

УТОЧНЁННАЯ МОДЕЛЬ ДИСПЕРСИИ ДЛЯ КВАРЦЕВОГО СТЕКЛА

Козлова Е.С., Котляр В.В.

Институт систем обработки изображений РАН

Аннотация

Найдены параметры (резонансные длины волн, амплитуды и коэффициенты демпфирования) модели Селлмейера для более точного согласования (среднеквадратическое отклонение 6%) модельных кривых показателей преломления и поглощения с облаком экспериментальных значений дисперсионных кривых кварцевого стекла в диапазоне от 20 нм до 100 мкм. Сравнение результатов моделирования распространения Гауссова (по пространству и по времени) импульса длительностью 3,35 фс и длиной волны 532 нм в планарных волноводах из кварцевого стекла, дисперсия которых описывалась стандартной и уточнённой моделями Селлмейера, показало существенное влияние дисперсии на распространение импульса: в 10 раз большее поглощение и замедление на 0,35 мкм за 7 мкм.

Ключевые слова: кварцевое стекло, модель дисперсии, диэлектрическая проницаемость, коэффициент преломления, коэффициент поглощения, ультракороткий импульс.

Введение

Кристаллический кварц и кварцевое стекло не что иное, как различные формы диоксида кремния (SiO_2). Кварцевое стекло обладает рядом замечательных свойств. Одним из них является устойчивость к резкому перепаду температур. Данный факт объясняется тем, что в кварцевом стекле оксид кремния находится в аморфной форме. Кварцевое стекло имеет очень низкий коэффициент температурного расширения (примерно в 20 раз меньше по сравнению с обычным стеклом) и теплопроводности. В кварцевом стекле содержится очень небольшое количество примесей других химических элементов, а его основу составляет оксид кремния. Поэтому кварцевое стекло обладает очень широким спектром пропускания, малым поглощением света, высокой оптической однородностью, стойкостью к ионизирующим излучениям и лазерному излучению высокой интенсивности, высокой рабочей температурой (более 1200 °C, что в 4 раза больше, чем для обычного стекла) и т.д. Все эти свойства обуславливают широкое применение кварцевого стекла в оптических науках и промышленности [1–3].

Диоксид кремния имеет различные формы, включая три основные кристаллические разновидности: кварц, тридимит и кристобалит [4, 5]. Кремнезём может также существовать в некристаллической форме в виде кварцевого стекла [4], также он упоминается как аморфный кремнезём и стекловидный кремнезём [6, 7]. Есть четыре основных типа промышленных стёкол кремнезёма. Тип I получается электрической плавкой природного кристалла кварца в вакууме или в атмосфере инертного газа при низком давлении. Тип II производится из кварцевого порошка с помощью газопламенного способа. Тип III является синтетическим и получается путём гидролиза SiCl_4 при распылении в кислородно-водородном пламени. Тип IV также синтетический и изготовлен из SiCl_4 в паровой плазме, свободной от воды [8, 9].

Каждый тип кварцевого стекла имеет свой собственный уровень примесей и оптических свойств. Например, тип I, как правило, содержит металлические примеси [6, 7]. При этом типы III и IV намного чище,

чем тип I, и лучше пропускают в ультрафиолетовом диапазоне частот [6, 7]. Тем не менее тип III имеет более высокое содержание воды, что приводит к высокому поглощению в инфракрасном диапазоне [6, 7, 10]. Тип IV аналогичен типу III, но содержит меньшее количество воды и, следовательно, лучше пропускает в инфракрасном диапазоне [10].

Уточнению коэффициентов преломления и поглощения посвящено множество работ [11–14]. Из результатов экспериментального анализа оптических свойств кварцевого стекла следует, что общепринятая (трёхпараметрическая) модель Селлмейера применима в диапазоне от 0,21 мкм до 7 мкм [15]. При анализе процессов распространения ультракоротких импульсов, длительностью менее 3,5 фс необходимо использовать модель, учитывающую все особенности диэлектрической проницаемости кварцевого стекла. В работе [3] проведён анализ и обобщение большого числа экспериментальных данных, полученных в ходе экспериментов по измерению коэффициентов преломления и поглощения кварцевого стекла, в результате чего были построены экспериментальные дисперсионные «кривые» (облако экспериментальных значений для коэффициентов преломления и поглощения) для кварцевого стекла. Также в работе [3] была предложена модель дисперсии для кварцевого стекла, однако область её применимости охватывает диапазон от 7 мкм до 50 мкм.

