

ГЕНЕРАЦИЯ ЦЕНТРОВ ОКРАСКИ И ЛАЗЕРНОЙ ПЛАЗМЫ В LiF ПРИ МНОГОИМПУЛЬСНОЙ ФИЛАМЕНТАЦИИ

А. В. Кузнецов^{a}, В. О. Компанец^b, А. Е. Дормидонов^b, С. В. Чекалин^b,
В. П. Кандидов^{b,c}*

*^a Иркутский филиал Института лазерной физики
Сибирского отделения Российской академии наук
664033, Иркутск, Россия*

*^b Институт спектроскопии Российской академии наук
108840, Троицк, Москва, Россия*

*^c Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова, Физический факультет
119991, Москва, Россия*

Поступила в редакцию 23 июля 2022 г.,
после переработки 23 июля 2022 г.
Принята к публикации 29 июля 2022 г.

Экспериментально и численно исследована динамика генерации плазмы и центров окраски в кристалле LiF при многоимпульсной филаментации фемтосекундного лазерного излучения среднего ИК-диапазона. Разработана модель, которая описывает динамическую конкуренцию экситонного и электронно-дырочного каналов в процессе насыщения концентрации центров окраски в LiF при многоимпульсном воздействии фемтосекундного излучения. Дана физическая интерпретация конкуренции экситонного и электронно-дырочного каналов генерации центров окраски.

DOI: 10.31857/S0044451022120045
EDN: LCBJUC

1. ВВЕДЕНИЕ

Особенности взаимодействия фемтосекундных лазерных импульсов с прозрачными диэлектриками позволяют осуществлять неразрушающую управляемую запись микромодификации в объеме материалов для формирования элементов интегральной оптики, квантовой информатики и других приложений [1, 2]. Особое место среди перспективных материалов для создания элементов микрооптики занимает кристалл фторида лития LiF [3]. Он обладает наиболее широкой областью прозрачности и запрещенной зоной (около 14 эВ) среди прозрачных диэлектриков, хорошо подвергается механической обработке. В результате филаментации фемтосекундных лазерных импульсов в LiF происходит образование долгоживущих центров окраски (ЦО) различных типов, среди которых наиболее удобны для на-

блюдения ЦО F_2 и F_3^+ [4, 5]. Данные ЦО способны люминесцировать в видимом диапазоне при возбуждении непрерывным лазерным излучением на длине волны 450 нм. Запись структур из ЦО при воздействии лазерного излучения и последующая их визуализация лежат в основе метода лазерной колорации, который позволяет исследовать процесс нелинейно-оптического взаимодействия лазерного излучения с диэлектриком в одноимпульсном режиме, свободном от погрешностей, связанных с флуктуациями излучения [6–9]. Методом лазерной колорации впервые зарегистрированы периодические осцилляции параметров световых пучков — одноцикловых волновых пакетов, формируемых в объеме прозрачной среды при филаментации в условиях аномальной дисперсии групповой скорости [10], изучено влияние сдвига фазы между световым полем на несущей частоте и огибающей световой пули на период осцилляций параметров ее высокоинтенсивного керны [11, 12].

Образование ЦО в LiF инициируется фотоиндуцированной генерацией возбуждений электронной подсистемы кристалла двух видов — электронно-

* E-mail: a.v.kuznetsov@bk.ru

дырочных пар и экситонов. Последующий самопроизвольный распад обоих видов электронных возбуждений приводит к образованию ЦО. Для волновода из ЦО в работе [13] предложена бесплазменная модель, которая описывает процесс его формирования в условиях насыщения концентрации.

В настоящей работе исследовано формирование ЦО в LiF в процессе накопления их концентрации и генерации лазерной плазмы при многоимпульсной филаментации. Экспериментально зарегистрирован сигнал люминесценции лазерной плазмы в LiF и CaF₂, генерируемой при увеличении числа воздействующих фемтосекундных импульсов на длине волны более 3000 нм, что соответствует условиям аномальной дисперсии групповой скорости. Построена модель генерации ЦО и лазерной плазмы в LiF, которая описывает динамическую конкуренцию экситонного и электронно-дырочного каналов в процессе образования ЦО в LiF при многоимпульсной филаментации. Динамика сигнала люминесценции плазмы, рассчитанная в модели, хорошо согласуется с результатами эксперимента.

2. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ ГЕНЕРАЦИИ ПЛАЗМЫ ПРИ МНОГОИМПУЛЬСНОЙ ФИЛАМЕНТАЦИИ В LiF

В эксперименте образцы кристаллов LiF и CaF₂ облучались фемтосекундными лазерными импульсами с центральными длинами волн 3100 и 3400 нм, длительностью 120 фс и энергией 30 мкДж. Для этого использовался фемтосекундный комплекс, состоящий из титан-сапфирового генератора и регенеративного усилителя (Tsunami и Spitfire HP), перестраиваемого параметрического усилителя TOPAS-C и генератора разностной частоты. Излучение фокусировалось на входную поверхность образцов линзой из CaF₂ с фокусным расстоянием 10 см.

