

Немонотонность поглощения остро сфокусированного фемтосекундного излучения хром-форстеритового лазера в диэлектрике из-за увеличения степени фотонности процесса ионизации

В. М. Гордиенко, П. М. Михеев¹⁾, В. С. Сырцов

Физический факультет и МЛЦ Московского государственного университета им. М. В. Ломоносова, 119992 Москва, Россия

Поступила в редакцию 7 июля 2005 г.

В режиме острой фокусировки фемтосекундного излучения лазерной системы на хром-форстерите в объем прозрачного диэлектрика обнаружена немонотонность поглощения при увеличении энергии лазерного импульса. Эффект обусловлен изменением фотонности процесса ионизации среды из-за возрастания величины эффективного потенциала ионизации.

PACS: 42.25.Bs, 42.70.Mr

Острая фокусировка фемтосекундного лазерного излучения суб- и микроджоульного уровня энергии в объем прозрачного конденсированного вещества позволяет достичь интенсивности в области перетяжки $\sim 10^{13}$ Вт/см² без пробоя поверхности образца. При мощности лазерного импульса, превышающей критическую мощность самофокусировки, в объеме диэлектрика за счет нарастания интенсивности возникает полевая ионизация вещества, что, в конечном счете, приводит к формированию плазменного канала [1–4]. После прохождения светового импульса энергия электронной компоненты плазмы передается кристаллической решетке вещества и при достаточной доле поглощенной энергии может возникнуть остаточная модификация в объеме диэлектрика. Получаемые таким образом микромодификации представляют интерес для трехмерной записи информации [5] и создания волноводных структур [6–9]. Ключевым параметром, определяющим размеры плазменного канала, является величина поглощенной в диэлектрике энергии лазерного импульса [4, 10]. В известных экспериментальных работах, выполненных с использованием излучения видимого диапазона, зависимость поглощенной энергии от падающей носит монотонный характер [10, 11].

Предметом настоящего письма является экспериментально обнаруженный нами эффект немонотонности поглощения в диэлектрике с ростом энергии острого сфокусированного фемтосекундного лазерного излучения.

В качестве источника излучения использовалось излучение хром-форстеритовой фемтосекундной лазерной системы, генерирующей световые импульсы длительностью около 100 фс на длине волны 1.24 мкм. Энергия импульса изменялась в диапазоне 0.1 ÷ 10 мкДж с помощью нейтральных светофильтров. В качестве объекта исследования использовался кристалл KDP, в объем которого короткофокусной асферической линзой с фокусным расстоянием 2 мм ($F/D \sim 1$) направлялось лазерное излучение. После каждого выстрела кристалл сдвигался на 20 мкм для последующего взаимодействия с немодифицированным объемом. Энергии исходного и прошедшего через кристалл излучений измерялись фотодиодами, а детектор на выходе из кристалла имел апертуру примерно в два раза превышающую диаметр прошедшего лазерного пучка.

Результаты измерений зависимости пропускания лазерной энергии в кристалле KDP от энергии импульса представлены на рис.1. Отметим, что в процессе распространения интенсивного лазерного излучения в кристалле генерировался сигнал второй гармоники с максимальной эффективностью не более 8%, который регистрировался с помощью спектрометра Solar TII SL-40-2-3648USB. Потери основного излучения на генерацию второй гармоники отражены на рис.1 в виде пунктирной линии. Очевидно, их вклад в величину пропускания кристалла незначителен. Использование в эксперименте острой фокусировки излучения в кристалл позволило исключить генерацию суперконтинуума.

