

Спектроскопия лазерного факела. 1. Графитовая мишень

В.В.Осипов, В.И.Соломонов, В.В.Платонов, О.А.Снигирева, М.Г.Иванов, В.В.Лисенков

Исследованы спектрально-кинетические характеристики факела, возникающего возле графитовой мишени, облучаемой в воздухе при комнатной температуре импульсным CO₂-лазером ($\lambda = 10.6$ мкм) с пиковой мощностью 9 кВт (энергия импульса 1.69 Дж, длительность 330 мкс по уровню 0.1). Показано, что факел, распространяющийся нормально к поверхности мишени и под углом 45° к лазерному излучению, представляет собой поток неравновесной газобразной плазмы с температурой порядка 10 кК, а его форма и размеры определяются формой и мощностью лазерного импульса. В факеле возбуждается свечение ионов C⁺ и молекул C₂. Температура и свечение поддерживаются энергией экзотермической реакции ассоциации атомов углерода и образующихся в ней колебательно-возбужденных молекул.

Ключевые слова: взаимодействие излучения с веществом, лазерный факел, графитовая мишень.

1. Введение

В настоящее время для напыления алмазоподобных пленок, получения наноразмерных трубок и порошков широко используется испарение графита импульсными лазерами [1–8]. Несмотря на многочисленные исследования плазмы, получаемой при лазерном испарении, до сих пор нет общепринятой модели лазерного факела и процессов конденсации плазмы факела в наночастицы. В [1, 3] предполагается, что вещество из мишени поступает в факел в виде атомного пара. Однако спектральные линии атома углерода были обнаружены только в факеле, возникающем при облучении NiO-содержащего графита KrF-лазером в атмосфере кислорода при давлении ниже 0.15 Тор [8]. В [4, 5, 7] спектральные линии атома углерода не были обнаружены, но наблюдалось свечение в факеле ионов C⁺, а также двухатомных (C₂) и трехатомных (C₃) молекул углерода.

При облучении графита в вакууме импульсным CO₂-лазером [4] и в атмосфере аргона второй гармоникой Nd-лазера [5] в излучении факела была обнаружена яркая широкая полоса с максимумом на $\lambda = 510$ нм. Было показано [4], что эта полоса появляется первой и только спустя несколько десятков наносекунд возникают спектральные линии иона C⁺, а затем полосы Свана молекулы C₂. В [4] наличие широкой полосы связывают со свечением раскаленных микрочастиц углерода, но в [5] это предположение подвергается сомнению. В [7] в спектре факела при облучении графита в атмосфере нагретого до 1200 °С аргона излучением импульсного CO₂-лазера был обнаружен сплошной спектр с максимумом на $\lambda > 700$ нм, имеющий явно выраженный тепловой (планковский) характер и температуру ниже 4600 °С. На основании это-

го в [9] предполагалось, что образование наночастиц происходит уже на стадии расширения плазменного факела в буферный газ (воздух).

Кажущаяся противоречивость представленных результатов, по-видимому, обусловлена тем, что они получены в разных условиях. Это скорее всего означает, что при любом существенном изменении характеристик лазерного излучения, создающего факел, необходимо проводить отдельное исследование его параметров. Поэтому целью настоящей работы являлось проведение комплексных исследований пространственных спектрально-кинетических параметров свечения факела, возникающего на графитовой мишени в воздухе под действием импульсно-периодического CO₂-лазера «ЛАЭРТ» [3].

2. Схема и методика эксперимента

Схема экспериментальной установки приведена на рис.1. Использовался тот же, что и в [3, 9], импульсно-периодический CO₂-лазер «ЛАЭРТ». Его многомодовое излучение с поперечным сечением 3 × 4 см фокусировалось на плоскую графитовую мишень 1 с помощью КС-линзы 7 с фокусным расстоянием 10 см. Облучение проводилось в воздухе при комнатной температуре. Для исключения попадания лазерного импульса в один и тот же кратер мишень механически перемещалась после каждого импульса (кроме специальных экспериментов).

Сканирование свечения лазерного факела по длине осуществлялось с помощью кварцевого световода 4 диаметром 1 мм, передающего световой поток на входную щель спектральных приборов 5 для измерения спектров и кинетики излучения. Световод устанавливался в фокальной плоскости 3 кварцевой линзы 8, переносящей изображение факела с 8-кратным увеличением. Такая система обеспечивала пространственное разрешение спектрально-кинетических измерений не хуже 0.25 мм.

Спектр свечения факела в диапазоне 350–800 нм регистрировался за один импульс посредством дифракционного спектрографа и многоканального фотоприемника на базе ПЗС-линейки, связанного с компьютером. Из-

В.В.Осипов, В.И.Соломонов, В.В.Платонов, О.А.Снигирева, М.Г.Иванов, В.В.Лисенков. Институт электрофизики УрО РАН, Россия, 620016 Екатеринбург, ул. Амурдсена, 106; e-mail: plasma@ier.uran.ru, max@ier.uran.ru

Поступила в редакцию 9 декабря 2004 г., после доработки – 18 марта 2005 г.

