На правах рукописи

Кузнецов Андрей Викторович

ПРОСТРАНСТВЕННОЕ РАСПРЕДЕЛЕНИЕ ЦЕНТРОВ ОКРАСКИ, СОЗДАВАЕМЫХ В LiF ПОД ДЕЙСТВИЕМ ФЕМТОСЕКУНДНЫХ ЛАЗЕРНЫХ ИМПУЛЬСОВ

Специальность 01.04.21. – лазерная физика

АВТОРЕФЕРАТ
диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Новосибирск — 2011

Работа выполнена в Иркутском филиале Учреждения Российской академии наук Института лазерной физики Сибирского отделения РАН и Федеральном государственном бюджетном образовательном учреждении высшего профессионального образования «Иркутский государственный университет».

Научный руководитель: доктор физико-математических наук, профессор, Евгений Фёдорович Мартынович.

Официальные оппоненты: доктор физико-математических наук, профессор, Дмитриев Александр Капитонович,

доктор физико-математических наук, профессор Илларионов Анатолий Ильич.

Ведущая организация: Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение высшего профессионального образования «Новосибирский национальный исследовательский государственный университет».

Защита состоится «_____» _____ 2012 г. в ____ часов на заседании диссертационного совета Д 003.024.01 при Учреждении Российской академии наук Институте лазерной физики Сибирского отделения РАН по адресу: 630090, г. Новосибирск, проспект Академика Лаврентьева, 13/3.

С диссертацией можно ознакомиться в Научной библиотеке Учреждения Российской академии наук Институте лазерной физики Сибирского отделения РАН.

Автореферат разослан «_____» декабря 2011 г.

Учёный секретарь диссертационного совета,
кандидат физико-математических наук Н. Г. Никулин

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Область исследования

Диссертация посвящена изучению пространственного распределения точечных структурных дефектов, формируемых в прозрачных кристаллических диэлектриках при филаментации импульсного фемтосекундного лазерного излучения на примере образования центров окраски (ЦО) в кристаллическом фториде лития (LiF) под воздействием импульсов титан-сапфирового лазера с длительностью 30 фс, энергией до 0,5 мДж и центральной длиной волны $\lambda = 800$ нм. Вследствие филаментации распределение плотности центров окраски имеет нитевидную структуру. Для обозначения отдельной окрашенной нити мы вводим термин «шпур» (т.е. след, образованный филаментом).

Актуальность работы

Кристаллы LiF применяют в качестве оптического материала для ультрафиолетового диапазона. Коротковолновая граница окна прозрачности LiF находится около 120 нм, что является рекордно малым значением среди твердых диэлектриков при нормальных условиях. Кроме того, в отличие от других щелочно-галоидных кристаллов (ЩГК) LiF негигроскопичен и почти нерастворим в воде. Под действием ионизирующих излучений в LiF эффективно формируются различные стабильные ЦО, обладающие высоким выходом люминесценции при комнатной температуре. LiF используется в качестве радиодозиметрического материала. Окрашенный LiF нашёл применение в лазерном приборостроении в качестве активной среды и материала для пассивных затворов. В последнее время развиваются методы формирования в объеме LiF оптических элементов на основе микроскопических окрашенных структур заданной геометрии: активных волноводов, микрорезонаторов, лазеров с распределенной обратной связью, точечных источников света, объёмных оптических носителей информации и других. Для получения таких структур удобно окрашивание с использованием фемтосекундного лазера. Основным преимуществом лазерного окрашивания является пространственная локализация воздействия в объёме образца.

Таким образом, работа в выбранной области способствует развитию современных приложений на основе LiF. Кроме того, работа полезна для углубления понимания физики филаментации лазерного света в прозрачных диэлектриках, так как лазерное окрашивание LiF даёт уникальную возможность детального восстановления пространственной картины филаментации после облучения. Следы фемтосекундного лазерного излучения в LiF значительно более видимы и информативны, чем в большинстве других твердых материалов. Перманентные изменения в большинстве веществ наблюдаются лишь после воздействия многих импульсов и носят слабовыраженную форму: изменение показателя преломления, потемнение и т.д. Как показано в нашей работе, в LiF даже единичные импульсы оставляют окрашенные следы, ярко люминесцирующие при последующем оптическом возбуждении.

Степень научной разработанности области исследований

Образование ЦО в ЩГК при воздействии традиционных ионизирующих излучений (пучков электронов и других частиц, ультрафиолетового, рентгеновского и гамма-излучений) обстоятельно изучено в физике радиационного дефектообразования [1]. Считается доказанным, что основным механизмом создания парных первичных дефектов «междоузельный анион – вакансия» и «междоузельный атом – электрон в вакансии» (дефекты Френкеля) является образование экситонов и электронно-дырочных пар с последующим высвобождением их энергии на смещение ионов и атомов в междоузлия. Из первичных дефектов образуются более сложные, в том числе агрегатные ЦО.

Физика филаментации фемтосекундного лазерного излучения является относительно новой и быстроразвивающейся областью [2]. Наиболее изучаемой средой является воздух. Из твердых прозрачных диэлектриков наиболее изучен плавленый и кристаллический кварц [3]. Достигнуто понимание основных физических явлений, происходящих при филаментации. Однако до сих пор происходит уточнение теоретических моделей даже для наиболее изученных сред.

По филаментации фемтосекундного излучения в LiF и по лазерному окрашиванию этого соединения известно относительно немного работ. К началу работы над диссертацией регулярные исследования независимо проводились группами под руководством L.C. Courrol [4], T. Kurobori [5] и Е.Ф. Мартыновича с Е.В. Пестряковым [6]. Также известны отдельные публикации других авторов. К началу диссертационной работы были достаточно надежно получены следующие выводы.

1. Под воздействием фемтосекундного лазерного излучения достаточной интенсивности в LiF образуются ЦО. По спектрам поглощения и люминесценции были идентифицированы F, F_2, F_3^+ и другие центры, известные из радиационной физики.

2. Лазерное окрашивание LiF инициируется нелинейным поглощением света электронной подсистемой с образованием экситонов и электронно-дырочных пар. Последующие этапы образования ЦО аналогичны случаю воздействия ионизирующих излучений.

