

# Нелинейное поглощение ультрафиолетовых фемтосекундных лазерных импульсов в аргоне

В. Д. Зворыкин, А. А. Ионин<sup>1)</sup>, С. И. Кудряшов, Ю. Н. Пономарев<sup>+1)</sup>, Л. В. Селезнев, Д. В. Сеницын, Б. А. Тихомиров<sup>+</sup>

Физический институт им. П. Н. Лебедева РАН, 119991 Москва, Россия

<sup>+</sup>Институт оптики атмосферы Сибирского отд. РАН, 634055 Томск, Россия

Поступила в редакцию 26 мая 2008 г.

Опто-гальванический и оптико-акустический методы используются для определения механизмов нелинейного поглощения мощных ультрафиолетовых фемтосекундных лазерных импульсов в газообразном аргоне. Отмечается увеличение степени нелинейности процесса поглощения от 3 до 4 с возрастанием интенсивности лазерного излучения в диапазоне 0.03–12 ТВт/см<sup>2</sup> и обсуждаются возможные физические механизмы этого явления.

PACS: 32.80.–t

1. По мере развития в последнее десятилетие фемтосекундных лазерных систем вопросы взаимодействия мощных лазерных ультракоротких импульсов (УКИ) с газовыми средами стали предметом широкомасштабных фундаментальных и прикладных физических и химических исследований [1–8] (см. также обзоры в [9, 10]). При взаимодействии лазерных УКИ с атомными и молекулярными газами обычно исследуются: генерация высших оптических гармоник фемтосекундной длительности [1] или генерации излучения еще более короткой (аттосекундной) длительности [2], процессы фотохимического превращения молекул [3], филаментация пучков мощных лазерных УКИ в различных газах [4–10]. Результаты фундаментальных исследований находят применение в задачах дистанционной (лидарной) диагностики атмосферы [5] и удаленных объектов (в том числе в терагерцовом диапазоне [6]), и управления высоковольтными электрическими разрядами [7].

Примечательно, что в большинстве указанных процессов, например при генерации высших оптических гармоник и филаментации, предполагается существенная ионизация газа (плотность плазмы вплоть до  $N_e \sim 10^{17} \text{ см}^{-3}$ ) в лазерном поле УКИ с интенсивностями излучения  $I = 10\text{--}100 \text{ ТВт/см}^2$  [1, 8–10], которые соответствуют напряженностям лазерного электрического поля, приближающимся к внутриатомным  $\sim 10^9 \text{ В/см}$ . В столь сильных лазерных полях следует ожидать значимых возмущений (сдвигов вверх, расщеплений) связанных энергетических состояний атомных и молекулярных систем,

обусловленных линейным или квадратичным эффектами Штарка [11], тогда как для электронных состояний непрерывного спектра вследствие пондеромоторного эффекта можно ожидать увеличения потенциала ионизации атомов или молекул [12]. Хотя указанные эффекты должны оказывать серьезное влияние на процессы ионизации газов, их роль остается мало изученной, и они практически не учитываются ни при интерпретации экспериментальных данных [4–7, 9, 10], ни при теоретическом рассмотрении явлений, связанных с распространением мощных лазерных УКИ [8–10].

Целью настоящей работы является исследование физических механизмов фотовозбуждения и формирования газовой плазмы при нелинейном поглощении мощных фемтосекундных импульсов лазерного излучения с длиной волны 248 нм в газообразном аргоне с использованием опто-гальванического и оптико-акустического методов.

2. Для нелинейного фотовозбуждения и ионизации газообразного аргона в работе использовалось линейно поляризованное излучение третьей гармоники ( $\lambda = 248 \text{ нм}$ ) фемтосекундной Ti:Sa лазерной системы с длительностью импульсов / шириной спектра (FWHM) 50 фс / 1 нм, энергией импульсов 0.4 мДж, диаметром лазерного пучка 6 мм и частотой следования 10 Гц [13, 14]. Энергия ультрафиолетового (УФ) УКИ изменялась в диапазоне 6–100% от максимального значения отражающими диэлектрическими зеркалами из KУ-1 и CaF<sub>2</sub>.