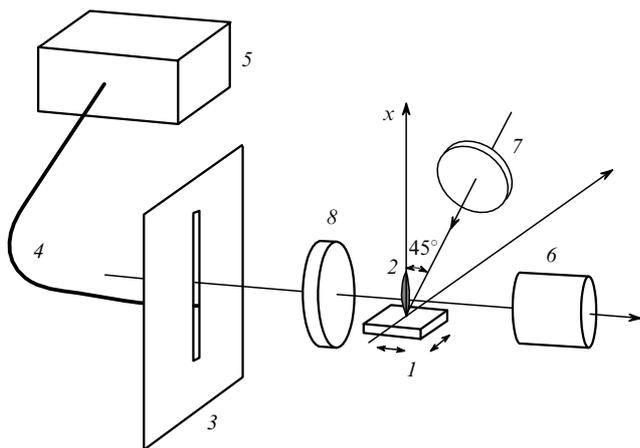


Рис.1. Схема экспериментальной установки:

1 – графитовая мишень; 2 – лазерный факел; 3 – фокальная плоскость кварцевой линзы; 4 – световод; 5 – спектральные приборы; 6 – устройство для регистрации лазерного импульса; 7 – KCl-линза с фокусным расстоянием 10 см.

мерялась интегральная по времени интенсивность $I(\lambda) = \int_{t_0}^{T_0} I(\lambda, t) dt$, где $T_0 = 10$ мс – экспозиция фотоприемника; t_0 – начало интегрирования, с точностью ± 1 мкс совпадающее с началом лазерного импульса. Затем спектральная информация усреднялась по 10 импульсам. Погрешность измерения длины волны была не хуже 0.75 нм, полуширина аппаратной функции равнялась 2 нм, спектральное разрешение составляло около 2 нм. Градуировка спектра по длинам волн осуществлялась с помощью спектральной ртутной дуговой лампы, а по интенсивности – с помощью эталонной лампы накаливания.

Кинетика свечения $I(\lambda, t)$ измерялась с помощью монохроматора МСД-1 и фотоумножителя ФЭУ-100, подключенного к двухканальному осциллографу Tektronix-520A с полосой пропускания 500 МГц. Точность установки длины волны на монохроматоре была равна 2 нм при такой же ширине аппаратной функции. Для определения времени появления (от начала лазерного импульса) полос излучения факела на второй канал осциллографа подавался сигнал с пироэлектрического датчика лазерного излучения и/или импульс интегрального излучения факела, регистрируемого с помощью ФЭК-22. Точность синхронизации составляла ± 1 мкс.

Измерения спектрально-кинетических характеристик факела проводились для падающего под углом 45° на поверхность мишени лазерного импульса с энергией $W_{\text{las}} = 1.69$ Дж, мощностью $P_{\text{las}} = 9$ кВт, длительностью $t_{\text{las}} = 330$ мкс по уровню 0.1 и максимумом при $t_m \approx 130$ мкс. При этих параметрах лазера получались наиболее мелкие нанопорошки [3]. Фокальное пятно излучения лазера на мишени имело эллиптическую форму с осями 1.2 и 0.7 мм. В дополнительных экспериментах с помощью скоростной кинокамеры ВФУ-1 регистрировалось изменение геометрии и яркости свечения факела при изменении энергии, мощности и формы лазерного импульса, а также его угла падения.

3. Результаты измерений

Во всех случаях лазерный факел распространялся нормально к поверхности мишени. Он имел грибовидную форму и состоял из цилиндрического столба, переходя-

щего в облако неправильной формы. (Развернутые во времени типичные фотографии факела приведены в [9].) При сохранении формы лазерного импульса с ростом его мощности от 2.7 до 9 кВт сильно увеличивались яркость свечения факела, его полная длина (от 7 до 23 мм), длина столба (от 5 до 14 мм) и поступательная скорость его распространения (от 40 до 110 м/с), а диаметр столба увеличивался слабо (в пределах 1.5–1.8 мм). Практически постоянным оставалось время достижения максимальной длины столба, которое совпадало со временем достижения абсолютного максимума мощности лазерного импульса $t_m \approx 130$ мкс. При изменении угла падения лазерного пучка от 90° до 45° форма и яркость свечения факела изменялись незначительно. При спектрально-кинетических исследованиях после облучения мишени лазерным импульсом мощностью 9 кВт на ней образовывался кратер цилиндрической формы с размером 0.6×0.3 мм и глубиной около 5 мкм. Это соответствовало испарению 3.6–4.5 мкг углерода за один импульс.

