

Лазерный пробой в воздухе при сверхвысоких частотах следования импульсов облучения

В.В.Кононенко, Т.В.Кононенко, В.П.Пашинин, В.М.Гололобов, В.И.Конов

Экспериментально изучены особенности взаимодействия интенсивных фемтосекундных лазерных импульсов с воздухом при сверхвысоких частотах их следования. На временах не более 10 нс с помощью фемтосекундной интерферометрии получены данные по динамике разлета плазменного облака и плотности электронов в нем. Эти данные интерпретированы в рамках наиболее вероятных механизмов рекомбинации ионизованного газа. Эффект сверхвысокочастотного лазерного воздействия на среду моделировался двухимпульсным облучением с малой задержкой между импульсами $\Delta t = 1$ нс – 11 нс. Обнаружена немонотонная зависимость степени ионизации воздуха вторым импульсом от задержки Δt , возможные причины которой обсуждаются с точки зрения процессов поглощения фемтосекундного излучения в остаточной плазме.

Ключевые слова: фемтосекундное лазерное излучение, пробой воздуха, лазеры со сверхвысокой частотой следования импульсов.

1. Введение

Постоянное совершенствование лазерной техники привело к появлению импульсных источников, средняя выходная мощность которых достигает и даже превышает ~ 100 Вт при частоте следования импульсов ~ 100 МГц [1, 2]. В то же время известно, что уже при частотах ~ 4 кГц [3] в процессе абляции твердого тела начинают проявляться эффекты остаточного возбуждения, когда сама мишень или испаренный материал не успевает полностью релаксировать к приходу следующего импульса, что существенно влияет на установившийся режим абляции мишени.

На сегодняшний день достаточно хорошо изучена газодинамика паров мишени и влияние на нее окружающей атмосферы. В литературе применительно к долгоживущему (~ 1 мс) облаку горячего слабоионизованного газа, которое формирует около поверхности область пониженного давления, что, в частности, способствует увеличению скорости абляции, используется устоявшийся термин «огненный шар» [4, 5]. В практическом плане данный феномен может иметь и отрицательные последствия, вызывая эрозионное травление поверхности и ухудшая качество лазерной обработки [6].

Проведенные исследования, однако, имеют два пробела, что выяснилось сейчас, когда созданы фемтосекундные лазеры, для которых при частоте следования импульсов ~ 100 МГц пиковая мощность превышает 12 МВт [2]. В этих условиях достаточно острая фокусировка способна обеспечить интенсивность $\sim 5 \times 10^{14}$ Вт/см², при которой даже в отсутствие поглощающей мишени происходит пробой воздуха и, очевидно, очень важными становятся нелинейные процессы при поглощении излучения и рас-

пространении лазерного пучка. Кроме того, интересующие нас характерные времена составляют сегодня ~ 10 нс и менее с учетом уже реализованной максимальной частоты следования импульсов мощных лазерных источников.

Цель данной работы – изучение особенностей взаимодействия интенсивных фемтосекундных лазерных импульсов с воздухом при сверхвысоких (~ 100 МГц) частотах их следования. Использовались два взаимно дополняющих подхода: исследование динамики релаксации воздушной плазмы, созданной одиночным лазерным импульсом, методом фемтосекундной интерферометрии; изучение особенностей ионизации воздушной среды парой импульсов с варьируемой в диапазоне 1 пс – 10 нс временной задержкой, что позволило оценить в первом приближении эффект высокочастотного лазерного облучения.

