



4841086

**ПОТЁМКИН ФЁДОР ВИКТОРОВИЧ**

**МИКРОПЛАЗМА И ЭНЕРГОПЕРЕНОС В ОБЪЕМЕ ПРОЗРАЧНЫХ  
ДИЭЛЕКТРИКОВ, РЕГИСТРИРУЕМЫЕ С ПОМОЩЬЮ ГЕНЕРАЦИИ ТРЕТЬЕЙ  
ГАРМОНИКИ ФЕМТОСЕКУНДНОГО ЛАЗЕРНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ**

Специальность 01.04.21 – лазерная физика

**АВТОРЕФЕРАТ**

диссертации на соискание ученой степени  
кандидата физико-математических наук

24 МАР 2011

Москва - 2011

Работа выполнена на кафедре общей физики и волновых процессов физического факультета Московского государственного университета имени М.В. Ломоносова.

**Научный руководитель:** кандидат физико-математических наук  
**Михеев Павел Михайлович**

**Официальные оппоненты:** доктор физико-математических наук  
**Гарнов Сергей Владимирович,**  
Учреждение Российской академии наук Институт общей физики имени А.М. Прохорова РАН, Москва;  
доктор физико-математических наук, доцент  
**Китаева Галия Хасановна,**  
кафедра квантовой электроники физического факультета МГУ имени М. В. Ломоносова, Москва

**Ведущая организация:** Учреждение Российской академии наук Институт спектроскопии РАН, Троицк, Московская обл.

Защита состоится “21” апреля 2011 года в 15-00 часов на заседании диссертационного совета Д 501.001.31 при Московском государственном университете имени М.В. Ломоносова по адресу: 119991, ГСП-1, Москва, Ленинские горы, МГУ, дом 1, стр. 62, корпус нелинейной оптики, аудитория имени С.А. Ахманова.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке физического факультета МГУ имени М.В. Ломоносова.

Автореферат разослан “4” марта 2011 года.

Ученый секретарь  
диссертационного совета  
кандидат физ.-математических наук



*Т.М. Ильинова*  
Т.М. Ильинова

## ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

### Актуальность темы

Диссертационная работа посвящена решению фундаментальных проблем нелинейной оптики и физики взаимодействия высокоинтенсивного ( $\sim 10^{13}$  Вт/см<sup>2</sup>) фемтосекундного лазерного излучения с веществом: изучению временной динамики создания лазерно-индуцированной микромодификации в объеме прозрачных диэлектриков на масштабе времен от сотни фемтосекунд до сотни пикосекунд с разрешением лучше 100 фс, а также локальной нелинейно-оптической диагностике остаточных лазерно-индуцированных микромодификаций и структурных неоднородностей.

Фемтосекундное лазерное излучение с энергией импульса порядка 1 мкДж, остросфокусированное ( $NA \sim 0,4$ ) в объем прозрачного диэлектрика, достигает предельной для твердого тела интенсивности  $\sim 10^{13}$  Вт/см<sup>2</sup> и приводит к созданию экстремального состояния вещества в микрообъеме среды. Под воздействием лазерного поля в объеме вещества происходит туннельная, многофотонная и ударная ионизация среды, формируется неравновесная электронная плазма (концентрация электронов до  $\sim 10^{20}$  см<sup>-3</sup>, средняя энергия электронов до 10 эВ). В результате релаксации плазмы энергия электронов передается в кристаллическую решетку вещества, что впоследствии приводит к формированию, распространению ударных волн и последующему созданию остаточных микромодификаций структуры вещества. Таким образом, процесс формирования микромодификации в диэлектриках фемтосекундным лазерным излучением, широко использующийся на практике в микрообработке материалов («micromachining»), трехмерной оптической записи информации, создании волноводов и фотонно-кристаллических структур, с общезначимой точки зрения представляет собой каскад сложных взаимосвязанных процессов перераспределения поглощенной лазерной энергии, происходящих на разных масштабах времени

Наиболее изучены процессы передачи энергии от лазерного излучения электронам формируемой в объеме среды плазмы, происходящие на временах длительности фемтосекундного лазерного импульса, и процессы распространения ударных и тепловых волн в твердотельной среде, протекающие на наносекундном и более масштабе времен. Наименее исследованы процессы, происходящие во временном интервале от сотни фемтосекунд до сотен пикосекунд, когда энергия из лазерной плазмы передается коллективным колебаниям решетки диэлектрика. Разнообразие физических процессов (формирование и релаксация плазмы, возбуждение ионной подсистемы и ее релаксация), протекающих в среде после воздействия интенсивного фемтосекундного лазерного излучения, затрудняет анализ экспериментальных данных. Более того, в режиме

67

экстремального состояния вещества поведение ряда эффектов кардинально отличается от слабо возмущающего режима воздействий. Например, может происходить изменение частоты когерентных фононов при локальном нагреве объема среды, генерация и взаимодействие коллективных когерентных колебаний решетки твердого тела в ангармоническом режиме. Неизученным остается вопрос передачи энергии от лазерно-индуцированной плазмы ионной подсистеме в диэлектриках различного типа, в том числе аморфных средах. Интерес к исследованию возбуждения и релаксации фононов в твердотельных средах постоянно растет по причине расширения возможностей практического применения когерентных фононов, в частности, для преобразования механической энергии в энергию когерентных электромагнитных волн и диагностики движения ионов с помощью лазерного излучения.

