} \right) \right] A^j. \quad (8)$$

Здесь  $A^j(r, \tau)$  – комплексная амплитуда  $j$ -го импульса (индекс  $j$  в (8) и других выражениях обозначает номер импульса), представляемая как функция пространственной координаты  $r$  и «бегущего» времени  $\tau$ , связанного с лабораторным временем  $t$  соотношением  $\tau = t - zn_0/c$  ( $n_0 = 1.363$  – линейный показатель преломления,  $c$  – скорость света в вакууме). Концентрации свободных электронов  $\rho_c^j$  и экситонов  $\rho_{ex}^j$  в (8) являются функциями координат  $r$  и бегущего времени  $\tau$ , для которых справедливы уравнения (2а), (2б) при формальной замене  $t$  на  $\tau$ . Оператор  $\Delta_1$  – лапласиан по поперечным координатам;  $k_0 = \omega_0 n_0/c$  – волновое число на центральной частоте  $\omega_0$ , соответствующей длине волны в вакууме 3200 нм;  $n_2 = 8.1 \times 10^{-17}$  см<sup>2</sup>/Вт – коэффициент кубической нелинейности;  $k_2 = |\partial^2 k / \partial \omega^2|_{\omega=\omega_0} = 296$  фс<sup>2</sup>/мм – модуль коэффициента дисперсии групповой скорости;  $I^j(r, \tau) = \frac{1}{2} c_0 n_0 \epsilon_0 |A^j(r, \tau)|^2$  – интенсивность  $j$ -го импульса;  $\Delta n_c^{j-1}(r)$  – суммарное приращение показателя преломления, наведенное предыдущими  $j - 1$  импульсами;  $U = 12.8$  эВ – энергия экситонного поглощения. Уравнение (8) описывает дифракцию, дисперсию во втором приближении, керровскую и плазменную нелинейности для текущего импульса, реф-

ракцию на модификации показателя преломления и потери

$$i \frac{U}{I^j} \left( \frac{\partial \rho_c^j}{\partial \tau} + \frac{\partial \rho_{ex}^j}{\partial \tau} \right),$$

связанные с образованием свободных электронов и экситонов. Показатель преломления лазерной плазмы  $\Delta n_p^j(r, \tau)$ , созданной  $j$ -м импульсом, определяется концентрацией свободных электронов  $\rho_c^j(r, \tau)$ :

$$\Delta n_p^j(r, \tau) = - \frac{e^2 \rho_c^j(r, \tau)}{2n_0 \omega_0^2 m_e \epsilon_0}, \quad (9)$$

где  $e$  и  $m_e$  – заряд и масса электрона;  $\epsilon_0$  – электрическая постоянная. Заметим, что экситоны, в отличие от электронов, не дефокусируют излучение.

Замкнутая система уравнений (2)–(9) с заданным пространственно-временным профилем воздействующего излучения описывает процесс модификации LiF при накоплении ЦО, наведенных импульсным излучением. В результате решения уравнений (2) для концентрации свободных электронов  $\rho_c(r, \tau)$  и экситонов  $\rho_{ex}(r, \tau)$  в световом поле, использования условий (3)–(7), описывающих накопление концентрации ЦО и приращение показателя преломления в условиях насыщения, а также решения уравнений нелинейной оптики (8), (9) для амплитуды поля при керровской и плазменной нелинейности определяется пространственно-временное изменение амплитуды импульса в LiF и показателя преломления среды с увеличением числа воздействующих импульсов.

Коэффициент  $\alpha$ , пропорциональный относительному вкладу экситонного канала генерации ЦО, является свободным параметром модели, поскольку оценки относительного вклада различных каналов генерации ЦО в кристалле LiF отсутствуют. В случае воздействия излучения среднего ИК диапазона при мощности, незначительно превышающей критическую мощность самофокусировки, может преобладать экситонный канал формирования ЦО без генерации плазмы в филamente. Бесплазменный режим образования ЦО зарегистрирован в [31] по филементам, в которых ограничение интенсивности импульса (intensity clamping) происходит не в результате образования плазмы, а вследствие нелинейных потерь при многофотонном поглощении в экситонной полосе LiF. Для оценки влияния параметра  $\alpha$  численно рассмотрено приращение показателя преломления после воздействия одного импульса  $\Delta n_c^{j=1}(r)$  при образовании ЦО только по электронно-дырочному каналу ( $\alpha = 0$ ), а также только по экситонному ( $\alpha = 1$ ). В результате решения системы (2)–(9) в цилиндрических координатах  $r = (r, z)$  получено, что при генерации плазмы ( $\alpha = 0$ ) после воздействия одного импульса образуется последовательность двух разнесенных областей модификации (рис.3,а), что противоречит результатам эксперимента (рис.3,б). При  $\alpha = 1$ , соответствующем наличию только прямого канала создания экситонов, после воздействия одного импульса образуется распределение наведенного изменения показателя преломления  $\Delta n_c^{j=1}(r)$  (рис.3,б), близкое к зарегистрированному экспериментально треку люминесценции (рис.3,в). При этом спектр импульса, рассчитанный в модели с экситонным каналом генерации ЦО, близок к зарегистрированному в [28].

