Письма в ЖЭТФ, том 122, вып. 8, с. 484 – 494

Прямая лазерная запись субволновых микроструктур в объеме плавленого кварца жесткосфокусированными лазерными импульсами (Миниобзор)

А. В. Богацкая[+*1)], *Ю. С. Гулина*[*], *А. Е. Рупасов*[*], *Е. А. Волкова*[×], *А. М. Попов*[+*1)], *С. И. Кудряшов*[*]

[+]*Физический факультет, МГУ имени М. В. Ломоносова, 119991 Москва, Россия*

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

[×]*Научно-исследовательский институт ядерной физики им. Д. В. Скобельцына, МГУ имени М. В. Ломоносова, 119991 Москва, Россия*

Поступила в редакцию 17 июля 2025 г.
После переработки 12 сентября 2025 г.
Принята к публикации 12 сентября 2025 г.

В работе представлен подробный анализ процесса формирования микроструктур в объеме плавленого кварца при воздействии жесткосфокусированных лазерных импульсов. Анализ результатов самосогласованного моделирования воздействия одиночного лазерного импульса и формирования электрон-дырочной плазмы совместно с данными эксперимента позволил верифицировать механизм самоорганизации плазмы и связать его с механизмами накопления дефектов в областях плотной плазмы при многоимпульсном воздействии. Была исследована зависимость параметров записанных микроструктур от длины волны, длительности, энергии и экспозиции лазерного импульса, а также проанализирована роль эффектов дефокусировки электронами плазмы, вклад самофокусировки излучения, а также проведены оценки нагрева вещества к концу воздействия лазерного импульса.

DOI: 10.31857/S0370274X25100183

1. Введение. Прямая лазерная запись различных микроструктур в оптически прозрачных материалах с помощью ультракоротких лазерных импульсов активно исследуется в последние годы ввиду широкого спектра возможных их применений в интегральной фотонике [1–5], предпосылками к развитию которой является ряд отработанных технологий записи различных трехмерных элементов в прозрачных диэлектрических материалах [6–9], таких как оптические волноводы различных топологий [10–14], соединители [15], фотонные кристаллы [16–18], элементы 5D оптической памяти (оптические воксели) [19–21]. В настоящее время прогресс в области микро- и нанотехнологий определяется в значительной степени способностью структурировать материалы и создавать субмикронные структуры в двух и трех измерениях с максимальной точностью и минимальными сопутствующими повреждениями. Это стало достижимым с развитием фемтосекундной лазерной техники, позволяющей генерировать цуги ультракоротких фемто- и пикосекундных лазерных импульсов. Процесс воздействия таких импульсов на оптически прозрачные материалы определяется в основном многофотонной ионизацией в объеме диэлектрика, что позволяет создавать локализованные области модификации при минимальном вовлечении тепловых процессов, которые неизбежно ведут к ухудшению характеристик микроструктур. Это становится особенно важным при попытках миниатюризации и интеграции нескольких функций на одном монолитном носителе – фотонном чипе [22].

Идея трехмерных модификаций прозрачных материалов (стеклянных или кристаллических материалов с запрещенной зоной,значительно превышающей энергию фотонов) как движущей силы фотонной интеграции непосредственно связана с использованием ультракоротких импульсов с длиной волны, на которой сам материал является прозрачным. Это позволяет транспортировать лазерное излучение в область фокусировки лазерного пучка без существенных потерь в объеме. Концентрация энергии в пространстве и времени позволяет достигать высоких плотностей потоков энергии (в диапа-

[1)]e-mail: annabogatskaya@gmail.com; alexander.m.popov@gmail.com

зоне ТВт/см^2) в ограниченной области, определяемой числовой апертурой фокусирующего элемента, что позволяет локально ионизировать материал, модифицировать его структуру и, следовательно, его оптические свойства. Как результат, может быть реализован надежный и качественно подходящий метод обработки для изготовления оптических элементов внутри прозрачных материалов с возможностью транспортировки и манипуляции световыми потоками в трех пространственных измерениях.

Необходимость обеспечения прецизионного контроля и воспроизводимости объемных микромодификаций требует постоянного развития, в том числе теоретических методов исследования мультимасштабного процесса взаимодействия мощного лазерного излучения с веществом, ключевой целью которых является поиск новых механизмов и режимов лазерного микроструктурирования. В частности, в последние годы получили широкое распространение оптические материалы на основе полимеров, такие как полиметилметакрилат (ПММА) и поликарбонаты [23–25]. Тем не менее, именно плавленый кварц продолжает занимать лидирующие позиции среди материалов, пригодных для применения в видимой и ближней инфракрасной областях спектра. Ключевыми преимуществами плавленого кварца как оптического материала являются его высокая прозрачность в диапазоне длин волн от 0.4 до 2.0 мкм и структурная однородность [26]. Кроме того, плавленый кварц обладает такими важными свойствами, как устойчивость к радиационному воздействию и высоким температурам, а также стабильность других физико- химических характеристик, что обеспечивает долговечность создаваемых на его основе оптических элементов [27]. Одной из пионерских работ по наблюдению локализованных периодических модификаций в плавленом кварце является работа Казанского [28], в которой впервые была продемонстрирована возможность записи двулучепреломляющих объемных нанорешеток. Последующие многочисленные исследования физики формирования объемных нанорешеток, проведенные рядом научных групп [29–31], выявили несколько основных механизмов микромодификации, таких как интерференция между падающим световым полем и электрическим полем электронной плазменной волны, генерируемой в объеме [29, 32], формирование наноплазменных образований за счет локального усиления поля волны с последующим самоупорядочением в наноплоскости [33–35], а также самозахват и последующая интерференция экситон-поляритонов [36].

Авторами данного обзора был недавно предложен альтернативный механизм самоорганизации плазмы, основанный на интерференции падающей лазерной волны и волны, отраженной (рассеянной) от плотной плазмы, формирующейся в предфокальной области [37, 38]. Ключевым в данном случае является тот факт, что рассеянная плазменным образованием волна имеет сильно неплоский фронт, что будет давать сложные интерференционные паттерны, приводящие к квазипериодическим плазменным структурам в объеме образца. Жесткая фокусировка лазерного пучка в данном случае позволяет формировать локализованную область плотной плазмы, обеспечивающую эффективное рассеяние лазерной волны в отсутствие неоднородностей в объеме вещества. Отметим, что получаемые в рамках предложенного механизма профили плазменных наноструктур хорошо согласуются с СЭМ-изображениями микромодификаций, записанных в объеме плавленого кварца [39], а также кристаллического кварца [40] в режиме накопления дефектов при многоимпульсном воздействии. Сходство образующихся плазменных структур со структурами, записанными в объеме прозрачных диэлектриков при схожих условиях фокусировки лазерного излучения свидетельствует о схожести механизмов начальной (плазменной) стадии наноструктурирования, однако более поздние стадии, связанные с релаксацией электронной подсистемы, последующим охлаждением и термализацией, ведущие в конечном итоге к периодическим изменениям показателя преломления среды, могут зависеть от конкретного материала, что требует отдельного анализа.

