

Изменение ионизационного состояния приповерхностной лазерно-индуцированной плазмы алюминия в двухимпульсных режимах абляции

В.С.Бураков, А.Ф.Бохонов, М.И.Неделько, Н.В.Тарасенко

Выполнены спектроскопические и зондовые исследования плазмы, образуемой вблизи поверхности алюминиевой мишени при воздействии на нее двух последовательных импульсов лазерного излучения с нерезонансной и резонансной длинами волн. Показана возможность увеличения доли ионов в лазерно-индуцированной плазме в двухимпульсных режимах абляции. Определены условия преимущественного влияния процессов на поверхности, а также селективного возбуждения и ионизации в плазме на формирование ее ионизационного состояния.

Ключевые слова: лазерная плазма, двухимпульсная абляция, эмиссионная спектроскопия, резонансная фотоионизация.

1. Введение

Импульсная лазерно-абляционная плазма, создаваемая вблизи твердотельных мишеней под действием интенсивных потоков лазерного излучения, находит применения для атомизации вещества в лазерном спектральном анализе [1], для напыления тонких пленок различных материалов [2–4] и в ряде других технологических процессов. Для этих применений большое значение имеет детальное понимание наиболее существенных физических процессов, определяющих пространственно-временные характеристики приповерхностной плазмы, и разработка на этой основе способов управления составом и энергетическим спектром продуктов лазерной абляции. Целе направленное изменение компонентного и зарядового состава лазерно-абляционного потока возможно, в частности, на основе дополнительного воздействия на плазму лазерного излучения.

При использовании схем двухимпульсной лазерной абляции возможно контролируемое увеличение концентрации возбужденных и заряженных частиц плазмы с изменением их энергетических распределений. В частности, воздействие на плазму, сформированную у поверхности твердотельной мишени, излучения CO_2 -лазера, как показывают появившиеся в последнее время публикации [5, 6], может быть использовано для управления энергией ионов. Излучение ИК лазера приводит к нагреву свободных электронов в полученной плазме в процессе обратного тормозного поглощения и ускорению ионов до высоких кинетических энергий [7]. Столкновения высокоэнергетических электронов с нейтральными атомами вызывают их ионизацию, увеличивая тем самым долю ионов в плазме.

Увеличение относительного содержания ионов в лазерной плазме может быть также достигнуто при использовании двухимпульсных схем абляции, когда излучение

дополнительного лазерного импульса резонансно поглощается в плазме [8]. Выяснению особенностей изменения характеристик абляционной плазмы в условиях двухимпульсной двухчастотной лазерной абляции посвящена настоящая работа.

Основная цель ее состояла в установлении условий оптимального влияния дополнительного лазерного излучения резонансной частоты на формирование компонентного и зарядового состава лазерной плазмы. Исследования базируются на сравнении интенсивности ионных линий и времяпролетных зондовых характеристик в двух- и одноимпульсном режимах создания плазмы. Проанализированы основные механизмы взаимодействия лазерного излучения УФ и видимого диапазонов спектра с лазерно-абляционной плазмой алюминия. Процессы лазерно-индуцированного возбуждения и ионизации исследовались при воздействии на мишень или плазму, сформированную у поверхности алюминиевой мишени, импульсов излучения второй гармоники (532 нм) ИАГ: Nd^{3+} -лазера или эксимерного XeCl -лазера (308 нм). При этом частота излучения эксимерного лазера совпадает с частотой резонансного перехода атомарного алюминия.

2. Эксперимент

Эксперименты проводились на установке, оптическая схема которой приведена на рис.1. Плазма создавалась при фокусировке излучения второй гармоники ИАГ: Nd^{3+} -лазера (10 нс, $1-4 \text{ Дж/см}^2$) и/или эксимерного XeCl -лазера (10 нс, $1-2 \text{ Дж/см}^2$) на поверхность алюминиевой мишени, помещенной в камере с воздушной атмосферой при нормальном давлении и при давлении 10^{-3} Тор . Пучки излучения обоих лазеров совмещались на поверхности мишени. Система синхронизации обеспечивала изменение времени задержки между лазерными импульсами с минимальным шагом 100 нс. В опытах по дополнительному воздействию на плазму (не на мишень) лазерно-абляционная плазма, возникшая в результате воздействия первого импульса, просвечивалась с регулируемой задержкой сфокусированным излучением второго лазера вблизи поверхности мишени, не касаясь ее.

В.С.Бураков, А.Ф.Бохонов, М.И.Неделько, Н.В.Тарасенко. Институт молекулярной и атомной физики НАНБ, Белоруссия, 220072 Минск, просп. Ф.Скорины, 70

Поступила в редакцию 16 августа 2002 г., после доработки – 22 мая 2003 г.

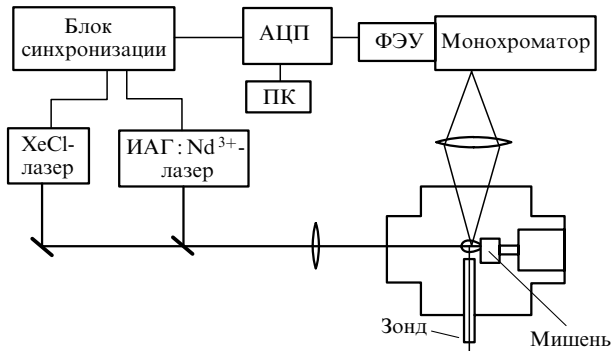


Рис.1. Блок-схема экспериментальной установки.

