

Эволюция фемтосекундной лазерно-индуцированной плазмы и процессов энергопереноса в микрообъеме SiO_2 , регистрируемых методом генерации третьей гармоники

В. М. Гордиенко, Ф. В. Потёмкин¹⁾, П. М. Михеев

Физический факультет и Международный учебно-научный лазерный центр МГУ им. М.В. Ломоносова
119992, ГСП-2 Москва, Россия

Поступила в редакцию 3 июля 2009 г.

Предложен нелинейно-оптический метод зондирования эволюции плазмы и процессов переноса энергии в микрообъеме прозрачного диэлектрика по пробному сигналу третьей гармоники. Оценено время захвата электронов в ловушки ($t = 150 \pm 80$ фс). На пикосекундном масштабе времен зарегистрировано убывание пробного сигнала третьей гармоники, которое может быть обусловлено изменением восприимчивости третьего порядка $\chi^{(3)}$ образца плавящего кварца, модифицированного лазерным излучением.

PACS: 52.70.Kz, 63.20.Kr, 72.20.Jv

Появление мощных фемтосекундных лазерных систем привело к возможности создания и изучения вещества в экстремальном состоянии [1–3]. При острой фокусировке ($NA \sim 0.4$) 100-фемтосекундного лазерного импульса с энергией всего 1 мкДж в микрообъеме конденсированной среды в фокальной плоскости линзы интенсивность излучения превышает 10^{13} Вт/см². Это приводит к генерации свободных электронов за счет процессов многофотонной, туннельной и ударной ионизации. Концентрация электронов в плазме превышает $5 \cdot 10^{19}$ см⁻³ при темпе ее образования более 10^{32} электр/с. В результате нагрева образовавшихся свободных электронов в поле лазерной волны вследствие взаимодействия с фонами энергия электронов достигает величин 5–10 эВ [4]. После прохождения лазерного импульса происходит релаксация электронной плотности, термализация энергии (передача энергии от электронной в ионную подсистему), формирование и распространение ударной волны и последующее образование остаточной микромодификации в объеме среды [5–7].

В настоящий момент наиболее изученными являются процессы, которые протекают на временах в сотни фемтосекунд, то есть порядка длительности лазерного импульса [8, 9]. Также ведутся исследования параметров “замороженных” лазерно-индуцированных микромодификаций [5]. В то же время процессы релаксации электронной плотности плазмы, сформированной в объеме среды, и передачи энергии от электронной подсистемы в ионный остов

являются наименее изученными, а результаты часто противоречивы [10, 11].

Для исследования динамики этих процессов в настоящей статье предлагается использовать нелинейно-оптический метод зондирования возмущенного состояния среды пробным импульсом сигнала третьей гармоники. Использование такой схемы имеет ряд существенных преимуществ по сравнению с традиционной регистрацией поглощения пробного излучения [8, 9]. Во-первых, процесс генерации третьей гармоники (ГТГ) чувствителен к изменениям структуры среды $\eta_{3\omega} \sim f(\Delta k, [\chi^{(3)}]^2)$ [12] из-за изменения фазовой расстройки Δk в результате модификации показателя преломления среды в плазме и кубической нелинейно-оптической восприимчивости среды $\chi^{(3)}$. Последнее может возникнуть в результате развития процесса модификации исходного вещества в области взаимодействия и др. Напомним, что в изотропной среде сигнал третьей гармоники (ТГ), генерируемый остросфокусированным в ее центр лазерным излучением, равен нулю из-за деструктивной интерференции излучения ТГ до и после фокальной плоскости линзы [12]. Генерация свободных электронов при формировании плазмы в изотропной среде приводит к появлению сигнала ТГ вследствие изменения фазовых соотношений взаимодействующих волн. В дальнейшем этот эффект будем называть нарушением симметрии процесса ГТГ. В результате обеспечивается высокая контрастность регистрируемого сигнала ТГ. Во-вторых, принципиально важным является высокое пространственное разрешение метода, достигаемое при острой фокусировке