С задачей исследования релаксации лазерной плазмы и динамики формирования лазерно-индуцированной микромодификации в объеме прозрачных диэлектриков неразрывно связана проблема создания прецизионного метода диагностики изменений структуры объема среды с временным разрешением, который был бы высокочувствителен к стационарным (дефектам в объеме, микромодификациям, комплексам неоднородностей) и динамическим (плазме, фононам) неоднородностям. Процесс генерации третьей гармоники (ГТГ) широко используется для регистрации стационарных неоднородностей (микромодификаций) в объеме прозрачных сред в силу сильной зависимости эффективности ГТГ от волновой расстройки между основной волной и волной третьей гармоники и изменения нелинейной восприимчивости третьего порядка в среде. В то же время формирование лазерно-индуцированной плазмы в объеме прозрачного диэлектрика приводит к изменениям показателя преломления за счет генерации свободных электронов, что отражается на изменении эффективности ГТГ. Фононы в свою очередь модулируют нелинейную восприимчивость третьего порядка, что также приводит к изменению эффективности ГТГ. Следовательно, процесс ГТГ может быть использован для зондирования лазерно-индуцированной плазмы и процессов переноса энергии в объеме прозрачных диэлектриков. Кроме этого, процесс ГТГ в остросфокусированных лазерных пучках позволяет с высоким пространственным разрешением определить такие параметры среды, как нелинейную восприимчивость третьего порядка среды, а также изменение показателя преломления между основной волной и волной третьей гармоники.

Таким образом, тематика данной диссертационной работы является новой и востребованной с точки зрения фундаментальных исследований и практических применений.

**Целями настоящей диссертационной работы** являлось:

1. Создание экспериментальной установки для изучения с высоким пространственным разрешением ( $\sim \lambda/NA$ ) структурных неоднородностей и динамики процессов переноса энергии, происходящих после взаимодействия остросфокусированного высокоинтенсивного (свыше  $10^{13}$  Вт/см<sup>2</sup>) фемтосекундного лазерного излучения ближнего ИК (1,24 мкм) диапазона микроджоулевого уровня энергии с объемом прозрачных диэлектриков на временах до 100 пс.
2. Разработка высокочувствительного метода диагностики динамических структурных неоднородностей объема прозрачных сред, в том числе генерации и релаксации лазерной плазмы и когерентных фононов.
3. Изучение особенностей эволюции лазерно-индуцированной плазмы, созданной фемтосекундным лазерным излучением микроджоулевого уровня энергии, и последующих процессов переноса энергии в объеме прозрачных аморфных и кристаллических диэлектриков на временном масштабе от сотни фемтосекунд до сотни пикосекунд.

#### **Научная новизна**

1. Разработана и апробирована методика определения с высоким пространственным разрешением ( $\sim \lambda/NA$ ) оптических параметров прозрачных диэлектрических сред, в том числе тонких пленок: разности показателей преломления на длинах волн 1,24 мкм и 0,413 мкм и нелинейной восприимчивости третьего порядка среды относительно ее значения для опорного образца. Для полимерной пленки, состоящей из фторакрилловых мономеров  $\text{CH}_2=\text{CH}-\text{COO}-\text{CH}_2-(\text{CF}_2)_2-\text{H}$ , толщиной 90 мкм получены значения волновой расстройке между волнами основного излучения фемтосекундного лазера на хром-форстерите 1,24 мкм и излучения третьей гармоники 0,413 мкм  $\Delta k = 1650 \pm 150 \text{ см}^{-1}$  и нелинейности третьего порядка  $\chi^{(3)} \cong (0.5 \pm 0.25) \times 10^{-22} \text{ м}^2/\text{В}^2$ .

2. Разработан высокочувствительный метод зондирования эволюции лазерно-индуцированной плазмы, созданной остросфокусированным фемтосекундным лазерным излучением микроджоулевого уровня энергии в объеме прозрачных диэлектриков, и процессов переноса энергии на временном масштабе от сотни фемтосекунд до сотни пикосекунд. Метод основан на регистрации зависимости сигнала третьей гармоники, генерируемой пробным фемтосекундным лазерным импульсом в объеме среды, от временной задержки относительно возбуждающего плазму лазерного излучения.

3. Установлено, что релаксация лазерно-индуцированной плазмы в объеме образца плавяного кварца имеет два характерных времени. Первый релаксационный

процесс связан с известным механизмом захвата электронов в ловушки, его измеренное характерное время составляет  $180 \pm 80$  фс и не зависит от энергии возбуждающего лазерного импульса. Второй процесс с характерным пикосекундным временем (до 6 пс), линейно зависящим от энергии возбуждающего лазерного импульса, связан с релаксацией возбуждения ионной подсистемы.

4. Впервые на пикосекундном масштабе времени зарегистрированы когерентные фононы с терагерцовыми частотами, возбужденные плазмой, созданной фемтосекундным лазерным импульсом с интенсивностью до  $\sim 10^{13}$  Вт/см<sup>2</sup> в объеме прозрачных кристаллических сред.

5. В кристаллическом кварце обнаружено сильное линейное изменение частоты фононной моды  $A_1$  вблизи порога  $\alpha$ - $\beta$  фазового перехода от 1,4 до 2,9 ТГц в зависимости от временной задержки пробного импульса относительно интенсивного ( $\sim 10^{13}$  Вт/см<sup>2</sup>) возбуждающего, острогофокусированного лазерного излучения, вызывающего формирование микроплазмы в объеме среды.

6. Лазерно-индуцированная плазма в объеме ВаF<sub>2</sub>, СаF<sub>2</sub> и лейкосапфира приводит к временной задержке когерентных фононов, которая в случае лейкосапфира составляет порядка 1 пс и совпадает с характерным временем термализации плазмы (передачи энергии от электронов плазмы кристаллической решетке). В кристалле LiF наблюдается обмен энергией между фононными модами, который возможен только в режиме ангармонизма колебаний фононных волн.