В данной работе найдены параметры (резонансные длины волн, амплитуды и коэффициенты демпфирования) модели Селлмейера для более точного согласования (среднеквадратическое отклонение 6%) модельных кривых показателей преломления и поглощения с облаком экспериментальных значений дисперсионных кривых кварцевого стекла, приведённых в [3]. Сравнение результатов моделирования распространения Гауссова (по пространству и по времени) импульса длительностью 3,35 фс и длиной волны 532 нм в волноводах из кварцевого стекла, дисперсия которых описывалась стандартной и уточнённой моделями Селлмейера, показало существенное влияние дисперсии на процесс распространения импульса: высокое поглощение (в 10 раз больше) и замедление

(на 0,35 мкм). Уточнённая модель дисперсии приводит к тому, что фемтосекундный импульс в кварце теряет 90% своей энергии на расстоянии 7 мкм.

1. Модели дисперсии кварцевого стекла

Известно, что от диэлектрической проницаемости возможно перейти к коэффициенту преломления [3]:

$$n(x, z, \omega) = n_{re}(x, z, \omega) + i n_{im}(x, z, \omega) = \sqrt{\tilde{\epsilon}(x, z, \omega)}, \tag{1}$$

где $n(x, z, \omega)$ – комплексный показатель преломления; $n_{re}(x, z, \omega)$ – показатель преломления; $n_{im}(x, z, \omega)$ – коэффициент поглощения, i – мнимая единица.

Для учёта зависимости диэлектрической проницаемости кварцевого стекла от частоты излучения используют модель Селлмейера [15]:

$$\tilde{\epsilon}(x, z, \lambda) = \epsilon_{\infty}(x, z) + \sum_m \frac{\Delta\epsilon_m(x, z)\lambda^2}{\lambda^2 - \lambda_m^2(x, z) - i\lambda\eta_m(x, z)}, \tag{2}$$

где λ – длина волны; $\epsilon_{\infty}(x, z)$ – диэлектрическая проницаемость на высоких частотах; $\Delta\epsilon_m(x, z)$ – величина резонанса; $\lambda_m(x, z)$ – резонансная длина волны; $\eta_m(x, z)$ – коэффициент демпфирования.

Параметры модели Селлмейера для кварцевого стекла представлены в табл. 1 [15].

Таблица 1. Параметры модели Селлмейера для кварцевого стекла

m	$\Delta\epsilon_m$, МКМ	λ_m , МКМ	η_m , МКМ
1	0,69616630	0,068404300	0
2	0,40794260	0,11624140	0
3	0,89747940	9,8961610	0
$\epsilon_{\infty} = 1$			

Формула Селлмейера (2) (с коэффициентами из табл. 1) не только даёт показатель преломления, но и учитывает поглощение на участках, близких к резонансам. Однако в ней только три резонансных слагаемых и отсутствует коэффициент демпфирования, который помогает регулировать величину всплесков вблизи резонансных длин волн. На рис. 1 приведены графики коэффициентов преломления и поглощения, полученных из диэлектрической проницаемости, рассчитанной по формуле (2) с использованием коэффициентов из табл. 1.

Из графиков видно, что оба коэффициента обладают существенными скачками в области трёх резонансов: коэффициент поглощения резко возрастает слева от резонанса, коэффициент преломления падает слева и возрастает справа от резонанса. Однако в работах [3] отмечено, что параметры из табл. 1 применимы только для излучения, находящегося в спектральном диапазоне от 0,21 мкм до 7 мкм. Но для фемтосекундных импульсов длительностью менее 10 фс ширина спектра больше указанного диапазона, и поэтому требуется уточнение модели дисперсии. Для более точного описания экспериментальных дисперсионных кривых [3] для коэффициентов прелом-

ления и поглощения в модели Селлмейера (2) были подобраны новые коэффициенты (см. табл. 2).

