

## ВЛИЯНИЕ ДЛИТЕЛЬНОСТИ УЛЬТРАКОРОТКИХ ЛАЗЕРНЫХ ИМПУЛЬСОВ С ДЛИНОЙ ВОЛНЫ 1030 НМ НА ИХ НЕЛИНЕЙНОЕ ПОГЛОЩЕНИЕ В ПОЛИМЕТИЛМЕТАКРИЛАТЕ

Ю. С. Гулина<sup>1</sup>, Ц. Чжу<sup>1</sup>, А. В. Горевой<sup>1</sup>, Н. И. Долженко<sup>2</sup>, П. А. Данилов<sup>1</sup>

*Исследовано влияние длительности ультракоротких лазерных импульсов с длиной волны 1030 нм на их нелинейное поглощение в полиметилметакрилате. Установлено, что зависимость коэффициента поглощения от длительности импульса носит нелинейный характер: наблюдается его возрастание в диапазоне 250–450 фс, последующее убывание в интервале 450–1500 фс и слабая зависимость при длительностях, превышающих 1500 фс.*

**Ключевые слова:** ультракороткие лазерные импульсы, нелинейное поглощение, фотоионизация, полиметилметакрилат.

*Введение.* Нелинейное поглощение в диэлектрических материалах, включая полиметилметакрилат (ПММА), играет ключевую роль в локальном энергокладе ультракоротких лазерных импульсов (УКИ), определяя как пространственное положение, так и размеры зон структурной модификации. Этот процесс существенно зависит от длительности импульса: механизм поглощения различается для нано-, пико- и фемтосекундных режимов [1]. Для задач прецизионной лазерной модификации биосовместимых полимеров, таких как коррекция оптической силы интраокулярных линз [2], создание имплантируемых биосенсоров [3] и микрофлюидных систем [4], особенно перспективно применение ультракоротких импульсов, обеспечивающих формирование субдифракционных структур с высокой пространственной локализацией.

На фемто- и пикосекундных временных масштабах нелинейное поглощение в диэлектриках обусловлено преимущественно многофотонной или туннельной ионизацией, а затем поддерживается вторичными ударными процессами лавинной ионизации [5,

<sup>1</sup> ФИАН, 119991 Россия, Москва, Ленинский пр-т, 53; e-mail: gulinays@lebedev.ru.

<sup>2</sup> МГТУ им. Н.Э. Баумана, 105005 Россия, Москва, 2-я Бауманская ул., 5.

6]. Влияние длительности импульса на эти процессы обычно исследуется через параметры оптического пробоя, например, в плавленом кварце, где пробой возникает при быстром накоплении электронов в зоне проводимости до критической плотности [7]. Ряд работ показал, что пороговая плотность энергии пробоя в кварце проявляет выраженный минимум в диапазоне 0.5–1 пс, увеличиваясь как при более коротких, так и при более длинных длительностях импульсов; это поведение объясняется конкуренцией между многофотонной и лавинной ионизацией [8–10]. Отдельные исследования посвящены пороговой интенсивности, определяющей начало нелинейного поглощения ультракоротких импульсов в диэлектриках. Так, для импульсов длительностью до 1 пс была установлена обратно пропорциональная корневая зависимость пороговой интенсивности от длительности импульса [11]. Применительно к ПММА ранее было показано, что в диапазоне фемтосекундных импульсов (45–210 фс) эффективность нелинейного взаимодействия, в частности, модификации показателя преломления, максимальна для наиболее коротких импульсов, что связывают с доминированием многофотонной ионизации [12]. Таким образом, систематическое исследование нелинейно-оптического взаимодействия субпикосекундных импульсов (0.1–10 пс) с ПММА и количественная оценка его ключевых параметров остаются актуальными, поскольку они лежат в основе технологий лазерного структурирования и микро-/нанообработки биосовместимых полимеров.

В настоящей работе исследуется нелинейное поглощение лазерных импульсов с длиной волны 1030 нм в ПММА при варьировании их длительности в диапазоне 250–2500 фс.

