

Моделирование несимметричной фемтозаписи

В. П. ЖУКОВ^{1,2,*}, Н. М. БУЛГАКОВА^{3,4}, М. П. ФЕДОРУК^{1,5}

¹Институт вычислительных технологий СО РАН, Новосибирск, Россия

²Новосибирский государственный технический университет, Россия

³Центр Хайлэйс Института физики АН ЧР, Прага, Чешская республика

⁴Институт теплофизики СО РАН, Новосибирск, Россия

⁵Новосибирский государственный университет, Россия

*Контактный e-mail: zukov@ict.nsc.ru

Выполнено численное моделирование воздействия серии фемтосекундных лазерных импульсов на плавленый кварц при фокусировке вглубь образца. Модель основана на нелинейных уравнениях Максвелла, дополненных уравнениями гидродинамического типа для плазмы электронов, возбужденных излучением в зону проводимости, и учитывает эффекты, связанные с накоплением дефектов в стекле от импульса к импульсу. Показано, что накопление дефектов, их ионизация последующими лазерными импульсами и связанное с ними изменение показателя преломления играют принципиальную роль в динамике поглощения излучения в многоимпульсном режиме.

В данной работе впервые выполнено численное моделирование воздействия на стекло серии импульсов с наклонным фронтом. Показано, что наклонный фронт приводит к зависимости степени модификации материала от направления движения мишени (несимметричная запись).

Ключевые слова: фемтосекундный лазерный импульс, дефект, центр окраски, память стекла, многоимпульсный режим облучения, несимметричная запись, наклон фронта импульса, нелинейные уравнения Максвелла.

Введение

Воздействие мощных фемтосекундных лазерных импульсов (ФЛИ) на прозрачные материалы, вызывающее локальное изменение структуры материала, имеет многочисленные практические приложения [1]. В подавляющем большинстве приложений используются многоимпульсные режимы воздействия ФЛИ на движущиеся относительно лазерного луча материала, однако численное моделирование практически всегда ограничивается расчетом воздействия одного импульса.

Как правило, при теоретическом описании воздействия на материал фемтосекундных лазерных импульсов гауссовой формы распределение электрического поля ФЛИ, фокусируемого вглубь материала, записывается в виде

$$E = E_0 \exp\left(\frac{-r^2}{w^2} - \frac{ik_0 r^2}{2f} - \frac{t^2}{t_L^2}\right). \quad (1)$$

Здесь E — локальная амплитуда электрического поля в некотором начальном сечении $z = 0$ (z — направление распространения импульса) либо на поверхности облучаемого вещества, либо на достаточном удалении от геометрического фокуса, где поглощение еще отсутствует; E_0 — максимальная амплитуда поля импульса; w — радиус пучка в направлении r ; f — радиус кривизны волнового фронта, определяемый через расстояние от линейного фокуса d и рэлеевскую длину z_f как $f = d + z_f^2/d$ (отметим, что при малых углах фокусировки $f \approx d$); t_L — длительность импульса; k_0 — волновое число на несущей частоте в материале.

Иногда рассматриваются пучки более сложной формы [2], но и в них пространственная и временная компоненты разделены: $E = R(r)T(t)$. На практике условия генерации излучения и формирования пучка нередко таковы, что пространственная координата и время оказываются связанными. Это соответствует пучкам с наклонным и вращающимся фронтом [3]. Часто наличие наклонного фронта импульса (НФИ) у пучка нежелательно, но в некоторых случаях НФИ создается специально, поскольку особенности распространения пучков с НФИ могут оказаться полезными (например, для улучшения точности записи структурных изменений в объеме материала [4]).

В ряде экспериментов [5–7] наблюдалось явление так называемой несимметричной записи. Суть его в том, что при сканировании мишени поперек луча в многоимпульсном режиме облучения модификация материала существенно зависит от направления сканирования. В частности, возможна ситуация, когда при движении мишени в одну сторону остаточная модификация материала присутствует, а в другую — структурных изменений не наблюдается. Предполагается, что такая асимметрия записи связана с наличием НФИ.

В настоящей работе моделируется воздействие фемтосекундных лазерных импульсов с наклонным фронтом на кварцевое стекло (плавленый кварц) в многоимпульсном режиме при фокусировке вглубь образца. Проверяется предположение, что наличие НФИ может являться причиной несимметричной записи. Численное моделирование выполнено на основе нелинейных уравнений Максвелла, дополненных уравнениями гидродинамического типа для плазмы электронов, возбужденных излучением в зону проводимости. Полное моделирование пучка с НФИ требует решения трехмерной задачи, что в многоимпульсном режиме не представляется возможным вследствие необходимости больших затрат машинного времени и объемов оперативной памяти.

В работе используется двумерная плоская модель, более соответствующая экспериментам в геометрии “лазерного ножа”. Важным элементом модели является учет механизмов, посредством которых предыдущие фемтосекундные импульсы влияют на взаимодействие с материалом последующих импульсов. Предполагается, что частота повторения импульсов составляет 1–100 кГц, что типично для многих фемтосекундных лазерных систем, используемых в экспериментах. В этом случае накопление тепла от импульса к импульсу исключено или пренебрежимо мало вследствие отвода тепла из зоны облучения за счет теплопроводности.