¹⁾e-mail: potemkin@automationlabs.ru

($NA \sim 0.4$) излучения в среду: поперечное – порядка длины волны, продольное – менее длины Рэлея, а также высокое временное разрешение, которое меньше длительности импульса падающего излучения ($\tau_{3\omega} \sim \tau_{\text{имп}} \times 3^{-1/2}$). Отметим, что использование длинноволнового лазерного излучения, например системы на Cr:Forsterite с длиной волны 1.24 мкм в качестве пробного, расширяет возможности метода, поскольку ее третья гармоника (413 нм) попадает в область прозрачности большого класса веществ. И, наконец, достаточная для уверенной регистрации в одном импульсе эффективность несинхронного процесса ГТГ достигается за счет использования высокой интенсивности пробного излучения вплоть до 10^{12} Вт/см².

Предметом настоящей работы является диагностика эволюции фемтосекундной лазерно-индуцированной плазмы и процессов передачи энергии в микрообъеме плавленного кварца методом ГТГ пробного импульса на временах от 0.1 до 10 пс.

Экспериментальная схема. В экспериментах использовалось излучение лазерной системы на Cr:forsterite ($\lambda = 1.24$ мкм, $\tau = 140$ фс, $E = 0.1$ – 5 мкДж, контраст излучения по интенсивности ~ 250). Схема эксперимента приведена на рис.1. Пластина $\lambda/2$ (1) с призмой Глана (2)

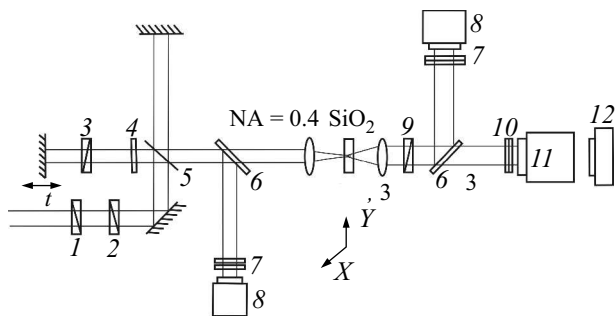


Рис.1. Экспериментальная схема: 1 – пластина $\lambda/2$, 2 – призма Глана, 3 – пластина $\lambda/4$, 4 – нейтральный светофильтр, 5 – делительная пластина 50/50, 6 – делительные пластины, 7 – нейтральные светофильтры, 8 – германиевые фотоприемники, 9 – призма Глана, 10 – полосовой фильтр ($\lambda = 410$ нм, $\Delta\lambda = 10$ нм), 11 – ФЭУ, 12 – ПЗС-камера

использовались для плавного изменения энергии лазерного излучения от 0.1 до 5 мкДж. Далее излучение заводилось в схему интерферометра Майкельсона и с помощью полупрозрачной пластинки направлялось в равных пропорциях в пробный и возбуждающий каналы. Излучение в пробном канале ослаблялось нейтральным светофильтром (4). Энергия пробного импульса выбиралась ниже

порога ионизации исследуемого вещества. В пробном канале с помощью двойного прохода через пластинку $\lambda/4$ (3) плоскость поляризации пробного излучения поворачивалась на $\pi/2$. Излучение пробного и возбуждающего импульсов остро фокусировалось с помощью линзы с числовой апертурой $NA=0.4$ в микрообъеме плавленного кварца (длина перетяжки $L_{\text{пер}} \sim 60$ мкм, диаметр $d_{\text{пер}} \sim 2$ мкм). Излучение на выходе из образца коллимировалось с помощью линзы с $NA=0.4$. Выбор в качестве исследуемого объекта плавленного кварца связан как с наличием литературных данных по ряду его параметров, так и с изотропностью его структуры, которая приводит к отсутствию сигнала третьей гармоники из невозмущенного объема. При возникновении плазмы в микрообъеме плавленного кварца появляется сигнал третьей гармоники, причем ее поляризация совпадает с поляризацией лазерного излучения. Излучение пробного канала дискриминировалось от основного излучения канала с использованием призмы Глана (9). В эксперименте одновременно измерялись энергии падающего основного излучения и прошедшего через образец пробного импульса с помощью германиевых фотоприемников (8), а также энергия третьей гармоники пробного импульса с помощью ФЭУ (11), работающего в токовом режиме, перед которым устанавливался полосовой фильтр $\lambda = 410 \pm 10$ нм (10). Пространственное совмещение пробного и возбуждающего импульсов излучения производилось с помощью переноса изображения фокальной плоскости линзы на ПЗС-матрицу камеры (12). После каждого акта лазерного воздействия на мишень с помощью моторизованных трансляторов осуществлялось перемещение образца в перпендикулярной плоскости с шагом 20 мкм. Изменение задержки между возбуждающим и пробным импульсами излучения достигалось в пробном канале интерферометра Майкельсона за счет изменения положения зеркала с шагом 2.5 мкм (временной сдвиг 7.5 фс), осуществляемого с помощью моторизованного транслятора.

