

Диагностика энерговклада при острой фокусировке фемтосекундного лазерного излучения в объем прозрачного диэлектрика в реальном времени по сигналу третьей гармоники

Е. И. Мареев¹⁾, Е. А. Мигаль, Ф. В. Потемкин

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

Поступила в редакцию 27 февраля 2018 г.

Установлено, что третья гармоника, генерируемая при острой фокусировке фемтосекундного лазерного импульса ближнего ИК-диапазона (1.24 мкм), служит индикатором энерговклада в объем прозрачного диэлектрика и может быть использована в качестве системы обратной связи в процессе микроструктурирования вещества. Сигнал третьей гармоники чувствителен к изменению как размера лазерно-индуцированной микроплазмы, так и концентрации свободных электронов, что позволяет детектировать микроплазму с субмикронными продольными размерами. Показано, что метод регистрации третьей гармоники является универсальным и может применяться как в одноимпульсном, так и двухцветном режимах микроструктурирования.

DOI: 10.7868/S0370274X18070032

Ультракороткие лазерные импульсы являются уникальными инструментами для микро- и нанообработки практически всех типов материалов [1]. Микрообработку лазерными импульсами характеризует высокая точность и скорость обработки материала, а также минимальное тепловое воздействие на окружающий материал [2]. Фундаментально, минимальный размер лазерно-индуцированной модификации ограничен дифракционным пределом, порядка $1.22\lambda/NA$, где λ – длина волны, а NA – числовая апертура фокусирующей оптики. Таким образом, для достижения высокого пространственного разрешения при обработке материала необходимо использовать фокусирующую оптику с высокой числовой апертурой ($NA > 0.2$) [3]. Индикатором эффективного ввода энергии лазерного импульса в объем среды является объемная поглощенная энергия E_{abs} (измеряемая в кДж/см³), которая в первую очередь определяется локальностью воздействия [4]. Для повышения энерговклада в среду применяется методика тандемного лазерного воздействия на вещество [5, 6]. В рамках данной методики используется два импульса с интенсивностью ниже порога плазмообразования. Первый коротковолновый (УФ или видимый) лазерный импульс создает затравочные свободные электроны. Второй длинноволновый (ближний или средний ИК) импульс приходит с задержкой относительно первого. Он используется для эффек-

тивного создания лавинной ионизации, так как обладает большей пондеромоторной энергией. Таким образом, первый импульс определяет локальность воздействия (вследствие меньшей длины волны), в то время как второй – более высокоэнергетичный – используется для создания необходимого энерговклада [5, 7].

Для определения оптимальных условий создания модификаций рассчитывается значение объемного энерговклада по следующей методике. В эксперименте регистрируется поглощенная энергия, а также объем микроплазмы. После этого производится деление одной величины на другую. Главным недостатком такого подхода является отсутствие контроля величины объемного энерговклада в реальном времени. В таком случае, процесс оптимизации параметров лазерного излучения оказывается затрудненным и практически невозможным. С другой стороны, в процессе микроструктурирования импульс генерирует на лазерно-индуцированной микроплазме третью гармонику (ТГ), эффективность сигнала которой непосредственно связана с характеристиками генерируемой плазмы (размеры области плазмообразования, концентрация свободных электронов).

В данном письме мы показываем, что благодаря высокой чувствительности сигнала ТГ к условиям фазового согласования, он может являться индикатором объемного энерговклада в среду как в случае тандемного, так и одноимпульсного режима создания модификаций. Регистрируя сигнал ТГ

¹⁾e-mail: mareev.evgeniy@physics.msu.ru

в процессе оптимизации энергии лазерного импульса, нам удалось установить, что сигнал ТГ полностью повторяет зависимость энерговклада от энергии в импульсе, измеренную независимым методом. Таким образом, методика регистрации сигнала ТГ может служить системой обратной связи, позволяя оптимизировать параметры лазерного воздействия в реальном времени.