Спектры излучения плазмы регистрировались с помощью спектрографа ДФС-452. Разрешенные во времени измерения кинетики высвечивания отдельных спектральных линий проводились при проецировании изображения факела в плоскость щели монохроматора МДР-23 с шириной аппаратной функции 0.05 нм. После монохроматора излучение попадало на фотоумножитель ФЭУ-84, сигнал с которого регистрировался цифровым осциллографом С9-8, связанным с персональным компьютером (ПК). Развертка осциллографа запускалась передним фронтом импульса излучения первого лазера.

Количественная информация о плазменных параметрах, таких как температура и плотность электронов, пространственная и временная эволюция атомов и ионов, частично получена ранее при сочетании методов разрешенной во времени оптической эмиссионной спектроскопии, лазерно-индуцированной флуоресценции и времяпролетных зондовых измерений [8–10]. Концентрация атомов алюминия в основном состоянии определялась при их возбуждении лазерным излучением на длине волны $\lambda = 394.4$ нм (переход $3^2P_{1/2} - 4^2S_{1/2}$) и регистрации флуоресценции на линии Al I с $\lambda = 396.15$ нм (переход $4^2S_{1/2} - 3^2P_{3/2}$).

Детектирование заряженных частиц плазмы осуществлялось при помощи электрического зонда, изготовленного из молибденовой проволоки диаметром 0.13 мм и имеющего длину 8 мм. Зонд размещался в камере на расстоянии 15 мм от поверхности мишени. Нагрузочное сопротивление зонда составляло 75 Ом. Времяпролетные характеристики зондового тока для ионов и электронов регистрировались при изменении знака потенциала зонда.

3. Результаты и их обсуждение

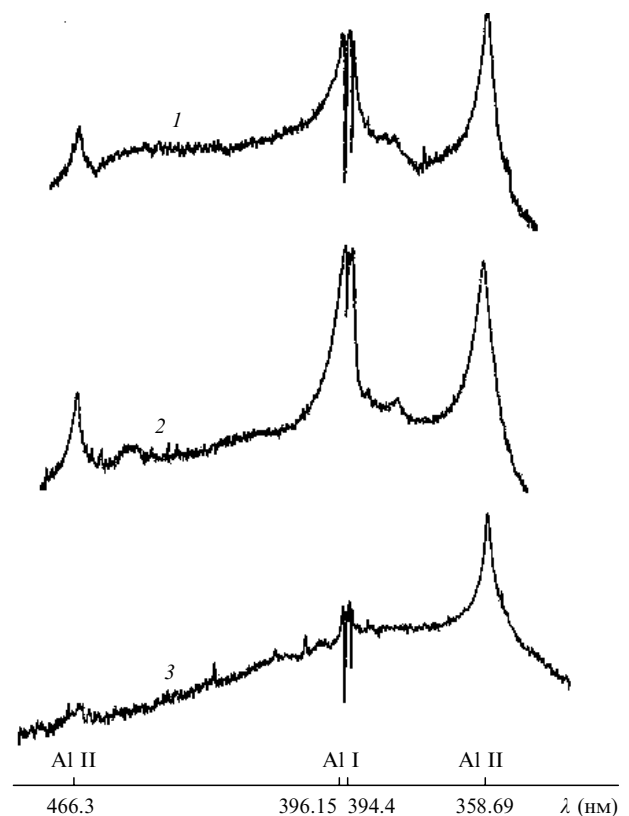
Как показано в ряде работ [10–12], длина волны воздействующего лазерного импульса играет важную роль в процессе формирования эрозионного факела как на стадии взаимодействия излучения с поверхностью мишени, так и на стадии поглощения его в образующейся плазме. Существенное влияние на снижение порога плазмообразования и повышение концентрации ионов могут оказывать резонансные эффекты взаимодействия, когда частоты лазерного излучения и интенсивных линий поглощения совпадают.

В настоящей работе для установления степени влияния длины волны лазерного излучения на характеристики эрозионной плазмы предварительно сравнивались интегральные спектральные характеристики факелов, со-

здаваемых излучением лазерных источников с $\lambda = 532$, 266 и 308 нм. При этом для двух последних длин волн имело место резонансное поглощение в парах алюминия. Размеры пятна фокусировки излучения на мишени были одинаковыми для всех трех случаев (0.7×0.6 мм), а энергии воздействующих импульсов подбирались таким образом, чтобы интенсивности свечения факелов на линии иона Al II (358 нм) были равны. Плотности энергии излучения с $\lambda = 532$, 308 и 266 нм составили 3.3, 1.6 и 2 Дж/см² соответственно.

Типичный эмиссионный спектр лазерно-абляционной плазмы, образуемой при воздействии в воздухе на алюминий излучения с $\lambda = 532$, 308 и 266 нм представлен на рис.2. Он относится к области плазмы, удаленной от поверхности мишени на расстояние 0.2 мм. Спектр состоит из линий, соответствующих возбужденным нейтральным и однократно ионизованным атомам. Наиболее интенсивная эмиссия в видимой области была связана с линиями Al I (396.15 и 394.4 нм), Al II (358.69, 466.3, 624.3 и 559.3 нм). Однако соотношения интенсивностей линий атомов, ионов и непрерывного фона различны для разных длин волн воздействующего излучения.