Возможны два механизма памяти кварцевого стекла о предыдущих импульсах облучения. Оба связаны с тем, что после прохождения лазерного импульса небольшая часть электронов зоны проводимости (ЭЗП) не возвращается (не рекомбинирует) в валентную зону, а захватывается в так называемые центры окраски [8–10]. Первый механизм памяти состоит в следующем. Энергетически центры окраски расположены в запрещенной зоне стекла: энергетический зазор E_{cc0} между центрами окраски и зоной проводимости меньше, чем ширина запрещенной зоны E_{g0} . Поэтому при последующих импульсах

электроны центров окраски (ЭЦО) за счет фотоионизации легче, чем электроны валентной зоны, переходят в зону проводимости. Поглощая энергию электромагнитной волны за счет тормозного рассеяния, эти электроны играют роль затравки для развития ударной ионизации. В более ранних работах полагалось, что этот механизм в последующих импульсах может обеспечить бóльшую по сравнению с первым импульсом плотность плазмы ЭЗП и больше локально поглощенной энергии. Однако плазма ЭЗП, возникающая благодаря ионизации ЭЦО, рассеивает падающее излучение, экранируя зону фокуса [10]. В результате максимальная плотность поглощенной энергии не только не увеличивается, но даже незначительно уменьшается, что может противоречить экспериментальным наблюдениям, говорящим о том, что в многоимпульсных режимах порог модификации по энергии импульса ниже, чем в случае одиночных импульсов (эффект аккумуляции). Этот факт может быть объяснен вторым механизмом: накопление ЭЦО изменяет (увеличивает) показатель преломления стекла, обеспечивая дополнительную фокусировку и увеличение максимума плотности поглощенной энергии. При построении самосогласованной модели необходимо учитывать оба механизма.

Ниже приведены уравнения, используемые при моделировании, начальные и граничные условия, метод численного решения поставленной задачи, а также результаты физических расчетов для реальных условий облучения.

1. Исходные уравнения

Уравнения, описывающие распространение фемтосекундных лазерных импульсов в прозрачном материале, имеют следующий вид [8–11]:

$$\frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} - i \frac{\omega}{c} \mathbf{D} = -\frac{4\pi}{c} \mathbf{j} + \text{rot} \mathbf{H} - \frac{8\pi}{c} G \mathbf{E} / |\mathbf{E}|^2, \quad (2)$$

$$G = \alpha \hbar \omega W_{PI} + \alpha_{cc} \hbar \omega W_{cc}, \quad (3)$$

$$\mathbf{j} = -\rho e \mathbf{v},$$

$$\mathbf{D} = (n^2 + \xi(\rho_{cc}/\rho_0)) \mathbf{E} + \frac{c}{4\pi} n^2 n_2 |\mathbf{E}|^2 \mathbf{E}, \quad (4)$$

$$i\omega \mathbf{v} = \frac{e}{m_e} \mathbf{E} + \mathbf{v} / \tau_c, \quad (5)$$

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = W_{PI} + W_{cc} + W_{\sigma}, \quad (6)$$

$$\frac{\partial \rho_{cc}}{\partial t} = -W_{cc}, \quad (7)$$

$$\frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{H}}{\partial t} - i \frac{\omega}{c} \mathbf{H} = -\text{rot} \mathbf{E},$$

$$W_{PI} = W_{PI0} \frac{\rho_0 - \rho - \rho_{cc}}{\rho_0} (|\mathbf{E}|^2 / E_*^2)^\alpha,$$

$$W_{cc} = W_{cc0} \frac{\rho_{cc}}{\rho_0} (|\mathbf{E}|^2 / E_*^2)^{\alpha_{cc}}, \quad (8)$$

$$W_\sigma = \frac{e^2 \tau_c \rho (\rho_0 - \rho) |\mathbf{E}|^2}{2m_e E_{g0} (1 + m/m_e) (1 + \omega^2 \tau_c^2) \rho_0 (1 + |\mathbf{E}|^2 / (4E_*^2))},$$

$$E_g = E_{g0} (1 + |\mathbf{E}|^2 / (4E_*^2)), \quad E_*^2 = \frac{E_{g0} m \omega^2}{e^2}.$$

В этих уравнениях, записанных в единицах СГС, \mathbf{E} , \mathbf{H} , \mathbf{D} , \mathbf{v} и \mathbf{j} представляют собой комплексные амплитуды электрического и магнитного полей, электрической индукции, скорости ЭЗП и электрического тока. Физическое электрическое поле (и аналогично другие векторные величины) связано с \mathbf{E} как $(\mathbf{E}e^{-i\omega t} + \mathbf{E}^*e^{i\omega t})/2$. Под $|\mathbf{E}|^2$ понимается скалярное произведение вектора комплексной амплитуды \mathbf{E} на комплексно-сопряженный вектор \mathbf{E}^* .

Другие обозначения таковы: e — элементарный заряд ($e > 0$); ρ_0 — атомарная плотность материала (полагается, что возможна ионизация лишь для одного валентного электрона на атом, что подтверждается в расчетах для типичных режимов лазерной модификации [2, 8–13]); ρ — плотность ЭЗП; ρ_{cc} — плотность ЭЦО; W_{PI} и W_σ — скорости многофотонной и ударной ионизации электронов валентной зоны; W_{cc} — скорость фотоионизации ЭЦО; α и α_{cc} — число фотонов, поглощаемое в каждом акте многофотонной ионизации валентных электронов и ЭЦО соответственно; τ_c — характерное время столкновения электронов; n и n_2 — линейный (на несущей частоте ω) и нелинейный показатели преломления соответственно; ξ — коэффициент, описывающий зависимость диэлектрической проницаемости от плотности ЭЦО [14]; m_e и m — масса ЭЗП и приведенная масса. Последний член в (2) учитывает поглощение энергии излучения при многофотонной ионизации. Легко видеть, что при выводе закона сохранения для энергии электромагнитного поля этот член обеспечит уменьшение энергии поля в единицу времени на величину (3), т. е. на величину $\alpha \hbar \omega$ либо $\alpha_{cc} \hbar \omega$ в каждом акте ионизации валентного электрона или ЭЦО соответственно.