В настоящем обзоре приведен детальный анализ особенностей прямой лазерной записи микроструктур в объеме плавленого кварца в условиях жесткой фокусировки. На основе данных эксперимента по характеризации модифицированных областей в кварце при воздействии сфокусированных лазерных импульсов с длинами волн 515 и 1030 нм, с различными длительностями и энергиями и результатов численного моделирования процесса самоорганизации плазмы были выявлены ключевые взаимосвязи между плазменной стадией, инициирующей нагрев и начальную модификацию вещества, и последующими стадиями накопления материальных дефектов в плавленом кварце при различных параметрах лазерного воздействия.

2. Эксперимент по характеризации модифицированных областей в плавленом кварце. Лазерная запись микротреков выполнялась с помощью экспериментальной установки на основе волоконного иттербиевого лазера Satsuma. Центральная длина волны составляет 1030 ± 5 нм с максимальной величиной энергии импульса 10 мкДж, которая может быть преобразована во вторую гармонику 515 нм с максимальной величиной энергии импульса 3 мкДж. Излучение фокусировалось в объеме образцов с помощью микрообъектива с числовой апертурой NA = 0.45, при варьировании параметров лазерного излучения записывались микрообласти. Образец перемещался с помощью автоматизированного трехосевого линейного транслятора Prior. Длительность импульсов измерялась с помощью сканирующего интерференционного автокоррелятора Avesta AA-10 DD-12 PS. В работе использовался коммерчески доступный плавленый кварц КУ-1 (ООО "Электростекло"). Плавленый кварц прозрачен в диапазоне от 170 до 2600 нм. Используемая пластина плавленого кварца имела толщину 3 мм, все стороны образца были отполированы.

Записанные микротреки исследовались с помощью автоматизированной системы измерения двулучепреломления Thorlabs. Система позволяет выполнять измерения фазового сдвига в образце до 1800 и азимута до 900. Источник – лазер на длине волны 633 нм. Сканирующая электронная микроскопия (СЭМ) поперечного сечения отдельных микроскопических двулучепреломляющих микротреков внутри объемных материалов была выполнена с использованием электронного микроскопа VEGA 3 (TESCAN), латеральное разрешение 2 нм. Фотолюминесцентные исследования двулучепреломляющих микротреков были проведены с использованием конфокального лазерного сканирующего микроскопа (Confotec MR520, SOL Instruments), в качестве источника использовался лазер с длиной волны 532 нм. Конфокальная схема позволяет собирать сигнал только из фокуса, что дает возможность исследовать микротреки с пространственным разрешением. Спектры пропускания модифицированных областей были получены с использованием микроскопа-спектрофотометра ЛОМО МСФУ-К.

Одной из основных характеристик модифицированных при помощи жесткосфокусированного лазерного излучения областей является наведенное двулучепреломление, суть которого заключается в способности материала разделять входящий световой луч на два луча с разными скоростями распространения и направлениями поляризации. Направление оптической оси определяется формируемой подструктурой микротрека. Таким образом, двулучепреломляющий микротрек работает по аналогии с одноосным отрицательным кристаллом. На рисунке 1 представлены

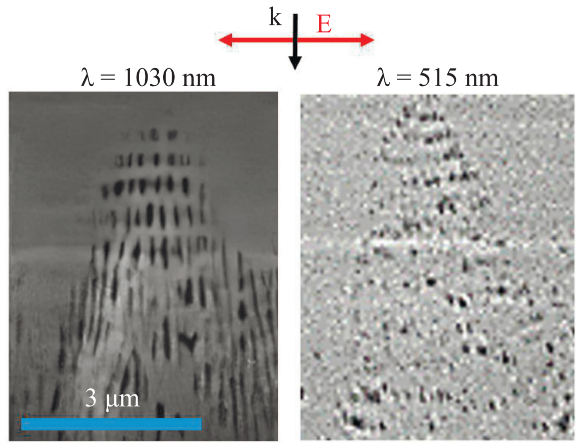

Рис. 1. (Цветной онлайн) Визуализация сечения микротреков с помощью СЭМ: левый рисунок: $\lambda = 1030$ нм, $\tau = 0.3$ пс, NA = 0.45; правый рисунок: $\lambda = 515$ нм, $\tau = 0.3$ пс, NA = 0.45

сечения двулучепреломляющих микротреков, визуализированные с помощью СЭМ. СЭМ-изображения явно демонстрируют формирование субволновых модификаций в виде плоскостей, направленных как перпендикулярно вектору напряженности записывающего электрического поля, так и вдоль направления распространения лазерного пучка (рис. 1). При этом направление медленной оси микротрека совпадает с вектором напряженности электрического поля лазера.

На рисунке 2 приведены зависимости величины оптической разности хода от энергии в импульсе для двух длин волн (515 и 1030 нм) и различных длительностей записывающего лазерного импульса. Из рисунка 2а видно, что значения оптической разности хода отличаются для двух длин волн, конкретно, для 515 нм имеем большее значение разности хода. Это можно объяснить более высокой скоростью ионизации в объеме кварца в случае коротковолнового излучения, что связано с меньшим порядком многофотонности процесса (так, для 515 нм в плавленом кварце имеем четырех фотонную ионизацию, для 1030 нм – восьмифотонную). Это ведет к более эффективному накоплению дефектов при многоимпульсном воздействии на длине волны 515 нм. Кроме того, при больших энергиях импульса можно наблюдать сближение кривых с одновременным выходом на насыщение процесса накопления дефектов. Наиболее выраженный эффект насыщения наблюдается на рис. 2с, где приведены данные о динамике накопления дефектов в зависимости от экспозиции (числа импульсов в точку). Так, для более высокоэнергетичного импульса наведенная разность хода стаби-