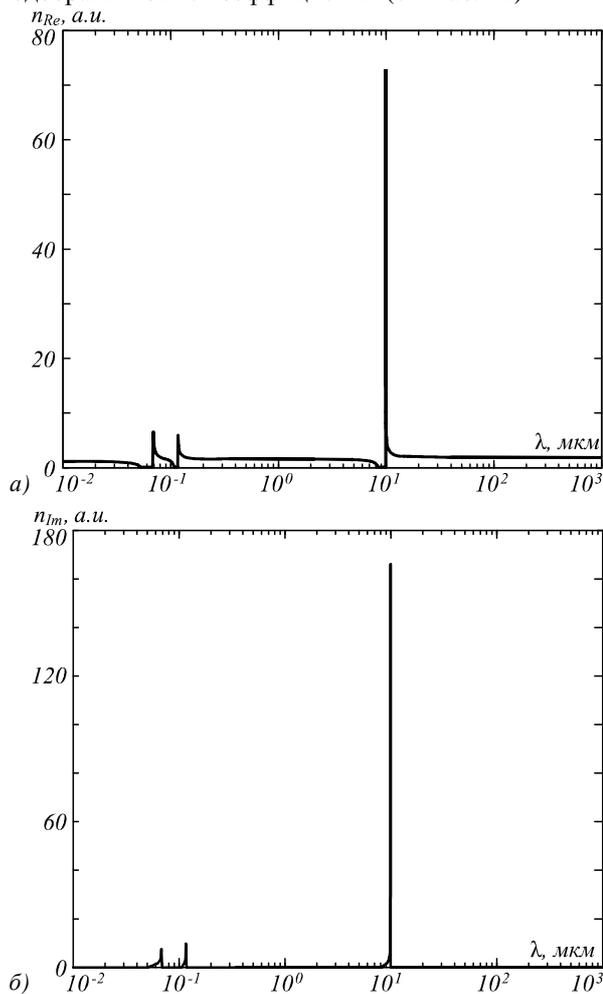


Рис. 1. Зависимость показатель преломления (а) и коэффициента поглощения (б) от длины волны для параметров в табл. 1

На рис. 2 представлены коэффициенты преломления и поглощения, полученные с помощью формулы (2) и коэффициентов из табл. 2. Заметим, что в табл. 2 в сравнении с табл. 1, все коэффициенты отличны от нуля.

Таблица 2. Новые параметры модели Селлмейера для кварцевого стекла

m	$\Delta\epsilon_m$, МКМ	λ_m , МКМ	η_m , МКМ
1	0,60616630	0,067404300	0,028
2	0,16	0,0983	0,017
3	0,440794260	0,11624140	0,01
4	0,59747940	9,04616108	0,35
5	0,00520045	12,6739082	0,05
6	0,75	22,1243678	1,8
$\epsilon_{\infty} = 1$			

Табл. 2 учитывает шесть резонансов дисперсионной кривой для кварца, и график на рис. 2 более точно отражает экспериментальные данные [3]. Среднеквадратическое отклонение построенных модельных кривых от облака экспериментальных данных составляет около 6%, в то время как среднеквадратическое отклонение для классической модели Селлмейера составляет 37%.

