

УЛЬТРАЗВУКОВАЯ ДИАГНОСТИКА ОПТИЧЕСКОГО ПРОБОЯ И СУБКРИТИЧЕСКОЙ МИКРОПЛАЗМЫ В ЛАЗЕРНОМ ФАКЕЛЕ

А. А. Ионин, С. И. Кудряшов, Л. В. Селезнев

Оптический пробой и формирование горячей субкритической плазмы в лазерном факеле при наносекундной лазерной абляции графитовой мишени исследованы контактным и бесконтактным методами ультразвуковой диагностики. Показано, что оптический пробой паров при образовании плазмы привязан к пороговому околовритическому взрывному вскипанию перегретого расплава материала, а последующее нагревание субкритической плазмы описывается известными размерными соотношениями.

Ключевые слова: наносекундное лазерное излучение, графит, абляционный плазменный факел, оптический пробой, ударная волна, ультразвуковая диагностика.

Абляционная лазерная микроплазма является основным действующим фактором в процессах лазерного микро- иnanoструктурирования поверхности материалов [1], микропробоотбора при атомно-эмиссионном или масс-спектральном анализе твердых проб [2, 3], лазерного микрораспыления с получением тонких пленок [4], генерации рентгеновского излучения [5] и многих других. Однако микромасштабная диагностика быстрой динамики такой плазмы – особенно в атмосфере воздуха – трудоемка и затруднительна с помощью привычных спектральных или коллекторных методов в силу их недостаточного пространственного или временного разрешения [6]. Вместе с тем, недавно были продемонстрированы хорошие возможности – в плане простоты, компактности и информативности измерений – широкополосной ультразвуковой диагностики при исследовании схожей проблемы оптического пробоя и динамики субкритической плазмы, протекающих в жидкости под действием сфокусированного наносекундного лазерного излучения [7].

Учреждение Российской академии наук Физический институт им. П. Н. Лебедева РАН, 119991, Москва, Ленинский пр-т, 53; e-mail: sikudr@sci.lebedev.ru.

В настоящей работе ультразвуковая (УЗ) диагностика в контактном и бесконтактном вариантах использовалась для изучения микромасштабной динамики лазерной абляции, оптического пробоя и развития плазмы при воздействии наносекундного лазерного излучения на мишень поликристаллического графита (плотность $\approx 1.7 \text{ г/см}^3$) – пластинку толщиной около 1 мм. В качестве лазерного источника использовалась вторая гармоника Nd:YAG лазера (ЛТИПЧ-412) с длиной волны $\lambda_{\text{las}} \approx 532 \text{ нм}$, длительностью импульса по полувысоте (FWHM) $\tau_{\text{las}} \approx 25 \text{ нс}$ и максимальной энергией в ТЕМ₀₀ mode $\approx 50 \text{ мДж}$ при частоте следования импульсов 10 Гц. Излучение подфокусировалось стеклянной линзой ($f \approx 40 \text{ см}$) на мишень в пятна с радиусами в интервале $w_0 \approx 40 - 150 \text{ мкм}$ (по уровню $1/e$), а его энергия измерялась с помощью пироэлектрического измерителя. Контактные УЗ измерения проводились в одноимпульсном режиме при интенсивностях излучения $I_{\text{peak}} = 0.1 - 2 \text{ ГВт/см}^2$ в ближней акустической зоне с помощью пьезоэлектрического датчика (активный элемент – кристалл LiNbO₃, полоса $\Delta f < 20 \text{ МГц}$, чувствительность $S \approx 1 \text{ мВ/атм}$) [8, 9], при этом графитовая пластина скользила от импульса к импульсу по защитному латунному диску толщиной 3 мм по тонкому притирочному слою вакуумной смазки. Фокальное пятно на мишени располагалось в центре активного элемента датчика. Регистрируемые УЗ сигналы при $I_{\text{peak}} > 0.15 \text{ ГВт/см}^2$ имели однополярный характер (волна давления сжатия), характерный для давления отдачи P_{rec} абляционного факела и плазмы [9, 10]. Смещение времени прихода на датчик переднего фронта УЗ сигнала $\Delta t(N)$ в сторону меньших задержек позволило в многоимпульсном режиме лазерного воздействия (N импульсов) для различных значений I_{peak} определить среднее углубление кратера в мишени за один импульс $X = C_{l,\text{grap}} \Delta t(N)/N$ с учетом известной продольной скорости звука в мишени $C_{l,\text{grap}} \approx 2.3 \text{ км/с}$. Также, в диапазоне $I_{\text{peak}} = 0.01 - 50 \text{ ГВт/см}^2$ были выполнены бесконтактные УЗ измерения времени прихода на датчик t_{tr} и амплитуды P_{air} волн давления, возбуждаемых в воздухе при лазерной абляции этой мишени. В этом случае пьезоэлектрический датчик Miniwat-2 (пленка PVDF, $\Delta f < 30 \text{ МГц}$, $S \approx 10 \text{ В/атм}$) [11] располагался в дальней зоне перед мишени на расстоянии $l_{\text{air}} \approx 23 \text{ мм}$, а регистрируемые абляционные УЗ сигналы сжатия вследствие дифракции имели биполярный характер. В обоих вариантах УЗ диагностики сигналы подавались на 50-омный вход цифрового осциллографа Tektronix TDS-2024, запускавшегося через другой аналогичный вход электрическим импульсом с быстрого фотодиода DET-210 (Thorlabs), засвечиваемого бликом лазерного излучения. Дополнительно, с помощью оптического микроскопа, сфокусированного на лазерный факел вдоль поверхности мишени, осуществлялась его

