Письма в ЖЭТФ, том 113, вып. 8, с. 495 – 500

Генерация массива двулучепреломляющих нанорешеток в объеме флюорита под действием ультракоротких лазерных импульсов варьируемой длительности

С. И. Кудряшов[+1)], *П. А. Данилов*[+], *М. П. Смаев*[+*], *А. Е. Рупасов*[+], *А. С. Золотько*[+], *А. А. Ионин*[+], *Р. А. Заколдаев*[×]

[+]*Физический институт им. П. Н. Лебедева РАН, 119991 Москва, Россия*

[*]*Российский химико-технологический университет им. Д. И. Менделеева, 125047 Москва, Россия*

[×]*Университет ИТМО, 197101 С.-Петербург, Россия*

Поступила в редакцию 11 марта 2021 г.
После переработки 15 марта 2021 г.
Принята к публикации 15 марта 2021 г.

Впервые в объеме пластины флюорита получены двулучепреломляющие микроструктуры, записанные на фиксированной глубине под действием лазерных импульсов с длиной волны 1030 нм, варьируемой длительностью 0.3–3.8 пс и энергией импульсов лазерного излучения. Для всех длительностей лазерных импульсов установлены монотонные восходящие зависимости фазового сдвига в микроструктурах для ортогональных поляризаций в зависимости от энергии/интенсивности излучения. Предложен механизм формирования двулучепреломляющих микроструктур при отражении лазерных импульсов вблизи фокальной области от объемной околокритической плазмы с формированием перед плазмой вдоль оптической оси стоячей электромагнитной волны, так что данная волна фиксируется в материале в виде массивов наноструктурированных плоскостей (нанорешеток) с ориентацией штрихов локальной модификации материала и его показателя преломления перпендикулярно лазерной поляризации. В рамках данного механизма описывается экспериментально наблюдаемый сублинейный рост фазового сдвига в двулучепреломляющих микроструктурах при увеличении энергии/интенсивности лазерного излучения.

DOI: 10.31857/S1234567821080012

1. Фемтосекундная лазерная запись двулучепреломляющих субволновых нанорешеток в объеме диэлектриков исследуется уже почти два десятилетия [1, 2], обещая разнообразные интересные применения в области поляризационной макрооптики (см. библиографию в обзорах [3, 4]). Формирование субволновых нанорешеток в плоскости, перпендикулярной оптической оси лазерного излучения, долгое время оставалось необъясненным и только в последние годы стали рассматриваться процессы рассеяния назад падающих ультракоротких лазерных импульсов на кумулятивном многоимпульсном повреждении оптической однородности диэлектриков и интерференции падающего и рассеянного излучения с формированием интерференционной картины [5, 6]. Вместе с тем, само формирование субволновых нанорешеток в результате наномасштабного транспорта химических компонент стекла (преимущественно, кислорода) и соответствующей анизотропной периодической модуляции показателя преломления пока было продемонстрировано только для силикатных стекол [7], где мобильными компонентами материала под действием лазерного излучения становятся элементы френкелевской пары точечных дефектов "междоузлие-вакансия" кислорода [8].

С другой стороны, в последнее время для различных процессов микро- и наномодификации вещества в объеме диэлектриков стали шире использоваться ультракороткие лазерные импульсы большей – субпикосекундной и пикосекундной длительности [9]. В частности, в работе [9] было показано, что при микромодификации силикатных стекол для фемтосекундных лазерных импульсов формируются более контрастные нанорешетки, однако последующее химическое травление модифицированных областей идет быстрее после аналогичной по энергетике импульсов обработки пикосекундными лазерными импульсами, несмотря на гораздо менее упорядоченную наномасштабную структуру модифицированной области. Наблюдаемый эффект длительности ультракоротких лазерных импульсов на параметры нано- и микромодификации диэлектрика и его ре-

