

06

## Измерение коэффициента двухфотонного поглощения ультракоротких лазерных импульсов с длиной волны 1030 нм на центрах окраски природного алмаза

© Ю.С. Гулина

Физический институт им. П.Н. Лебедева,  
119991 Москва, Россия  
e-mail: julia-sg@yandex.ru

Поступила в редакцию 20.12.2021 г.

В окончательной редакции 20.12.2021 г.

Принята к публикации 30.12.2021 г.

Проведено экспериментальное исследование процесса нелинейного поглощения ультракоротких лазерных импульсов в объеме природного алмаза. Приведены результаты экспериментальных исследований по измерению нелинейного пропускания плоскопараллельной пластинки толщиной 1 мм, изготовленной из алмаза, при ее облучении сфокусированными микрообъективом ( $NA = 0.55$  с фокусным расстоянием  $f' = 5$  мм) лазерными импульсами длительностью 0.3 и 10 ps с длиной волны 1030 нм. Показано, что в данном образце основным механизмом ослабления излучения ультракоротких лазерных импульсов с длиной волны 1030 нм при интенсивностях, не превышающих  $10 \text{ TW/cm}^2$ , является двухфотонное поглощение на центрах окраски, определен коэффициент поглощения  $\beta_2 = 4.1 \pm 0.3 \text{ cm/TW}$ .

**Ключевые слова:** фемтосекундные лазерные импульсы, нелинейное поглощение, природный алмаз, многофотонное поглощение, центры окраски.

DOI: 10.21883/OS.2022.04.52269.60-21

### Введение

Взаимодействие интенсивных ультракоротких лазерных импульсов с диэлектрическими материалами является областью, представляющей большой интерес в настоящее время как со стороны фундаментальных аспектов физики твердого тела, так и для решения прикладных задач. Важнейшей особенностью такого взаимодействия является увеличение вклада нелинейного поглощения сфокусированных ультракоротких лазерных импульсов за счет многофотонной [1], туннельной [2] или лавинной [3] фотоионизации или их комбинаций [4], что позволяет создавать локальные области с высоким поглощением. Это дает возможность заметно увеличивать энерговклад в область фокусировки до величин, достаточных для структурной модификации среды (создания точечных дефектов, уплотнений, абляции [5–8]) без разрушения. Между тем отдельные механизмы фотоионизации проявляются в ограниченных режимах для конкретных материалов из-за интенсивного поглощения внутри центров окраски, а также влияния ионизации в электронно-дырочной плазме [9,10]. Отметим, что их вклад по отдельности экспериментально трудно выделить и однозначно идентифицировать. Однако понимание процесса нелинейной фотоионизации имеет решающее значение для лазерного структурирования и микрообработки диэлектрических материалов.

Известно, что в диэлектрических материалах, в том числе в натуральном алмазе, многофотонное поглощение является ключевым начальным процессом энерго-

вклада при низких и умеренных интенсивностях ультракоротких лазерных импульсов [11]. Экспериментальное измерение основных параметров многофотонной фотоионизации, например коэффициентов многофотонного поглощения, представляет большой интерес. Это особенно важно для коррекции теоретического моделирования поглощения и локального вложения энергии фемтосекундных лазерных импульсов в качестве основного этапа для последующего анализа возникающих тепловых, фазовых и гидродинамических эффектов при лазерной нано- и микрообработке материалов.

Коэффициенты многофотонного поглощения в алмазе, полученные ранее для различных длин волн [12,13], различаются на порядки по величине из-за использования различных источников излучения и проблем, связанных с трудностями разделения видов многофотонного поглощения. Отсюда следует, что экспериментальное определение характера многофотонного поглощения в алмазе при умеренных интенсивностях с последующей оценкой коэффициентов является актуальной научной и практической задачей.

Основным методом измерения коэффициентов многофотонного поглощения является измерение ослабления энергии импульса, проходящего через исследуемую среду, с последующей обработкой зависимостей нелинейного пропускания [14].