Лазер работал попеременно в двух режимах: в одноимпульсном режиме (импульс генерируется по нажатию кнопки) и в режиме генерации последовательности импульсов с частотой 10 Гц. Одноимпульсный режим использовался для фотосъемки плазменного канала отдельных импульсов при помощи синхронизированной с лазером CCD-камеры Thorlabs S805MU с микрообъективом. Многоимпульсный режим использовался для быстрого накопления числа импульсов, воздействовавших на образец. CCD-камера размещалась сбоку относительно филамента. Съемка совершалась в одноимпульс-

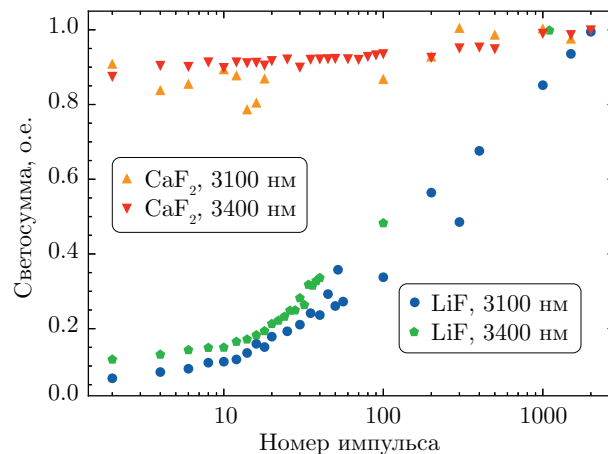


Рис. 1. (В цвете онлайн) Экспериментальные зависимости светосуммы свечения лазерной плазмы от номера импульса при многоимпульсной филаментации в LiF и CaF₂ излучения на длинах волн 3100 и 3400 нм, с длительностью импульсов 120 фс, энергией 30 мкДж и радиусом 60 мкм

ном режиме с экспозицией 1 мс. Свечение плазменного канала регистрировалось со всей площади изображения для получения светосуммы. Были получены зависимости светосуммы свечения плазмы, генерируемой филаментом импульса в LiF и CaF₂, от номера импульса (рис. 1).

Видно, что для LiF и CaF₂ полученные зависимости существенно различаются. В случае LiF наблюдается увеличение светосуммы более чем на один порядок при увеличении числа импульсов. При большом числе импульсов (порядка тысяч) рост светосуммы свечения замедляется. В случае CaF₂ светосумма в пределах погрешности измерений не меняется с увеличением числа импульсов. Сильное свечение плазмы в CaF₂ по сравнению с зарегистрированным в LiF при большом числе импульсов связано с тем, что ширина запрещенной зоны в CaF₂, равная 10 эВ, меньше, чем в LiF, в котором она составляет 13.5 эВ.

3. МОДЕЛЬ ГЕНЕРАЦИИ ЦЕНТРОВ ОКРАСКИ В LiF

Качественное различие CaF₂ и LiF в зависимостях светосуммы свечения лазерной плазмы от номера импульса объясняется тем, что CaF₂ является значительно более радиационно стойким материалом, чем LiF, и в условиях эксперимента в нем ЦО не формируются. Значит, рост энергии плазменного свечения в LiF физически связан с образованием ЦО. Следовательно, теоретическая модель, описы-

вающая наблюдаемый рост свечения плазмы в LiF с увеличением номера импульса, должна включать взаимосвязь генерации плазмы и накопленной концентрации ЦО.

В развиваемой модели распределение концентрации ЦО в пространстве \mathbf{r} описывается эффективной концентрацией $\rho_c^j(\mathbf{r})$ различных видов ЦО. Верхний индекс “ j ” здесь обозначает число импульсов, под действием которых сформировано данное распределение ЦО, т.е. j — номер последнего импульса. ЦО аккумулируются импульс за импульсом. Их концентрация достигает максимального (насыщенного) значения $\rho_{c\ max}$ при большом числе импульсов. При воздействии j -го лазерного импульса происходит образование экситонов с концентрацией $\rho_{ex}^j(\mathbf{r}, \tau)$ и электронно-дырочных пар с концентрацией $\rho_e^j(\mathbf{r}, \tau)$, называемой в дальнейшем концентрацией электронов. Кинетические уравнения, описывающие изменение этих концентраций под действием лазерного импульса, имеют следующий вид в бегущем времени $\tau = t - zn_0/c$, где z — ось координат, совмещенная с осью лазерного пучка:

$$\begin{aligned} \frac{\partial \rho_e^j(\mathbf{r}, \tau)}{\partial \tau} &= (1 - \alpha^j(\mathbf{r})) W_e(|A^j(\mathbf{r}, \tau)|) \times \\ &\quad \times \left(1 - \frac{\rho_e^j(\mathbf{r}, \tau) + \rho_{ex}^j(\mathbf{r}, \tau)}{\rho_0} \right), \\ \frac{\partial \rho_{ex}^j(\mathbf{r}, \tau)}{\partial \tau} &= \alpha^j(\mathbf{r}) W_{ex}(|A^j(\mathbf{r}, \tau)|) \times \\ &\quad \times \left(1 - \frac{\rho_e^j(\mathbf{r}, \tau) + \rho_{ex}^j(\mathbf{r}, \tau)}{\rho_0} \right). \end{aligned} \quad (1)$$

