

Двухимпульсная фемтосекундная лазерная абляция поверхности стали с варьлируемой межимпульсной задержкой

Э. И. Агеев⁺, В. Ю. Бычков*, В. П. Вейко⁺, А. А. Ионин*, С. И. Кудряшов^{†*×1)}, А. А. Петров⁺,
А. А. Самохвалов⁺

⁺ Университет информационных технологий, механики и оптики, 197101 С.-Петербург, Россия

* Физический институт им. Лебедева РАН, 119991 Москва, Россия

× Национальный ядерный исследовательский университет МИФИ, 115409 Москва, Россия

Поступила в редакцию 24 июня 2016 г.

После переработки 8 августа 2016 г.

Спектральные исследования оптической эмиссии факела, формирующегося в результате абляции стальной мишени выше порога закритического фазового взрыва в схеме вырожденного коллинеарного двухимпульсного воздействия фемтосекундных лазерных импульсов, следующих с интервалом 0.01–1.5 нс, демонстрируют сильный спад интенсивности эмиссии возбужденных атомов в субнаносекундном диапазоне. Наблюдаемый эффект связывается с “объемным” поглощением второго импульса накачки в факеле с околоскритической плотностью, достигаемой на субнаносекундных временах в ходе его гидродинамического расширения.

DOI: 10.7868/S0370274X16180119

1. Фемтосекундная лазерная абляция (ФЛА) является ключевым процессом для прецизионной лазерной нано- и микро-обработки поверхности материалов [1, 2], их лазерно-индуцированного ударно-волнового упрочнения [3], генерации наночастиц [4, 5]. Хотя ключевые механизмы ФЛА – откольная абляция и закритический фазовый взрыв – достаточно хорошо исследованы [6–9], в том числе включая всю предшествующую электронную, решеточную и фазовую динамику [10, 11], ФЛА под действием ультракоротких лазерных импульсов (УКИ) со сложным временным профилем, а также сдвоенных коллинеарных (следующих по одному оптическому пути), вырожденных (одинаковых) или невырожденных по энергии УКИ представляет большой интерес для количественного или даже качественного усиления абляционного эффекта. Это касается как немонотонного увеличения объема удаленного за импульс материала [12, 13], так и повышения выхода ионов [14] или эмиссии электронно-возбужденных атомов/ионов в аналитической оптической эмиссионной спектроскопии [15, 16] в зависимости от межимпульсной задержки. Наиболее важным при этом оказывается взаимодействие второго, задержанного УКИ накачки с разлетающимся “оптически плотным” абляционным факелом, вызванным воздей-

ствием первого УКИ, характер которого зависит от задержки прихода второго УКИ. Также в последнее время в связи с развитием техники лазеров УКИ резко вырос практический интерес к двухимпульсной или даже многоимпульсной ФЛА поверхности материалов пачками импульсов с межимпульсной задержкой, варьлируемой в пико-наносекундном интервале, кроме того, второй УКИ накачки является в определенном смысле пробным импульсом, зондирующим динамику разлета факела ФЛА, которую довольно трудно исследовать в одноимпульсных схемах накачки [17–20]. Вместе с тем детальные исследования двухимпульсной ФЛА и основанное на них фундаментальное представление об общей динамике этого явления до сих пор отсутствуют.

В настоящей работе с помощью метода оптической эмиссионной спектроскопии абляционного факела на поверхности стальной мишени исследовано его взаимодействие со вторым вырожденным УКИ накачки и обсуждаются особенности динамики разлета факела, формируемого в режиме закритического фазового взрыва.

2. В проведенных экспериментах абляция стальной мишени выполнялась линейно-поляризованными УКИ основной частоты (центральная длина волны $\lambda_{\text{las}} \approx 790$ нм, ширина на полувысоте ≈ 21 нм) фемтосекундной Ti:Sa лазерной системы (Авеста Проект) в составе генератора TiF-100-F4 и регенера-

¹⁾e-mail: sikudr@sci.lebedev.ru

тивного усилителя RAP-1500 в ТЕМ₀₀ моде (диаметр на уровне $W_{1/e^2} \approx 8$ мм) с длительностью импульсов τ_{las} (FWHM) около 100 фс (в области взаимодействия), энергией E_{inc} до 1.2 мДж и частотой следования 10 Гц [3]. Импульсы из лазерной системы проходили интерферометр Майкельсона с 50%-делителем пучка и двумя – стационарным и регулируемым – плечами на базе “глухих” зеркал для нормального падения, с регулировкой длины регулируемого плеча размещением соответствующего зеркала на моторизованной трансляционной платформе, обеспечивая два канала накачки УКИ, вырожденных по энергии и коллинеарных по геометрии прохождения излучения, с задержкой τ между ними, варьируемой в интервале 0.01–1.5 нс. Далее лазерные импульсы в нормальном падении фокусировались на поверхность образца в воздухе сферической стеклянной линзой (К-8, $f = 40$ мм, эффективная численная апертура $NA = W_{1/e^2}/2f \approx 0.1$) (рис. 1) в пятно диаметром $2w_0 \approx 50$ мкм, где w_0 –