Нелинейный характер поглощения излучения в диэлектрике [8,15] может быть описан в упрощенном в случае преобладания многофотонного поглощения одно-

го характера следующим образом:

$$\frac{dI(r)}{dz} = -\beta_n[(1-R)I(z,r)]^n, \quad (1)$$

где  $I(r, z)$  — радиальное распределение локальной интенсивности на глубине  $z$ ,  $\beta_n$  — коэффициент  $n$ -фотонного поглощения среды,  $R$  — коэффициент отражения на границе раздела воздух–среда.

Интегрирование выражения (1) при граничных условиях  $I(z=0, r) = I_S(r)$ , где  $I_S(r=0) = I_0$  — интенсивность на поверхности материала, и  $I(z=\infty, r) = 0$  дает изменение интенсивности при распространении лазерного импульса вдоль направления  $z$  в среде в виде

$$I(z, r) = \frac{(1-R)I_S(r)}{\sqrt[n-1]{1 + \beta_n(n-1)(1-R)^{n-1}I_S^{n-1}(r)z}}. \quad (2)$$

Далее из выражения (2) получим соотношение для количественной оценки коэффициента нелинейного пропускания образца ( $T_{NL}$ ), выполненного из исследуемого материала в виде плоскопараллельной пластинки. При этом отметим зависимость от интенсивности излучения и учет потерь на отражение на двух гранях, а также допущение, что поглощение излучения происходит преимущественно в фокальной области, ограниченной удвоенной длиной Рэлея. Получаем

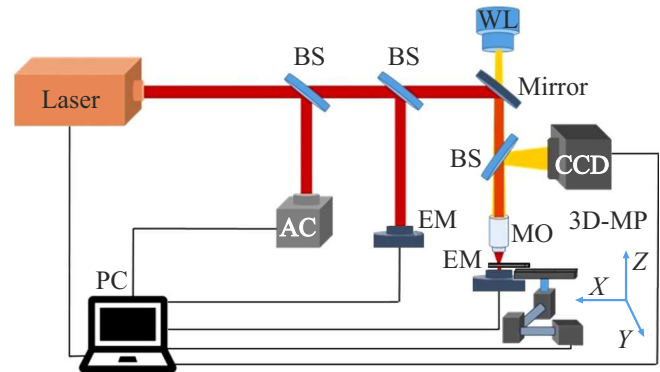
$$T_{NL}(I) = \frac{T_0}{\sqrt[n-1]{1 + \beta_n(n-1)(1-R)^{n-1}I^{n-1}2z_R}}. \quad (3)$$

где  $T_0$  — линейный коэффициент пропускания образца, учитывающий потери на отражение на двух гранях и линейное поглощение,  $z_R = n_{mat} \frac{\pi w_0^2}{\lambda}$  — длина Рэлея,  $\lambda$  — длина волны лазерного излучения,  $n_{mat}$  — показатель преломления исследуемого материала,  $w_0 = \frac{\lambda f'}{\pi w(0)}$  — радиус фокального пятна,  $w(0)$  — радиус лазерного пучка перед фокусирующей системой,  $f'$  — фокусное расстояние фокусирующей системы.

Таким образом, на основе полученного выражения (3) и экспериментально измеренных коэффициентов пропускания образца при различных интенсивностях лазерных импульсов определим характер многофотонного поглощения и его коэффициенты  $\beta_n$ .

## Экспериментальная часть

Для оценки коэффициента нелинейного пропускания были проведены экспериментальные исследования. В эксперименте ультракороткие лазерные импульсы разной длительности фокусировали под переднюю поверхность образца в виде полированной с двух сторон плоскопараллельной пластинки толщиной 1 mm, изготовленной из природного алмаза. На выходе регистрировали прошедшую через образец энергию. Схема экспериментальной установки, используемой для измерения пропускания исследуемого образца, приведена на рис. 1.



