

Взаимосвязь параметров двулучепреломления и иерархической пространственной структуры микротреков, записанных в объеме плавленого кварца ультракороткими лазерными импульсами

Ю. С. Гулина⁺¹⁾, А. Е. Рупасов⁺, Г. К. Красин⁺, Н. И. Буслеев⁺, И. В. Грищенко⁺, А. В. Богацкая^{+*},
С. И. Кудряшов⁺

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

^{*} Физический факультет, МГУ имени М. В. Ломоносова, 119991 Москва, Россия

Поступила в редакцию 5 марта 2024 г.

После переработки 4 апреля 2024 г.

Принята к публикации 5 апреля 2024 г.

Исследованы изменения фазового набег и длины, а также пространственной структуры двулучепреломляющих микротреков, записанных в объеме плавленого кварца в режиме жесткой фокусировки (числовая апертура $NA = 0.45$ и 0.55) лазерными импульсами с длиной волны 1030 нм, длительностью 0.3 и 0.6 пс, при варьировании энергии импульсов. Показано, что по мере увеличения энергии импульсов величина фазового набег и длины микротреков монотонно растут, а их пространственная структура трансформируется из массива продольных каналов с поперечной субволновой периодичностью Λ_E вдоль вектора поляризации в трехмерную иерархическую структуру с дополнительной периодичностью Λ_k порядка длины волны вдоль оси распространения излучения. Впервые обнаружено, что в трехмерных иерархических структурах имеет место почти двухкратное уменьшение периода Λ_E , что соответствует увеличению наведенной в микротреках разности показателей преломления до $\Delta n \sim 4.5 \times 10^{-3}$.

DOI: 10.31857/S1234567824090027, EDN: RIIZEU

1. Взаимодействие ультракоротких лазерных импульсов с прозрачными твердыми диэлектриками представляет интерес как для фундаментальной физики, так и практических приложений. В результате этого взаимодействия в области лазерного воздействия образуются структурные модификации материала различных типов, например, уплотнение материала (запись волноводов), полости (микрофлюидика), нанометровые и объемные двулучепреломляющие структуры (микротреки), обладающие анизотропным эффектом [1], приводящим к фазовому сдвигу, а также сложным интерференционно-поляризационным взаимодействиям света внутри них [2–5]. Ультракороткие лазерные импульсы с варьируемыми параметрами позволяют создавать на основе двулучепреломляющих микротреков в объеме прозрачных твердых диэлектриков оптические элементы и устройства, такие как “вечная” оптическая память [6–8], поляризационные элементы [9], волновые фазовые пластинки [10], цветные микрофильтры [11], фотонные элементы и устройства [12–15] и т.п.

В двулучепреломляющих микротреках может формироваться как пористая подструктура [16], так и сложная трехмерная периодическая субволновая подструктура, представляющая собой параллельные плоскости с изменяющимся показателем преломления [17]. Так, например, с помощью сканирующей электронной микроскопии, при разрезе диэлектриков, было показано, что внутри двулучепреломляющих микротреков формируется субволновая периодическая подструктура, которая напоминает лазерно-индуцированные периодические поверхностные структуры (ЛИПС) [18, 19]. В работе [20] было продемонстрировано изображение микротрека, в котором наблюдалась продольная и поперечная подструктура с 3 различными пространственными периодами: 1 период в направлении распространения лазерного излучения и 2 периода в направлении поляризации, однако исследование было проведено только для одной энергии и при постоянной частоте следования импульсов. Отмечается, что увеличение числа импульсов приводит к усложнению пространственной структуры микротреков, так, например, в [21] рассмотрен переход от формирования нанополостей к периодической струк-

¹⁾e-mail: gulinays@lebedev.ru

туре, в работе [22] показано постепенное развитие самоорганизующихся структур в направлении вдоль оси распространения лазерного излучения с увеличением величины вносимой ими фазовой задержки, а в работе [23] приводится эволюция пространственных структур перпендикулярно оси микротрека при увеличении плотности энергии и числа импульсов в стекле. Однако, несмотря на обширные исследования в данной области, вопрос прямого сопоставления пространственных параметров и типа подструктуры микротреков с величиной наведенной в них разницы (анизотропии) показателей преломления до сих пор остается открытым.