Здесь $A^j(\mathbf{r}, \tau)$ — комплексная амплитуда огибающей лазерного импульса, $n_0 = 1.363$ — линейный показатель преломления, $\rho_0 = 6.1 \cdot 10^{22}$ см⁻³ — концентрация анионов фтора в LiF. Величина ρ_0 определяет предельную суммарную концентрацию электронов и экситонов в пренебрежении ионизацией катионов лития, вероятность которой мала из-за высокого потенциала. Скорость полевой ионизации W_e описывается формулой Келдыша [14]. Функция $W_{ex}(|A|)$ является скоростью прямой генерации экситонов в единице объема. В настоящее время неизвестны модели прямого канала генерации экситонов. При энергии экситонного поглощения $U_{ex} = 12.8$ эВ, близкой к ширине запрещенной зоны $U_e = 13.5$ эВ, можно принять, что функции, описывающие скорости генерации экситонов $W_{ex}(|A|)$ и полевой ионизации $W_e(|A|)$, совпадают. Уравнения (1) описывают уменьшение скорости полевой ионизации с образованием электронов и скорости прямой генерации экситонов при увеличении их суммарной плотности за счет убыли невозбужденных

анионов в кристаллической решетке. Функция $\alpha^j(\mathbf{r})$ в уравнениях (1) определяет относительный вклад экситонного и электронно-дырочного (плазменного) каналов генерации ЦО для импульса с номером j в каждой точке трехмерного пространства \mathbf{r} . Функция $\alpha^j(\mathbf{r})$ принимает значения от нуля до единицы. При $\alpha^j(\mathbf{r}) = 0$ в точке \mathbf{r} при воздействии импульса с номером j формируются ЦО только по электронно-дырочному каналу, а при максимальном значении $\alpha^j(\mathbf{r}) = 1$ — только по экситонному.

Введем относительную концентрацию ЦО $\hat{\rho}_c^j(\mathbf{r}) = \rho_c^j(\mathbf{r})/\rho_{c\ max}$, которая может принимать значения от нуля до единицы. Функция относительного вклада каналов $\alpha^j(\mathbf{r})$ в каждой точке пространства зависит от концентрации ЦО, наведенной предшествующими лазерными импульсами, таким образом, что чем больше концентрация ЦО, тем меньше $\alpha^j(\mathbf{r})$ и, соответственно, больше доля генерации электронов:

$$\alpha^j(\mathbf{r}) = 1 - \kappa \hat{\rho}_c^{j-1}(\mathbf{r}). \quad (2)$$

Параметр κ введен для возможности ограничить в модели долю электронов в общем количестве электронов и экситонов при предельной концентрации ЦО $\hat{\rho}_c\ max = 1$. Свободный параметр κ может принимать значения от нуля до единицы, и его величина подбирается для достижения наилучшего соответствия зависимости светосуммы свечения плазмы от числа импульсов, получаемой в модели, с экспериментально измеренной.

Перед прохождением первого импульса концентрация ЦО в LiF равна нулю: $\hat{\rho}_c^0(\mathbf{r}) = 0$. Тогда, согласно (2), функция вклада для первого импульса $\alpha^1(\mathbf{r}) = 1$, что соответствует чисто экситонному механизму формирования ЦО. С ростом концентрации ЦО в каждой точке пространства значения функции $\alpha^j(\mathbf{r})$ уменьшаются. При предельной концентрации ЦО $\hat{\rho}_c\ max = 1$ функция $\alpha^j(\mathbf{r})$ оказывается равной предельному значению $\alpha_{max} = 1 - \kappa$, при котором доля электронов в общем числе генерируемых электронов и экситонов равна κ . В модели мы полагаем $\kappa = 0.1$, так что при насыщении концентрации ЦО доля генерируемых электронов на порядок меньше общего числа электронных возбуждений. Физически это обосновано тем, что ЦО должны быть разделены областями регулярной кристаллической решетки для сохранения основных характеристик диэлектрика.

Приращение относительной концентрации ЦО,

$$\Delta \hat{\rho}_c^j(\mathbf{r}) = \hat{\rho}_c^j(\mathbf{r}) - \hat{\rho}_c^{j-1}(\mathbf{r})$$

после действия j -го импульса в условиях насыщения определяется уравнением

$$\Delta \widehat{\rho}_c^j(\mathbf{r}) = \delta \widehat{\rho}_c^j(\mathbf{r}) (1 - \widehat{\rho}_c^{j-1}(\mathbf{r})). \quad (3)$$

Здесь $\delta \widehat{\rho}_c^j(\mathbf{r})$ является приращением концентрации ЦО под действием одного импульса без учета эффекта насыщения. Согласно соотношению (3), рост концентрации ЦО замедляется при приближении к максимальному значению $\widehat{\rho}_{c \max} = 1$.

Приращение показателя преломления $\delta n_c^j(\mathbf{r})$, вызванное изменением концентрации ЦО $\delta \widehat{\rho}_c^j(\mathbf{r})$, пропорционально концентрации электронных возбуждений $\rho_e^j(\mathbf{r}) + \rho_{ex}^j(\mathbf{r})$, образованных j -м импульсом:

$$\delta n_c^j = h (\rho_e^j + \rho_{ex}^j). \quad (4)$$

Здесь h — коэффициент трансформации концентрации возбуждений электронной подсистемы в приращение показателя преломления при увеличении концентрации ЦО. Коэффициент h определяет скорость нарастания показателя преломления при воздействии одного импульса и не влияет качественно на динамическую картину процесса. В расчетах величина h выбрана так, чтобы пиковый прирост показателя преломления после действия первого импульса составлял 5% от предельной величины $\Delta n_{c \max}$, которая принята равной $\Delta n_{c \max} = 0.025$ [13].

