

# СОБСТВЕННЫЙ И МНОГОИМПУЛЬСНЫЙ ОПТИЧЕСКИЙ ПРОБОЙ ПРОЗРАЧНЫХ ДИЭЛЕКТРИКОВ В ФЕМТО–НАНОСЕКУНДНОЙ ОБЛАСТИ ДЛИТЕЛЬНОСТЕЙ ЛАЗЕРНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ

© 2004 г. О. М. Ефимов, доктор физ.-мат. наук

HRL Laboratories, LLC, Малибу, Калифорния, США  
E-mail: omefimov@hrl.com

Обзор посвящен исследованию природы оптического пробоя силикатных стекол. Эксперименты были выполнены в широком диапазоне длин волн, длительностей импульсов лазерного излучения и размеров пятен фокусировки. Показано, что пороговая плотность мощности собственного оптического пробоя боросиликатного стекла на длине волны порядка 1 мкм не зависит от длительности импульсов излучения в диапазоне от  $2 \times 10^{-13}$  до  $3 \times 10^{-8}$  с. Этот результат невозможно объяснить в рамках существующих теорий. Он указывает, что механизм пробоя связан с коллективной ионизацией диэлектрика как целого, а не с накоплением электронов в результате их индивидуальной ионизации, вследствие многофотонного, туннельного или лавинного возбуждения. Специальное внимание уделяется исследованию процессов электронных возбуждений в щелочно- и свинцово-силикатных стеклах.

Коды OCIS: 320.0320, 320.2250, 320.4240.

Поступила в редакцию 17.12.2003.

## 1. Введение

Первые наблюдения оптического пробоя (ОП) прозрачных диэлектриков при воздействии коротких импульсов лазерного излучения были выполнены 40 лет назад, однако природа этого явления окончательно не выяснена до настоящего времени. Все существующие теории, включая наиболее развитую модель лавинного пробоя [1–4], предполагают индивидуальную ионизацию ионов диэлектрика и накопление свободных электронов до концентрации, обеспечивающей значительное поглощение лазерного излучения одновременно с действием импульса. Они предсказывают сильную зависимость порогов ОП от длительности импульсов излучения и накопление дефектов при многократном допороговом облучении. Эти вопросы, являющиеся ключевыми для понимания природы ОП, детально исследовались на протяжении многих лет. Было найдено, что пороги ОП, измеренные в единицах плотности энергии [Дж/см<sup>2</sup>], пропорциональны корню квадратному из длительности импульса и стремятся к постоянному значению для импульсов короче 10 пс [2, 3]. Все разнообразие этих зависимостей было объяснено лавинной ионизацией диэлектриков с различным вкладом многофотонного и/или туннельного возбуждения электронов.

Следует отметить, что для корректного сравнения с теоретическими выводами в экспериментах должен быть измерен именно порог собственного ОП. Он обусловлен взаимодействием оптического излучения с матрицей вещества в условиях, когда отсутствуют допороговые изменения пространственно-временной структуры излучения в объеме

взаимодействия. Это означает, что любые неконтролируемые изменения структуры излучения должны быть исключены, поскольку невозможно измерить длительность импульса излучения и размер пятна фокусировки точно в момент ОП.

Основными источниками таких неконтролируемых изменений являются интерференция мод и самофокусировка лазерного излучения. Интерференция продольных и поперечных мод приводит к появлению высокоинтенсивных коротких импульсов во временном распределении и к возникновению “горячих” точек в пространственном распределении интенсивности излучения. Такие флуктуации являются основной причиной широкого статистического распределения порогов ОП [5] и приводят к существенному снижению измеряемых абсолютных значений [6]. Поэтому только одночастотные лазеры или лазеры с высокостабильными спектрами излучения должны использоваться в экспериментах по ОП.

Для исключения влияния самофокусировки обычно применяются иммерсионные объективы с большой числовой апертурой [4, 6, 7]. С той же целью в некоторых исследованиях пороги разрушения были измерены на поверхности диэлектриков [2, 3]. К сожалению, эти данные не могут быть использованы для выяснения природы пробоя в объеме диэлектрика, так как объем и поверхность материалов имеют слишком различные свойства и энергетическое строение. Вследствие этого пороги объемного и поверхностного ОП, как правило, имеют различные абсолютные значения и сильно различаются статистические распределения [5, 8], что указывает на различные механизмы их разрушения.



Основной целью настоящего исследования являлось измерение порогов собственного ОП силикатных стекол под действием острогофокусированного лазерного излучения с длиной волны  $\lambda \approx 1$  мкм, а также изучение допорогового накопления дефектов при многократном облучении в широком диапазоне длительностей импульсов от  $2 \times 10^{-13}$  до  $3 \times 10^{-8}$  с. Кроме того, специальное внимание было уделено исследованию процессов электронных возбуждений в этих стеклах. Чтобы исключить вышеупомянутые неконтролируемые изменения интенсивности лазерного излучения, все эксперименты с лазерными импульсами длительностью более  $10^{-11}$  с были выполнены с одночастотным лазерным излучением. Это позволило измерять пороги как однократного, так и многократного ОП с относительной точностью лучше 1%. Спектрально стабилизированное лазерное излучение использовалось для получения более коротких импульсов в пико-фемтосекундной области длительностей. Точность измерений в этой области была примерно 5%.

## 2. Электронные возбуждения в силикатных стеклах

Возбуждение примесей или многофотонное возбуждение матрицы диэлектрика обычно рассматриваются как источники затравочных электронов для лавинной ионизации [1–4]. Поэтому в первую очередь были исследованы электронные возбуждения примесей и матрицы силикатных стекол на различных длинах волн и в различных условиях возбуждения. Эти данные совершенно необходимы для понимания электронных процессов, возможных в различных стеклах, и они являлись основой для дальнейших исследований.

### 2.1. Возбуждение примесных ионов и ОП силикатных стекол

Ионизация примеси часто рассматривается как источник подвижных носителей заряда в широкозонных диэлектриках. В связи с этим были исследованы возбуждение примесных ионов и влияние этого процесса на ОП силикатных стекол под действием мощного лазерного излучения на длине волны  $\lambda \approx 1$  мкм. В экспериментах использовались специально синтезированные щелочно-силикатные стекла высокой чистоты, а также промышленные силикатные стекла с примесью ионов железа и меди.

Показатели поглощения стекол изменялись пропорционально концентрации примеси и варьировались в диапазоне  $5 \times 10^{-5}$ – $20$  см $^{-1}$ . Для измерения порогов ОП лазерное излучение с длиной волны

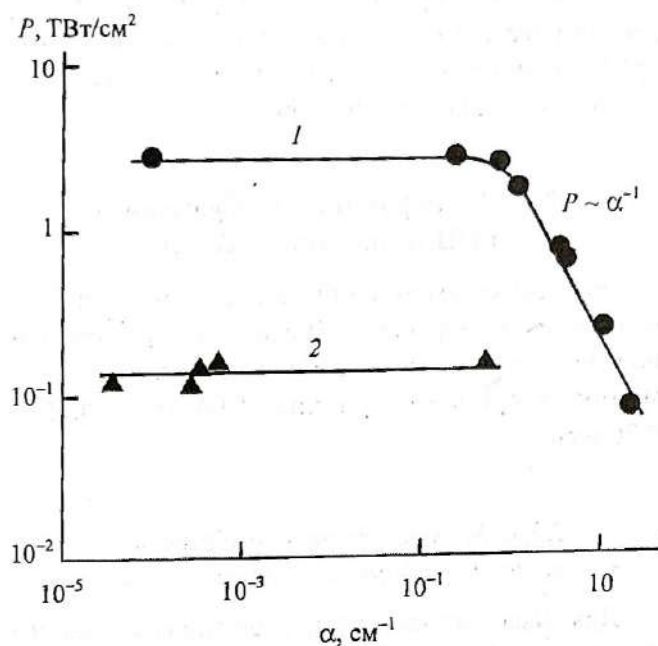


Рис. 1. Зависимость порога ОП силикатных стекол от показателя поглощения ( $\lambda = 1,06$  мкм) для различных пятен фокусировки: 1 – 0,5; 2 – 10 мкм [9].