#### **Научная и практическая значимость**

Диагностика структурных неоднородностей в объеме прозрачных диэлектриков, основанная на процессе генерации третьей гармоники (ТГГ) является перспективным методом приповерхностной и структурной сканирующей диагностики сред, прозрачных в спектральном окне 0,4 – 1,2 мкм, с использованием промышленных аналогов фемтосекундных лазерных систем ближнего ИК-диапазона, работающих в квазинепрерывном режиме (частоты повторения импульсов  $\sim 100$  МГц). Это позволит сканировать объем среды на больших скоростях с возможностью исследования больших элементов.

Исследование динамики процессов переноса энергии в прозрачных диэлектриках на временной шкале от сотни фемтосекунд до сотен пикосекунд расширяет фундаментальные знания о процессах создания лазерно-индуцированных микромодификаций в объеме твердотельных сред. Результаты исследований, проведенных в рамках настоящей работы, важны для лазерной микрообработки материалов, создания лазерно-индуцированных микромодификаций с контролируемыми параметрами.

Дальнейшие перспективы использования разработанной в данной диссертационной работе методики зондирования с регистрацией сигнала третьей гармоники пробного импульса заключаются в исследовании начальной стадии формирования ударных волн в объеме конденсированных сред. Высокая чувствительность процесса ГТГ к структурным неоднородностям объема мишеней позволяет использовать этот метод также в области фемтохимии для исследования эволюции лазерно-индуцированных химических реакций и определения характерных скоростей их протекания.

### **Защищаемые положения**

1. Сканирование по глубине прозрачного диэлектрика остросфокусированным ( $NA > 0,3$ ) фемтосекундным лазерным излучением системы на хром-форстерите субмикроджоульного уровня энергии позволяет по изменению сигнала третьей гармоники определить с высоким пространственным разрешением ( $\sim \lambda/NA$ ) значения оптических параметров среды: разности показателей преломления на длинах волн основного излучения (1,24 мкм) и излучения третьей гармоники и нелинейной восприимчивости третьего порядка среды относительно ее значения для опорного образца.
2. Процесс генерации третьей гармоники остросфокусированного ( $NA > 0,3$ ) фемтосекундного лазерного излучения ближнего ИК диапазона является универсальным высокочувствительным невозмущающим методом диагностики динамических структурных микронеоднородностей объема прозрачных диэлектриков. С его помощью возможна регистрация процессов создания и релаксации лазерной микроплазмы и фоонов в объеме аморфных и кристаллических диэлектрических сред.
3. Лазерно-индуцированная микроплазма, созданная в объеме прозрачного кристаллического диэлектрика остросфокусированным высокоинтенсивным ( $\sim 10^{13}$  Вт/см<sup>2</sup>) фемтосекундным лазерным излучением, приводит к возбуждению когерентных фоонов, обмену энергией между когерентными фоонными модами и изменению частоты мягких фоонных мод.

### **Апробация работы и публикации**

Результаты исследований, вошедших в диссертационную работу, опубликованы в 13 печатных работах, в том числе в 4 научных статьях из списка ВАК России, а также докладывались на следующих научных конференциях: Международная конференция «Лазерная физика и оптические технологии-2008» ЛФИОТ'08 (Минск, Беларусь, 2008), школа-семинар «Современные нанотехнологии и нанофотоника для науки и производства» (Владимир, Россия, 2008), Международная конференция «Оптика лазеров-2008» (Санкт-Петербург, Россия, 2008), Международная конференция Optoinformatics-2008 (Санкт-

Петербург, Россия, 2010), 17-я Международная конференция, посвященная проблемам лазерной физики LPHYS'08 (Трондхейм, Норвегия, 2008), Международная конференция по лазерам и лазерным технологиям "ILLA-2009" (Смолян, Болгария, 2009), Международная конференция студентов, аспирантов и молодых ученых по фундаментальным наукам "IONS-2010" (Москва, Россия, 2010), Международная конференция по когерентной и нелинейной оптике ICONO-2010 (Казань, Россия, 2010).

Список опубликованных работ приведен в конце настоящего реферата.

### **Личный вклад автора**

Все изложенные в диссертационной работе оригинальные результаты получены автором лично, либо при его непосредственном участии. Автором осуществлялось создание и автоматизация экспериментальных схем, проведение экспериментов, обработка экспериментальных данных, анализ результатов экспериментов, а также их интерпретация.

### **Структура и объем диссертации**

Диссертация состоит из введения, четырех глав, заключения, благодарностей и списка цитированной литературы. Работа изложена на 141 страницах, включает 65 рисунков, 2 таблицы и список литературы с общим числом ссылок 179.

## **СОДЕРЖАНИЕ ДИССЕРТАЦИИ**

Во *введении* обсуждается актуальность темы диссертационной работы, формулируются цели, задачи исследования, защищаемые положения, определяется научная новизна и практическая ценность полученных результатов, а также приводится краткое содержание диссертационной работы.

*Первая глава* посвящена описанию принципа работы фемтосекундной лазерной установки на хром-форстерите, используемой при проведении экспериментов, рассматриваемых в данной диссертационной работе. Оригинальная часть данного раздела посвящена созданию автоматизированной системы контроля параметров лазерного излучения, сильно влияющих на условия проведения экспериментов.

В *параграфе 1.1* рассматриваются основные характеристики современных мощных твердотельных фемтосекундных лазерных систем. Определены перспективы и возможности использования фемтосекундных лазерных систем на хром-форстерите при решении задач структурной диагностики объема сред.