Комплексная амплитуда $A^j(\mathbf{r}, \tau)$ j -го импульса в системе координат, бегущей с групповой скоростью, имеет следующий вид в приближении медленно меняющейся амплитуды при аномальной дисперсии групповой скорости:

$$2i \frac{\partial A^j}{\partial z} = \left[\frac{\Delta_{\perp}}{k_0} + k_2 \frac{\partial^2}{\partial \tau^2} + \frac{2k_0}{n_0} (n_2 I^j + \Delta n_p^j + \Delta n_c^{j-1}) - i \frac{U}{I^j} \frac{\partial (\rho_e^j + \rho_{ex}^j)}{\partial \tau} \right] A^j. \quad (5)$$

Концентрации свободных электронов ρ_e^j и экситонов ρ_{ex}^j в (5) являются функциями координат \mathbf{r} и бегущего времени τ , оператор Δ_{\perp} — лапласиан по поперечным координатам, $k_0 = \omega_0 n_0 / c$ — волновое число на центральной частоте ω_0 , соответствующей длине волны в вакууме 3100 нм, $n_2 = 8.1 \cdot 10^{-17}$ см²/Вт — коэффициент кубичной нелинейности, $k_2 = \left| \frac{\partial^2 k}{\partial \omega^2} \right|_{\omega=\omega_0} = 266$ фс²/мм — модуль коэффициента дисперсии групповой скорости, $I^j(\mathbf{r}, \tau) = \frac{1}{2} c n_0 \varepsilon_0 |A^j(\mathbf{r}, \tau)|^2$ — интенсивность

j -го импульса, ε_0 — диэлектрическая постоянная, $U = 12.8$ эВ $\approx U_{ex} \approx U_e$ — энергия поглощения. Уравнение (5) описывает дифракцию, дисперсию во втором приближении, керровскую и плазменную нелинейности для текущего импульса и потери (последнее слагаемое в квадратных скобках в (5)), связанные с образованием электронов и экситонов. Приращение показателя преломления $\Delta n_c^{j-1}(\mathbf{r})$ в (5) после воздействия предыдущих $j-1$ импульсов равно

$$\Delta n_c^{j-1} = \Delta n_c^{j-2} + \delta n_c^{j-1} \left(1 - \frac{\Delta n_c^{j-2}}{\Delta n_{c \max}} \right). \quad (6)$$

Изменение показателя преломления лазерной плазмы $\Delta n_p^j(\mathbf{r}, \tau)$, которое наводится во время воздействия j -го импульса, определяется концентрацией свободных электронов $\rho_e^j(\mathbf{r}, \tau)$:

$$\Delta n_p^j(\mathbf{r}, \tau) = - \frac{q_e^2 \rho_e^j(\mathbf{r}, \tau)}{2 n_0 \omega_0^2 m_e \varepsilon_0}, \quad (7)$$

где q_e и m_e — заряд и масса электрона. Заметим, что экситоны, в отличие от электронов, не влияют на показатель преломления диэлектрика.

Система уравнений (1)–(7) с заданным пространственно-временным профилем воздействующего излучения описывает процесс многоимпульсной филаментации в LiF, который происходит в условиях изменения показателя преломления, вызванного накоплением ЦО при динамической конкуренции экситонного и электронно-дырочного каналов генерации ЦО в процессе насыщения их концентрации. Начальная концентрация ЦО $\widehat{\rho}_c^0(\mathbf{r}) = 0$. Для моделирования серии импульсов система уравнений (1)–(7) решается итеративно, начиная с первого импульса. Перед действием каждого j -го импульса распределение показателя преломления $\Delta n_c^{j-1}(\mathbf{r})$ задается по результатам решения для предыдущего ($j-1$)-го импульса. Распределения электронов $\rho_e(\mathbf{r}, \tau)$ и экситонов $\rho_{ex}(\mathbf{r}, \tau)$ задаются нулевыми в начальный момент $\tau = 0$ перед действием каждого импульса, что соответствует полному распаду электронных возбуждений, наведенных предыдущим импульсом, за время между импульсами. Уравнения (1), (2) описывают нарастание концентраций $\rho_e(\mathbf{r}, \tau)$ и $\rho_{ex}(\mathbf{r}, \tau)$ во время прохождения каждого импульса. Совместно с (1), (2) решаются уравнения (5)–(7) для определения трансформации пространственно-временного распределения амплитуды $A^j(\mathbf{r}, \tau)$ импульса по мере его распространения. После завершения моделирования распространения каждого импульса при помощи уравнений (3), (4) определяется новое

распределение концентрации ЦО $\hat{\rho}_c^j(\mathbf{r})$ и показателя преломления $\Delta n_c^j(\mathbf{r})$, исходя из наведенных распределений электронов и экситонов.

Распределения показателя преломления $\Delta n_c^{j-1}(\mathbf{r})$ и ЦО $\hat{\rho}_c^{j-1}(\mathbf{r})$, наведенные предыдущими $j - 1$ импульсами, создают условия для прохождения j -го импульса, отличные от условий для других импульсов. Поэтому каждый импульс распространяется уникальным образом. Различия в распределениях ЦО перед прохождением различных импульсов приводят к различному приращению концентрации электронов и экситонов в пространстве при воздействии импульсов в соответствии с уравнениями (1)–(7). Таким образом, в развиваемой модели среда обладает памятью наведенных изменений показателя преломления, вызванных аккумулярованием ЦО. При этом память среды такова, что с увеличением плотности ЦО приращение электронов при воздействии импульса снижается.

4. ЧИСЛЕННОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ ЭКСИТОННОГО И ЭЛЕКТРОННО-ДЫРОЧНОГО КАНАЛОВ ГЕНЕРАЦИИ ЦО ПРИ ФИЛАМЕНТАЦИИ ФЕМТОСЕКУНДНОГО ИМПУЛЬСА В LiF

Численное решение системы уравнений (1)–(7) проводилось в осесимметричной цилиндрической системе координат $\mathbf{r} = (r, z)$, в которой ось z совмещена с осью пучка, а координата r представляет расстояние от оси z . Воздействующее излучение задавалось в виде гауссова волнового пакета:

$$A^j(r, z = 0, \tau) = A_0 \exp\left(-\frac{r^2}{2r_0^2} - \frac{\tau^2}{2\tau_0^2}\right), \quad (8)$$

где A_0 — начальная пиковая амплитуда светового поля, r_0 и τ_0 — начальные радиус и длительность импульса, определяемые по уровню $1/e$. Данные параметры задавались в соответствии с энергией и длительностью реальных импульсов, а также шириной пучка вблизи фокуса линзы: $r_0 = 72$ мкм, $\tau_0 = 75$ фс, энергия импульса составляла 30 мкДж, что соответствовало превышению критической мощности стационарной самофокусировки в 1.7 раз. Число импульсов $j = 1, \dots, 1024$.

Для апробации построенной модели на экспериментально зарегистрированной зависимости люминесценции лазерной плазмы от числа импульсов вычислено изменение количества электронов с увеличением числа воздействующих импульсов (рис. 2).

Видно, что рост количества плазмы в филаменте замедляется при большом числе импульсов, подоб-

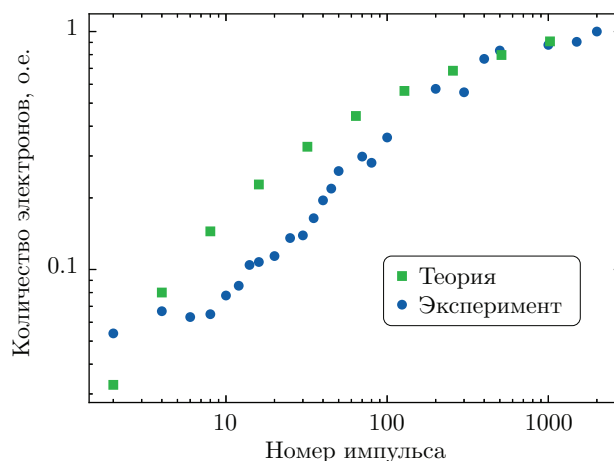


Рис. 2. (В цвете онлайн) Зависимости от номера импульса количества электронов в лазерной плазме, рассчитанного по модели (квадраты), и измеренной светосуммы (точки) при многоимпульсной филаментации в LiF излучения на длине волны 3100 нм, с длительностью импульсов 120 фс, энергией 30 мкДж и начальным радиусом 60 мкм

но тому, как это наблюдается в эксперименте. Рассчитанная по модели и измеренная в эксперименте (рис. 2) зависимости количества электронов имеют заметное различие лишь при малом числе импульсов. Такое расхождение связано, видимо, с конечным временем образования наблюдаемых ЦО F_2 и F_3^+ при распаде электронных возбуждений. Процесс формирования равновесной концентрации стабильных ЦО после создания первичных электронных возбуждений завершается за большее время, чем интервалы между отдельными импульсами при облучении в эксперименте. В модели предполагается, что все ЦО, появляющиеся в результате действия импульса, успевают формироваться за малый временной интервал до следующего импульса.

Динамическую конкуренцию экситонного и электронно-дырочного каналов в процессе накопления ЦО в LiF при многоимпульсной филаментации иллюстрирует трансформация в плоскости (r, z) пространственного распределения относительной концентрации ЦО $\hat{\rho}_c^j(r, z)$ и связанной с ней функции вклада каналов $\alpha^j(r, z)$ для импульсов с номерами $j = 1, 32, 512, 1024$ (рис. 3). С увеличением числа импульсов возрастают протяженность и ширина области наведенных ЦО $\hat{\rho}_c^j(r, z)$ и функции $\alpha^j(r, z)$. При большом числе импульсов ($j = 1024$) появляется насыщение ЦО, в которой относительная их концентрация максимальна, $\hat{\rho}_c^j(r, z) = 1$, а функция $\alpha^j(r, z) = 0.9$.