Результаты. Вначале нами был проведен эксперимент по определению порога формирования плазмы в микрообъеме плавленного кварца. В этом случае использовался только основной канал в интерферометре Майкельсона, а призма Глана (9) была ориентирована на пропускание поляризации основного излучения (рис.1).

В эксперименте плавно изменялась энергия падающего излучения, при этом одновременно регистрировались прошедшая через образец плавленного кварца энергия основного излучения и энергия третьей

гармоники. Полученные экспериментальные зависимости представлены на рис.2. Видно, что порог плаз-

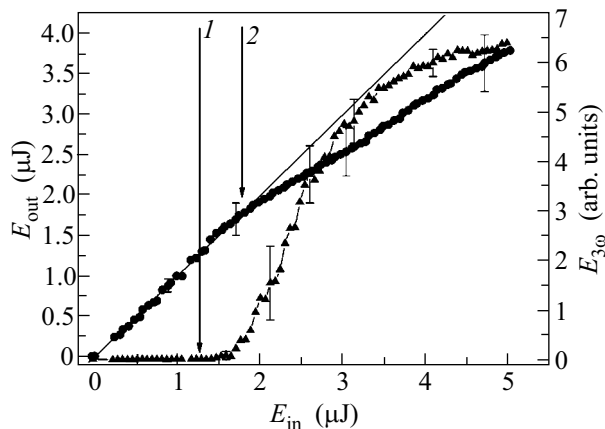


Рис.2. Экспериментальные зависимости прошедшей энергии (●) и сигнала третьей гармоники (▲) в SiO₂ от энергии падающего излучения; 1 – порог плазмообразования по сигналу третьей гармоники, 2 – порог плазмообразования по поглощению, 3 – отсутствие поглощения

мообразования, определенный по нелинейному пропусканию в SiO₂, составляет 1.8 мкДж, а по началу развития процесса ГТГ оказывается 1.4 мкДж. Это обстоятельство подтверждает преимущество использования процесса ГТГ по сравнению с традиционной методикой регистрации нелинейного пропускания. Отметим, что процесс ГТГ чувствителен к изменению электронной плотности уже на начальном этапе формирования плазмы. Таким образом, по исследованию динамики электронной плотности в микрообъеме SiO₂ было установлено, что энергия возбуждающего импульса должна лежать в области от 2 по 5 мкДж. При этом энергия пробного импульса, как отмечалось выше, выбиралась ниже порога ионизации среды и находилась в диапазоне 0.1–1 мкДж.

Эксперименты по исследованию эволюции электронной плотности плазмы в микрообъеме плавленого кварца были проведены при следующих энергиях возбуждающего импульса ($E_{вх} = 2.3, 3, 3.5, 4, 5.3$ мкДж). Полученные экспериментальные результаты представлены на рис.3.