3. Филаментация фемтосекундного лазерного излучения в LiF обусловливает формирование шпуров.

4. При филаментации фемтосекундного лазерного излучения в LiF генерируется вторичное свечение, представленное суперконтинуумом и люминесценцией создаваемых центров окраски.

При этом анализ литературы и наши предварительные эксперименты позволили выявить, в частности, следующие пробелы в предшествующих исследованиях.

1. Не выявлены основные физические механизмы, определяющие длину шпуров, формируемых при филаментации единичных фемтосекундных лазерных импульсов в LiF.

2. Не было отмечено и объяснено то, что изображения поперечных сечений шпуров, наблюдаемые по люминесценции F_2 и F_3^+ ЦО, имеют вид колец.

3. В предварительных экспериментах нами установлено, что спектр люминесценции облучаемого фемтосекундным лазером канала в кристалле LiF трансформируется вдоль направления луча: в начале канала люминесценция имеет преимущественно фиолетовую составляющую, а в остальных его частях – зелёную. В литературе данный эффект ранее не был отмечен.

Задачи исследования

1. Выявить физические механизмы, определяющие длину шпуров, формируемых при филаментации единичных фемтосекундных лазерных импульсов в LiF.

2. Раскрыть физическую причину кольцеобразного отображения поперечных сечений шпуров, образованных филаментами лазерного излучения, по люминесценции входящих в них F_2 и F_3^+ ЦО.

3. Раскрыть природу продольной трансформации спектра люминесценции канала в кристалле LiF, возбуждаемого фемтосекундным лазерным излучением.

Научные положения, выносимые на защиту

1. Формирование шпуров при филаментации единичного фемтосекундного лазерного импульса в кристалле LiF определяется перемещением соответствующих нелинейных фокусов в результате вариации мощности излучения в течение импульса, согласно известной модели движущихся фокусов, при этом длина шпуров, расположенных ближе к входной поверхности кристалла, больше длины шпуров, расположенных дальше от поверхности, вследствие различной интегральной по времени плотности энергии лазерного излучения на траекториях движения соответствующих нелинейных фокусов.

2. Изображения поперечных сечений шпуров, наведенных в кристалле LiF серией фемтосекундных лазерных импульсов, наблюдаемые по люминесценции F_2 и F_3^+ центров окраски, имеют форму колец, что обусловлено снижением выхода люминесценции вблизи оси шпуров вследствие высокой концентрации центров окраски, а не распределением интенсивности в филаментах в форме полого цилиндра, как следует из некоторых известных моделей филаментации.

3. Впервые зарегистрированный эффект трансформации спектра люминесценции облучаемого фемтосекундным лазером канала в прозрачном диэлектрике вдоль направления лазерного луча (люминесценция наблюдается в поперечном направлении относительно луча) обусловлен различной степенью нелинейности возбуждения и создания центров люминесценции различных типов, а также продольным градиентом интенсивности лазерного света вследствие его самофокусировки и филаментации.

Практическая значимость работы

Результаты исследований по лазерному окрашиванию кристаллов LiF полезны при создании высоконелинейных фоточувствительных сред и носителей информации на их основе, дифракционных решеток, активных волноводов, и других оптических элементов.

При создании экспериментальной установки для проведения наших исследований, разработан новый светосильный растровый спектрометр, собран действующий лабораторный образец спектрометра.

На основе полученных прикладных результатов оформлены 3 патента РФ.

Апробация результатов работы и публикации

Результаты исследований изложены в 19 публикациях, в том числе 7 статях в рецензируемых журналах из списка ВАК и 3 патентах РФ на полезные модели.

Материалы работы докладывались и обсуждались на следующих научных мероприятиях.

1. XIII Feofilov symposium on spectroscopy of crystals doped by rare earth and transition metal ions, г. Иркутск, Россия, 2007 г.
2. XI Международная школа-семинар по люминесценции и лазерной физике, г. Иркутск, Россия, 2008 г.
3. 5th International symposium «Modern Problems of Laser Physics», г. Новосибирск, Россия, 2008 г.
4. 19 Международная научно-техническая выставка-ярмарка в провинции Хэйлунцзян, г. Харбин, КНР, 2008 г.
5. 14th International conference of radiation physics and chemistry of inorganic materials, г. Астана, Казахстан, 2009 г.
6. Symposium on high resolution molecular spectroscopy High-Rus-2009, г. Иркутск, Россия.
7. Научно-практическая конференция «Инновации РАН-2009», г. Томск, Россия.
8. XII Международная школа-семинар по люминесценции и лазерной физике, пос. Хужир Иркутской обл., Россия, 2010 г.
9. XIV Международный симпозиум «Нанофизика и наноэлектроника», Нижний Новгород, Россия, 2010 г.
10. Imaging and Applied Optics: OSA Optics and Photonics Congress, г. Торонто, Канада, 2011 г.

Личный вклад автора

Автор принимал участие в планировании и проведении экспериментов, интерпретации экспериментальных результатов, провел модельные расчёты, сформулировал защищаемые положения.

Эксперименты по облучению кристаллов LiF фемтосекундным лазером проводились с участием научного руководителя работы Е.Ф. Мартыновича и соавторов Е.В. Пестрякова, В.И. Трунова и А.В. Кирпичникова.

Объем и структура диссертации

Диссертация изложена на 90 страницах, иллюстрирована 36 рисунками. Состоит из введения, 3 глав, заключения, списка публикаций автора по теме диссертации, включающего 19 наименований, и списка литературы, включающего 83 наименования.

КРАТКОЕ СОДЕРЖАНИЕ ДИССЕРТАЦИИ

Во введении обоснована актуальность темы, сформулированы цели и задачи, изложены новые научные результаты, защищаемые научные положения, сведения об апробации работы и личном вкладе автора.

В первой главе приведён обзор литературы по темам, относящимся к лазерному окрашиванию LiF при филаментации фемтосекундного лазерного излучения: по свойствам и приложениям бездефектного и окрашенного LiF, образованию ЦО в ЩГК, ключевым экспериментальным и теоретическим работам по самофокусировке и филаментации лазерного света, основным процессам, происходящим при распространении коротких интенсивных импульсов в прозрачных диэлектриках и по лазерному окрашиванию LiF.