оптическая визуализация с высоким пространственным разрешением.

Полученная в работе зависимость $X(I_{\text{peak}})$ демонстрирует линейный рост скорости абляции при $I_{\text{peak}} \leq 0.15 \text{ ГВт}/\text{см}^2$ (порог плавления графита $\approx 0.02 \text{ ГВт}/\text{см}^2$ [9, 12]) и последующее скачкообразное увеличение этого параметра в узком интервале $0.15 \text{ ГВт}/\text{см}^2 < I_{\text{peak}} \leq 0.2 \text{ ГВт}/\text{см}^2$ (рис. 1). Данный скачок скорости абляции можно соотнести с околоспинодальным взрывным вскипанием перегретой жидкой фазы углерода выше порогового значения $I_{\text{PE}} \approx 0.15 \text{ ГВт}/\text{см}^2$ после ее предшествующего поверхностного испарения [9, 10], что проявляется в разбрызгивании микронных капель с поверхности мишени. Тогда насыщение данной зависимости при $I_{\text{peak}} \geq 0.2 \text{ ГВт}/\text{см}^2$ можно связать с полным экранированием поверхности лазерным факелом – в частности, его парокапельной компонентой или непосредственно абляционной плазмой, которая визуально наблюдается в факеле при $I_{\text{peak}} \geq 0.3 \text{ ГВт}/\text{см}^2$ (вставка на рис. 1).

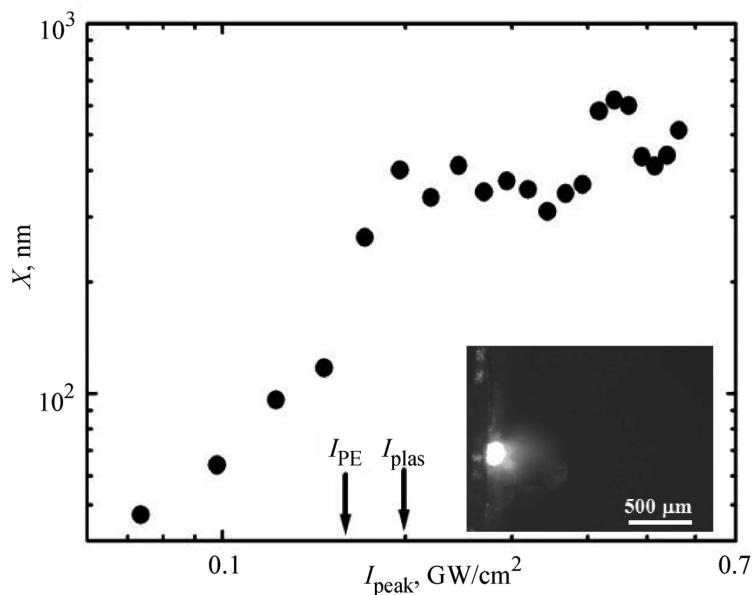


Рис. 1: Зависимость средней скорости абляции за импульс X для графитовой мишени от интенсивности I_{peak} . Стрелки показывают положение порогов околоспинодального взрывного вскипания (I_{PE}) и оптического пробоя I_{plas} . Вставка: микрофотография свечения углеродного факела при $I_{\text{peak}} \approx 0.3 \text{ ГВт}/\text{см}^2 > I_{\text{plas}}$.