Обращает на себя внимание большой уровень фона в коротковолновом участке спектра и сильное уменьшение интенсивности ионной линии Al II (466.3 нм) при абляции излучением четвертой гармоники ИАГ:Nd³⁺-лазера. Для этого режима также существенно самообращение атомных линий Al I с $\lambda = 396.15$ и 394.4 нм при небольшой эмиссии на крыльях, что указывает на более неоднородное распределение температуры по сечению факела. Наиболее четкий линейчатый спектр с наименьшим самообращением резонансных линий и значительно мень-

Рис.2. Эмиссионный спектр лазерно-абляционной плазмы, образуемой при воздействии в воздухе на алюминий излучения с $\lambda = 532$ (1), 308 (2) и 266 нм (3).

шим относительным вкладом непрерывного спектра наблюдается для случая абляции излучением эксимерного лазера. Расхождения в спектрах указывают на различие процессов возбуждения и релаксации возбужденных состояний в плазме, создаваемой излучением эксимерного лазера и гармоник ИАГ: Nd³⁺-лазера.

При совместном действии импульса излучения второй гармоники ИАГ: Nd³⁺-лазера и эксимерного лазера (не показано на рис.2) обнаружены более высокая степень атомизации и интенсивность спектральных линий в плазме при двухимпульсном режиме по сравнению с одноимпульсным. При последовательном воздействии на мишень двух лазерных импульсов, разнесенных во времени на 1, 3, 5 и 7 мкс (импульс ХеСl-лазера следовал за импульсом второй гармоники ИАГ: Nd³⁺-лазера), ионная линия Al II (358.69 нм) становилась уже, а самообращение атомных линий уменьшалось.

Для более детального изучения эффекта предимпульса измерялась динамика свечения ионной (Al II, $\lambda = 358.69$ нм) и атомной (Al I, $\lambda = 396.15$ нм) линий при различных временных задержках между лазерными импульсами на $\lambda = 532$ и 308 нм. Разрешенные во времени измерения интенсивности выполнялись при регистрации излучения плазмы из зоны, расположенной на расстоянии 1 мм от поверхности мишени. Учет фонового излучения проводился путем вычитания сигналов, полученных на $\lambda = 370$ и 400 нм для ионной и атомной линий соответственно.

Наиболее вероятными процессами, приводящими к заселению возбужденных уровней, являются столкновения электронов с нейтральными атомами и электрон-ионная рекомбинация [13].

Зависимости относительной интенсивности $J = (I_{\text{ph}}^{\text{d}} - I_{\text{ph}}^{\text{s}}) / (I_{\text{max}}^{\text{s}} - I_{\text{ph}}^{\text{s}})$ (где $I_{\text{max}}^{\text{d,s}}$ и $I_{\text{ph}}^{\text{d,s}}$ – максимальная и фоновая интенсивности в двух- (d) и одноимпульсном (s) режимах) для ионной линии Al II (358.69 нм) от временного сдвига Δt между импульсами приведены на рис.3,а. Наибольшее возрастание относительной интенсивности имеет место при задержках $\Delta t = 3 - 5$ мкс; при этом практически отсутствует зависимость J от порядка следования воздействующих лазерных импульсов с разными длинами волн. При $\Delta t > 7$ мкс наблюдается спад J . Большая относительная интенсивность достигается в том случае, когда вторым следует импульс ХеСl-лазера. Это может быть связано с резонансным характером воздействующего излучения на $\lambda = 308$ нм, вызывающего возбуждение и ионизацию атомов алюминия. Хотя основной вклад в увеличение свечения (концентрации ионов) вносят, по видимому, процессы на поверхности, в частности увеличение абляции вещества с нее после предварительной обработки импульсом первого лазера. Следует отметить, что фокусировка излучения ХеСl-лазера в плазму (а не на поверхность мишени) приводила к появлению сигнала на ионной линии Al II (358.69 нм) в диапазоне временных задержек 0–2 мкс (кривая 3 на рис.3,б). В этом временном интервале процессы в плазме вносят определенный вклад в наблюдаемое увеличение интенсивности ионной линии. Однако влияние плазмы быстро исчезает при больших задержках, при которых лазерное излучение сравнительно слабо поглощается в плазме вследствие ее расширения и в основном расходуется на абляцию.