2. Эксперимент

Лазерная система, использованная в экспериментах, включала в себя Ti:сапфировый генератор Tsunami (Spectra Physics), излучающий на длине волны 800 нм. Регенеративный усилитель Spitfire (Spectra Physics) обеспечивал цуг импульсов с максимальной энергией 1000 мкДж при частоте следования 1 кГц. Для визуализации результатов воздействия использовалась методика «пробного пучка» (рис.1). После делителя большая часть излучения (возбуждающий импульс) проходила через интерферометр Майкельсона, формирующий два импульса с равной энергией и контролируемой временной задержкой между ними. Затем излучение фокусировалось в воздухе асферической линзой с фокусным расстоянием 8 мм. Диаметр гауссова пучка в фокальной плоскости линзы составлял ~ 1.7 мкм по уровню $1/e$. Интенсивность на оси пучка при этом была равна $\sim 2 \times 10^{15}$ Вт/см². Изменение задержки в широких пределах, от сотен фемтосекунд до десятков наносекунд, позволяло моделировать режим сверхвысокочастотного облучения (не менее 100 МГц), который в настоящее время сложно реализовать на практике.

В.В.Кононенко, Т.В.Кононенко, В.П.Пашинин, В.М.Гололобов, В.И.Конов. Институт общей физики им. А.М.Прохорова РАН, Россия, 119991 Москва, ул. Вавилова, 38; e-mail: vitali.kononenko@nsc.gpi.ru

Поступила в редакцию 24 декабря 2012 г.

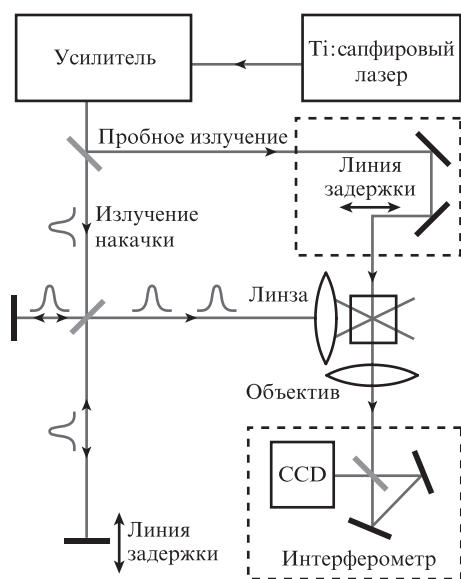


Рис.1. Экспериментальная установка.

Зондирующий пучок проходил через линию задержки и просвечивал возбуждаемую область сбоку. Изображение области, подвергнутой интенсивному лазерному воздействию, проецировалось на плоскость CCD-матрицы с увеличением ~ 30 . Затем изображение оцифровывалось и обрабатывалось для получения информации о состоянии облученной области.

Основным инструментом, позволяющим получать количественную информацию о состоянии вещества в процессе и после лазерного воздействия, служила фемтосекундная интерферометрия. Интерферометр Саньяка располагался между проекционным объективом и матрицей, на которой наблюдалась интерференция двух пучков, каждый из которых содержал локальное возмущение фазы, вызванное изменением показателя преломления n в облученной области. Поскольку ширина интерференционных полос существенно превышала размер возмущенной области, их сдвиг при изменении показателя преломления приводил к локальному изменению яркости изображения, что позволяло вычислять Δn . На приведенных ниже рисунках увеличение яркости соответствует уменьшению n , а ее уменьшение – росту n . Минимизация механических вибраций и накопление снимков в одних и тех же условиях облучения с их последующим усреднением позволили достичь чувствительности измерения фазы электромагнитной волны $\delta\varphi$ в пробном пучке лучше 10^{-2} .

3. Результаты и их обсуждение

Как уже отмечалось, ключевым фактором, определяющим физику взаимодействия лазерного излучения со средой при сверхвысоких частотах следования импульсов, является остаточное возбуждение вещества в облученной области. Под «возбуждением» следует понимать лазерно-индуцированное изменение состояния вещества, прежде всего степени его ионизации и степени неравновесности распределения заряженных частиц по энергии, а также температуры, парциальных давлений и локальных плотностей каждого из компонентов плазмы. Очевидно, что для понимания особенностей высокочастотной импульсной лазерной обработки необходима детальная информация о процессах релаксации в среде.