Проведенный анализ позволяет предположить, что в образовании структуры из ЦО доминирует экситонный

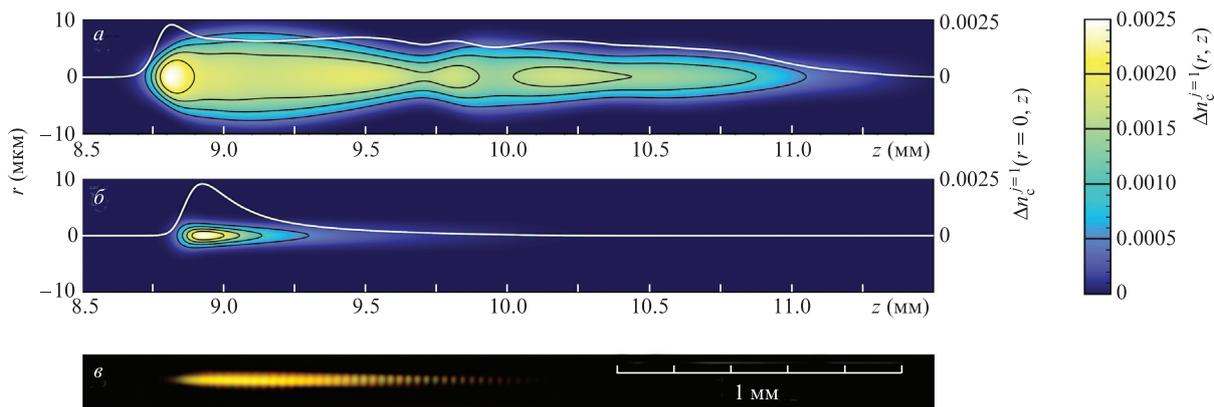


Рис.3. Тоновые картины поперечного распределения приращения показателя преломления  $\Delta n_c^{j=1}(r, z)$  и изменение приращения на оси  $\Delta n_c^{j=1}(r=0, z)$  (белые линии) вдоль структуры из ЦО, наведенной в LiF после воздействия одного импульса, полученные численно на основе модели фотовозбуждения электронной подсистемы (а), модели прямого создания экситонов (б) и экспериментально зарегистрированные треки люминесцентного излучения после воздействия одного импульса (в). Начальный радиус пучка импульсного излучения на половине высоты профиля интенсивности 120 мкм, длина волны 3200 нм, длительность импульса 100 фс, энергия  $W = 25$  мкДж. Импульс распространяется слева направо.

канал и для численного исследования процесса ее формирования применима модель, включающая уравнения (2)–(9) при  $\Delta n_p^j(r, \tau) = 0$  и  $\alpha = 1$ .

#### 4. Численное исследование формирования волновода при генерации ЦО в LiF

Процесс накопления модификаций среды исследован при воздействии коллимированного излучения в виде последовательности импульсов гауссовой формы с осесимметричным начальным профилем интенсивности:

$$A(r, z = 0, \tau) = A_0 \exp\left(-\frac{r^2}{2r_0^2} - \frac{\tau^2}{2\tau_0^2}\right), \quad (10)$$

где  $A_0$  – начальная пиковая амплитуда светового поля;  $r_0$  и  $\tau_0$  – начальные радиус пучка и длительность импульса, определяемые по уровню  $e^{-1}$ . Рассматривается волновой пакет (10) на  $\lambda = 3200$  нм с параметрами, близкими к экспериментальным:  $r_0 = 72$  мкм (соответствует диаметру пучка 120 мкм (FWHM));  $\tau_0 = 60$  фс (соответствует длительности 100 фс (FWHM)); энергия импульсов  $W = 25$  мкДж. При этом пиковая мощность импульса  $P_{\text{peak}} = 230$  МВт, что составляет  $1.7P_{\text{cr}}$ , где  $P_{\text{cr}} = 139$  МВт – критическая мощность стационарной самофокусировки в LiF. Для рассматриваемого излучения волновые параметры близки:  $L_{\text{diff}} \sim L_{\text{disp}}$ , где дифракционная длина  $L_{\text{diff}} = 1.4$  см, дисперсионная длина  $L_{\text{disp}} = 1.2$  см, и в условиях АДГС происходит согласованная компрессия волнового пакета в пространстве и времени [34]. В численном исследовании последовательно для каждого импульса осуществлялось решение системы уравнений (2)–(10) при  $\Delta n_p^j(r, z, \tau) = 0$  и  $\alpha = 1$ , в результате которого для LiF определялись пространственные распределения концентрации ЦО  $\rho_c^j(r, z)$  и приращения показателя преломления  $\Delta n_c^j(r, z)$ , накопленные после  $j$ -го импульса, распределения плотности энергии (флюенс)

$$F'(r, z) = \frac{c_0 n \epsilon_0}{2} \int_{-\infty}^{\infty} |A^j(r, z, \tau)|^2 d\tau$$

в импульсах, распространяющихся в наведенной структуре.