В настоящей работе моделирование проведено для плавленого кварца, облучаемого фемтосекундным лазерным импульсом на длине волны 800 нм. Это соответствует следующим значениям параметров задачи [8–12]: $n = 1.45$, $n_2 = 2.48 \text{ см}^2/\text{Вт}$, $E_{g0} = 9 \text{ эВ}$, $E_{cc0} = 5.5 \text{ эВ}$, m_e и m равны 1 и 0.5 массы электрона в вакууме соответственно, $\tau_c = 3/\omega$, $\alpha = 6$, $\alpha_{cc} = 4$, $W_{PI0} = 3.7 \cdot 10^{34} \text{ см}^{-3}\text{с}^{-1}$, $W_{cc0} = 5.3 \cdot 10^{35} \text{ см}^{-3}\text{с}^{-1}$. Для данной модельной задачи принято $\xi = 10$.

Рассматривается двумерная плоская задача, в которой все функции зависят от декартовых координат x и z и времени t . Лазерный импульс распространяется вдоль оси z . Предполагается Y -поляризация, т. е. электрическое поле имеет только y -компоненту, а магнитное поле — компоненты вдоль направлений x и z ($B_y = 0$).

2. Граничные условия и параметры облучения

Лазерный импульс задается в плоскости $z = 0$ граничным условием вида

$$E_y = E_0 \exp \left(\frac{-x^2}{w^2} - \frac{ik_0 x^2}{2f} - \frac{(t - px)^2}{t_L^2} + i\beta t^2 \right). \quad (9)$$

Заметим, что распределение электрического поля типа (9), в котором параметры E_0 , w , f , p , t_L и β определенным образом зависят от z , являются точным решением параксиального волнового уравнения для гауссовых пучков с относительно небольшой

фокусировкой [15]. В (9) добавлены два важных параметра, характеризующих ультракороткие лазерные импульсы [3]. Параметр p является комплексным числом, определяющим наклон фронта импульса (асимметрию по отношению к плоскости $x = 0$) и скорость его вращения (изменение наклона при распространении импульса). Параметр β определяет временной чирп лазерного импульса. Описываемые ниже расчеты проводились при следующих значениях параметров, характерных для ряда экспериментов: $p = -1 + 0.8i$ фс/мкм, $\beta = -1.1 \cdot 10^{-7}$ фс $^{-2}$, $w = 21.1$ мкм, $d = 120$ мкм, $t_L = 70$ фс. В линейном приближении такие параметры соответствуют значению w в фокусе (перетяжке) $w_f \approx 1$ мкм. Отрицательная величина реальной части p означает более раннее прибытие импульса в плоскость z для больших значений x . Наклон фронта увеличивается со временем распространения импульса, что обусловлено положительной величиной мнимой части p .

В рассматриваемой двумерной геометрии “лазерного ножа” полная энергия импульса равна бесконечности из-за бесконечных размеров системы вдоль оси y . Для сопоставления с геометрией цилиндрического пучка введем величину характерной энергии импульса, подразумевая под этой величиной энергию излучения в полосе шириной $w(\pi/2)^{1/2}$ по y . В приводимых ниже результатах расчетов эта величина равна 2.4 мкДж.

Остальные границы области расчета отодвинуты на большое расстояние от области распространения пучка с поглощающими граничными условиями.

3. Начальные условия

Расчет для каждого импульса начинался в момент времени $t_b = -200$ фс, когда электромагнитное поле и ЭЗП отсутствуют во всей области расчета: $\mathbf{E} = 0$, $\mathbf{V} = 0$, $\rho = \rho_{cc} = 0$. Расчет заканчивался в момент времени $t_e = 800$ фс, когда излучение лазера покидает область фокуса и образование новых ЭЗП прекращается. Соответственно, после этого момента времени больше не происходит увеличения поглощенной энергии:

$$\frac{\partial E_{abs}}{\partial t} = \frac{\mathbf{E}\mathbf{j}^* + \mathbf{j}\mathbf{E}^*}{4} + G.$$

При задании начальных условий для нового импульса полагалось, что после предыдущего лазерного импульса η -я часть ЭЗП переходит в ЭЦО. Отметим, что в плавленом кварце время захвата свободных электронов в экситонное состояние равно примерно 150 фс [14], а экситоны рекомбинируют в основное состояние с характерным временем, которое меньше 1 нс [16]. При этом примерно 0.1% экситонов превращаются в долгоживущие центры окраски [17]. При моделировании эффектов, связанных с влиянием центров окраски, принята величина $\eta = 0.008$, что превышает известные данные по формированию центров окраски в плавленом кварце после его облучения [17]. Такое допущение дало возможность значительно уменьшить компьютерное время для изучения особенностей многоимпульсных режимов, в которых запись модифицированных структур осуществляется наложением сотен и тысяч импульсов (например, скорость сканирования лазерного пучка с радиусом в фокусе порядка 1 мкм составляет 0.2–0.5 мм/с при частоте повторения импульсов 500 кГц [6]). Следует подчеркнуть, что расчеты с $\eta = 0.001$ для небольшого числа импульсов качественно показывают те же основные тенденции, что приведены ниже для $\eta = 0.008$. Однако для их демонстрации в полной мере необходимы расчеты сотен и тысяч импульсов, что делает такие исследования нереальными.