[1)]e-mail: kudryashovsi@lebedev.ru

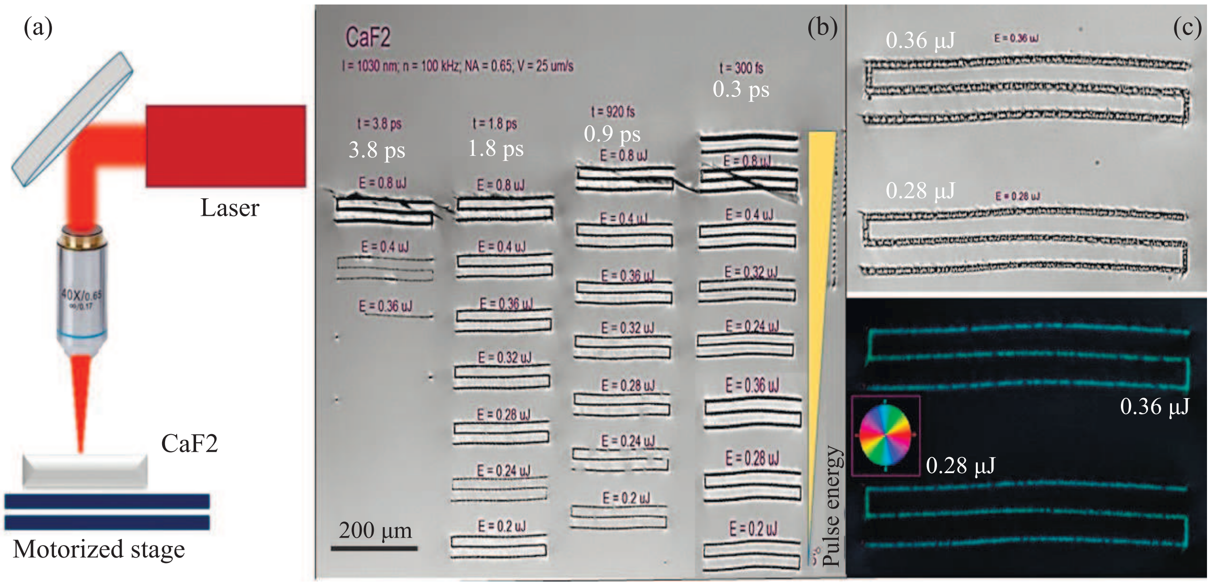

Рис. 1. (Цветной онлайн) (a) – Экспериментальная схема для формирования микроструктур. (b) – Микроснимки (вид сверху) трехсегментных треков, записанных в объеме флюорита (CaF_2) при различных длительностях и энергиях лазерных импульсов. (c) – Анализ двулучепреломления треков с помощью системы Abrio: Микроснимки (вид сверху) трехсегментных треков, записанных в объеме флюорита при $\tau = 0.3$ пс и энергии в импульсе $E = 0.36$ мкДж (вверху) и 0.28 мкДж (внизу). На черном фоне дана ориентационная псевдоцветовая карта соответствующей области, где бирюзовый цвет записанных структур при анализе указывает на то, что вертикальное направление медленной оси (длинная ось эллипса показателя преломления, направление необыкновенной волны) перпендикулярно направлению сканирования

зультирующей скорости травления не нашел в работе [9] своего объяснения.

В настоящей работе были проведены модельные эксперименты по записи двулучепреломляющих микроструктур под действием фокусированных ультракоротких лазерных импульсов фемто-пикосекундной длительности с несколькими фиксированными уровнями энергии импульсов на фиксированной глубине в объеме флюорита, который является материалом с френкелевской парой точечных дефектов "междоузлие-вакансия" фтора [8]. Измерен фазовый сдвиг для различных условий записи микроструктур и в результате такого анализа предложен механизм, объясняющий формирование ответственных за двулучепреломление нанорешеток в объеме флюорита, их расположение и ориентацию по отношению к оптической оси записывающего лазерного излучения, а также характер зависимости фазового сдвига от энергии/интенсивности лазерных импульсов.

2. В качестве источника излучения использовалась основная гармоника волоконного иттербиевого фемтосекундного лазера Satsuma с длиной волны $\lambda_{las} = 1030$ нм, варьируемой длительностью импульса $\tau \approx 0.3$–3.8 пс и максимальной энергией в импульсе $E_{max} = 10$ мкДж в TEM_{00}-моде. Лазерное излучение фокусировалось на глубину 80 мкм под поверхность пластины флюорита толщиной 2 мм с передней и задней поверхностями оптического качества с помощью микрообъектива с числовой апертурой NA = 0.65 в пятно с радиусом $R_{1/e} \approx 0.8$ мкм (рис. 1a). Образец размещался на трехкоординатной моторизированной трансляционной платформе (Standa) и перемещался на одном участке по траектории из трех линий (рис. 1b) со скоростью 25 мкм/с при размере шага перемещения 0.6 мкм (направление лазерной поляризации перпендикулярно направлению сканирования), а облучение разных участков происходило с частотой следования 100 кГц (локальная экспозиция ≈ 12 тыс. импульсов в точку) и энергией импульсов в диапазоне 0.2–0.8 мкДж.