3.1. Релаксация плазмы пробоя воздуха фемтосекундными лазерными импульсами

Из фотографий микропробоя (рис.2) видно, что первоначально ионизованная область, сформированная за время действия импульса, имеет диаметр ~ 6 мкм и длину ~ 60 мкм, определяемые степенью локализации поля в каустике пучка. Затем благодаря диффузии нагретых излучением электронов плазменное облако начинает расширяться, достигая ~ 50 мкм в диаметре через 11 нс. При таких размерах, как видно из рис.2 (нижние снимки), в кадр попадает даже часть интерференционного изображения искры, содержащегося во втором плече интерферометра. Отметим также появление узкого слоя с положительным изменением показателя преломления. Причиной его формирования является, очевидно, динамическое уплотнение воздуха, вызванное давлением ударной волны.

На рис.3 представлена экспериментальная зависимость радиуса искры от времени, которая может быть аппроксимирована функцией

$$R(t) = R_0 \sqrt{1 + \frac{t}{\tau}}, \quad (1)$$

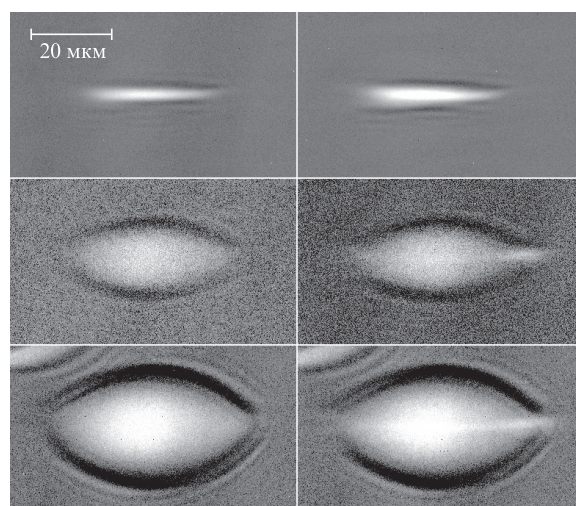


Рис.2. Интерференционные снимки лазерной искры в воздухе, сделанные при одно- (слева) и двухимпульсном (справа) облучении. Задержка между первым и пробным импульсами составляла (сверху вниз) 2 пс, 1 нс и 11 нс. Второй возбуждающий импульс (справа) проходил через каустику за 1 пс до прихода пробного.

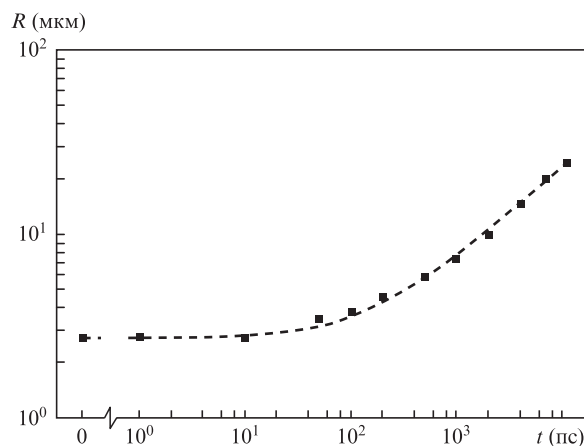


Рис.3. Временная динамика размера плазменного облака в воздухе. Точки – экспериментальные данные, кривая – зависимость (1).

где $R_0 = 2.7$ мкм – начальный размер плазменного облака; $\tau = 140$ пс – временная константа. Подобная зависимость предсказывается моделью точечного взрыва [7]:

$$R(t) \propto t^a, \quad (2)$$

причем $a = 0.5$ при мгновенном выделении энергии вдоль прямой – случай цилиндрической симметрии, который, очевидно, наиболее близок к нашим условиям. Экспериментальная зависимость (1) отличается от теоретической (2) наличием в подкоренном выражении поправочного члена порядка $\tau = 140$ пс, который обусловлен тем, что в реальном эксперименте энергия выделяется вдоль цилиндра конечного радиуса R_0 и фронт взрывной волны распространяется не из нулевой точки. Отметим, что первоначальная скорость ударной волны составляет 10^6 см/с, а через 11 нс она уменьшается до 10^5 см/с, т.е. почти до скорости звука в воздухе.