Процесс ГТГ испытывает в плазме влияние двух конкурирующих механизмов. С одной стороны, это возникновение неоднородности (асимметрии), с другой стороны, увеличение фазовой расстройки Δk между основным излучением и сигналом третьей гармоники. Поскольку в плазме показатель преломления среды зависит от электронной плотности n_e следующим образом: $n(\lambda) = n_0(\lambda) - n_e/2n_{cr}(\lambda)$, где $n_{cr}(\lambda)$ – критическая электронная плотность, то фа-

зовую расстройку можно представить в виде $\Delta k \sim \Delta k_0 + (8/9) \times \pi n_e / \lambda n_{cr}$, где $\Delta k_0 = k_3 - 3k_1$. Сначала на временах порядка длительности импульса за счет ионизации происходит генерация электронов плазмы, в микрообъеме конденсированной среды появляются свободные электроны, приводящие к нарушению симметрии процесса ГТГ, и эффективность ГТГ начинает увеличиваться [13] (область 1). На зависимости пропускания среды от временной задержки (рис.3b) область 1 соответствует поглощению лазерной энергии пробного импульса электронами плазмы. Когда концентрация электронов становится уже существенной, $\sim 5 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-3}$ (область 2), несмотря на нарушение симметрии процесса ГТГ, сигнал третьей гармоники начинает уменьшаться в связи с существенным увеличением фазовой расстройки Δk от значения $\Delta k_0 \sim 3400 \text{ см}^{-1}$ (невозмущенный плавленый кварц) до $\Delta k \sim 4500 \text{ см}^{-1}$ при максимальной концентрации свободных электронов $n_e = 5 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-3}$. Минимум сигнала третьей гармоники на стыке областей 2 и 3 соответствует максимальному значению поглощения пробного импульса. После того как световой импульс прошел, созданная в микрообъеме конденсированной среды электронная концентрация начинает уменьшаться (релаксировать) по каналу захвата электронов в ловушки [8, 9], что приводит к уменьшению Δk и возрастанию эффективности ГТГ при сохранении асимметрии процесса (область 3). По мере процесса релаксации и изменения в микрообъеме электронной концентрации асимметричность процесса ГТГ начинает уменьшаться. Это приводит к тому, что в определенный момент, связанный со временем захвата электронов в ловушки, изменение Δk перестает существенно влиять на процесс ГТГ по сравнению с уменьшением асимметрии, и сигнал третьей гармоники начинает уменьшаться (область 4). Сигнал ГТГ в области 3 и 4 (см. рис.3a) характеризуется увеличением пропускания, связанного с уменьшением электронной плотности за счет процессов релаксации. Поведение пробного сигнала третьей гармоники со временем качественно согласуется с расчетом, проведенным нами на основании теоретической модели [12], в которой для расчета изменения фазовой расстройки в области формирования плазмы использовался пространственный профиль электронной плотности, рассчитанный с помощью упрощенной модели [4].

Таким образом, по скорости повторного нарастания сигнала третьей гармоники (рис.3a, область 3) можно судить о времени релаксации свободных электронов в микрообъеме плавленого кварца, связанной с захватом электронов в ловушки. Для оценки это-

