Analysis and Optimization of Ultrafast Laser-Induced Bulk Modifications in Dielectric Materials

A thesis presented by

Alexandre Mermillod-Blondin

to the Université Jean Monnet, Saint-Etienne, France
and the Freie Universität Berlin, Germany

In partial fulfillment of the requirements for the degree of Dr. Rer. Nat.
in the subject of Experimental Physics

Work realized at the Max-Born-Institut, Berlin
and
Laboratoire Hubert Curien, Saint-Etienne
April 2007

Date of disputation: 30-05-2007

Gutachter:

Prof. I. V. Hertel (Freie Universität, Fachbereich Physik, Berlin)

Prof. E. Audouard (Université Jean Monnet, Saint-Etienne)

A Esther, Joël et Adeline

Abstract

In the recent years ultrafast laser technology has become a powerful tool for three-dimensional structuring of optical materials with the purpose of adding to the material functionalities in optics and photonics.

By focusing an ultrashort pulse of light in the volume of a transparent dielectric, free carrier generation takes place via nonlinear ionization. A substantial part of the laser energy is deposited into the free carrier gas, transferred into the bulk, and a material with new optical properties emerges upon energy relaxation.

Phase contrast (PCM) and optical transmission microscopy (OTM) techniques are employed to characterize the morphology of the laser-induced refractive index change in the bulk of amorphous silica (a-SiO_2) and BK7. The PCM observations are correlated with a theoretical estimation of the energy deposited in the vicinity of the focal plane based on the resolution of the nonlinear Schrödinger equation. In a-SiO_2, the formation of a void is connected with the appearance of a high energy exposure upon nonlinear propagation.

A time-resolved study of the laser-generated refractive index modifications with sub-picosecond and sub-micrometer resolution is performed. PCM and OTM images are recorded at different times after excitation, covering a time span from approximatively 100 fs up to 10 ns. This analysis points out the importance of the thermal mechanisms and of the subsequent thermomechanical transformations in laser modification of bulk dielectrics.

By using an adaptive pulse shaping apparatus, we demonstrate that an optimal command of the energy deposition into the volume of the material can be obtained, even in presence of spherical aberrations. Furthermore, optical structures that do not normally appear in standard ultrafast irradiation conditions can be generated. In particular, we report the onset of large positive refractive index regions in BK7.

Finally, the flexibility offered by temporal pulse manipulation is exploited for microprocessing purposes. We demonstrate writing of embedded waveguiding structures at optical frequencies in the bulk of BK7.

Zusammenfassung

In den letzten Jahren hat sich die Technologie der ultrakurzen Laserpulse zu einem leistungsstarken Werkzeug entwickelt, das eine dreidimensionale Bearbeitung ermöglicht und es zudem gestattet, Materialen im Bereich der Optik und Photonik gezielt zu modifizieren und zu funktionalisieren.

Bei der Fokussierung eines ultrakurzen Laserpulses in das Volumen eines transparenten Mediums können aufgrund der hohen verfügbaren Intensitäten im Material Elektronen durch nichtlineare Wechselwirkungen in dessen Leitungsband angeregt werden. Ein signifikanter Anteil der verfügbaren Laserpuls-Energie kann zusätzlich durch diese bereits erzeugten quasifreien Ladungsträger absorbiert werden ("free-carrier absorption"). Infolge des darauffolgenden Transfers der Energie des angeregten Elektronensystems auf das Gitter des Festkörpers kann somit ein Material mit neuen optischen Eigenschaften entstehen.

Zur Visualisierung wurden die Techniken der optischen Phasenkontrast- (PKM) und Transmissions-Mikroskopie (OTM) eingesetzt. Dadurch können laser-induzierte permanente Veränderungen der optischen Eigenschaften im Volumen von synthetischem Quarzglas (a-SiO2) und dem technologisch relevanten Multikomponentenglas BK7 erfasst werden. Die PKM Ergebnisse werden mit den Resultaten eines auf der numerischen Lösung der nichtlinearen Schrödingergleichung basierenden theoretischen Modells korreliert, welches es erlaubt, die räumliche Verteilung der deponierten Laserpuls-Energie in der Nähe des Fokus zu berechnen. In a-SiO2 kann mit Hilfe dieses Modells aufgezeigt werden, dass für die Bildung von laser-induzierten Hohlräumen ("voids") nichtlineare Propagationseffekte maßgebend werden.