Под воздействием фотонов и частиц достаточно высоких энергий, в диэлектриках происходит возбуждение электронной подсистемы материала с образованием электронно-дырочных пар, экситонов и плазмонов. В ЩГК энергия, выделяющаяся при рекомбинации электронно-дырочных пар и при распаде экситонов, может расходоваться на смещение атомов или анионов галоида в междоузлия. Одновременно с этим образуются анионные вакансии. Электрон в анионной вакансии является простейшим ЦО (F-ЦО). В результате перемещения подвижных дефектов происходит образование агрегатных ЦО, состоящих из нескольких анионных вакансий в соседних узлах. Первыми образуются агрегатные F_2^+-ЦО в результате объединения подвижных анионных вакансий F^+ с неподвижными F-ЦО. F_2^+-ЦО в чистом LiF подвижны и могут захватывать свободные электроны или электроны, сидящие в ловушках, преобразуясь в F_2 ЦО. F_3^+-ЦО образуются объединением F_2^+- и F- или F_2- и F^+-ЦО. Известно, что кислородные примеси в LiF стабилизируют F_2^+-ЦО, лишая их подвижности.

F-ЦО в LiF дают полосу поглощения с максимумом около 250 нм. Люминесценция F-ЦО в LiF не обнаружена. F_2- и F_3^+-ЦО имеют почти полностью перекрывающиеся полосы поглощения с максимумами около 450 нм. Максимумы линий люминесценции F_2- и F_3^+- ЦО находятся в видимой спектральной области: на 670 и 530 нм соответственно.

При воздействии на прозрачные диэлектрики достаточно интенсивных лазерных импульсов происходит нелинейное поглощение света с образованием электронных возбуждений. Нелинейная ионизация имеет два предельных случая: многофотонная и туннельная ионизация. В литературе по фемтосекундному лазерному окрашиванию LiF, как правило, считается, что происходит многофотонная ионизация 8-9 степени, исходя из соотношения ширины запрещённой зоны LiF (около 13,7 эВ) и энергии единичного фотона первой гармоники титан-сапфирового лазера с длиной волны около 800 нм.

Математические модели, описывающие самофокусировку и филаментацию, как правило, основаны на нелинейном уравнении Шрёдингера (НУШ) относительно комплексной амплитуды напряженности электрического поля световой волны. Решение НУШ обычно требует численных расчётов с применением ЭВМ. В качестве основы теоретической модели нами выбрано

уравнение из классической работы [7], описывающее стационарную дифракцию и самофокусировку:

$$\Delta_{\perp}E + 2ik\frac{\partial E}{\partial z} + k^2 n_2 |E|^2 = 0\,, \tag{1а}$$

$$E\big|_{z=0} = E_0 e^{-r^2/2a^2}\,. \tag{1б}$$

Здесь $E(x,\ y,\ z)$ – комплексная амплитуда колебаний электрического поля световой волны в точке с координатами x, y и z, причём оси X и Y направлены перпендикулярно оси луча, а Z в направлении луча. i – мнимая единица. $k = 2\pi/\lambda$ – волновое число. n_2 есть коэффициент при первой степени интенсивности I в разложении показателя преломления n: $n(I) = n_0 + n_2 I + \ldots$ $\Delta_{\perp} = \partial^2/\partial x^2 + \partial^2/\partial y^2 = \partial^2/\partial r^2 + \partial/r\partial r$ – поперечный лаплассиан. Параметры E_0 и a задают амплитуду и ширину исходного луча. В безразмерных величинах

$$E' = E/E_0\,,\ N = E_0 ka\sqrt{n_2}\,,\ z' = E_0\sqrt{n_2}z/a\,,\ r' = r/a\,,$$

(1а) и (1б) принимают более простой вид

$$\Delta_{\perp}E' + 2iN\frac{\partial E'}{\partial z'} + N^2|E'|^2 E' = 0\,, \tag{2а}$$

$$E'\big|_{z=0} = e^{-r'^2/2}\,. \tag{2б}$$

Параметр N пропорционален квадратному корню из исходной мощности луча. $N \approx 2$ соответствует критической мощности самофокусировки (около 8,8 МВт для LiF). Данная базовая модель учитывает только дифракцию и самофокусировку света. Учёт многофотонного поглощения и дефокусировки света плазмой посредством осуществляется введением в НУШ (2а) соответствующих слагаемых, например, имеющих следующий вид:

$$i\mu|E'|^{2K-2} \text{ [7] и } \nu|E'|^{2K} \text{ [8]},$$

где K – степень нелинейности поглощения, μ и ν – численные параметры, относящиеся к поглощению света в материале и его дефокусировке плазмой.

Вторая глава содержит описание экспериментальной техники и методов лазерного окрашивания кристаллов LiF и их дальнейшего исследования, а также результатов нашей работы по созданию светосильного растрового спектрометра.

Исследуемые кристаллы LiF выращены методом Киропулоса в воздушной атмосфере. До лазерного воздействия образцы выглядят прозрачными и бесцветными. Поверхности образцов представляли собой полированные либо необработанные сколы.

Спектры поглощения образцов в области 3400-3800 см$^{-1}$, свидетельствующие о присутствии кислородных примесей, получены с использованием фурье-спектрометра Bruker IFS 25 (ИрИХ СО РАН, г. Иркутск).

Эксперименты по лазерному окрашиванию кристаллов LiF выполнены на установке, построенной на основе титан-сапфирового фемтосекундного лазера FEMTOLASERS FEMTOPOWER Compact PRO (ИЛФ СО РАН,

г. Новосибирск). Спектральный максимум линии излучения находится около 800 нм, длительность импульсов, измеренная на полувысоте интенсивности, составляет 30 фс, частота повторения импульсов – до 1 кГц, максимальная энергия отдельных импульсов – до 0,5 мДж. Луч лазера фокусировался линзой с фокусным расстоянием 30 см. Свечение облучаемой области кристалла наблюдалось при помощи микроскопа. Образцы могли перемещаться как вдоль направления луча, так и поперек. Продольное перемещение позволяло фокусировать свет в пространстве перед кристаллом, на его поверхности или в объеме. Движение в поперечном направлении позволяло, в частности, пространственно разделять в кристалле воздействие единичных импульсов. Для возбуждения люминесценции образованных ЦО после прекращения воздействия лазера использовались вспомогательные лазеры с длинами волн 405 и 660 нм и светодиод 455 нм. Свечение образца во время облучения фемтосекундным лазером, а также вспомогательными лазерами и светодиодом регистрировалось цифровой фотокамерой, а также анализировалось при помощи оптического спектрометра с оптоволоконным вводом Ocean Optics QE65000.