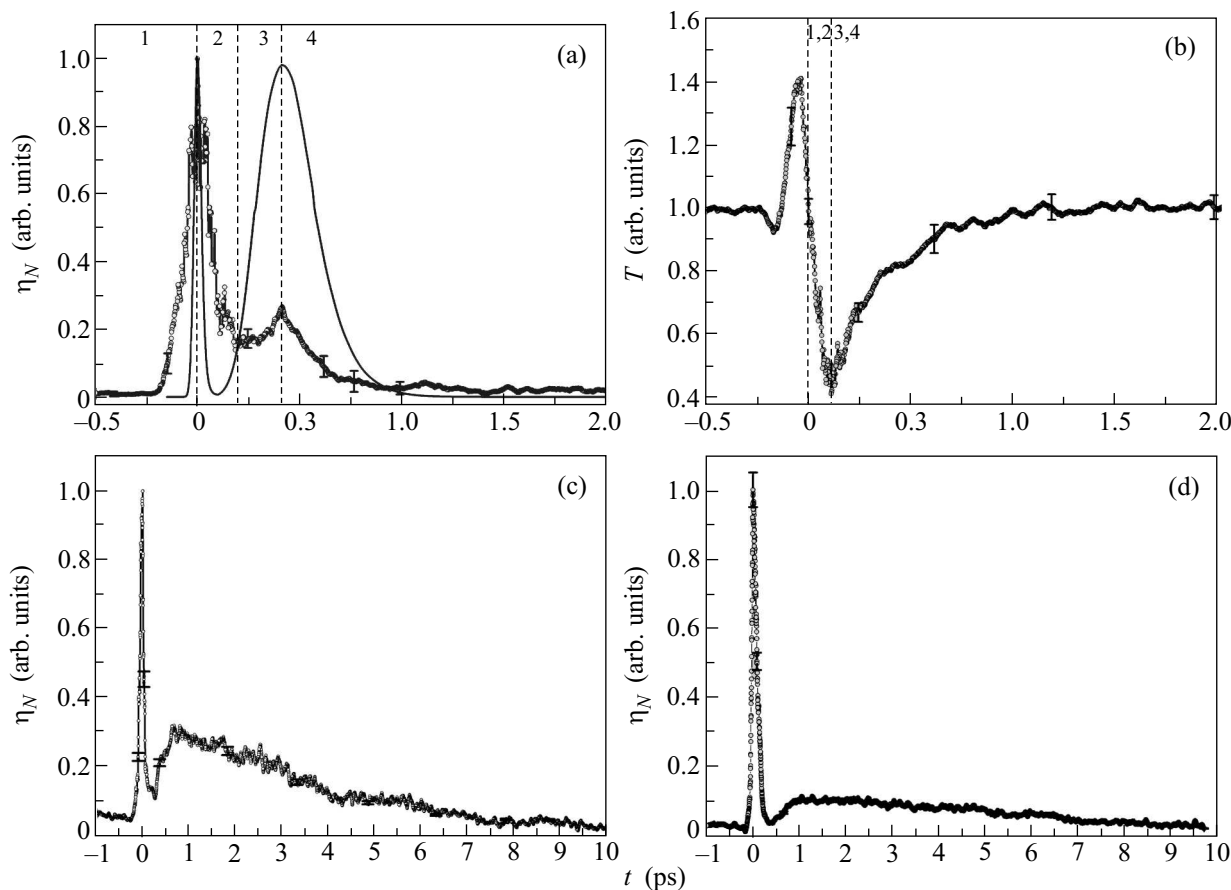


Рис. 3. (а) Экспериментальная (о) и теоретическая (—) зависимости нормированного на куб падающей энергии выхода третьей гармоники (Δ); пропускания (о) пробного импульса при энергии возбуждающего импульса (b) 3 мкДж; (c) 4 мкДж; (d) 5.3 мкДж от временной задержки между возбуждающим и пробным импульсами. $\eta_N = E_{3\omega}(E_{вх})^3$; $T = E_{вых}/E_{вх}$. Области на рис.(а) определяются в тексте статьи

го времени зависимость сигнала ГТГ в области 3 (рис.3а) преобразовывалась к временной зависимости электронной плотности $n_e(t)$. Используя модель генерации гармоники в сфокусированном пучке [12] при входных параметрах длины среды $L = 2$ мм, $\lambda_1 = 1.24$ мкм, $\lambda_3 = 0.413$ мкм, длина Рэлея $b = 30$ мкм, можно получить изменение эффективности ГТГ на границе среды от расстройки Δk . Аппроксимация этой зависимости степенной функцией дает выражение $\eta_{3\omega} \sim 1/\Delta k^{2.6}$. Учитывая зависимость $\Delta k(n_e)$, получаем, что $\eta_{3\omega} \sim 1/n_e^{2.6}$. Аппроксимация полученной зависимости $n_e(t)$ (рис.4b) электронной плотности от временной задержки $n_e(t)$ экспоненциальной функцией позволяет оценить время релаксации носителей заряда τ_1 (рис.4b).