Аналогично, зависимость $P_{\text{rec}}(I_{\text{peak}})$ для давления отдачи на мишень имеет линейный участок в области $I_{\text{peak}} \leq 0.15 \text{ ГВт}/\text{см}^2$ (рис. 2) и затем резко возрастает при $I_{\text{peak}} \geq I_{\text{PE}} \approx 0.15 \text{ ГВт}/\text{см}^2$, четко коррелируя с зависимостью $X(I_{\text{peak}})$. Однако, в отли-

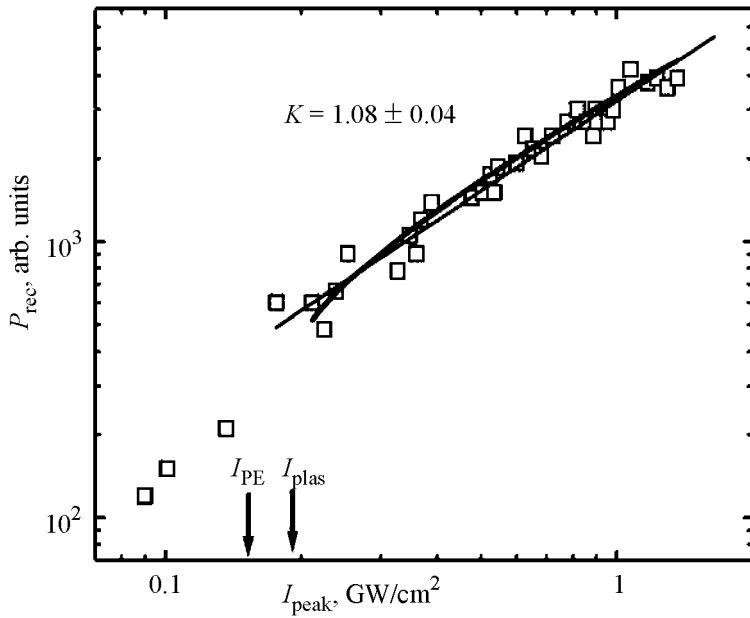


Рис. 2: Зависимость давления отдачи P_{rec} для графитовой мишени от I_{peak} с порогами I_{PE} и I_{plas} . Тонкая прямая и сплошная толстая линии – аппроксимация экспериментальной кривой в области $I_{\text{peak}} > I_{\text{plas}}$ линейной зависимостью, а также функцией $I_{\text{peak}}^{3/4} \{ \ln[I_{\text{peak}}/I_{\text{plas}}] \}^{1/2}$.

чие от скорости абляции, при $I_{\text{peak}} > I_{\text{PE}}$ давление отдачи не насыщается, а продолжает расти – практически линейно ($\propto I_{\text{peak}}^{1.1}$) – при увеличении I_{peak} до $2 \text{ ГВт}/\text{см}^2$ в силу нарастающего поглощения энергии лазерного излучения в лазерном факеле, экранирующем поверхность мишени.

Наблюдаемые тенденции развития лазерной абляции и формирования лазерного факела подтверждаются результатами бесконтактной УЗ регистрации возникающих при этом в воздухе сверхзвуковых (ударных) волн. В частности, зависимость $P_{\text{air}}(I_{\text{peak}})$ имеет начальный участок нелинейного роста вблизи порога взрывного вскипания $I_{\text{PE}} \approx 0.15 \text{ ГВт}/\text{см}^2$ (рис. 3), а затем – при $I_{\text{peak}} \geq 0.2 \text{ ГВт}/\text{см}^2$ – растет в согласии с коренной зависимостью ($\propto I_{\text{peak}}^{1/2}$) для всех использованных условий фокусировки (пятна с $w_0 = 40, 55$ и 150 мкм). Известно, что такой коренной характер зависимости $P_{\text{air}}(I_{\text{peak}})$ для ударных волн указывает на аналогичную зависимость для объемной плотности энергии ϵ в источнике ударной волны [13] (в нашем случае – плазмы). Действительно, функциональная зависимость $\epsilon \propto I_{\text{peak}}^{1/2}$ согласуется с размерным соотношением для плотности энергии и температуры в субкритической плазме ($\propto I_{\text{peak}}^{4/9}$ [14] или $\propto I_{\text{peak}}^{1/2}$ [15],