В *параграфе 1.2* обсуждаются основные принципы работы фемтосекундной лазерной системы на хром-форстерите. Проводится характеристика параметров лазерного излучения в отдельных узлах фемтосекундной лазерной системы на хром-форстерите: задающего генератора, стретчера, регенеративного усилителя, многопроходового усилителя, компрессора.



В параграфе 1.3 содержится оригинальная часть диссертационной работы, связанная с созданием автоматизированного комплекса контроля параметров излучения лазерной системы на хром-форстерите. Показано, что нестабильность энергии второй гармоники излучения составляет ~10%, угловые флуктуации пространственного положения пучка составляют ~1 мкрад, профиль интенсивности лазерного излучения близок к гауссову.

В параграфе 1.4 описывается схема одноимпульсной диагностики длительности импульса  $140 \pm 5$  фс и спектра  $25 \pm 1,5$  нм хром-форстеритового фемтосекундного лазерного излучения. Измерение длительности импульса производится по стандартной корреляционной методике с использованием неколлинеарного преобразования во вторую гармонику в нелинейно-оптическом кристалле DKDP.

В параграфе 1.5 показано, что при острой фокусировке ( $NA=0,4$ ,  $F=3,3$  мм) фемтосекундного лазерного излучения в объем прозрачного диэлектрика поглощение энергии излучения второй гармоники излучения лазерной системы на хром-форстерите в объеме  $SiO_2$  не зависит от положения фокуса линзы внутри образца, а профиль поперечного распределения интенсивности лазерного излучения в фокальной плоскости линзы является гауссовым.

В параграфе 1.6 с помощью многоимпульсной методики во временном окне 300 пс измерен контраст фемтосекундного хром-форстеритового лазерного излучения с точки зрения регистрации пред- и постимпульсов, который играет важную роль при взаимодействии высокоинтенсивного излучения с конденсированными средами. В реализованной схеме измерена корреляционная функция третьего порядка с использованием стандартного интерферометра Майкельсона и коллинеарной генерации третьей гармоники.

Во второй главе диссертационной работы проведены теоретические и экспериментальные исследования для обоснования возможности использования процесса генерации третьей гармоники остророфокусированного фемтосекундного лазерного излучения в качестве метода локальной диагностики структуры объема прозрачных сред с высоким пространственным разрешением ( $\sim \lambda/NA$ ).

В параграфе 2.1 приводится обзор известных методов локальной диагностики структуры прозрачных сред. Показана перспективность и преимущества использования метода ГТГ в качестве универсального метода диагностики неоднородностей и нелинейно-оптических свойств прозрачных диэлектриков.

В параграфе 2.2 процесс генерации третьей гармоники в остророфокусированных гауссовых пучках рассматривается с теоретической точки зрения. Были проведены расчеты ГТГ в объеме изотропной среды с учетом наличия дефекта структуры диэлектрика. В модельном эксперименте была исследована зависимость разрешения метода диагностики на основе ГТГ от волновой расстройки и длины перетяжки лазерного излучения.

В параграфе 2.3 обсуждается обобщенная схема экспериментов по диагностике лазерно-индуцированных дефектов в объеме прозрачных диэлектриков и измерению нелинейно-оптических свойств сред: нелинейной восприимчивости третьего порядка и разницы показателей преломления (волновой расстройки) на длинах волн 1,24 мкм и 0,413 мкм.

В экспериментах фемтосекундное излучение лазерной системы на хром-форстерите с энергией в импульсе 0,01–0,05 мкДж ниже порога формирования плазмы фокусировалось с помощью короткофокусной линзы ( $NA=0,4$ ) в объем образца, смещаемого с каждым импульсом вдоль направления распространения лазерного пучка. Сигнал третьей гармоники лазерного излучения на хром-форстерите, сгенерированный в объеме образца, выделялся полосовым фильтром ( $410\pm 5$  нм) и регистрировался с помощью ФЭУ.

В параграфе 2.4 приведены результаты экспериментов по измерению с высоким пространственным разрешением ( $\sim \lambda/NA$ ) величины волновой расстройки между основной волной и волной третьей гармоники и относительной нелинейности третьего порядка  $\chi^{(3)}$  прозрачных диэлектрических сред.

Апробация метода диагностики на основе ГТГ для определения нелинейной восприимчивости третьего порядка среды была проведена в образцах фторида кальция, фторида лития и плавленного кварца. Для полимерной пленки толщиной 90 мкм, состоящей из фторакриловых мономеров  $CH_2=CH-COO-CH_2-(CF_2)_2-H$  были определены значения волновой расстройки и нелинейной восприимчивости третьего порядка среды.

Аппроксимация экспериментальных данных теоретической зависимостью позволяет получить значения разницы показателей преломления на длинах волн 1,24 и 0,413 мкм (волновой расстройки между волнами основного излучения лазерной системы на хром-форстерите и излучения третьей гармоники)  $\Delta n = (1,0 \pm 0,1) \times 10^{-2}$  ( $\Delta k = 1650 \pm 150$  см<sup>-1</sup>) и нелинейности третьего порядка  $\chi^{(3)} \cong (0,5 \pm 0,25) \times 10^{-22}$  м<sup>2</sup>/В<sup>2</sup> (Рис. 1).

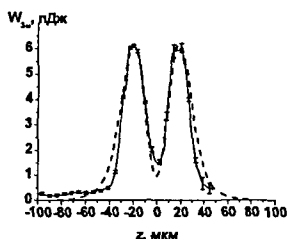
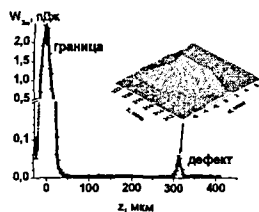


Рис. 1 Теоретическая (---) и экспериментальная (•) зависимости сигнала третьей гармоники  $W_{3\omega}$  от положения центра перетяжки лазерного излучения  $z$  в полимерной пленке.