Поглощение лазерного излучения в кристалле начинается при энергии импульса ~ 1 мкДж, соответ-

¹⁾e-mail: mikheev@femto.phys.msu.ru

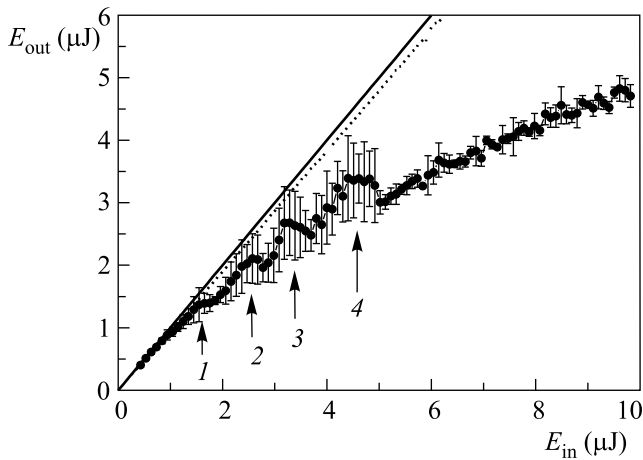


Рис.1. Нелинейное пропускание лазерной энергии в кристалле KDP: ● – экспериментальные данные, сплошная линия соответствует отсутствию поглощения в кристалле, пунктир – пропускание с учетом только потерь на генерацию второй гармоники. Стрелками с цифрами указаны области изменения степени фотонности поглощения

ствующей мощности 10 МВт, которая близка к теоретическому значению критической мощности самофокусировки $P_{cr} = \lambda^2/2\pi n_0 n_2 \approx 7$ МВт ($n_2 = 2.5 \cdot 10^{-16}$ Вт/см² – нелинейный показатель преломления [12], $n_0 = 1.5$). При этом на зависимости нелинейного пропускания световой энергии в кристалле наблюдаются четыре явно выраженных скачкообразных изменения, отмеченных на рис.1 стрелками. Ошибки измерений получены в результате усреднений по 30–40 выстрелам в каждой точке в области энергий 1–5 мкДж, и по 5–10 реализациям в остальном диапазоне.

Для объяснения результатов эксперимента мы использовали следующую модель взаимодействия. Будем считать, что в объеме кристалла KDP излучение распространяется в однородном плазменном канале с постоянной интенсивностью, которая возрастает с увеличением энергии лазерного импульса.

На начальном этапе основные потери энергии в кристалле обуславливаются полевой ионизацией среды [10, 13]. В общем случае эффективность полевой ионизации диэлектрика, включающая многофотонную и туннельную ионизации, описывается общей формулой Келдыша для кристаллических сред [14], в которой параметром среды является эффективный потенциал ионизации:

$$\Delta_{\text{eff}} = \frac{2}{\pi} \Delta \frac{\sqrt{1+\gamma^2}}{\gamma} E \left(\frac{1}{\sqrt{1+\gamma^2}} \right), \quad (1)$$

где Δ – ширина запрещенной зоны кристалла, $E(x)$ – эллиптический интеграл второго рода. Параметр Келдыша γ имеет вид [14]

$$\gamma = \omega \sqrt{m_r \Delta} / (e E_L), \quad (2)$$

где E_L , ω – амплитуда и частота электрического поля, e , m_r – заряд и приведенная масса электрона. Для кристалла KDP величина приведенной массы электрона неизвестна, поэтому в расчетах использовалось значение для другого диэлектрика – плавленого кварца, равное 0.6 массы электрона [2]. Изменение значения приведенной массы электрона приводит к пропорциональному изменению величины интенсивности лазерного излучения и не сказывается на физической сути оценок. Использование общей формулы Келдыша обусловлено необходимостью учета как многофотонной, так и туннельной ионизации среды, поскольку параметр $\gamma \sim 1$ при интенсивности лазерного излучения порядка 10^{13} Вт/см².

Эффективный потенциал ионизации является монотонно возрастающей с увеличением интенсивности лазерного излучения функцией. В свою очередь степень фотонности процесса определяется как

$$N_{ph} = \left[\frac{\Delta_{\text{eff}}}{\hbar \omega} \right] + 1, \quad (3)$$

где квадратные скобки обозначают операцию извлечения целой части числа. Таким образом, степень фотонности процесса с ростом интенсивности излучения в плазменном канале может скачкообразно увеличиваться. Это приводит к резкому падению скорости ионизации и, как следствие, к немонотонной зависимости поглощения лазерного излучения в кристалле. На рис.2а приведены расчеты зависимости объемной скорости полевой ионизации от интенсивности лазерного излучения, выполненные по полной формуле Келдыша для кристалла KDP. Области увеличения степени фотонности отмечены стрелками.