Для исследования режимов со сканированием был предусмотрен поперечный сдвиг мишени относительно направления распространения лазерного импульса на расстояние x_s . Величина x_s определяется скоростью сканирования луча v_s и частотой повторения импульсов f_p , $x_s = v_s/f_p$ ($x_s = 0$ при отсутствии сканирования, когда $v_s = 0$). Соответственно, к началу нового n -го импульса ($t = t_b$) распределение плотности ЭЦО, сформированное после полной рекомбинации экситонов и формирования центров окраски (к моменту $t = t_e$; характерная величина t_e меньше времени между двумя последовательными импульсами), сдвигалось вдоль оси x следующим образом:

$$\rho_{cc}^n(t_b, x, z) = \rho_{cc}^{n-1}(t_e, x - x_s, z) + \eta \rho^{n-1}(t_e, x - x_s, z). \quad (10)$$

При $t = t_b$ для каждого последующего импульса по-прежнему имеем $\mathbf{E} = 0$, $\mathbf{B} = 0$ и $\rho = 0$.

4. Метод решения

Поставленная задача решалась с помощью неявной конечно-разностной схемы на сдвинутых сетках подобно [13] с адаптацией к несколько другим уравнениям — (2)–(8) (учитывалась частотная дисперсия линейного показателя преломления, $\rho_{cc} = 0$) и другой (цилиндрической, а не плоской) геометрии. Кроме того, некоторые величины вычислялись в иных узлах сетки, чем в [13]. В частности, величины E_y , ρ , ρ_{cc} , $|\mathbf{E}|^2$ вычислялись в узлах $i + 1/2, k$ (индекс i соответствует узлам по координате x , а индекс k — по координате z). При этом отпадает необходимость осреднения величин ρ , $|\mathbf{E}|^2$ в узлы, где вычислялись E_y и v_y , и наоборот, что упрощает расчеты. Величина B_x вычислялась в точках $i + 1/2, k + 1/2$, а B_z — в точках i, k . Новая схема протестирована на решении задачи работы [13]. Получено, что при уменьшении шагов сетки решения, полученные с помощью схемы настоящей работы и схемы [13], сходятся к одному и тому же решению. Расчеты настоящей работы выполнены на шагах сетки по x и z , равных 0.04 и 0.058 мкм соответственно. Шаг по времени равнялся 0.024 фс. Погрешность расчетов оценивается как $\leq 5\%$.

Другой особенностью данной работы является то, что расчетная область сужалась по координате x по мере приближения к фокусу. Для этого граница области по поперечной координате задавалась как $|x| = \max(X_0(1 - z/d), X_{\min})$. В приводимых ниже результатах расчетов $X_0 = 56$ мкм, $d = 144$ мкм, $X_{\min} = 30$ мкм. Такое сужение расчетной области позволило существенно уменьшить вычислительные затраты.

На внешних границах использовались простейшие поглощающие граничные условия. Они заключались в том, что после каждого шага по времени в узлах, находящихся в слое шириной 1.5 мкм от внешней границы, векторные величины умножались на некоторую монотонно убывающую функцию, равную 1 на расстоянии 1.5 мкм от границы и убывающую по мере приближения к границе. Особенностью задачи является то, что лазерный импульс очень короткий и интерес представляет только взаимодействие излучения с материалом в зоне фокуса. Отраженное от границ излучение приходит в фокусную зону в основном после того, как лазерный импульс покинул расчетную область, когда все важные физические процессы в зоне фокуса произошли. Поэтому требования к поглощающим граничным условиям являются мягкими. Влияние граничных условий на результаты расчетов проверялось увеличением расчетной области и было пренебрежимо мало.

Компьютерная программа адаптирована для многопроцессорных расчетов. При этом на одном процессоре вычислялись узлы, находящиеся в слое $z \in (z_N, z_{N+1})$. Эти слои вдоль направления z выбирались таким образом, чтобы равномерно загрузить процессоры. Такое разбиение области на слои обеспечивает малое число данных, пересылаемых между процессорами.

Для еще большего ускорения расчетов в данной работе в отличие от [9–11] не учитывается частотная дисперсия линейного показателя преломления. Сравнительные расчеты с учетом и без учета дисперсии не показали существенного влияния дисперсии на результаты расчетов в исследованных режимах.

Моделирование прохождения одного лазерного импульса через область расчета на кластере НГУ занимает менее 3 ч на 64 процессорах. Такая скорость счета является удовлетворительной. Работ по оптимизации числа процессоров не проводилось.

5. Результаты расчетов

Рассмотрим результаты расчетов воздействия на плавный кварц серии лазерных импульсов согласно описанной выше постановке задачи. При прохождении первого импульса имеем $\rho_{cc} = 0$ и динамика взаимодействия излучения со стеклом является обычной, как, например, в работах [1, 8, 9, 11–13]. Увеличение интенсивности лазерного импульса по мере его приближения к фокусу приводит к образованию плазмы ЭЗП в окрестности фокусной зоны. Плазма свободных электронов поглощает и рассеивает излучение. В рассматриваемом случае при импульсе с наклонным фронтом ($p \neq 0$) пространственные распределения всех величин оказываются несимметричными относительно оси z .

На рис. 1 показано пространственное распределение поглощенной энергии лазерного излучения E_{abs} после прохождения первого импульса с наклонным фронтом через облучаемый образец. В отличие от гауссовых импульсов с $p = 0$ [9, 11] наблюдается значительная асимметрия поглощенной энергии, что оказывает сильное влияние на динамику поглощения излучения последующими импульсами при сканировании мишени [9]. Распределение плотности ЭЗП сразу после прохождения импульса также является несимметричным относительно оси распространения импульса и качественно аналогично распределению поглощенной энергии, представленному на рис. 1.

Перед началом последующих лазерных импульсов в области, где во время предыдущих импульсов была образована плазма ЭЗП, присутствуют электроны центров окраски (см (10)). Перед вторым импульсом в начальный момент времени $t = t_b$ распределение ρ_{cc} качественно подобно распределению E_{abs} (рис. 1). Однако при большом количестве импульсов отличия от распределения, приведенного на рис. 1, становятся существенными. Как будет показано ниже, происходит накопление центров окраски, и в процессе многоимпульсного лазерного облучения при сканировании мишени в противоположные стороны возникает анизотропия поглощения энергии.