Также была отработана методика измерения величины разницы показателей преломления (волновой расстройки) в образце плавленного кварца  $\Delta n = (2,2 \pm 0,2) \times 10^{-2}$

( $\Delta k=3400\pm 300 \text{ см}^{-1}$ ) по расстоянию между пиками пространственного профиля сигнала третьей гармоники вблизи границы образца, совпадающей с его табличным значением.

В параграфе 2.5 демонстрируются результаты экспериментов по диагностике лазерно-индуцированных дефектов в объеме прозрачных диэлектриков  $\text{SiO}_2$ ,  $\text{LiF}$ ,  $\text{LiNbO}_3$ . Микромодификация объема плавленного кварца создавалась основным излучением лазерной системы на хром-форстерите с энергией в импульсе 4 мкДж, соответствующей интенсивности излучения свыше  $3 \times 10^{13} \text{ Вт/см}^2$ , что приводило к формированию плазмы в области перетяжки пучка внутри образца плавленного кварца. Объемное сканирование полученной микромодификации структуры образца проводилось при энергии лазерных импульсов ниже порога формирования плазмы (0,04 мкДж) с помощью регистрации сигнала генерируемой на неоднородности третьей гармоники лазерного излучения (Рис. 2).



*Рис. 2* Зависимость сигнала третьей гармоники  $W_{3\omega}$  в объеме плавленного кварца от положения фокальной плоскости линзы  $z$  в образце. Врезка – объемная реконструкция лазерно-индуцированной микромодификации по сигналу третьей гармоники.

Поперечные размеры микромодификации составили  $4\pm 1,5$  мкм, а продольные – 15 мкм, что сравнимо с теоретическим предельным разрешением метода диагностики на основе процесса ГТГ в эксперименте.

Несмотря на присутствие фонового сигнала третьей гармоники из объема кристалла  $\text{LiF}$  ввиду его анизотропии созданная лазерно-индуцированная микромодификация в объеме образца достаточно уверенно регистрируется предложенным методом. Полученный продольный размер микромодификации с учетом разрешения методики составляет 15 мкм.

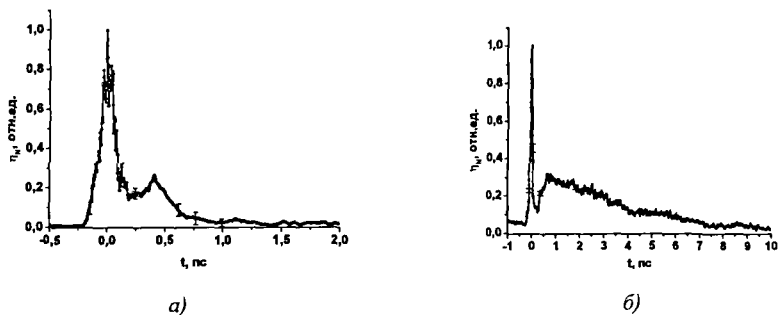
**Вторая часть** диссертационной работы посвящена вопросам исследования динамики лазерно-индуцированной плазмы и процессам энергопереноса после взаимодействия фемтосекундного лазерного излучения с экстремальной для твердого тела интенсивностью  $10^{13} \text{ Вт/см}^2$  с объемом прозрачного аморфного (плавленный кварц) и кристаллических (кварц,  $\text{LiF}$ ,  $\text{BaF}_2$ ,  $\text{CaF}_2$ , лейкосапфир) диэлектриков.

В **третьей главе** диссертационной работы приведены результаты экспериментального исследования процессов переноса энергии из лазерно-индуцированной плазмы в объем прозрачного аморфного диэлектрика на примере образца плавленного кварца.

В параграфе 3.1 приводится обзор экспериментальных исследований эволюции плазмы, созданной в объеме прозрачных твердотельных диэлектриков острофокусированным фемтосекундным лазерным излучением суб- и микроджоулевого уровня энергии.



вызвано генерацией электронов плазмы, изменением нелинейной восприимчивости среды в результате генерации когерентных фононов или просто модификацией среды. Экспериментальные зависимости нормированного выхода третьей гармоники пробного импульса от временной задержки между ним и возбуждающим импульсами при энергии последнего 3 и 4 мкДж представлены на Рис. 4.



**Рис. 4** Экспериментальные зависимости нормированного выхода третьей гармоники пробного импульса  $\eta_N = E_{3\omega} / E^3$  при энергии возбуждающего импульса а) 3 мкДж; б) 4 мкДж от временной задержки  $t$  между возбуждающим и пробным импульсами.

Эффективность ГТГ определяется двумя конкурирующими процессами. С одной стороны, возникновение в среде неоднородности в виде электронов плазмы (нарушение полной деструктивной интерференции волн в изотропной среде), приводит к росту эффективности ГТГ, с другой стороны, электроны плазмы увеличивают волновую расстройку  $\Delta k$ , приводящую к уменьшению эффективности ГТГ. В эксперименте в образце плавленого кварца зарегистрировано два релаксационных процесса. Измеренное время электронной релаксации, связанное с захватом электронов в ловушки, составляет  $180 \pm 80$  фс и не зависит от энергии возбуждающего лазерного импульса. Измеренное характерное время релаксации возбуждения ионной подсистемы является пикосекундным и в режиме сильного возбуждения увеличивается с возрастанием энергии возбуждающего лазерного импульса, что обусловлено увеличением доли поглощенной энергии, диссипация которой из объема происходит за счет термодиффузии.