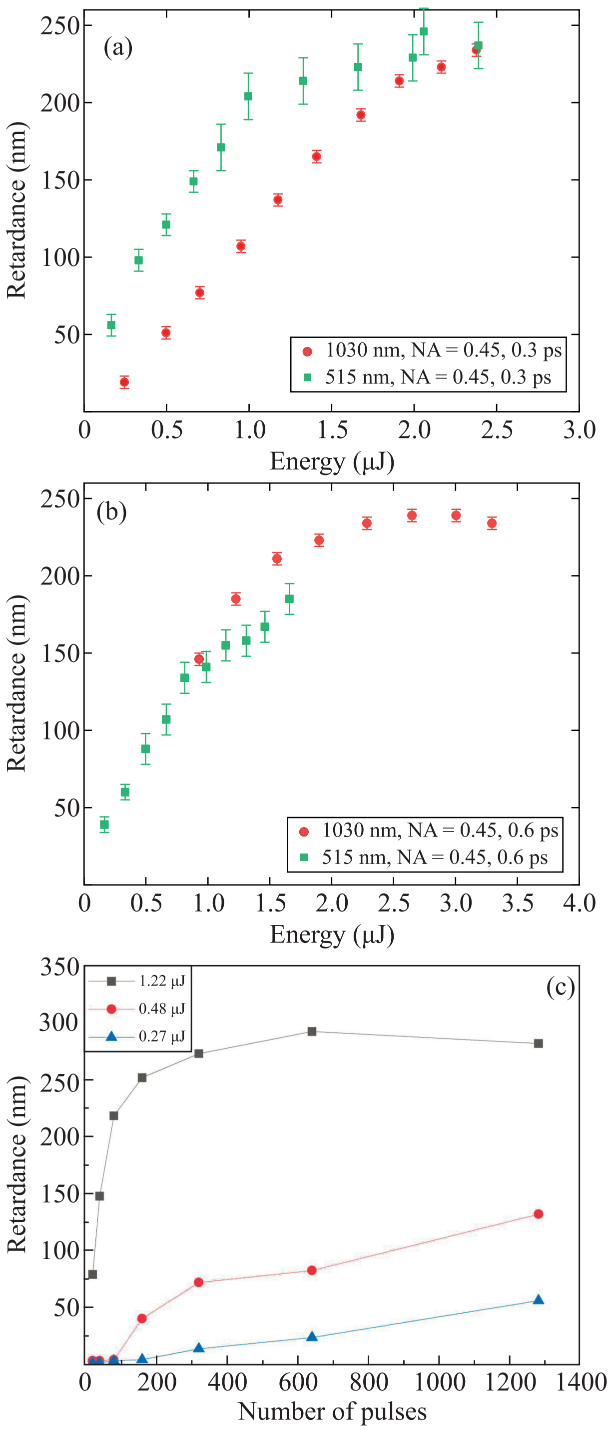

Рис. 2. (Цветной онлайн) Зависимость оптической разности хода от энергии записывающего импульса линейной поляризации с длиной волны 515 и 1030 нм для двух значений длительности импульса (0.3 пс (a) и 0.6 пс (b)) и числа импульсов в точку $N = 1300$. Зависимость оптической разности хода от числа импульсов (N) в точку для трех различных значений энергии импульса с длиной волны 1030 нм (см. легенду) (c)

лизируется, начиная с ~ 100 импульсов в точку. Как будет показано в дальнейшем в рамках последовательного численного моделирования, сильная дефокусировка излучения электронами плазмы не позволяет достигать более высоких интенсивностей в фокальной зоне с ростом энерговклада – как следствие, скорость рождения электронов не возрастает и стабилизируется на уровне $\sim 10^{20}$ см$^{-3}$ за импульс. Это означает, что при одноимпульсном воздействии происходит разрыв 1 % молекулярных связей в плавленом кварце, поэтому для разрыва всех связей в зонах максимума полевой ионизации потребуется порядка сотни импульсов. Что касается данных рис. 2b, в данном случае с ростом длительности импульса начинают работать процессы лавинной ионизации. Поскольку сечение обратного тормозного эффекта возрастает с длиной волны излучения, нагрев электронов при сопоставимой интенсивности будет эффективнее идти в случае более длинноволнового импульса. Таким образом, возрастание роли ударной ионизации в размножении электронов в случае длины волны 1030 нм может компенсировать их более медленное рождение при многофотонной ионизации. Этот факт позволяет объяснить меньшее различие измеренных разностей хода для рассматриваемых длин волн для более длинного импульса (см. рис. 2b). На рисунке 3 приведена зависимость длины микротре-

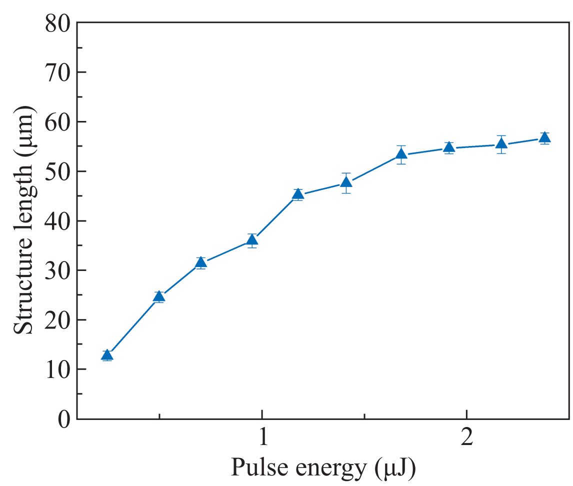

Рис. 3. (Цветной онлайн) Зависимость длины микротреков от энергии лазерного импульса с длиной волны 1030 нм. Длительность импульса 0.3 пс, NA = 0.45

ков от энергии записывающего импульса при длительности импульса 0.3 пс. Здесь можно наблюдать рост длины микротреков с увеличением энерговклада, обусловленный увеличением зоны эффективного взаимодействия лазерного импульса с объемом вещества. Анализ плазменных профилей, формируемых в процессе воздействия одиночного лазерного импульса, приведенный в разделе 3, свидетельствует о хорошем согласии продольных размеров плазменных структур с наблюдаемыми в эксперименте длинами микротреков.

Сравнение спектров фотолюминесценции исходного плавленого кварца и модифицированных лазерным излучением микротреков, приведенное на рис. 4, свидетельствует о формировании в результате лазерного воздействия широкой полосы излучения в диапазоне длин волн 550–850 нм. Появление этой полосы связано с возникновением радиационных центров окраски NBOHC (Non-Bridging Oxygen Hole Center) [41, 42]. Эти центры образуются в результате разрыва немостиковых связей кислорода и кремния в структуре кварца под воздействием мощного лазерного излучения. Разрыв таких связей приводит к образованию дефектов в кристаллической решетке, которые в конечном итоге (в процессе накопления) влияют на оптические свойства материала, в частности изменяют его показатель преломления и снижают пропускающую способность.

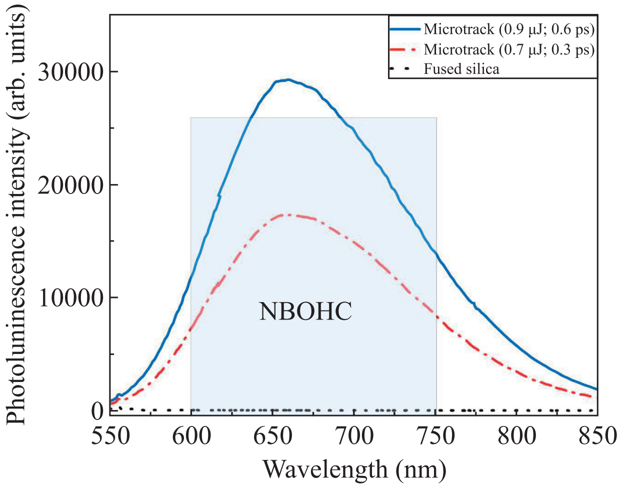

Рис. 4. (Цветной онлайн) Спектры фотолюминесценции центров NBOHC в области формирования двулучепреломляющих микротреков в плавленом кварце ($\lambda = 1030$ нм, частота следования импульсов 100 кГц, $\tau = 0.3$ пс, NA = 0.45)

3. Численное моделирование воздействия жесткосфокусированного лазерного импульса в объеме плавленого кварца. Как известно, процесс прямой лазерной записи инициируется за счет рождения фотоиндуцированной плазмы, релаксация которой определяет механизмы последующего дефектообразования. Для выявления ключевых закономерностей физики самоорганизации и накопления материальных дефектов в данном разделе мы приводим численный самосогласованный анализ образования лазерной плазмы в объеме плавленого кварца под действием жесткосфокусированного одиночного лазерного импульса.