Для сравнения полученных результатов с данными эксперимента, в котором регистрируется суммарный сигнал люминесценции в направлении, перпендикулярном оси наведенной структуры, вычислялось интегральное приращение показателя преломления по одной из поперечных координат:

$$\eta^j(y, z) = \int_{-\infty}^{\infty} \Delta n_c^j(\sqrt{x^2 + y^2}, z) dx. \quad (11)$$

Процесс накопления модификации среды при воздействии последовательности 200 импульсов иллюстрирует рис.4, где с помощью тоновых картин показаны относительные распределения  $\hat{\eta}^j(y, z) = \eta^j(y, z)/w$  для  $j$  от 1 до 200. Нормировочный коэффициент  $w = \max|\eta^{j=200}(y, z)|$ , равный максимальному значению в интегральном приращении  $\eta^{j=200}(y, z)$ , введен для удобства сравнения величин. При этом первый импульс распространяется в невозмущенной среде, а следующие, начиная со второго, – в структуре с модифицированным показателем преломления, созданной предыдущими импульсами.

Видно, что модификация в LiF начинается на расстоянии  $z \approx 8.8$  мм, на котором интенсивность излучения возрастает при филаментации. Вследствие согласованного сжатия волнового пакета в пространстве и времени в керровской среде при АДГС расстояние до старта филаментации меньше расстояния стационарной самофокусировки пучка непрерывного излучения  $z_{\text{st}} \approx 9.2$  мм, оцениваемого по формулам Марбургера – Таланова [7, 35].

С увеличением числа импульсов приращение показателя преломления возрастает, начиная насыщаться на оси при  $j > 10$ . Увеличение протяженности наведенной модификации в направлении распространения импульса значительно больше, чем во встречном направлении (рис.4). Такой характер наведенного изменения показателя преломления связан с тем, что протяженность хвостовой части наведенной структуры, в которой убывает приращение, значительно больше ее переднего фронта, и при накоплении модификации увеличение протяженности структуры происходит в основном в ее хвостовой части при возрастании показателя преломления вплоть до насыщения. При большем числе импульсов ( $j > 50$ ) приращение показателя на оси  $\Delta n_c^j(r=0, z)$  изменяется с рас-