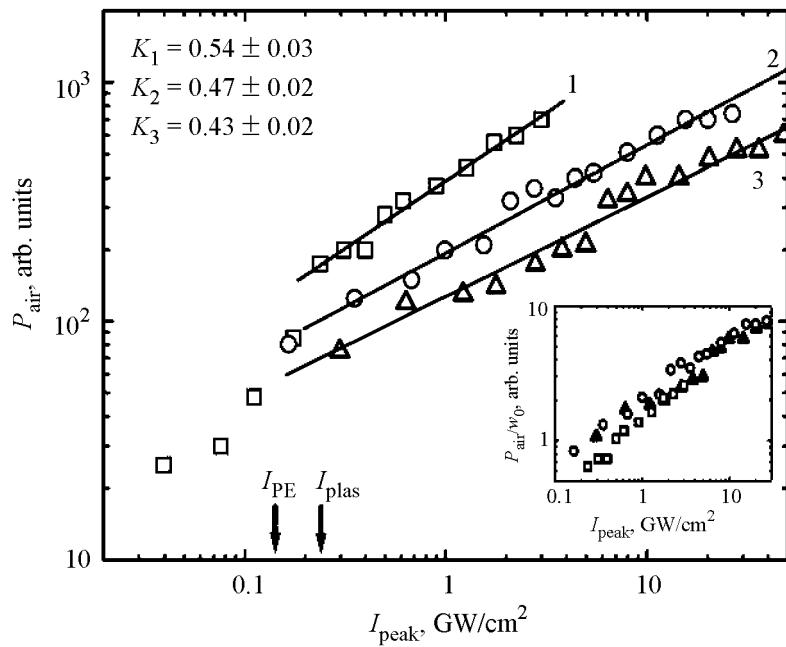


Рис. 3: Зависимости давления в воздухе P_{air} для различных условий фокусировки [$w_0 = 150$ (квадраты), 55 (круги) и 40 (треугольники) мкм] от I_{peak} с порогами I_{PE} и I_{plas} , и криевые 1–3 их линейной аппроксимации с угловыми наклонами $K_{1,2,3}$. Вставка: нормированные кривые P_{air}/w_0 как функция I_{peak} .

16]). В результате, излом зависимостей $X(I_{\text{peak}})$, $P_{\text{rec}}(I_{\text{peak}})$ и $P_{\text{air}}(I_{\text{peak}})$ на рис. 1–3 при $I_{\text{peak}} \geq 0.2 \text{ ГВт}/\text{см}^2$ можно связать с порогом появления плазмы $I_{\text{plas}} \approx 0.2 \text{ ГВт}/\text{см}^2$.

С другой стороны, используя измеренные времена пробега t_{tr} волн давления в воздухе, определили средние скорости этих волн $C_{\text{ave}} = l_{\text{air}}/t_{\text{tr}}$ на дистанции l_{air} (при нормальных условиях скорость звука в воздухе равняется 346 м/с [17]) (рис. 4). В дальней акустической зоне, где происходит регистрация УЗ сигналов, волны давления имеют сферический фронт с начальным радиусом R_S , пропорциональным радиусу фокально-го пятна w_0 (см. хорошее совпадение кривых P_{air}/w_0 для $I_{\text{peak}} = 0.2 – 50 \text{ ГВт}/\text{см}^2$ для разных значений w_0 на вставке к рис. 3), и амплитудой давления в источнике P_S , а радиальное изменение давления носит гиперболический характер [18]

$$P(r) = P_S \left(\frac{R_S}{r} \right). \quad (1)$$

Поскольку скорость звука в воздухе C_{air} зависит от давления [17] (рис. 4, вставка), дифракционная расходимость сферического фронта в дальней (от факела) зоне