Параметры двулучепреломления модифицированной области образца анализировались по отдельным линиям (рис. 1c) с помощью поляриметрической системы, построенной на базе оптического микроскопа Olympus BX-61 и поляриметрического анализатора Abrio IM 2.2 (Cambridge Research and Instrumentation, Inc.) [10]. Снимки трехсегментных треков (вид сверху) получали при увеличении 10×

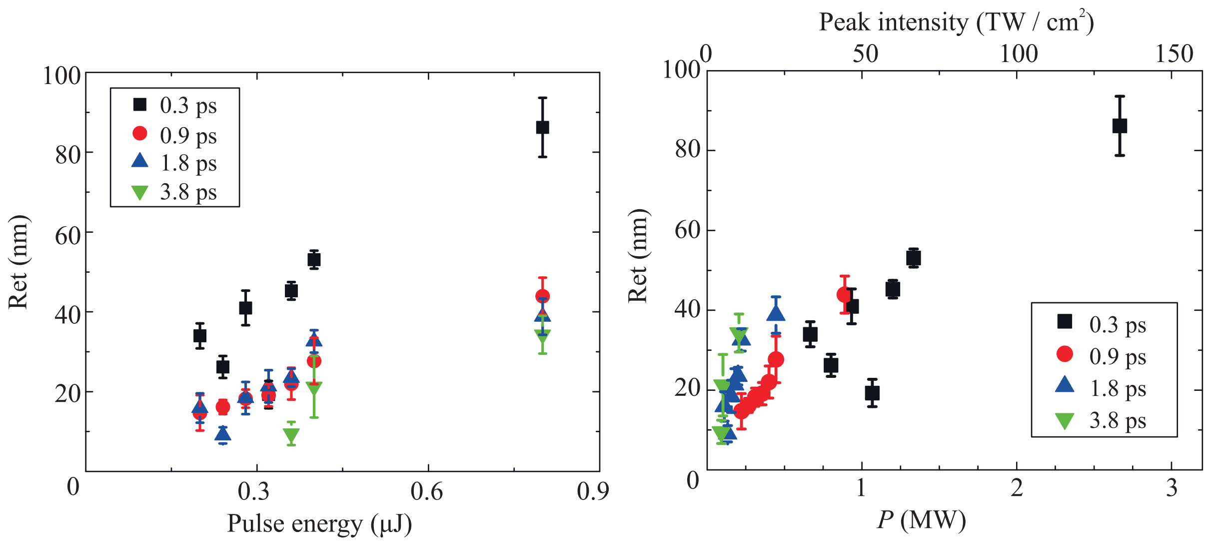

Рис. 2. (Цветной онлайн) Зависимости фазового сдвига Ret от энергии (a), пиковой мощности и интенсивности (b) лазерных импульсов для микроструктур, записанных при разных длительностях импульсов (обозначения см. на рисунке)

(объектив Olympus UPlanFl N, NA = 0.3), а фазовый сдвиг (retardance, Ret) Ret $= \Delta nL$ измерялся при увеличении 40× (объектив Olympus UPlanFl N, NA = 0.75) между двумя световыми пучками с ортогональными поляризациями при их распространении по пути L в анизотропной структуре с разностью показателей преломления $\Delta n = |n_e - n_o|$ для обыкновенной (n_o) и необычной (n_e) волны. Дополнительно, данная система показывала ориентацию "медленной" оси анизотропной структуры с максимальным значением показателя преломления.