В экспериментах методика диагностики объемного энерговклада на основе регистрации сигнала ТГ сравнивалась со стандартной, описанной выше (на основе измерений поглощенной энергии и объема микроплазмы), в двух режимах воздействия: одноимпульсном и tandemном. Для этого использовалось излучение хром-форстеритовой лазерной системы (длина волны 1240 нм, частота повторения 10 Гц, длительность импульса 170 фс). Излучение на основной длине волны преобразовывалось во вторую гармонику (ВГ) (620 нм) в кристалле ВВО (10×10×1 мм, I тип, $\theta = 21$, $\phi = 90$). Длительность импульса ВГ составляла 120 фс. С помощью дихроичного зеркала излучение ВГ отделялось от основного излучения для внесения временной задержки. Затем оба канала вновь совмещались на дихроичном зеркале и фокусировались в плавный кварц с помощью асферической линзы Thorlabs A240TM ($f = 8$ мм, $NA = 0.5$). Канал основного излучения дополнялся корректирующей линзой с фокусом 68 см для компенсации хроматической aberrации, возникающей при фокусировке излучения с разными длинами волн. Образец перемещался с помощью трехкоординатной подвижки, чтобы избежать эффекта накопления и гарантировать режим одноимпульсного взаимодействия с мишенью. Регистрация падающей и прошедшей через образец энергий в каждом из каналов осуществлялась по калиброванным фотодетекторам. Для регистрации объема лазерно-индуцированной микроплазмы изображение области люминесценции переносилось на матрицу ПЗС камеры с помощью объектива с увеличением 7×. Более подробное описание экспериментальной схемы можно также найти в наших работах [4, 6, 7]. В одноимпульсном режиме структурирование образца проводилось только лишь импульсом ВГ, в то время как энергия импульса на основной частоте была существенно ниже порога плазмообразования $\sim 0.1E_{th}^\omega$ ($E_{th}^\omega = 1.2$ мкДж). В tandemном режиме импульс ВГ играл роль затравочного, а импульс на основной частоте – греющего. Энергия ИК-импульса была зафиксирована и составляла $\sim 0.75E_{th}^\omega$, что является оптимальным согласно нашим измерениям [4]. В эксперименте регистрировался сигнал ТГ (413 нм), генерируе-

мый ИК-импульсом, в зависимости от энергии импульса ВГ. Для регистрации ТГ использовался ФЭУ (Hamamatsu H5784-04).

Результаты измерений приведены на рис. 1. В случае одноимпульсного лазерного воздействия сигнал ТГ практически повторяет зависимость энерговклада от энергии. В случае tandemного воздействия зависимость является более сложной. В ней можно выделить три зоны: 1) $(0-0.4)E_{th}^{2\omega}$, область резкого роста сигнала ТГ, соответствует резкому росту энерговклада; 2) $(0.4-1.5)E_{th}^{2\omega}$, зона падения сигнала ТГ, соответствует “плато” в зависимости энерговклада от энергии лазерного импульса; 3) $> 1.5E_{th}^{2\omega}$, зона медленного монотонного роста сигнала ТГ, связанная с уменьшением энерговклада в среду.

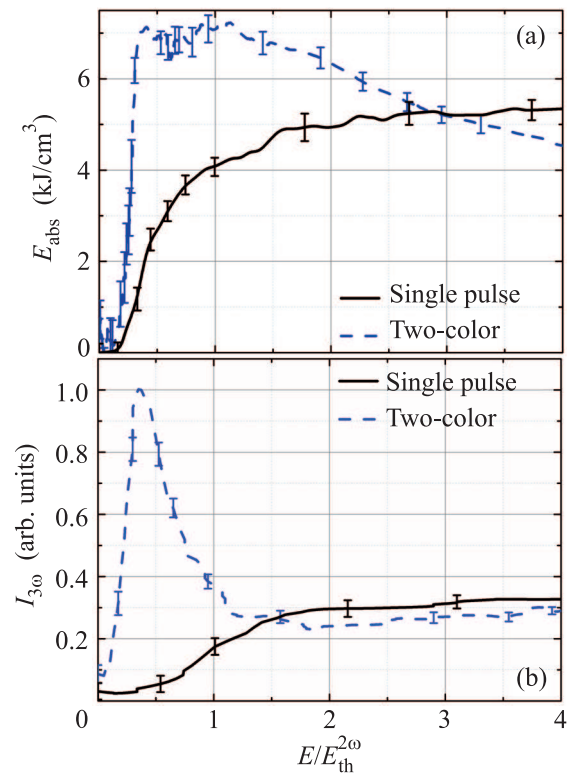


Рис. 1. (Цветной онлайн) Зависимость энерговклада (a) и сигнала третьей гармоники (b) от энергии греющего импульса (ВГ), нормированной на пороговую энергию плазмообразования ($E_{th}^{2\omega} = 1$ мкДж) в случае одноимпульсного (сплошная линия) и tandemного воздействия (пунктирная линия)