*Методика.* Для оценки основных параметров нелинейно-оптического взаимодействия использовалась оптимизированная методика z-сканирования, подробно изложенная в [13].

Она основана на измерении пропускания тонкого образца (толщина которого  $L$  меньше длины Рэлея  $z_R$ ) вследствие возникновения фазовых искажений при его смещении относительно плоскости фокусировки гауссова пучка

$$T(z) = \frac{\int_{-\infty}^{\infty} P_T(\Delta\Phi_0(t))dt}{S \int_{-\infty}^{\infty} P_{in}(t)dt}, \quad (1)$$

где  $P_T(\Delta\Phi_0(t))$  – мощность, зарегистрированная приемником излучения при наличии фазовых искажений,  $P_{in}(t)$  – мощность излучения на входе в образец,  $S = 1 - \exp(-2r_a^2/w_a^2)$  – линейная пропускная способность апертуры приемника излучения,  $r_a$  и  $w_a$  – радиусы апертуры и пучка в плоскости приемника излучения в линейном режиме,

соответственно. При проведении измерений в режиме открытой апертуры зарегистрированное изменение пропускания образца обусловлено нелинейным поглощением, и на основе аппроксимации экспериментальных данных оценивается характер многофотонного поглощения и величина его коэффициентов. При установке в плоскость приемника излучения апертуры конечного размера изменение сигнала приемника возникает в основном из-за нелинейной рефракции, что дает возможность оценить величину нелинейного показателя преломления.

*Экспериментальная часть.* При проведении экспериментальных исследований был использован образец, выполненный из коммерчески доступного листового экструзионного чистого ПММА в виде полированной пластинки толщиной 1 мм. Источником излучения служил твердотельный иттербиевый лазер (ТЕТА-20, “Авеста-Проект”) с основной длиной волны  $\lambda = 1030$  нм и максимальной энергией в импульсе  $E = 500$  мкДж. Длительность импульсов менялась посредством встроенного компрессора в диапазоне от 250 фс до 2500 фс, контроль длительности осуществлялся с помощью автокорреляторов ASF-30 и AA-10DD-30PS (“Авеста-Проект”). Частота следования импульсов составляла 5 Гц, энергия импульса варьировалась от 1.5 до 16 мкДж.

Лазерное излучение фокусировалось флюоритовой линзой ( $f' = 200$  мм) в объеме образца в пятно диаметром  $d = 50$  мкм по уровню  $1/e^2$ , при этом измерение происходило по методике, описанной в [13]. Пластинка координированно перемещалась в двух направлениях с помощью моторизованных трансляторов (Standa 8MT173): в направлении оси излучения со скоростью  $v_1 = 400$  мкм/с и во взаимно ортогональном направлении со скоростью  $v_2 = 250$  мкм/с. Скорость движения в плоскости образца рассчитывалась таким образом, чтобы исключить перекрытие областей воздействия импульсов, и тем самым избежать накопления модификаций в объеме образца при  $z$ -сканировании. Прошедшее излучение анализировалось с помощью кремниевого фотодиодного датчика (Ophir PD10-C). При реализации схемы с закрытой апертурой радиус диафрагмы был равен 0.9 мм.

*Результаты и их обсуждение.* Для оценки влияния длительности импульса на параметры нелинейно-оптического взаимодействия был проведен ряд экспериментов по измерению нелинейного пропускания образца при фиксированной интенсивности лазерного излучения – порядка  $I_0 = 0.58$  ГВт/см<sup>2</sup> в центре фокального пятна. Для этого по мере увеличения длительности импульсов от 250 фс до 2500 фс их энергия повышалась от 1.58 мкДж до 15.86 мкДж, соответственно. Примеры экспериментально измеренных зависимостей нормированного коэффициента нелинейного пропускания  $T/T_{lin}$

(где  $T_{\text{lin}}$  – коэффициент пропускания в линейном режиме, который обусловлен линейным поглощением и потерями на отражение на границах раздела воздух–ПММА) от смещения образца относительно фокальной плоскости  $z$  для длительностей импульсов 250, 450 и 2500 фс в схемах с открытой и закрытой апертурой приведены на рис. 1(а) и 1(б). Из них видно, что импульсы с различными длительностями ослабляются в образце по-разному – так, импульсы длительностью 450 фс поглощаются сильнее, чем 250 и 2500 фс.