В настоящей работе проведено исследование взаимосвязи параметров двулучепреломления и иерархической пространственной структуры микротреков, записанных в объеме плавленого кварца под действием жесткофокусированных ультракоротких лазерных импульсов с варьируемыми длительностями и энергиями. На основе измерения фазового сдвига и длины двулучепреломляющих микротреков оценена средняя величина изменения показателя преломления Δn в двулучепреломляющих микротреках. Показано, что в трехмерных иерархических структурах имеет место уменьшение периода вдоль вектора поляризации, что приводит к увеличению анизотропии показателя преломления.

2. В качестве источника излучения при проведении экспериментальных исследований был использован фемтосекундный лазер Satsuma с основной длиной волны 1030 нм (TEM₀₀). Лазерное излучение фокусировалось микрообъективами с различными числовыми апертурами NA = 0.45 (радиус фокального пятна по 1/e²-уровню энергии $w_0 \approx 2$ мкм, длина Рэля $z_R = n_0 \frac{\pi w_0^2}{\lambda} \approx 12$ мкм, $n_0 = 1.45$ – линейный показатель преломления кварца) и NA = 0.55 (радиус фокального пятна по 1/e²-уровню энергии $w_0 \approx 0.8$ мкм, $z_R \approx 2$ мкм), в объем исследуемого образца из плавленого кварца ($20 \times 10 \times 2$ мм³), закрепленного на трехкоординатной платформе (Prio), на глубину 100 мкм (см. рис. 1). В эксперименте лазерные импульсы следовали с частотой 100 кГц, при этом их длительность составляла 0.3 и 0.6 пс, а энергия варьировалась в диапазоне от 0.13 до 3.3 мкДж. Этот диапазон был выбран для обеспечения пиковых интенсивностей порядка 10–100 ТВт/см², требуемых для формирования периодических структур в плавленом кварце [24].

Для исследования процессов генерации двулучепреломляющих микротреков был проведен ряд экспериментов, в которых за счет перемещения подвижной платформы со скоростью 300 мкм/с были запи-

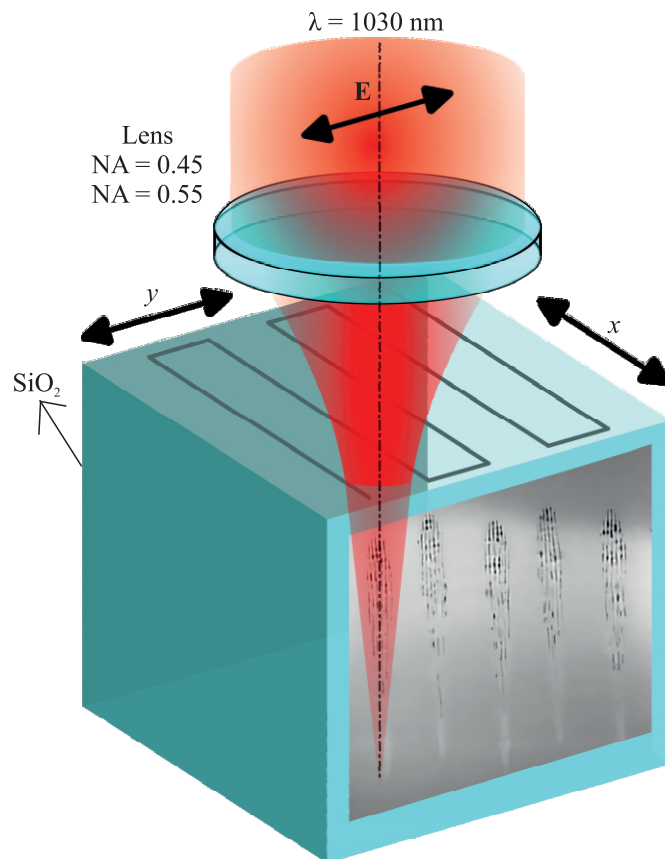


Рис. 1. (Цветной онлайн) Схема записи двулучепреломляющих микротреков

саны области из серий дорожек, соответствующие определенным энергетическим и фокусирующим параметрам. На рисунке 2 приведены изображения записанных областей, полученные с помощью микроскопа Zeiss Axioskop 40 с камерой AxioCam ICs 3. Одна область состоит из 30 линий с шагом 5 мкм с одинаковыми параметрами для изучения регулярности структур. В верхней части рис. 2 приведены изображения областей, записанных микрообъективом с NA = 0.55 в диапазоне энергий импульсов 0.13–0.53 мкДж, что соответствует пиковым интенсивностям лазерного излучения в фокальной области от 12 до 46 ТВт/см², а в нижней – микрообъективом с NA = 0.45 в диапазоне энергий импульсов 0.25–3.3 мкДж (пиковые интенсивности в фокальной области от 12 до 63 ТВт/см²).