В четвертой главе диссертационной работы приведены результаты экспериментального исследования процессов переноса энергии из лазерно-индуцированной плазмы в объем прозрачных кристаллических диэлектриков (кварц, LiF, CaF<sub>2</sub>, BaF<sub>2</sub>, лейкосапфир).

В параграфе 4.1 приводится обзор литературы по методам возбуждения и регистрации когерентных фононов в кристаллических диэлектриках под воздействием фемтосекундного лазерного излучения ближнего ИК-диапазона. Для изучения процессов

возбуждения и релаксации когерентных фоонов в режиме формирования лазерно-индуцированной плазмы в объеме кристаллических диэлектриков в данной диссертационной работе предлагается использовать описанный ранее нелинейно-оптический метод зондирования объема среды с временным разрешением на базе процесса генерации третьей гармоники.

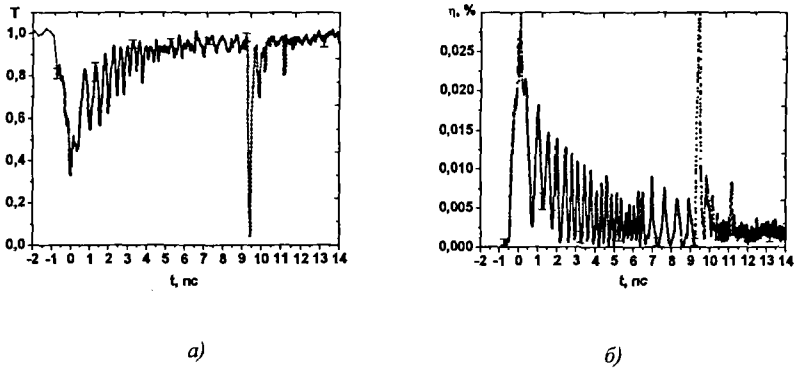
В параграфе 4.2 обсуждаются особенности процесса генерации когерентных фоонов в объеме образца кристаллического кварца в режиме формирования плазмы. В схеме интерферометра Майкельсона возбуждающий и пробный импульсы с ортогональными поляризациями остро фокусировались в объем кристаллического диэлектрика ( $\text{SiO}_2$ ,  $\text{LiF}$ ,  $\text{CaF}_2$ ,  $\text{BaF}_2$  или лейкосапфира) с помощью короткофокусной линзы с  $NA=0,4$  (Рис. 3). В эксперименте регистрировались энергии возбуждающего импульса, пробного импульса, прошедшего через образец, и сигнала третьей гармоники, генерируемой пробным импульсом в области зондирования. Зависимости пропускания энергии пробного импульса образцом кристаллического кварца и эффективности ГТГ пробного импульса от задержки между возбуждающим и пробным импульсами представлены на Рис. 5.

Появление отличных от нуля сигналов третьей гармоники и пропускания пробного импульса происходит в момент сведения возбуждающего и пробного импульсов по времени и соответствует нулевой задержке. В сигналах третьей гармоники и пропускания пробного импульса присутствуют сильные осцилляции на пикосекундном масштабе времен, которые обусловлены модуляцией нелинейной восприимчивости среды и показателя преломления среды за счет генерации в среде когерентных фоонов с терагерцовыми частотами. Релаксация лазерно-индуцированной плазмы, сформированной в объеме кристаллического кварца, приводит к эффективной передаче энергии от электронов плазмы в кристаллическую решетку, разогревая ее до температуры близкой к температуре  $\alpha$ - $\beta$  фазового перехода  $\sim 840$   $^{\circ}\text{K}$ . Далее энергия из микрообъема начинает уходить за счет термодиффузии, температура кристаллической решетки постепенно уменьшается до величины  $\sim 750$   $^{\circ}\text{K}$  за время 6 пс, что приводит к линейному изменению регистрируемой частоты мягкой фононной моды  $A_1$  ( $147$   $\text{см}^{-1}$ ) от 1,4 ТГц ( $47$   $\text{см}^{-1}$ ) до 2,9 ТГц ( $97$   $\text{см}^{-1}$ ).

На временах задержек 6,5-9 пс наблюдается резкое уменьшение частоты фононной моды до 1,4 ТГц. Возможное объяснение может заключаться в том, что мягкая фононная мода с частотой  $147$   $\text{см}^{-1}$  является обертоном от фононной моды с частотой  $70$   $\text{см}^{-1}$ , также зависящей от температуры.

Установлено, что на временной задержке 9 пс наблюдается пикообразное поведение сигналов пропускания и эффективности ГТГ пробного импульса. На временах задержек более 9 пс осцилляции в обоих сигналах пропадают (Рис. 5). При уменьшении энергии возбуждающего импульса пик отсутствует. Таким образом, этот пороговый эффект может

быть связан с локальным разрывом связей в решетке кристаллического кварца при большом удельном энергокладе.



**Рис. 5** Зависимости а) пропускания  $T = E_{out}/E_{in}$  и б) эффективности генерации третьей гармоники  $\eta = E_3/E_{max}$  пробного импульса в образце кристаллического кварца от задержки между пробным и возбуждающим импульсами  $t$  при энергии первого 1 мкДж, а последнего 3,2 мкДж. Количество экспериментальных точек в каждой кривой составляет 50000.

Показано, что лазерно-индуцированная плазма оказывает определяющее влияние на эффективность возбуждения фононов в кристаллическом кварце по сравнению с механизмом внутриимпульсного вынужденного комбинационного рассеяния света (ВВКР). При уменьшении энергии лазерного импульса всего на 15% амплитуда осцилляций в сигнале третьей гармоники на временной задержке  $\sim 2$  пс уменьшается на порядок, что не может быть объяснено механизмом ВВКР.