вызывает постепенно замедляющееся радиальное движение, так что результирующая средняя скорость пробега C_{ave} описывается выражением

$$C_{\text{ave}} = l_{\text{air}} \left(\int_0^{\text{lair}} \frac{dr}{C_{\text{air}}(P(r))} \right)^{-1}. \quad (2)$$

Соответственно, деконволюция зависимости $C_{\text{ave}}(I_{\text{peak}})$ с помощью численного итерационного алгоритма позволяет установить зависимости максимального давления (в источнике) на поверхности мишени P_S и максимальной (начальной) скорости волны давления (там же) C_S от I_{peak} (рис. 4, 5). Значение $C_S \approx 1.4$ км/с при $I_{\text{peak}} \leq I_{\text{plas}}$ (рис. 4) находится в качественном согласии с известным из литературы значением для алюминия ($C_S \approx 5$ км/с) [19] и далее возрастает до 4 км/с. Аналогично, рассчитанная величина P_S (рис. 5) при $I_{\text{peak}} \approx I_{\text{PE}}$ близка к половине критического давления углерода 2200 атм [20] (ввиду одностороннего потока продуктов абляции [21]), подтверждая околоскритическую природу взрывного вскипания перегретой жидкой фазы углерода. При более высоких $I_{\text{peak}} = 0.25 - 4$ ГВт/см² зависимость $P_S(I_{\text{peak}})$ характеризуется функциональным соотношением $\propto I_{\text{peak}}^{7/9}$ (рис. 5), характерным для зависимости давления абляционной субкритической плазмы от интенсивности наносекундного лазерного излучения вплоть до значений порядка 10^{14} Вт/см² [15, 16]. При $I_{\text{peak}} > 4$ ГВт/см², где давление плазмы составляет 1–2 ГПа, кривая $P_S(I_{\text{peak}})$ растет несколько медленнее, что может быть связано с погрешностью пересчета значений C_{ave} в P_S из-за недостаточной точности используемых литературных зависимостей $C_{\text{air}}(P)$, взятых в данной работе для азота [17] (за неимением таковых для воздуха).

Таким образом, результаты наших исследований показывают, что при $I_{\text{peak}} \geq I_{\text{plas}} \approx 0.2$ ГВт/см² $> I_{\text{PE}}$ образуется “оптически” плотная абляционная лазерная плазма, полностью экранирующая поверхность мишени, причем ее появление, по-видимому, связано с взрывным околоспинодальным вскипанием перегретой жидкой фазы углерода при $I_{\text{peak}} \geq I_{\text{PE}} \approx 0.15$ ГВт/см². Узкий диапазон $I_{\text{peak}} \approx 0.15 - 0.2$ ГВт/см², в котором развивается взрывное вскипание и достигается максимальная скорость абляции (рис. 1), соответствует также максимуму коэффициента механической связи C_m (например, $C_{m,S} \approx P_S/I_{\text{peak}}$) при $I_{\text{peak}} \approx I_{\text{plas}}$ (рис. 5) и относительно низкопороговому оптическому пробою плотного горячего углеродного факела, характеризующегося высокими – порядка кбар – давлениями пара, как и предполагалось ранее [22]. Соответственно, последующий плавный спад $C_m \propto I_{\text{peak}}^{-1/4}$ при более высоких значениях I_{peak} связан с