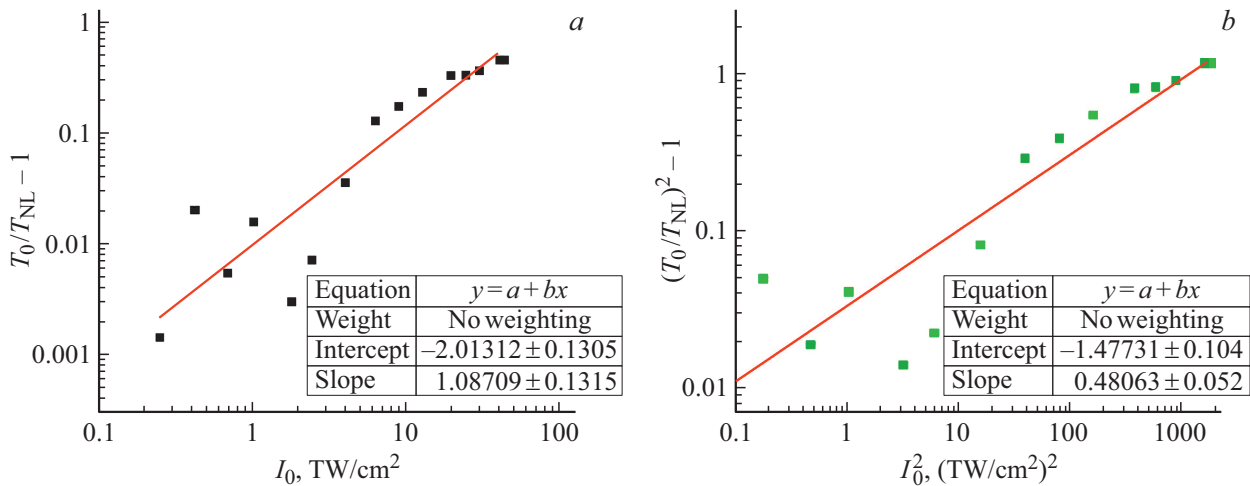
**Рис. 1.** Схема экспериментальной установки для измерения коэффициента пропускания: BS — светоделитель, EM — измеритель энергии, AC — автокоррелятор, MO — микрообъектив, WL — источник белого света, PC — компьютер со специальным программным обеспечением для управления лазером, камерой, системой позиционирования, CCD — камера для визуализации поверхности во время фокусировки, 3D-MP — трехкоординатная подвижная платформа.

В качестве источника лазерного излучения был использован волоконный лазер Satsuma (Amplitude Systemes) с активной средой на ионах  $\text{Yb}^{+3}$  с длиной волны 1030 nm и линейной поляризацией. Длительность импульсов, регулируемая с помощью встроенного компрессора, составляла 0.3 и 10 ps, а частота следования импульсов — 2 Hz. Энергия в импульсах менялась в диапазоне от 3.2 до 546 nJ. Временной контраст импульсов —  $10^7$ .

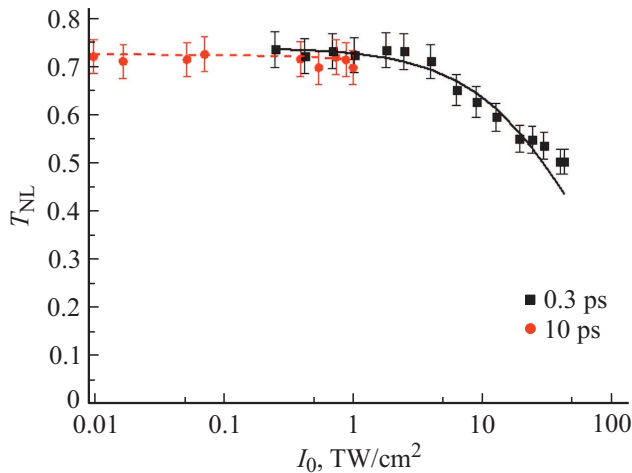
Образец был закреплен на трехкоординатной подвижной платформе. Лазерное излучение фокусировалось микрообъективом (с  $NA = 0.55$  и фокусным расстоянием  $f' = 5$  mm) под переднюю поверхность образца на глубину 100  $\mu\text{m}$  в фокальное пятно с радиусом  $w_0 = 1.17$   $\mu\text{m}$  (по уровню энергии 1/e). Под нижней поверхностью образца был установлен измеритель энергии Ophir PD10-C, позволяющий регистрировать прошедшее через алмазную пластинку излучение.