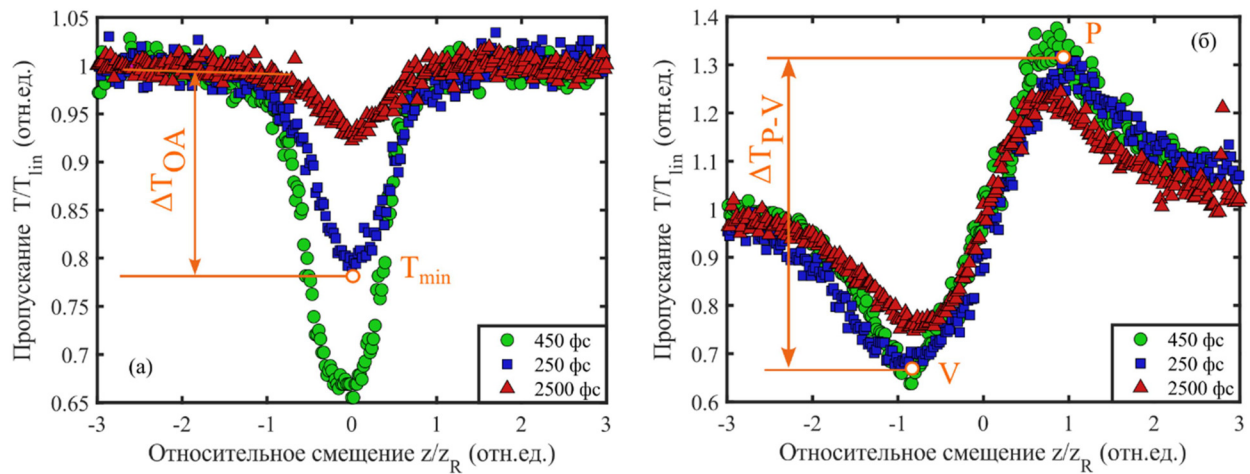


Рис. 1: Зависимости нелинейного (нормированного) коэффициента пропускания образца от относительного смещения образца для длительностей импульсов 250, 450 и 2500 фс для схемы с открытой (а) и закрытой апертурой (б).

Для более детального анализа характера изменения поглощения от длительности были измерены максимальные изменения коэффициентов пропускания для обеих схем: для открытой апертуры измерялся “провал” при положении образца в фокальной плоскости  $\Delta T_{\text{OA}} = T - T_{\text{min}}$ , а для закрытой апертуры – разница между минимумом  $V$  перед фокальной плоскостью и максимумом  $P$  за ней  $\Delta T_{P-V} = T_P - T_V$ . Полученные зависимости изменения коэффициента пропускания от длительности импульса приведены на рис. 2. Для обеих схем наблюдается увеличение поглощения (рост  $\Delta T$ ) при увеличении длительности импульса до 450 фс, а для более длинных импульсов происходит нелинейный спад поглощения с выходом на плато с незначительным спадом при превышении длительности 1500 фс.

Аналогичный характер зависимости от длительности импульса был получен при оценке нелинейного показателя преломления  $n_2$  на основе методики, приведенной в