Для более детального исследования пространственного распределения образовавшихся ЦО использовался конфокальный люминесцентный сканирующий микроскоп с временным разрешением PicoQuant MicroTime 200 (ИФ ИЛФ СО РАН, г. Иркутск) и входящий в его состав оптический микроскоп Olympus IX 71. MicroTime 200 позволяет изучать пространственное распределение люминесценции в прозрачных образцах, локальную временную кинетику люминесценции и её спектральный состав (при подключении внешнего спектрометра Ocean Optics QE65000). Использовались 4 объектива с рабочей дистанцией 0,28-10,6 мм и числовой апертурой 1,2-0,25. Пространственное разрешение для объектива числовой апертурой 1,2 составляет около 400 нм в латеральной плоскости и около 2 мкм в перпендикулярном направлении. Для возбуждения люминесценции в составе микроскопа имеется пять импульсных пикосекундных лазеров с длинами волн 375, 405, 470, 530 и 640 нм. Изображение строится поточечно при построчном сканировании образца методом перемещения объектива. Площадь сканирования составляет 100x100 мкм, точность позиционирования пьезосканера – 10 нм. Вывод и обработка экспериментальных данных осуществляются при помощи компьютера.

Оптический дисперсионный спектрометр Ocean Optics QE65000 имеет асимметричную скрещенную оптическую схему Черни-Тернера. Оснащен оптоволоконным вводом и охлаждаемой до -15 °С ПЗС-матрицей, имеющей максимальный квантовый выход 90%. Спектральный рабочий диапазон лежит в пределах от 200 до 1000 нм. Разрешение составляет около 3 нм. Время накопления сигнала можно варьировать в пределах от 8 мс до 15 минут.

На начальном этапе работы в нашем распоряжении не было достаточно чувствительного оптического спектрометра, поэтому решалась задача по разработке простого, дешёвого и надежного спектрометра с высоким отношением сигнал/шум для исследования слабоокрашенных образцов. В

качестве прототипа был выбран светосильный растровый спектрометр без движущихся частей. Прибор устроен подобно традиционным дисперсионным спектрометрам, отличаясь тем, что вместо обычной входной щели он имеет структуру из прозрачных и непрозрачных элементов (растр), чередующихся в определенном порядке. Спектральная развёртка растра проецируется на матричный многоканальный фотоприемник, например, ПЗС-матрицу, после чего осуществляется поиск спектра при помощи ЭВМ по определённому алгоритму. За счёт использования растра вместо обычной щели спектрометр-прототип имеет большую светосилу и отношение сигнал/шум, чем традиционный спектрометр при прочих равных условиях.

Мы нашли возможность существенного упрощения структуры входного растра спектрометра без какого либо проигрыша в технических характеристиках прибора. Упрощение достигается применением новых математических матриц **C** и **D** для построения растра и поиска спектра. Введенные нами матрицы задаются следующими соотношениями для их *i*-х столбцов $\mathbf{C}_i$ и $\mathbf{D}_i$:

$$\mathbf{C}_i = \frac{1}{2}\begin{pmatrix} 1+a_i \\ 1-a_i \\ 1+b_i \\ 1-b_i \end{pmatrix} \text{ и } \mathbf{D}_i = \begin{pmatrix} a_i \\ -a_i \\ b_i \\ -b_i \end{pmatrix}$$

соответственно, где a_i и b_i есть члены комплементарных последовательностей Голея. На основе полученного результата оформлены 2 патента РФ на полезные модели. Построен и апробирован лабораторный образец спектрометра.

В третьей главе изложены экспериментальные результаты и их теоретическая интерпретация.

Вид окрашенных каналов в LiF, созданных при филаментации фемтосекундных лазерных импульсов, представлен на рис. 1 (лазерный луч распространялся слева направо). Для возбуждения люминесценции ЦО использовался синий светодиод (длина волны около 450 нм). Видны отдельные окрашенные нити – шпуры. На рис. 1а показан результат воздействия единичного импульса с энергией около 0,5 мДж, на рис. 1б – большого числа импульсов (порядка 10^4).

Для выявления основного механизма образования длины шпуров в LiF при филаментации единичных лазерных импульсов нами проведен следующий анализ экспериментальных данных. Во-первых, мы обратили внимание на тот факт, что в эксперименте расположение завершения дальнего от входной поверхности образца конца окрашенного канала при фокусировке луча длиннофокусной линзой в объем кристалла не зависит от энергии импульсов.

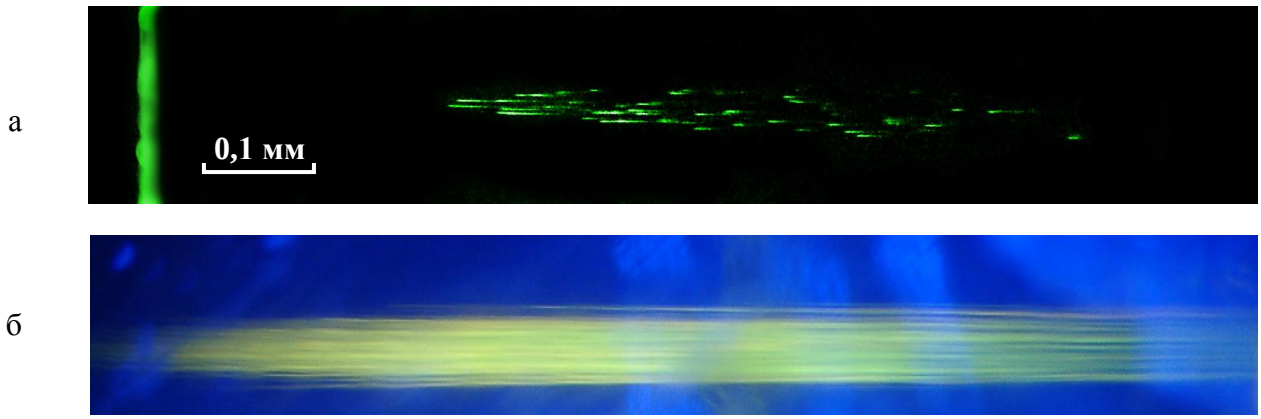

Рис. 1. Шпуры, сформированные в кристалле LiF при филаментации фемтосекундного излучения, проходившего слева направо. Люминесценция ЦО возбуждается синим светодиодом. а – результат воздействия единичного импульса, б – большого числа импульсов.