В основе моделирования лежит волновое уравнение второго порядка в цилиндрической геометрии для сфокусированного линейно поляризованного лазерного импульса, распространяющегося в материале:

$$\frac{1}{\rho}\frac{\partial}{\partial\rho}\rho\frac{\partial E}{\partial\rho} + \frac{\partial^2 E}{\partial z} = \frac{n^2}{c^2}\frac{\partial^2 E}{\partial t^2} + \frac{4\pi}{c^2}\frac{\partial j}{\partial t}. \tag{1}$$

В этом уравнении $E = E(\rho, z, t)$ характеризует напряженность электрического поля лазерного импульса, распространяющегося вдоль оси z, n – показатель преломления плавленого кварца, который включает линейную и нелинейную части: $n = n_0 + n_2 I$. Здесь $n_0 = 1.45$ – линейная часть показателя преломления, $n_2 I$ – нелинейная добавка к показателю преломления, где $I = I(\rho, z, t)$ – интенсивность излучения лазера, определяемая усредненным по периоду значением квадрата поля $I = c\langle E^2\rangle/4\pi$. Согласно [43] мы полагаем $n_2 = 2.23 \times 10^{-16}$ см^2/Вт. Второй член $j(\rho, z, t)$ в правой части уравнения (1) – индуцированный полем электронный ток. Этот ток включает в себя вклад поляризации носителей заряда в зоне проводимости, а также ионизации, вызванной переходами из валентной зоны в зону проводимости. Оба этих тока зависят от эволюции электронной плотности $n_e(\rho, z, t)$ в зоне проводимости, описываемой следующим уравнением:

$$\frac{\partial n_e}{\partial t} = D\left(\frac{1}{\partial}\frac{\partial}{\partial\rho}\rho\frac{\partial n_e}{\partial\rho} + \frac{\partial^2 n_e}{\partial z^2}\right) + W_i(I)(N_0 - n_e) + \\ + v_i(I)n_e\left(1 - \frac{n_e}{N_0}\right) - \frac{n_e}{\tau_r}. \tag{2}$$

Здесь $D \approx 300$ см^2/с – коэффициент диффузии электронов, оцененный аналогично работе [44], $\tau_r = 150$ фс – характерное время рекомбинации электронов [45], $W_i(I)$ и $v_i(I)$ – скорости полевой и ударной ионизации соответственно (нелинейная ионизация полем рассматривается в рамках теории Келдыша [46, 47]), $N_0 = 2.1 \cdot 10^{22}$ см$^{-3}$ – плотность атомов в плавленом кварце. Ток ионизации связан с плотностью электронов следующим образом:

$$j_{\text{ion}}(\rho, z, t) = \frac{I_i}{\langle E\rangle}\frac{\partial n_e}{\partial t} = \\ = \frac{I_i}{\langle E\rangle}W_i(I(\rho, z, t))(N_0 - n_e(\rho, z, t)), \tag{3}$$

где $\langle E\rangle$ – усредненное по периоду поле $|E(\rho,z,t)|$. Ток поляризации $j_p(\rho,z,t)$ рассчитывается в рамках модели Друде:

$$\frac{\partial j_p}{\partial t}+v_{tr}j_p=\frac{e^2n_e}{m^*}E(\rho,z,t). \tag{4}$$

Здесь $v_{tr}\approx 10^{14}\,\text{с}^{-1}$ – транспортная частота столкновений. Общий ток в уравнении (1) выражается:

$$j=j_p+j_{\text{ion}}. \tag{5}$$

Частота ударной ионизации в уравнении (2) определяется выражением [48]:

$$v_i(I)=\frac{1}{I_i}\frac{4\pi e^2 I(\rho,z,t)v_{tr}}{m^*cn_0(\omega^2+v_{tr}^2)}. \tag{6}$$

Здесь $m^*=0.5m_e$ – эффективная масса носителей заряда в плавленом кварце, $\omega\approx 1.83\times10^{15}$ и $3.66\times10^{15}\,\text{с}^{-1}$ – частота лазера, соответствующая длинам волн $\lambda_0=1030$ и 515 нм соответственно.

В наших расчетах мы используем лазерные импульсы с гауссовыми радиальными профилями в фокальной плоскости $z=0$ ($E\sim\exp(-(\rho/\rho_0)^2)$ и временной огибающей ($E\sim E_0\sin^2\left(\frac{\pi t}{\tau_p}\right)$, $t\in(0,\tau_p)$). Более подробно процедура задания импульса для интегрирования уравнения (1) описана в [38]. Радиус фокального пятна варьировался в пределах $\rho_0=1.7$ мкм до 3 мкм, длительность импульса – $\tau_p=12.5{-}75$ фс. Эти параметры соответствуют фокусировке лазерного импульса в объеме плавленого кварца в отсутствие свободных носителей заряда. Пространственная длина импульса лежит в пределах $l_p=(c/n_0)\tau_p\sim 2.5{-}15$ мкм. Для импульсов длительностью 50 фс и фокальным радиусом $\rho_0=2.5$ мкм диапазон энергий был выбран в пределах 0.024–0.34 мкДж, что позволяет получать в фокальной плоскости пиковые интенсивности в диапазоне $\sim5\times10^{12}{-}7\times10^{13}$ Вт/см^2 (здесь мы снова пренебрегаем рождением электронов в фокальной области, приводящим к дефокусировке пучка, как следствие, уменьшению интенсивности в центре). Для рассматриваемых параметров импульса скорость полевой ионизации доминирует по сравнению с ионизацией электронным ударом [47]. Таким образом, электронная лавина, обычно наблюдаемая в процессах пробоя в газах и твердых телах в микросекундном и наносекундном временных масштабах, в данном случае не определяет динамику плазмообразования. Уравнения (1) и (2) решались совместно в пространственной области $\{\rho,z\}=\{0\div\rho_0,L_1\div L_2\}$ с $\rho_0=30$ мкм и $L_1=-30$ мкм, $L_2=90$ мкм. При этом фокальная плоскость находится в точке $z=0$ (в отсутствие плазмообразования). В начальный момент времени импульс располагается вблизи точки $z_0\approx75$ мкм и движется в отрицательном направлении оси z.

4. Обсуждение результатов численного моделирования и эксперимента. Начнем наш анализ с данных по фокусировке лазерного импульса при распространении в объеме плавленого кварца. На рисунке 5 представлены результаты численного

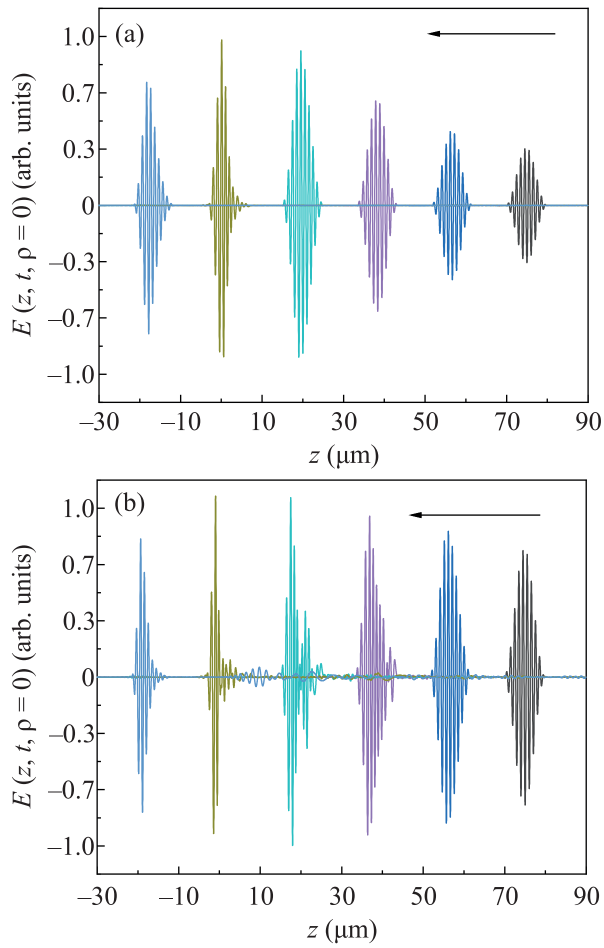

Рис. 5. (Цветной онлайн) Осевые распределения электрического поля в различные моменты времени (временные интервалы ~0.1 пс). Импульс движется справа налево и фокусируется в точке $z=0$ мкм. Пиковая интенсивность импульса составляет 10^{13} Вт/см^2 (a), $5\cdot10^{13}$ Вт/см^2 (b). Радиус фокального пятна $\rho_0=2.5$ мкм, длительность импульса 50 фс