Для кристалла KDP с шириной запрещенной зоны $\Delta \approx 7$ эВ [15] и энергии кванта $\hbar \omega \approx 1$ эВ величина $N_{ph} = 8$. Согласно формулам (1)–(3), с использованием данных, приведенных на рис.2а, первое увеличение степени фотонности до 9 произойдет при интенсивности излучения порядка $0.7 \cdot 10^{13}$ Вт/см², второе – до 10 при $I_3 \sim 1.5 \cdot 10^{13}$ Вт/см², третье – до 11 при $I_4 \sim 2.5 \cdot 10^{13}$ Вт/см² и четвертое – до 12 при $I_5 \sim 3.6 \cdot 10^{13}$ Вт/см². При больших энергиях импульсов интенсивность излучения в плазменном канале стабилизируется [3, 10], что выражается в отсутствии дальнейшего увеличения степени фотонности

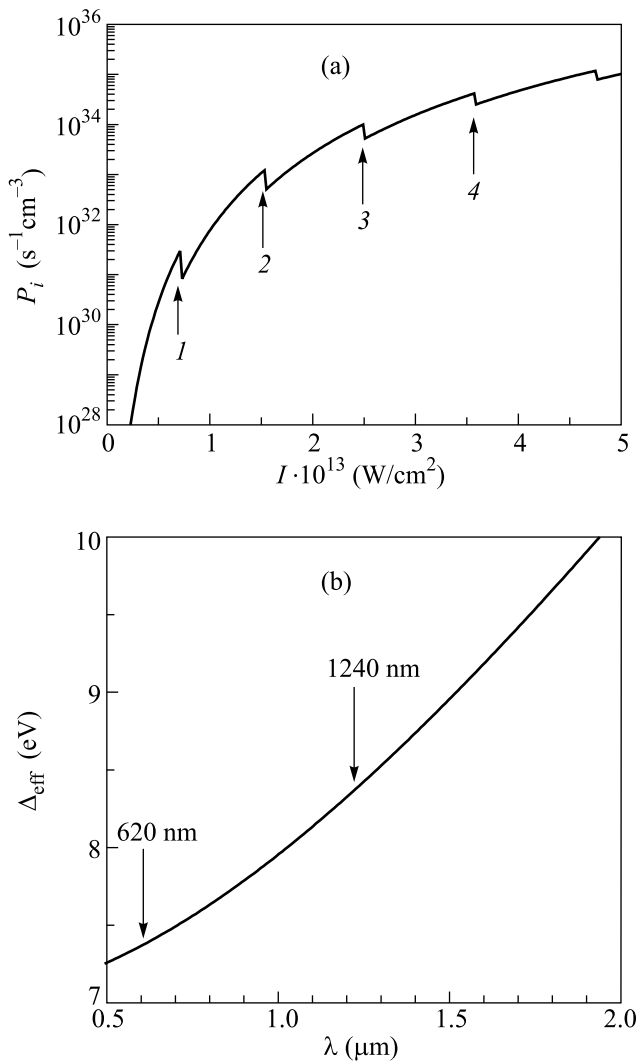


Рис.2. (а) Зависимость объемной скорости ионизации, рассчитанной для кристалла KDP по общей формуле Келдыша, от интенсивности лазерного излучения, (б) зависимость эффективного потенциала ионизации кристалла KDP от длины волны лазерного излучения ($I \sim 10^{13}$ Вт/см², $m_r = 0.6m_e$). Смысл стрелок с цифрами указан в подписи к рис.1

поглощения. Отметим, что в ряде экспериментальных реализаций достигалось существенное подавление поглощения излучения.