Спектральные измерения. На рис.2 приведены спектрограммы излучения факела, зарегистрированные на разном удалении от мишени. Наиболее яркое свечение наблюдалось на поверхности мишени (в области $0 < l < 0.25$ мм). В его спектре проявлялись две широкие полосы гауссовой формы с $\Delta\lambda = 102$ и 27 нм: при $\lambda = 571$ нм (17513 см^{-1}) и 406 нм (24631 см^{-1}) соответственно (рис.2,а), расположенные на широком пьедестале. При удалении от мишени на расстояние $l = 0.25$ мм интегральная интенсивность свечения уменьшалась в 4.6 раза (рис.2,б), а в спектре отчетливо были видны три полосы Свана молекулы C_2 ($d^3\Pi_g \rightarrow a^3\Pi_u$), ранее наблюдаемые в [4, 5, 7]. Коротковолновая полоса соответствует переходу с изменением колебательного квантового числа $\Delta v = v_u - v_l = +1$. При убывании интенсивности в этой полосе проявлялись линии переходов 3–2 ($\lambda = 469.6$ нм (21295 см^{-1})), 2–1 ($\lambda = 470.9$ нм (21236 см^{-1})) и 1–0 ($\lambda = 473.5$ нм (21119 см^{-1})). В длинноволновой полосе ($\Delta v = v_u - v_l = -1$) наиболее интенсивными являлись линии переходов 2–3 ($\lambda = 554.2$ нм (18044 см^{-1})) и 1–2 ($\lambda = 558.5$ нм (17905 см^{-1})). В полосе с $\Delta v = v_u - v_l = 0$ выделялась сильная линия с $\lambda = 516.3$ нм (19369 см^{-1}) (переход 0–0). На эту полосу накладывались спектральные линии иона C^+ с $\lambda = 513.0, 511.9$ и 514.3 нм ($19493, 19535$ и 19444 см^{-1} соответственно), ранее наблюдаемые в [4]. Отдельно проявлялась новая узкая сильная линия с $\lambda = 589.1$ нм (16975 см^{-1}). Кроме того, в спектре оставалась широкая коротковолновая полоса при $\lambda = 406$ нм (24631 см^{-1}), которую относят к излучению молекулы C_3 ($X^1\Sigma_g^+ \rightarrow A^1\Pi_u$) [10]. Все эти полосы, линии и широкий пьедестал оставались в спектре остальных участков факела. По мере удаления от мишени в спектре факела проследуют следующие изменения (рис.2 и 3):

1. Пространственные зависимости интенсивности всех полос и пьедестала (рис.3) имеют осциллирующий характер. Столб факела ограничивается двумя глубокими минимумами интенсивности при $l_1 \approx 0.6$ мм и $l_2 \approx 14$ мм, но в нем для всех полос излучения наблюдается сильный локальный максимум при $l = 6$ мм. Здесь интенсивность $I(\lambda)$ полосы Свана при $\lambda = 516.0$ нм становится равной интенсивности на мишени. Однако интегральная по всему регистрируемому диапазону длин волн (от $\lambda' = 350$ нм до $\lambda'' = 800$ нм) яркость свечения $I = \int_{\lambda'}^{\lambda''} I(\lambda) d\lambda$ в этом месте факела оказывается в 2.2 раза меньше, чем на мишени.