Приведенные выше результаты (рис.3) получены при лазерной абляции алюминия в воздушной атмосфере при нормальном давлении. Аналогичные измерения, выпол-

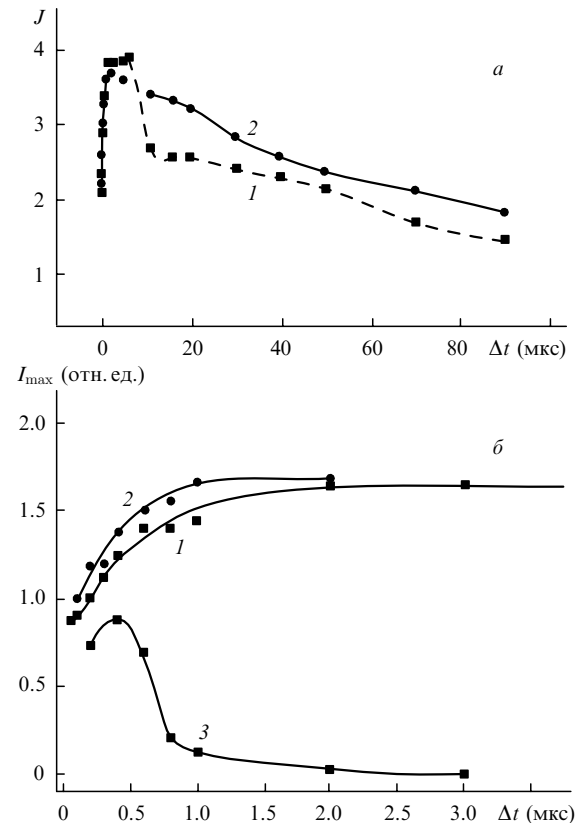


Рис.3. Зависимости относительной интенсивности J (а) и интенсивности в максимуме сигнала I_{max} (б) для ионной линии алюминия Al II (358.69 нм) в двухимпульсном режиме от временной задержки Δt между импульсами при последовательном воздействии на мишень импульсов излучения эксимерного лазера и второй гармоники ИАГ: Nd³⁺-лазера (1), при обратном порядке их следования (2), а также при фокусировке излучения ХеСl-лазера в плазму, созданную импульсом излучения второй гармоники ИАГ: Nd³⁺-лазера (3). Измерения проводились в воздухе при нормальном давлении.

ненные при откачке камеры до 10^{-3} Тор, представлены на рис.4. В этом случае ввиду большей скорости разлета плазмы увеличение пиковой интенсивности ионной линии при последовательном воздействии двух импульсов (эффект предимпульса) быстро уменьшается в интервале 0–0.5 мкс. Как и при нормальном давлении, эффект выше, когда вторым действует эксимерный лазер. Скорость расширения плазменного факела была оценена по наклону кривой изменения задержки пика интенсивности излучения ионов с расстоянием от мишени. Она составила примерно 1.2×10^6 см/с при плотности энергии лазерного излучения 2.5 Дж/см².

Для атомных линий эффект предимпульса меньше, что находится в соответствии с экспериментальными наблюдениями других авторов [14–16]. Разрешенная во времени интенсивность излучения атомной линии Al I (396.15 нм) лазерно-абляционной плазмы при одно- и двухимпульсном воздействии показана на рис.5. Наблюдаемый резкий пик излучения 1 есть результат резонансного взаимодействия излучения ХеСl-лазера с атомами алюминия в основном состоянии, образованными после воздействия на мишень первого лазерного импульса. Второй небольшой пик свечения 2 дают возбужденные атомы, образуемые при абляции поверхности импульсом ХеСl-лазера. При небольших задержках ($0 \leq \Delta t \leq 1$ мкс) формируемая первым импульсом алюминиевая

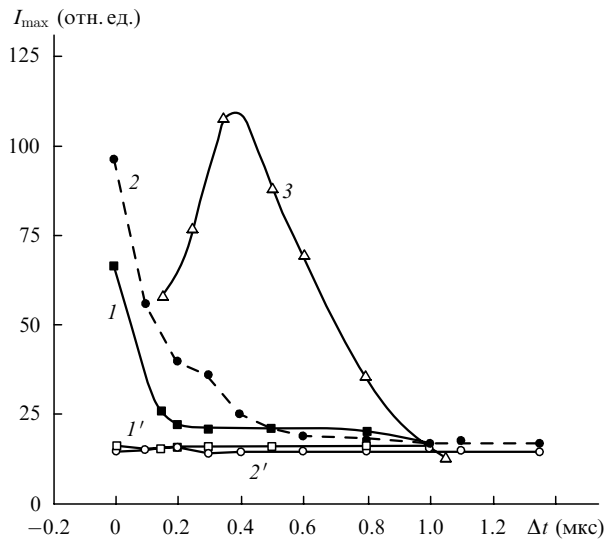


Рис.4. Зависимость интенсивности ионной линии Al II (358.15 нм) в максимуме сигнала I_{\max} от временной задержки Δt между импульсами на $\lambda = 308$ и 532 нм (1) и 532 и 308 нм (2) при их последовательном воздействии в вакууме, средние значения соответствующих сигналов в отсутствие предимпульса (1', 2') и временная зависимость амплитуды сигнала флуоресценции атомов алюминия на линии Al I (396.15 нм) (3).

плазма с атомами в основном состоянии ослабляет излучение XeCl-лазера. Поэтому интенсивность линии Al I (396.15 нм) при двухимпульсной абляции (пик 2) не увеличивается по сравнению с одноимпульсным режимом воздействия (пик 3). Вместе с тем при наличии предимпульса время высвечивания указанной атомной линии растет. Временной диапазон существования атомов в основном состоянии в зоне наблюдения иллюстрирует кривая 3 на рис.4.