3. Полученные зависимости фазового сдвига от энергии лазерных импульсов варьируемой длительности (рис. 2a) показывают достаточно неоднозначную картину: все зависимости являются монотонно восходящими по энергии. В дополнение к этому, в случае самых коротких лазерных импульсов ($\tau \approx 0.3$ пс) величина фазового сдвига при аналогичных энергиях импульсов оказывается примерно в два раза большей, тогда как величины фазового сдвига для остальных случаев практически не отличаются в пределах ошибки измерений. В целом, величины фазового сдвига ~50 нм на один слой для флюорита оказываются несколько ниже, чем у силикатных материалов кислородной френкелевской пары "междоузлие-вакансия" (~100 нм [11]), что может отражать как специфику материала (меньший диапазон возможной модуляции показателя преломления из-за более жесткой, более ионной решетки), так и условий записи с учетом экспозиции и возможной филаментации [12].

С другой стороны, представляется важным идентифицировать – линейный или нелинейный (самофокусировка и филаментация) – режим распространения ультракоротких лазерных импульсов разной длительности вблизи фокуса в объеме флюорита. Для этого зависимости фазового сдвига были построены от пиковой мощности ($P = E/\tau$) лазерных импульсов варьируемой длительности (рис. 2b) и не показали каких-либо особенностей, связанных с возможной филаментацией. Действительно, критическая мощность самофокусировки $P_{\mathrm{cr}} = 3.77\lambda_{\mathrm{las}}^2/(8\pi n_0 n_2)$ в флюорите на длине волны 1030 нм составляет, по нашим оценкам, 5–10 МВт для линейного показателя преломления $n_0(1.0\,\text{мкм}) = 1.43$ [13] и ряда известных значений нелинейного показателя преломления $n_2(1030\,\text{нм}) = (0.1–0.2) \cdot 10^{-16}\,\text{см}^2/\text{Вт}$, $n_2(515\,\text{нм}) = 2.5 \cdot 10^{-16}\,\text{см}^2/\text{Вт}$ [14], $n_2(800\,\text{нм}) \approx 1 \cdot 10^{-16}\,\text{см}^2/\text{Вт}$ [15], $n_2(2–3\,\text{мкм}) \approx 2 \cdot 10^{-16}\,\text{см}^2/\text{Вт}$ [16, 17]. В результате, для всего диапазона энергий лазерных импульсов варьируемой длительности пиковая мощность не достигает P_{cr} и режим фокусировки можно считать линейным. С одной стороны, это позволяет использовать известное значение фокального 1/e-радиуса ≈0.8 мкм и оценить величины пиковых интенсивностей излучения для использованного диапазона записи двулучепреломляющих микроструктур (рис. 2b, верхняя ось). С другой стороны, релеевская длина $2l$ перетяжки для этих условий (длина волны – 1030 нм, $n_0(1.0\,\text{мкм}) = 1.43$ [13], NA = 0.65) достигает величины в 3 мкм ($1/e$-уровень) согласно следующим выражениям:

$$w = \frac{\lambda}{\pi}\frac{\sqrt{n_0^2 - \mathrm{NA}^2}}{\mathrm{NA}}, \quad l = \frac{\lambda}{\pi}\frac{n_0^2 - \mathrm{NA}^2}{\mathrm{NA}^2}, \qquad (1)$$

которая в линейном режиме задает продольный размер области взаимодействия лазерного излучения с флюоритом при том, что эффективная длина взаимодействия будет зависеть от энергии лазерных импульсов и, возможно, проявится в соответствующих зависимостях фазового сдвига на рис. 2. Однако в этом случае формирующаяся в фокальном объеме электрон-дырочная плазма будет континуальной и позволит возбудить необходимые для наноструктурирования поверхностные плазмоны только на своей внешней поверхности.

Поэтому в данной работе предполагалось, что для формирования дискретных плоскостей двулучепреломляющих нанорешеток вдоль оптической оси лазерного излучения (ось z) возникает интерференция плоских падающей и отраженной световых волн (в пределах волнового пакета лазерного импульса), создающая плоскую стоячую световую волну и соответствующую плоскую волну ионизации материала (стопка "листов" электрон-дырочной плазмы) с периодом $\lambda/2n_0 \approx 0.3$ мкм (рис. 3). Отраженная волна