Вышеописанная процедура была проделана для временных зависимостей третьей гармоники в плавленом кварце, полученных при различных энергиях возбуждающего импульса (рис.4а). Из рис.4а видно, что время релаксации не зависит от энергии возбуж-

дающего импульса и составляет 150 ± 80 фс, что совпадает с временем захвата свободных электронов в ловушки, измеренным в работе [8, 9].

Рассмотрим область 4 в сигнале пробной третьей гармоники при энергиях возбуждающего импульса, значительно превышающих порог плазмообразования (рис.3с, d). Хвостовая часть второго пика в сигнале третьей гармоники становится более полой, и время убывания зависит от энергии возбуждающего импульса. Используя оцененное значение времени электронной релаксации, получаем, что за время порядка 1 пс электронная плотность в микрообъеме плавленого кварца уменьшится по сравнению с максимальным значением на два порядка до 10^{17} см $^{-3}$, а фазовая расстройка будет соответствовать величине для немодифицированного плавленого кварца $\Delta k \sim \Delta k_0$. Таким образом, на пикосекундном масштабе времени задержки убывание пробного сигнала третьей гармоники не может быть связано со свободными электронами. Следовательно, такое уменьшение сигнала

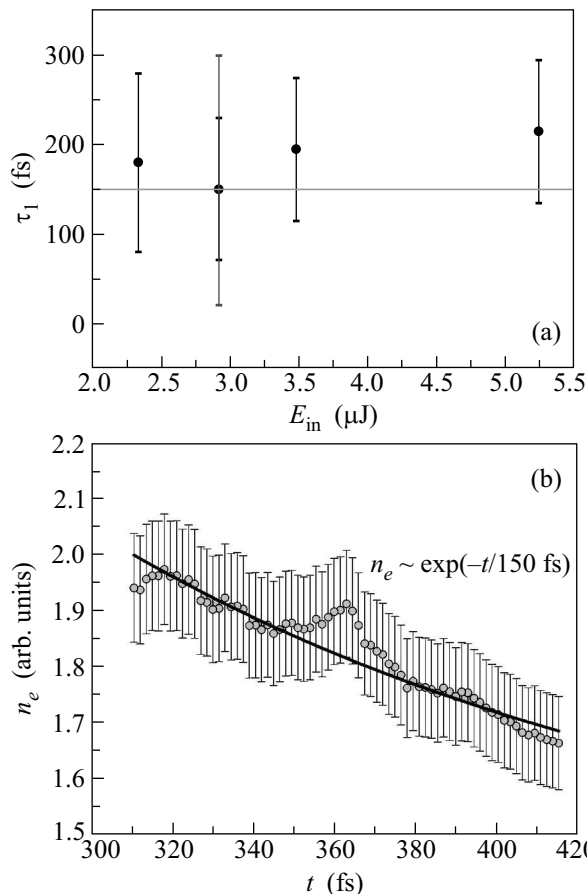


Рис.4 (а) Зависимость времени релаксации носителей заряда в микрообъеме плавленого кварца от энергии возбуждающего импульса. Время релаксации, полученное по нелинейному поглощению (Δ), по третьей гармонике (\bullet), по результатам работы [8, 9] (-); (б) зависимость электронной плотности от временной задержки, полученная после преобразований из временного профиля сигнала третьей гармоники

ГТГ наиболее вероятно может быть результатом модификации нелинейности третьего порядка $\chi^{(3)}$ плавленого кварца в области лазерного воздействия. В приближении, что $\eta_{3\omega} \sim [\chi^{(3)}]^2$, зависимость сигнала ГТГ в области 4 может быть преобразована к зависимости $\chi^{(3)}(t)$. На рис.5 представлена зависимость времени релаксации τ_2 нелинейной восприимчивости третьего порядка $\chi^{(3)}$ от энергии возбуждающего импульса, полученная в результате аппроксимации профилей $\chi^{(3)}(t)$ экспоненциальными функциями.