Параметры двулучепреломления записанных областей анализировались с помощью поляриметрической системы Thorlabs, работающей на длине волны 633 нм [25]. Измерялось значение фазового сдвига между обыкновенным и необыкновенным лучами на толщине структур (L).

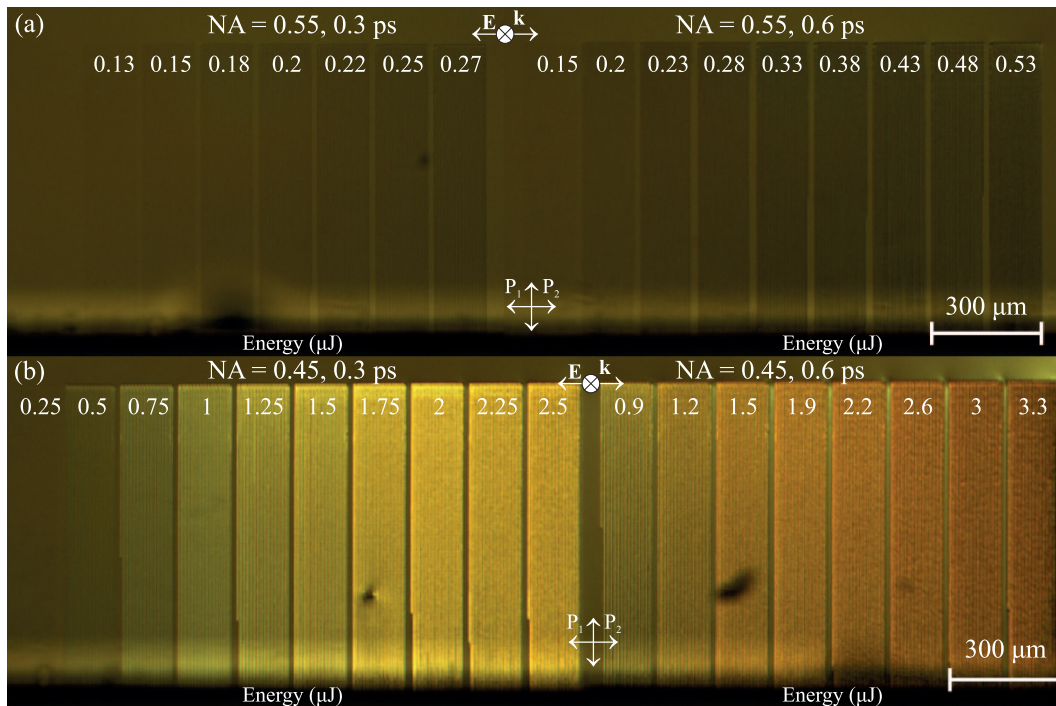


Рис. 2. (Цветной онлайн) (а) – Изображения серий микрообластей, записанных объективами с числовой апертурой $NA = 0.55$ (а) и $NA = 0.45$ (б)

Для сопоставления характеристик двулучепреломления с образовавшейся подструктурой микротреков были выполнены структурные исследования. Образец, с записанными областями двулучепреломляющих микротреков, был разрезан поперек для визуализации микротреков в сечении. Для резки использовалась алмазная дисковая пила DAD 3220 (DISCO), с последующей полировкой на машине PM5 (Logitech) с абразивами из корунда 3–10 микрон и наночастиц оксида кремния 25 нм. Для визуализации микротреков использовался сканирующий электронный микроскоп Tescan Vega 3.

3. Примеры типовых изображений поперечных сечений серий микротреков, полученных на основе СЭМ-визуализации, представлены на рис. 3. Для наглядности были выбраны серии микротреков, записанных при сопоставимых пиковых интенсивностях в фокальной области порядка 25 ТВт/см^2 . Лазерные импульсы распространялись сверху вниз. Записанные микротреки имеют характерную каплевидную форму и локализованы в предфокальной области микрообъективов. Микротреки, записанные объективом с числовой апертурой 0.45 имеют больший размер и более выраженную сложную периодическую подструктуру, что хорошо коррелирует с размером области взаимодействия лазерного излучения с плавленным кварцем, определяемой в линейном режиме длиной Рэлея [26].