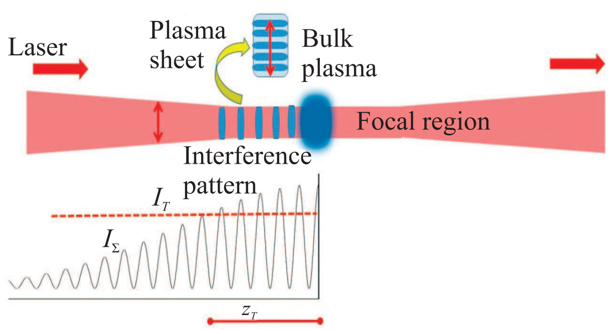

Рис. 3. (Цветной онлайн) Схема формирования интерференционной стоячей электромагнитной волны и волны ионизации флюорита перед отражающей объемной плазмой в лазерном фокусе, а также мелкомасштабная интерференционная полевая и плазменная структура отдельных плазменных листов при превышении пороговой интенсивности I_T на длине z_T

с амплитудой rE_0, где r – коэффициент отражения для электрического поля в падающей волне и E_0 – амплитуда поля, формируется при отражении от плотной околокритической электрон-дырочной плазмы, взятой в данной работе в виде плоской стенки (в действительности, скорее – в форме эллипсоида, отражающего распределение пиковой интенсивности в фокальном объеме). Пространственная область с максимальной интенсивностью суммарного поля формируется вблизи отражающей пламенной стенки ($z = 0$) (рис. 3) согласно выражению

$$I_\Sigma(z) = (1+r)^2 I_0 \cos^2\left(\frac{\pi n_0}{\lambda} z\right) \exp\left[-\frac{\left(t - \frac{n_0 z}{c}\right)^2}{\tau^2}\right] \qquad (2)$$

в момент, когда временной пик импульса ($t = 0$) приходит на стенку

$$I_\Sigma(z) = (1+r)^2 I_0 \cos^2\left(\frac{\pi n_0}{\lambda} z\right) \exp\left[-\left(\frac{n_0 z}{c\tau}\right)^2\right]. \qquad (3)$$

В результате пороговые условия (интенсивность I_T) для записи массива нанорешеток в поперечных к оптической оси плоскостях в максимумах стоячей волны для заданной падающей интенсивности излучения I_0 определяются в области размером z_T

$$I_T(z_T) = (1+r)^2 I_0 \cos^2\left(\frac{\pi n_0}{\lambda} z_T\right) \exp\left[-\left(\frac{n_0 z_T}{c\tau}\right)^2\right] \qquad (4)$$

или

$$z_T(I_0) = \frac{c\tau}{n_0}\sqrt{\ln\left(\frac{(1+r)^2 I_0}{I_T}\right)} = \frac{c\tau}{n_0}\sqrt{\ln((1+r)^2 I_0) - \ln I_T}. \qquad (5)$$

Последнее выражение показывает пороговый характер формирования массива нанорешеток для $(1 + r)^2 I_0 \geq I_T$ в области с характерным размером $c\tau/n_0$ (для отраженной плоской волны), которая в действительности будет существенно меньше из-за отражения лазерного излучения на плазменном эллипсоиде в виде расходящейся сферической волны.

Далее, в максимумах плоской стоячей волны ионизации материала в поперечном сечении волны – в стопках "листов" электрон-дырочной плазмы – в направлении линейной поляризации записывающего лазерного излучения на интерфейсе "металлизированный-диэлектрический флюорит" возбуждаются и интерферируют интерфейсные плазмоны с противоположно направленными волновыми векторами и высокими волновыми числами $\geq n_0^2/\lambda_{\mathrm{las}}$ [18] (условие возбуждения плазмонов: $\mathrm{Re}[\varepsilon^*_{\mathrm{CAF2}}] = -\mathrm{Re}[\varepsilon_{\mathrm{CAF2}}]$ [19], где $\varepsilon_{\mathrm{CAF2}}$ – диэлектрическая проницаемость невозбужденного флюорита с действительной частью $\mathrm{Re}[\varepsilon_{\mathrm{CAF}}] = n_0(1.0\,\text{мкм})^2 \approx 2$ [13], а соответствующая критическая плотность электрон-дырочной плазмы, обеспечивающая металлизацию материала, составляет $\approx 8 \cdot 10^{21}$ см$^{-3}$ [14]). В результате вдоль направления лазерной поляризации в стопках "листов" электрон-дырочной плазмы