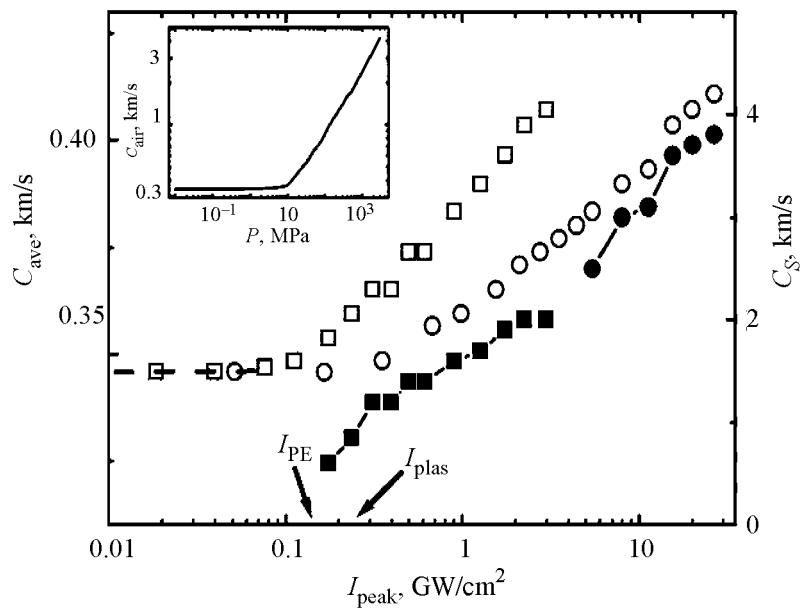


Рис. 4: Зависимость средней C_{ave} (светлые символы, левая ось) и начальной C_S скоростей волн давления в воздухе (темные символы, правая ось) от I_{peak} для различных условий фокусировки [$w_0 = 150$ (квадраты) и 55 (круги) мкм] с порогами I_{PE} и I_{plas} . Вставка: зависимость скорости звука в азоте от давления (по данным работы [17]).

более низкой эффективностью генерации давления в приповерхностной абляционной субкритической плазме, которая практически полностью экранирует мишень.

Имеется ряд важных экспериментальных фактов, которые находят объяснение в рамках предложенной физической картины. Во-первых, это взаимосвязь явлений взрывного вскипания перегретого поверхностного слоя расплава графита и оптического пробоя в возникающем при этом лазерном факеле. Известно [23], что порог оптического пробоя разных газов имеет минимум при их определенной плотности (соотношении давления и температуры), поэтому монотонный рост плотности пара с ростом интенсивности лазерного излучения вблизи порога взрывного околоспинодального вскипания предполагает возможность относительно низкопорогового оптического пробоя при достижении в лазерном факеле оптимального давления пара. Далее, резкий порог оптического пробоя – в нашем случае $I_{\text{plas}} \approx 0.2$ ГВт/см² – определяет размер плазменного источника давления на поверхности W_{break} для падающего фокусированного гауссова

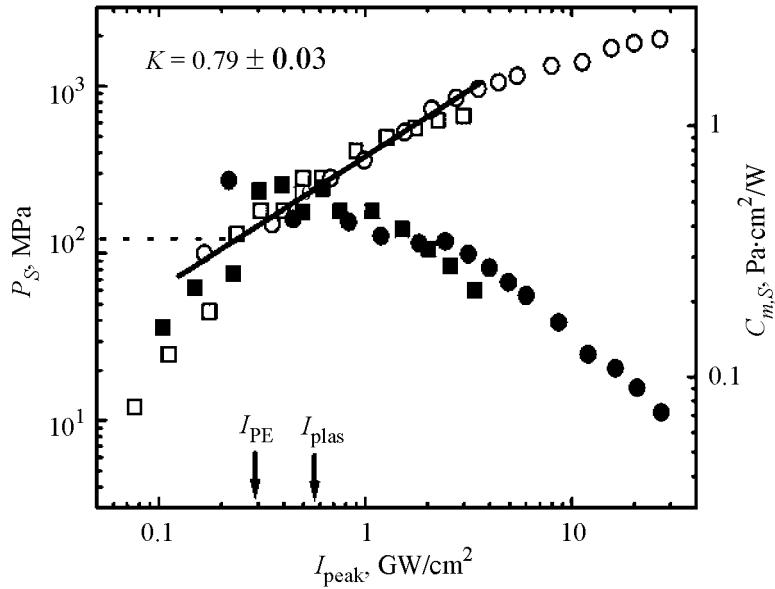


Рис. 5: (левая ось) Зависимости давления P_S для различных условий фокусировки [$w_0 = 270$ (светлые квадраты) и 95 (светлые круги) мкм] от I_{peak} с порогами I_{PE} и I_{plas} , и их линейная аппроксимация в области $I_{\text{peak}} > I_{\text{plas}}$ с угловым наклоном K . Горизонтальная пунктирная линия показывает максимальное абляционное давление ≈ 1140 атм вблизи порога оптического пробоя факела при $I_{\text{peak}} \approx I_{\text{plas}}$. (правая ось) Коэффициент механической связи $C_{m,S}$ для различных условий фокусировки [$w_0 = 270$ (темные квадраты) и 95 (темные круги) мкм] как функция I_{peak} .