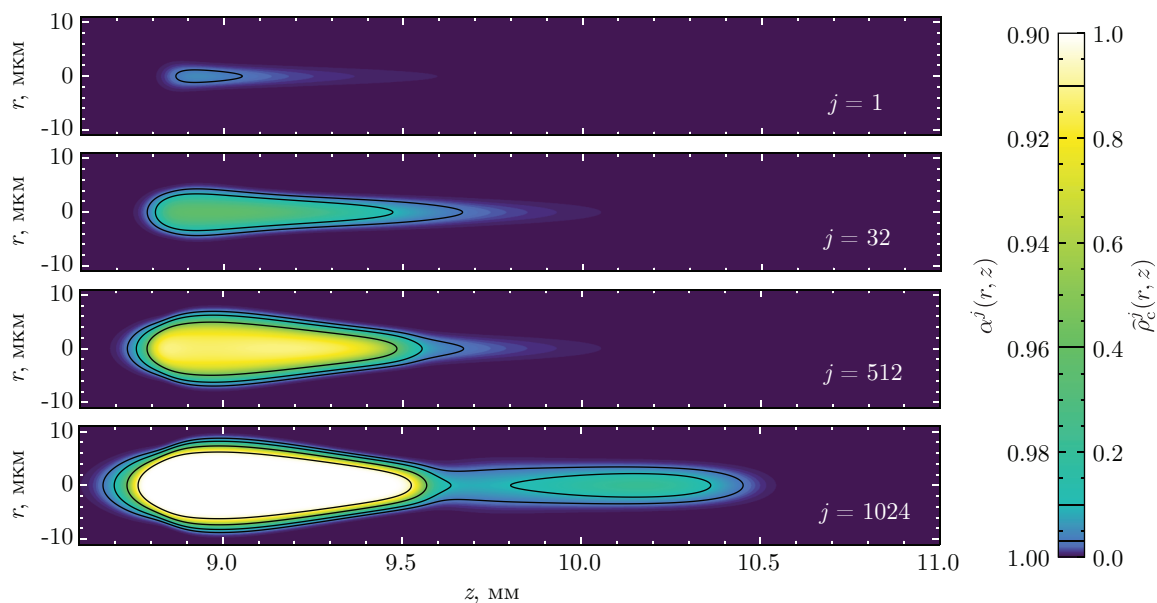


Рис. 3. (В цвете онлайн) Рассчитанные распределения относительной концентрации ЦО $\hat{\rho}_c^j(r, z)$ и функция относительного вклада каналов $\alpha_c^j(r, z)$ в плоскости (r, z) для импульсов с различными номерами: $j = 1, 32, 512, 1024$. Изолинии показаны для значений $\hat{\rho}_c = 0.03, 0.1, 0.4$ и 0.9

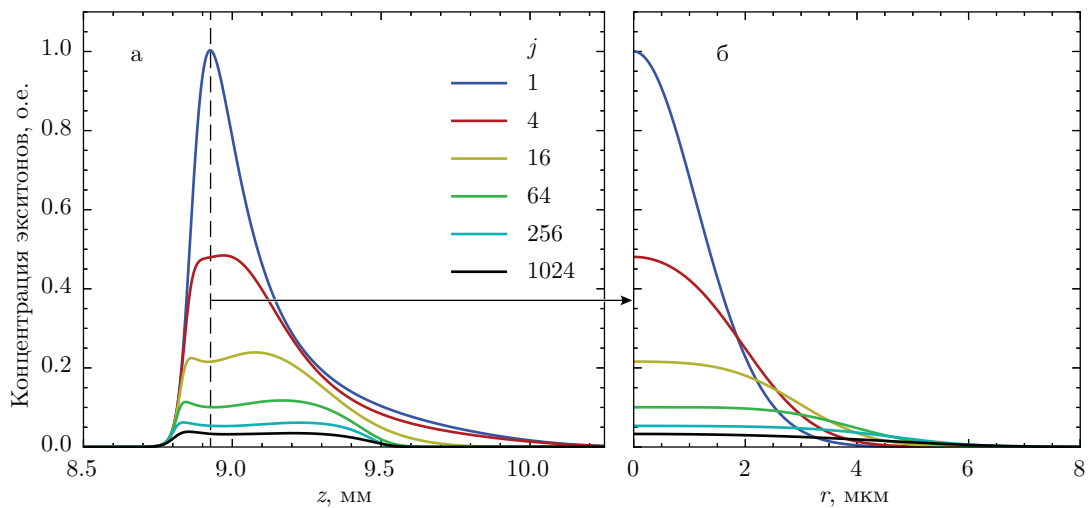


Рис. 4. (В цвете онлайн) Распределения в LiF относительной концентрации экситонов $\rho_{ex}^j(r = 0, z)/\rho_{ex\ max}$ на оси (а) и в поперечном сечении $\rho_{ex}^j(r, z^*)/\rho_{ex\ max}$ (б) филамента после воздействия j -го импульса. Положение поперечного сечения при $z^* = 8.93$ мм показано вертикальной штриховой линией на рис. а