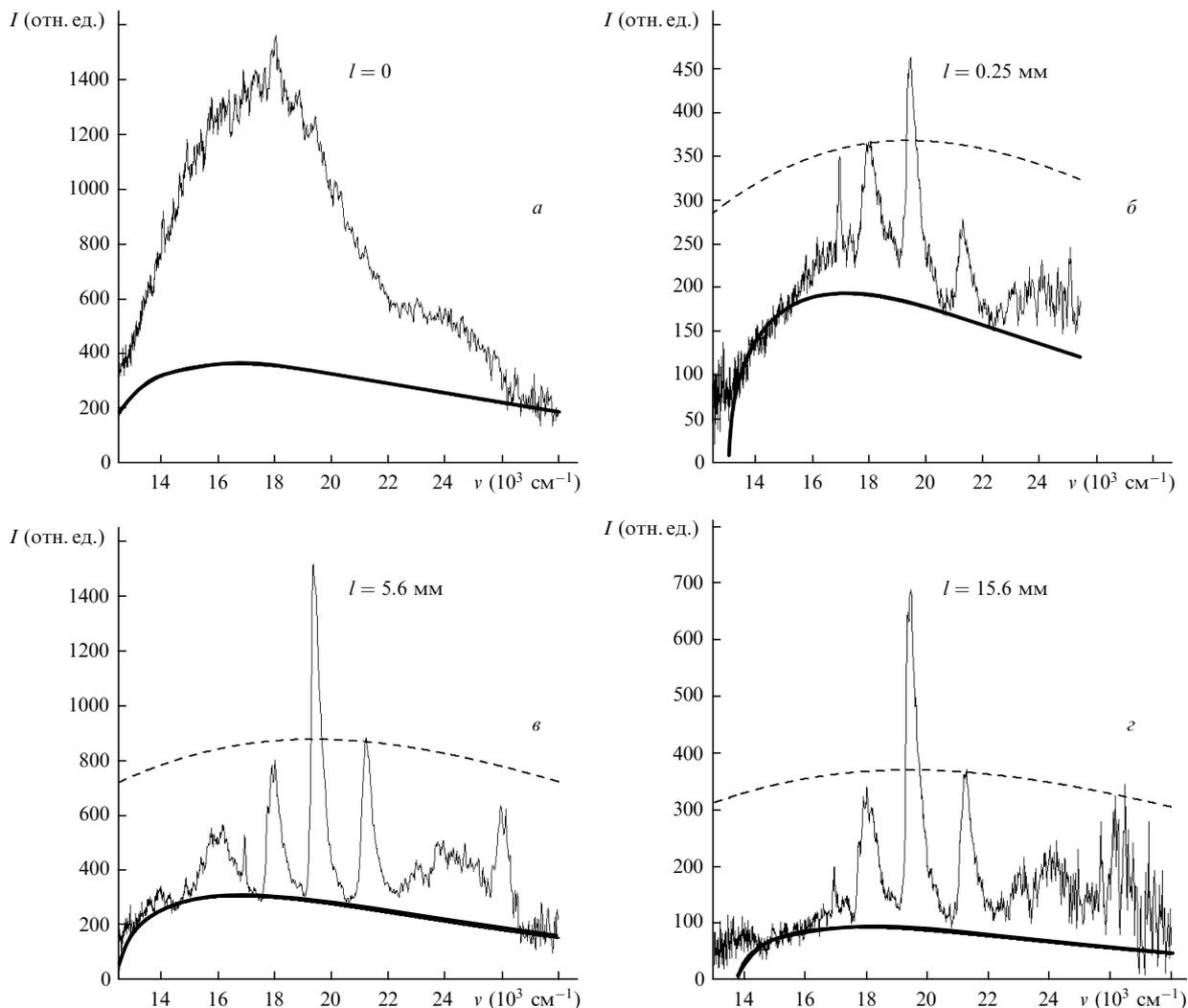


Рис.2. Спектрограммы свечения факела (тонкие сплошные кривые) на разных расстояниях до мишени l . Жирные кривые – аппроксимация рекомбинационного излучения, штриховые – планковские кривые.

2. Интенсивности полос Свана молекулы C_2 , ионов углерода C^+ и пьедестала изменяются по одному и тому же закону (рис.3).

3. Начиная с $l = 5$ мм, в спектре появляются две полосы при $\lambda = 382.8$ и 385.1 нм, которые мы идентифицировали как полосы системы Деландра – д’Азамбука молекулы C_2 ($C^1P_g \rightarrow A^1\Pi_u$) на колебательных переходах 0–0 и 1–1 соответственно. Они появляются в пределах

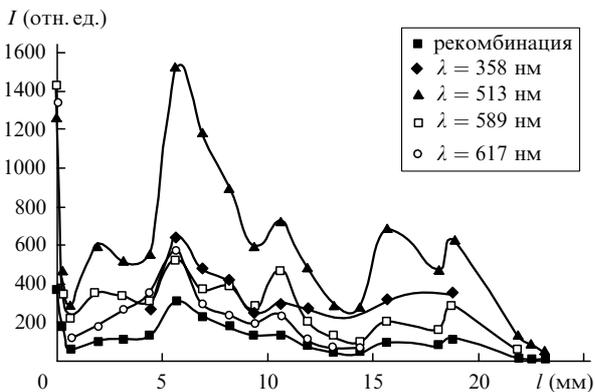


Рис.3. Зависимости интенсивностей $I(\lambda, l)$ различных спектральных полос факела от расстояния до мишени l .

столба факела, а их интенсивности достигают максимума вблизи $l = 6$ мм.

4. При $l > 3$ мм и далее до конца факела в области полосы молекулы C_3 регулярно появляется структура с пиками на $\lambda = 416.5, 417.9$ и 419.7 нм, которые мы приписываем линиям излучения молекулярного иона азота N_2^+ (переход $B^2\Sigma_u^+ \rightarrow X^2\Sigma_g^+$) [11].

5. Начиная с $l > 3$ мм, в пределах столба факела стохастически (не в каждом импульсе) проявляется сильная структурированная полоса в области 600–670 нм с пиками на $\lambda = 617.3, 632.2, 634.6$ и 670.7 нм, которые можно приписать излучению с высоковозбужденных колебательных уровней первой положительной системы полос молекулы N_2 . Стохастичность возникновения этой полосы проявляется и при сканировании лазерного излучения по поверхности графита, и при облучении в один и тот же кратер.

Кинетические измерения. На поверхности мишени свечение возникает одновременно (с точностью до 1 мкс) с лазерным импульсом. По мере удаления от мишени свечение факела запаздывает относительно начала лазерного импульса на время t_d , которое увеличивается с ростом l (рис.4). В точках факела, находящихся на расстоянии $l < 9$ мм от мишени (при $t < 80$ мкс от начала лазерного импульса), для всех полос наблюдается локальный мак-

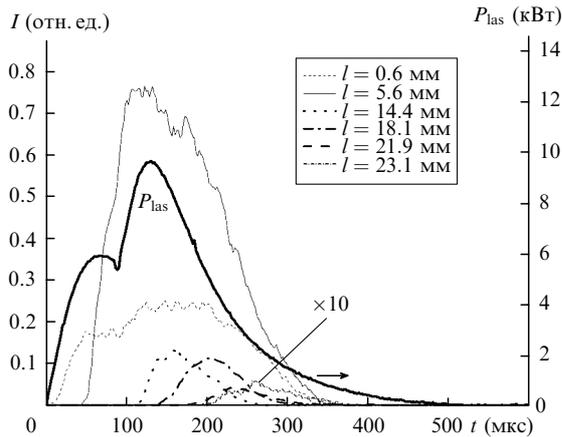


Рис.4. Кинетика интенсивностей спектральных полос $I(t)$ и профиль лазерного импульса $P_{\text{las}}(t)$.

симум или плато интенсивности. Главный максимум достигается при больших временах. При $l > 9$ мм имеет место только один максимум, время достижения которого увеличивается по мере удаления точки факела от мишени. Последующий за ним спад интенсивностей всех полос происходит приблизительно одинаковым образом с характерным временем, значительно превышающим, как и в [5], время жизни верхних уровней оптических переходов. Излучение всех спектральных полос и пьедестала в разных точках факела (в столбе и в облаке) прекращается практически одновременно с окончанием импульса лазерного излучения.