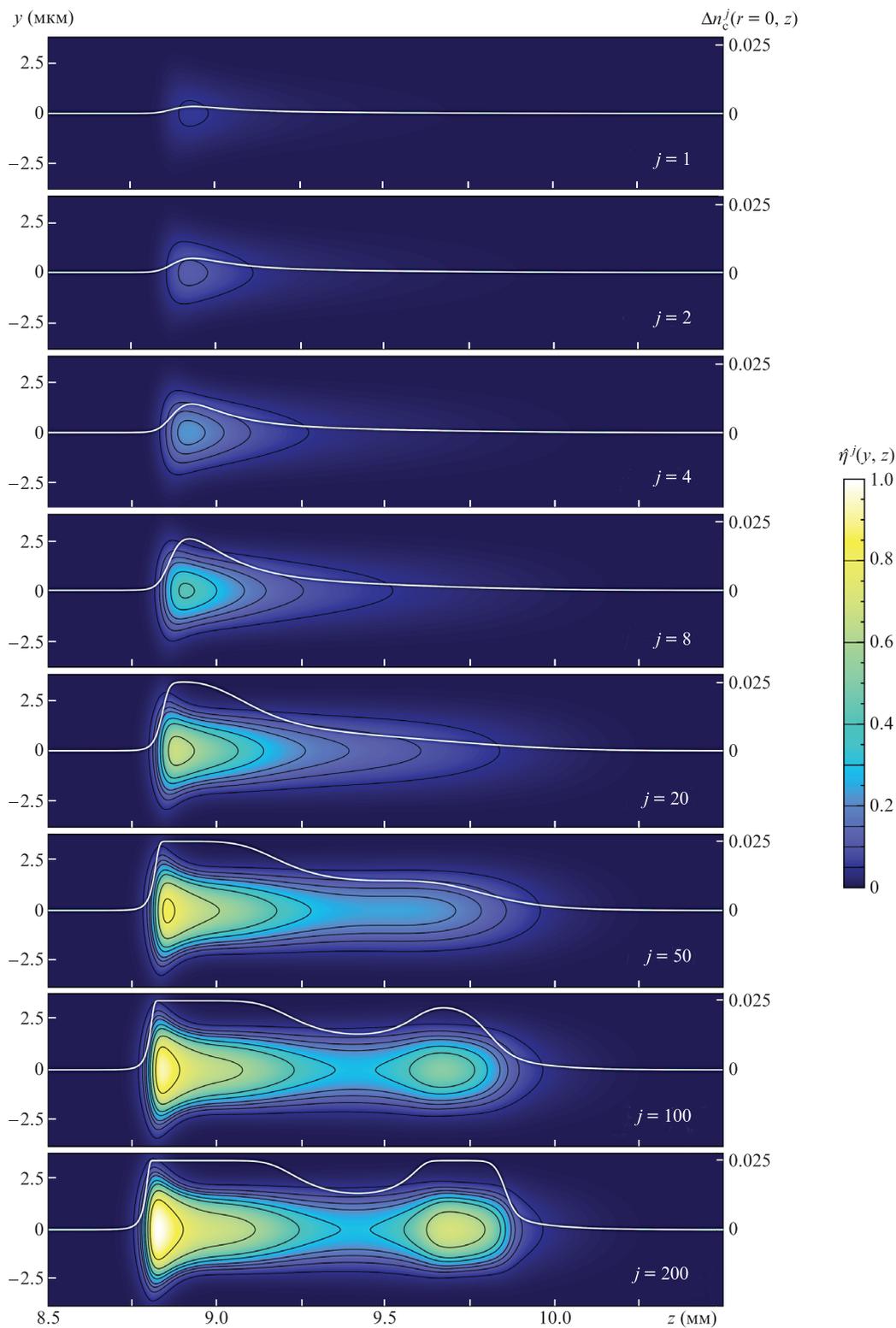


Рис.4. Тоновые картины поперечного распределения относительного приращения показателя преломления  $\hat{\eta}^j(y, z) = \eta^j(y, z) / \max\{\eta^{j=200}(y, z)\}$ , где  $\max\{\eta^{j=200}(y, z)\}$  – максимальное интегральное приращение  $\eta^j(y, z)$  при  $j = 200$ . Черные линии равного уровня ( $\hat{\eta}^j(y, z) = \text{const}$ ) на плоскости  $(y, z)$  соответствуют значениям 0.05, 0.1, 0.15, 0.2, 0.3, 0.4, 0.6 и 0.8. Белыми линиями показаны приращения показателя преломления на оси  $\Delta n_c^j(r = 0, z)$  вдоль структуры из ЦО, наведенной в LiF при увеличении числа воздействующих импульсов  $j$  от 1 до 200 при  $\Delta n_{cm} = 0.025$ . Начальный радиус пучка импульсного излучения на половине высоты профиля интенсивности 120 мкм, длина волны 3200 нм, длительность импульса 100 фс, энергия  $W = 25$  мкДж. Импульсы распространяются слева направо.

стоянием немонотонно (рис.4), что связано с уменьшением скорости приращения концентрации экситонов при значительном снижении энергии излучения, вызванном потерями при их образовании. В импульсах с  $j > 100$  по-

тери энергии при образовании ЦО в начале распространения снижаются вследствие насыщения концентрации ЦО. При дальнейшем распространении плотность энергии (флюенс)  $F'(r, z)$  на оси возрастает вследствие кер-

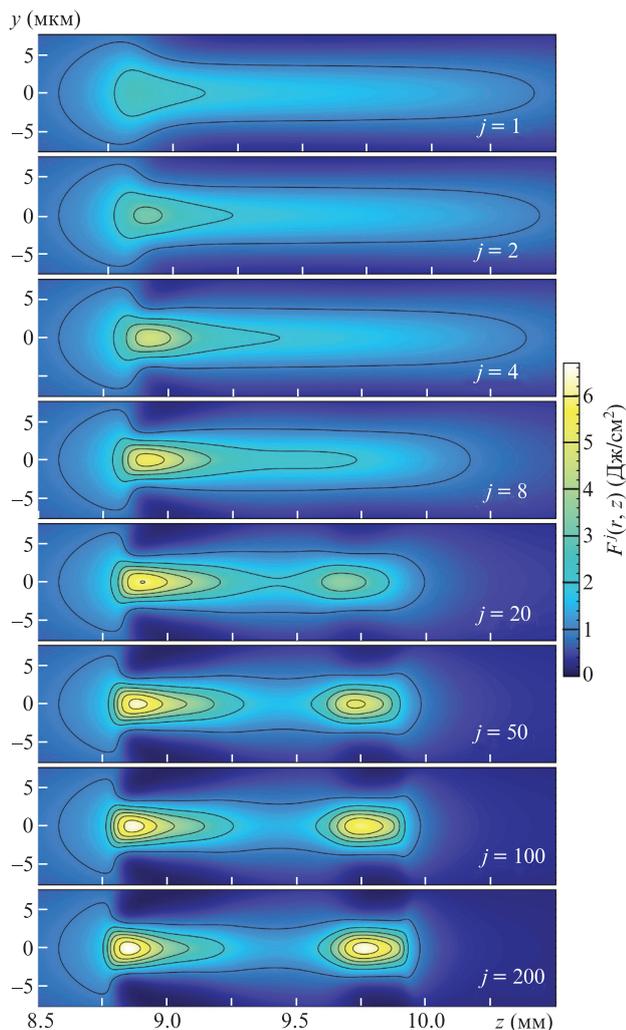


Рис.5. Распределение флюенса  $F^j(r, z)$  при увеличении числа воздействующих импульсов  $j$  от 1 до 200 при  $\Delta n_{\text{сmax}} = 0.025$ . Черные линии равного уровня  $F^j(r, z) = \text{const}$  нанесены с шагом 1 Дж/см<sup>2</sup>. Начальный радиус пучка импульсного излучения на половине высоты профиля интенсивности 120 мкм, длина волны 3200 нм, длительность импульса 100 фс, энергия  $W = 25$  мкДж. Импульсы распространяются слева направо.