Для обеих числовых апертур при увеличении длительности импульсов наблюдается усложнение пространственной структуры микротреков: для апертуры $NA = 0.45$ появляются упорядоченные периоды вдоль направления распространения (см. вставку на рис. 3), а для $NA = 0.55$ появляется больше периодов перпендикулярно направлению распространения (вдоль вектора поляризации), но при этом упорядочивание вдоль оси в используемом диапазоне энергий импульсов наблюдается слабо. Из чего можно сделать вывод о пороговом характере генерации подструктур, определяемым энергией лазерных импульсов, а не интенсивностью: при сопоставимых опорных интенсивностях в фокальной области наблюдаются различные типы подструктур двулучепреломляющих микротреков.

Для анализа процесса эволюции пространственной структуры микротреков, были выбраны серии, записанные импульсами с длительностью 0.3 пс при фокусировке объективом с $NA = 0.45$, в которых изменение подструктуры при увеличении энергии прослеживается наиболее наглядно (см. рис. 4). Развитие пространственной подструктуры носит пороговый характер и в нем можно выделить 3 характерных порога: первый – при величине энергии в импульсе 0.25 мкДж формируется одиночное протяженное микроповреждение; второй при $E = 0.5 \text{ мкДж}$ соответствует началу образования массива продоль-