1,06 мкм и длительностью импульсов излучения  $\tau \approx 30$  нс фокусировалось в объем стекол. Размер пятна фокусировки был 0,5 и 10 мкм (данные для пятна фокусировки 10 мкм заимствованы из [9]). Измерения показали, что в области сильного поглощения (более  $1$  см $^{-1}$ ) порог ОП не зависит от типа примеси и обратно пропорционален показателю поглощения (рис. 1), что указывает на тепловой механизм разрушения. В области более низких поглощений (от  $5 \times 10^{-5}$  до  $1$  см $^{-1}$ ) порог ОП стекол не зависит от показателя поглощения. Дополнительные исследования позволили установить, что это было связано с тем, что поглощение примесных ионов насыщалось при плотности мощности более  $10$  ГВт/см $^2$  [10]. В экспериментах лазерное излучение фокусировалось в объем стеклянного образца с показателем поглощения  $0,44$  см $^{-1}$ , обусловленного примесью ионов  $\text{Fe}^{2+}$ . Прямые измерения кинетики пропускания образца в течение действия импульса показали уменьшение поглощения в максимуме импульса на 2%, что соответствует полному насыщению поглощения примесных ионов в фокальной области. Рассчитанный прирост температуры образца в этой области в указанных условиях не превышал  $50$  °С. Полное насыщение примесного поглощения задолго до разрушения объясняет независимость порогов ОП стекол от их показателя поглощения. Этот факт, а также быстрый распад возбужденного состояния примеси (порядка  $15$  нс [10]) указывают, что при допороговом облучении стекол на длине волны  $\lambda \approx 1$  мкм в них наблюдаются только внутрицентровые возбуждения без образования подвижных электронов. Таким об-



разом, основные промышленные примеси не могут рассматриваться как поставщики подвижных электронов в широкозонных силикатных стеклах типа К8, ВК7 или плавленного кварца.

## 2.2. Многофотонное возбуждение и ОП силикатных стекол

На следующем этапе было исследовано многофотонное поглощение и ОП свинцово-, щелочно- и боросиликатных стекол на длинах волн четырех гармоник лазерного излучения: 1,06, 0,53, 0,35 и 0,26 мкм.

### 2.2.1. Многофотонное возбуждение щелочно- и боросиликатных стекол

Для исследований процессов многофотонного поглощения были выбраны промышленное боросиликатное стекло К8 (ВК7) и щелочно-силикатные стекла высокой чистоты. Элементарные электронные возбуждения в таких стеклах были изучены ранее [11]. Было показано, что граница фундаментального поглощения этих стекол находится в области 6 эВ (рис. 2а). Возбуждение электронов в области фундаментального поглощения приводило к появлению подвижных электронов и вследствие этого – к собственной люминесценции, к собственному фотоэффекту и к образованию центров окраски (ЦО).

На основании этих данных были изучены фотоиндуцированные процессы под действием мощного лазерного излучения [12]. Было установлено, что в этих стеклах может наблюдаться только двухфотонное поглощение мощного лазерного излучения с  $h\nu > E_g/2$ . Двухфотонное возбуждение, так же как и линейное возбуждение в области фундамен-

тального поглощения, вызывало яркую собственную люминесценцию и образование ЦО. Отличительной особенностью образования ЦО при лазерном возбуждении является его нелинейный характер: показатель дополнительного поглощения стабилизируется с ростом дозы облучения на некотором уровне, величина которого полностью определяется плотностью мощности лазерного излучения. Позже было показано [13], что эта зависимость связана с линейным обесцвечиванием ЦО одновременно с многофотонным возбуждением электронов.

Облучение стекол излучением с энергией кванта  $h\nu < E_g/2$  не приводило к собственной люминесценции или к образованию ЦО при плотностях мощности излучения вплоть до порога ОП этих стекол. Это указывает, что многофотонные процессы с кратностью три и более не возникают в исследованных щелочно- и боросиликатных стеклах.

### 2.2.2. Многофотонное возбуждение свинцово-силикатных стекол

Ранее было показано, что граница фундаментального поглощения свинцово-силикатных стекол формируется внутрицентровыми переходами ионов  $Pb^{2+}$  [14]. Именно поэтому возбуждение этих стекол в область фундаментального поглощения вызывает только собственную люминесценцию, связанную с внутрицентровыми переходами в ионах  $Pb^{2+}$ , но не приводит к появлению подвижных носителей заряда. По той же причине образование ЦО в этих стеклах при линейном возбуждении никогда не наблюдалось и их энергетическая структура оставалась невыясненной.

Энергетическая структура свинцово-силикатных стекол была установлена позже с помощью

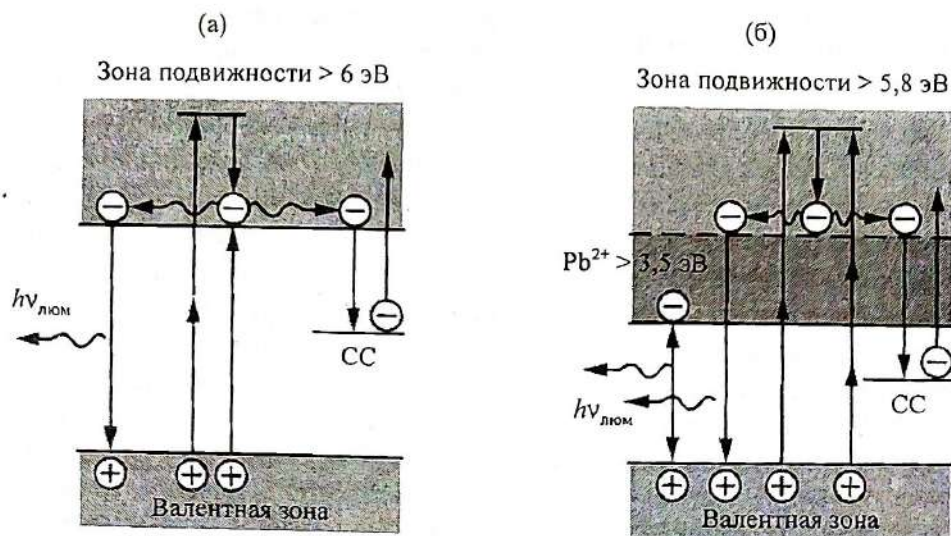


Рис. 2. Упрощенная схема элементарных электронных процессов в стеклах: а) щелочно- и боросиликатные стекла; б) свинцово-силикатные стекла.



спектроскопии нелинейного поглощения [15]. Было найдено, что область фундаментального поглощения и зона подвижности зарядов в этих стеклах формируются различными локализованными состояниями матрицы (рис. 2б). Образование ЦО возникало только в результате многофотонной ионизации матрицы стекла, так как длинноволновая граница подвижности зарядов оказалась расположенной значительно выше края фундаментального поглощения матрицы. Многофотонное возбуждение происходило через виртуальные состояния, расположенные в области фундаментального поглощения, что сильно увеличивало вероятность многофотонного перехода. Поэтому не только двух-, но и трехфотонное поглощение наблюдалось в этом случае.

Специальные эксперименты показали, что облучение свинцово-силикатных стекол излучением рубинового лазера (0,69 мкм) не вызывает люминесценции или образования ЦО при плотностях мощности излучения вплоть до порога ОП этих стекол. Это указывает, что многофотонные процессы с кратностью четыре и более не возникают в исследованных свинцово-силикатных стеклах.

### 2.2.3. ОП силикатных стекол в условиях многофотонного возбуждения

Как упоминалось в разделе 1, согласно существующим теориям наличие допороговых подвижных электронов является необходимым условием ОП прозрачных диэлектриков. Экспериментально установленные условия многофотонного поглощения излучения в силикатных стеклах, описанные выше, позволили провести исследование и сравнение характеристик пробоя стекол как при допороговом возбуждении подвижных электронов, так и без него.