Данный факт однозначно свидетельствует в пользу реализации механизма движущихся фокусов: в этом случае филаменты должны заканчиваться в геометрическом фокусе линзы, тогда как в случае реализации волноводного механизма формирования филаментов они могут продлеваться дальше фокуса линзы. Однако сама по себе модель движущихся фокусов не дает ответа на вопрос о длине шпуров: траектории движения фокусов могут быть бесконечно большой длины, а наблюдаемая длина шпуров всегда конечна. Во-вторых, из наших экспериментов следует, что при варьировании энергии импульсов начала шпуров смещаются относительно входной поверхности на большие расстояния, чем наблюдаемая длина шпуров, сформированных единичными импульсами. Иными словами, показано, что длина шпуров в LiF меньше длины траектории перемещения нелинейных фокусов, происходящего при варьировании интенсивности излучения. В-третьих, нами было отмечено, что в окрашенном канале, созданном единичным импульсом, длина шпуров и концентрация центров окраски в них тем выше, чем ближе к входной поверхности образца расположены шпуры (рис. 1 а). Данный факт не может быть объяснен различием энергии излучения, входящего в различные фокусы, так как, согласно теории множественной самофокусировки, на каждый нелинейный фокус приходится энергия одного порядка величины, а именно порядка критической мощности самофокусировки. Представляется естественным объяснение относительного различия длин шпуров различной плотностью интегральной по времени энергии в различных траекториях движения нелинейных фокусов.

Действительно, известно, что нелинейные фокусы перемещаются с различной скоростью при варьировании входной интенсивности. В работе [7] для случая аксиально-симметричного гауссова луча показано, что при превышении критической мощности самофокусировки образуется ряд нелинейных фокусов на оси симметрии, расположенных на известных расстояниях. Причём, при варьировании исходной мощности луча, различные фокусы смещаются на различное расстояние: чем ближе к входной поверхности

находится фокус, тем меньше он смещается при варьировании входной мощности. Следовательно, вблизи входной поверхности интегральная плотность энергии на траекториях движения фокусов при варьировании мощности луча оказывается выше, чем вдали от поверхности. Случай луча, возмущенного неоднородностями, отличается тем, что фокусы не находятся на оси симметрии, что не меняет сути вывода.

Нами впервые обнаружено, что поперечные сечения шпуров, сформированные в LiF облучением большим числом импульсов (порядка 10^4), отображаются в форме колец при возбуждении люминесценции входящих в них F_2- и F_3^+-ЦО. На рис. 2 приведен пример изображения такого сечения, полученного при помощи конфокального микроскопа.

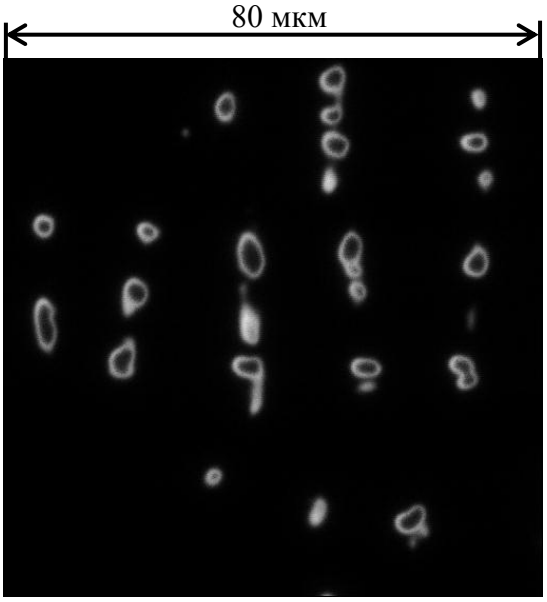

Рис. 2. Поперечные сечения шпуров, сформированные в LiF облучением большим числом импульсов (в данном случае10^4 импульсов), отображаются в форме колец при возбуждении люминесценции F_2- и F_3^+-ЦО.

Для раскрытия механизма данного эффекта нами были получены спектры люминесценции точек на кольцах и внутри колец с различными длинами волн возбуждения: 470 (рис. 3а) и 640 нм (рис. 3б). Регистрация спектров выполнена при помощи конфокального микроскопа и спектрометра. В спектрах представлены линии люминесценции F_2- и F_3^+-ЦО с максимумами около 670 и 540 нм, а также полоса с максимумом около 850 нм. Интенсивность люминесценции F_2- и F_3^+-ЦО во всех случаях выше на кольце, чем в его центре. Интенсивность полосы на 850 нм, наоборот, выше в центре колец. Данная линия относится к люминесценции стабилизированных кислородными примесями F_2^+-ЦО. Это следует из полученной нами кинетики изменения интенсивности данной полосы и полос F_2- и F_3^+-ЦО после фемтосекундного облучения. Сразу после облучения интенсивность полосы на 850 нм растёт, достигает максимума приблизительно через 15 минут, после чего снижается с характерным временем около 3 часов до некоторого ненулевого уровня. При этом наблюдается рост интенсивности люминесценции F_2- и F_3^+-ЦО с таким же

характерным временем. Данные факты объясняются относительно быстрым образованием F_2^+-ЦО из первичных радиационных дефектов после облучения и последующим их расходом на образование F_2, F_3^+ и других ЦО. Остаточная люминесценция F_2^+-ЦО объясняется стабилизацией некоторой их доли кислородными примесями.