Для всех спектральных полос времена запаздывания t_d различны (рис.5). В частности, наблюдается устойчивая тенденция к более раннему появлению пьедестала и полосы Свана ($\Delta\nu = 0$) при $\lambda = 516$ нм, на которую накладываются спектральные линии иона C^+ с $\lambda = 513.0, 511.9$ и 514.3 нм. Позже всех появляются спектральные полосы молекул воздуха и трехатомной молекулы углерода.

В столбе факела имеет место практически линейная зависимость времени задержки, усредненного по всем полосам, от расстояния до мишени l . Существенное отклонение от этой зависимости происходит в облаке факела и возле мишени при $l < 0.6$ мм. Такое поведение является следствием поступательного распространения факела вдоль оси x (см. рис.1). При этом скорость распространения факела $V_f = l/t_d$ нарастает возле мишени, в столбе факела становится почти постоянной (~ 110 м/с), а в облаке монотонно падает.

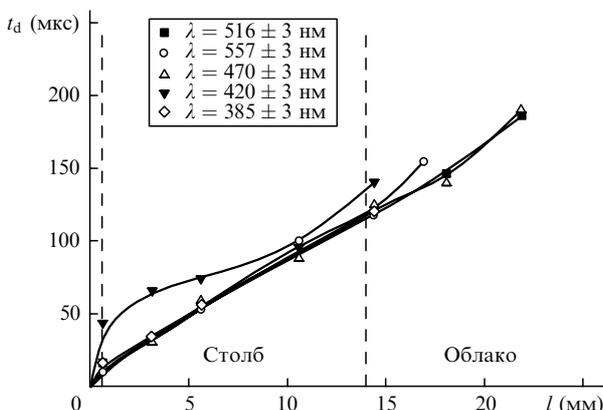


Рис.5. Зависимости времени задержки (по уровню 0.1) t_d свечения факела от расстояния до мишени l .

4. Обсуждение результатов

Аппроксимация результатов. Полоса сплошного спектра, образующего пьедестал, присутствует во всех точках факела. Ее контур (рис.2, тонкая сплошная кривая) удовлетворительно аппроксимируется кривой, отражающей излучательную рекомбинацию ионизованных частиц при максвелловском распределении свободных электронов по энергиям:

$$I(h\nu) = \frac{a(h\nu - \Delta E)^{1/2}}{(kT_e)^{3/2}} \exp\left(-\frac{h\nu - \Delta E}{kT_e}\right), \quad (1)$$

где a – нормировочный коэффициент; T_e – температура электронов. В этой реакции излучаются фотоны с энергией $h\nu = E + \Delta E$, где E – энергия свободного электрона, а ΔE – разность между потенциалом ионизации и эффективным уровнем энергии частицы, образующейся в результате рекомбинации. На всей длине факела разность ΔE остается постоянной ($\Delta E \approx 12700 \pm 300 \text{ см}^{-1}$), а T_e снижается от 15 кК в начале столба факела до 10 кК в конце столба.

Во всех точках факела, кроме точки с $l = 0$, огибающая максимумов интенсивностей спектральных полос удовлетворительно описывается планковской кривой (рис.2, штриховая кривая) с температурой распределения $T_p \approx 10$ кК. Возвышение над ней полосы Свана при $\lambda = 516$ нм представляет собой чисто «инструментальный» эффект, обусловленный сложением аппаратных контуров близко расположенных узких линий независимых излучателей с приблизительно одинаковой интенсивностью: ионов C^+ ($\lambda = 513.0, 511.9$ и 514.3 нм) и молекул C_2 ($\lambda = 516.3$ и 512.9 нм). Интервал между этими линиями сравним с полушириной аппаратной функции ($\Delta\lambda = 2$ нм), поэтому сложение их аппаратных контуров приводит к псевдовозрастанию высоты суммарного контура (рис.6).

Из проведенной аппроксимации следует, что вещество в факеле находится в состоянии почти равновесной

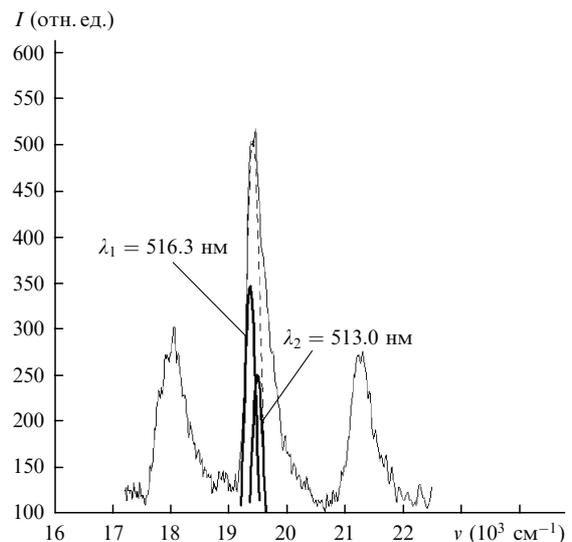


Рис.6. Влияние ширины аппаратной функции на измеряемую интенсивность (тонкая сплошная кривая) в области полосы Свана при $\lambda = 516$ нм. Жирные кривые – аппаратные контуры спектральных линий иона C^+ с $\lambda_1 = 513.0$ нм и молекулы C_2 с $\lambda_2 = 516.3$ нм, штриховая – их суммарный контур.