Пороги ОП щелочно-силикатных стекол высокой чистоты и промышленного свинцово-силикатного стекла были измерены в области их прозрачности на длинах волн четырех гармоник неодимового лазера: 1,06, 0,53, 0,35 и 0,26 мкм [16]. Одночастотное лазерное излучение с длительностью импульсов  $\tau \approx 20$  нс фокусировалось в объем образцов в пятна диаметром  $d \approx 7$  мкм. Было установлено (рис. 3), что в условиях многофотонного поглощения лазерного излучения ( $\lambda = 0,53$  мкм для свинцово-силикатного стекла и  $\lambda = 0,26$  и 0,35 мкм для щелочно-силикатного стекла) пороги ОП исследованных стекол уменьшались примерно в 50 раз. Позже было показано [15, 17], что нелинейное возбуждение приводит к накоплению нестабильных ЦО, обладающих высоким поглощением на длине волны возбуждающего излучения. Нагрев стекла и изменение его показателя преломления в фокаль-

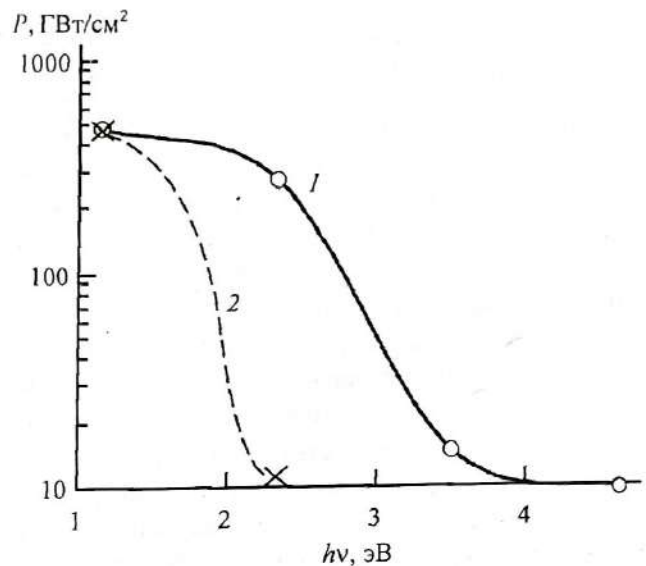


Рис. 3. Зависимость порога ОП промышленного свинцово-силикатного стекла (1) и щелочно-силикатного стекла высокой чистоты (2) от энергии фотона лазерного излучения [16].

ной области вызывают тепловую самофокусировку и ОП. Следует обратить внимание на близость значений порогов ОП изученных стекол на длине волны 1,06 мкм, а также на 0,53 мкм в свинцово-силикатном и на 0,26 и 0,35 мкм в щелочно-силикатном стеклах. Это указывает, что несмотря на значительную разницу в энергетической структуре стекол (рис. 2) они имеют сходные механизмы разрушения как в условиях многофотонного возбуждения, так и без него.

Таким образом, данные этого подраздела показывают, что возбуждение подвижных носителей заряда в силикатных стеклах приводит к многократному уменьшению порогов ОП, яркой собственной люминесценции и образованию стабильных и нестабильных ЦО. Любое из этих явлений может быть использовано как индикатор присутствия подвижных носителей заряда в объеме стекол. Поэтому была предпринята попытка обнаружить подвижные электроны в силикатных стеклах под действием мощного лазерного излучения на длине волны 1,06 мкм [18]. Были изучены допороговая люминесценция и образование ЦО в области облучения. Было показано, что в случае многофотонного поглощения образование ЦО наблюдается при плотностях мощности на три порядка ниже порога пробоя, а люминесценция регистрируется даже при плотностях мощности на четыре порядка ниже пороговой. Однако на длине волны 1,06 мкм ни одно из этих явлений не наблюдается в силикатных стеклах даже при плотностях мощности лишь на 1–2% ниже порога ОП. Это указывает на отсутствие допороговых электронных возбуждений в силикатных стеклах на длине волны  $\lambda \approx 1$  мкм.



### 2.3. Фотоионизация силикатных стекол под действием ИК фемтосекундных импульсов

Другой механизм фотоионизации силикатных стекол был обнаружен в фемтосекундной области длительностей импульсов при воздействии излучения с длиной волны 0,85 мкм [19]. Было установлено, что в этом случае ионизация происходит в результате двух нелинейных процессов: спектрального уширения проходящего излучения и линейного или двухфотонного поглощения коротковолновой части этого спектрально-уширенного излучения. Измерения показали, что расстояние, которое излучение проходит в среде до ионизации, обратно пропорционально плотности мощности излучения. Это позволило оценить возможность возбуждения электронов в условиях фокусировки фемтосекундных импульсов, использованных в экспериментах по измерению порогов ОП. В этих экспериментах длина каустики составляла примерно 1 мкм, а плотность мощности, необходимая для реализации описанного механизма возбуждения электронов на этой длине, должна была равняться примерно  $4 \times 10^3$  ТВт/см<sup>2</sup>, т. е. на три порядка выше измеренных порогов ОП. Это означает, что процесс ОП на длине волны  $\lambda \approx 1$  мкм происходит без допороговых электронных возбуждений даже под действием фемтосекундных импульсов излучения.

Таким образом, в данном разделе показано, что электронные возбуждения примесей и матрицы силикатных стекол могут быть легко обнаружены задолго до порога ОП этих стекол посредством наблюдения люминесценции и/или образования ЦО в фокальной области. С другой стороны, отсутствие этих процессов под действием острогофокусированного излучения с длиной волны  $\lambda \approx 1$  мкм указывает, что ОП силикатных стекол происходит без допороговых электронных возбуждений.

### 3. Зависимость порогов ОП силикатного стекла от длительности импульсов излучения

Измерение зависимости порогов ОП от длительности импульсов было выполнено с одним и тем же образцом промышленного боросиликатного стекла К8 (BK7). В экспериментах использовались две оптические системы с большой числовой апертурой. Одна из них использовалась в экспериментах со всеми длительностями импульсов и имела числовую апертуру 1,07. ОП определялся по свечению плазмы в фокальной области, регистрируемому через микроскоп в случае коротких импульсов, т. е. в этом случае измерялся порог образования плазмы. Эта оптическая система (рис. 4а, 4б) позволяла сфо-

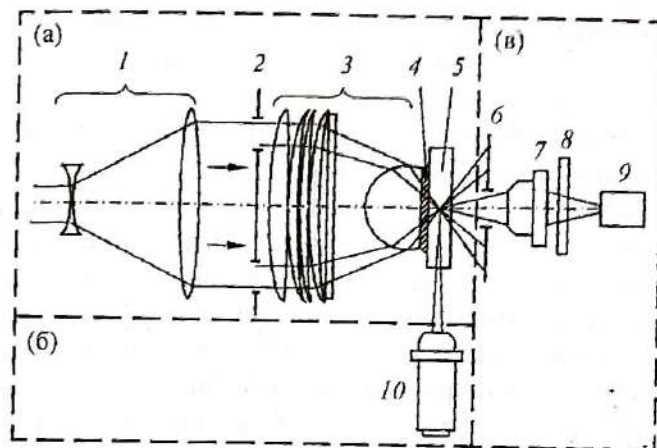


Рис. 4. Оптическая система для исследования процесса ОП стекол на длине волны 1,06 мкм: 1 – телескоп, 2 – кольцевая диафрагма, 3 – фокусирующая система с числовой апертурой 1,07, 4 – иммерсионная жидкость, 5 – образец, 6 – диафрагма, 7 – объектив с числовой апертурой 0,4, 8 – узкополосный фильтр, 9 – ПЗС-камера, 10 – микроскоп.

кусировать излучение с длиной волны  $\lambda \approx 1$  мкм в пятно размером 0,5 мкм и исключить влияние самофокусировки на результаты измерений [7]. Лазерный пучок расширялся телескопом 1, проходил через кольцевую диафрагму 2 и фокусировался объективом и стеклянной сферой 3 в объем образца 5 через тонкий слой иммерсионной жидкости 4. Регистрация свечения плазмы производилась с помощью микроскопа 10. Элементы 6–9 использовались в экспериментах по многократному облучению и будут рассмотрены ниже.