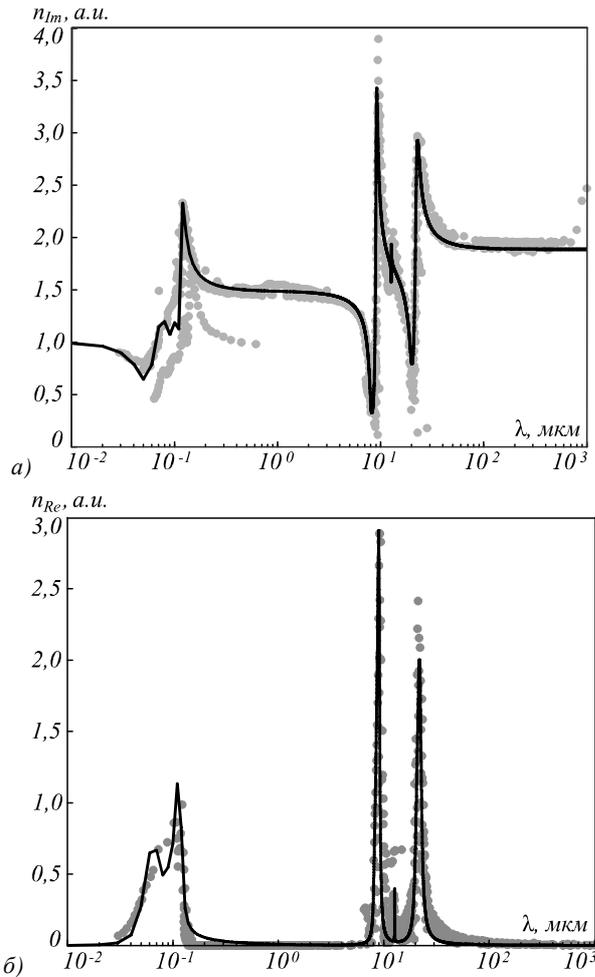


Рис. 2. Зависимость показателя преломления (а) и коэффициента поглощения (б) от длины волны для уточнённой модели Селлмейера (табл. 2) и «облако экспериментальных данных»

2. Влияние модели дисперсии на процесс распространения ультракороткого импульса

Определим влияние уточнённой модели дисперсии на распространение ультракороткого импульса. Для этого промоделируем распространение Гауссова импульса в планарном волноводе из кварцевого стекла шириной l_x и длиной l_z , дисперсия которого описывается моделью Селлмейера (2), используя сначала параметры из табл. 1, а потом из табл. 2. Начальный импульс зададим следующего вида:

$$\psi(x, t) = \exp\left(-\frac{x^2}{a^2}\right) \cdot \exp\left(-\left[\frac{t}{t_s} - t_d\right]^2\right) \sin(\omega_0 t), \quad (3)$$

где $a = w/2$; w – ширина волновода; t_s – время импульса по полуспаду интенсивности; t_d – время задержки; $\omega_0 = 2\pi c/\lambda_0$ – несущая частота; c – скорость света в вакууме; λ_0 – несущая длина волны.

Зададим параметры входного излучения для моделирования: $w = 1$ мкм, $t_d = 6,67$ фс; $t_s = 1,17$ фс, $\lambda_0 = 0,532$ мкм. На рис. 3 представлен начальный импульс и его спектр.

Моделирование проводилось с помощью пакета FullWave. Для моделирования были выбраны следующие параметры: $l_x = 1$ мкм, $l_z = 15$ мкм, $T = 100,1$ фс (время моделирования), $h_x = \lambda_0/266$ мкм, $h_z = \lambda_0/354$ мкм, $h_t = \lambda_0/886$ (шаги дискретизации) [16, 17]. На рис. 4 приведена зависимость интенсивности импульса от времени в точках $(x, z) = (0, 3)$ мкм и $(x, z) = (0, 7)$ мкм, полученная после распространения ультракороткого импульса вида (3) длительностью 3,35 фс внутри волновода из кварцевого стекла. Ошибка в расчётах составила $0,004\lambda_0$.