пучка с радиусом перетяжки w_0

$$W_{\text{break}}(I_{\text{peak}}) = w_0 \sqrt{\ln \left(\frac{I_{\text{peak}}}{I_{\text{plas}}} \right)}. \quad (3)$$

Соответственно, отличие сверхлинейной зависимости $P_{\text{rec}}(I_{\text{peak}}) \propto I_{\text{peak}}^{1.1}$ на рис. 2 от аналогичных зависимостей для давления плазмы, полученных с помощью маятника ($P_{\text{pend}} \propto P_{\text{plas}} \propto I_{\text{peak}}^{3/4}$) [16, 24] или ультразвуковых измерений в воздухе (рис. 5) при более высоких интенсивностях излучения, можно объяснить влиянием вблизи порога плазмообразования (оптического пробоя) $I_{\text{peak}} \geq I_{\text{plas}}$ порогового фактора $\{\ln[I_{\text{peak}}/I_{\text{plas}}]\}^{1/2}$. Действительно, произведение $P_{\text{plas}}\{\ln[I_{\text{peak}}/I_{\text{plas}}]\}^{1/2}$ дает хорошее согласие с экспериментальной кривой $P_{\text{rec}}(I_{\text{peak}})$ (рис. 2); более того, известно, что такая – достаточно широкая (до ~ 1 ГВт/см²) – область сверхлинейного роста присутствует вблизи $I_{\text{peak}} \geq I_{\text{PE}}$ (максимума C_m) на зависимостях давления отдачи плазмы от ла-

зерной интенсивности для самых разных материалов [24], но постепенно – в широком диапазоне $I_{\text{peak}} \gg I_{\text{plas}}$ – вследствие насыщения фактора $\{\ln[I_{\text{peak}}/I_{\text{plas}}]\}^{1/2}$ превращается в хорошо известную зависимость $P_{\text{plas}} \propto I_{\text{peak}}^{3/4}$ [24].

В то же время, нужно отметить, что – в отличие от радиуса перетяжки w_0 – сам пространственный фактор $\{\ln[I_{\text{peak}}/I_{\text{plas}}]\}^{1/2}$, по-видимому, не влияет на начальный размер источника давления в бесконтактных ультразвуковых измерениях в воздухе; в противном случае после коррекции на этот фактор кривые $P_{\text{air}}(I_{\text{peak}}) \propto I_{\text{peak}}^{4/9}$ на рис. 3 имели бы очень слабую зависимость от I_{peak} . Поэтому можно предположить, что в указанных условиях формирование ударной волны в результате сверхзвукового расширения горячего ядра абляционной лазерной плазмы (начальная скорость выше 1 км/с) происходит раньше или быстрее распространения “волны” оптического пробоя в лазерном факеле в течение нагревающего лазерного импульса, таким образом исключая фактор $W_{\text{break}}(I_{\text{peak}})$. Напротив, давление отдачи на поверхность мишени субкритической плазмы, формирующуюся в результате оптического пробоя лазерного факела на некотором удалении от поверхности, по-видимому, прикладывается на временном масштабе, совпадающем с длительностью распространения “волны” оптического пробоя в пределах лазерного пятна на мишени. Последнему явлению способствует распространение в факеле лазерно-индуцированной “волны горения”, подогревающей окружающую плазму область факела путем электронной или радиационной теплопроводности [22, 24, 25]. Такая волна обычно появляется вблизи максимума коэффициента механической связи C_m [24, 25], соответствующего, согласно нашим наблюдениям, также и порогу околоспинодального взрывного вскипания перегретой жидкой фазы углерода. В то же время, наши оценки начальной скорости ударной волны $C_S \leq 5$ км/с указывают на отсутствие лазерно-индуцированных детонационных волн распространения плазмы (типичные скорости порядка 10 км/с), которые поддерживаются подогревом факела на фронте плазмы быстро расходящейся сильной (уровня ГПа) ударной волны [22].