Другая система (рис. 5) использовалась только в измерениях порогов ОП под действием фемтосекундных импульсов. Она была сконструирована [20] на основе микроскопа с промышленным иммерсионным объективом 3 с возможностью перестройки числовой апертуры в диапазоне 0,8–1,35. Пространственное распределение интенсивности измерялось в фокальной области в объеме исследуемого стекла 4, а числовая апертура выбиралась такой, чтобы обеспечить тот же размер пятна, что и в предыдущей схеме. Порог ОП определялся по появлению видимых остаточных изменений в фокальной области непосредственно во время экспериментов через дихроичное зеркало 2, установленное в микроскопе. Образец 4 на рис. 5 является фотографией фрагмента реального образца с областями пробоя. Видно, что несмотря на высокое разрешение микроскопа (расстояние между разрушенными точками порядка 10 мкм) в нем заметны только дифракционные пятна. Это указывает на то, что модификация параметров стекла происходит лишь в очень малой области взаимодействия.

На рис. 6а показаны результаты измерений порогов однократного ОП образца боросиликатного



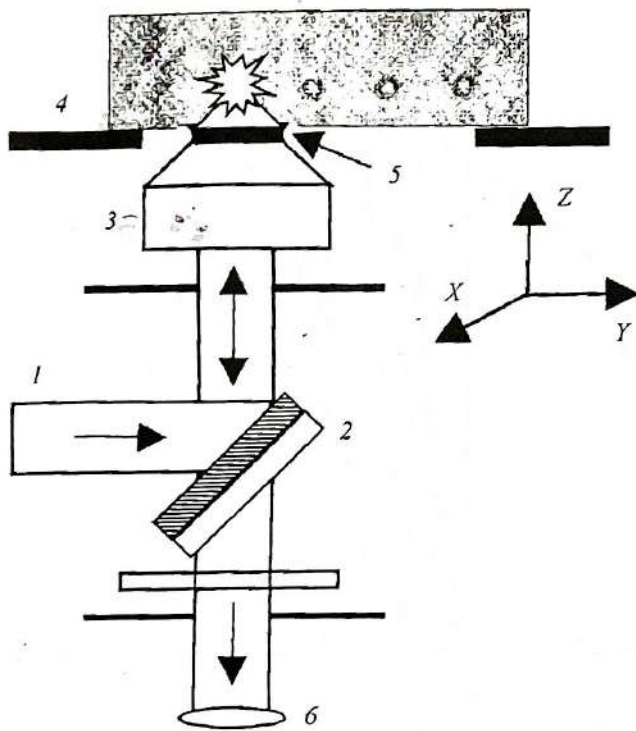


Рис. 5. Оптическая система для измерения порогов ОП стекол под действием фемтосекундных импульсов излучения: 1 – вход микроскопа, 2 – дихроичное зеркало, 3 – объектив с переменной числовой апертурой 0,8–1,35, 4 – образец, 5 – иммерсионная жидкость, 6 – наблюдение в реальном времени.

порога ОП ( $5,8 \text{ ТВт/см}^2$ ) было получено для пикосекундных импульсов излучения.

Наконец, недавно были опубликованы данные о пороге ОП того же образца под действием фемтосекундных импульсов излучения [22, 23]. Фемтосекундные импульсы формировались в Ti:Sapphire-лазере ( $\lambda = 0,8 \text{ мкм}$ ), работающем на частоте повторения импульсов порядка 1 кГц. Длительность импульсов излучения ( $210 \pm 10 \text{ фс}$ ) измерялась непосредственно за областью фокусировки в оптической системе. Во время измерений образец перемещался в направлении, перпендикулярном оптической оси, со скоростью порядка 1 см/с. Это обеспечивало однократную экспозицию каждой из точек, отстоящих друг от друга на расстоянии  $l \approx 10 \text{ мкм}$ . Порог образования плазмы, измеренный с первой оптической системой (рис. 4а, 4б), равнялся  $10 \text{ ТВт/см}^2$  (белый треугольник на рис. 6а). Однако порог образования остаточных изменений в фокальной области, измеренный со второй системой, равнялся  $6,6 \text{ ТВт/см}^2$  (черный треугольник на рис. 6а), т. е. был в 1,5 раза меньше, чем порог образования плазмы. Насколько нам известно, это первые прямые наблюдения пробоя в прозрачных диэлектриках задолго до появления плазмы. Полученные данные означают, что при достижении порога ОП энергии фемтосекундных импульсов достаточно лишь для структурной модификации стекла, подобной плавлению и, возможно, испарению, но не для ионизации фокального объема. Необходимо отметить, что для всех других длительностей импульсов остаточные изменения в стеклах при воздействии острогофокусированного излучения наблюдались только одновременно с образованием плазмы. Наличие двух порогов при воздействии фемтосекундных импульсов было подтверждено при исследовании эффектов накопления и будет обсуждаться в следующем разделе.

стекла К8 (BK7) под действием излучения различных лазеров. В 1996 г. было показано [6], что порог ОП этого стекла на длине волны 1,06 мкм не зависит от длительности импульсов лазерного излучения в диапазоне от  $4 \times 10^{-10}$  до  $3 \times 10^{-8}$  с и равен примерно  $6,5 \text{ ТВт/см}^2$ . В экспериментах использовалось только одночастотное излучение неодимового лазера. Формирование одночастотных импульсов производилось с помощью специальной системы, включающей оптический дефлектор для вырезания более коротких импульсов в диапазоне от 0,38 до 32 нс из одночастотного импульса неодимового лазера. Порог измерялся двумя методами. В одном из них измерялась интенсивность излучения, прошедшего через образец, непосредственно в момент ОП на переднем фронте импульса (рис. 6б и белые кружки на рис. 6а). Другим методом являлся стандартный метод измерения порогов с импульсами гауссовой временной формы (черные кружки на рис. 6а).

Позже [21] был измерен порог ОП того же образца под действием излучения лазера с длительностью импульсов 40 пс (черный квадрат на рис. 6а). Импульсы формировались в Nd:YAG-лазере с самосинхронизацией мод, стабилизированным спектром излучения и высокой воспроизводимостью пространственных и временных параметров излучения. В результате практически то же значение

Из рис. 6а следует, что порог ОП исследованного стекла сохраняет свое значение при изменении длительности импульса на пять порядков величины. Это указывает, что собственный ОП не связан со скоростью генерации электронов и их накоплением. Для объяснения этих результатов необходимо предположить, что при пороговых условиях происходит не индивидуальная ионизация отдельных ионов среды, а коллективное изменение состояния диэлектрика как целого. Ранее [7] мы выдвигали гипотезу, что в стекле при пороговых условиях происходит переход в сильнопоглощающее состояние, сходный с переходом диэлектрик–металл, предложенным Моттом [24]. Качественно эта гипотеза заключается в следующем. При достаточно большой напряженности поля световой волны валентные оболочки электронов в диэлектрике вспухают и перекрываются. Фактически это означает переход в