Исследование ионизации аргона проводилось опто-гальваническим методом, экспериментальная

<sup>1)</sup>e-mail: aion@sci.lebedev.ru; yupon@iao.ru

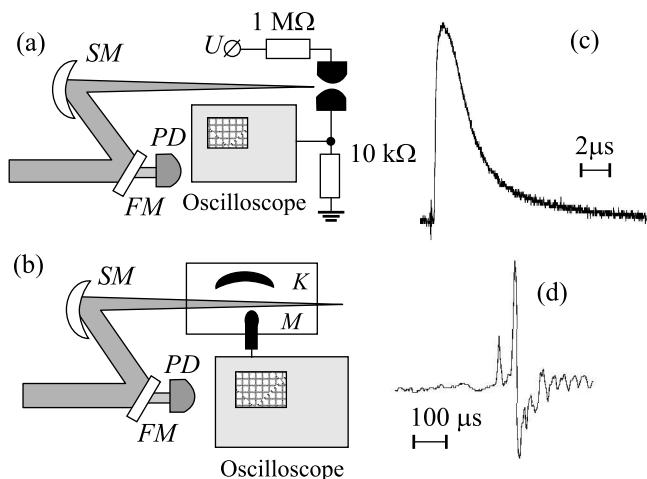


Рис.1. Схемы опто-гальванических (а) и опто-акустических (б) измерений параметров взаимодействия УФ лазерных УКИ с аргонем и осциллограммы характерных опто-гальванического (с) и опто-акустического (д) сигналов. *FM*, *SM* – плоские и сферические диэлектрические зеркала, *U* – высокое напряжение, *K*, *M* – акустические концентратор и микрофон, *PD* – фотодиод

схема которого приведена на рис.1а. Лазерное излучение фокусировалось диэлектрическим сферическим зеркалом (фокусное расстояние 1 м) в фокальный объем  $V_{\text{фоc}} \approx 200 \text{ мкм} \times 200 \text{ мкм} \times 10 \text{ мм}$  в межэлектродном пространстве. В некоторых экспериментах интенсивность УФ излучения в межэлектродном пространстве изменялась также перемещением фокусирующего зеркала относительно системы электродов (расфокусировкой). Сферические алюминиевые электроды диаметром 20 мм с зазором  $l = 3\text{--}5 \text{ мм}$  располагались внутри газовой ячейки, заполнявшейся аргонем (чистота 99.9%). На электроды подавалось постоянное напряжение  $U = 0.4\text{--}3 \text{ кВ}$ . Соотношение напряжения на электродах к длине зазора поддерживалось так, чтобы не возникало пробоя межэлектродного промежутка. После многофотонной ионизации аргона лазерным УКИ под действием внешнего электрического поля происходил амбиполярный дрейф плазменного облака вплоть до замыкания плазмой межэлектродного промежутка (оценки показывают, что это происходит за характерные времена  $\sim 100 \text{ нс}$ , что соответствует задержке появления тока, наблюдаемого на осциллограммах (рис.1с)). После этого между электродами возникал самостоятельный разряд, ток которого уменьшался вследствие двухчастичной рекомбинации плазмы.

Исследование фотовозбуждения аргона проводилось опто-акустическим методом, экспериментальная схема которого приведена на рис.1б.

Применяемая опто-акустическая ячейка была детально описана в [15]. В экспериментах расстояние от фокусирующего зеркала (фокусное расстояние 1 м) до конденсаторного микрофона составляло  $\sim 60 \text{ см}$ . Характерная осциллограмма опто-акустического сигнала показана на рис.1д.

3. Зависимости амплитуды измеренных при атмосферном давлении электрических ( $V$ ) и опто-акустических ( $P$ ) сигналов от интенсивности лазерного излучения  $I$  представлены на рис.2 и рис.3. Приведенные на рис.2 зависимости  $P(I)$  и  $V(I)$

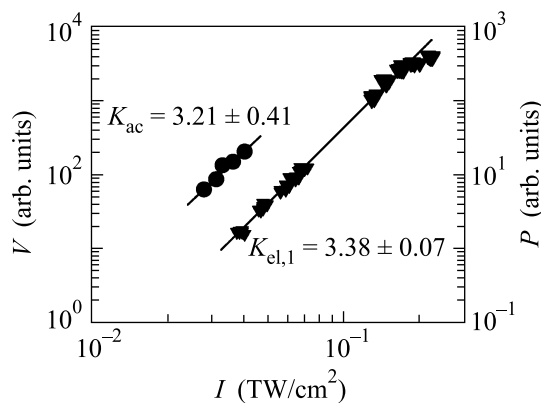


Рис.2. Зависимости амплитуды опто-гальванического сигнала  $V$  (треугольники,  $U = 0.77 \text{ кВ}$ ) и опто-акустического сигнала  $P$  (круги) для аргона от интенсивности лазерного излучения  $I$  в двойных логарифмических координатах и аппроксимирующие их прямые с наклонами  $K_{el,1}$  и  $K_{ac}$ , соответственно