На рис. 2 приведены зависимости максимальной величины локально поглощенной энергии $E_{abs}^{\max} = \max_{x,z} E_{abs}$ от числа импульсов при стационарных условиях облучения ($x_s = 0$) и сканировании образца в противоположные стороны вдоль оси x (перпендикулярно направлению поляризации лазерного излучения). Интересно, что, если пренебречь изменением показателя преломления, связанным с ЭЦО ($\xi = 0$), E_{abs}^{\max} падает от импульса к импульсу (кривая 1).

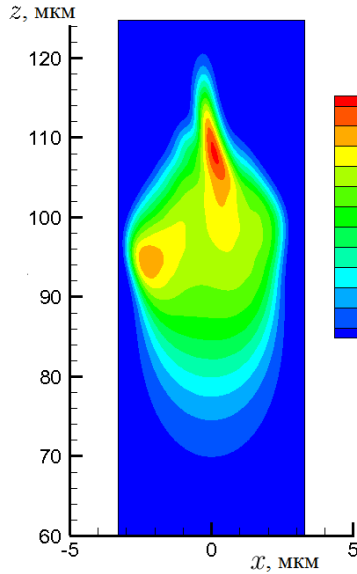


Рис. 1. Распределение поглощенной энергии E_{abs} после первого импульса (распространяется снизу вверх). Шкала поглощенной энергии дана в Дж/см³

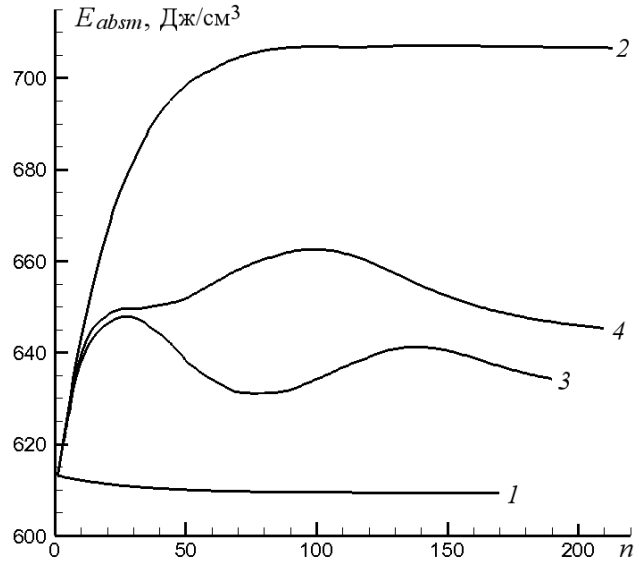


Рис. 2. Зависимость максимальной поглощенной энергии от номера импульса в случае $\xi = 0$ (кривая 1) и $\xi = 10$ (кривые 2–4, отвечающие сдвигу мишени между импульсами на расстояние $x_s = 0, +0.05, -0.05$ мкм соответственно)

Картина поглощения излучения значительно меняется при учете изменения показателя преломления вследствие образования центров окраски и их накопления от импульса к импульсу. Кривые 2–4 соответствуют результатам расчетов при $\xi = 10$ в многоимпульсных режимах при стационарных условиях облучения и сканировании образца с $x_s = \pm 50$ нм. Прежде всего заметен ярко выраженный рост E_{abs}^{\max} по сравнению с первым импульсом. В случае стационарной мишени (кривая 2) происходит насыщение зависимости $E_{abs}^{\max}(n_p)$ после нескольких десятков импульсов, при этом величина максимума поглощенной энергии существенно выше, чем в случаях со сканированием. При движении мишени относительно лазерного импульса (кривые 3 и 4) зависимость E_{abs}^{\max} от номера импульса n_p немонотонна, причем степень немонотонности при положительных x_s выше, чем при отрицательных. Также видно, что в случае положительного x_s величина E_{abs}^{\max} существенно меньше, чем в случае отрицательного.

Представленные на рис. 2 результаты расчетов соответствуют $|x_s| = 0.05$ мкм. Аналогичная зависимость от знака x_s имеет место и при других значениях $|x_s|$, пока скорость сканирования относительно мала и обеспечивает наложение в пространстве следующих один за другим импульсов.

Таким образом, расчеты подтверждают, что наличие НФИ отвечает за асимметрию (анизотропию) записи фотонных структур в объеме изотропных прозрачных материалов [5–7]. Естественно, что, когда нет наклона фронта импульса, асимметрия по отношению к знаку x_s отсутствует. Заметим, что распределение энергии, поглощенной в каждом импульсе, качественно аналогично изображенному на рис. 1, но количественные различия, как понятно из рис. 2, существенны.

На рис. 3 представлены пространственные распределения плотности ЭЦО ρ_{cc} , сформированные лазерными пучками с НФИ, на моменты времени $t = t_b$ для различных вариантов расчетов.