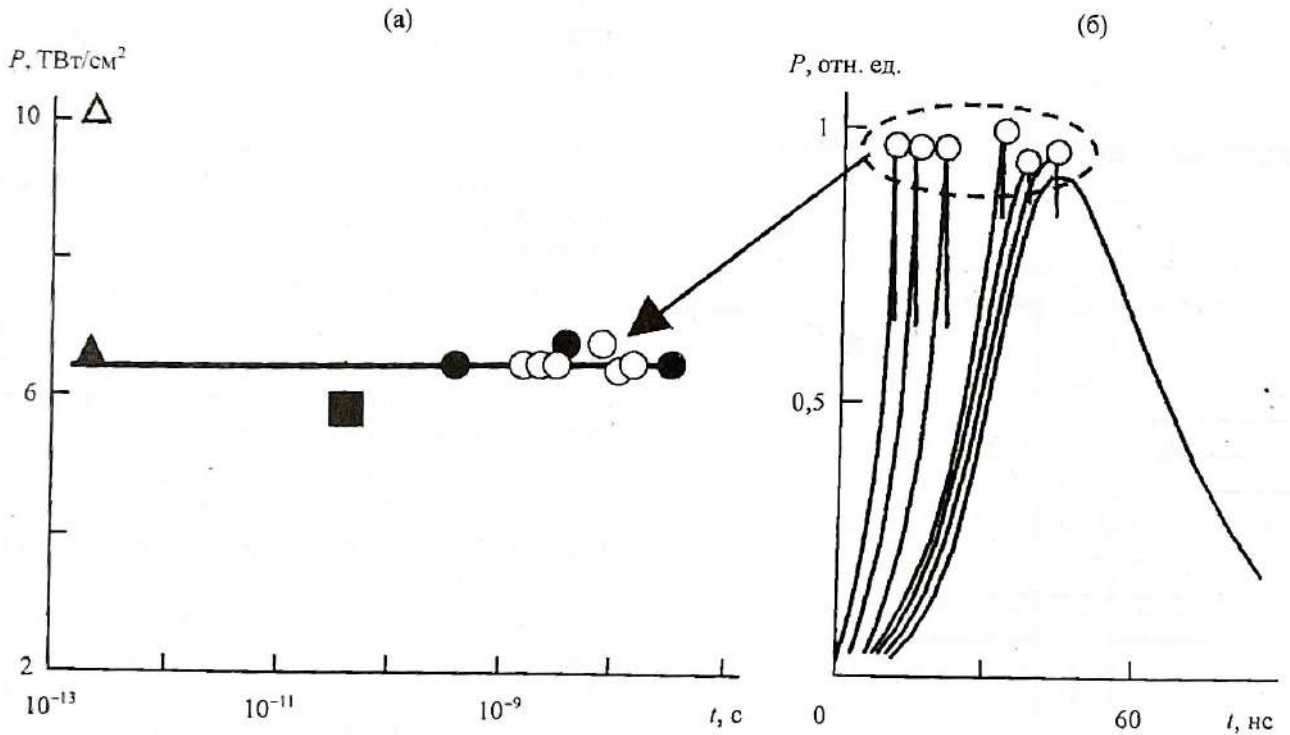


Рис. 6. Зависимость порогов ОП боросиликатного стекла К8 (BK7) от длительности импульсов (а), измерение пороговой интенсивности излучения в момент пробоя [7] (б).

состояние, подобное металлу, или переход Мотта. Появление “металлоподобной” частицы в центре фокальной области во время действия импульса излучения приведет к быстрому нагреву стекла вплоть до появления остаточных изменений и/или образования плазмы.

Таким образом, как отсутствие допороговых электронных возбуждений, так и отсутствие зависимости порогов оптического пробоя силикатных стекол от длительности импульсов излучения с длиной волны  $\lambda = 1$  мкм указывают, что механизм собственного ОП стекол связан с коллективным откликом диэлектрика, подобным фазовому переходу диэлектрик–металл, а не с индивидуальной ионизацией ионов и накоплением электронов вследствие многофотонного, туннельного или лавинного возбуждения.

#### 4. Допороговая модификация и пробой силикатных стекол при многократном облучении

Хорошо известно, что по сравнению с однократным ОП многократное облучение одной и той же области диэлектрика приводит к значительному снижению пороговой плотности мощности. Интерес к многоимпульсному пробоям (МИП) связан с тем, что именно он определяет стойкость оптических элементов к долговременной эксплуатации в мощных лазерных потоках. Более того, изучение МИП имеет важное научное значение, так как понимание про-

цессов, приводящих к снижению пороговых плотностей мощности, может помочь установить природу собственного ОП.

#### 4.1. МИП свинцово-силикатных стекол в условиях генерации ЦО

Как уже упоминалось в разделе 1, большинство существующих теорий связывают МИП с индивидуальной ионизацией ионов диэлектрика и с накоплением ЦО во время действия импульсов излучения. Подобно описанному в разделе 2.2.3 экспериментально подтвержденное многофотонное поглощение и образование ЦО в силикатных стеклах было использовано для исследования и сравнения процессов МИП как при допороговом возбуждении стекол, так и без него. В первую очередь был изучен МИП стекол в условиях многофотонной генерации ЦО [25].

В экспериментах использовались промышленные свинцово-силикатные стекла марки ТФ, поскольку они имеют сходную энергетическую структуру, но различную эффективность генерации ЦО. Облучение стекол производилось импульсами излучения второй гармоники одночастотного неодимового лазера ( $\lambda = 0,53$  мкм). Ранее было показано [26], что в этом случае эффективность генерации ЦО увеличивается с концентрацией свинца. Дополнительные исследования позволили установить [15], что эта зависимость обусловлена тем, что именно концентрация свинца определяет коэффициент трехфотонного поглощения свинцово-силикатных стекол.



С помощью теневого метода было найдено, что при многократном облучении в фокальной области в стекле возникает оптическая неоднородность. Теневой сигнал увеличивался с числом импульсов излучения и достигал некоторого уровня насыщения. При повышении интенсивности импульсов этот процесс приводил к образованию плазмы. Детальные исследования зависимостей характеристик МИП и теневых сигналов от частоты повторения импульсов, размеров пятен облучения и температуры образцов позволили установить механизм разрушения стекол в этих условиях.

Было показано, что снижение порогов ОП при многократном облучении стекол в условиях многофотонного возбуждения подвижных носителей заряда связано с накоплением ЦО, увеличением показателя поглощения в области облучения и возникновением тепловой самофокусировки. Созданная теоретическая модель [25], основанная на нестационарной тепловой самофокусировке, позволила объяснить всю совокупность полученных результатов, включая влияние ионов переменной валентности ( $Ce^{3+}/Ce^{4+}$ ) на МИП.

#### 4.2. МИП силикатных стекол в отсутствие допороговой ионизации

Позже [27] были проведены сравнительные исследования МИП одного и того же образца свинцово-силикатного стекла ТФЗ как в условиях многофотонного окрашивания ( $\lambda = 0,53$  мкм), так и без него ( $\lambda = 1,06$  мкм), т. е. когда не было зарегистрировано увеличения поглощения, образования ЦО или люминесценции, свидетельствующих об ионизации стекла (раздел 2.2). Размеры пятен фокусировки изменялись от 0,5 до 60 мкм. Как и прежде [25], для регистрации оптических неоднородностей, возникающих при многократном облучении, использовался теневой метод. Было найдено, что, как и в случае многофотонного поглощения (раздел 4.1), теневой сигнал возрастал с числом импульсов облучения и достигал некоторого уровня насыщения (рис. 7). Важно, что на обеих длинах волн теневой сигнал мог достигать стационарного состояния без образования плазмы.

Чтобы оценить размер неоднородности в стационарном состоянии, теневой сигнал измерялся при перемещении сфокусированного излучения в направлении, перпендикулярном оптической оси (рис. 8). Видно, что даже малые перемещения излучения, сфокусированного в пятно большого диаметра (рис. 8, кривая 1) и сформировавшего неоднородность, приводят к сильному уменьшению амплитуды теневых сигналов (рис. 8, кривая 2). Это указывает, что размер неоднородности значитель-

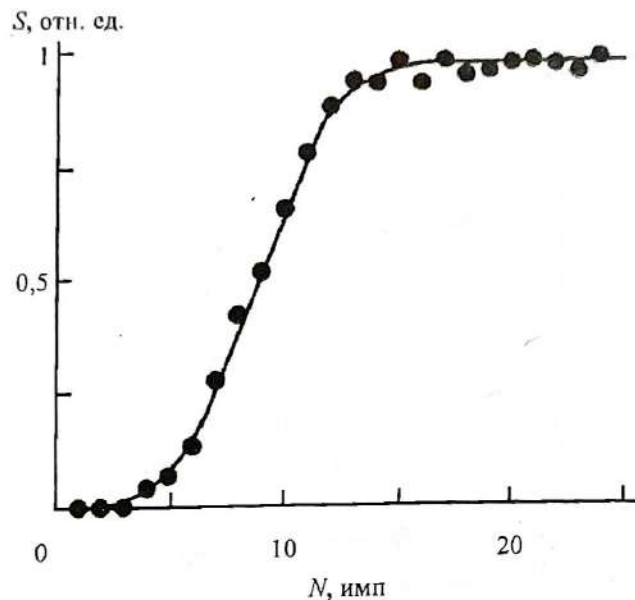


Рис. 7. Зависимость амплитуды теневых сигналов от числа импульсов облучения на длине волны 1,06 мкм [27].