Для объяснения полученных зависимостей нами был проведен расчет эффективности генерации ТГ на лазерно-индуцированной микроплазме. Эффективность генерации ТГ в предположении, что изменение нелинейной восприимчивости третьего поряд-

ка за счет генерации плазмы незначительно, определяется как

$$\eta(\Delta k, L) \sim \frac{[\chi^{(3)}]^2 d_0^2 E^2}{Ln_{3\omega}} \left| \int_{-\frac{x}{2}}^{\frac{x}{2}} \frac{1}{(1 - 2iz/L)^2} \exp(i\Delta kz) dz \right|^2,$$

где E – энергия лазерного излучения, d_0 – диаметр перетяжки, L – длина перетяжки, Δk – волновая расстройка между основной волной и волной третьей гармоники, x – длина нелинейной среды (считалась равной $8L$), $\chi^{(3)}$ – нелинейная восприимчивость третьего порядка среды.

В расчетах использовались экспериментальные значения диаметра и длины перетяжки для основного излучения, полученные с помощью переноса изображения пучка из фокальной плоскости линзы на матрицу ПЗС камеры. Измеренные таким образом диаметр и длина перетяжки составляли 5.3 мкм и 35.4 мкм соответственно. Волновая расстройка с учетом генерации плазмы рассчитывалась как: $\Delta k = \Delta k_0 + (8/3)\pi n_e / \lambda_\omega n_{cr}(\lambda_\omega)$, где $\Delta k_0 = 3400 \text{ см}^{-1}$ – расстройка, связанная с дисперсией плавленого кварца, n_e – концентрация электронов плазмы, n_{cr} – критическая концентрация. На рис. 2а, б представлены зависимости интенсивности ТГ от размера микроплазмы и концентрации электронов для используемой в эксперименте фокусировки. Как видно из графиков, сигнал ТГ монотонно растет в области достижимых в эксперименте концентраций электронов, что связано с увеличением волновой расстройки Δk за счет роста концентрации электронов n_e . Стоит отметить, что когда область микроплазмы достигает размеров, сопоставимых с размером перетяжки, то эффективность генерации ТГ выходит на насыщение из-за уменьшения асимметрии процесса. Стоит обратить особое внимание на минимальный возможный детектируемый размер микроплазмы, который значительно уменьшается с увеличением электронной плотности плазмы (рис. 2с). Критерием этого размера служила электронная плотность, при которой расчетный сигнал третьей гармоники превосходил погрешность интегрирования (т.е. начинался монотонный рост третьей гармоники при увеличении n_e). При критической концентрации (отмечена на рисунке пунктиром) минимальный детектируемый размер плазмы становится порядка 500 нм. В то же время, микроплазма размером в несколько микрометров регистрируется по сигналу ТГ даже при сравнительно низких концентрациях $n_e \sim 0.1 n_{cr}$.

Имея в виду полученные зависимости, можно объяснить экспериментальные кривые, представлен-

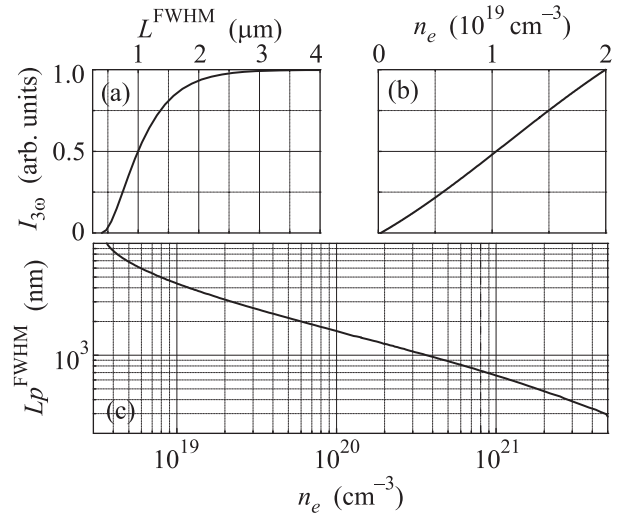


Рис. 2. (а–б) – Расчетные зависимости интенсивности ТГ в зависимости от длины микроплазмы (по полувысоте) при плотности электронов $n_e = 10^{19} \text{ см}^{-3}$ (а) и концентрации плазмы для канала длиной 1.5 мкм (по полувысоте) (б). (с) – Зависимость минимального детектируемого по сигналу ТГ размера микроплазмы от концентрации электронов. Пунктиром на графике указана критическая концентрация электронов $n_{cr} = 8 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-3}$ для основного излучения (1240 нм)