Наблюдается сильная зависимость скорости релаксации нелинейной восприимчивости третьего порядка $\chi^{(3)}$ от энергии лазерного импульса. По нашему мнению, это может быть вызвано колебаниями решетки плавленого кварца, ростом доли поглощенной энергии ($\Delta E \sim E$) и увеличением области

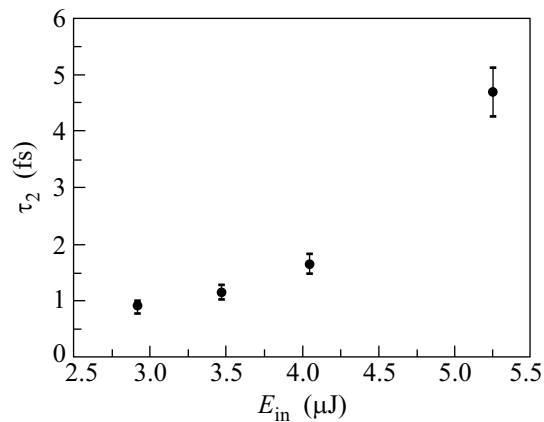


Рис.5. Зависимость времени релаксации нелинейной восприимчивости третьего порядка $\chi^{(3)}$ модифицированного образца плавленого кварца от энергии возбуждающего импульса

формирования плазмы ($D \sim E^{1/2}$) с ростом энергии лазерного импульса. Последнее должно приводить к более медленному уходу поглощенной энергии из области взаимодействия. В предварительных экспериментах по зондированию эволюции плазмы в кристаллической среде CaF_2 были зарегистрированы осцилляции пробного сигнала третьей гармоники на временах до 50 пс. Отличие времен убывания сигнала третьей гармоники в образцах плавленого кварца и CaF_2 связано с меньшим затуханием колебаний кристаллической решетки и подтверждает предположение о влиянии на процесс ГТГ ионной подсистемы на пикосекундном масштабе времен.

Таким образом, в работе продемонстрирована возможность исследования процессов энергопереноса в результате взаимодействия острогофокусированного низкоэнергетического фемтосекундного лазерного излучения с конденсированной средой в режиме плазмообразования с помощью предложенной методики нелинейно-оптического зондирования с использованием пробного сигнала третьей гармоники.

Работа частично поддержана грантом Российского фонда фундаментальных исследований # 08-02-00673.

1. C. B. Schaffer, A. Brodeur, J. F. Garcia, and E. Mazur, *Opt. Lett.* **26**, 93 (2001).
2. F. H. Loesel, J. P. Fischer, M. H. Gotz et al., *Appl. Phys. B* **66**, 121 (1998).
3. E. N. Glezer, M. Milosavljevic, L. Huang et al., *Opt. Lett.* **21**, 2023 (1996).
4. V. M. Gordienko, I. A. Makarov, P. M. Mikheev et al., *Quantum Electron.* **35**, 627 (2005).

5. R. R. Gattass and E. Mazur, *Nature Photonics* **2**, 219 (2008).
6. M. Müller, J. Squier, K.R. Wilson, and G.J. Brakenhoff, *J. Microsc.* **191**, 266 (1998).
7. S. Konorov, A. Ivanov, M. Alifimov, and A. Zheltikov, *J. of Optics: Pure and Applied Optics* **5**, 362 (2003).
8. P. Audebert, Ph. Daguzan, A. Dos Santos et al., *Phys. Rev. Lett.* **73**, 1990 (1994).
9. Q. Sun, H. Jiang, Y. Liu et al., *Front. Phys. China* **1**, 67 (2006).
10. V. M. Kadan, I. V. Blonsky, I. M. Dmytruk et al., *Proc. of SPIE* **6726**, 67260F (2007).
11. Sung-Hak Cho, Hiroshi Kumagai, and Katsumi Midorikawa, *Proc. SPIE* **4830**, 557(2003).
12. R. W. Boyd, *Nonlinear optics*, 2nd Eds. Academic Press, 2003, p. 114.
13. Y. F. Tsang, *Phys Rev. A* **52**, 4116 (1995).