но меньше размера пятна излучения, которое использовалось для ее формирования. Далее было установлено, что разница в порогах однократного и многократного пробоя уменьшается с уменьшением размера пятна облучения на обеих длинах волн. В случае многократного облучения стекол излучением с длиной волны 1,06 мкм, сфокусированным в пятно размером менее 1 мкм, снижение порогов пробоя не регистрируется с точностью 1%.

Таким образом, проведенные измерения показали, что на обеих длинах волн при многократном облучении образца из стекла ТФЗ в нем возникает

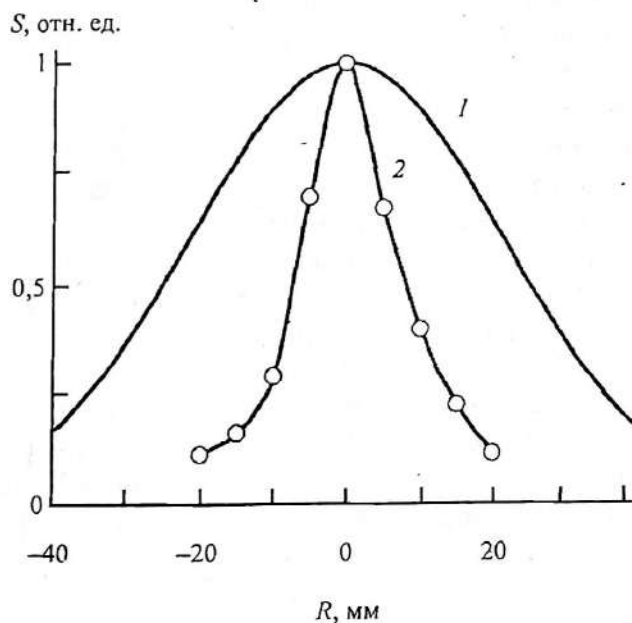


Рис. 8. Зависимость амплитуды теневых сигналов от расстояния до оптической оси на длине волны 1,06 мкм: 1 – интенсивность лазерного излучения, 2 – амплитуда теневых сигналов [27].



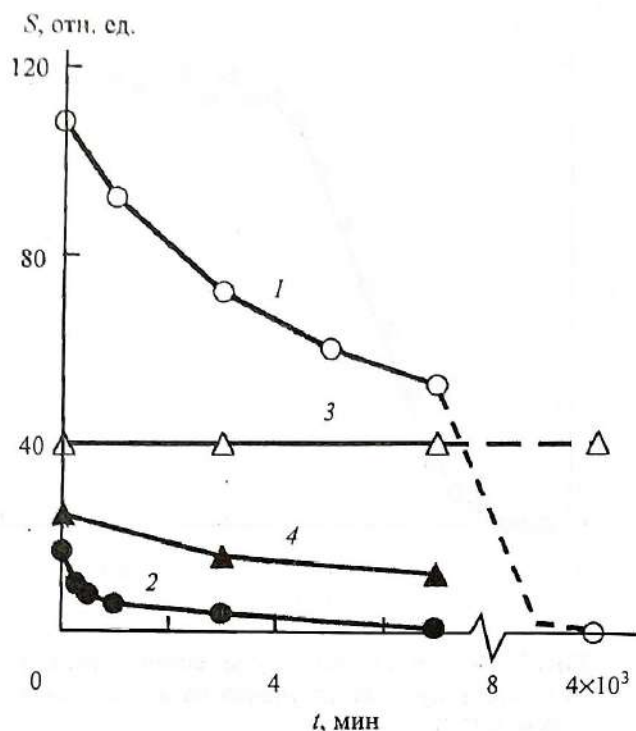


Рис. 9. Изменение амплитуды теневого сигнала в стекле ТФЗ со временем [27]: 1, 2 –  $\lambda = 0,53$  мкм; 3, 4 –  $\lambda = 1,06$  мкм; 1, 3 –  $T = 21$  °С; 2 –  $T = 115$  °С; 4 –  $T = 200$  °С.

оптическая неоднородность, теневого сигнала имеет сходные временные параметры и достигает насыщения со временем. Более того, в обоих случаях наблюдаются похожие зависимости МИП от размера пятна. Сходство процессов наводит на мысль, что многофотонная генерация ЦО может играть существенную роль и в случае МИП на длине волны 1,06 мкм.

Чтобы проверить это предположение, было измерено изменение теневого сигнала с температурой и со временем. Кинетика распада теневого сигнала измерялась при плотности мощности излучения, не достаточной для ОП стекла. Многократным облучением теневого сигнала доводился до насыщения. Затем сигнал измерялся через различные интервалы времени при однократном облучении той же области. Кривые распада для обеих длин волн приведены на рис. 9. Видно, что в случае генерации ЦО ( $\lambda = 0,53$  мкм) теневого сигнала быстро убывал со временем даже при комнатной температуре и исчезал полностью через 24 ч. При повышении температуры образца до 115 °С теневого сигнала исчезал через 7 мин. Эти процессы связаны с распадом ЦО в исследованном стекле. Однако совершенно другое поведение теневого сигнала наблюдалось на длине волны 1,06 мкм. Сигнал не изменял своего значения в течение 70 ч при комнатной температуре и уменьшался менее чем в два раза даже при температуре 200 °С.

Измерение зависимости теневого сигнала в насыщении от температуры образца проводилось при непрерывном импульсно-периодическом облучении образца (рис. 10). Видно, что в случае генерации ЦО ( $\lambda = 0,53$  мкм) теневого сигнала сильно уменьшается с температурой образца и практически исчезает при температуре 200 °С, тогда как он уменьшается лишь вдвое при многократном воздействии излучения с длиной волны 1,06 мкм при той же температуре. Следует отметить, что при температуре образца 200 °С возрастание теневого сигнала при многократном воздействии излучения с длиной волны 0,53 мкм не наблюдается, так как ЦО распадаются полностью за время между импульсами излучения [25]. С другой стороны, на длине волны 1,06 мкм теневого сигнала уверенно регистрировался, хотя его значение составляло лишь половину от сигнала при комнатной температуре.

Таким образом, эксперименты показали, что неоднородности, возникающие при многократном лазерном облучении стекла ТФЗ на длинах волн 1,06 и 0,53 мкм, имеют совершенно различную природу. Это означает, что МИП на длине волны 1,06 мкм не связан с многофотонным поглощением и накоплением ЦО. Дополнительные исследования показали, что в этом случае механизм уменьшения порога МИП связан со снижением порога стрикционной самофокусировки вследствие изменения показателя преломления стекла в области взаимодействия. Изменение показателя преломления связывалось с уплотнением структуры стекла в результате больших электрострикционных давлений, причем этот процесс происходил без электронных возбуждений.

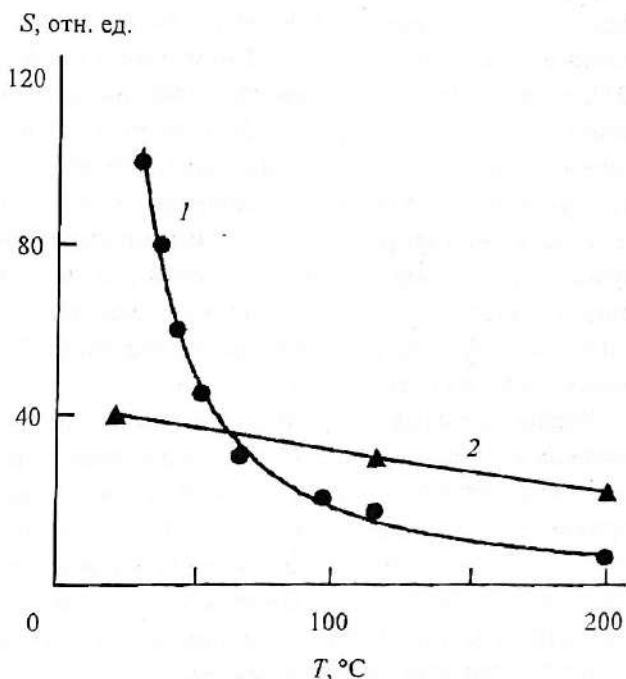


Рис. 10. Зависимость амплитуды теневого сигнала в стекле ТФЗ в насыщении от температуры.