Расширение плазменного облака со временем приводит к существенному изменению формы первоначального распределения концентрации плазмы в пространстве, что хорошо видно из соответствующих профилей $N(r)$ (рис.4). Концентрация носителей N рассчитывалась из формулы Друде, которая, как принято считать, дает хорошее приближение в рассматриваемом нами случае классической, почти идеальной плазмы:

$$\varepsilon = 1 - \frac{4\pi e^2 N}{m_e \omega^2},$$

где ε – диэлектрическая проницаемость для электромагнитной волны с частотой ω ; e и m_e – заряд и масса электрона. Профили локального возмущения показателя преломления ионизованного воздуха, в свою очередь, получены из интерференционных снимков с помощью обратного преобразования Абея. Отметим, что поперечный профиль в процессе расширения облака существенно меняет свою форму: от близкой к гауссовой в начале процесса до «платообразной» на поздних стадиях разлета. При этом процесс разлета вещества явно неравномерный: сначала появляется относительно разреженная (1 нс), а затем уплотненная (11 нс) области в центре искры (рис.4).

Очевидно, что термодиффузное расширение электронного облака само по себе уменьшает локальную концентрацию носителей со временем. Ясно также, что электрон-ионная рекомбинация дает тот же самый эффект.

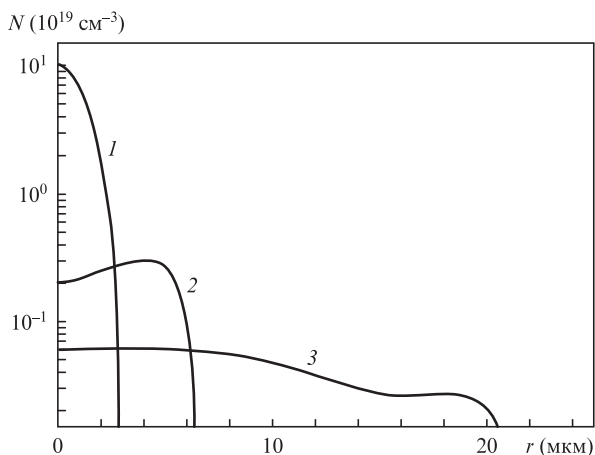


Рис.4. Поперечные профили локальной концентрации носителей в процессе расширения и релаксации лазерной искры в воздухе при задержках $\Delta t = 1$ пс (1), 1 нс (2) и 11 нс (3).

Об относительном вкладе этих механизмов в изменение концентрации носителей можно судить по динамике $N(t)$, которая показана на рис.5 для точки на оси лазерного пучка. Отметим, что интересной особенностью этой зависимости является продолжение процесса ионизации молекул в воздухе после окончания лазерного импульса в течении ~ 10 пс. В работе [8] были сделаны аналогичные наблюдения и в качестве объяснения рассмотрена возможность существенного лазерного перегрева части электронов, что должно приводить к аккумуляции энергии света в виде кинетической энергии носителей и, следовательно, к задержке процесса ее диссипации. Однако, с точки зрения цели настоящей статьи, гораздо более интересной является дальнейшая динамика N .