газообразной плазмы с температурой ~ 10 кК. Поэтому образование в нем наночастиц углерода невозможно.

Нагрев плазмы факела. До температуры ~ 10 кК плазма может быть разогрета за счет экзотермической реакции ассоциации испаряемых из мишени атомов углерода с участием третьей частицы М:



В каждом акте этой реакции выделяется энергия, равная 6.2 эВ. Эта энергия распределяется по трем внутренним (одна колебательная и две вращательных) и трем поступательным степеням свободы образующейся молекулы C_2 . В результате температура молекул может возрасти более чем на 20 кК, т. е. больше, чем наблюдается в эксперименте. Это объясняется, во-первых, обменом энергией с более холодными частицами, не участвующими в реакции (2), во-вторых, тем, что часть вещества из мишени может вылетать уже в виде молекул, и, в-третьих, образованием молекул в высоковозбужденных колебательных состояниях, из-за чего колебательная температура может превышать поступательную и вращательную. Можно оценить степени ионизации и диссоциации плазмы из соотношений, вытекающих из принципа детального равновесия:

$$k_r n_c^2 = N^2 \sigma_m V_m \exp\left(-\frac{\varepsilon_i}{kT}\right), \quad (3)$$

$$N_c^2 k_a N = N^2 \sigma_m V_m \exp\left(-\frac{\varepsilon_d}{kT}\right). \quad (4)$$

Левые части этих соотношений представляют собой число актов рекомбинации (3) и ассоциации (4), правые – число актов ионизации (3) и диссоциации (4) в единице объема в единицу времени. Здесь N_C – концентрация атомов углерода; k_r , k_a – константы рекомбинации и ассоциации; n_c – концентрация электронов; N – концентрация нейтральных молекул; σ_m – газокинетическое сечение столкновений; V_m – средняя скорость хаотического движения молекул; $\varepsilon_i = 11.9$ эВ и $\varepsilon_d = 6.2$ эВ – энергии ионизации и диссоциации. Энергетически реакции ассоциации и диссоциации углерода и кислорода подобны. Поэтому для оценок константы скорости реакций рекомбинации и ассоциации углерода можно взять такими же, как у кислорода: $k_r \approx 10^{-7}$ см³/с, $k_a \approx 10^{-31}$ см⁶/с [12]. Считаем, что в факеле давление плазмы близко к атмосферному. Тогда концентрация тяжелых частиц в плазме $N \approx 10^{18}$ см⁻³ и будет в $T_p/T_r \approx 33$ раза меньше, чем в воздухе (T_r – комнатная температура). Отсюда следует, что в плазме факела $n_c \approx 10^{13} - 10^{14}$ см⁻³, а $N_C \approx 10^{16} - 10^{17}$ см⁻³.

Для оценки влияния лазерного излучения на параметры плазмы факела возле мишени численно решалось уравнение Больцмана для электронов в высокочастотном электромагнитном поле и рассчитывались кинетические константы процессов с участием электронов. Оказалось, что скорости ионизации и диссоциации электронным ударом существенно меньше соответствующих скоростей термических процессов.

Механизм возбуждения свечения. Свечение плазмы с полосатым спектром гаснет по всей длине факела одновременно с окончанием лазерного импульса (рис.4). Это свечение поддерживается запасенной внутренней энергией молекул C_2 и, частично, внешней, поступающей от

мишени энергии, выделяемой в реакции (2). Характерное время этой реакции $\tau = (k_a N^2)^{-1} \approx 10^{-5}$ с (при $N = 10^{18}$ см⁻³) достаточно велико для того, чтобы реакция (2) имела место на всей длине факела. Электронно-возбужденные молекулы C_2^* , излучающие полосы Свана, могут возникать как путем термического возбуждения, так и при неупругом обмене энергией колебательно-возбужденных молекул, образуемых непосредственно в реакции (2).

Излучение ионов C^+ осуществляется на оптических переходах $3p^4P \rightarrow 3s^4P^0$ ($\lambda = 511.9$ и 514.3 нм [4]), $3p^2P \rightarrow 4p^2P^0$ ($\lambda = 513.0$ нм) и $4p^2P^0 \rightarrow 3d^2D$ ($\lambda = 589$ нм). Верхние уровни первых двух переходов расположены ниже основного состояния иона C^{2+} на $\delta E = 10234$ и 14634 см⁻¹ соответственно. Верхний уровень $4p^2P^0$ третьего перехода расположен ниже нижнего уровня $3s^4P^0$ первого перехода на $\delta E = 4440$ см⁻¹ (т. е. на величину порядка kT). Верхние уровни первых двух переходов могут возбуждаться при рекомбинации двухзарядных ионов C^{2+} . Однако образование таких ионов в плазме факела маловероятно. Наличие в плазме высоковозбужденных ионов C^+ можно объяснить каскадной передачей энергии от электронно-возбужденной молекулы C_2^* . Действительно, в плазме факела имеются ионы C^+ , концентрация которых в результате обмена зарядами между ионами C^{2+} и C^+ поддерживается равной $(1 - 4)(N_{C^{2+}} N_C / N) \approx 10^{13} - 10^{14}$ см⁻³.