моделирования распределения поля на оси канала для двух значений пиковой интенсивности лазера. Видно, что при более высоких интенсивностях излучения в предфокальной области возникает отраженный импульс излучения, сопровождаемый сильной дефокусировкой лазерного пучка, что обусловлено образованием плотной плазмы в предфокальной области. Действительно, для интенсивности излучения $5 \cdot 10^{13}$ Вт/см^2 в предфокальной области достигаются значения электронной плотности более 10^{20} см$^{-3}$, (см. рис. 6). В этом случае электроны плазмы эффективно рассеивают лазерное излучение, что приводит к появлению квазирегулярных плазменных структур в направлении осей ρ и z. Процесс упорядочивания плазменных структур можно объяснить когерентной интерференцией между падающей волной в предфокальной области (здесь волновой фронт с хорошей точностью можно считать плоским) и существенно неплоской волной, рассеянной плотным плазменным образованием [37]. Казалось бы, предложенный механизм интерференции должен обеспечивать регулярную структуру с периодом, равным половине длины волны излучения в плавленом кварце. В действительности период оказывается больше, а образующаяся структура не является абсолютно регулярной. С нашей точки зрения, это различие обусловлено существенно неоднородным по пространству электронным вкладом в показатель преломления образца: например, при электронной плотности $\sim 3 \times 10^{20}$ см$^{-3}$, которая достигается в предфокальной области, показатель преломления $n' \approx \sqrt{n^2 - \omega_p^2/\omega^2} \sim 1.2$ (ω_p^2 – квадрат плазменной частоты) меньше n, что сильно влияет на наблюдаемый период. Плазменные профили микроструктур с хорошей точностью повторяют СЭМ-визуализацию сечений микротреков, характеризующую финальные материальные дефекты, накопленные при многоимпульсном воздействии (см. рис. 1). Несмотря на то, что эксперимент проводился с использованием более длинных импульсов, процесс рождения и последующей релаксации электрон-дырочной плазмы в условиях жесткой фокусировки слабо зависит от длительности импульса, а определяется длиной Рэлея. Кроме того, ряд экспериментальных данных, полученных независимо, в том числе с использованием более коротких лазерных импульсов [49], демонстрирует схожую морфологию образования дефектов, что свидетельствует о применимости предлагаемой модели. Здесь, однако, стоит иметь в виду, что в условиях сильной нелинейности процесса ключевым параметром, определяющим начальную стадию модификации, является интенсивность излучения, которую оказывается проблематично определить в условиях эксперимента. Эксперимент продемонстрировал, что область наблюдаемой модификации образца удалена от положения фокальной плоскости на расстояние порядка 20–30 мкм [39]. Это объясняется тем, что при высоких интенсивностях лазерного воздействия образование плазмы и дефокусировка пучка происходит уже в предфокальной зоне, как следствие, положение наблюдаемого фокуса и размеры фокального пятна сильно отличаются от рассчитанных в отсутствие электронов. Как было упомянуто выше в разделе 2, остаточные материальные дефекты связаны с формированием радиационных центров окраски NBOHC, которые наиболее эффективно образуются в зонах плотной плазмы за счет многочисленного разрыва немостиковых связей кислорода и кремния.

На рисунке 6 также представлены результаты анализа влияния кубической нелинейности на формирование плазменных микроструктур. По оценкам, при отсутствии электронного вклада порог самофокусировки в плавленом кварце для длины волны 1030 нм составляет около 4.5 МВт [50]. Однако, из-за сильной дефокусировки электронами плазмы вклад самофокусировки, вызванной нелинейным показателем преломления, практически не влияет на общую картину самоорганизации плазмы. Как видно из данных, представленных на рис. 6, учет нелинейности показателя преломления приводит к небольшому увеличению концентрации электронов в приосевой зоне вблизи фокальной плоскости. В [38] было обращено внимание на тот факт, что из-за существенной дефокусировки пучка электронами плазмы рост энерговклада не приводит к существенному росту концентрации носителей в околофокальной зоне, как следствие, концентрация электронов не достигает критических значений.

Влияние электронов на фокусировку пучка можно наблюдать на рис. 7, где представлена зависимость среднего радиуса лазерного импульса при его распространении для различных значений интенсивности. Средний радиус пучка определялся согласно выражению:

$$\langle \rho \rangle = \frac{\int E^2(\rho, z, t)\rho^2 d\rho dz}{\int E^2(\rho, z, t)\rho d\rho dz}. \qquad (7)$$

Координатная шкала соответствует перемещению импульса справа налево от начального положения (($z_0 = 75$ мкм) в направлении фокальной плоскости ($z = 0$). Черная кривая с квадратными символами соответствует фокусировке низкоэнергетичного импульса в отсутствие существенной ионизации (рис. 7). Видно, что увеличение энергии импульса приводит к увеличению наблюдаемого размера пучка и смещению положения фокуса относительно ожидаемого (положение фокуса в данном случае определяется минимальным значением $\langle \rho(t) \rangle$). Увеличение размера фокального пятна приводит к