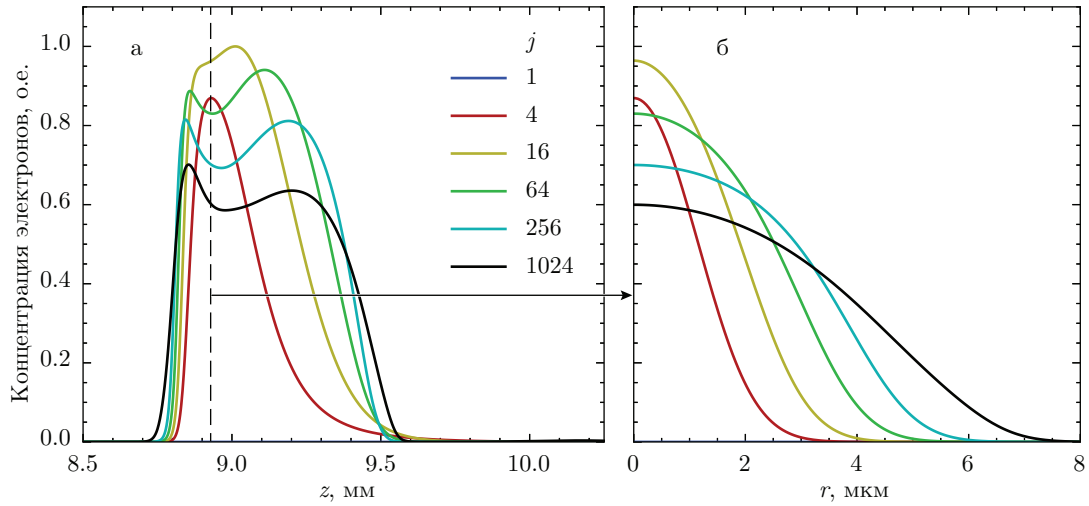


Рис. 5. (В цвете онлайн) Распределения в LiF относительной концентрации электронов $\rho_e^j(r = 0, z)/\rho_{e\max}$ на оси (а) и в поперечном сечении $\rho_e^j(r, z^*)/\rho_{e\max}$ (б) филамента после воздействия j -го импульса. Положение поперечного сечения при $z^* = 8.93$ мм показано вертикальной штриховой линией на рис. а

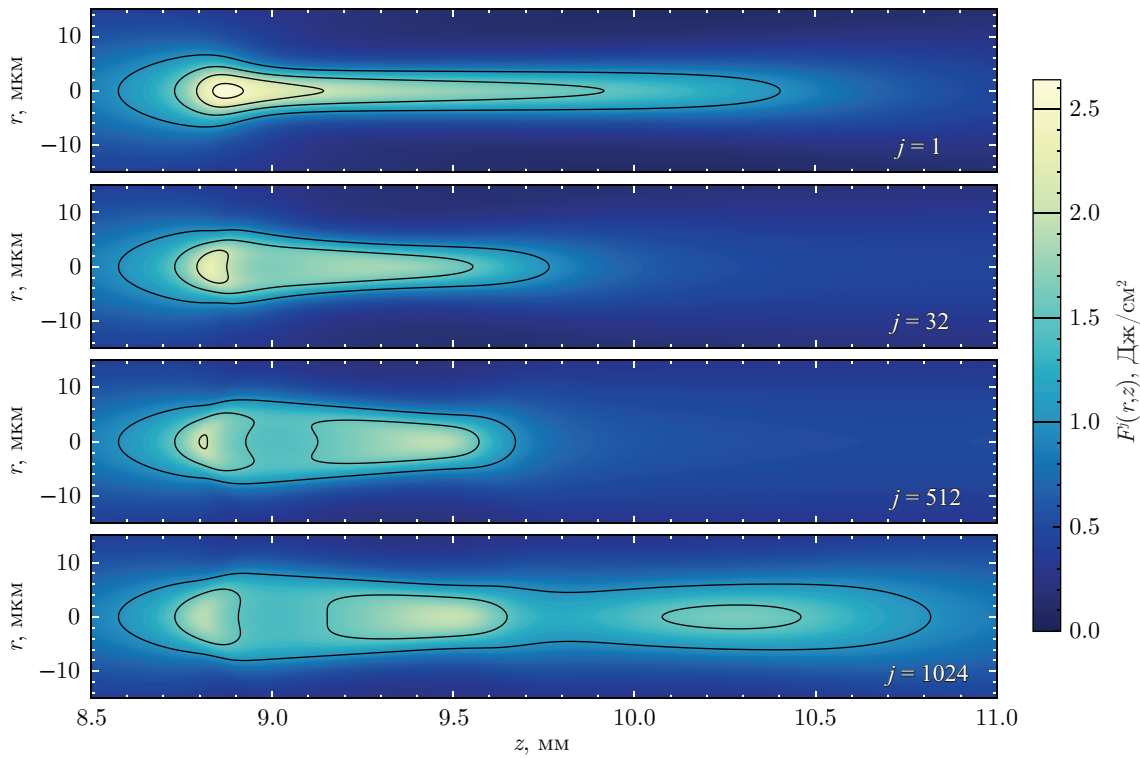


Рис. 6. (В цвете онлайн) Рассчитанные распределения флюенса $F^j(r, z)$ в плоскости (r, z) для импульсов с различными номерами: $j = 1, 32, 512, 1024$. Изолинии показаны для значений флюенса 1, 1.5, 2 и 2.5 $\text{Дж}/\text{см}^2$