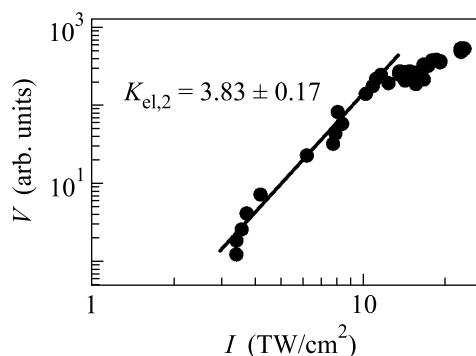


Рис.3. Зависимость амплитуды опто-гальванического сигнала  $V$  для аргона при напряжении  $U = 2.5 \text{ кВ}$  от  $I$  в двойных логарифмических координатах с наклоном аппроксимирующей прямой  $K_{el,2}$

показывают, что в относительно слабых лазерных полях ( $I \approx 0.03\text{--}0.2 \text{ ТВт/см}^2$ ) поглощение излучения в аргоне, равно как и однократная ионизация атомов аргона, протекают как трехфотонный про-

цесс (показатели нелинейности, измеренные оптико-акустическим и опто-гальваническим методами, соответственно,  $K_{ac} = 3.2 \pm 0.4$  и  $K_{el,1} = 3.4 \pm 0.1$ ). В более сильных лазерных полях от  $\sim 3$  ТВт/см<sup>2</sup> до  $\sim 10$  ТВт/см<sup>2</sup> зависимость  $V(I)$  показывает для атомов аргона более сильный (четырёхфотонный) характер многофотонной ионизации с нелинейностью  $K_{el,2} = 3.8 \pm 0.2$  (рис.3). Наблюдение нецелочисленных значений показателя нелинейности связано, по-видимому, с усреднением процессов трех- и четырехфотонной ионизации как по длительности импульса, так и по ионизируемому объему.

Трехфотонная ионизация атомов аргона, наблюдаемая в настоящей работе в слабых лазерных полях (менее 0.2 ТВт/см<sup>2</sup>), может идти через разрешенный правилами отбора трехфотонный переход из основного в промежуточное резонансное ридберговское состояние  $4d'[5/2]$ ,  $J = 3$  (14.97 эВ) [12] (см. диаграмму Гротриана энергетических уровней Ag на рис.6.18 в работе [16]), поскольку трех УФ квантов с общей энергией  $3 \times (5.00 \pm 0.02)$  эВ =  $15.00 \pm 0.06$  эВ (с учетом ширины спектра) не хватает для ионизации атомов аргона (первый потенциал ионизации 15.76 эВ [16]). Соответственно, выход ионов в данных условиях связывается с процессами туннельной ионизации атомов аргона через квазиконтинуум вышележащих ридберговских состояний под действием приложенного внешнего статического электрического поля напряженностью  $\sim 1$  МВ/м [17]. Другие эффекты, связанные со сдвигом потенциала ионизации – пондеромоторный эффект в лазерном поле, локализация зарядов в слабоионизованной, разреженной плазме в результате плазменного экранирования на длине порядка дебаевского радиуса и межчастичных соударений на микронной длине свободного пробега, дают незначительные добавки к его величине. Примечательно, что вклад пеннинговской ионизации через бинарные соударения атомов аргона в фотовозбужденном ридберговском состоянии [18], пропорциональный  $(I^3)^2 \approx I^6$ , не наблюдается.

Напротив, в более сильных лазерных полях (более 3 ТВт/см<sup>2</sup>), где наблюдается преимущественно четырехфотонная ионизация атомов аргона, имеют место штарковские сдвиг и расщепление фотовозбуждаемых и вышележащих ридберговских уровней, а также пондеромоторный сдвиг потенциала ионизации. Величина штарковского сдвига в переменном, линейно поляризованном электрическом поле напряженностью  $E_{las}$  и частотой  $\omega$  для ридберговских уровней  $\varepsilon_n$  с главным квантовым числом  $n$  с учетом динамической поляризуемости атомов аргона  $\chi^{(1)}(\omega, \omega)$  в первом порядке теории возмущений имеет вид [11]

$$\begin{aligned} \delta\varepsilon_n^{(1)}(E_{las}) &= \varepsilon_n(E_{las}) - \varepsilon_n(0) \approx \chi^{(1)}(\omega, \omega) \langle E_{las} \rangle^2 \approx \\ &\approx \sum_m \frac{|z_{nm}|^2 E_{las}^2}{(\omega_{mn} - \omega) + (\omega_{mn} + \omega)}, \end{aligned} \quad (1)$$