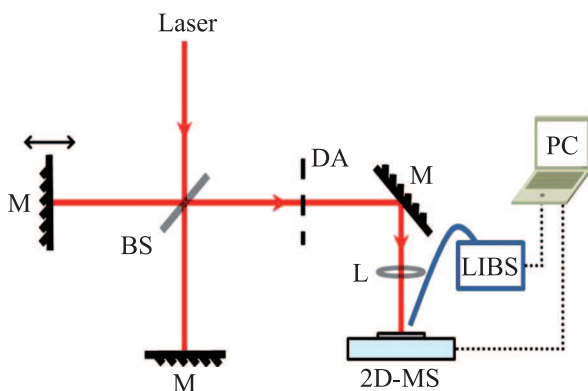


Рис. 1. (Цветной онлайн) Блок-схема экспериментальной установки. Обозначения: BS – делитель пучка, DA – дифракционный ослабитель, M – зеркало, L – линза, 2D-MS – трехмерная моторизованная подвижка, LIBS – пятиканальный волоконный спектрометр LIBS2500, PC – компьютер для сбора данных и управления трансляционной платформой

радиус нормального распределения энергии на мишени на уровне $1/e$. Энергия УКИ ослаблялась перед линзой бинарным дифракционным ослабителем DVA-8-800 (Avesta Project Ltd.) в диапазоне 0.06–0.8 мДж, обеспечивая на мишени пиковые (в центре фокального пятна) значения плотности энергии Φ_0 до 50 Дж/см². Калибровка пиковой плотности энергии для каждого вырожденного канала накачки осуществлялась по размерам одноимпульсных кратеров; порог абляции в режиме фазового взрыва составил $\Phi_{\text{abl}} \approx 0.5$ Дж/см² (ср. с порогом 0.5–0.55 Дж/см² для фазового взрыва в [21]).

В качестве образцов использовались пластины стали 12X18H10T (состав: Fe – 70.8, Cr – 17.5, Ni – 8.4, Mn – 1.9, прочие примеси – 1.4 механически-полированной поверхностью (среднеквадратичный размер шероховатости – 0.2 мкм). Мишени размещались на двухкоординатной моторизованной трансляционной платформе 8MT175 (Standa Ltd.) с минимальным шагом 0.4 мкм и непрерывно перемещались в ходе абляции со скоростью 200 мкм/с.

Для регистрации эмиссионных спектров использовался пятиканальный волоконный спектрометр LIBS2500 (OceanOptics, диапазон – 395–890 нм, спектральное разрешение – 0.1 нм), в который излучение лазерной плазмы вводилось через торец транспортного волокна, которое располагалось под углом 45° к оптической оси фокусирующей линзы (рис. 1). Каждый спектр был получен накоплением сигнала от 10 лазерных выстрелов, аблирующих стальную мишень, которая перемещалась со скоростью 200 мкм/с. Спектральные линии были идентифицированы по данным библиотеки NIST [<http://www.nist.gov/pml/data/asd.cfm>], в спектрах лазерной плазмы присутствовали возбужденные атомы, линий ионов не наблюдалось, что скорее всего связано с малой концентрацией ионов в лазерной плазме, их малым временем жизни и использованием спектрометра с ПЗС-матрицей без усилителя яркости. Измерения выхода оптической эмиссии абляционного факела проводились в одноимпульсной схеме непосредственно от зависимости от Φ_0 (рис. 2) – для оценки зависимости выхода эмиссии разных спектральных компонент факела и сопоставления одно/двухимпульсного воздействия с одинаковым суммарным значением Φ_0 , а также в двухимпульсной схеме при фиксированной суммарной величине $\Phi_0 \approx 9, 16$ и 25 Дж/см² – в зависимости от межимпульсной задержки τ . Следует отметить, что выход эмиссии каждой из спектральных компонент является в значительной степени усредненным по фокальному пятну, и поэтому изменения выхода эмиссии для различных использованных в работе значений Φ_0 являются существенно сглаженными. Выход оптической эмиссии факела в проведенных экспериментах (рис. 2–5) измерен при идентичных условиях (за исключением одно- или двухимпульсного характера воздействия, а также варьирования τ) и допускает непосредственное количественное сравнение.