С увеличением числа импульсов концентрация ЦО $\hat{\rho}_c^j(r, z)$ возрастает, а функция $\alpha^j(r, z)$, согласно (1), уменьшается, что приводит к снижению скорости генерации экситонов и повышению скорости генерации электронов (рис. 4, 5). Относительная концентрация экситонов $\rho_{ex}^j(r=0, z)/\rho_{ex\ max}$, которые генерируются отдельным j -м импульсом, монотонно снижается с увеличением его номера j (рис. 4а). Уширение области генерации экситонов в плоскости поперечного сечения $\rho_{ex}^j(r, z^*)/\rho_{ex\ max}$, представленное на характерном расстоянии $z^* = 8.93$ мм, связано с увеличением радиуса лазерного пучка из-за плазменной дефокусировки при распространении в LiF. Об увеличении радиуса пучка можно судить по изменению распределений поверхностной плотности энергии (флюенса) $F^j(r, z) = \int I^j(r, z, \tau) d\tau$ в плоскости (r, z) с увеличением номера импульса (рис. 6). Видно, что пиковое значение в распределении флюенса после первого импульса, $F^1(r, z)$, заметно больше, чем при многоимпульсном воздействии. Это объясняется отсутствием плазмы при филаментации первого импульса, интенсивность в котором ограничивается не дефокусировкой в плазме, а потерями при возбуждении экситонов. С увеличением числа импульсов относительная концентрация электронов $\rho_e^j(r=0, z)/\rho_{e\ max}$ в филаменте увеличивается (рис. 5а) и дефокусировка в плазме возрастает, что проявляется в снижении пикового флюенса (рис. 6). Если при $j = 1$ максимум флюенса $\max\{F^1(r, z)\} = 2.63$ Дж/см², то при $j = 512$ максимальная величина $\max\{F^{512}(r, z)\}$ снижается до 2.02 Дж/см².

Вследствие проявления плазменной дефокусировки и эффекта рефокусировки импульса в ходе многоимпульсного облучения концентрация электронов на оси меняется немонотонно с расстоянием (рис. 5а), в распределении флюенса $F^j(r, z)$ формируются максимумы вдоль филамента, его протяженность возрастает (рис. 6). Радиальное распределение концентрации электронов $\rho_e^j(r, z^*)/\rho_{e\ max}$ на характерном расстоянии $z^* = 8.93$ мм монотонно уширяется с увеличением числа импульсов (рис. 5б). Это объясняется тем, что на периферии пучка (4...6 мм), дефокусированного в лазерной плазме, концентрация экситонов мала и преобладает генерация электронов.

5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В проведенном исследовании установлено, что при многоимпульсной филаментации в кристалле

LiF фемтосекундного лазерного излучения среднего ИК-диапазона происходит нарастание количества генерируемой в филаменте плазмы с увеличением номера импульса. Это связано с накоплением концентрации ЦО под действием лазерного излучения. Для теоретического описания результатов эксперимента разработана модель филаментации фемтосекундного импульса с образованием центров окраски в LiF, описывающая конкуренцию экситонного и электронно-дырочного каналов генерации ЦО, при которой вклад электронно-дырочного канала увеличивается по мере увеличения концентрации ЦО. В развиваемой модели среда обладает «памятью» введенных ЦО, возрастание плотности которых при увеличении числа воздействующих импульсов приводит к повышению скорости генерации электронов и изменению показателя преломления в LiF. Нарастание концентрации плазмы с увеличением числа импульсов вызывает возрастание плазменной дефокусировки и появление эффекта рефокусировки излучения. Формирование количества плазмы с увеличением числа импульсов, рассчитанное на основе построенной модели, согласуется результатами эксперимента.

Финансирование. Эксперименты выполнены на уникальной научной установке «Многоцелевой фемтосекундный лазерно-диагностический спектроскопический комплекс» Института спектроскопии РАН за счет гранта Российского научного фонда (проект №18-12-00422). Один из авторов (А.В.К.) благодарен проекту 0243-2021-0004 в рамках плана фундаментальных исследований Российской академии наук на период до 2025 г.

ЛИТЕРАТУРА

1. Е. Ф. Мартынович, *Центры окраски в лазерных кристаллах*, ИГУ, Иркутск (2004).
2. Si Gao, Yan-Zhao Duan, Zhen-Nan Tian et al., *Optics & Laser Tech.* **146**, 107527 (2022).
3. G. Baldacchini, *J. Lumin.* **333**, 107527 (2022).
4. A. Lushchik, M. Kirm, Ch. Lushchik et al., *Nucl. Instrum. Meth. B* **166**, 529 (2000).
5. E. F. Martynovich, V. P. Dresvyansky, A. L. Rakevich et al., *Appl. Phys. Lett.* **114**, 121901 (2019).
6. А. В. Кузнецов, Е. Ф. Мартынович, *Изв. вузов. Физика* **52**, 180 (2009).
7. Е. Ф. Мартынович, А. В. Кузнецов, А. В. Кирпичников и др., *КЭ* **43**, 463 (2013).

8. С. В. Чекалин, В. О. Компанец, *Опт. и спектр.* **127**, 94 (2019).
9. С. В. Чекалин, В. О. Компанец, А. Е. Дормидонов и др., *УФН* **189**, 299 (2019).
10. А. В. Кузнецов, В. О. Компанец, А. Е. Дормидонов и др., *КЭ* **46**, 379 (2016).
11. S. V. Chekalin, V. O. Kompanets, A. V. Kuznetsov et al., *Laser Phys. Lett.* **13**, 065401 (2016).
12. E. Zaloznaya, V. Kompanets, A. Savvin et al., *Laser Phys. Lett.* **19**, 075402 (2022).
13. А. В. Кузнецов, А. Е. Дормидонов, В. О. Компанец и др., *КЭ* **51**, 670 (2021).
14. Л. В. Келдыш, *ЖЭТФ* **47**, 1945 (1964).