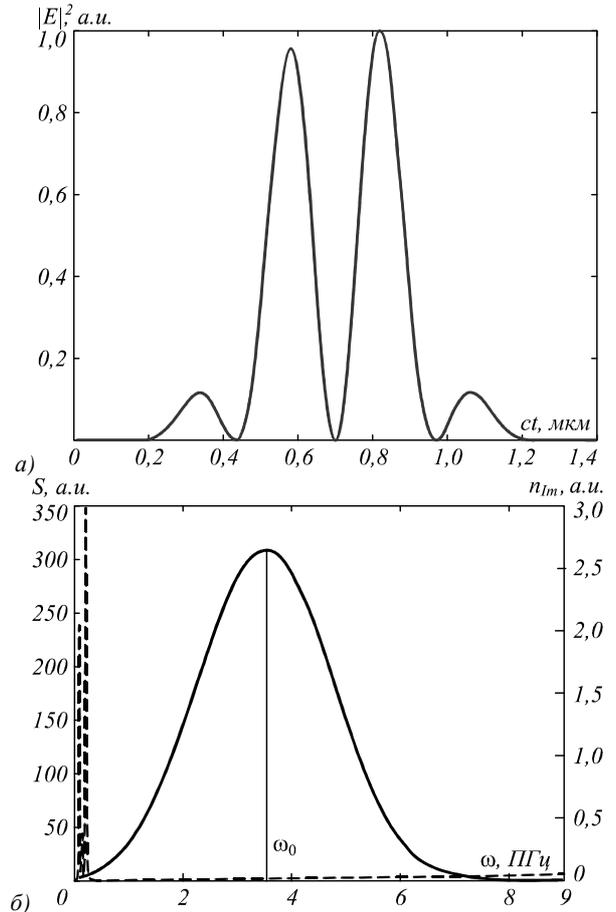


Рис. 3. Интенсивность $|E_y|^2$ (а) и амплитуда спектра S (б) входного Гауссова импульса (сплошная линия) длительностью 0,7 фс в точке $(x, z) = (0, 0)$ мкм, коэффициент поглощения (пунктирная линия) (табл. 1)

Из рис. 4 видно, что максимальная интенсивность импульса, распространяющегося в волноводе из кварцевого стекла, диэлектрическая проницаемость которого описывается классической моделью Селлмейера (линия 1), больше максимальной интенсивности импульса, распространяющегося в аналогичном волноводе, дисперсия которого описывается уточнённой моделью Селлмейера (линия 2), в 3,3 раза в точке $(x, z) = (0, 3)$ мкм и в 9,5 раз в точке $(x, z) = (0, 7)$ мкм. Также необходимо отметить большее запаздывание импульса, распространяющегося в волноводе, дисперсия которого описывается уточнённой моделью (табл. 2): в точке $(x, z) = (0, 3)$ мкм импульс отстает на 0,35 мкм, а в точке $(x, z) = (0, 7)$ мкм – на 0,32 мкм.

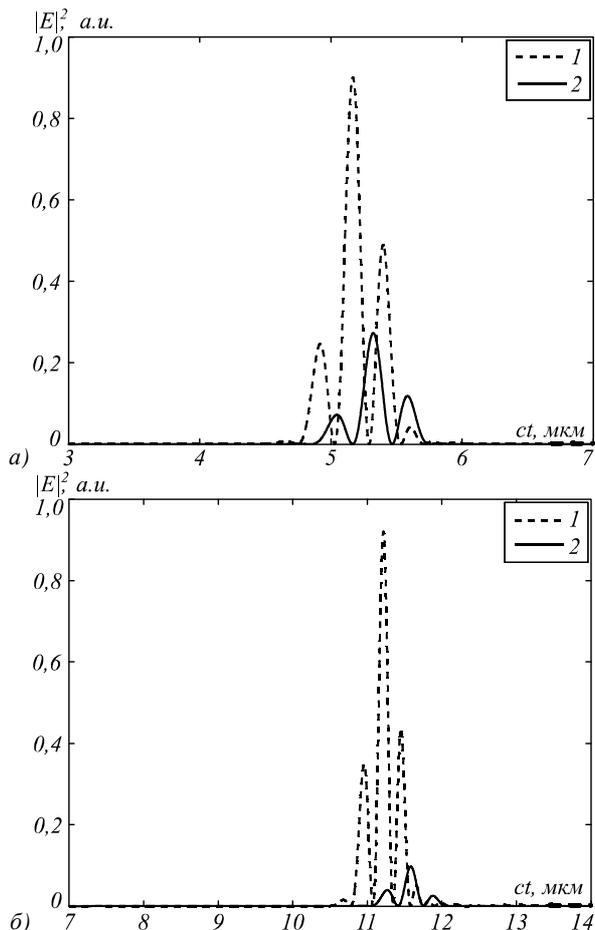


Рис.4. Временная зависимость интенсивности импульса в точках $(x,z) = (0,3)$ мкм (а) и $(x,z) = (0,7)$ мкм (б), полученная с учётом частотной дисперсии с помощью модели Селлмейера и табл. 1 (линия 1) и табл. 2 (линия 2)

Импульс, распространяющийся в волноводе из кварцевого стекла, диэлектрическая проницаемость которого описывается классической моделью Селлмейера, движется в 1,5 раза медленнее скорости света, в то время как импульс, распространяющийся в таком же волноводе, дисперсия которого описывается уточнённой моделью Селлмейера, движется в 1,58 раза медленнее скорости света.