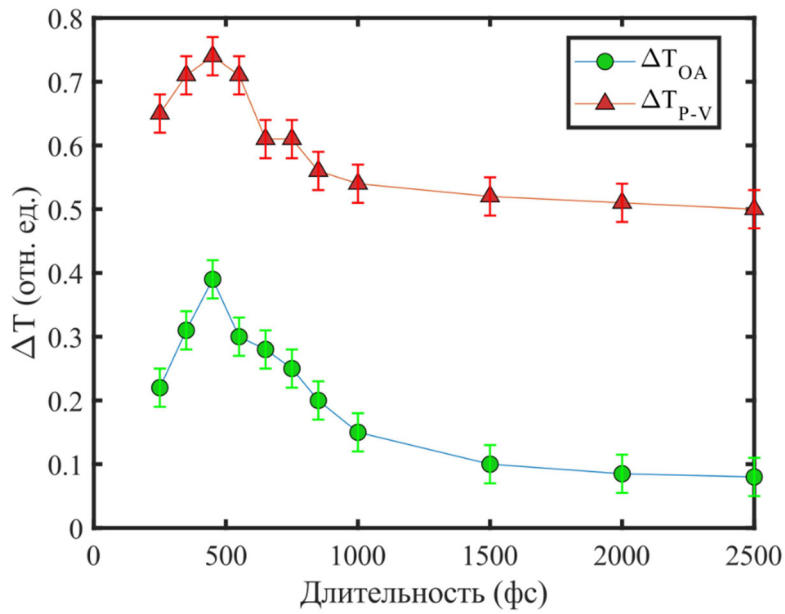


Рис. 2: Зависимость изменения коэффициента пропускания образца  $\Delta T$  для схем с открытой и закрытой апертурой от длительности импульса.

[13], и рассчитанной на его основе величины критической мощности самофокусировки  $P_{cr} = \frac{3.77\lambda_0^2}{8\pi n_0 n_2}$ , где  $n_0$  – линейный показатель преломления исследуемого материала,  $\lambda_0$  – длина волны лазерного излучения [14].

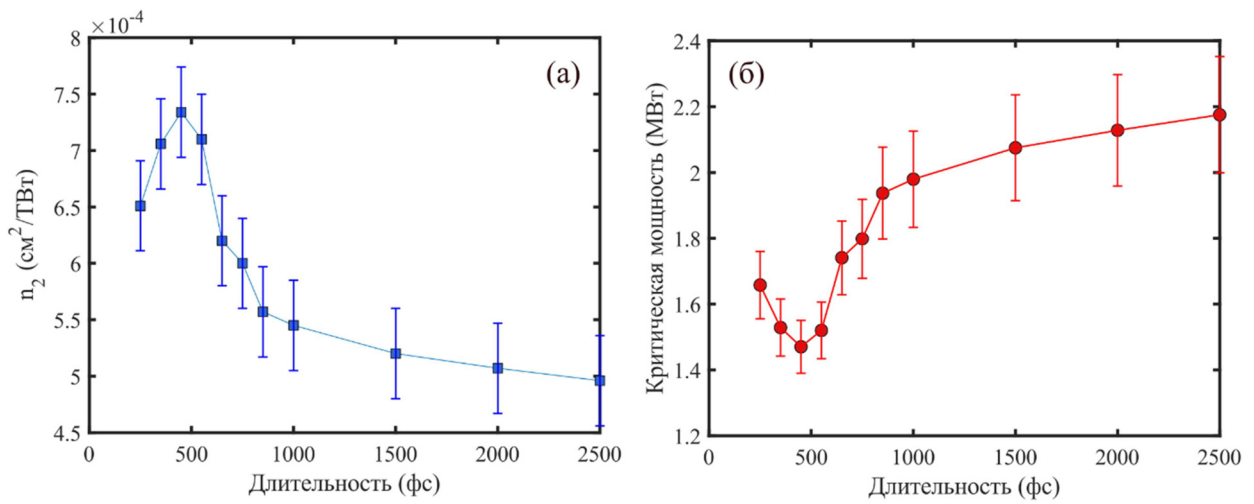


Рис. 3: Зависимость величины нелинейного показателя преломления (а) и критической мощности самофокусировки (б) от длительности импульса.