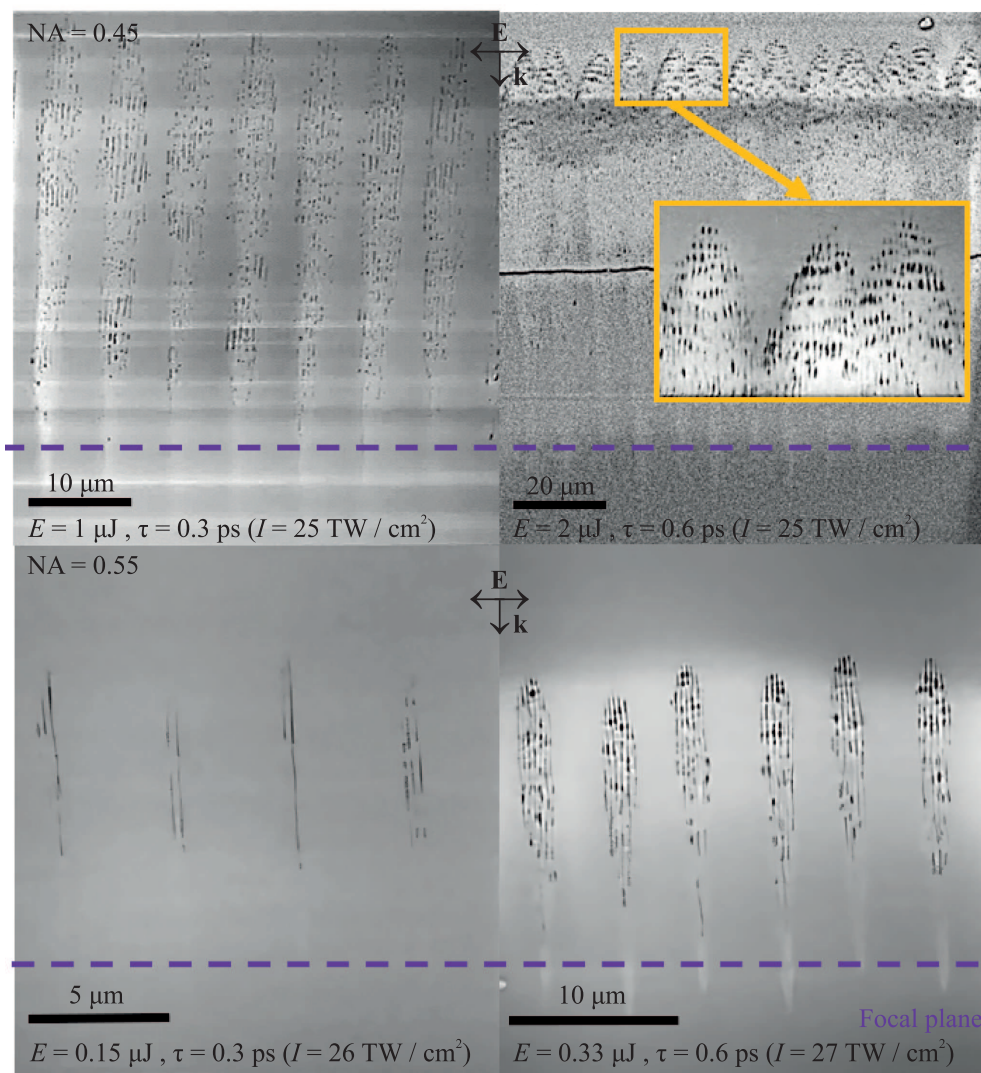


Рис. 3. (Цветной онлайн) СЭМ-визуализация поперечных сечений микротроек, записанных объективами с апертурами $NA = 0.45$ (сверху) и $NA = 0.55$ (снизу)

ных каналов – подструктуры в направлении вектора поляризации с периодом Λ_E ; третий при $E = 1.25 \text{ мкДж}$ – начало развития трехмерной иерархической структуры – подструктуры вдоль направления распространения излучения с периодом Λ_k . Характерный период подструктуры двулучепреломляющего микротрека вдоль распространения лазерного излучения находится в диапазоне $\Lambda_k = 400\text{--}1000 \text{ нм}$ и сопоставим с длиной волны, а вдоль вектора поляризации наблюдается субволновой период $\Lambda_E \leq 400 \text{ нм}$ для массива продольных каналов и $\Lambda_E \approx 200 \text{ нм}$ для иерархической структуры.

Величины фазового сдвига записанных областей, измеренные с помощью поляриметрической системы, представлены на рис. 5. Максимальный фазовый

сдвиг, вносимый двулучепреломляющими микротреками, записанными объективом с числовой апертурой $NA = 0.45$, в зависимости от энергии импульсов в области насыщения составляет $\sim 130^\circ$, а для апертуры $NA = 0.55 - \sim 30^\circ$ (ранее нами было показано, что насыщение величины фазового сдвига происходит также с ростом экспозиции [27]). При этом следует отметить довольно хорошую степень однородности величины фазового сдвига в пределах каждой области: порядка 5° для $NA = 0.45$ и порядка 2° для $NA = 0.55$.

Измеренные значения длин L двулучепреломляющих микротроек и наведенной в них разности хода для обыкновенного и необыкновенного лучей Ret , записанных при различных параметрах лазерных им-

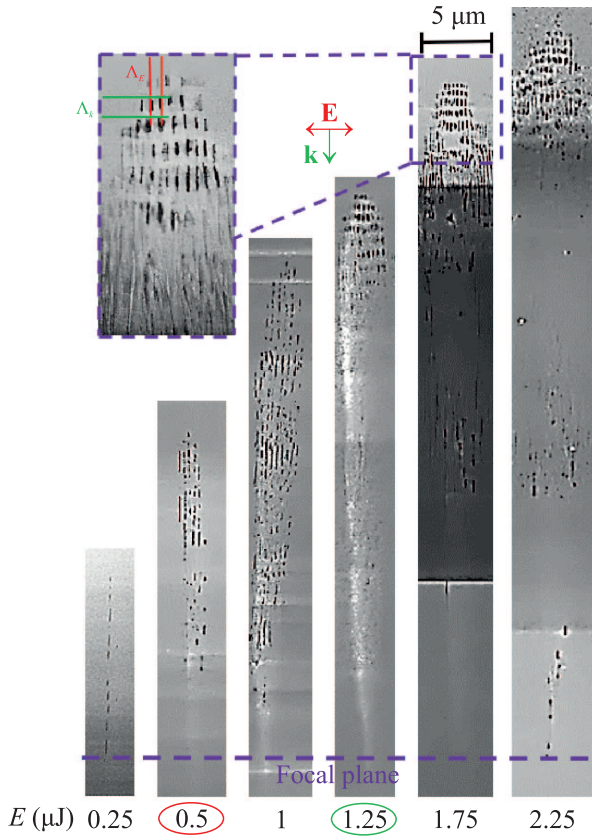


Рис. 4. (Цветной онлайн) СЭМ-визуализация эволюции поперечных сечений микротроек, записанных объективом с апертурой $NA=0.45$ и длительностью 0.3 при различных энергиях в импульсе