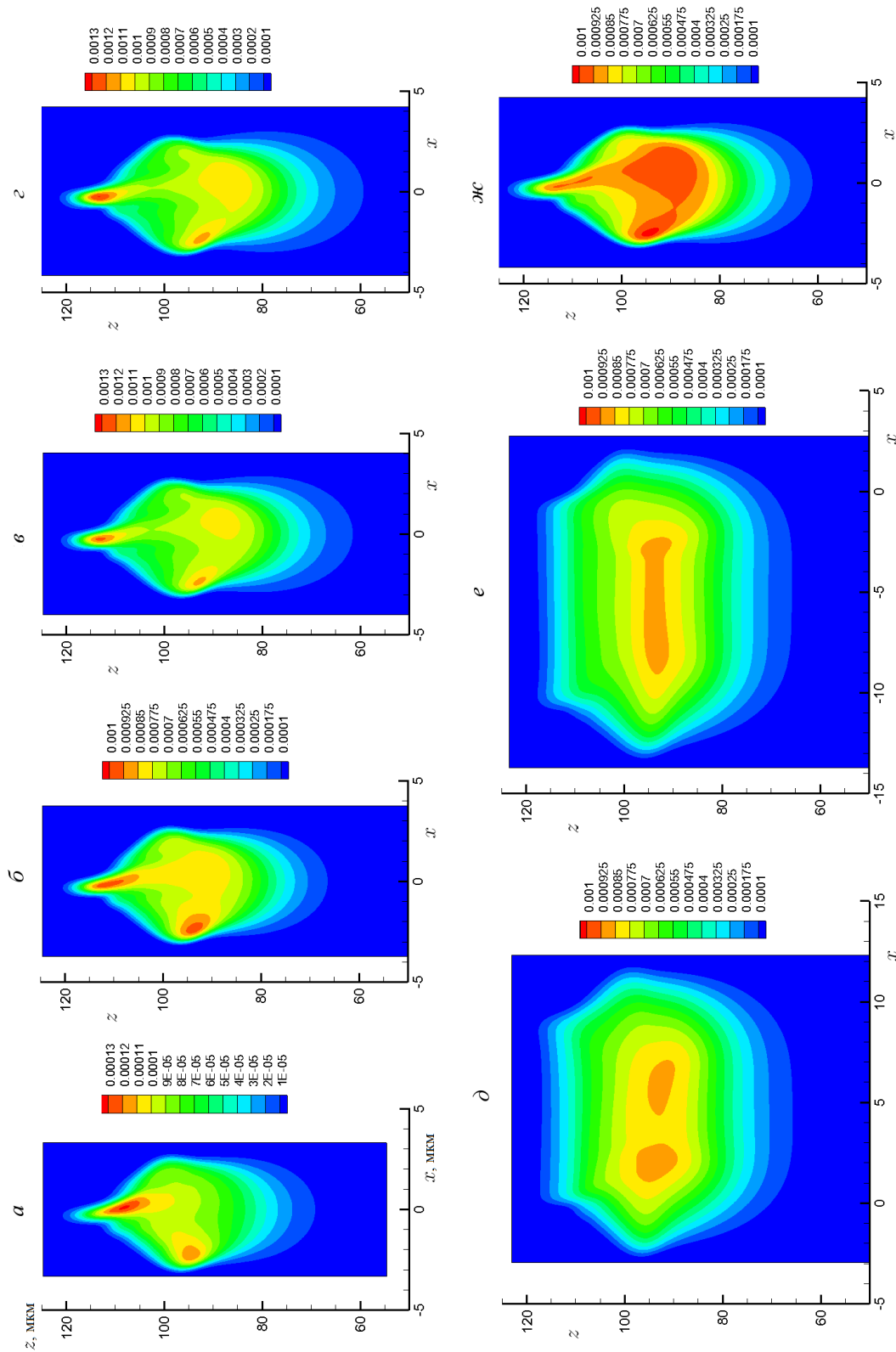


Рис. 3. Пространственные распределения $\rho_{cc}(t = t_b)/\rho_0$, сформированные лазерными пучками с НФИ к началу 5-го (а), 70-го (б), 155-го (в) и 220-го (г) импульсов в случае неподвижной мишени при $\xi = 10$. Распределения d и e соответствуют $\rho_{cc}(t = t_b)$ в случае движущейся мишени $x_s = +50$ нм (190-й импульс) и $x_s = -50$ нм (210-й импульс) при $\xi = 10$. Распределение $жс$ соответствует 170-му импульсу при неподвижной мишени в случае $\xi = 0$. Лазерное излучение распространяется снизу вверх

Так, рис. 3, $a-g$ соответствуют облучению неподвижной мишени при учете изменения показателя преломления среды за счет накопления центров окраски ($\xi = 10$) для 5-, 70-, 155- и 220-го импульсов. Видно, что с ростом числа воздействующих импульсов зона поглощения увеличивается в направлении к лазеру. Кроме того, возникает область повышенного поглощения перед фокусом, напоминающая “зонтикообразный щит”, полученный при моделировании двойных лазерных импульсов с малой задержкой между ними [10]. Хотя при многоимпульсных режимах плотность дефектов (центров окраски) на порядки ниже, чем плотность экситонов в случае двойных импульсов с пикосекундной задержкой между ними [10, 16, 17], формирование области повышенного поглощения, экранирующей в некоторой мере область фокуса (рис. 3, $a-g$), имеет ту же природу, что и в работе [10]. Отметим, что наличие зоны поглощения, возникающей на периферии области лазерного возбуждения материала при малом числе импульсов (рис. 1 и 3, a), объясняется рассеянием света на большие углы плазмой ЭЗП, формируемой в фокусе. При наличии НФИ эта зона имеет сдвиг относительно оси импульса вследствие особенностей поглощения и рассеяния излучения. При отсутствии НФИ такие периферийные области повышенного поглощения возникают симметрично относительно оси пучка при увеличении энергии единичного импульса [11].