### 4.3. МИП силикатных стекол под действием фемтосекундных импульсов излучения

Теневая схема, использованная для наблюдения оптических неоднородностей, возникающих при многократном облучении стекол фемтосекундными импульсами излучения с длиной волны 0,8 мкм [22, 28], приведена на рис. 4а, 4в. Образцы облучались на частоте повторения импульсов  $f \approx 1$  кГц. Лазерное излучение фокусировалось в образец боросиликатного стекла К8 (BK7) с помощью той же оптической системы, которая использовалась при измерении порогов собственного ОП (рис. 4а). Затем (рис. 4в) излучение лазера блокировалось диафрагмой б, а область облучения изображалась с большим увеличением объективом 7 на экране ПЗС-камеры 9. Приведенная теневая схема обладала достаточно высокой чувствительностью и позволяла различать рассеянное излучение и излучение плазмы путем введения узкополосного фильтра 8, отсекающего лазерное излучение.

Было найдено, что облучение образцов стекла излучением с плотностью мощности более 65% от порога однократного ОП приводит к возникновению рассеяния из области фокусировки без образования плазмы (рис. 11а, 11б, 11в). Рассеяние было связано с формированием стабильных неоднородностей малого размера, которые сохраняли эффективность рассеяния даже через 30 ч после прекращения облучения. Более того, они проявляли ту же

эффективность рассеяния при плотности мощности облучения на два порядка ниже плотности мощности, использованной для их формирования. Яркость рассеяния возрастала со временем облучения и достигала насыщения без образования плазмы в фокальном объеме. Интенсивность рассеяния в состоянии насыщения увеличивалась с ростом плотности мощности излучения, и, наконец, начиная с некоторой плотности мощности, этот процесс приводил к возникновению плазмы (рис. 11г). Эти результаты подтверждают существование двух порогов при воздействии фемтосекундных импульсов излучения, как указывалось в разделе 3: при определенной плотности мощности в области фокусировки происходит модификация структуры стекла без образования плазмы, и лишь при дальнейшем повышении плотности мощности в 1,5 раза достигается порог возникновения плазмы.

Таким образом, наблюдается большое сходство в процессах МИП стекол на длине волны  $\lambda \approx 1$  мкм как в наносекундной, так и в фемтосекундной областях длительностей импульсов лазерного излучения. При многократном облучении в области взаимодействия возникают оптические неоднородности малого размера. Сигнал от этих неоднородностей достигает насыщения, и лишь при повышении плотности мощности этот процесс приводит к возникновению плазмы. Сформированные неоднородности стабильны во времени и легко могут быть обнаружены через несколько дней после их образования. Сходство процессов для нано- и фемтосекундных импульсов наводит на мысль, что уплотнение стекол [27] ответственно за модификацию стекла и под действием фемтосекундного излучения. Однако электрострикционное давление не может возникать под действием фемтосекундных импульсов вследствие очень короткого времени взаимодействия. Поэтому нам представляется более вероятной другая картина ОП прозрачных диэлектриков.

Электрострикционная самофокусировка возникает под действием наносекундных импульсов излучения, сфокусированных в пятна относительно большого диаметра [29]. Этот процесс приводит к сильному уменьшению диаметра пятна (рис. 12а) и росту плотности мощности излучения. Увеличение интенсивности вплоть до порога фазового перехода переводит среду в "металлическое" состояние с большим показателем поглощения, вызывая нагрев области взаимодействия. Хорошо известно [30], что самофокусировка колоколообразных импульсов излучения вызывает перемещение точки "схлопывания" вдоль оптической оси. Вследствие этого каждая точка этого трека подвергается фазовому переходу и облучению в течение очень короткого времени, так что поглощенной энергии недостаточ-

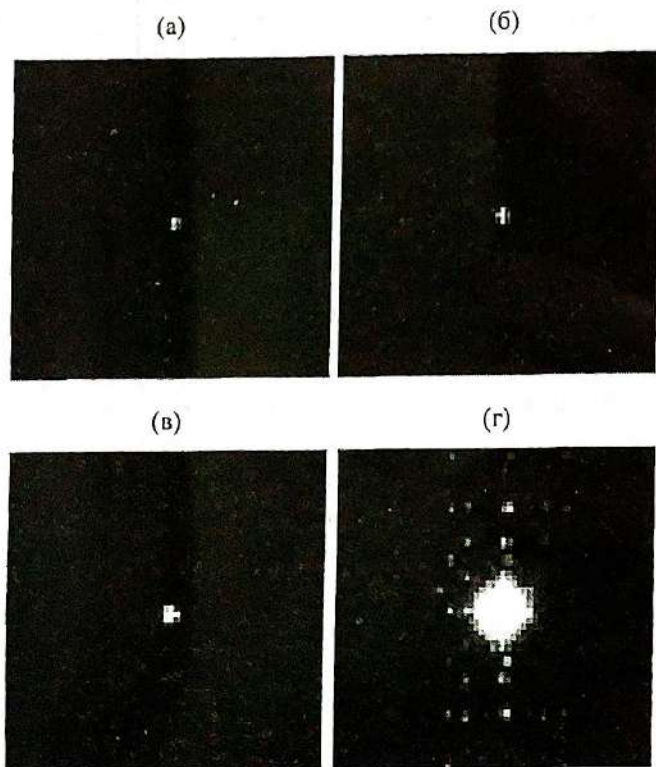


Рис. 11. Рассеяние лазерного излучения в фокальной области (а–в) и излучение плазмы (г) [28].



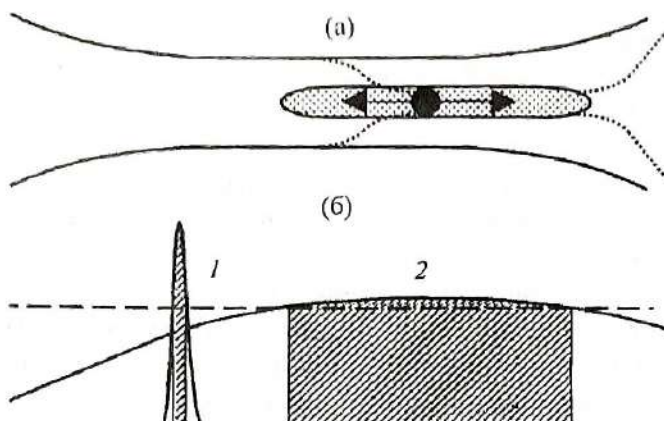


Рис. 12. Диаграммы процессов, приводящих к ОП и МИП силикатных стекол. Пунктирной линией обозначен порог перехода диэлектрик–металл. 1 – фемтосекундный и 2 – пико- или наносекундный импульсы излучения.

но для образования плазмы. Однако многократный нагрев и охлаждение трека приводят к возникновению и росту оптической неоднородности в фокальном объеме. Большие интенсивности вызывают нагрев и ионизацию всего трека.

Фокусировка излучения в пятна меньшего диаметра ослабляет влияние самофокусировки и уменьшает длину трека с соответствующим уменьшением диапазона наблюдения МИП [27]. Наконец, снижение порога ОП при многократном облучении наносекундными импульсами излучения не наблюдается вообще при фокусировке излучения в пятна малого размера. В таких условиях самофокусировка излучения отсутствует и область фокусировки не перемещается. Поэтому энергии, поглощенной после “металлизации” стекла (после максимума импульса), достаточно для его нагрева и перехода в плазменное состояние (рис. 12б, импульс 2).

Пороговая энергия ОП стекла под действием фемтосекундных лазерных импульсов составляет лишь несколько наноджоулей. Поэтому при острой фокусировке таких импульсов в образец стекла энергии, поглощенной после фазового перехода, недостаточно для плавления, испарения и ионизации среды в фокальной области (рис. 12б, импульс 1). Однако многократный нагрев и охлаждение области фокусировки приводят к модификации среды и к росту оптической неоднородности в фокальном объеме, т. е. к возникновению явления МИП. Наконец, повышение интенсивности излучения приводит к ОП в первом же импульсе.