Как следует из рис.5, локальная концентрация носителей достаточно хорошо описывается зависимостями $N \propto 1/t$ при $t = 10-1000$ пс и $N \propto 1/\sqrt{t}$ при $t > 1$ нс. Попытка описать эту динамику с помощью разлета нагретой плазмы оказывается несостоятельной. На рис.5 приведена штриховая кривая, полученная в результате симуляции процесса расширения плазменного облака в предположении, что оно происходит равномерно, следуя формуле $N(t) = N(t_0)R^2(t)/R^2(t_0)$, где $N(t_0)$ – концентрация электронов в центре искры в начальный момент времени ($t_0 = 10$ пс); $R(t)$ – радиус искры в соответствии с данными рис.3. Хорошо видно, что на самом деле концентрация электронов уменьшается существенно быстрее, чем это прогнозирует простая модель равномерного цилиндрического расширения. Обсуждать возможное влияние неравномерности разлета вещества также не имеет особого смысла, поскольку экспериментальные значения отличаются от расчетных в 10 раз при $t = 1$ нс, что существенно больше измеренной неравномерности концентрации носителей в облаке (рис.4). Таким образом, временная динамика плотности плазмы в воздухе определяется в основном процессом рекомбинации электронов с ионами.

Следуя многочисленным работам, в которых достаточно подробно изучались рекомбинационные процессы в классической плазме (см., напр., [9, 10]), мы обнаружили, что для удовлетворительного описания экспериментальных данных достаточно привлечь два основных механизма: диссоциативную рекомбинацию, преобладающую в случае молекулярных газов, и трехчастичную, преобладающую в случае атомарных газов. Первая характеризуется тем, что процесс столкновения двухатомного или много-

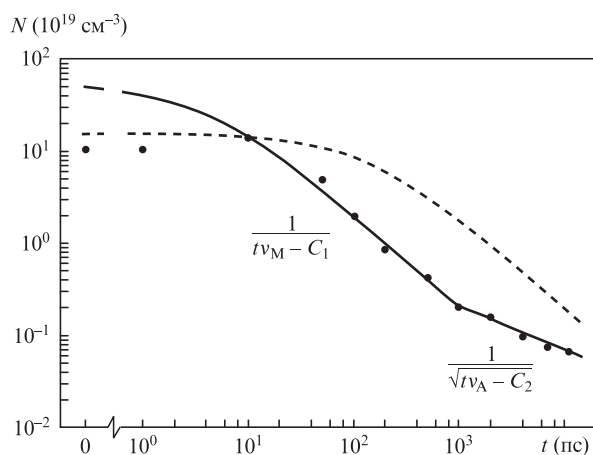
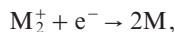


Рис.5. Динамика концентрации плазмы в центре области пробоя одиночным лазерным импульсом. Точки – эксперимент, сплошная кривая – рекомбинация, штриховая – расширение облака плазмы.

атомного иона M_2^+ (O_2^+ , N_2^+ , H_2O^+ и т. д.) с электроном может быть неупругим, так что кинетическая энергия трансформируется в энергию внутренней степени свободы, позволяя выполнить законы сохранения и обеспечивая в конечном итоге возбуждение и рекомбинацию молекул. Соответствующая реакция может быть записана в виде

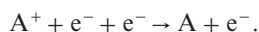


а ее кинетическое уравнение – в виде $dN_M/dt = -v_M N_M^2$, где v_M – вероятность реакции. Решение этого уравнения

$$N_M(t) = \frac{1}{tv_M - C_1}, \quad (3)$$

где C_1 – константа, определяемая начальной степенью ионизации воздуха.

В случае одноатомных газов, входящих в состав воздуха (Ar, Ne), для характерной реакции рекомбинации требуется третья частица (которая, как правило, оказывается электроном вследствие большей тепловой скорости электронов), и поэтому реакция протекает гораздо медленнее:



Соответствующее ей кинетическое уравнение имеет вид $dN_A/dt = -v_A N_A^3$, а его решение

$$N_A(t) = \frac{1}{\sqrt{tv_A - C_2}}. \quad (4)$$

Полученные решения (3), (4) приведены на рис.5 и показывают, что динамика концентрации электронов полностью описывается рассмотренными механизмами рекомбинации. Трехчастичная рекомбинация протекает с самого начала ионизации среды, однако, поскольку многоатомные газы преобладают в составе воздуха, рекомбинация одноатомных газов становится заметной только через ~ 1 нс, когда реакция для многоатомного компонента фактически останавливается. Отметим, что в этот момент первоначальная плотность плазмы уменьшается в ~ 100 раз, т.е. остается $\sim 1\%$ всех ионизированных молекул, что четко коррелирует с процентным содержанием благородных газов в воздухе. Укажем на еще один интересный факт. Из проведенного анализа следует, что процесс рекомбинации является достаточно быстрым и существенно снижает концентрацию носителей в воздухе за первые 10 пс после окончания действия импульса. Аппроксимация рекомбинационной зависимости позволяет оценить концентрацию электронов, появляющихся вследствие ионизации излучением. Она составляет не $\sim 1.5 \times 10^{20} \text{ см}^{-3}$ (см. рис.5), а существенно больше – примерно $4 \times 10^{20} \text{ см}^{-3}$, причем эта «дополнительная» ионизация происходит после окончания импульса достаточно медленно (за время ~ 10 пс), предположительно за счет упоминавшейся ударной ионизации горячими электронами [8].

Таким образом, проведенные эксперименты показали, что после лазерного возбуждения состояние воздушной среды, прежде всего степень ионизации и плотность вещества, драматически меняется за время порядка нескольких наносекунд. Уже через 10 нс мы имеем дело с практически нейтральным и достаточно разреженным горячим газом, т.е. можно говорить о том, что «огненный шар» сформировался и будет медленно остывать в течение следующих сотен микросекунд [3].

3.2. Облучение парой импульсов

В экспериментах по изучению ионизации воздуха вторым импульсом, следующим за первым, задержка между ними варьировалась в диапазоне 1 пс – 11 нс (характерное время релаксации воздушной плазмы). На рис.2 (справа) представлены интерференционные изображения возбужденной области, которые были сделаны через фиксированный промежуток времени (1 пс) после прохождения второго импульса облучения. В этих условиях релаксационными и рекомбинационными процессами в плазме, индуцированной вторым импульсом можно пренебречь. Очевидно, она также не успевала расшириться и на всех снимках занимала узкую длинную область, совпадающую с лазерной каустикой. Видно, что при малых задержках (~ 1 пс) между возбуждающими импульсами (верхние снимки) степени ионизации воздуха после прохождения первого импульса и после прохождения второго – сравнимы. В то же время при более длинных задержках концентрация индуцированной вторым импульсом плазмы катастрофически уменьшается. При задержке ~ 1 нс наведенное изменение n было столь малым, что оказалось сравнимым с шумом на интерференционных снимках.

Подчеркнем, что подавление процесса ионизации воздуха вторым импульсом четко локализовано в пространстве и ограничено областью, занимаемой «огненным шаром». На рис.6 приведены изображения микропробоя воздуха, полученные в результате двухимпульсного облучения с задержкой 11 нс, т.е. в условиях, аналогичных условиям рис.2 (нижний правый снимок). При этом направление распространения второго импульса изменялось качанием одного из зеркал, так что оси пучков расходились. В результате, как только каустика второго пучка смещалась настолько, что частично (рис.6, справа) или полностью (слева) выходила за пределы плазменного образования, сформированного первым импульсом, эффективность ионизации восстанавливалась.

Также четко прослеживается тенденция к изменению формы плазменного облака, индуцированного вторым импульсом. На рис.2 видно, что при наносекундных задержках между импульсами лазерная искра для второго импульса длиннее, чем для первого – пробой развивается преимущественно на оси пучка, в области, занимаемой фронтом ударной волны расширяющегося «огненного шара».