Времяпролетные характеристики заряженных частиц плазмы исследовались зондовым методом для выяснения того, является ли наблюдаемое увеличение интенсивности ионных линий в двухимпульсном режиме результатом изменения условий их возбуждения или оно связано с тем, что при абляции мишени последовательностью двух импульсов происходит увеличение концентрации ионов в плазме.

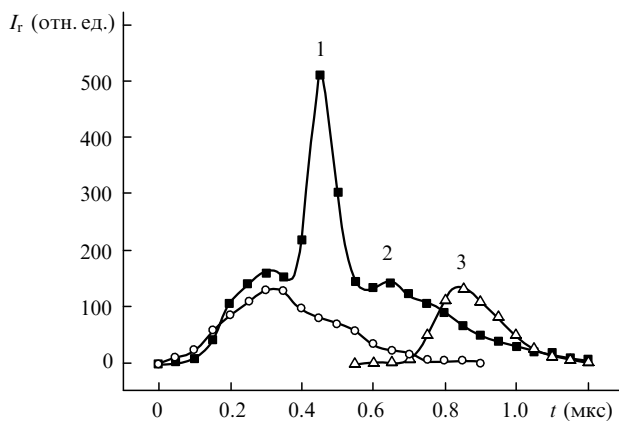


Рис.5. Осциллограммы импульсов излучения лазерной плазмы на линии Al I (396.15 нм) при двухимпульсной абляции алюминия последовательностью импульсов на $\lambda = 532$ и 308 нм (■) и одноимпульсной лазерной абляции этими импульсами ($\lambda = 532$ (○) и 308 нм (△)); 1–3 – номера пиков излучения.

Предварительно определялось изменение концентрации ионов при различных плотностях энергии лазерного излучения Φ в одноимпульсном режиме. Пороговая плотность энергии лазерного излучения, обеспечивающая обнаруживаемое число ионов, составляет 0.3 Дж/см² на $\lambda = 1064$ нм и 0.05 Дж/см² на $\lambda = 308$ нм. Выше порога с увеличением Φ до 5 Дж/см² наблюдалось увеличение концентрации ионов; ионный сигнал не достигал насыщения в противоположность сигналу флуоресценции, который насыщался с ростом Φ . Рост концентрации ионов может быть приписан увеличению количества материала, удаляемого с поверхности мишени, и доли поглощаемой в продуктах абляции лазерной энергии, которая вызывает нагревание и последующую столкновительную ионизацию. Полученные результаты показали, что для плотностей энергии лазерного излучения $\Phi > 1$ Дж/см² степень ионизации плазмы в начальной стадии достаточно высока, но быстро уменьшается в первые несколько сотен наносекунд.

В условиях, когда для абляции использовались два последовательных лазерных импульса, обнаружено, что зондовые времяпролетные кривые (как ионов, так и электронов) для плазмы второго лазерного импульса при наличии предимпульса (двухимпульсная лазерная абляция) существенно отличаются от зондовых кривых в отсутствие предимпульса (одноимпульсная лазерная абляция). Типичный сигнал электронного тока зонда показан на рис.6. Временная зависимость электронного тока зонда имеет несколько (до трех) максимумов, положения которых были близки к положениям максимумов на временной зависимости ионного тока. В начальный период времени на зондовой кривой электронного тока наблюдается короткий импульс, обусловленный фотоэлектронами, эмитируемыми с поверхности мишени до начала интенсивного испарения. Эти фотоэлектроны не связаны электростатически с ионами и поэтому распространяются с большей скоростью в направлении к зонду. Из рис.6 видно, что дополнительный лазерный импульс, воздействуя на мишень, вызывает резкое увеличение концентрации заряженных частиц в плазме. Это увеличение наблюдалось в широком диапазоне изменения временных задержек между импульсами, причем оно больше в том случае, когда вторым импульсом при двухимпульсной абляции является импульс излучения эксимерного лазера.

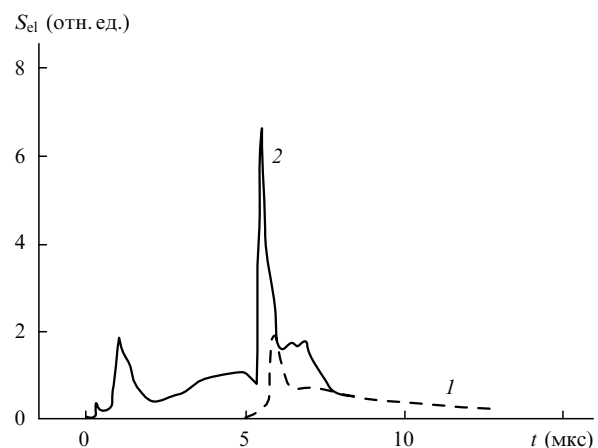


Рис.6. Форма импульсов электронного тока зонда (при потенциале зонда -27 В) в отсутствие (1) и при наличии (2) предимпульса второй гармоники ИАГ: Nd³⁺-лазера.

Табл.1.