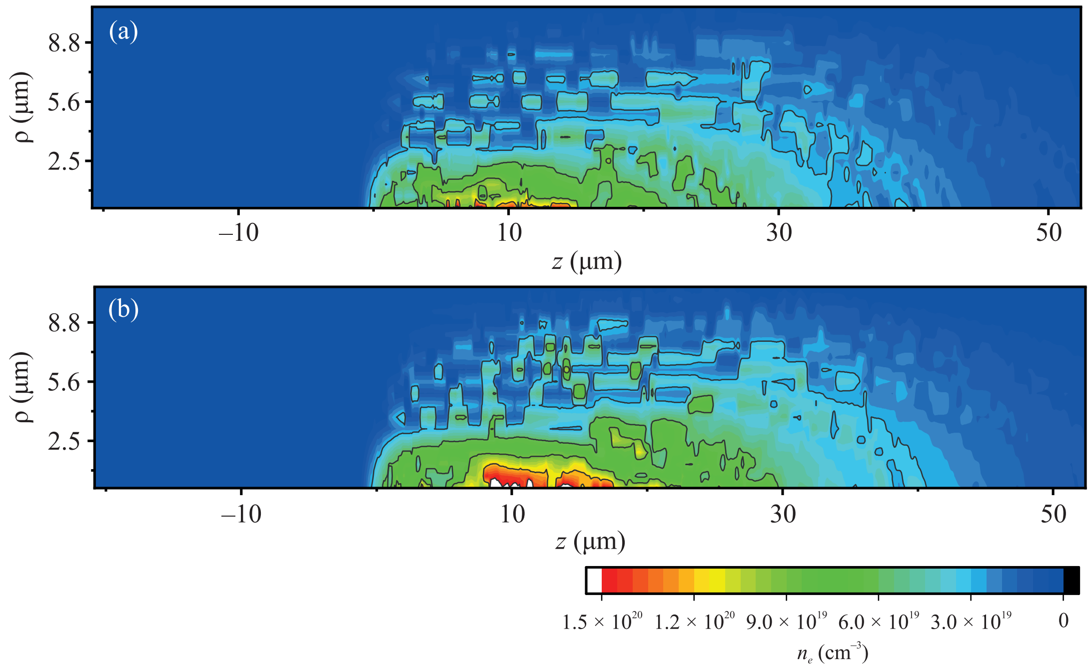

Рис. 6. (Цветной онлайн) Профили электронной плотности в объеме плавленого кварца при воздействии лазерного импульса с длиной волны $\lambda_0 = 1030$ нм, длительностью 50 фс и пиковой интенсивностью $5 \cdot 10^{13}$ Вт/см^2 (энергия импульса 0.24 мкДж). Рисунок (a) иллюстрирует случай отсутствии эффекта самофокусировки, рисунок (b) – с учетом эффекта самофокусировки. Радиус фокального пятна $\rho_0 = 2.5$ мкм, положение фокальной плоскости 0 мкм

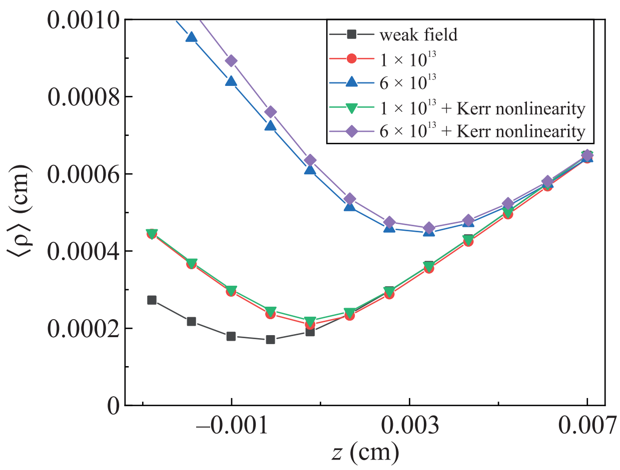

Рис. 7. (Цветной онлайн) Радиальный размер пучка $\langle\rho\rangle$ при его распространении для различных интенсивностей импульса (в Вт/см^2) с учетом/без учета керровской нелинейности (см. легенду графика). Координатная шкала соответствует перемещению импульса справа налево от начального положения ($z_0 = 75$ мкм) до положения фокальной плоскости ($z = 0$). Длина волны излучения 1030 нм, радиус фокальной перетяжки в отсутствие электронов $\rho_0 = 2.5$ мкм, длительность импульса 50 фс

уменьшению пиковой интенсивности пучка, в результате чего происходит насыщение ионизации в объеме образца. Стоит отметить, что этот эффект неоднократно отмечался в ряде работ по воздействию сфокусированного излучения на твердые диэлектрики [51, 52]. Как было упомянуто ранее (см. раздел 2), насыщение ионизации с ростом энерговклада позволяет объяснить насыщение кривых наблюдаемой разности хода с ростом энерговклада, а также с ростом числа импульсов в точку, приведенных на рис. 2a, c.

В рамках исследования был также проведен анализ формирования плазменных микроструктур при воздействии сфокусированного излучения с длиной волны 515 нм (рис. 8). Параметры лазерного излучения (фокусировка, энергия импульсов) были взяты аналогично параметрам, соответствующим длине волны 1030 нм. Как видно, полученные профили плазменных микроструктур характеризуются меньшей регулярностью плазмообразования по сравнению с данными для 1030 нм. Аналогично, полученные профили СЭМ-изображений модифицированных областей демонстрируют менее выраженную самоорганизацию дефектов (см. рис. 1). Авторы полагают, что это связано с меньшим порядком многофотонности процесса (для случая 515 нм в кварце имеем четырехфотонную ионизацию), что приводит к более плавной зависимости вероятности ионизации от интенсивности воздействующего излучения, и, как следствие, ухудшает локализованность плазмообразования в областях максимума напряженно-

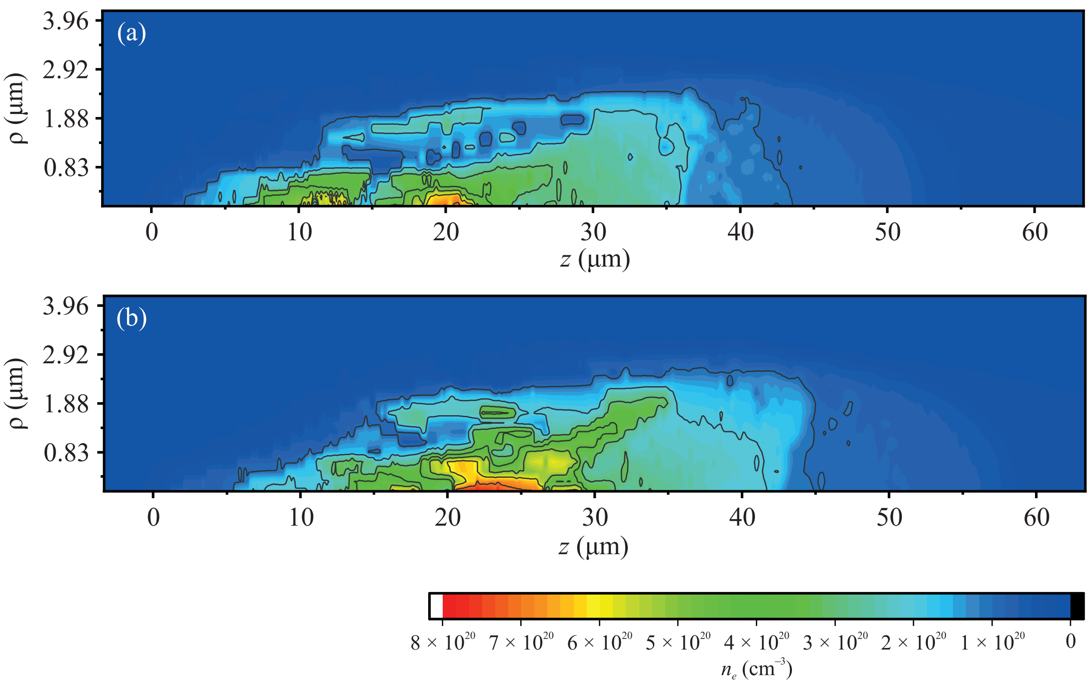

Рис. 8. (Цветной онлайн) Профили электронной плотности в объеме плавленого кварца при воздействии лазерного импульса с длиной волны $\lambda_0 = 515$ нм, длительностью 50 фс и пиковой интенсивностью $5 \cdot 10^{13}$ Вт/см^2 (энергия импульса 0.24 мкДж). Рисунок (a) иллюстрирует случай отсутствии эффекта самофокусировки, рисунок (b) – с учетом эффекта самофокусировки. Радиус фокального пятна $\rho_0 = 1.75$ мкм, положение фокальной плоскости 0 мкм