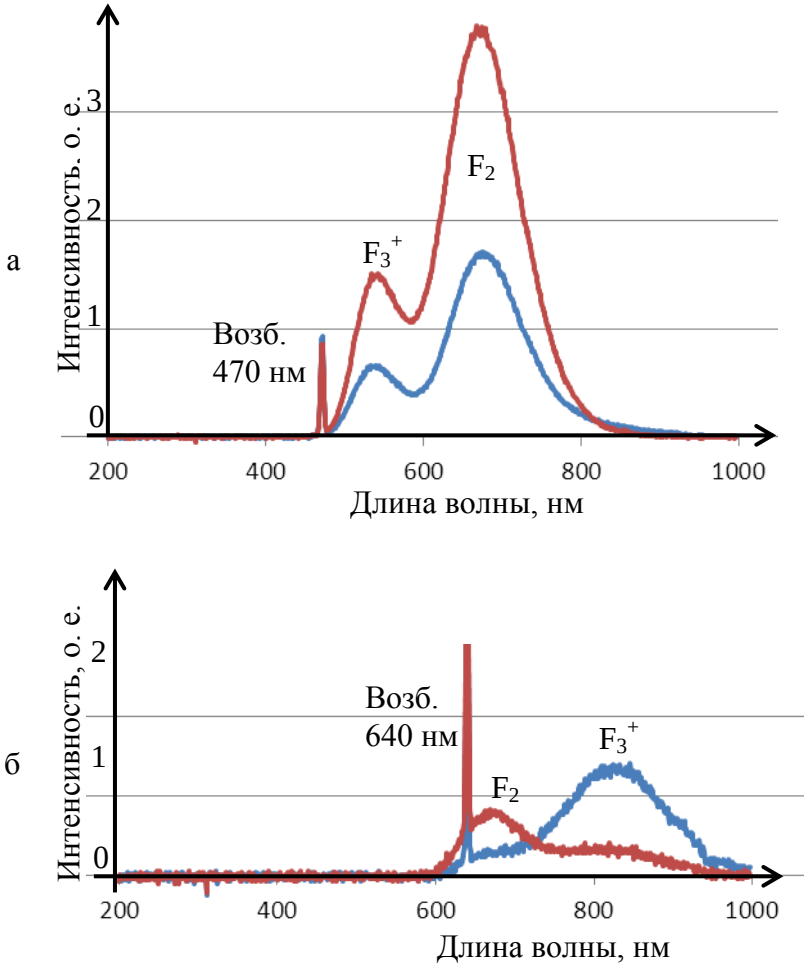

Рис. 3. Спектры люминесценции точек на кольцах (красная линия) и внутри колец (синяя линия) для возбуждения с длиной волны (а) 470 и (а) 640 нм (возбуждение представлено на графиках узкими линиями слева).

Дополнительно при помощи конфокального микроскопа были получены изображения одного и того же поперечного сечения шпура с различными длинами волн возбуждения: 470 (рис. 4а) и 640 нм (рис. 4б). Шпур создан при облучении образца большим числом импульсов (порядка 10^4) с энергией отдельных импульсов 0,04 мДж. Ширина изображенной на рис. 4 области образца составляет 15 мкм. Изображения на рис. 4 подтверждают вывод, что вблизи оси шпуров люминесценция F_2^+-ЦО более интенсивна.

а Б

Рис. 4. Поперечные сечения шпура в LiF, полученные при помощи конфокального микроскопа. а – возбуждение на 470 нм, люминесцируют F_2- и F_3^+-ЦО. б – возбуждение на 640 нм, люминесцируют F_2^+-ЦО.

Совокупность указанных экспериментальных фактов свидетельствует о следующем. Во-первых, более интенсивная люминесценция F_2^+-ЦО вблизи оси шпура может быть объяснена только большей накопленной дозой облучения по сравнению с участками, удалёнными от оси. Значит, интенсивность света в филаменте максимальна на его оси. Во-вторых, менее интенсивная люминесценция F_2- и F_3^+-ЦО вблизи оси шпура объясняется уменьшением её выхода вследствие высокой концентрации этих ЦО. Уменьшение выхода люминесценции ЦО при их высокой концентрации является известным фактом и объясняется, в частности, реабсорбцией.

Для объяснения обнаруженного эффекта продольной спектральной селекции люминесценции LiF, возбуждаемой во время облучения фемтосекундным лазером, состоящего в том, что свечение канала в кристалле в ходе облучения фемтосекундным лазером имеет различный спектральный состав (в начале канала преобладает фиолетовая составляющая, а ближе к концу – зелёная) нами проведен спектральный анализ свечения канала. На рис. 5а показан люминесцирующий под действием фемтосекундного лазерного излучения с частотой повторения импульсов 1 кГц канал в кристалле LiF. Луч лазера направлен слева направо. На рис. 5б для сравнения приведен вид люминесцирующего канала в предварительно окрашенном гамма-излучением кристалле LiF, линейно возбуждаемого лучом лазера непрерывного действия с длиной волны 450 нм. Видно, что цвет люминесценции здесь не меняется вдоль луча.

Спектр свечения канала в LiF при фемтосекундном лазерном облучении приведён на рис. 6. Зелёное свечение объясняется люминесценцией F_3^+-ЦО. Данные ЦО возбуждаются как исходным 800-нм излучением в нелинейном режиме, так и генерируемым суперконтинуумом (линейно). Коротковолновая компонента, воспринимаемая как фиолетовый свет, находится в области 250-450 нм. Согласно литературным данным это свечение является люминесценцией кислородных примесей в LiF, наличие которых подтверждается полученными ИК-спектрами поглощения образцов. В линейном режиме данные примеси возбуждаются на длине волны около 200 нм. Следовательно, при фемтосекундном лазерном облучении с длиной волны 800 нм происходит 4-фотонное возбуждение данных примесей. Для этого процесса

достаточно меньшей интенсивности лазерного света, чем для 8-9-фотонной генерации ЦО. Учитывая рост интенсивности лазерного излучения вдоль направления луча при самофокусировке, мы приходим к выводу, что люминесценция кислородных примесей должна начинаться ближе к входной поверхности образца, чем образование и люминесценция ЦО. На основе НУШ нами построена простая модель, иллюстрирующая рост интенсивности люминесценции центров свечения с различной степенью нелинейности возбуждения вдоль оси самофокусирующегося луча (рис. 7).