τ (мкс)	n_e (10^{18} см $^{-3}$)	n_a (10^{17} см $^{-3}$)	T_e (эВ)	α_{ib} (10^{-3} см $^{-1}$)		α_{phi} (см $^{-1}$)	
				$\lambda = 532$ нм	$\lambda = 308$ нм	$\lambda = 532$ нм	$\lambda = 308$ нм
0.4	0.83	5.3	1.35	9.3	2.1	0.85	2.8
0.5	0.56	3.8	1.1	5	1.08	0.31	1.9
0.7	0.24	2.4	0.93	1	0.22	0.1	1.2
0.9	0.24	1.5	0.88	0.98	0.2	0.05	0.74
1.1	0.15	1.07	0.88	0.45	0.09	0.02	0.53

Примечание: n_a – концентрация атомов.

Для объяснения полученных зависимостей проанализируем возможные механизмы поглощения лазерного излучения в плазме первого импульса и увеличения ее степени ионизации. При воздействии на мишень лазерных импульсов наносекундной длительности испарение материала мишени начинается после достижения ее поверхности передним фронтом импульса. Образование приповерхностной плазмы обычно связывают [17, 18] с процессами взаимодействия остальной части лазерного импульса с продуктами абляции: нагревом и лавинообразной ионизацией паров. Механизмы образования плазмы в условиях двухимпульсной лазерной абляции недостаточно полно изучены. До настоящего времени последовательное воздействие на поверхность твердого тела двух лазерных импульсов использовалось в основном в спектральном анализе для увеличения интенсивности аналитических линий [14–16]. Имеются лишь отдельные работы, в которых исследуется изменение параметров плазмы под воздействием дополнительных лазерных импульсов [19, 20].

Особенности плазмообразования при наличии предимпульса рассмотрим на основе анализа процессов взаимодействия излучения дополнительного лазерного импульса с поверхностью и приповерхностной плазмой, образованной при воздействии первого импульса. Следует отметить, что условия такого взаимодействия изменяются с увеличением временного интервала между импульсами как вследствие изменения плотности и состава плазмы при ее расширении и охлаждении, так и в результате изменения оптических и тепловых свойств поверхности. Для интерпретации полученных результатов будем исходить из частотной зависимости эффективности процессов поглощения лазерного излучения поверхностью мишени и приповерхностной плазмой.

Двумя основными механизмами поглощения излучения в лазерной плазме при умеренных интенсивностях являются обратный тормозной и фотоионизационный процессы. Коэффициент обратного тормозного поглощения излучения в плазме (inverse bremsstrahlung process) пропорционален кубу длины волны излучения [21]. Такая зависимость приводит к увеличению коэффициента поглощения излучения второй гармоники (532 нм) ИАГ: Nd $^{3+}$ -лазера почти в пять раз по сравнению с коэффициентом поглощения излучения эксимерного ХеСл-лазера. В УФ области спектра, однако, прямая фотоионизация может играть существенную роль, т.к. энергия фотона становится сравнимой с энергией ионизации возбужденных атомов. Следует отметить также, что увеличение концентрации электронов и ионов в результате фотоионизации может значительно увеличить вероятность поглощения фотонов вследствие обратного тормозного

процесса при электрон-ионных столкновениях. Результаты экспериментальных исследований [22] подтвердили эффективность фотоионизационного механизма при УФ лазерной абляции металлических мишеней. Особый интерес могут представлять случаи резонансных взаимодействий, когда имеет место совпадение частот лазерного излучения и интенсивных линий поглощения. Резкое возрастание сечения поглощения в поле резонансной волны [23] может существенно увеличивать скорость набора энергии электронами, приводя к полной ионизации атомов металлов в поле резонансного излучения за время порядка времени набора энергии.

Анализируя перечисленные процессы для алюминиевой плазмы, отметим, что первый возбужденный уровень атома алюминия расположен на 3.14 эВ выше основного состояния, в то время как потенциал ионизации алюминия равен 5.99 эВ. В связи с этим для излучений четвертой гармоники (266 нм) ИАГ: Nd $^{3+}$ -лазера и ХеСл-лазера (308 нм) фотоионизация через промежуточные уровни возможна, в то время как для излучения в видимой области (2.31 эВ на $\lambda = 532$ нм) требуется двухфотонная ионизация.

Результаты расчета временного хода коэффициента поглощения алюминиевой плазмы приведены в табл.1 и на рис.7. Коэффициент поглощения α оценивался по формуле [11, 21]

$$\alpha = \alpha_{ib} + \alpha_{phi} \approx 1.27 \times 10^{-46} Z^2 \lambda^3 T_e^{-0.5} n_i \times \left[1 - \exp\left(-\frac{h\nu}{T_e}\right) \right] n_e + \sum_m 2.9 \times 10^{-17} \frac{(I - \epsilon_m^*)^{2.5}}{(h\nu)^3} n_m, \quad (1)$$

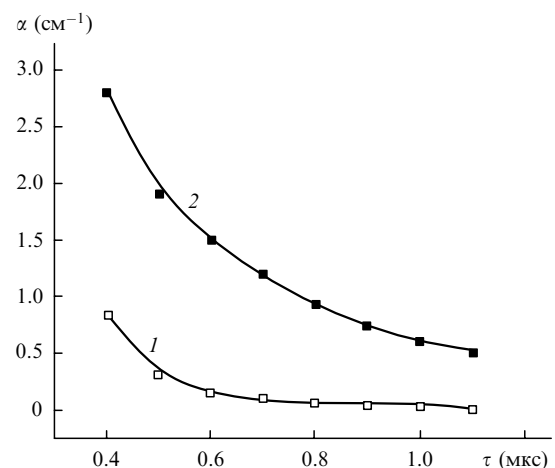


Рис.7. Расчетные временные зависимости коэффициента поглощения алюминиевой плазмы для излучения с $\lambda = 532$ (1) и 308 нм (2).