ровской самофокусировки (рис.5), из-за чего приращение показателя преломления вновь увеличивается вплоть до насыщения. Таким образом, в условиях поглощения энергии импульса при образовании ЦО в LiF возникает эффект рефокусировки, подобный наблюдаемому в фемтосекундном филаменте при сжатии пучка излучения, дефокусированного наведенной лазерной плазмой в отсутствие поглощения [6].

Процесс накопления модификации в условиях насыщения приводит к изменению профиля поперечного сечения структуры при увеличении числа импульсов  $j$ . На рис.6 показано радиальное распределение приращения показателя преломления для различного числа импульсов, от 1 до 200, при  $z = 8.9$  мм. Приращение  $\Delta n_c^j$  возрастает наиболее быстро после первых импульсов (до  $j < 20$ ) и замедляется с приближением к насыщению. Распределение приращения в поперечном сечении пучка имеет форму, близкую к гауссовой, до достижения насыщения. С ростом приращения при увеличении числа импульсов до  $j > 20$  его радиальное распределение вследствие насыщения принимает столообразную форму. Диаметр струк-

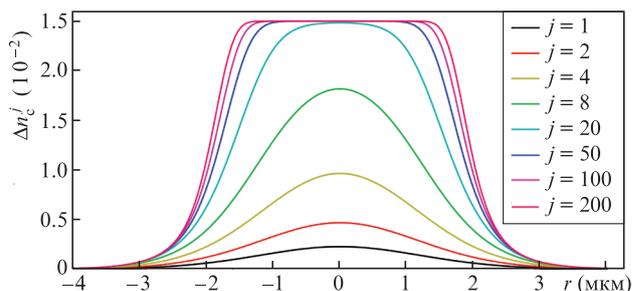


Рис.6. Поперечное распределение приращения показателя преломления  $\Delta n_c^j(r, z)$  при  $z = 8.9$  мм в структуре, наведенной различным числом импульсов  $j$  (от 1 до 200) при  $\Delta n_{\text{сmax}} = 0.025$ . Начальный радиус пучка импульсного излучения на половине высоты профиля интенсивности 120 мкм, длина волны 3200 нм, длительность импульса 100 фс, энергия  $W = 25$  мкДж.

туры, наведенной 200 импульсами, составляет более 4 мкм по уровню  $e^{-1}$ .

Влияние ЦО на распространение импульса иллюстрирует рис.7, где на двух характерных расстояниях представлены пространственно-временные распределения интенсивности излучения  $I^{j=201}(r, \tau)$  в 201-м импульсе, распространяющемся в структуре, наведенной предшествующими 200 импульсами. Распределения нормированы на начальную пиковую интенсивность излучения  $I_0$ . Видно, что в наведенной структуре, несмотря на отсутствие градиента показателя преломления в приосевой области, возникает волноводный захват излучения при отражении от ее границ (рис.7,а). На расстоянии  $z = 9.0$  мм, где структура сформировалась (см. рис.4), излучение локализуется