В свою очередь, излучательная рекомбинация ионов C^+ и C^{2+} образует в спектре свечения факела пьедестал. Следует предположить, что основной вклад в пьедестал вносит излучательная рекомбинация ионов. Предположение основано на том, что именно в этой реакции могут образовываться атомы углерода преимущественно в состоянии $4s^3P^0$ с энергией, отличающейся от энергии ионизации на $\delta E = 12773 - 12730$ см⁻¹, что хорошо совпадает с аппроксимационным значением $\Delta E \approx 12700 \pm 300$ см⁻¹. Отсутствие в спектре линий излучения атома углерода объясняется, во-первых, тем, что они находятся в УФ области спектра и не регистрируются нашей аппаратурой, а во-вторых, сильной конкуренцией реакции (2).

Распространение факела. Размеры факела и интенсивность его свечения определяются потоком плазмы из области мишени и скоростью ее рекомбинации. В одномерном приближении выражение для изменения концентрации атомов углерода N_C , ассоциация которых в итоге приводит к возбуждению плазмы, в каждой точке факела ($x = l$) можно записать в виде

$$\frac{dN_C}{dt} = f(t) - \frac{N_C}{\tau}, \quad (5)$$

где $\tau = 10^{-5}$ с – эффективное характерное время реакции (2); $f(t)$ – функция, описывающая поступление атомов углерода в точку факела $x = l$ со стороны мишени. Функция $f(t)$ определяется формой лазерного импульса $P_{las}(t)$, и ее можно представить в виде

$$f(t) = \begin{cases} P_{las}(t)w(x, t), & t_d < t < t_{las}, \\ 0, & t < t_d, t > t_{las}, \end{cases} \quad (6)$$

где t_d – время появления плазмы в точке $x = l$; t_{las} – длительность лазерного импульса по основанию; $w(x, t)$ – функция «рассеяния», учитывающая потери мощности лазерного излучения, не связанные с образованием и транспортировкой плазмы. Отсюда видно, что если значение

t много меньше характерного времени изменения мощности лазерного импульса (10^{-4} с), то изменение концентрации частиц с точностью до множителя $w(x, t)$ совпадает с формой лазерного импульса. Этот вывод подтверждается тем, что при облучении мишени лазерным импульсом с одним максимумом в кинетике интенсивностей всех полос при любых l наблюдается только один максимум.

Характерные области факела. Проанализируем поведение спектрально-кинетических параметров в факеле с точки зрения предложенной выше модели. В факеле выделяются три области с сильно различающимися параметрами свечения: окрестность поверхности мишени ($l \leq 0.6$ мм), столб ($0.6 < l \leq 14$ мм) с экстремальной точкой при $l = 5.6$ мм и головка (облако) при $23 > l > 14$ мм.

Непосредственно вблизи поверхности мишени ($l = 0$) одновременно с лазерным импульсом возникает яркое свечение, в спектре которого на широком пьедестале видны две широкие полосы гауссовой формы (рис.2). Пьедестал соответствует рекомбинационному излучению и удовлетворительно описывается формулой (1). При $\Delta E \approx 12800 \text{ см}^{-1}$ и $T_e \approx 15 \text{ кК}$ его высота является наибольшей и наблюдается максимальное отклонение спектра свечения от планковской кривой (рис.2). Наиболее интенсивная гауссова полоса соответствует системе полос Свана и «системе полос высокого давления» (электронно-колебательные переходы с $|\Delta v| > 1$) в молекуле C_2 . Вторая полоса соответствует излучению молекулы C_3 . Образование гауссова контура может быть связано только с перекрытием сильно уширенных (до $\Delta \lambda \approx 1 \text{ нм}$) электронно-колебательных линий при концентрации частиц $n_1 > 10^{20} \text{ см}^{-3}$. Такая концентрация может достигаться в приповерхностном слое толщиной порядка половины длины волны лазерного излучения ($l \approx 5 \text{ мкм}$) во время действия лазерного импульса. В этом слое образуется плазма высокого давления ($p_1 = n_1 k T_1$), под действием которого она расширяется в окрестность мишени размером не более 0.6 мм. Здесь ее внутреннее давление $p_2 = n_2 k T_2$ приблизительно уравнивается внешним давлением воздуха $p_a = n_L k T_L$ (n_L – число Ломмидта), температура T_2 снижается до 10 кК, а концентрация n_2 – до $\sim 10^{18} \text{ см}^{-3}$. При адиабатическом ($VT^{(\chi-1)^{-1}} = \text{const}$) расширении плазмы, состоящей преимущественно из двухатомных молекул ($\chi = 4/3$), ее начальная концентрация n_1 должна иметь значение, близкое к 10^{20} см^{-3} , а температура T_1 должна быть равна $\sim 25 \text{ кК}$.

В столбе факела ($l > 0.6$ мм) плазма движется поступательно с постоянной скоростью $V_f = l/t_d \approx 110 \text{ м/с}$, вытесняя окружающий воздух. Поэтому в спектре свечения столба при $l < 3$ мм отсутствуют полосы атмосферного газа. Наблюдаются только полосы излучения атомного иона C^+ , молекул C_2 и C_3 . Эти полосы хорошо разрешаются, а их интенсивность в начале столба (при $l = 0.6$ мм) уменьшается почти на порядок по сравнению с интенсивностью в окрестности мишени. Это указывает на резкое снижение концентрации плазмы. Однако температуры электронов и ионов плазмы, оцененные по соотношению (1) и формуле Планка, меняются слабо. Температура поддерживается подогревом частиц в реакции (2) и диссипацией колебательной энергии молекул C_2 . Столб факела достигает максимальной длины ($l = 14.4$ мм) в момент времени $t_d \approx 130 \text{ мкс}$, соответствующий максимуму мощности лазерного импульса (рис.4). Это указывает на то, что столб формируется во время нара-

стания мощности лазерного импульса. Именно нарастание мощности обеспечивает динамическое равновесие между давлением плазмы и сопротивлением воздуха. В результате этого скорость поступательного движения плазмы становится постоянной, а ее конкретное значение определяется скоростью нарастания лазерной мощности. Этот вывод подтверждается экспериментами, в которых мощность лазерного импульса уменьшается при сохранении его формы.