3. Полученные для моноимпульсного режима воздействия зависимости $I_\lambda(\Phi_0)$ для интенсивности свечения спектральных линий возбужденных атомов FeI абляционного факела (рис. 2) демонстрируют,

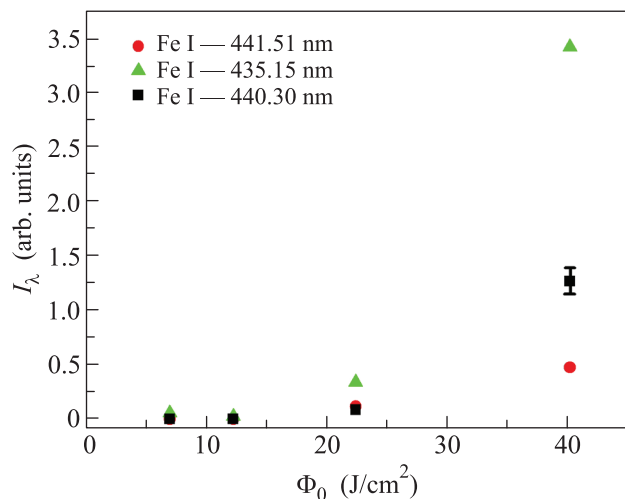


Рис. 2. (Цветной онлайн) Зависимости интенсивности свечения спектральных линий FeI абляционного факела на поверхности стальной мишени от пиковой плотности энергии Φ_0 при моноимпульсной накачке

аналогично предыдущим исследованиям [22], монотонный нелинейный рост эмиссии по мере увеличения Φ_0 . Выход оптической эмиссии отмечается существенно выше порога закритического фазового взрыва $\Phi_{abl} \approx 0.5 \text{ Дж/см}^2$ ввиду относительно невысокой эффективности сбора излучения факела транспортным волоконным спектрометром.

Далее, в зависимости от задержки τ при $\Phi_0 \approx 9 \text{ Дж/см}^2$ интенсивности I_λ свечения спектральных линий возбужденных атомов FeI абляционного факела показывают относительное постоянство сигнала в интервале задержек второго УКИ накачки до 0.5 нс (отмечается даже некоторый рост вблизи $\tau \approx 0.5 \text{ нс}$), с последующим резким спадом интенсивности эмиссии в диапазоне $\tau \approx 0.5\text{--}0.7 \text{ нс}$ и дальнейшим относительно медленным спадом до 1.5 нс (рис. 3). В этом случае – при минимальном суммарном значении $\Phi_0 \approx 9 \text{ Дж/см}^2$ (т.е. в каждом из каналов накачки $\Phi_0 \approx 4.5 \text{ Дж/см}^2$) – минимум интенсивности эмиссии достигается уже при задержке $\tau \approx 1.2\text{--}1.3 \text{ нс}$ с признаками возможного дальнейшего роста (рис. 3). Стоит отметить, что уровень эмиссии для моноимпульса с $\Phi_0 \approx 4.5 \text{ Дж/см}^2$ (не показан на рис. 3) оказывается ниже порога регистрации спектральной системы, тогда как уровень эмиссии для моноимпульса с $\Phi_0 \approx 9 \text{ Дж/см}^2$ (соответствующие горизонтальные штриховые линии на рис. 3) в десятки раз ниже уровней эмиссии факела при двухимпульсном воздействии с суммарным $\Phi_0 \approx 9 \text{ Дж/см}^2$ и $\tau \approx 0.01 \text{ нс}$ (минимальная задержка на рис. 3). Эти факты согласуются с предыдущими

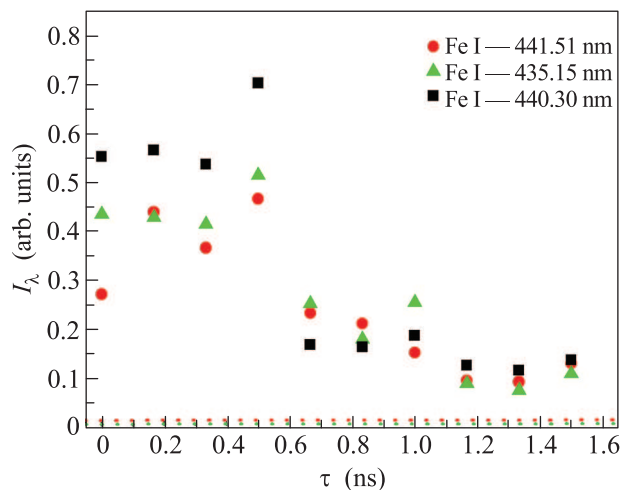


Рис. 3. (Цветной онлайн) Зависимости интенсивности I_λ свечения спектральных линий абляционного факела на поверхности стальной мишени в двухимпульсной схеме от задержки τ (минимальное значение – 0.01 нс) при суммарной пиковой плотности энергии $\Phi_0 \approx 9 \text{ Дж/см}^2$. Уровни эмиссии моноимпульса с близким значением $\Phi_0 \approx 12 \text{ Дж/см}^2$ (рис. 2) показаны для сравнения горизонтальными штриховыми линиями соответствующих цветов для линий FeI 441.51 и 435.15 нм