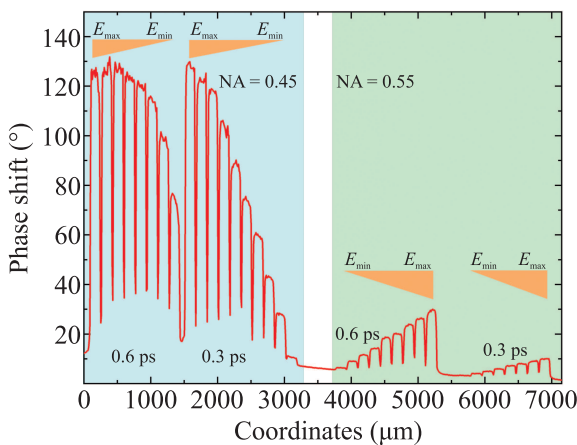


Рис. 5. (Цветной онлайн) Профили записанных областей со значениями фазового сдвига для $NA=0.45$ и $NA=0.55$, и длительностей импульсов $\tau = 0.3$ пс и $\tau = 0.6$ пс

пульсов представлены на рис. 6а, б. Значение разности хода определялось на основе измеренного фазового сдвига по формуле: $Ret = \Delta\phi \cdot \lambda / 2\pi$. Для всего

используемого диапазона параметров записи микротроек характерно монотонное возрастание значений разности хода по мере увеличения энергии импульсов, за исключением режима с $NA = 0.45$ и $\tau = 0.6$ пс, при котором наблюдается прекращение роста разности хода и его стабилизация в окрестности величины 235 нм. Аналогичное монотонное возрастание при увеличении энергии прослеживается и для длин микротроек, однако наблюдается некоторое насыщение роста длины микротроек, записанных в режиме с $NA=0.45$ и $\tau = 0.6$ пс. Следует отметить, что все зависимости практически ложатся на одну кривую, из чего следует вывод об универсальности наведения фазового сдвига: для произвольной геометрии фокусировки и длительности импульсов можно подобрать такую величину энергии, которая будет обеспечивать требуемый фазовый сдвиг.

Величины наведенной разницы показателей преломления для обыкновенного и необыкновенного лучей $\Delta n = |n_e - n_o| = Ret/L$, рассчитанные на основе измеренных разностей хода и длин микротроек, в зависимости от энергии лазерных импульсов приведены на рис. 6с. Максимальная величина наведенной анизотропии показателя преломления наблюдается в области энергий свыше 1.25 мкДж, в которой наблюдается возникновение трехмерной иерархической структуры, и достигает величины порядка $\Delta n \sim 4.5 \times 10^{-3}$. При анализе пространственных параметров этой структуры было обнаружено уменьшение периода вдоль вектора поляризации Λ_E от 300 до 200 нм при увеличении энергии импульсов (рис. 6д). При этом следует отметить, что величина аналогичного периода в массиве продольных каналов (0.5 мкДж $< E < 1.25$ мкДж) составляет около 400 нм. Таким образом, можно впервые отметить, что увеличение наведенной анизотропии показателя преломления связано с усложнением пространственной структуры двулучепреломляющих микротроек и уменьшением ее периода.

Говоря об оптических потерях в рассмотренных двулучепреломляющих микротреках, при использованной в настоящей работе жесткой фокусировке последние имеют высокие значения фазового сдвига, но высокие потери из-за рассеяния света (напротив, при высоком пропускании – малые величины фазового сдвига) – см. [28]. Заметим, что в случае слабой фокусировки ситуация аналогична и была исследована нами ранее в работе [27].

4. В заключение, впервые проведено прямое сопоставление параметров двулучепреломления и иерархической пространственной структуры микротроек, записанных в объеме плавленого кварца ультрако-