В процессе анализа результатов численного моделирования сравнивались поглощательные способности кварцевого стекла, получаемые за счёт использования разных моделей. При преодолении импульсами расстояния в 3 мкм в первом случае поглотилось 6,4% энергии, в то время как во втором случае (уточнённая модель) – 69% энергии. На расстоянии в 7 мкм в первом случае – 8,5%, а во втором – 87,5%. Поглощение фемтосекундного импульса в кварцевом волноводе с обычной дисперсией в 10 раз слабее, чем в волноводе с уточнённой дисперсией.

Исходя из полученных данных, можно сделать вывод, что в процессе моделирования распространения ультракоротких импульсов в кварцевом стекле необходимо максимально точно учитывать зависимость диэлектрической проницаемости от частоты. В противном случае полученные результаты могут

расходиться как в количественных, так и в качественных характеристиках: максимальной интенсивности, энергии импульса и времени появления.

Заключение

В работе получены следующие результаты:

- найдены параметры (резонансные длины волн, амплитуды и коэффициенты демпфирования) модели Селлмейера (2) для более точного согласования (среднеквадратическое отклонение 6%) модельных кривых показателя преломления и коэффициента поглощения с облаком экспериментальных значений дисперсионных кривых кварцевого стекла;

- сравнение результатов моделирования распространения Гауссова (по пространству и по времени) импульса длительностью 3,35 фс с длиной волны 532 нм в волноводах из кварцевого стекла, дисперсия которых описывалась стандартной и уточнённой моделями Селлмейера, показало существенное влияние дисперсии на процесс распространения импульса: высокое поглощение (в 10 раз больше) и замедление (на 0,35 мкм) за 7 мкм;

- фемтосекундный импульс теряет 90% энергии в кварце на расстоянии 7 мкм.

Благодарности

Работа выполнена при поддержке грантов РФФИ (13-07-97008) и (14-07-31218).

Литература

1. **Ohkubo, H.** Highly-Precise Micro/Nano-processing Technologies of Synthetic Quartz Glass and its Applications / H. Ohkubo, N. Kitano, S. Kashimura // Hitachi Cable Review. – 2006. – V. 25. – P. 5-10.
2. **Zoubir, A.** Optical properties of infrared femtosecond laser-modified fused silica and application to waveguide fabrication / A. Zoubir and M. Richardson // J. Opt. Soc. Am. B. – 2005. – V. 22(10). – P. 2138 – 2143.
3. **Kitamura, R.** Optical Constants of Silica Glass From Extreme Ultraviolet to Far Infrared at Near Room Temperatures / R. Kitamura, L. Pilon, and M. Jonasz // Applied Optics. – 2007. – V. 46(33). – P. 8118-8133.
4. **Hart, G.** The nomenclature of silica / G. Hart // American Mineralogist. – 1927. – V. 12. – P. 383-395.
5. **Sosman, R.B.** The Phase of Silica / R.B. Sosman. – Rutgers University Press, New Brunswick, NJ, 1964.
6. **Hetherington, G.** The high-temperature electrolysis of vitreous silica. Part I. Oxidation, ultra-violet induced fluorescence, and irradiation colour / G. Hetherington, K. H. Jack, and M. W. Ramsay // Physics and Chemistry of Glasses. – 1965. – V.6. – P. 6-15.
7. **Bruckner, R.** Properties and structure of vitreous silica. I / R. Bruckner // Journal of Non-Crystalline Solids. – 1970. – V.5. – P.123-175.
8. **Иванов, Г.А.** Технология производства и свойства кварцевых оптических волокон / Г.А. Иванов, В.П. Первадчук. – Пермь: Изд-во Перм. нац. исслед. политехн. ун-та, 2011. – 171 с.
9. **Немилов, С.В.** Оптическое материаловедение: Оптические стекла: учеб. пособие, курс лекций / С.В. Немилов. – СПб: СПбГУ ИТМО, 2011 – 175 с.
10. **Davis, K.M.** Quantitative infrared spectroscopic measurement of hydroxyl concentrations in silica glass / K. M. Davis, A. Agarwal, M. Tomozawa, and K. Hirao // Journal of Non-Crystalline Solids. – 1996. – V.203. – P.27-36.