а

б

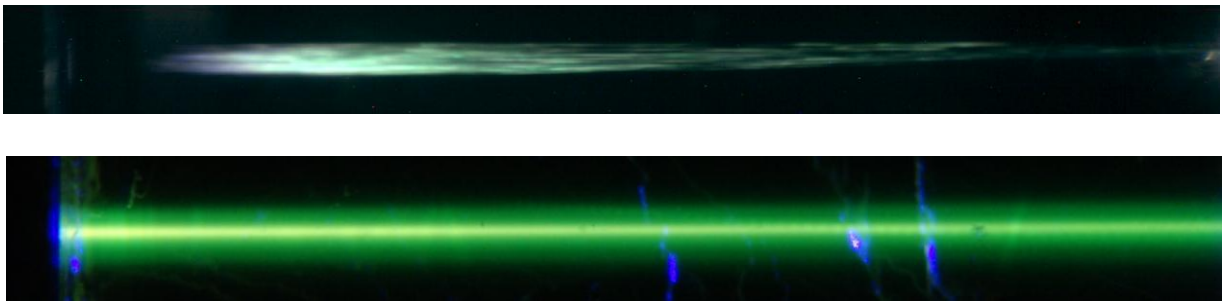

Рис. 5. а – люминесцирующий под действием фемтосекундного лазерного излучения с частотой повторения импульсов 1 кГц канал в кристалле LiF. Луч лазера направлен слева направо. б –люминесценция канала в предварительно окрашенном гамма-излучением кристалле LiF, линейно возбуждаемая лучом лазера непрерывного действия с длиной волны 450 нм.

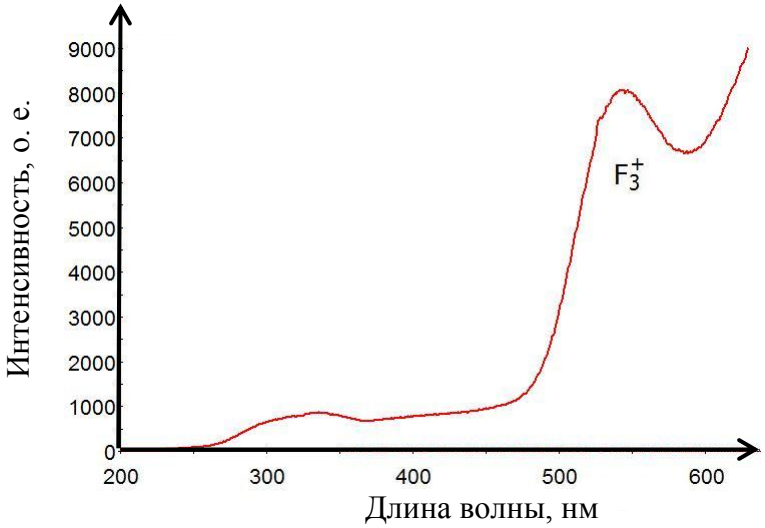

Рис. 6. Спектр люминесценции начальной части канала в LiF, возбуждаемой излучением фемтосекундного лазера с длиной волны около 800 нм. Коротковолновая люминесценция здесь относительно более интенсивна.

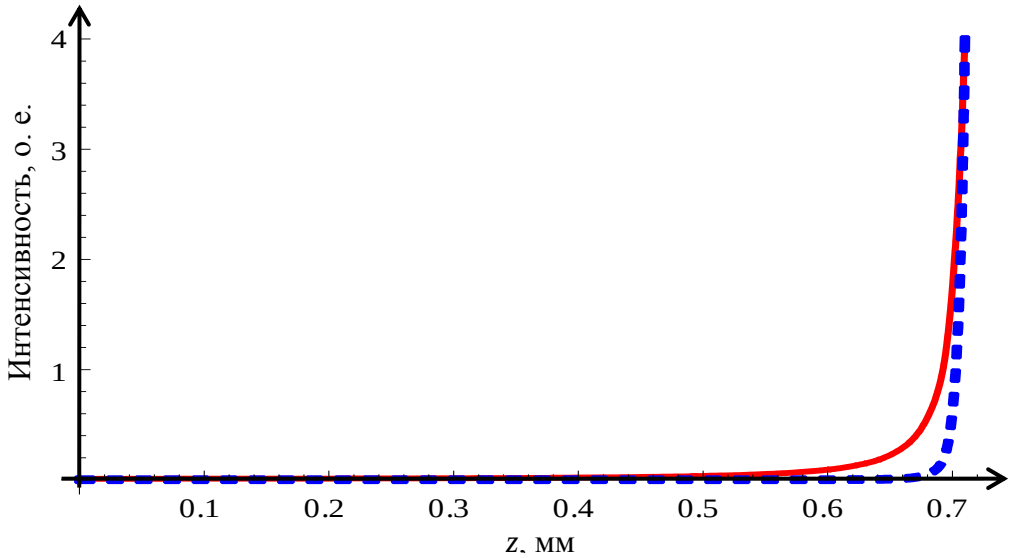

Рис. 7. Модельные кривые роста интенсивности люминесценции центров со степенью нелинейности возбуждения 4 (красная сплошная линия) и 9 (синяя пунктирная) вдоль оси самофокусирующегося луча.

Выводы

Таким образом, получены следующие результаты диссертационной работы.

Установлено, что образование шпуров при филаментации единичного фемтосекундного лазерного импульса в кристалле LiF объясняется в рамках известной модели движущихся фокусов. При этом длина шпуров, расположенных ближе к входной поверхности кристалла, больше длины шпуров, расположенных дальше от поверхности, вследствие различной интегральной по времени плотности энергии лазерного излучения на траекториях движения соответствующих нелинейных фокусов.

Раскрыт механизм отображения поперечных сечений шпуров, сформированных под действием фемтосекундных лазерных импульсов в форме колец при возбуждении F_2 и F_3^+ центров окраски в LiF. Механизм состоит в снижении выхода люминесценции данных центров вследствие их большой концентрации вблизи оси шпуров.

Обнаружена и объяснена продольная спектральная неоднородность свечения облучаемого фемтосекундным лазерным излучением канала в твердом прозрачном диэлектрике. Данная неоднородность объясняется градиентом интенсивности при самофокусировке и различной нелинейностью возбуждения и создания центров свечения различных типов.