где n_i , n_e – концентрации ионов и электронов (в см^{-3}); λ – длина волны лазерного излучения (в нм); T_e – температура электронов (в эВ); $h\nu$ – энергия фотона (в эВ); Z – заряд иона; I – потенциал ионизации. Первое слагаемое (α_{ib}) в (1) обусловлено обратным тормозным поглощением, а второе (α_{phi}) связано с фотоионизацией атомов, возбужденных в состояние с энергией $\varepsilon_m^* > I - h\nu$ и имеющих концентрацию $n_m = n_0(g_m/g_0) \exp(-\varepsilon_m^*/T_e)$, где g_m , g_0 – статистические веса m -го и нулевого уровней; n_0 – населенность основного уровня. Для эксимерного лазера учитывался рост населенности возбужденного уровня $3d^2D_{3/2}$ в результате резонансного поглощения излучения, причем при насыщении $n_m = n_0 g_m / (g_m + g_0)$. Частота перехода $3p^2P_{1/2}^0 - 3d^2D_{3/2}$ атома алюминия ($\lambda = 308.21$ нм) попадает в область генерации ХеСl-лазера, поэтому при воздействии излучения данного лазера имеет место возбуждение атомов с основного уровня $3p^2P_{1/2}^0$ на уровень $3d^2D_{3/2}$ и ионизация их этим излучением.

При расчете по формуле (1) использовались экспериментально измеренные временные зависимости концентрации электронов и атомов в распадающейся алюминиевой плазме. Плотность электронов при этом определялась из измерений ширины эмиссионных линий в соответствии с теорией штарковского уширения. Контуры отдельных выбранных линий были проанализированы при различных задержках, чтобы получить временную эволюцию n_e . Электронная температура находилась по методу Больцмана. Более подробно методики и результаты определения концентрации и температуры электронов в лазерной плазме описаны в нашей предыдущей работе [9]. Результаты измерений параметров плазмы (n_e , T_e , n_a) для различных моментов времени τ после воздействия лазерного импульса на мишень приведены в табл.1.

Из рис.7 видно, что временной диапазон задержек, в котором существенно поглощение излучения в плазме первого лазерного импульса, не превышает 1 мкс, что согласуется с экспериментальными измерениями (рис.3,б). Следует отметить, что для излучения эксимерного лазера механизм двухступенчатой резонансной ионизации через промежуточный уровень продолжает действовать и после распада плазмы первого импульса ввиду более длительного периода существования пароголового облака вблизи поверхности мишени. Скорость образования заряженных частиц в этом случае определяется концентрацией атомов в основном состоянии и константами скоростей процессов ионизации с участием резонансно-возбужденных атомов. Согласно [24] сечение фотоионизации σ_{pi} атома алюминия с возбужденного уровня $3d^2D_{3/2}$ излучением эксимерного ХеСl-лазера составляет $(5.6 \pm 1.1) \times 10^{-18} \text{ см}^2$, а расчетное значение, полученное в работе [24] – $2.4 \times 10^{-18} \text{ см}^2$. Скорость фотоионизации возбужденного атома под действием излучения с плотностью мощности $P = 5 \times 10^8 \text{ Вт/см}^2$, определяемая выражением $W = \sigma_{pi} P / h\nu$, достигает $4.3 \times 10^9 \text{ с}^{-1}$ при вероятности радиационного распада уровня $3d^2D_{3/2}$, равной $1.37 \times 10^8 \text{ с}^{-1}$. Плотность энергии лазерного излучения в канале фотоионизации, соответствующая конвертации в ион каждого возбуждаемого атома, оценивается как $\sim 0.14 \text{ Дж/см}^2$.

На основании выполненных исследований и анализа литературных источников [14–17] можно предположить, что имеет место следующая картина эволюции плазмы при одно- и двухимпульсной лазерной абляции. При воз-

действии одиночного лазерного импульса после испарения материала мишени его передним фронтом и образования плазмы (посредством обратного тормозного поглощения в первоначальном пароголовом облаке) при достаточно высоких интенсивностях излучения условия экранировки в плазме выполняются и абляция поверхности прекращается. Вместе с тем быстрое испарение материала приводит к резкому возрастанию давления, инициирующему ударную волну в окружающей атмосфере, на фронте которой происходит поглощение оставшейся части импульса лазерного излучения. Вообще, при лазерной абляции в атмосфере можно выделить три основные области: поверхность мишени, эрозивную плазму, содержащую основную часть испаренного материала, и плазменную оболочку (фронт ударной волны) [16]. В случае одиночного импульса существенная часть его может экранироваться фронтом ударной волны и не проникать в область плазменного ядра.

Когда на поверхность мишени воздействуют два импульса с некоторым временным сдвигом между ними, ситуация меняется. После первого импульса плазма расширяется, рекомбинирует и электронная плотность резко уменьшается со временем. Второй лазерный импульс проходит через относительно разреженную плазму, поэтому он способен проникать в нее, эффективнее возбуждать продукты абляции и взаимодействовать с поверхностью. Это приводит к увеличению как количества испаренного материала, так и степени его возбуждения и ионизации.