В наших экспериментах лазерный импульс имел два явно выраженных локальных максимума (рис.4). К моменту достижения первого максимума ($t_d \approx 55 \text{ мкс}$) длина столба факела достигала 6 мм. В этом месте наблюдался максимум интенсивности для всех спектральных линий и пьедестала. Появление максимума связано с уменьшением импульса направленного движения плазмы, вызванного спадом мощности лазерного импульса. Это привело к локальному захвату молекул окружающего газа и увеличению плотности плазмы, которое проявлялось в виде стохастических вспышек люминесценции молекул воздуха.

При $l > 14.4$ мм ($t_d \approx 130 \text{ мкс}$) движение плазмы снова замедляется, происходит диффузное размывание факела (образование облака) и повышение интенсивности свечения. Как и в столбе, свечение с полосатым спектром наблюдается в облаке до момента окончания лазерного импульса. Во время свечения температуры газа и электронов остаются высокими. После прекращения свечения с полосатым спектром в облаке длительное время (до 500 мкс) наблюдается более слабое бесструктурное тепловое излучение.

5. Заключение

Таким образом, проведенные исследования показали, что лазерный факел, образующийся при воздействии на графит излучения импульсного CO_2 -лазера мощностью 9 кВт, представляет собой поток почти равновесной плазмы с температурой тяжелых частиц порядка 10 кК. Эта температура и свечение с полосатым спектром поддерживаются энергией экзотермической реакции ассоциации атомов углерода и образующихся в ней колебательно-возбужденных молекул.

Во время нарастания мощности лазерного импульса факел распространяется в виде узкого столба цилиндрической формы с почти постоянной скоростью, направленной перпендикулярно к поверхности мишени. Во время спада лазерной мощности скорость движения факела снижается, а характер его распространения становится неустойчивым, при этом на конце столба образуется облако неправильной формы. Форма и размеры столба и облака факела определяются формой лазерного импульса. При этом свечение с полосатым спектром в факеле наблюдается только во время действия лазерного импульса.

Возле мишени во время действия лазерного излучения образуется плотная плазма с температурой $\sim 10 - 25 \text{ кК}$, значительно большей температуры сублимации графита ($T = 4.5 \text{ кК}$). Очевидно, что наличие этой плазмы должно оказывать существенное влияние на весь процесс испарения графита. И это влияние требует более внимательного изучения.

Во время действия лазерного импульса мощностью более 2.7 кВт при наличии в спектре свечения факела

полос и линий атомов и молекул углерода вероятность конденсации их в твердые частицы низка из-за высокой температуры плазмы. Твердые частицы образуются после охлаждения плазмы, в основном, в области облака факела. Из-за больших размеров этой области концентрация в ней атомов и молекул углерода низка, поэтому также низка вероятность образования твердых частиц большого размера.

Данная работа выполнена при частичной финансовой поддержке фонда INTAS (Project No. 03-51-3332) и Президиума УрО РАН (проект «Генерация мощных потоков когерентного излучения и его использование для создания новых технологий» по программе интеграции Уральского и Сибирского отделений РАН). М.Г.Иванов благодарит так же Фонд содействия отечественной науке и УрО РАН за финансовую поддержку.

1. Muller E., Oestreich Ch., Popp U., et al. *J. KONA – Powder and Particle*, № 13, 79 (1995).
2. Popp U., Herbig R., Michel G., et al. *J. European Ceramic Soc.*, **18**, 1153 (1998).
3. Котов Ю.А., Осипов В.В., Иванов М.Г. и др. *ЖТФ*, **72** (11), 76 (2002).
4. Демьяненко А.В., Летохов В.С., Пурецкий А.А., Рябов Е.А. *Квантовая электроника*, **25**, 36 (1998).
5. Ageralli S., Scott C.D. *Chem. Phys. Lett.*, **302**, 139 (1999).
6. Kokai F., Takahashi K., Yudasaka M., et al. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **33**, 545 (2000).
7. Kokai F., Takahashi K., Kasuya D., et al. *Appl. Phys. A*, **73**, 401 (2001).
8. Nakajima K., Furusava M., Yamamoto T., et al. *Diamond and Related Materials*, **11**, 953 (2002).
9. Месяц Г.А., Осипов В.В., Волков Н.Б. и др. *Письма в ЖТФ*, **29** (18), 54 (2003).
10. Monchicourt P. *Phys. Rev. Lett.*, **66**, 1430 (1991).
11. Липчак А.И., Соломонов В.И., Тельнов В.А., Осипов В.В. *Квантовая электроника*, **22**, 367 (1995).
12. Hokazono H., Fujimoto H. *J. Appl. Phys.*, **62**, 1585 (1987).