ные на рис. 1. В случае одноимпульсного лазерного воздействия рост сигнала ТГ соответствует монотонному росту как плотности, так и объема плазмы. При высоких энергиях увеличение электронной плотности практически не происходит, а рост объема не приводит к росту ТГ, что объясняет насыщение сигнала, наблюдаемое в эксперименте. Важно отметить, что размытие области при практически неизменной электронной плотности приводит к насыщению энерговклада при этих значениях падающей энергии. В таком случае, скорости роста объема микроплазмы и поглощения практически выравниваются. В случае тандемного воздействия зона $(0-0.4)E_{th}^{2\omega}$ связана с резким ростом электронной плотности. Объем микроплазмы в этом диапазоне энергий полностью определяется каустикой коротковолнового лазерного импульса, что определяет высокую локальность воздействия. Появление локального изменения электронной плотности приводит к нарушению симметрии для ТГ и появлению сигнала ТГ на выходе из среды. В области $(0.4-1.5)E_{th}^{2\omega}$ энерговклад выходит на “плато”, что связано с размытием области микроплазмы и уменьшением темпов роста n_e . Таким образом, электронная концентрация продолжает расти (и, как следствие, поглощение), однако из-за уменьшения локальности воздействия энерговклад, как интегральная характеристика, остается

ся неизменным (аналогично насыщению в одноимпульсной методике). С другой стороны, размытие зоны воздействия приводит к увеличению симметрии процесса, что является причиной резкого уменьшения сигнала ТГ. Наконец, в случае $> 1.5E_{th}^{2\omega}$ энергии в затравочном импульсе становится достаточно для самостоятельной ионизации материала. Таким образом, тандемная методика переходит в одноимпульсную, и энерговклад уменьшается. Так как в случае ионизации коротковолновым излучением, генерируемая плазма будет иметь более высокую концентрацию, то в этой области начинается медленный рост сигнала ТГ, вызванный увеличением концентрации электронов. Следовательно, сигнал ТГ достигает максимума в случае минимально возможного размера области микроплазмы и наибольшей электронной плотности, что позволяет использовать сигнал ТГ в качестве индикатора объемного энерговклада.

В данной работе показано, что методика регистрации сигнала ТГ служит индикатором эффективности энерговклада при острой фокусировке низкоэнергетического (мкДж) фемтосекундного лазерного излучения в объем прозрачного диэлектрика. Методика может применяться как в одноимпульсном, так и тандемном режимах воздействия на вещество. Диапазон регистрации продольных размеров мик-

роплазмы с помощью ТГ лежит в пределах от сотен нанометров до размера перетяжки лазерного излучения (5–10 мкм) и определяется концентрацией создаваемой микроплазмы.

Работа выполнена при поддержке Российского научного фонда (проект # 17-72-20130).

1. R. R. Gattass and E. Mazur, *Nat. Photonics* **2**, 219 (2008).
2. A. Mathis, F. Courvoisier, L. Froehly, L. Furfaro, M. Jacquot, P. A. Lacourt, and J. M. Dudley, *Appl. Phys. Lett.* **101**, 99 (2012).
3. M. C. Gower, *Opt. Express* **7**, 56 (2000).
4. F. V. Potemkin, B. G. Bravy, Y. I. Bezsudnova, E. I. Mareev, V. M. Starostin, V. T. Platonenko, and V. M. Gordienko, *Laser Phys. Lett.* **13**, 45402 (2016).
5. X. Yu, Q. Bian, Z. Chang, P. B. Corkum, and S. Lei, *SPIE Photonics West 2014-LASE Lasers Sources* **8968**, 89680G (2014).
6. F. Potemkin, E. Mareev, Y. Bezsudnova, V. Platonenko, B. Bravy, and V. Gordienko, *Appl. Phys. Lett.* **110**, 163903 (2017).
7. F. V. Potemkin, E. I. Mareev, Y. I. Bezsudnova, V. T. Platonenko, B. G. Bravy, and V. M. Gordienko, *Laser Phys. Lett.* **14**, 065403 (2017).