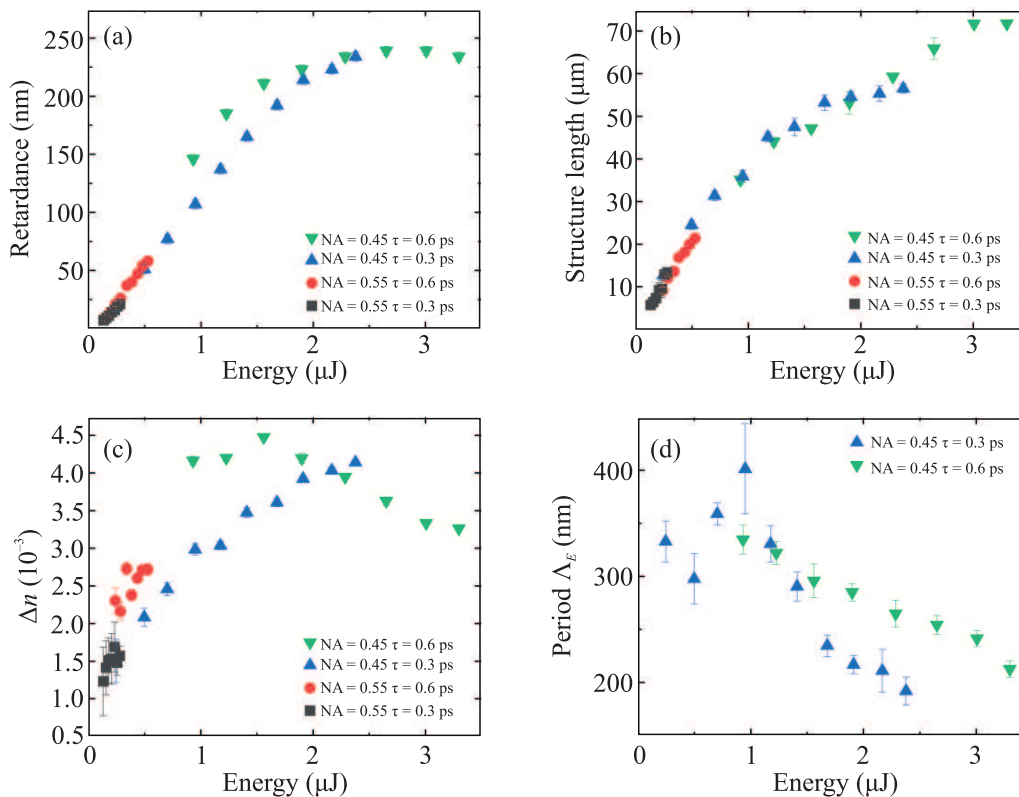


Рис. 6. (Цветной онлайн) Зависимость величины разности хода (а), длины микротреков (б), наведенной разницы показателей преломления (с) и периода подструктур вдоль вектора поляризации Λ_E (d) от энергии лазерных импульсов

роткими лазерными импульсами с длиной волны 1030 нм и длительностями 0.3, 0.6 пс, при варьированной энергии импульсов. Показано, что по мере увеличения энергии импульсов структура микротреков постепенно усложняется – от массива продольных каналов с поперечной субволновой периодичностью Λ_E вдоль вектора поляризации в трехмерную иерархическую структуру с дополнительной периодичностью Λ_k порядка длины волны вдоль оси распространения излучения. Измерения фазового сдвига и длины двулучепреломляющих микротреков позволили оценить среднюю величину изменения (анизотропии) показателя преломления Δn в двулучепреломляющих микротреках и впервые обнаружить, что в трехмерных иерархических структурах имеет место кратное уменьшение периода Λ_E , что соответствует кратному увеличению анизотропии показателя преломления до величины порядка $\Delta n \sim 4.5 \times 10^{-3}$.

Финансирование работы. Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда (проект # 22-72-10076).

Конфликт интересов. Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

1. S. M. Rytov, Soviet Physics JETP **2**(3), 466 (1956).
2. S. A. Akhmanov, V. I. Emel'yanov, N. I. Koroteev, and V. N. Seminogov, Soviet Phys.-Uspekhi **28**(12), 1084 (1985).
3. A. Rudenko, J. P. Colombier, S. Höhm, A. Rosenfeld, J. Krüger, J. Bonse, T. E. Itina, Sci. Rep. **7**(1), 12306 (2017).
4. J. L. Deziel, L. J. Dube, S. H. Messaddeq, Y. Messaddeq, and C. Varin, Phys. Rev. B **97**(20), 205116 (2018).
5. Y. Shimotsuma, K. Hirao, J. Qiu, and P. G. Kazansky, Mod. Phys. Lett. B **19**(5), 225 (2005).
6. H. Wang, Y. Lei, L. Wang, M. Sakakura, Y. Yu, G. Shayeganrad, and P. G. Kazansky, Laser Photonics Rev. **16**(4), 2100563 (2022).
7. Z. Wang, B. Zhang, Z. Wang, J. Zhang, P. G. Kazansky, D. Tan, and J. Qiu, Adv. Mater. **35**(47), 2303256 (2023).
8. J. Gao, X. Zhao, Z. Yan, Y. Fu, J. Qiu, L. Wang, and J. Zhang, Adv. Funct. Mater. **34**(11), 2306870 (2024).
9. Y. Shimotsuma, M. Sakakura, P. G. Kazansky, M. Beresna, J. Qiu, K. Miura, and K. Hirao, Adv. Mater. **22**(36), 4039 (2010).
10. M. Beresna, M. Gecevicius, P. G. Kazansky, and T. Gertus, Appl. Phys. Lett. **98**(20), 201101 (2011).
11. S. I. Kudryashov, P. A. Danilov, A. E. Rupasov, M. P. Smayev, N. A. Smirnov, V. V. Kesaev,