Приведенное на рис. 3, $ж$ распределение соответствует плотности ЭЦО для 170 импульсов в расчетах с $\xi = 0$ (поведение максимума плотности энергии, поглощаемой в каждом импульсе при таком режиме облучения, представлено кривой 2 на рис. 2). В этом случае также отмечается возникновение области повышенных значений плотности ЭЦО перед фокусом, как и в случаях с $\xi \neq 0$, однако само распределение ρ_{cc} при $\xi = 0$ и $\xi = 10$ имеет заметные отличия. В случае $\xi = 10$ (рис. 3, $a-g$) максимум плотности ЭЦО формируется в непосредственной близости от фокуса, что указывает на эффект дополнительного фокусирующего воздействия от накопления дефектов (повышение показателя преломления области, обогащенной центрами окраски). В случае $\xi = 0$ (т. е. в пренебрежении изменением показателя преломления вследствие накопления дефектов) относительно высокая плотность ЭЦО формируется квазиравномерно в обширной зоне перед фокусом, что означает более делокализованное поглощение излучения. Таким образом, для адекватного моделирования процессов при распространении лазерных импульсов в твердых прозрачных материалах важно учитывать изменение показателя преломления среды в результате накопления дефектов.

В случаях с движением мишени перпендикулярно направлению распространения лазерного пучка распределение накапливаемых центров окраски $\rho_{cc}(t_b)$ представляет собой полосы, неоднородно меняющиеся вдоль направления сканирования (рис. 3, $d-e$). Как видно из рисунка, оно зависит от направления движения пучка.

В данной работе на примере плавленого кварца впервые с помощью численного моделирования подтверждено, что наличие НФИ в ультракоротких лазерных импульсах обуславливает анизотропию модификации изотропных материалов (наблюдаемую в экспериментах зависимость модификации от направления сканирования лазерного луча). Более того, расчеты подтверждают механизм анизотропии, описанный в работе [9], где предполагалось, что вследствие накопления дефектов от импульса к импульсу при сдвиге мишени в сторону более раннего прибытия фронта наклонного импульса больше энергии пучка поглощается, не доходя до фокуса. Как показали расчеты, полная поглощенная энергия $\int E_{abs} dx dz$ слабо меняется от импульса к импульсу во всех случаях, изученных в данной работе.

Заключение

Впервые представлены результаты моделирования взаимодействия ультракоротких лазерных импульсов, имеющих наклон фронта, с прозрачным материалом при фокусировке излучения вглубь облучаемого образца в характерных для многих экспериментов и технологий многоимпульсных режимах модификации материала. В отличие от ранее применяемых более простых моделей используемая модель, основанная на нелинейных уравнениях Максвелла, показала принципиальное значение двух таких конкурирующих процессов, как:

а) рассеяние лазерного излучения на плазме свободных электронов, возникающей вследствие фотовозбуждения электронов валентной зоны и ионизации дефектов, формируемых предыдущими лазерными импульсами;

б) изменение показателя преломления вследствие накопления дефектов, приводящее к дополнительной фокусировке лазерного импульса.

Установлено, что при моделировании без учета изменения показателя преломления рассеяние энергии лазерного пучка на свободных электронах приводит к уменьшению максимума плотности поглощенной энергии излучения. Таким образом, для адекватного описания экспериментальных наблюдений необходимо учитывать не только ионизацию дефектов, накапливающихся в зоне облучения от импульса к импульсу, но и изменение показателя преломления вследствие накопления дефектов. Кроме того, в данной работе впервые с помощью численного моделирования подтверждено, что наличие наклонного фронта в ультракоротких лазерных импульсах обуславливает анизотропию модификации изотропных материалов (наблюдаемую в экспериментах зависимость модификации от направления сканирования лазерного луча).

Благодарности. Работа выполнена при финансовой поддержке Программы Президиума РАН I.33П “Математическое моделирование высокоэнергетических лазерных источников и их взаимодействие с плазмой”.

Список литературы / References

- [1] Достовалов А.В., Вольф А.А., Бабин С.А., Дубов М.В., Мезенцев В.К. Численное исследование влияния временной формы импульса на модификацию плавленого кварца фемтосекундными импульсами // Квантовая электроника. 2012. Т. 42, № 9. С. 799–804.
Dostovalov, A.V., Babin, S.A., Wolf, A.A., Dubov, M.V., Mezentsev, V.K. Numerical investigation of the effect of the temporal pulse shape on modification of fused silica by femtosecond pulses // Quantum Electronics. 2012. Vol. 42, No. 9. P. 799–804. (In Russ.)
- [2] Zhukov, V.P., Rubenchik, A.M., Fedoruk, M.P., Bulgakova, N.M. Interaction of doughnut-shaped laser pulses with glasses // JOSA B. 2017. Vol. 34, No. 2. P. 463–471.
- [3] Akturk, S., Gu, X., Gabolde, P., Trebino, R. The general theory of first-order spatio-temporal distortion of Gaussian pulses and beams // Optic Express. 2005. Vol. 13, No. 21. P. 8642–8661.
- [4] Kammel, R., Ackerman, R., Thomas, J., Skupin, S., Turnnermann, A., Nolte, S. Enhancing precision in fs-laser material processing by simultaneous spatial and temporal focusing // Light: Sci. and Appl. 2014. Vol. 3. e169. DOI:10.1038/lssa.2014.50.