## Результаты и их обсуждение

На основе экспериментально измеренных коэффициентов пропускания исследуемого образца при различных энергиях импульсов были построены графики зависимостей нелинейного пропускания от интенсивности. На основе данных эксперимента был определен механизм многофотонного поглощения с использованием формулы (3). При двухфотонном поглощении величина  $T_0/T_{NL} - 1$  должна быть пропорциональна интенсивности излучения  $I_0$ , т.е.  $T_0/T_{NL} - 1 \propto \beta_2 I_0 z_R$ , а при трехфотонном величина  $(T_0/T_{NL})^2 - 1$  должна быть пропорциональна квадрату интенсивности излучения  $I_0$ :  $(T_0/T_{NL})^2 - 1 \propto \beta_3 I_0^2 z_R$ . Проведенный анализ, представленный на рис. 2, показал, что нелинейное поглоще-



**Рис. 2.** (а) Зависимость величины  $T_0/T_{NL} - 1$  — от интенсивности  $I_0$ ; (б) зависимость величины  $(T_0/T_{NL})^2 - 1$  — от квадрата интенсивности  $I_0^2$ .



**Рис. 3.** Зависимость нелинейного пропускания природного алмаза от интенсивности: квадратики — экспериментально полученные значения для длительности импульсов 0.3 ps, кружочки — экспериментально полученные значения для длительности импульсов 10 ps; сплошная линия — теоретически рассчитанная кривая для длительности импульсов 0.3 ps, штриховая линия — теоретически рассчитанная кривая для длительности импульсов 10 ps.

ние в алмазе на исследуемых интенсивностях лучше описывается двухфотонным поглощением (угол наклона зависимости  $T_0/T_{NL} - 1 \propto \beta_2 I_0 z_R$  равен  $1.09 \pm 0.13$ , а угол наклона зависимости  $(T_0/T_{NL})^2 - 1 \propto \beta_3 I_0^2 z_R$  —  $0.48 \pm 0.05$ ).

С учетом двухфотонного характера поглощения экспериментально полученных коэффициентов нелинейного пропускания и формулы (3) было получено значение коэффициента двухфотонного поглощения  $\beta_2 = 4.1 \pm 0.3 \text{ cm/TW}$ . Графики зависимостей нелинейного пропускания от интенсивности, полученные на основе формулы (3), и экспериментально полученные значения

представлены на рис. 3, при этом рассогласование теоретически рассчитанных и экспериментально полученных значений нелинейного пропускания не превышает 8%.

Данная аппроксимация является справедливой в диапазоне интенсивностей ультракоротких лазерных импульсов, не превосходящих  $10 \text{ TW/cm}^2$ , где для длительности импульсов 0.3 ps с длиной волны 1030 nm не превышает критическую мощность самофокусировки  $\approx 0.4 \text{ MW}$  [16]. При формировании филамента пропускающая способность образца меняется по другому закону, что является предметом последующих экспериментов.

Полученное значение коэффициента двухфотонного поглощения согласуется с полученными ранее результатами, которые показывают, что с увеличением длины волны величина коэффициента уменьшается [13,17].

## Заключение

В ходе настоящей работы был экспериментально исследован процесс нелинейного поглощения ультракоротких лазерных импульсов в объеме природного алмаза. Результаты измерений нелинейного пропускания плоскопараллельной пластинки толщиной 1 mm, выполненной из алмаза, при ее облучении сфокусированными микробъективом лазерными импульсами длительностью 0.3 и 10 ps с длиной волны 1030 nm показали, что основным механизмом ослабления излучения при интенсивностях, не превышающих  $10 \text{ TW/cm}^2$ , является двухфотонное поглощение с коэффициентом  $\beta_2 = 4.1 \pm 0.3 \text{ cm/TW}$ , скорее всего, на индуцированных центрах окраски [18].

## Финансирование работы

Исследование выполнено при финансовой поддержке Российского научного фонда (проект № 21-79-30063).

## Конфликт интересов

Автор заявляет, что у него нет конфликта интересов.