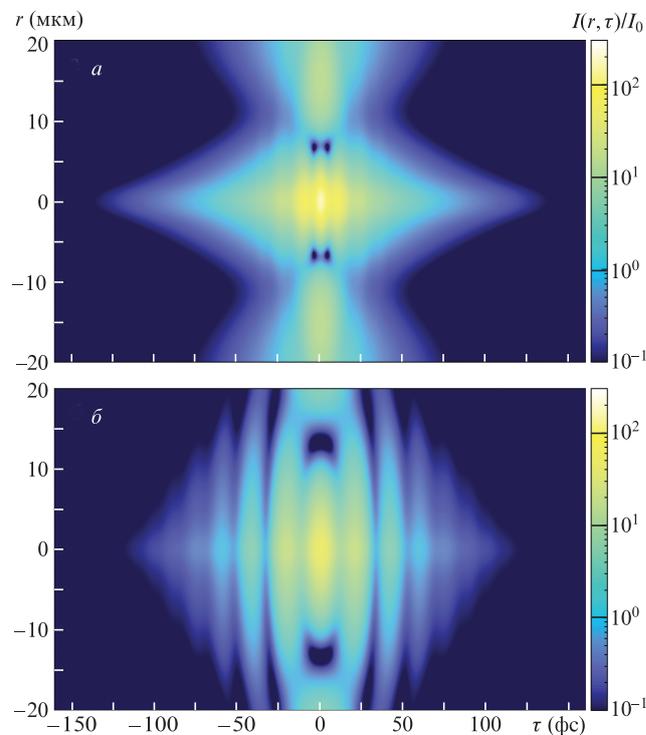


Рис.7. Пространственно-временное распределение относительной интенсивности излучения  $I^{j=201}(r, t)/I_0$  в 201-м импульсе на расстояниях  $z = 9.0$  (а) и 9.4 мм (б) в структуре, наведенной при накоплении воздействия 200 импульсов и  $\Delta n_{\text{сmax}} = 0.025$ . Начальный радиус пучка импульсного излучения на половине высоты профиля интенсивности 120 мкм, длина волны 3200 нм, длительность импульса 100 фс, энергия  $W = 25$  мкДж.

вблизи оси в области диаметром около 8 мкм. При этом импульс сохраняет симметричную форму и в его центре с наиболее высокой интенсивностью сжатие в пространстве дополняется нелинейной компрессией излучения во времени вследствие АДГС. Аберрационный характер пространственно-временной компрессии приводит к образованию в излучении системы интерференционных максимумов при отражении от границ структуры, что особенно заметно на расстоянии  $z = 9.4$  мм при расходимости излучения на выходе из первой части наведенной структуры и ослаблении керровской нелинейности (рис.7,б).

### 5. Влияние флуктуации энергии импульсов на формирование волновода

В экспериментах с облучением кристаллов LiF серий импульсов при непрерывном перемещении кристалла в поперечном направлении было замечено, что расстояние от входной поверхности до создаваемых структур из ЦО случайным образом меняется от импульса к импульсу вследствие флуктуации их энергии [25]. Для анализа влияния флуктуации энергии импульсов на формирование структур было проведено моделирование процесса накопления модификации показателя преломления при воздействии последовательности импульсов со случайной меняющейся энергией. Число импульсов в моделируемой последовательности составляло 200. Начальная энергия импульсов задавалась случайной в соответствии с нормальным распределением плотности вероятности со средним значением  $\bar{W} = 25$  мкДж и среднеквадратичным отклонением (СКО) 5%. Как и раньше, начальный радиус пучка импульсного излучения на половине высоты профиля интенсивности составлял 120 мкм, длительность импульса 100 фс, длина волны 3200 нм. При этом, согласно оценкам по формуле Марбургера–Таланова, расстояние от входной поверхности образца до старта филамента случайно меняется с СКО около 0.8 мм. Результат расчетов иллюстрирует рис.8,а, где приведена тоновая

картина распределения относительного приращения показателя преломления  $\hat{\eta}^j(y, z) = \eta^j(y, z) / \max\{\eta^j(y, z)\}$  после воздействия 200 импульсов ( $j = 200$ ) с флуктуацией энергии. Здесь  $\max\{\eta^j(y, z)\}$  – максимальная величина интегрального приращения  $\eta^{j=200}(y, z)$ , так что значения  $\hat{\eta}^j(y, z)$  не превышают единицы. Для сравнения на рис.8,б в таком же масштабе показано распределение  $\hat{\eta}^j(y, z)$  для последовательности импульсов с постоянной энергией  $W = 25$  мкДж. Видно, что при учете флуктуаций энергии импульса (рис.8,а) вид наведенного канала качественно меняется, его структура приближается к зарегистрированной в эксперименте (см. рис.1). Смещение начала наведенного канала в направлении, встречном к распространению излучения, как и в эксперименте, составляет около 1 мм (см. рис.2). Модификация вдоль канала меняется немонотонно, его протяженность значительно увеличивается по сравнению со случаем отсутствия флуктуаций (рис.8,б).

### 6. Заключение

Сформулируем основные результаты работы.

1. При многоимпульсном режиме филаментации в кристалле LiF фемтосекундного лазерного излучения среднего ИК диапазона формируется протяженный волновод в результате накопления модификации кристалла при генерации ЦО в условиях насыщения их концентрации. Длина волновода возрастает с увеличением числа воздействующих импульсов как в направлении распространения излучения, так и во встречном направлении, достигая около 5 мм при экспозиции в несколько тысяч импульсов.

2. Изменение показателя преломления в LiF происходит при накоплении ЦО в условиях насыщения их концентрации, флуктуации энергии импульсов и волноводного захвата излучения структурой, наведенной импульсами.