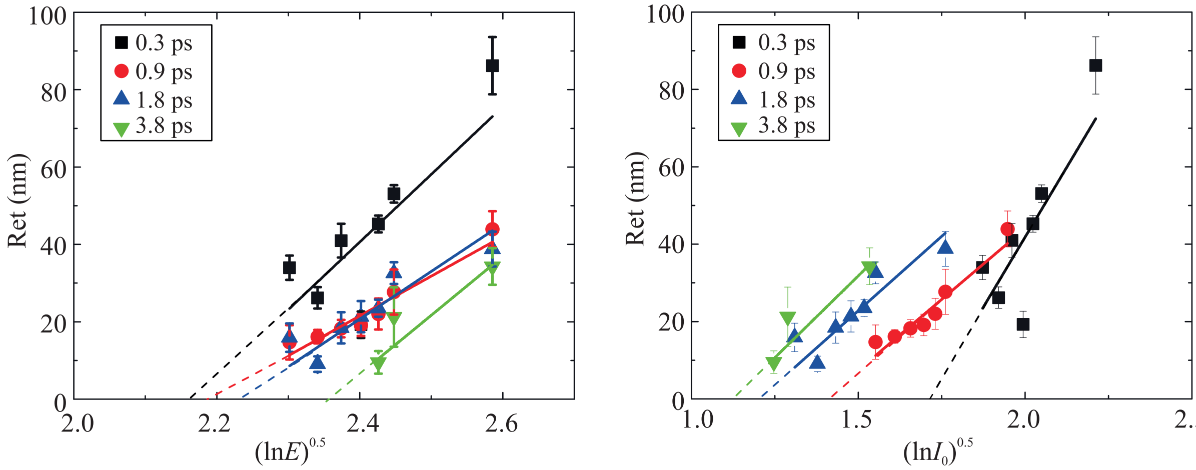

Рис. 4. (Цветной онлайн) Зависимости фазового сдвига Ret в координатах Ret – $(\ln E)^{0.5}$ (a) и Ret – $(\ln I_0)^{0.5}$ (b) для микроструктур, записанных при разных длительностях импульсов (обозначения на вкладках), и аппроксимирующие сплошные прямые линии соответствующих цветов (пунктирные линии показывают экстраполяцию на пороговые значения энергии и интенсивности). Энергия E взята в нДж, пиковая интенсивность I_0 – в ТВт/см^2

на масштабах ультракороткого лазерного импульса возникает еще более мелкомасштабная (период $\sim \lambda_{\rm las}/2n_0^2$ [18]) стоячая интерфейсная электромагнитная волна и соответствующая волна ионизации материала, которая уже материализуется в виде перманентной модуляции показателя преломления, как и для силикатных материалов [7].

Для проверки предложенной модели была проведена аппроксимация зависимости фазового сдвига Ret $= \Delta n L$ от энергии и пиковой интенсивности лазерного излучения на рис. 2 согласно выражению (5), полагая модельную величину z_T коррелирующей с экспериментальной величиной L. Действительно, в координатах Ret – $(\ln E)^{0.5}$ и Ret – $(\ln I_0)^{0.5}$ отмечается пороговый характер и линейность экспериментальных зависимостей с величиной порога, монотонно растущей по энергии (плотности энергии) излучения с ростом длительности импульса, но при этом снижающейся по пиковой интенсивности излучения. Также, на обоих графиках рис. 4 кривые для длительности 0.3 пс показывают самый большой наклон, что может отражать как более высокую индуцированную величину Δn, так и меньшую кривизну отражающего плазменного эллипсоида, что будет более подробно исследовано в последующих работах.