## Список литературы

- [1] V.V. Temnov, K. Sokolowski-Tinten, P. Zhou, A. El-Khamhawy, D. von der Linde. *Phys. Rev. Lett.*, **97**(23), 237403 (2006). DOI: 10.1103/PhysRevLett.97.237403
- [2] A. Joglekar, H. Liu, E. Meyhofer, G. Mourou, A. J. Hunt. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, **101**(16), 5856 (2004). DOI: 10.1073/pnas.0307470101
- [3] B.C. Stuart, M.D. Feit, S. Herman, A.M. Rubenchik, B.W. Shore, M.D. Perry. *Phys. Rev. B*, **53**(4), 1749 (1996). DOI: 10.1103/PhysRevB.53.1749
- [4] N.M. Bulgakova, R. Stoyan, A. Rosenfeld, I.V. Hertel, E.E.B. Campbell. *Phys. Rev. B*, **69**(5), 054102 (2004). DOI: 10.1103/PhysRevB.69.054102
- [5] L. Cerami, E. Mazur, S. Nolte, C.B. Schaffer. *Ultrafast nonlinear optics* (Springer, Heidelberg, 2013), p. 287–321. DOI: 10.1007/978-3-319-00017-6\_12
- [6] K.C. Phillips, H.H. Gandhi, E. Mazur, S.K. Sundaram. *Advances in Optics and Photonics*, **7**(4), 684 (2015). DOI: 10.1364/AOP.7.000684
- [7] F. Chen, J.V. de Aldana. *Laser Photonics Rev.*, **8**(2), 251 (2014). DOI: 10.1002/lpor.201300025
- [8] D.A. Zayarny, A.A. Ionin, S.I. Kudryashov, I.N. Saraeva, E.D. Startseva, R.A. Khmel'nitskii. *JETP Letters*, **103**(5), 309 (2016). DOI: 10.1134/S0021364016050143
- [9] G.K. Krasin, S.I. Kudryashov, P.A. Danilov, N.A. Smirnov, A.O. Levchenko, M.S. Kovalev. *The Europ. Phys. J. D*, **75**(8), 1 (2021). DOI: 10.1140/epjd/s10053-021-00234-0
- [10] S. Kudryashov, P. Danilov, N. Smirnov, A. Levchenko, M. Kovalev, Y. Gulina, O. Kovalchuk, A. Ionin. *Optical Materials Express*, **11**(8), 2505 (2021). DOI: 10.1364/OME.427788
- [11] S. Kudryashov, P. Danilov, A. Rupasov, S. Khonina, A. Nalimov, A. Ionin, G. Krasin, M. Kovalev. *Optical Materials Express*, **10**(12), 3291 (2020). DOI: 10.1364/OME.412399
- [12] T. Roth, R. Laenen. *Optics Commun.*, **189**(4–6), 289 (2001). DOI: 10.1016/S0030-4018(01)01037-9
- [13] S. Preuss, M. Stuke. *Appl. Phys. Lett.*, **67**(3), 338 (1995). DOI: 10.1063/1.115437
- [14] S.V. Gagarskii, K.V. Prikhod'ko. *J. Opt. Technology*, **75**(3), 139 (2008). DOI: 10.1364/JOT.75.000139
- [15] P. Simon, H. Gerhardt, S. Szatmari. *Opt. Lett.*, **14**(21), 1207 (1989). DOI: 10.1364/OL.14.001207
- [16] S.I. Kudryashov, A.O. Levchenko, P.A. Danilov, N.A. Smirnov, A.A. Ionin. *Opt. Lett.*, **45**(7), 2026 (2020). DOI: 10.1364/OL.389348
- [17] M. Sheik-Bahae, R.J. DeSalvo, A.A. Said, D.J. Hagan, M.J. Soileau, E.W. Van Stryland. *Laser-Induced Damage in Optical Materials*, **2428**, 605 (1995). DOI: 10.1117/12.213706
- [18] Y. Dumeige, F. Treussart, R. Alléaume, T. Gacoin, J.-F. Roch, P. Grangier. *J. Lumen.*, **109**(2), 61 (2004). DOI: 10.1016/j.jlumin.2004.01.020