- A. N. Putilin, M. S. Kovalev, R. A. Zakoldaev, and S. A. Gonchukov, *Laser Physics Lett.* **19**(6), 065602 (2022).
12. J. D. Mills, P. G. Kazansky, E. Bricchi, and J. J. Baumberg, *Appl. Phys. Lett.* **81**(2), 196 (2002).
 13. F. Flamini, L. Magrini, A. S. Rab, N. Spagnolo, V. D'Ambrosio, P. Mataloni, F. Sciarrino, T. Zandrini, A. Crespi, R. Ramponi, and R. Osellame, *Light Sci. Appl.* **4**(11), 354 (2015).
 14. R. Osellame, H. Hoekstra, G. Cerullo, and M. Pollnau, *Laser Photonics Rev.* **5**(3), 442 (2011).
 15. R. Stoian, C. D'amico, Y. Bellouard, and G. Cheng, *Ultrafast Laser Volume Nanostructuring of Transparent Materials: From Nanophotonics to Nanomechanics*, in R. Stoian and J. Bonse (editors), *Ultrafast Laser Nanostructuring Springer Series, in Optical Sciences*, Springer International Publishing, Cham (2023), v. 239.
 16. G. Shayeganrad, X. Chang, H. Wang, C. Deng, Y. Lei, and P. G. Kazansky, *Opt. Express* **30**(22), 41002 (2022).
 17. E. Bricchi, B. G. Klappauf, and P. G. Kazansky, *Opt. Lett.* **29**(1), 119 (2004).
 18. Y. Shimotsuma, P. G. Kazansky, J. Qiu, and K. Hirao, *Phys. Rev. Lett.* **91**(24), 247405 (2003).
 19. A. Borowiec and H. K. Haugen, *Appl. Phys. Lett.* **82**(25), 4462 (2003).
 20. P. G. Kazansky, E. Bricchi, Y. Shimotsuma, J. Qiu, and K. Hirao, *3D periodic nano-structures in glass irradiated by ultrashort light pulses*, in *Conference on Lasers and Electro-Optics*, IEEE, Baltimore, MD, USA (2005), p. CFG5.
 21. Y. Dai, A. Patel, J. Song, M. Beresna, and P. G. Kazansky, *Opt. Express* **24**(17), 19344 (2016).
 22. Y. Shimotsuma, T. Asai, K. Miura, K. Hirao, and P. G. Kazansky, *Journal of Laser Micro/Nanoengineering* **7**(3), 339 (2012).
 23. E. Casamenti, S. Pollonghini, and Y. Bellouard, *Opt. Express* **29**(22), 35054 (2021).
 24. A. V. Bogatskaya, E. A. Volkova, A. M. Popov, *Subwavelength Plasma Gratings Formation in the Process of Laser Modification in the Volume of Fused Silica*, in *Proceedings of the 12th International Conference on Photonics, Optics and Laser Technology*, Rome, Italy (SciTePress, Setúbal, 2024), v. 1, p. 15.
 25. S. B. Mehta, M. Shribak, and R. Oldenbourg, *J. Opt.* **15**(9), 094007 (2013).
 26. S. Kudryashov, A. Rupasov, R. Zakoldaev, M. Smaev, A. Kuchmizhak, A. Zolot'ko, M. Kosobokov, A. Akhmatkhanov, and V. Shur, *Nanomaterials* **12**(20), 3613 (2022).
 27. N. I. Busleev, A. E. Rupasov, V. V. Kesaev, N. A. Smirnov, S. I. Kudryashov, and R. A. Zakoldaev, *Opt. Spectrosc.* **131**(2), 161 (2023).
 28. А. Е. Рупасов, И. В. Гриценко, Н. И. Буслеев, Г. К. Красин, Ю. С. Гулина, А. В. Богацкая, С. И. Кудряшов, *Оптика и спектроскопия* **132**(1), 83 (2024).