В параграфе 4.3 рассматривается динамика возбуждения и релаксации когерентных фононов в других кристаллических средах: лейкосапфире, фториде бария, фториде кальция и фториде лития.

В регистрируемых сигналах третьей гармоники пробного импульса в образцах  $BaF_2$ ,  $CaF_2$  и лейкосапфира наблюдаются временные задержки появления фононных волн. В случае лейкосапфира эта задержка совпадает с характерным временем термализации плазмы (передачи энергии от электронов плазмы кристаллической решетке)  $\sim 1$  пс. В кристаллическом кварце подобной задержки не наблюдалось по причине малого времени термализации плазмы  $\sim 150$ -200 фс.

Во фторсодержащих кристаллах ( $BaF_2$ ,  $CaF_2$ ,  $LiF$ ) отсутствие мягких фононных мод и низкотемпературных фазовых переходов приводит к возбуждению когерентных фононов с постоянной частотой. В кристалле  $LiF$  наблюдается обмен энергией между фононными модами, который возможен в режиме ангармонизма колебаний фононных волн.

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Основные результаты, полученные в рамках настоящей диссертации можно сформулировать следующим образом:

1. Создана экспериментальная установка для изучения с высоким пространственным разрешением ( $\sim \lambda/NA$ ) структурных неоднородностей и динамики процессов переноса энергии, происходящих после взаимодействия острогофокусированного высокоинтенсивного (свыше  $10^{13}$  Вт/см<sup>2</sup>) фемтосекундного лазерного излучения ближнего ИК (1,24 мкм) диапазона микроджоулевого уровня энергии с объемом прозрачных диэлектриков на временах до 100 пс.

2. Невозмущающий метод диагностики на основе процесса генерации третьей гармоники фемтосекундного лазерного излучения, острогофокусированного ( $NA > 0,3$ ) на границу прозрачной среды, позволяет определить с высоким пространственным разрешением ( $\sim \lambda/NA$ ) значения оптических параметров объема среды: разницу показателей преломления на длинах волн 1,24 и 0,413 мкм (волновую расстройку между волнами основного излучения лазерной системы на хром-форстерите и излучения третьей гармоники) и нелинейной восприимчивости третьего порядка среды относительно ее значения для опорного образца.

3. Впервые показано, что процесс генерации третьей гармоники острогофокусированного лазерного излучения ближнего ИК диапазона ( $\lambda = 1,24$  мкм) является более чувствительным методом определения порога формирования плазмы в объеме прозрачных диэлектриков по сравнению со стандартной схемой измерения нелинейного пропускания образцом энергии лазерного излучения. Основанная на регистрации сигнала третьей гармоники пробного лазерного импульса методика зондирования эволюции лазерно-индуцированной плазмы позволяет наблюдать последовательные процессы переноса энергии лазерное излучение – электроны плазмы – ионы. Релаксация лазерно-индуцированной плазмы в объеме образца плавленого кварца имеет два характерных времени. Первый релаксационный процесс связан с захватом электронов в ловушки, его измеренное характерное время составляет  $180 \pm 80$  фс и не зависит от энергии возбуждающего лазерного импульса. Второй процесс с характерным пикосекундным временем (до 6 пс), линейно зависящим от энергии возбуждающего лазерного импульса, связан с релаксацией возбуждения ионной подсистемы.

4. Продемонстрирована возможность использования методики, основанной на измерении сигнала третьей гармоники пробного импульса, для уверенной высококонтрастной регистрации когерентных фононов, возбужденных в режиме формирования плазмы в объеме кристаллического диэлектрика. В кристаллическом кварце зарегистрировано сильное линейное изменение частоты фононной моды  $A_1$  вблизи



порога  $\alpha$ - $\beta$  фазового перехода от 1,4 до 2,9 ТГц в зависимости от временной задержки пробного импульса относительно интенсивного ( $\sim 10^{13}$  Вт/см<sup>2</sup>) возбуждающего плазму импульса.

5. Процессы генерации и релаксации когерентных фононов в кристаллических средах в режиме формирования плазмы носят общий характер. Формируемая в микрообъеме кристаллических диэлектриков лазерно-индуцированная плазма оказывает существенное влияние на процессы возбуждения и релаксации когерентных фононов. Лазерно-индуцированная плазма в объеме диэлектриков приводит к временной задержке генерации когерентных фононов в образцах ВаF<sub>2</sub>, СаF<sub>2</sub> и лейкосапфира. Во фторсодержащих кристаллах (ВаF<sub>2</sub>, СаF<sub>2</sub>, LiF) отсутствие мягких фононных мод и низкотемпературного фазового перехода приводит к возбуждению когерентных фононов с постоянной частотой. В кристалле LiF наблюдается обмен энергией между когерентными фононными модами.