В заключение отметим, что в настоящей работе методики контактной и бесконтактной ультразвуковой диагностики были использованы для изучения лазерной абляции, оптического пробоя лазерного факела, формирования и нагревания субкритической абляционной лазерной плазмы, а также установления основных характеристик этих явлений и их взаимосвязи.

Данная работа была поддержана проектами РФФИ № 08-08-00756-а и 10-08-00941-а.

ЛИТЕРАТУРА

- [1] Е. В. Голосов, В. И. Емельянов, А. А. Ионин и др., Письма в ЖЭТФ **90**, 116 (2009).
- [2] L. B. Brostoff, J. Gonzalez, P. Jett, and R. E. Russo, J. Archeol. Sci. **36**, 461 (2009).
- [3] J. Gonzalez, A. Fernandez, D. Oropeza, X. Mao, et al., Spectrochim. Acta B **63**, 277 (2008).
- [4] T. M. Miller, H. Fang, R. H. Magruder III, et al., Sensors and Actuators A **104**, 162 (2003).
- [5] М. Б. Агранат, Н. Е. Андреев, С.И. Ашитков и др., Письма в ЖЭТФ **83**, 80 (2006).
- [6] Н. Г. Басов, Ю. А. Захаренков, А. А. Рупасов, Г. В. Склизков и др., Диагностика плотной плазмы (Наука, Москва, 1989).
- [7] S. I. Kudryashov and V.D. Zvorykin, Phys. Rev. E **78**, 036404 (2008).
- [8] S. I. Kudryashov, A. A. Karabutov, N. B. Zorov, Mendeleev Commun., No. 1, 6 (1998).
- [9] С. И. Кудряшов, Диссертация канд. физ.-мат. наук (МГУ им М.В. Ломоносова, Москва, 1999).
- [10] A. Rohlffing, C. Menzel, L. M. Kukreja, et al., J. Phys. Chem. **107**, 12275 (2003).
- [11] S. I. Kudryashov, V. D. Zvorykin, A. A. Ionin, et al., Appl. Phys. Lett. **92**, 101916 (2008).
- [12] T. Venkatesan, D. C. Jacobson, J. M. Gibson, et al., Phys. Rev. Lett. **53**, 360 (1984).
- [13] Ya. B. Zel'dovich and Yu. P. Raizer, Physics of shock waves and high temperature hydrodynamic phenomena (Dover, New York, 2002).
- [14] O. N. Krokhin, High Temperature and Plasma Phenomena Induced by Laser radiation, in: Proc. Intern. School Phys., Ed. H. Knoepfel (Academic Press, New York, 1973), p. 278.
- [15] C. R. Phipps, J. R. Luke, T. Lippert, M. Hauer, et al., Appl. Phys. A **79**, 1385 (2004).
- [16] C. R. Phipps, Jr., T. P. Turner, R. F. Harrison, et al., J. Appl. Phys. **64**, 1083 (1988).
- [17] И. С. Григорьев, Е. З. Мейлихов, Физические величины (Энергоатомиздат, Москва, 1991).
- [18] A. Vogel, J. Noack, G. Hüttmann, and G. Paltauf, Appl. Phys. B **81**, 1015 (2005).
- [19] C. Porneala and D. A. Willis, J. Phys. D **42**, 155503 (2009).
- [20] E. I. Asinovskii, A. V. Kirillin, and A. V. Kostanovskii, High. Temp. **35**, 716 (1997).
- [21] С. И. Анисимов, Я. А. Имас, Г. С. Романов, Ю. В. Ходыко, Действие мощного лазерного излучения на металлы (Наука, Москва, 1970).
- [22] D. Büerle, Laser Processing and Chemistry (Springer, Berlin, 2000).

- [23] Н. И. Коротеев, И. Л. Шумай, *Физика мощного лазерного излучения* (Москва, Наука, 1991).
- [24] D. W. Gregg and S. J. Thomas, *J. Appl. Phys.* **37**, 2787 (1966).
- [25] R. G. Root, *J. de Phys.* **41**(11), C9 (1980).

Поступила в редакцию 11 мая 2010 г.