4. Заключение

Таким образом, выполненные спектроскопические и зондовые исследования плазмы, образуемой вблизи поверхности алюминиевой мишени при воздействии на нее двух последовательных импульсов лазерного излучения, показали возможность увеличения степени ионизации плазмы. Определен временной интервал получения максимальной относительной интенсивности ионных линий, достигающей пяти для используемых в эксперименте параметров лазерных импульсов.

Наблюдаемое увеличение эмиссии плазмы может быть связано с возрастанием эффективности взаимодействия второго лазерного импульса с поверхностью мишени, приводящего к увеличению количества испаренного вещества и улучшению условий его возбуждения в присутствии плазмы первого импульса. Эффективность формирования возбужденных частиц увеличивается за счет процессов селективного лазерного возбуждения вследствие резонансного взаимодействия второго импульса с плазмой.

Влияние взаимодействия излучения второго лазера с приповерхностной плазмой, образованной первым лазерным импульсом, посредством механизмов обратного тормозного и фотоионизационного поглощения существенно лишь при малых временных задержках (0–1.5 мкс после первого лазерного импульса). Результаты спектроскопических измерений подтверждаются анализом зондовых характеристик, показавшим повышение концентрации заряженных частиц в плазме, создаваемой при двухимпульсной абляции. Увеличение степени ионизации лазерно-абляционной плазмы при надлежащем выборе длин волн и временного интервала в последовательности импульсов может быть использовано для оп-

тимизации ряда технологических процессов, а также совершенствования лазерного спектрального анализа.

Работа выполнена при частичной финансовой поддержке Белорусского республиканского фонда фундаментальных исследований (грант № 03-177).

1. *OSA Trends in Optics and Photonics (TOPS). Vol.81. Laser Induced Plasma Spectroscopy and Applications* (Washington DC, Optical Society of America, 2002).
2. Chrisey D.B., Hubler G.K. (Eds) *Pulsed Laser Deposition of Thin Films* (New York: Wiley, 1994).
3. Cuomo J., Pappas D.L., Bruley J., Doyle J.P., Saenger K.L. *J. Appl. Phys.*, **70**, 1706 (1991).
4. Новодворский О.А., Филипова Е.О., Храмова О.Д., Шевелев А.К., Венцель К., Барта И.В. *Квантовая электроника*, **31**, 159 (2001).
5. Демьяненко А.В., Летохов В.С., Пурецкий А.А., Рябов Е.А. *Квантовая электроника*, **25**, 36 (1998).
6. Mukherjee P., Cuff J.B., Witanachi S. *Appl. Surf. Sci.*, **127–129**, 620 (1998).
7. Wheeler C.B., Fielding S.J. *Plasma Phys.*, **12**, 551 (1970).
8. Burakov V.S., Bokhonov A.F., Nedel'ko M.I., Tarasenko N.V. In: *Progress in Plasma Processing of Materials* (Amsterdam: Elsevier, 2001, p. 661).
9. Бураков В.С., Бохонов А.Ф., Науменков П.А., Неделько М.И., Тарасенко Н.В. *ЖПС*, **65**, 426 (1998).
10. Burakov V.S., Bokhonov A.F., Nedel'ko M.I., Tarasenko N.V. *Appl. Surf. Sci.*, **138–139**, 350 (1999).
11. Amoroso S., Armenante M., Berardi V., Bruzzese R., Spinelli N. *Appl. Phys. A*, **65**, 265 (1997).
12. Гайдаренко Д.В., Леонов А.Г. *Письма в ЖТФ*, **18**, 21 (1992).
13. Knudtson J.T., Green W.B., Sutton D.G. *J. Appl. Phys.*, **61**, 4771 (1987).
14. Петух М.Л., Розанцев В.А., Широканов А.Д., Янковский А.А. *ЖПС*, **67**, 798 (2000).
15. Першин С.М. *Квантовая электроника*, **16**, 325 (1989).
16. St-Onge L., Detalle V., Sabsabi M. *Spectrochim. Acta B*, **57**, 121 (2002).
17. Amoroso S. *Appl. Phys. A*, **69**, 323 (1999).
18. Mao X., Russo R.E. *Appl. Phys. A*, **64**, 1 (1997).
19. Антипов А.А., Грасюк А.З., Ефимовский С.В., Курбасов С.В., Лосев Л.Л., Сосков В.И. *Квантовая электроника*, **25**, 31 (1998).
20. Гончаров В.К. *Инженерно-физический ж.*, **74**, 87 (2001).
21. Зельдович Я.Б., Райзер Ю.П. *Физика ударных волн и высокотемпературных гидродинамических явлений* (М.: Наука, 1966).
22. Lunney J.G., Jordan R. *Appl. Surf. Sci.*, **127–129**, 941 (1998).
23. Касьянов В.А., Старостин А.Н. В сб. *Химия плазмы* (М.: Энергоатомиздат, 1990, вып. 16, с. 67).
24. Beterov I.M., Ishchenko V.N., Kochubei S.A., Kurochkin V.L. *Opt. Commun.*, **54**, 100 (1985).