Изменение концентрации электронов после второго импульса в зависимости от задержки между двумя импульсами показано на рис.7. Видно, что при задержках менее 100 пс концентрация свободных носителей, индуцированных вторым импульсом, существенно (более чем в четыре раза) ниже, чем первым (см. рис.5). Данное обстоятельство не связано с релаксационными процессами, а вызвано (как показывают наши эксперименты, не описан-

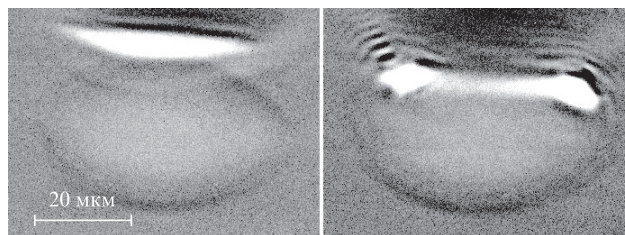


Рис.6. Интерференционный снимок пробоя воздуха в результате облучения двумя импульсами с задержкой 11 нс при вертикальном смещении каустики второго пучка относительно первого.

ные в настоящей статье) постепенным насыщением скорости ионизации с ростом энергии импульса. При увеличении времени задержки до нескольких наносекунд эффективность ионизации среды резко падает вплоть до величин, сравнимых с шумом. При дальнейшем увеличении задержки плазма второго импульса опять появляется, хотя и остается очень слабой добавкой к искре, сформированной первым импульсом. Этот процесс может определять (повышать) эффективность лазерного воздействия на материалы в условиях, когда вблизи поверхности облучаемого образца происходит оптический пробой воздуха и частота следования лазерных импульсов достигает 100 МГц.

Качественное объяснение данного эффекта подавления ионизации в расширяющемся плазменном облаке известно [3] и сводится к резкому снижению плотности газа в области пробоя, что само по себе приводит к соответствующему снижению плотности вновь ионизованных молекул. Тот факт, что подавление ионизации происходит при задержках между импульсами более 100 пс, когда ударная волна выходит за пределы области облучения и плазма начинает расширяться, согласуется с этим объяснением. Однако наблюдаемая степень подавления плазмообразования и локальная плотность газа в «огненном шаре» согласуются гораздо хуже. Это хорошо видно из рис.7, где кроме экспериментальных данных приведена зависимость от времени концентрации молекул газа, рассчитанная по скоростям разлета вещества (см. рис.3) в предположении, что плотность среды постоянна внутри облака. Очевидно, что для более глубокого понимания процессов фотоионизации предыонизованного газа, необходимо учитывать по крайней мере следующие существенные обстоятельства.

Во-первых, теория точечного взрыва [7] предсказывает, что в процессе сверхзвукового расширения газа в центре пробоя сначала возникает разрежение. А затем наличие противодавления окружающей среды приводит к возникновению обратного потока газа к центру симметрии и, следовательно, к относительному уплотнению воздуха в центре взрыва [11]. Такое поведение качественно может

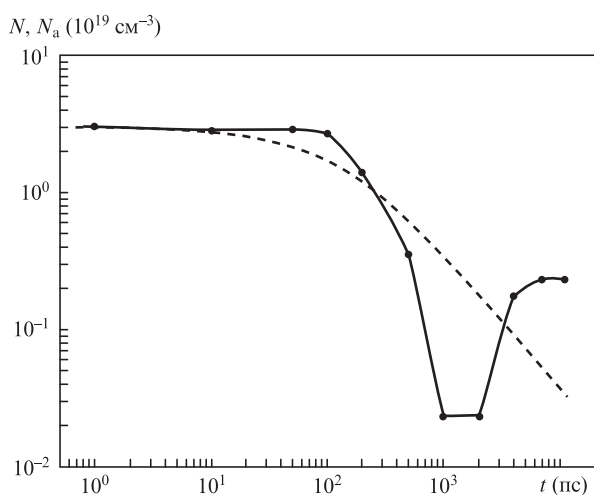


Рис.7. Дополнительная ионизация воздуха, индуцированная прохождением второго лазерного импульса через область пробоя, в зависимости от времени задержки между импульсами. Точки – измеренная концентрация носителей заряда N в области пробоя. Штриховая кривая – рассчитанная концентрация молекул газа N_a в расширяющемся облаке.