где суммирование ведется по всем состояниям  $m$ , дипольно связанным с состоянием  $n$ , и разностью энергий  $\hbar\omega_{mn} = \varepsilon_m - \varepsilon_n$ . Для ридберговских состояний динамическая поляризуемость быстро возрастает при увеличении  $n$  [16], достигая для состояния  $4d'[5/2]$ ,  $J = 3$ , величины  $\chi^{(1)}(\omega, \omega) \sim 10^{-29}$  м<sup>3</sup> [16], достаточной для лазерного УКИ с  $I > 0.2$  ТВт/см<sup>2</sup>, чтобы сдвинуть это состояние вверх на  $\delta\varepsilon_n^{(1)} \sim 0.1$  эВ и вывести его из промежуточного трехфотонного резонанса [12]. В результате возникает необходимость в поглощении дополнительного, четвертого УФ фотона для ионизации атомов аргона, причем весь процесс ионизации становится нерезонансным [12].

При интенсивностях лазерного излучения более 10 ТВт/см<sup>2</sup> показатель нелинейности зависимости измеряемого сигнала  $V$  от интенсивности УКИ (рис.3) уменьшается, что может быть связано, например, с полной ионизацией газа [19]. Действительно, из литературных данных известно, что в режиме полной ионизации газа для степенных зависимостей такого рода могут иметь место наклоны, близкие к линейному, например, с показателем 3/2, отражающим увеличение эффективного ионизованного объема [20]. Однако полная ионизация атомов аргона при давлении 1 атм и комнатной температуре (плотность газа  $N_0 \approx 3 \cdot 10^{19}$  см<sup>-3</sup>) соответствует высокой плотности газовой плазмы  $N_e \sim 10^{19}$  см<sup>-3</sup>. Это значение существенно выше характерных плотностей газовой плазмы  $N_e \sim 10^{16}$  см<sup>-3</sup> в филаментах мультитигаваттных УФ УКИ в аргоне, достигаемых при более высоких интенсивностях лазерного излучения  $I \sim 10-10^2$  ТВт/см<sup>2</sup> [1, 4, 8-10]. Поэтому такое объяснение представляется маловероятным. Наблюдаемое уменьшение показателя нелинейности связано, по-видимому, с возрастающим влиянием двухчастичной рекомбинации. Учитывая, что константа скорости электрон-ионных соударений для условий нашего эксперимента составляет величину  $\sim 10^{-6}$  см<sup>3</sup>·с<sup>-1</sup>, можно оценить плотность плазмы для интенсивностей УКИ  $I \sim 10$  ТВт/см<sup>2</sup>. На момент, соответствующий максимальной величине тока несамостоятельного разряда на рис.1с, плотность плазмы составляла  $\sim 10^{12}$  см<sup>-3</sup>. Изменение геометрических размеров плазмы в направлении внешнего электрического поля происходило в результате амбиполярного дрейфа, а перпендикулярно – в результате амбиполярной диффузии (для условий эксперимента скорость дрейфа была на порядок

больше скорости диффузии). Учитывая, что размер фокального объема в направлении поля 0.2 мм, а межэлектродный зазор  $\approx 4$  мм, можно грубо оценить плотность плазмы на момент завершения лазерного УКИ, которая при интенсивностях  $\sim 10$  ТВт/см<sup>2</sup> составляла  $\sim 10^{13}$ – $10^{14}$  см<sup>-3</sup>.