11. **Yamamuro, T.** Measurement of refractive indices of 20 optical materials at low temperatures / T. Yamamuro, S. Sato, T. Zenno, N. Takeyama, H. Matsuhara, I. Maeda, and Y. Matsueda // *Optical Engineering*. – 2006. – V.45(8). – P.083-401.
12. **Meneses, D.D.S.** Structure and lattice dynamics of binary lead silicate glasses investigated by infrared spectroscopy / D. D. S. Meneses, M. Malki, and P. Echegut // *Journal of Non-Crystalline Solids*. – 2006. – V.352. – P.769-776.
13. **Efimov, A.M.** IR absorption spectra of vitreous silica and silicate glasses: The nature of bands in the 1300 to 5000 cm⁻¹ region / A. M. Efimov and V. G. Pogareva // *Chemical Geology*. – 2006. – V. 229 (1-3). – P. 198-217.
14. **Kajihara, K.** Improvement of vacuum-ultraviolet transparency of silica glass by modification of point defects / K. Kajihara // *Journal of the Ceramic Society of Japan*. – 2007. – V.115(2). – P. 85-91.
15. **Couairon, A.** Filamentation and damage in fused silica induced by tightly focused femtosecond laser pulses / A. Couairon, L. Sudrie, M. Franco, B. Prade, A. Mysyrowicz // *Phys. Rev. B*. – 2005. – V. 71. – P. 125435-125441.
16. **Козлова, Е.С.** Моделирование распространения короткого двумерного импульса света / Е.С. Козлова, В.В. Котляр // *Компьютерная оптика*. – 2012. – Т.36(2). – С. 158-164.
17. **Козлова, Е.С.** Моделирование предвестников Зоммерфельда и Бриллюэна в среде с частотной дисперсией на основе разностного решения волнового уравнения/ Е.С. Козлова, В.В. Котляр // *Компьютерная оптика*. – 2013. – Т.37(2). – С. 146-154.
6. **Hetherington, G.** The high-temperature electrolysis of vitreous silica. Part I. Oxidation, ultra-violet induced fluorescence, and irradiation colour / G. Hetherington, K. H. Jack, and M. W. Ramsay // *Physics and Chemistry of Glasses*. – 1965. – V.6. – P. 6-15.
7. **Bruckner, R.** Properties and structure of vitreous silica. I / R. Bruckner // *Journal of Non-Crystalline Solids*. – 1970. – V.5. – P.123-175.
8. **Ivanov, G.A.** Production technology and properties of silica optical fibers / G.A. Ivanov, V.P. Pervadchuk. – Perm: "Perm National Research Polytechnic University" Publisher, 2011. – 171 p. – (In Russian).
9. **Nemilov, S.V.** Optical Materials: Optical glass: Textbook, lectures / S.V. Nemilov. – St. Petersburg: St. Petersburg State University of Information Technologies, 2011. – 175 p. – (In Russian).
10. **Davis, K.M.** Quantitative infrared spectroscopic measurement of hydroxyl concentrations in silica glass / K. M. Davis, A. Agarwal, M. Tomozawa, and K. Hirao // *Journal of Non-Crystalline Solids*. – 1996. – V.203. – P.27-36.
11. **Yamamuro, T.** Measurement of refractive indices of 20 optical materials at low temperatures / T. Yamamuro, S. Sato, T. Zenno, N. Takeyama, H. Matsuhara, I. Maeda, and Y. Matsueda // *Optical Engineering*. – 2006. – V.45(8). – P.083-401.
12. **Meneses, D.D.S.** Structure and lattice dynamics of binary lead silicate glasses investigated by infrared spectroscopy / D. D. S. Meneses, M. Malki, and P. Echegut // *Journal of Non-Crystalline Solids*. – 2006. – V.352. – P.769-776.
13. **Efimov, A.M.** IR absorption spectra of vitreous silica and silicate glasses: The nature of bands in the 1300 to 5000 cm⁻¹ region / A. M. Efimov and V. G. Pogareva // *Chemical Geology*. – 2006. – V.229(1-3). – P. 198-217.
14. **Kajihara, K.** Improvement of vacuum-ultraviolet transparency of silica glass by modification of point defects / K. Kajihara // *Journal of the Ceramic Society of Japan*. – 2007. – V.115(2). – P. 85-91.
15. **Couairon, A.** Filamentation and damage in fused silica induced by tightly focused femtosecond laser pulses / A. Couairon, L. Sudrie, M. Franco, B. Prade, A. Mysyrowicz // *Phys. Rev. B*. – 2005. – V. 71. – P. 125435-125441.
16. **Kozlova, E.S.** Simulation of ultrafast 2D light pulse / E.S. Kozlova, V.V. Kotlyar // *Computer Optics*. – 2012. – V. 36, N 2. – P. 158-164.
17. **Kozlova, E.S.** Simulations of Sommerfeld and Brillouin precursors in the medium with frequency dispersion using numerical method of solving wave equations/ E.S. Kozlova, V.V. Kotlyar // *Computer Optics*. – 2013. – V.37(2). – P. 146-154.