Полученные результаты имеют фундаментальное и прикладное значение, в частности, для развития приложений на основе лазерного окрашивания LiF и других материалов. На основе прикладных результатов работы оформлены 3 патента РФ.

СПИСОК ОСНОВНЫХ ПУБЛИКАЦИЙ ПО ТЕМЕ ДИССЕРТАЦИИ

Публикации в рецензируемых журналах из списка ВАК

1. Мартынович, Е.Ф. Окрашивание широкощелевых кристаллов интенсивным лазерным излучением / Е.Ф. Мартынович, Д.В. Балюнов, А.В. Кузнецов, А.В. Кирпичников, В.И. Трунов, Е.В. Пестряков, С.Н. Багаев // Изв. вузов. Физика. – 2009. – Т. 52. – № 12/3. – С. 191-198.

2. Кузнецов, А.В. Механизм филаментации фемтосекундного лазерного излучения в широкозонных диэлектриках при образовании центров окраски / А.В. Кузнецов, Е.Ф. Мартынович // Изв. вузов. Физика. – 2009. – Т. 52. – № 12/3. – С. 180-182.

3. Мартынович, Е.Ф. Методика исследования люминесценции приповерхностного слоя твердотельных образцов / Е.Ф. Мартынович, А.В. Кузнецов, С.В. Шерстобитов // Изв. вузов. Физика. – 2009. – Т. 52. – № 12/3. – С. 198-202.

4. Шерстобитов, С.В. Радиационные центры окраски в приповерхностном слое кристаллов фтористого лития / Е.Ф. Мартынович, А.В. Кузнецов, А.П. Войтович, В.С. Калинов // Известия вузов. Физика, Т. 52, № 8/2, С. 566-569, 2009.

5. Кузнецов, А.В. Статический многощелевой дисперсионный оптический спектрометр, основанный на комплементарных последовательностях Голея / А.В. Кузнецов, Е.Ф. Мартынович // Письма в ЖТФ, Т. 34, №. 11, С.1-6, 2008.

6. Кузнецов, А.В. Комплементарные последовательности Голея в многощелевой дисперсионной оптической спектроскопии / А.В. Кузнецов, Е.Ф. Мартынович // Оптический журнал, Т.75, № 5, С. 8-11, 2008.

7. Кузнецов, А.В. Статические многощелевые дисперсионные оптические спектрометры для твердотельной спектроскопии / А.В. Кузнецов, Е.Ф. Мартынович // Оптика и спектроскопия, Т. 105, № 3, С. 532-534, 2008.

Патенты

8. А.В. Кузнецов, Е.Ф. Мартынович. Статический мультиплексный дисперсионный спектрометр // Патент РФ на полезную модель № 70575, 2008. Патентообладатели: ИФ ИЛФ СО РАН и ГОУ ВПО ИГУ.

9. А.В. Кузнецов, Е.Ф. Мартынович. Статический мультиплексный дисперсионный спектрометр // Патент РФ на полезную модель № 70576, 2008.

10. Е.Ф. Мартынович, А.В. Кузнецов, Д.В. Балюнов, С.Н. Багаев. Оптический носитель информации // Патент РФ на полезную модель № 85027, 2009.

СПИСОК ЦИТИРУЕМОЙ ЛИТЕРАТУРЫ

1. Лущик, Ч.Б. Распад электронных возбуждений с образованием дефектов в твердых телах / Ч.Б. Лущик, А.Ч. Лущик. - Москва: Наука, 1989. – 262 с.

2. Кандидов, В.П. Филаментация мощного фемтосекундного лазерного излучения / В.П. Кандидов, С.А. Шлёнов, О.Г. Косарева // Квантовая электроника. – 2009. – Т. 39. – С. 205-228.

3. Гордиенко, В.М. Самовоздействие мощного десятимикронного лазерного излучения в газовых средах: управление длительностью импульса и генерация

горячих электронов / В.М. Гордиенко, В.Т. Платоненко, А.Ф. Стержантов // Квантовая электроника. – 2009. – Т. 39. – С. 663-668.
4. Courrol, L.C. Determination of a dose-like curve for active colour centres produced in LiF single crystals by ultrashort high intensity laser pulses and a preliminary investigation of their spectral and spatial properties by confocal and atomic microscopies / L.C. Courrol, R.E. Samad, O.E. Martinez, L. Gomes, I.M. Ranieri, S.L. Baldochi, A.Z. Freitas // Journal of optics. – 2008. – V. 10. – P. 104023.
5. Kurobori, T. Simultaneous fabrication of laser-active colour centres and permanent microgratings in lithium fluoride by a single femtosecond pulse / T. Kurobori, K. Kawamura, M. Hirano and H. Hosono // J. Phys.: Condens. Matter. – 2003. – V. 15. – P. L399 - L405.
6. Мартынович Е.Ф. Высоконелинейные фундаментальные механизмы возбуждения и окрашивания широкозонных кристаллов интенсивными фемтосекундными лазерными импульсами / Е.Ф. Мартынович, Д.С. Глазунов, А.А. Григорова, А.А. Старченко, А.В. Кирпичников, В.И. Трунов, М.А. Мерзляков, В.В. Петров, Е.В. Пестряков // Опт. и спектр. – 2008. – Т. 105. – С. 380-384.
7. Луговой В.Н. Теория распространения мощного лазерного излучения в нелинейной среде / В.Н. Луговой, А.М. Прохоров // УФН. – 1973. – Т. 111. – С.203-247.
8. Балашов А.Д. Математическое моделирование распространения фемтосекундного импульса / А.Д. Балашов, А.Х. Пергамент // Математическое моделирование. – 2006. – Т.18. – С. 3-18.

Кузнецов Андрей Викторович

ПРОСТРАНСТВЕННОЕ РАСПРЕДЕЛЕНИЕ ЦЕНТРОВ ОКРАСКИ, СОЗДАВАЕМЫХ В LiF ПОД ДЕЙСТВИЕМ ФЕМТОСЕКУНДНЫХ ЛАЗЕРНЫХ ИМПУЛЬСОВ

Автореф. дисс. на соискание учёной степени кандидата физико-математических наук.