Darüber hinaus wurden im Rahmen dieser Arbeit zeitaufgelöste Techniken der PKM und OTM entwickelt und charakterisiert, welche es gestatten, die Dynamik derartiger laser-induzierter Änderungen der optischen Eigenschaften (komplexer Brechungsindex) im Volumen von transparenten Materialien mit sub-μm räumlicher und sub-ps zeitlicher Auflösung bis in den ns-Bereich zu verfolgen. Diese Untersuchungen unterstreichen die Bedeutung von thermischen Mechanismen und den darauffolgenden thermomechanischen Prozessen bei der Laser-Modifikation im Volumen von Dielektrika.

Durch Verwendung von adaptiven Techniken der zeitlichen Pulsformung wird gezeigt, dass sogar in Anwesenheit von sphärischen Aberrationen eine optimale zeitliche Sequenz der Deponierung optischer Energie im Materialvolumen gefunden werden kann. Diese Sequenz gestattet es, Materialveränderungen zu realisieren, die sich unter den herkömmlichen Bestrahlungsbedingungen nicht erzeugen lassen. Zum Beispiel können in BK7 auf diese Weise stark positive Brechzahländerungen erzeugt werden, im Gegensatz zu den üblicherweise beobachteten negativen Brechzahländerungen.

Zusätzlich wird durch die zeitliche Pulsmanipulation die Flexibilität und Effizienz für Mikrobearbeitungszwecke erhöht. Damit wird erstmalig das Schreiben von eingebetteten Wellenleiterstrukturen für den optischen Frequenzbereich in BK7 demonstriert.

Résumé

Au cours des dernières années, les lasers à impulsions ultrabrèves se sont imposés comme des outils incontournables pour la micro structuration tri dimensionelle et la fonctionalisation de matériaux pour des applications dans le domaine de l'optique et de la photonique.

En focalisant une impulsion lumineuse ultra brève dans la masse d'un matériau diéléctrique transparent, un mécanisme d'ionization non-linéaire peut conduire à la création de porteurs libres. L'énergie lumineuse peut alors être efficacement déposée. Après relaxation de l'énergie, un matériau avec de nouvelles propriétés optiques peut être obtenu.

Afin de caractériser les propriétés optiques de ce matériau transformé ainsi que la morphologie de la zone altérée, nous utilisons la microscopie à contraste de phase ainsi que la microscopie optique classique. Les échantillons étudiés sont principalement deux types de verres, la silice pure et le N-BK7.

Nous proposons de corréler les observations réalisées en microscopie à contraste de phase avec une estimation théorique de la densité d'énergie déposée obtenue en résolvant l'équation de Schrödinger non-linéaire. Dans la silice pure, l'apparition d'une micro cavité est ainsi associée à une région de forte exposition à l'énergie lumineuse.

Une étude basée sur un dispositif de microscopie de phase et de microscopie classique caractérisé par une résolution spatiale submicrométrique et une résolution temporelle subpicoseconde est également présentée. Une échelle de temps de la centaine de femtoseconde après excitation jusqu'à une dizaine de nanosecondes est ainsi explorée. Cette analyse révèle l'importance des phénomènes thermiques et des effets thermomécaniques.

En utilisant un dispositif d'optimisation de la forme temporelle de l'impulsion, nous démontrons la possibilité de contrôler le dépôt d'énergie dans la masse du matériau, y compris en présence d'aberrations sphériques. Il est ainsi possible de conduire le matériau de manière permanente dans des états inaccessibles lorsqu'on se limite à une irradiation ultra brève classique. En particulier, nous montrons l'existence de régions de densités élevées dans le BK7 après irradiation.

Enfin, la souplesse offerte par la mise en forme temporelle est employée afin de réaliser l'écriture de guides d'ondes enterrés dans le BK7.

Contents

List of Figures

List of Tables