3. Предложенная модель формирования волновода в LiF, включающая как прямой экситонный, так и

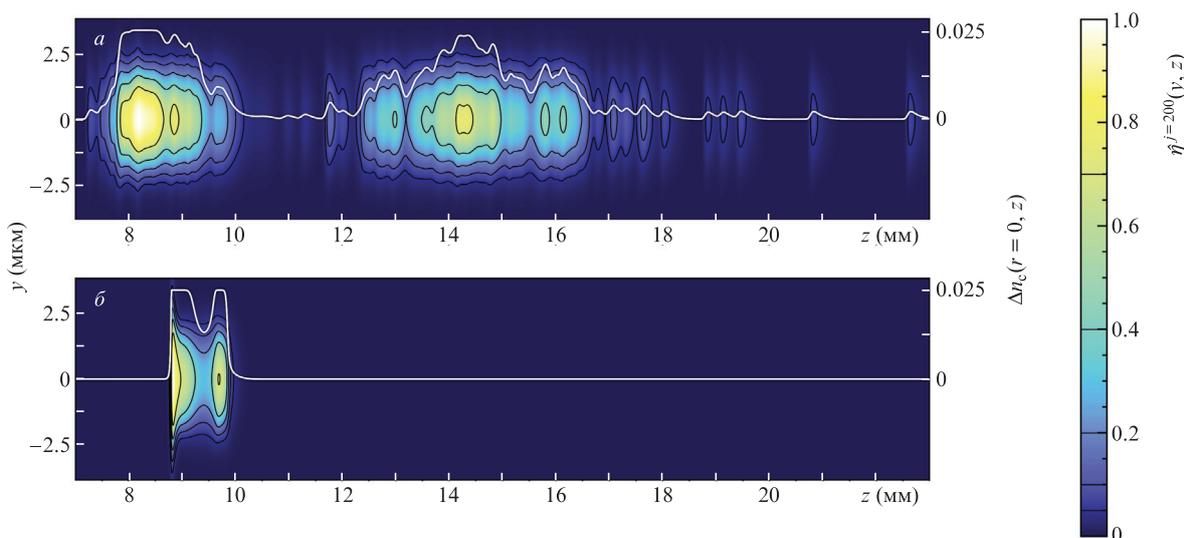


Рис.8. Тоновая картина распределения относительного приращения показателя преломления  $\hat{\eta}^j(y, z) = \eta^j(y, z) / \max\{\eta^j(y, z)\}$  для структуры, наведенной 200 импульсами, энергия которых являлась случайной величиной с нормальным законом распределения при СКО 5% и среднем значении  $\bar{W} = 25$  мкДж (а), а также картина распределения  $\hat{\eta}^j(y, z)$  при постоянной энергии импульсов  $W = 25$  мкДж (б). Черные линии равного уровня  $\hat{\eta}^j(y, z) = \text{const}$  соответствуют 0.05, 0.1, 0.2, 0.4, и 0.7. Белыми линиями показаны приращения показателя преломления на оси  $\Delta n_c(r = 0, z)$ .

электронно-дырочный каналы генерации ЦО, описывает основные процессы изменения показателя преломления при генерации долгоживущих ЦО при многоимпульсной экспозиции. Модель бесплазменного прямого канала создания экситонов воспроизводит модификацию показателя преломления с увеличением числа импульсов, близкую к зарегистрированной экспериментально в треках люминесценции ЦО. В рамках этой модели показатель преломления в волноводе при многоимпульсной экспозиции меняется немонотонно вдоль оси, его поперечное распределение имеет столбобразную форму диаметром более 4 мкм, что приводит к локализации излучения на оси при отражении от границ волновода. Флуктуации энергии воздействующих импульсов приводят к существенному увеличению длины волновода во встречном направлении вследствие сокращения среднего расстояния до его начала и в попутном направлении вследствие эффекта рефокусировки, наблюдаемого при фемтосекундной филаментации.

Эксперименты, выполненные на уникальной научной установке «Многоцелевой фемтосекундный лазерно-диагностический спектрометрический комплекс» Института спектроскопии РАН, финансировались Российским научным фондом (проект № 18-12-00422). А.В.К. благодарен проекту № 0243-2021-0004 в рамках плана фундаментальных исследований Российской академии наук на период до 2025 г. за финансирование части теоретических исследований (разд.3–5).