4. В заключение, в режиме сканирования на фиксированной глубине в объеме пластины широкозонного фтористого диэлектрика (флюорита) с высокой оптической стойкостью под действием жесткофокусированных лазерных импульсов с длиной волны 1030 нм и варьируемой длительностью (0.3–3.8 пс) и энергией импульсов впервые записаны двулучепреломляющие микроструктуры. Зависимости фазового сдвига микроструктур от энергии и интенсивности излучения для ортогональных поляризаций имеют пороговый характер и линейный вид при представлении в координатах, задаваемых предлагаемой в работе новой моделью формирования таких двулучепреломляющих микроструктур. В рамках предложенной модели рассматривается процесс отражения лазерных импульсов вблизи фокальной области от объемной околокритической плазмы с формированием перед плазмой вдоль оптической оси стоячей электромагнитной волны, в максимумах которой в результате ионизации в поперечном сечении формируется стопка плазменных "листов". На последних в масштабе ультракороткого лазерного импульса возбуждаются и интерферируют интерфейсные плазмоны, а интерференционная мелкомасштабная стоячая волна электромагнитного поля и ионизации фиксируется в материале в виде массивов поперечных нанорешеток локальной модификации материала и его показателя преломления с ориентацией штрихов, перпендикулярной к лазерной поляризации.

Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда (проект # 20-71-10103).

1. Y. Shimotsuma, P. G. Kazansky, J. Qiu, and K. Hirao, Phys. Rev. Lett. **91**(24), 247405 (2003).
2. C. Hnatovsky, R. S. Taylor, P. P. Rajeev, E. Simova, V. R. Bhardwaj, D. M. Rayner, and P. B. Corkum, Appl. Phys. Lett. **87**, 014104 (2005).
3. R. Drevinskas and P. G. Kazansky, APL Photonics **2**(6), 066104 (2017).
4. M. Sakakura, Y. Lei, L. Wang, Y. H. Yu, and P. G. Kazansky, Light Sci. Appl. **9**(1), 1 (2020).

5. A. Rudenko, J. P. Colombier, S. Hohm, A. Rosenfeld, J. Kruger, J. Bonse, T. E. Itina, Sci. Rep. **7**(1), 1 (2017).
6. X. Sedao, A. Abou Saleh, A. Rudenko, T. Douillard, C. Esnouf, S. Reynaud, C. Maurice, F. Pigeon, F. Garrelie, and J. P. Colombier, ACS Photonics **5**(4), 1418 (2018).
7. Y. Shimotsuma, K. Hirao, J. Qiu, and P. G. Kazansky, Mod. Phys. Lett. B **19**(05), 225 (2005).
8. W. Hayes and A. M. Stoneham, *Defects and defect processes in nonmetallic solids*, Dover publications, N.Y. (1985).
9. X. Li, J. Xu, Z. Lin, J. Qi, P. Wang, W. Chu, Z. Fang, Z. Wang, Z. Chai, Y. Cheng, Applied Surface Science **485**, 188 (2019).
10. S. B. Mehta, M. Shribak, and R. Oldenbourg, J. Opt. **15**(9), 094007 (2013).
11. S. S. Fedotov, R. Drevinskas, S. V. Lotarev, A. S. Lipatiev, M. Beresna, A. Čerkauskaite, V. N. Sigaev, and P. G. Kazansky, Appl. Phys. Lett. **108**(7), 071905 (2016).
12. S. I. Kudryashov, A. O. Levchenko, P. A. Danilov, N. A. Smirnov, and A. A. Ionin, Opt. Lett. **45**(7), 2026 (2020).
13. E. D. Palik editor, *Handbook of optical constants of solids*, Academic press (1998).
14. S. Kudryashov, P. Danilov, A. Rupasov, S. Khonina, A. Nalimov, A. Ionin, G. Krasin, and M. Kovalev, Optical Materials Express **10**(12), 3291 (2020).
15. Y. Guo, S. Lu, L. Su, C. Zhao, H. Zhang, and S. Wen, Appl. Opt. **54**, 953 (2015).
16. A. E. Dormidonov, V. O. Kompanets, S. V. Chekalin, and V. P. Kandidov, Opt. Express **23**, 29202 (2015).
17. H. Liang, P. Krogen, R. Grynko, O. Novak, C. L. Chang, G. J. Stein, D. Weerawarne, B. Shim, F. X. Kartner, and K. H. Hong, Opt. Lett. **40**, 1069 (2015).
18. S. I. Kudryashov, A. A. Nastulyavichus, I. N. Saraeva, A. A. Rudenko, D. A. Zayarny, and A. A. Ionin, Applied Surface Science **519**, 146204 (2020).
19. V. Klimov, *Nanoplasmonics*, CRC press, N.Y. (2014).