- [5] Vitek, D.N., Block, E., Bellouard, Y., Adams, D.E., Backus, S., Kleinfeld, D., Durfee, Ch.G., Squier, J.A. Spatio-temporally focused femtosecond laser pulses for nonreciprocal writing in optically transparent materials // Optics Express. 2010. Vol. 18, No. 24. P. 24673–24678.
- [6] Kazansky, P.G., Yang, W., Bricchi, E., Bovatsek, J., Arai, A. et al. “Quill” writing with ultrashort light pulses in transparent materials // Appl. Phys. Lett. 2007. Vol. 90, No. 15. P. 151120.
- [7] Kazansky, P.G., Shimotsuma, Y., Sakakura, M., Beresna, M., Gecevicius, M., Svirko, Y., Akturk, S., Qiu, J., Miura, K., Hirao, K. Photosensitivity control of an isotropic medium through polarization of light pulses with tilted intensity front // Optics Express. 2011. Vol. 19, No. 21. P. 20657–20664.
- [8] Bulgakova, N.M., Zhukov, V.P. Continuum models of ultrashort laser – matter interaction in application to wide-bandgap dielectrics // Springer Ser. in Materials Sci.: Laser in Materials Sci. / M. Castillejo, P.M. Ossi, L. Zhigilei (Eds). 2014. Vol. 191. P. 101–124.
- [9] Bulgakova, N.M., Zhukov, V.P., Meshcheryakov, Yu.P. Theoretical treatments of ultrashort pulse laser processing of transparent materials: Towards understanding the volume nanograting formation and “quill” writing effect // Appl. Phys. B. 2013. Vol. 113, No. 3. P. 437–449.
- [10] Bulgakova, N.M., Zhukov, V.P., Meshcheryakov, Yu.P., Gemini, L., Brajer, J., Rostohar, D., Mocek, T. Pulsed laser modification of transparent dielectrics: What can be foreseen and predicted in numerical experiments // J. of the Optical Soc. of America. B. 2014. Vol. 31, No. 11. P. C8–C14.
- [11] Bulgakova, N.M., Zhukov, V.P., Sonina, S.V., Meshcheryakov, Yu.P. Modification of transparent materials with ultrashort laser pulses: What is energetically and mechanically meaningful? // J. Appl. Phys. 2015. Vol. 118, No. 23. Paper 233108. 17 p.
- [12] Couairon, A., Sudrie, L., Franco, M. et al. Filamentation and damage in fused silica induced by tightly focused femtosecond laser pulses // Phys. Review B. 2005. Vol. 71. Paper 125435. 11 p.
- [13] Булгакова Н.М., Жуков В.П., Федорук М.П. Численное моделирование распространения фемтосекундного лазерного импульса в нелинейных средах // Вычисл. технологии. 2012. Т. 17, № 4. С. 14–28.
Bulgakova, N.M., Zhukov, V.P., Fedoruk, M.P. Numerical modeling of propagation of femtosecond laser pulses in non-linear media // Comput. Technologies. 2012. Vol. 17, No. 4. P. 14–28. (In Russ.)
- [14] Martin, P., Guizard, S., Daguzan, Ph., Petite, G., D’Oliveira, P., Maynadier, P., Pedrix, M. Subpicosecond study of carrier trapping dynamics in wide-band-gap crystals // Phys. Review B. 1997. Vol. 55. P. 5799–5810.
- [15] Hecht, B., Novotny, L. Principles of nano-optics. Chapter 3: Propagation and focusing of optical fields. Cambridge Univ. Press, 2006. 578 p.
- [16] Grojo, D., Gertsvolf, M., Lei, S., Barillot, T., Rayner, D.M., Corkum, P.B. Excitonseeded multiphoton ionization in bulk SiO₂ // Phys. Review B. 2010. Vol. 81. Paper 212301. 4 p.
- [17] Petite, G., Guizard, S., Martin, P., Quéré, F. Comment on “Ultrafast electron dynamics in femtosecond optical breakdown of dielectrics” // Phys. Review Lett. 1999. Vol. 83. P. 5182.

*Поступила в редакцию 21 августа 2017 г.,
с доработки – 28 сентября 2017 г.*

The modelling of nonreciprocal writing

ZHUKOV, VLADIMIR P.^{1,2,*}, BULGAKOVA, NADEZHDA M.^{3,4}, FEDORUK, MIKHAIL P.^{1,5}

¹Institute of Computational Technologies SB RAS, Novosibirsk, 630090, Russia

²Novosibirsk State Technical University, Novosibirsk, 630073, Russia

³HiLASE Centre, Institute of Physics ASCR, Prague, 25241, Czech Republic

⁴Kutateladze Institute of Thermophysics, SB RAS, Novosibirsk, 630090, Russia

⁵Novosibirsk State University, Novosibirsk, 630090, Russia

*Corresponding author: Zhukov, Vladimir P., e-mail: zukov@ict.nsc.ru

Volumetric modification of transparent materials by femtosecond laser pulses (FLP) is usually carried out in multipulse irradiation regimes by focusing of laser beam into material bulk. Theoretical investigations of multipulse regimes are usually limited to estimations which do not take into account laser light scattering by free electron plasma. This plasma is generated by ionization of both valence electrons and defects accumulated in the irradiation region from pulse to pulse and resulting in local changes of material refractive index. In this work, numerical modelling of FLP action on fused silica has been performed for multipulsed regime using focusing to the sample depth. The model is based on solution of non-linear Maxwell's equations supplemented by the hydrodynamic-type equations for the plasma of electrons, which are excited by radiation to the conduction band. It takes into account effects connected with pulse-to-pulse defect accumulation in glass.

It is shown that accumulation of defects (color centers in glass), their ionization by subsequent laser pulses, and refractive index variation connected with color centers play a crucial role in the dynamics of radiation absorption in the multipulse regimes of glass modification. Additionally, in a number of experiments on multipulse writing of modification structures to the bulk of moving material samples, we observe the dependence of modification degree on the direction of sample motion relative to the laser beam (writing anisotropy). The effect of such asymmetric writing is usually explained by the tilted front of ultrashort laser beams. In the present work the numerical modelling of the action of the pulses with tilted front has been carried out for the first time and indeed it is shown that the tilted front could cause writing anisotropy.

Keywords: femtosecond laser pulses, defects, color centers, glass memory, multipulse regime, anisotropic writing, femtowriting, pulse front tilt, nonlinear Maxwell's equations.

Acknowledgements. The work is financially supported by Programm of Presidium RAS I.33II "Mathematical modelling of high energetic laser sources and their interaction with plasma".

Received 21 August 2017

Received in revised form 28 September 2017