### СПИСОК ПУБЛИКАЦИЙ ПО ТЕМЕ ДИССЕРТАЦИИ

Основные результаты диссертационной работы отражены в следующих статьях:

1. Гордиенко В.М., Потемкин Ф.В., Михеев П.М. Эволюция фемтосекундной лазерно-индуцированной плазмы и процессов энергопереноса в микрообъеме SiO<sub>2</sub>, регистрируемых методом генерации третьей гармоники // Письма в ЖЭТФ. 2009. Т. 90. С. 286
2. Gordienko V. M., Khodakovskij N. G., Mikheev P. M., Potemkin F. V., Zubov K. Ju., THG in dielectrics using low-energy tightly-focused IR femtosecond laser: third-order nonlinearity measurements and the evolution of laser-induced plasma // Journal of Russian Laser Research. 2009. Т. 30. С. 599
3. Гордиенко В.М., Михеев П.М., Потемкин Ф.В. Генерация когерентных терагерцовых фононов при острой фокусировке фемтосекундного лазерного излучения в объем кристаллических диэлектриков в режиме формирования плазмы // Письма в ЖЭТФ. 2010. Т. 92. С. 553
4. Михеев П.М., Потемкин Ф.В. Генерация третьей гармоники фемтосекундного лазерного излучения ближнего ИК диапазона, остро фокусированного в объем прозрачного диэлектрика, в режиме формирования плазмы // Вестник МГУ. 2011. Т. 1. С. 16  
и докладывались на российских и международных конференциях:
1. Gordienko V.M., Mikheev P.M., Potemkin F.V. Influence of plasma on third harmonic generation in dielectrics at laser intensity of the order of  $10^{13}$  W/cm<sup>2</sup> // LPHYS'08 Book of abstracts, June 30– July 4, 2008, Trondheim, Norway, С. 307

2. Гордиенко В. М., Михеев П. М., Потемкин Ф. В. Диагностика неоднородностей в объеме прозрачных сред с помощью генерации третьей гармоники фемтосекундного лазерного излучения // Сборник научных трудов конференции ЛФИОТ'08, 17-19 июня, 2008, Минск, Беларусь, Т. 1, С. 104
3. Потемкин Ф. В., Гордиенко В. М., Михеев П. М., Zubov K. Ю. Детектирование лазерно-индуцированных микромодификаций в прозрачных диэлектриках с помощью метода генерации третьей гармоники // Школа-семинар «Современные нанотехнологии и нанофотоника для науки и производства», 19-21 ноября, 2008, Россия, Владимир, С. 59
4. Potemkin F.V., Gordienko V.M., Mikheev P.M. The diagnostics of plasma channels formed by Cr:Forsterite femtosecond laser radiation tightly focused into the fused silica volume // Laser Optics Book of abstracts, June 23 - 28, 2008, Saint-Petersburg, Russia, С. 41
5. Potemkin F.V., Gordienko V.M., Mikheev P.M., Zubov K.Ju. Third harmonic generation in transparent dielectrics under plasma formation conditions: fundamental investigations and applications // Topical Meeting on Optoinformatics-08 Proceedings, September 15 - 18, 2008, Saint-Petersburg, Russia, С. 299
6. Potemkin F.V., Gordienko V.M., Mikheev P.M., Zubov K.Ju. Formation of micromodifications in volume of transparent solids by tightly focused Cr:Forsterite laser radiation // Topical Meeting on Optoinformatics-08 Proceedings, September 15 - 18, 2008, Saint-Petersburg, Russia, С. 197
7. Potemkin F.V., Gordienko V.M., Mikheev P.M. Time-resolved diagnosis of femtosecond laser induced microplasma evolution in a bulk of solids by third harmonic generation technique, ILLA '2009 Book of abstracts, 18 - 22 October, 2009, Smoljan, Bulgaria
8. Potemkin F.V., Gordienko V.M., Mikheev P.M. Diagnosis of energy transfer processes in transparent dielectrics at extreme laser intensities  $\sim 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup> by nonlinear pump-probe technique based on THG // IONS'8 Book of abstracts, 21-25 June, 2010, Moscow, Russia, С. 22
9. Potemkin F.V., Gordienko V.M., Khodakovskij N.G., Mikheev P.M. Peculiarities of energy transfer processes in a bulk of crystalline dielectrics at extreme laser intensities  $\sim 10^{13}$ W/cm<sup>2</sup> by pump-probe technique based on THG // Technical Digest on CD-ROM of the International Conference on Coherent and Nonlinear Optics "ICONO/LAT-2010", August 23 - 26, 2010, Kazan, Russia, IThA5

**Основная цитируемая литература:**

1. Ахманов С.А., Выслоух В.А., Чиркин В.С. Оптика фемтосекундных лазерных импульсов. : М.:Наука, 1998. 312 С.

2. Райтгес Дж. Нелинейные оптические параметрические процессы в жидкостях и газах. : М.:Мир, 1987. 510 С.
3. Boyd R.W. *Nonlinear optics*. : Academic Press, 2003. Вып. 2. 578 С.
4. Желтиков А.М. Сверхкороткие импульсы и методы нелинейной оптики. : Физматлит, 2006. 296 С.
5. Müller M. и др. 3D microscopy of transparent objects using third-harmonic generation. // *Journal of Microscopy*. 1998. Т. 191. № 3. С. 266.
6. Gattass R.R., Mazur E. *Femtosecond laser micromachining in transparent materials* // *Nature Photonics*. 2008. Т. 2. С. 219.
7. Гинзбург В.Г. Рассеяние света вблизи точек фазовых переходов в твердом теле // *УФН*. 1962. Т. LXXVII. № 4. С. 621.
8. Scott J.F. Soft-mode spectroscopy: Experimental studies of structural transitions // *Reviews of Modern Physics*. 1974. Т. 46. № 1. С. 83.
9. Yan Y.-X., Gamble E.B., Nelson K.A. Impulsive stimulated scattering: General importance in femtosecond laser pulse interactions with matter, and spectroscopic applications // *The Journal of Chemical Physics*. 1985. Т. 83. № 11. С. 5391.

Подписано в печать 02.03.2011  
Формат 60x88 1/16. Объем 1.0 п.л.  
Тираж 100 экз. Заказ № 1086  
Отпечатано в ООО «Соцветие красок»  
119991 г. Москва, Ленинские горы, д.1  
Главное здание МГУ, к. А-102