объяснить наблюдаемую динамику эффективности ионизации воздуха вторым импульсом (рис.7). Более того, экспериментальные профили электронной (а значит, и ионной) концентрации имеют такой же вид (см. рис.4).

Во-вторых, необходимо принимать во внимание достаточно быстрый процесс рекомбинации многоатомных ионов, который, очевидно, должен способствовать развитию пробоя при увеличении задержки между импульсами. Подчеркнем, однако, что появляющиеся после диссоциации атомарные азот и кислород имеют, вообще говоря, достаточно отличающуюся от соответствующих молекулярных соединений электронную структуру. К тому же туннельная ионизация таких соединений в сильном поле изучена недостаточно [12].

И наконец, оптические свойства плазмы, в частности поглощение, зависят от ее температуры и плотности: эффективность процессов обратного тормозного поглощения и ударной ионизации определяется температурными зависимостями сечения электрон-ионного рассеяния.

4. Выводы

В настоящей работе экспериментально исследованы процессы релаксации в фемтосекундной лазерной плазме и эффективности повторного лазерного пробоя во временном промежутке 0–11 нс в еще окончательно не релаксировавшей воздушной среде. Обнаружены существенные различия в локализации плазменного облака и степени его ионизации при оптическом пробое газа первым и вторым импульсами с временной задержкой 0.1–10 нс. Показано, что особенностью быстрого (100 фс) микропробоя является то, что газодинамика такой искры в воздухе очень хорошо описывается моделью точечного взрыва. Продемонстрировано также, что основные рекомбинационные процессы, определяющие временную динамику степени ионизации воздуха, – это диссоциативная рекомбинация в случае молекулярных компонент и трехчастичная рекомбинация в случае атомарных.

Работа выполнена при поддержке программы Президиума РАН «Сверхсильные световые поля и их приложения» и РФФИ (грант № 11-02-12242).

1. Song R., Hou J., Chen S., Yang W., Lu Q. *Appl. Opt.*, **51** (13), 2497 (2012).
2. Eidam T., Hanf S., Seise E., Andersen T.V., Gabler T., Wirth C., Schreiber T., Limpert J., Tünnermann A. *Opt. Lett.*, **35** (2), 94 (2010).
3. Климентов С.М., Пивоваров П.А., Конов В.И., Брайтлинг Д., Даусингер Ф. *Квантовая электроника*, **34** (6), 537 (2004).
4. Аскарьян Г.А., Рабинович М.С., Савченко М.М., Степанов В.К. *Письма в ЖЭТФ*, **5** (5), 150 (1967).
5. Прохоров А.М., Конов В.И., Урсу И., Михэилеску И.Н. *Взаимодействие лазерного излучения с металлами* (М.: Наука, 1988).
6. Breitling D., Ruf A., Berger P.W., Dausinger F.H., Klimentov S.M., Pivovarov P.A., Kononenko T.V., Konov V.I. *Proc. SPIE*, **5121**, 24 (2003).
7. Седов Л.И., Коробейников В.П., Марков В.В. *Труды МИАН СССР*, **175**, 178 (1986).
8. Букин В.В., Гарнов С.В., Малютин А.А., Стрелков В.В. *Квантовая электроника*, **37** (10), 961 (2007).
9. Hahn Y. *Rep. Prog. Phys.*, **60** (7), 691 (1997).
10. Kampftrath T., Gericke D.O., Perfetti L., Tegeder P., Wolf M., Frischkorn C. *Phys. Rev. E*, **76** (6), 066401 (2007).
11. Коробейников В.П. *Труды МИАН СССР*, **119**, 3 (1973).
12. Seideman T., Ivanov M.Yu., Corkum P.B. *Phys. Rev. Lett.*, **75** (15), 2819 (1995).