- Davis K.M., Miura K., Sugimoto N., Hirao K. *Opt. Lett.*, **21**, 1729 (1996).
- Miura K., Qiu J., Inouye H., Mitsuyu T., Hirao K. *Appl. Phys. Lett.*, **71**, 3329 (1997).
- Nolte S., Will M., Burghoff J., Tuennermann A. *Appl. Phys. A*, **77**, 109 (2003).
- Martinez A., Dubov M., Khrushchev I., Bennion I. *Electron. Lett.*, **40**, 1170 (2004).
- Zagorulko K.A., Kryukov P.G., Larionov Yu.V., Rybaltovskiy A.A., Dianov E.M., Chekalin S.V., Matveets Yu.A., Kompanets V.O. *Opt. Express*, **12**, 5996 (2004).
- Кандидов В.П., Шленов С.А., Косарева О.Г. *Квантовая электроника*, **39**, 205 (2009) [*Quantum Electron.*, **39**, 205 (2009)].
- Чекалин С.В., Кандидов В.П. *УФН*, **183**, 133 (2013) [*Phys. Usp.*, **56**, 123 (2013)].
- Yamada K., Watanabe W., Toma T., Itoh K., Nishii J. *Opt. Lett.*, **26**, 19 (2001).
- Watanabe W., Asano T., Yamada K., Itoh K., Nishii J. *Opt. Lett.*, **28**, 2491 (2003).
- Minoshima K., Kowalevicz A.M., Hartl I., Ippen E.P., Fujimoto J.G. *Opt. Lett.*, **26**, 1516 (2001).
- Chen H., Chen X., Xia Y., Liu D., Li Y., Gong Q. *Opt. Express*, **15**, 5445 (2007).
- Szameitt A., Blömer D., Burghoff J., Pertsch T., Nolte S., Tünnermann A. *Appl. Phys. B*, **82**, 507 (2006).
- Yamada K., Watanabe W., Nishii J., Itoh K. *J. Appl. Phys.*, **93**, 1889 (2003).
- Yamada K., Watanabe W., Li Y., Itoh K., Nishii J. *Opt. Lett.*, **29**, 1846 (2004).
- Cheng Y., Sugioka K., Midorikawa K., Masuda M., Toyoda K., Kawachi M., Shihoyama K. *Opt. Lett.*, **28**, 1144 (2003).
- Chan J.W., Huser T., Risbud S., Krol D.M. *Opt. Lett.*, **26**, 1726 (2001).
- Mao S.S., Quéré F., Guizard S., Mao X., Russo R.E., Petite G., Martin P. *Appl. Phys. A*, **79**, 1695 (2004).
- Gaižauskas E., Mizeikis V., Misawa H., Kudryashov S.I., Zvorykin V.D., Ionin A.A., Juodkazis S. *Proc. SPIE*, **7214**, 72140S-1 (2009).
- Baldacchini G. *J. Lumin.*, **100**, 333 (2002).
- Клингер М.И., Лущик Ч.Б., Машовец Т.В., Холодарь Г.А., Шейнкман М.К., Эланго М.А. *УФН*, **147**, 523 (1985) [*Sov. Phys. Usp.*, **28**, 994 (1985)].
- Lushchik A., Kirm M., Lushchik Ch., Vasil'chenko E. *Nucl. Instrum. Meth. B*, **166-167**, 529 (2000).
- Martynovich E.F., Dresvyansky V.P., Rakevich A.L., Lazareva N.L., Arsentieva M.A., Tyutrin A.A., Bukhtsoozh O., Enkhbat S., Kostyukov P.V., Perminov B.E., Konyashchenko A.V. *Appl. Phys. Lett.*, **114**, 121901 (2019).
- Мартынович Е.Ф., Глазунов Д.С., Григорова А.А., Старченко А.А., Кирпичников А.В., Трунов В.И., Мерзляков М.А., Петров В.В., Пестряков Е.В. *Оптика и спектроскопия*, **105**, 380 (2008) [*Opt. Spectrosc.*, **105**, 348 (2008)].
- Мартынович Е.Ф., Кузнецов А.В., Кирпичников А.В., Пестряков Е.В., Багаев С.Н. *Квантовая электроника*, **43**, 463 (2013) [*Quantum Electron.*, **43**, 463 (2013)].
- Кузнецов А.В., Компанец В.О., Дормидонов А.Е., Чекалин С.В., Шленов С.А., Кандидов В.П. *Квантовая электроника*, **46**, 379 (2016) [*Quantum Electron.*, **46**, 379 (2016)].
- Chekalin S.V., Kompanets V.O., Kuznetsov A.V., Dormidonov A.E., Kandidov V.P. *Laser Phys. Lett.*, **13**, 065401 (2016).
- Чекалин С.В., Компанец В.О., Дормидонов А.Е., Кандидов В.П. *УФН*, **189**, 299 (2019) [*Phys. Usp.*, **62**, 282 (2019)].
- Чекалин С.В., Компанец В.О., Дормидонов А.Е., Кандидов В.П. *Квантовая электроника*, **47**, 259 (2017) [*Quantum Electron.*, **47**, 259 (2017)].
- Келдыш Л.В. *ЖЭТФ*, **47**, 1945 (1965) [*Sov. Phys. JETP*, **20**, 1307 (1965)].
- Rohlfing M., Louie S.G. *Phys. Rev. Lett.*, **81**, 2312 (1998).
- Чекалин С.В., Компанец В.О. *Оптика и спектроскопия*, **127**, 94 (2019) [*Opt. Spectrosc.*, **127**, 88 (2019)].
- Chiamenti I., Bonfigli F., Monteverdi R., Kalinowski H. *J. Microw. Optoelectron. Electromagn. Appl.*, **13**, 47 (2014).
- Kurobori T., Kawamura K., Hirano M., Hosono H. *J. Phys.: Condens. Matter.*, **15**, L399 (2003).
- Залозная Е.Д., Компанец В.О., Дормидонов А.Е., Чекалин С.В., Кандидов В.П. *Квантовая электроника*, **48**, 366 (2018) [*Quantum Electron.*, **48**, 366 (2018)].
- Goldberg V.N., Talanov V.I., Erm R.E. *Radiophys. Quantum Electron.*, **10**, 368 (1967).