Существенное увеличение ошибки измерений в областях увеличения степени фотонности может быть связано, как следует из численных расчетов [11], с изменением интенсивности в плазменном канале. В областях увеличения степени фотонности изменение пропускания должно быть чувствительно к флуктуациям интенсивности. Зависимость на рис.1 имеет сглаженный вид, поскольку была

получена в результате усреднения по большому количеству экспериментальных реализаций.

Как видно из формул (1)–(3), эффективный потенциал ионизации, а следовательно, и степень фотонности процесса сильно зависят от длины волны лазерного излучения (см. рис.2б). То есть для ИК излучения немонотонность нелинейного пропускания кристалла должна быть выражена существенно сильнее по сравнению с излучением видимого диапазона. Немонотонность зависимости поглощенной лазерной энергии от падающей для кристалла KDP не наблюдалась в ранее проведенных нами аналогичных измерениях с использованием остросфокусированного фемтосекундного лазерного излучения видимого диапазона с длиной волны порядка 0.6 мкм [10, 16]. Таких данных нет и в недавно опубликованных результатах экспериментов по взаимодействию остросфокусированного лазерного излучения с плавленным кварцем на длине волны 0.8 мкм [11].

Теоретические оценки подтверждают результаты измерений. Так, для излучения на длине волны 620 нм ($\hbar\omega = 2$ эВ) исходная степень фотонности поглощения в кристалле KDP равна 4. Для первого изменения степени фотонности на единицу до 5 необходима интенсивность лазерного излучения в плазменном канале порядка $3 \cdot 10^{13}$ Вт/см², второе изменение до 6 произойдет при интенсивности порядка 10^{14} Вт/см². В работе [17], а также в проведенных нами экспериментах по формированию плазменных каналов в плавленном кварце и KDP [4, 10] интенсивность лазерного излучения в плазменном канале не превышала $3 \cdot 10^{13}$ Вт/см². Аналогичная ситуация имеет место и для случая с кварцем. Таким образом, при использовании лазерного излучения видимого диапазона возможно наблюдение, в лучшем случае, однократного изменения степени фотонности поглощения.

Согласно формулам (1)–(3), увеличение эффективного потенциала ионизации слабо зависит от ширины запрещенной зоны кристалла, поэтому эффект скачкообразного изменения пропускания лазерного излучения должен носить общий характер. Нами также были проведены измерения пропускания остросфокусированного излучения лазерной системы на хром-форстерите в кристалле LiNbO₃ (см. рис.3). Статистика измерений была аналогична случаю с кристаллом KDP. На зависимости наблюдаются три выраженных скачкообразных изменения пропускания. Исходная степень фотонности ионизации в кристалле LiNbO₃ равна 4. Первое увеличение фотонности процесса до 5 происходит при интенсивности лазерного излучения порядка $5 \cdot 10^{12}$ Вт/см²,

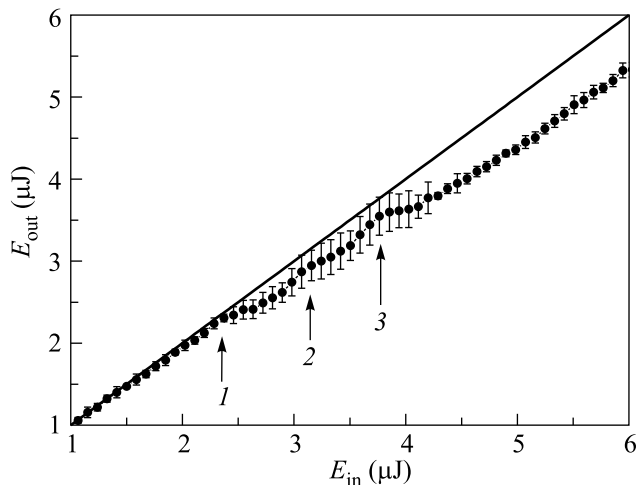


Рис.3. Нелинейное пропускание лазерной энергии в кристалле LiNbO_3 : • – экспериментальные данные, сплошная линия соответствует отсутствию поглощения в кристалле

второе – при $2 \cdot 10^{13}$ Вт/см², а третье соответствует $3.7 \cdot 10^{13}$ Вт/см². При больших энергиях импульса, как и для кристалла KDP, интенсивность в канале стабилизируется, что выражается в отсутствии дальнейшего увеличения степени фотонности процесса.