Для объяснения полученных результатов обратимся к процессу ионизации, который является начальной стадией нелинейно-оптического взаимодействия интенсивного лазерного излучения с прозрачной диэлектрической средой, и может быть рассмотрен на основе обобщенного кинетического уравнения изменения плотности носителей заряда  $\rho(t)$  [15]

$$\frac{d\rho(t)}{dt} = W_{PI}(E(t)) + W_{AV}(E(t), \rho(t)) - W_R(\rho(t), t), \quad (2)$$

где  $W_{PI}$  – скорость фотоионизации,  $W_{AV}$  – скорость лавинной ионизации,  $W_R$  – скорость рекомбинации электронов.

Фотоионизация может быть описана в рамках теории Келдыша [16], согласно которой многофотонная и туннельная фотоионизация задаются как два предельных режима одного и того же физического явления – ионизации в переменном поле электромагнитного излучения. Для определения режима взаимодействия фемтосекундных лазерных импульсов с прозрачным материалом используется параметр Келдыша, определяемый выражением вида [17]

$$\gamma = \frac{\omega}{e} \sqrt{\frac{m_e^* c n_0 \varepsilon_0 E_g}{I}}, \quad (3)$$

где  $e$  – заряд электрона,  $m_e^*$  – эффективная масса электрона,  $\omega$  – частота электромагнитного излучения,  $c$  – скорость света в вакууме,  $E_g$  – ширина запрещенной зоны,  $\varepsilon_0$  – диэлектрическая проницаемость вакуума,  $I$  – интенсивность электромагнитного излучения. Для условий эксперимента минимальная величина параметра Келдыша для ПММА составляет  $\gamma \approx 10$ , так что позволяет говорить о доминировании процесса многофотонной фотоионизации [18].

Известно, что для длительностей импульсов менее 10 пс процессами рекомбинации можно пренебречь, а лавинная ионизация может быть описана как  $W_{AV}(E(t), \rho(t)) = \beta(E)\rho(t)$ , где  $\beta(E)$  – коэффициент лавинной ионизации [1]. Таким образом, уравнение (2) может быть представлено в виде

$$\frac{d\rho(t)}{dt} = W_{PI}(E(t)) + \beta(E)\rho(t). \quad (4)$$

Так, на основе решения этого уравнения в [19] было показано, что порог оптического пробоя для плавленого кварца имеет минимум в районе длительности импульсов порядка 500 фс, что хорошо согласуется с полученным в данной работе увеличением нелинейного поглощения при сопоставимых длительностях.

При взаимодействии лазерного излучения с длиной волны 1030 нм с ПММА в исследуемом диапазоне интенсивностей наблюдается четырехфотонное поглощение [13], и,

следовательно, скорость многофотонной ионизации пропорциональна  $W_{PI} \propto \beta_4(|E|^2)^4$ , где  $\beta_4$  – коэффициент четырехфотонного поглощения. Таким образом, при коротких длительностях импульсов основной вклад в генерацию свободных носителей вносит многофотонная ионизация. При увеличении длительности до 450 фс начинает расти вклад лавинной ионизации, что ускоряет процесс генерации свободных носителей, увеличивая поглощение и плотность электрон-дырочной плазмы. С другой стороны, при высокой плотности носителей заряда многофотонная ионизация существенно подавляется частыми столкновениями [20], и при длительностях выше 450 фс происходит уменьшение коэффициента поглощения. При дальнейшем увеличении длительности коэффициент лавинной ионизации  $\beta(E)$  насыщается [19], а образующаяся плотная плазма начинает дефокусировать лазерное излучение [9], что, по-видимому, приводит к стабилизации величины коэффициента нелинейного поглощения для длительностей более 1500 фс.

*Заключение.* В работе было впервые проведено исследование влияния длительности ультракоротких лазерных импульсов в диапазоне 250–2500 фс на их нелинейное поглощение в ПММА. Показано, что при увеличении длительности импульса от 250 фс до 450 фс поглощение растет, а при дальнейшем увеличении до 1500 фс наблюдается нелинейный спад поглощения, после чего поглощение стабилизируется. Полученный результат может быть связан с перераспределением вклада многофотонной и лавинной ионизации в процесс нелинейно-оптического взаимодействия ультракоротких лазерных импульсов с ПММА, и последующей стабилизацией поглощения из-за образующейся плотной околофокальной плазмы.

Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда (проект № 25-22-00488), <https://rscf.ru/en/project/25-22-00488/>.

#### Л И Т Е Р А Т У Р А

- [1] A. Sahoo, P. P. Rajeev, S. Krishnan, *Journal of Optics* **24**(6), 064004 (2022). DOI: 10.1088/2040-8986/ac60ba.
- [2] J. Nguyen, L. Werner, J. Ludlow, et al., *Journal of Cataract & Refractive Surgery* **44**(2), 226 (2018). DOI: 10.1016/j.jcrs.2017.09.036.
- [3] R. Bhadoria, H. S. Chaudhary, *International Journal of Drug Delivery* **3**(4), 571 (2011). DOI: 10.5138/506.
- [4] T. Luo, L. Zheng, D. Chen, et al., *Analyst* **148**(19), 4637 (2023). DOI: 10.1039/D3AN00981E.

- [5] R. Gattass, E. Mazur, *Nature Photon* **2**, 219 (2008). DOI: 10.1038/nphoton.2008.47.
- [6] P. B. Corkum, *Physical review letters* **71**(13), 1994 (1993). DOI: 10.1103/PhysRevLett.71.1994.
- [7] M. Lenzner, J. Krüger, S. Sartania, et al., *Phys. Rev. Lett.* **80**(18), 4076 (1998). DOI: PhysRevLett.80.4076.
- [8] D. Du, X. Liu, G. Korn, et al., *Applied physics letters* **64**(23), 3071 (1994). DOI: 10.1063/1.111350.
- [9] Y. Liu, H. Jiang, Q. Sun, et al., *Journal of Optics A: Pure and Applied Optics* **7**(4), 198 (2005). DOI: 10.1088/1464-4258/7/4/008.
- [10] A. Bendib, K. Bendib-Kalache, C. Deutsch, *Laser and Particle Beam* **31**(3), 523 (2013). DOI: 10.1017/S0263034613000396.
- [11] Z. Guo, K. Hu, T. Cao, et al., *Optics Express* **30**(7), 10317 (2022). DOI: 10.1364/OE.453063.
- [12] A. Baum, P. J. Scully, W. Perrie, et al., *Optics letters* **33**(7), 651 (2008). DOI: 10.1364/ol.33.000651.
- [13] Ю. С. Гулина, Ц. Чжу, А. В. Горевой и др., *Письма в ЖЭТФ* **122**(1), 36 (2025). DOI: 10.1134/S0021364025607055.
- [14] A. Couairon, A. Mysyrowicz, *Phys. Rep.* **441**(2-4), 47 (2007). DOI: 10.1016/j.physrep.2006.12.005.
- [15] S. Mao, F. Quéré, S. Guizard, et al., *Appl. Phys. A* **79**, 1695 (2004). DOI: 10.1007/s00339-004-2684-0.
- [16] L. V. Keldysh, *Sov. Phys. JETP* **20**, 1307 (1965). DOI: 10.1088/0957-0233/12/11/305.
- [17] C. B. Schaffer, A. Brodeur, E. Mazur, *Measurement Science and Technology* **12**(11), 1784 (2001). DOI: 10.1088/0957-0233/12/11/305.
- [18] G. K. Krasin, Y. S. Gulina, E. V. Kuzmin, et al., *Photonics* **10**(2), 106 (2023). DOI: 10.3390/photonics10020106.
- [19] A. C. Tien, S. Backus, H. Kapteyn, et al., *Physical Review Letters* **82**(19), 3883 (1999). DOI: 10.1103/PhysRevLett.82.3883.
- [20] D. Du, X. Liu, G. Mourou, *Applied Physics B* **63**(6), 617 (1996). DOI: 10.1007/BF01831002.

Поступила в редакцию 30 сентября 2025 г.

После доработки 8 ноября 2025 г.

Принята к публикации 9 ноября 2025 г.