сти поля. Что касается достигаемых в предфокальной области концентраций электронов, для длины волны 515 нм они оказываются в несколько раз больше, чем для длины волны 1030 нм при сопоставимых интенсивностях воздействия. Например, для интенсивности излучения 5×10^{13} Вт/см^2 при $\lambda = 515$ нм достигается значение концентрации $\sim 8 \times 10^{20}$ см$^{-3}$, тогда как для $\lambda = 1030$ нм имеем $\sim 2 \times 10^{20}$ см$^{-3}$. Это обстоятельство обусловлено меньшей рефракционной способностью электронной компоненты плазмы на частоте второй гармоники. В данном случае, так же, как и для длины волны 1030 нм, учет самофокусировки позволяет лишь незначительно увеличить концентрацию электронов в приосевой зоне, что ведет к большему значению доли поглощаемой энергии. В частности, достижение более высоких концентраций при одноимпульсном воздействии излучения с длиной волны 515 нм позволяет объяснить большие значения разности хода для обыкновенной и необыкновенной волн, пропускаемых через модифицированный более коротковолновым излучением образец (см. рис. 2a): разрыв молекулярных связей, который непосредственно связан с остаточной модификацией образца, будет идти эффективнее в случае излучения с длиной волны 515 нм, что приведет к более быстрому накоплению дефектов (в частности, из рис. 2a видно, что порог модификации (ненулевое значение разности хода) для излучения с длиной волны 515 нм оказывается ниже).

В заключение приведем оценки на нагрев объема вещества к концу воздействия одиночного лазерного импульса. Количество энергии, поглощенной в единице объема к концу лазерного импульса, можно рассчитать по формуле:

$$Q(\rho, z, t) = 8 \times \hbar\omega \times \int_0^t \left(\frac{dn_e}{dt}\right)_+ dt, \tag{8}$$

где $\left(\frac{dn_e}{dt}\right)_+ = W_i(I(\rho,z,t))(N_0 - n_e) + v_i(I) n_e \left(1 - \frac{n_e}{N_0}\right)$ определяет скорость рождения электронов в процессах многофотонной и лавинной ионизации. Пренебрегая процессами диффузии электронов и теплопереноса на временах воздействия лазерного импульса (время диффузии можно оценить как $t_{dif} \sim \frac{l^2}{2D} \approx$ $\approx 1.5 \cdot 10^{-11}$ с, $l \sim 10^{-4}$ см – характерный масштаб плазменных микроструктур), получим:

$$T(\rho, z) = \frac{Q(\rho, z, t_{\max})}{\rho c}, \tag{9}$$

где $c = 1.705$ Дж/г$\cdot$K, $\rho = 2.2$ г/см^3 – удельная теплоемкость и плотность плавленого кварца соответственно. Оценки показали, максимальный нагрев в зоне формирования микроструктур оказывается $\sim 250\,^{\circ}$C, что существенно меньше температуры плавления аморфного плавленого кварца ($\sim 1700\,^{\circ}$C). Таким образом, разрыв молекулярных связей и формирование наблюдаемых центров окраски (NBOHC) происходит без существенного нагрева и плавления образца, что позволяет получать локализованные дефекты. Здесь стоит отметить, что эксперимент проводился при больших длительностях импульса (~ 300 фс), поэтому в данном случае роль тепловых процессов может оказаться существеннее. С одной стороны, рост длительности импульса при сохранении интенсивности будет приводить к увеличению области эффективного энерговклада, однако данные численного моделирования, приведенные на рис. 9, демонстрируют насыщение доли поглощаемой энергии с увеличением длительности. Это может быть следствием сильного рассеяния и дефокусировки лазерного излучения электронами плазмы (рис. 7), что приводит к насыщению ионизации в фокальной зоне и, в свою очередь, не позволяет получать более высокие концентрации электронов.

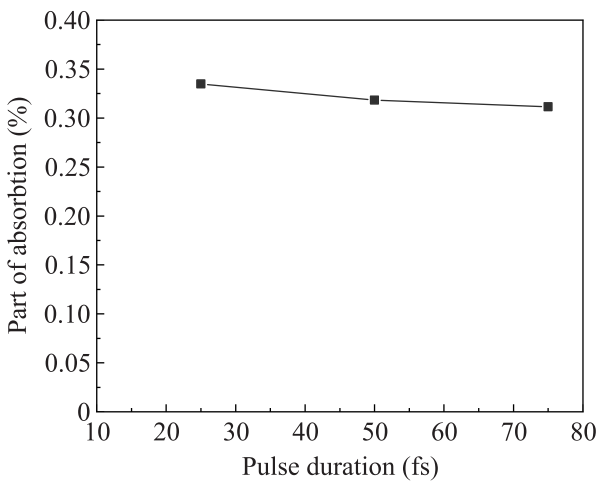

Рис. 9. Доля поглощаемой энергии в процессе воздействия сфокусированного лазерного импульса в зависимости от длительности. Длина волны излучения 1030 нм, радиус фокального пятна в отсутствие плазмы $\rho_0 = 2.5$ мкм, пиковое значение интенсивности пучка в отсутствие образования плазмы – 5×10^{13} Вт/см^2

Заключение. В работе был проведен комплексный анализ физики формирования квазирегулярных микроструктур при воздействии жесткосфокусированного лазерного излучения в объеме плавленого кварца. Синергия теоретических и экспериментальных подходов позволила выявить новый механизм самоорганизации плазмы,ведущий при многоимпульсном воздействии к индуцированным квазипериодическим материальным изменениям в объеме образца, и определить возможные механизмы остаточной модификации, а также оптимальные параметры лазерного излучения для создания наиболее контрастных структур.

Дальнейшее развитие данного исследования может быть связано с возможностью контролируемой лазерной записи объемных периодических микроструктур, что позволит получать точно воспроизводимые массивы двулучепреломляющих нанорешеток различных морфологий. Этого можно добиться путем управления интерференционной картиной лазерного поля в околофокальной области (например, в присутствии дополнительных отражателей, нанесенных на образец плавленого кварца,либо скрещенных лазерных пучков), что в свою очередь позволит управлять процессом самоорганизации плазмы и финальных материальных структур.

Финансирование работы. Работа выполнена при поддержке гранта Российского научного фонда (проект # 22-72-10076-П).

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

1. A. M. Kowalevicz, V. Sharma, E. P. Ippen, J. G. Fujimoto, and K. Minoshima, Opt. Lett. **30**, 1060 (2005).
2. E. Pelucchi, G. Fagas, I. Aharonovich, D. Englund, E. Figueroa, Q. Gong, H. Hannes, J. Liu, C.-Y. Lu, N. Matsuda, J.-W. Pan, F. Sciarrino, C. Silberhorn, J. Wang, and K. Xu, Nat. Rev. Phys. **4**, 194 (2022).
3. B. Zhang, Z. Wang, D. Tan, and J. Qiu, PhotoniX **4**, 24 (2023).
4. D. Tan, Z. Wang, B. Xu, and J. Qiu, Advanced Photonics **3**(2), 024002 (2021).
5. Y. Jia and F. Chen, APL Photonics **8**, 090901 (2023).
6. T. Meany, M. Grafe, R. Heilmann, A. Perez-Leija, S. Gross, M. J. Steel, M. J. Withford, and A. Szameit, Laser Photonics Rev. **9**(4), 363 (2015).
7. K. Sun, C. Fang, D. Wang, Z. Gu, Z. Liu, and J. Zhou, Science **375**(6578), 307 (2022).
8. F. Chen and J. R. V. de Aldana, Laser Photonics Rev. **8**(2), 251 (2014).
9. F. Lenzini, N. Gruhler, N. Walter, and W. H. P. Pernice, Advanced Quantum Technologies **1**(3), 1800061 (2018).
10. M. Ams, G. D. Marshall, D. J. Spence, and M. J. Withford, Opt. Express **13**(15), 5676 (2005).
11. S. Sowa, W. Watanabe, T. Tamaki, J. Nishii, and K. Itoh, Opt. Express **14**(1), 291 (2006).
12. G. D. Marshall, A. Politi, J. C. F. Matthews, P. Dekker, M. Ams, M. J. Withford, and J. L. O'Brien, Opt.Express **17**(15), 12546 (2009).