Зарегистрированный эффект скачкообразного изменения поглощения фемтосекундного инфракрасного лазерного излучения с интенсивностью порядка 10^{13} Вт/см² в прозрачном диэлектрике находится в согласии с теорией Келдыша об увеличении степени фотонности процесса полевой ионизации в кристаллических средах вследствие возрастания эффективного потенциала ионизации в поле интенсивного лазерного излучения.

Более того, изменение степени фотонности процесса ионизации может происходить и в газовых средах, поскольку эффективный потенциал ионизации атома зависит от осцилляторной энергии электрона [14]. Этот факт необходимо учитывать при численном моделировании процесса распространения и filamentации мощного инфракрасного лазерного излучения в атмосфере. В последнем случае уменьшение поглощения излучения в результате увеличения

степени фотонности ионизации в центральной части пучка может привести к изменению динамики формирования канала при распространении излучения.

Работы, выполненные в рамках статьи, поддержаны грантом Российского фонда фундаментальных исследований # 03-02-16973.

1. P. Audebert, Ph. Daguzan, A. Dos Santos et al., *Phys. Rev. Lett.* **73**, 1990 (1994).
2. L. Sudrie, A. Couairon, M. Franco et al., *Phys. Rev. Lett.* **89**, 186601 (2002).
3. V.M. Gordienko, I. A. Makarov, and P.M. Mikheev, *Conf. Program, ICONO/LAT 2005*, May 11-15, St.-Petersburg, p. 63.
4. E. A. Chutko, M. Gordienko, B. A. Kirillov et al., *Laser Physics* **13**, 1102 (2003).
5. Y. Kawata, H. Ishitobi, and S. Kawata, *Opt. Lett.* **23**, 756 (1998).
6. M. Kamata, K. Ohta, M. Obara et al., *Proc. SPIE* **4977**, 394 (2003).
7. J. W. Chan, T. R. Huser, S. H. Risbud et al., *Appl. Phys. Lett.* **82**, 2371 (2003).
8. R.-X. Gao, J.-H. Zhang, L.-G. Zhang et al., *Chin. Phys. Lett.* **19**, 1424 (2002).
9. V. Mizeikis, H.-B. Suna, A. Marcinkevicius et al., *J. of Photochemistry and Photobiology A: Chemistry* **145**, 41 (2001).
10. В. М. Гордиенко, И. А. Макаров, П. М. Михеев и др., *Кв. Электр.* **7** (2005), в печати.
11. A. Couairon, L. Sudrie, M. Franco et al., *Phys. Rev. B* **71**, 125435 (2005).
12. R. A. Ganeev, I. A. Kulagin, A. I. Ryasnyansky et al., *Opt. Comm.* **229**, 403 (2004).
13. A. Kaiser, B. Rethfeld, M. Vicanek et al., *Phys. Rev. B* **61**, 11437 (2000).
14. Л. В. Келдыш, *ЖЭТФ* **47**, 1945 (1964).
15. V. G. Dmitriev, G. G. Gurzadyan, and D. N. Nikogosyan, *Handbook of nonlinear optical crystals*, Berlin, Springer, 1997.
16. V. M. Gordienko, I. A. Makarov, P. M. Mikheev et al., *Proc. SPIE* **5399**, 96 (2004).
17. S. Tzortzakis, L. Sudrie, B. Prade et al., *Phys. Rev. Lett.* **87**, 213902 (2001).