### Выводы

Таким образом, в работе показано, что плотность мощности собственного оптического пробоя промышленного боросиликатного стекла К8 (ВК7) не

зависит от длительности импульсов лазерного излучения в диапазоне от  $2 \times 10^{-13}$  до  $3 \times 10^{-8}$  с. Это указывает, что механизм собственного пробоя включает коллективный отклик диэлектрика, подобный фазовому переходу диэлектрик–металл, и не связан с индивидуальной ионизацией ионов среды и накоплением электронов вследствие многофотонной, туннельной или лавинной ионизации. При многократном облучении стекол локальный фазовый переход и последующий многократный нагрев и охлаждение приводят к модификации среды в области взаимодействия без образования плазмы. Изменение параметров среды вызывает снижение порога оптического пробоя по сравнению с однократным облучением, т. е. приводит к эффекту накопления как в нано-, так и в фемтосекундных областях длительностей импульсов излучения.

В заключение выражаю искреннюю благодарность всем моим коллегам и соавторам, с которыми были получены и разработаны вышеприведенные результаты и модели.

### ЛИТЕРАТУРА

1. Bloembergen N. Laser-Induced Electric Breakdown in Solids // IEEE J. Quant. Electron. 1974. V. QE-10. P. 375–386.
2. Stuart B.C., Feit M.D., Herman S., Rubenchik A.M., Shore B.W., Perry M.D. Nanosecond-to femtosecond laser-induced breakdown in dielectrics // Phys. Rev. B. 1996. V. 53. P. 1749–1761.
3. Tien A.C., Backus S., Kapteyn H., Murnane M., Mourou G. Short-pulse laser damage in transparent materials as a function of pulse duration // Phys. Rev. Lett. 1999. V. 82. P. 3883–3886.
4. Schaffer C.B., Brodeur A., Mazur E. Laser-induced breakdown and damage in bulk transparent materials induced by tightly focused femtosecond laser pulses // Meas. Sci. Technol. 2001. V. 12. P. 1784–1794 (and references therein).
5. Глебов Л.Б., Ефимов О.М., Петровский Г.Т., Роговцев П.Н. Влияние модового состава лазерного излучения на оптический пробой силикатных стекол // Квант. электрон. 1984. Т. 11. № 2. С. 330–334.
6. Ефимов О.М., Попиков В.С., Сулолу М.Дж. Исследование временной зависимости порогов оптического пробоя стекол под действием одночастотного лазерного излучения // Оптический журнал. 1996. № 2. С. 21–26.
7. Глебов Л.Б., Ефимов О.М. Исследование закономерностей и механизма собственного оптического пробоя стекол // Изв. АН СССР. Сер. физич. 1985. Т. 49. № 6. С. 1140–1145.
8. Глебов Л.Б., Ефимов О.М., Никоноров Н.В., Петровский Г.Т. Оптический пробой поверхности стекла К8, модифицированной низкотемпературным ионным



- обменом // Квант. электрон. 1985. Т. 12. № 10. С. 2144–2146.
9. Гагарин А.П., Глебов Л.Б., Ефимов О.М., Докучаев В.Г., Попова Л.Б., Толстой М.Н. Влияние поглощающих примесей на оптический пробой прозрачных диэлектриков // ЖТФ. 1982. Т. 52. № 1. С. 101–103.
  10. Ефимов О.М., Либенсон М.Н., Мекрюков А.М., Потиков В.С. Оптический пробой стекла в условиях просветления поглощающей примеси // Изв. АН СССР. Сер. физ. 1989. Т. 53. № 3. С. 454–458.
  11. Trukhin A.N., Tolstoi M.N., Glebov L.B., Savelev V.L. Elementary electronic excitations in pure silicate glasses // Phys. Stat. Sol. (B). 1980. V. 99. P. 155–162.
  12. Гагарин А.П., Глебов Л.Б., Ефимов О.М., Ефимова О.С. Образование центров окраски в натриево-кальциево-силикатном стекле при нелинейном поглощении мощного УФ излучения // Физ. и хим. стекла. 1979. Т. 5. № 5. С. 378–380.
  13. Глебов Л.Б., Ефимов О.М., Петровский Г.Т., Роговцев П.Н. Влияние фотообесцвечивания на двухфотонное окрашивание натриево-силикатных стекол // Физ. и хим. стекла. 1984. Т. 10. № 1. С. 66–69.
  14. Раабен Э.Л., Толстой М.Н. Влияние природы стеклообразователя и модификатора в формировании спектра поглощения иона свинца // Физ. и хим. стекла. 1988. Т. 14. № 1. С. 66–71.
  15. Efimov O.M., Mekryukov A.M. Investigation of energy structure of lead silicate glasses by nonlinear absorption spectroscopy technique // J. Non-Cryst. Solids. 1995. V. 191. P. 94–100.
  16. Глебов Л.Б., Ефимов О.М., Петровский Г.Т., Роговцев П.Н. Оптический пробой силикатных стекол в условиях двухфотонного поглощения лазерного излучения // Квант. электрон. 1983. Т. 10. № 7. С. 1490–1492.
  17. Ефимов О.М., Мекрюков А.М. Механизм изменения показателя преломления свинцово-силикатных стекол в условиях нелинейного поглощения лазерного излучения // Оптический журнал. 1996. № 2. С. 10–13.
  18. Глебов Л.Б., Ефимов О.М., Петровский Г.Т. Отсутствие допороговой ионизации и эффекта накопления при многократном воздействии лазерного излучения на стекла // Квант. электрон. 1986. Т. 13. № 9. С. 1897–1901.
  19. Efimov O.M., Garnov S.V., Glebov L.B., Gabel K., Grantham S., Richardson M., Soileau M.J. Color centers generation in silicate glasses exposed to IR femtosecond pulses // J. Opt. Soc. Am. B. 1998. V. 15. P. 193–199.
  20. Watanabe M., Juodkazis S., Sun H., Matsuo S., Misawa H. Two-photon readout of three-dimensional memory in silica // Appl. Phys. Lett. 2000. V. 77. P. 13–15.
  21. Efimov O.M., Glebov L.B., Popikov V.S., Soileau M.J. Laser-induced damage of glasses by pulsed radiation in nano-picosecond region // Proc. SPIE. 1996. V. 2770. P. 162–167.
  22. Efimov O., Juodkazis S., Matsuo S., Misawa H. Independence of laser-induced damage threshold of glass on pulse duration for the femto-nanosecond region // Conference on Laser and Electro-Optics, USA. Technical Digest. 2003. CWF4.
  23. Efimov O., Juodkazis S., Matsuo S., Misawa H. Collective excitation of transparent dielectrics under femtosecond pulses // CLEO/Europe-EQEC, Germany. 2003. Technical Digest. EB5M.
  24. Мотт Н.Ф. Переходы металл–изолятор. М.: Наука, 1979. 344 с.
  25. Босый О.Н., Ефимов О.М. Закономерности и механизм эффекта накопления в условиях многофотонной генерации центров окраски // Квант. электрон. 1996. Т. 23. № 8. С. 729–736.
  26. Власов Д.В., Глебов Л.Б., Ефимов О.М., Коробкин В.В., Прохоров А.М., Толстой М.Н., Щербнев Е.П. Нелинейное окрашивание и разрушение свинцово-силикатных стекол в условиях многофотонного поглощения // Изв. АН СССР. Сер. физич. 1981. Т. 45. № 6. С. 924–927.
  27. Босый О.Н., Ефимов О.М. Закономерности и механизм эффекта накопления в условиях отсутствия допороговой ионизации матрицы стекла // Квант. электрон. 1996. Т. 23. № 8. С. 737–742.
  28. Efimov O., Juodkazis S., Matsuo S., Misawa H. Irreversible modification of transparent dielectrics without plasma formation under femtosecond pulses // CLEO/Europe-EQEC, Germany. 2003. Technical Digest. CK2-4-THU.
  29. Bosyi O.N., Efimov O.M., Mekryukov A.M. Investigation of optical parameters of silicate glasses in case of before-threshold effect of laser radiation // Proc SPIE. 1991. V. 1440. P. 57–62.
  30. Loy M.M.T., Shen Y.R. Study of self-focusing and small-scale filaments of light in nonlinear media // IEEE J. Quantum Electron. 1973. V. QE-9. P. 409–422.