References

1. **Ohkubo, H.** Highly-Precise Micro/Nano-processing Technologies of Synthetic Quartz Glass and its Applications / H. Ohkubo, N. Kitano, S. Kashimura // *Hitachi Cable Review*. – 2006. – V. 25. – P. 5-10.
2. **Zoubir, A.** Optical properties of infrared femtosecond laser-modified fused silica and application to waveguide fabrication / A. Zoubir and M. Richardson // *J. Opt. Soc. Am. B*. – 2005. – V. 22(10). – P. 2138 – 2143.
3. **Kitamura, R.** Optical Constants of Silica Glass From Extreme Ultraviolet to Far Infrared at Near Room Temperatures / R. Kitamura, L. Pilon, and M. Jonasz // *Applied Optics*. – 2007. – V. 46(33). – P. 8118-8133.
4. **Hart, G.** The nomenclature of silica / G. Hart // *American Mineralogist*. – 1927. – V. 12 – P. 383-395.
5. **Sosman, R.B.** The Phase of Silica / R.B. Sosman. – Rutgers University Press, New Brunswick, NJ, 1964.

SPECIFIED PARAMETERS OF SELLMAYER MODEL FOR SILICA GLASS

E.S. Kozlova, V.V. Kotlyar

Image Processing Systems Institute of the Russian Academy of Sciences

Abstract

The parameters (the resonant wavelength, amplitude and damping coefficients) of Sellmeyer model for more accurate matching (rms deviation of 6 %) of the model curves of refractive and absorption indexes with a cloud of experimental values of the dispersion curves of a silica glass are found in the range from 20 nm to 100 microns. Comparison of the results of simulation of the Gaussian (in space and in time) pulse durations of 3.35 fs in planar waveguides from silica glass, which dispersion is described by the standard and refined Sellmeyer models, showed a significant effect of the permittivity on the pulse: high absorption (10 times more) and retardation (0.35 μm) to 7 μm.

Key words: silica glass, dispersion model, refractive index, permittivity, absorption index, ultrashort pulse.

Сведения об авторах

Козлова Елена Сергеевна, магистр прикладной математики и информатики, аспирант кафедры технической кибернетики Самарского государственного аэрокосмического университета. Область научных интересов: дифракционная оптика, численные методы.

E-mail: kozlova.elena.s@gmail.com.

Elena Sergeevna Kozlova, Master of Mathematics and Computer Science. Currently studies at Samara State Aerospace University. Research interests are diffractive optics and numerical methods.

Сведения об авторе Котляр Виктор Викторович – см. стр. 9 этого номера.

Поступила в редакцию 22 декабря 2013 г.