4. Таким образом, в настоящей работе изучены механизмы нелинейного поглощения мощных лазерных УФ УКИ в газообразном аргоне с использованием взаимодополняющих опто-гальванического и оптико-акустического методов. Отмечено увеличение показателя нелинейности процесса поглощения от 3 до 4 с возрастанием интенсивности лазерного излучения в диапазоне 0.03–12 ТВт/см<sup>2</sup>. Трехфотонная ионизация атомов аргона в относительно невысоких лазерных полях (0.03–0.2 ТВт/см<sup>2</sup>) идет через разрешенный правилами отбора трехфотонный переход из основного в промежуточное резонансное ридберговское состояние  $4d'[5/2]$ ,  $J = 3$  (14.97 эВ). При этом выход ионов происходит в результате процессов ионизации атомов аргона через квазиконтинуум вышележащих ридберговских состояний под действием внешнего электрического поля. В более интенсивных лазерных полях (более 3 ТВт/см<sup>2</sup>), где наблюдается преимущественно четырехфотонная ионизация атомов аргона, имеют место штарковские сдвиг и расщепление фотовозбуждаемого резонансного ридберговского уровня, которые выводят его из промежуточного трехфотонного резонанса. В результате, для ионизации атомов требуется поглощение дополнительно, четвертого УФ фотона, причем весь процесс ионизации становится нерезонансным. При дальнейшем увеличении интенсивности лазерного излучения уменьшение наклона кривой, описывающей зависимость плотности плазмы от интенсивности, связано с возрастающим влиянием двухчастичной рекомбинации. Оценки плотности плазмы показали, что при интенсивностях  $\sim 10$  ТВт/см<sup>2</sup> плотность плазмы на момент завершения лазерного УКИ составляла  $\sim 10^{13}$ – $10^{14}$  см<sup>-3</sup>.

Авторы выражают благодарность А.А. Тихову и А.Ю. Козлову (ФИАН) за помощь в проведении экспериментов, Dr. V. Gruzdev (University of Missouri, USA) за плодотворное обсуждение результатов, а

также Г.Г. Матвиенко (ИОА СО РАН) за внимание и поддержку данной работы.

1. N. Kortsalioudakis, M. Tatarakis, N. Vakakis et al., *Appl. Phys. B* **80**, 21 (2005).
2. M. Klaiber, K. Z. Hatsagortsyan, C. Muller, and C. H. Keitel, *Opt. Lett.* **33**, 411 (2008).
3. O. M. Саркисов, С. Я. Уманский, *Успехи химии* **70**, 515 (2001); L. Fang and G. N. Gibson, *Phys. Rev. Lett.* **100**, 103003 (2008).
4. S. Tzortzakis, B. Prade, M. Franco, and A. Mysyrowicz, *Opt. Commun.* **181**, 123 (2000).
5. В. О. Милицын, Л. С. Кузьминский, В. П. Кандидов, *Оптика атмосферы и океана* **18**, 880 (2005).
6. S. Tzortzakis, D. Anglos, and D. Gray, *Opt. Lett.* **31**, 1139 (2006); J.-M. Manceau, A. Nevin, C. Fotakis, and S. Tzortzakis, *Appl. Phys. B* **90**, 365 (2008).
7. S. Tzortzakis, M. A. Franco, Y.-B. Andre et al., *Phys. Rev. E* **60**, R3505 (1999); G. Mejean, R. Ackermann, J. Kasparian et al., *Appl. Phys. Lett.* **88**, 021101 (2006).
8. S. Tzortzakis, B. Lamouroux, A. Chiron et al., *Opt. Comm.* **197**, 131 (2001); A. Couairon and L. Berge, *Phys. Rev. Lett.* **88**, 135003 (2002).
9. A. Couairon and A. Mysyrowicz, *Phys. Rep.* **441**, 47 (2007).
10. J. Kasparian and J.-P. Wolf, *Opt. Exp.* **16**, 466 (2008).
11. Н. Б. Делоне, В. П. Крайнов, *Атом в сильном световом поле*, М.: Атомиздат, 1978.
12. C. J. G. J. Uiterwaal, D. Xenakis, D. Charalambidis et al., *Phys. Rev. A* **57**, 392 (1998).
13. A. A. Ionin, A. V. Konyashchenko, B. M. Koval'chuk et al., *Proc. SPIE* **6346**, 634610 (2007).
14. V. D. Zvorykin, N. V. Didenko, A. A. Ionin et al., *Laser and Particle Beams* **25**, 435 (2007).
15. А. М. Киселев, Ю. Н. Пономарев, А. Н. Степанов и др., *Оптика атмосферы* **19**, 678 (2006).
16. А. А. Радциг, Б. М. Смирнов, *Параметры атомов и атомных ионов*, М.: Энергоатомиздат, 1986.
17. В. И. Балькин, Г. И. Беков, В. С. Летохов, В. И. Мишин, *УФН* **132**, 293 (1980).
18. Н. Б. Колоколов и А. Б. Благоев, *УФН* **163**, 55 (1993).
19. J. Schwarz, P. Rambo, and J. C. Diels, *Appl. Phys. B* **72**, 343 (2001).
20. B. Chang, P. R. Bolton, and D. N. Fittinghoff, *Phys. Rev. A* **47**, 4193 (1993)