13. Я. В. Карташов, С. К. Иванов, Й. Ч. Жанг, С. А. Журавицкий, Н. Н. Скрябин, И. В. Дьяконов, А. А. Калинкин, С. П. Кулик, В. О. Компанец, С. В. Чекалин, В. Н. Задков, УФН **194**, 1159 (2024).
14. N. N. Skryabin, S. A. Zhuravitskii, I. V. Dyakonov, A. A. Kalinkin, S. S. Straupe, and S. P. Kulik, Phys. Rev. Applied **22**, 064079 (2024).
15. C.-Y. Wang, J. Gao, and X.-M. Jin, Opt. Lett. **44**, 102 (2019).
16. T. Xu, K. Switkowski, X. Chen, S. Karpienko, G. Chen, H. Liu, and J. Liu, Nat. Photonics **12**, 591 (2018).
17. D. Wei, C. Wang, X. Xu, H. Wang, Y. Zhang, Y. Gao, and F. Li, Nat. Commun. **10**, 4193 (2019).
18. D. Wei, C. Wang, H. Wang, X. Hu, D. Wu, Y. Gao, and F. Li, Nat. Photonics **12**, 596 (2018).
19. J. Zhang, M. Gecevicius, M. Beresna, and P. G. Kazansky, Phys. Rev. Lett. **112**, 033901 (2014).
20. Y. Lei, M. Sakakura, L. Wang, Y. Yu, H. Wang, G. Shayeganrad, and P. G. Kazansky, Optica **8**, 1365 (2021).
21. H. Wang, Y. Lei, L. Wang, M. Sakakura, Y. Yu, G. Shayeganrad, and P. G. Kazansky, Laser Photonics Rev. **16**(4), 2100563 (2022).
22. D. Zhu, L. Shao, M. Yu, R. Cheng, B. Desiatov, C. J. Xin, Y. Hu, J. Holzgrafe, and M. Loncar, Adv. Opt. Photonics **13**, 242 (2021).
23. K. Naessens, H. Ottevaere, P. van Daele, and R. Baets, Appl. Surf. Sci. **208**(1), 159 (2003).
24. H.-T. Hsieh, V. Lin, J.-L. Hsieh, and G.-D. J. Su, Opt. Commun. **284**(21), 5225 (2011).
25. Z. Ouyang, J. Long, J. Wu, J. Lin, X. Xie, G. Tan, and X. Yi, Opt. Laser Technol. **145**, 107499 (2022).
26. H. Ottevaere, R. Cox, H.-P. Herzig, T. Miyashita, K. Naessens, M. Taghizadeh, R. Volkel, H. Woo, and H. Thienpont, J. Opt. A: Pure Appl.Opt. **8**(7), S407 (2006).
27. J. Berthold, S. Jacobs, and M. Norton, Metrologia **13**(1), 9 (1977).
28. Y. Shimotsuma, P. G. Kazansky, J. R. Qiu, and K. Hirao, Phys. Rev. Lett. **91**, 247405 (2003).
29. N. M. Bulgakova, V. P. Zhukov, and Y. P. Meshcheryakov, Appl. Phys. B **113**(3), 437 (2013).
30. R. Desmarchelier, B. Poumellec, F. Brisset, S. Mazerat, and M. Lancry, World J. Nano Sci. Eng. **5**, 115 (2015).
31. R. Stoian, Appl. Phys. A **126**(6), 438 (2020).
32. Y. Shimotsuma, K. Hirao, J. R. Qiu, and P. G. Kazansky, Mod. Phys. Lett. B **19**, 225 (2005).
33. V. R. Bhardwaj, E. Simova, P. P. Rajeev, C. Hnatovsky, R. S. Taylor, D. M. Rayner, and P. B. Corkum, Phys. Rev. Lett. **96**, 057404 (2006).
34. R. Taylor, C. Hnatovsky, and E. Simova, Laser Photon. Rev. **2**, 26 (2008).
35. A. Rudenko, J.-P. Colombier, and T. E. Itina, Phys. Rev. B **93**, 075427 (2016).
36. M. Beresna, M. Gecevicius, P. G. Kazansky, T. Taylor, and A. Kavokin, Appl. Phys. Lett. **101**, 053120 (2012).
37. A. V. Bogatskaya, E. A. Volkova, and A. M. Popov, Europhys. Lett. **147**(3), 35001 (2024).
38. A. V. Bogatskaya, E. A. Volkova, and A. M. Popov, Appl. Phys. A **131**, 79 (2025).
39. Ю. С. Гулина, А. Е. Рупасов, Г. К. Красин, Н. И. Буслеев, И. В. Гриценко, А. В. Богацкая, С. И. Кудряшов, Письма в ЖЭТФ **119**(9), 638 (2024).
40. F. Zhang, Z. Nie, H. Huang, L. Ma, H. Tang, M. Hao, and J. Qiu,Opt. Express **27**, 6442 (2019).
41. D. L. Griscom, J. Ceram. Soc. Jpn. **99**(1154), 923 (1991).
42. H.-B. Sun, S. Juodkazis, M. Watanabe, S. Matsuo, H. Misawa, and J. Nishii, J. Phys. Chem. B **104**, 3450 (2000).
43. N. Vermeulen, D. Espinosa, A. Ball, and P. Del'Haye, J. Light. Technol. **41**, 1969 (2023).
44. V. B. Gildenburg and I. A. Pavlichenko, Phys. Plasmas **23**, 084502 (2016).
45. P. Audebert, P. Daguzan, A. Dos Santos, J. C. Gauthier, J. P. Geindre, S. Guizard, G. Hamoniaux, K. Krastev, P. Martin, G. Petite, and A. Antonetti, Phys. Rev. Lett. **73**(14), 1990 (1994).
46. L. V. Keldysh, Sov. Phys. JETP **20**, 1307 (1964).
47. A. Bogatskaya, Y. Gulina, N. Smirnov, I. Gritsenko, S. Kudryashov, and A. Popov, Photonics **10**, 515 (2023).
48. Y. P. Raizer, *Laser-Induced Discharge Phenomena*, Consultants Bureau, N.Y. (1977).
49. P. Corkum, C. Rolland, and T. Srinivasan-Rao, Phys. Rev. Lett. **57**, 2268 (2005).
50. А. В. Богацкая, А. М. Попов, Оптика и спектроскопия **132**(1), 47 (2024).
51. A. M. Zheltikov, JETP Lett. **90**, 90 (2009).
52. A. Rudenko, J. V. Moloney, and P. Polynkin, Phys. Rev. Appl. **20**, 064035 (2023).