наблюдениями [15], свидетельствующими о двухимпульсном усилении эмиссии факела в десятки раз при минимальных значениях $\Phi_0 < 50 \text{ Дж/см}^2$ при межимпульсных интервалах более 10 пс. При этом при больших задержках $\tau \approx 1 \text{ нс}$ уровень двухимпульсной эмиссии приближается к уровню одноимпульсной эмиссии, что, по-видимому, свидетельствует в первом случае об ослаблении взаимодействия излучения с плазмой, полностью отсутствующей в моноимпульсном случае.

Аналогично, при промежуточном значении $\Phi_0 \approx 16 \text{ Дж/см}^2$ наблюдается отчетливый, примерно двукратный рост интенсивности эмиссии возбужденных атомов FeI абляционного факела в диапазоне задержек $\tau \approx 0\text{--}0.5 \text{ нс}$ (рис. 4). Далее интенсивность эмиссии быстро падает в интервале $\tau \approx 0.5\text{--}0.8 \text{ нс}$ и медленно вплоть до минимума вблизи $\tau \approx 1.3 \text{ нс}$ (на уровне эмиссии при минимальных задержках), также с признаками возможного дальнейшего роста (рис. 4). При этом двухимпульсное воздействие также приводит к многократному усилению эмиссии факела по сравнению с моноимпульсным воздействием с той же величиной Φ_0 и тем более – с половинной величиной Φ_0 , как уже указывалось выше.

Наконец, при максимальной плотности энергии $\Phi_0 \approx 25 \text{ Дж/см}^2$ (рис. 5) более чем двукратный рост интенсивности эмиссии начинается уже с “нулевой”

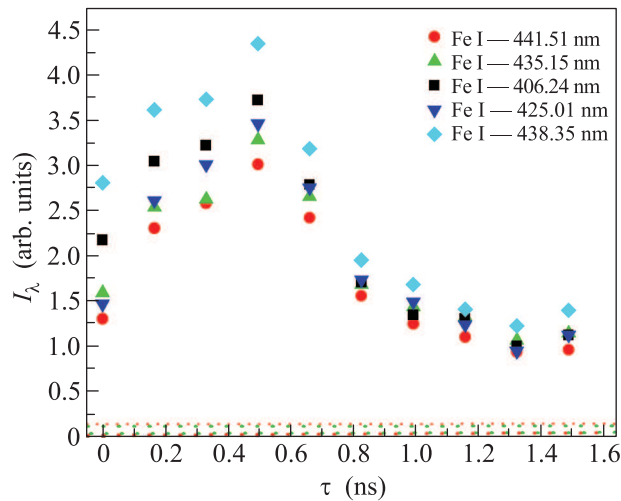


Рис. 4. (Цветной онлайн) Зависимости интенсивности I_λ свечения спектральных линий абляционного факела на поверхности стальной мишени в двухимпульсной схеме от задержки τ (минимальное значение – 0.01 нс) при суммарной пиковой плотности энергии $\Phi_0 \approx 16$ Дж/см². Уровни эмиссии моноимпульса с половинной величиной $\Phi_0 \approx 9$ Дж/см² и близким значением $\Phi_0 \approx 22$ Дж/см² (рис. 2) показаны для сравнения нижними и верхними горизонтальными штриховыми линиями соответствующих цветов для линий FeI 441.51 и 435.15 нм

задержки $\tau \approx 0.01$ нс (опять же от уровня, многократно превосходящего уровень эмиссии для моноимпульса с половинной и сопоставимой величиной Φ_0) и достигает максимума при $\tau \approx 0.1$ нс. Далее для $\tau > 0.2 - 0.5$ нс имеет место довольно медленный спад I_λ , при этом достижение итогового минимума интенсивности эмиссии не отмечается совсем.

Поскольку хорошо известно, что в ходе фазового взрыва характерные времена начала и продолжительности гидродинамического разлета закритического флюида (при высоких интенсивностях УКИ – плазмы) лежат в пикосекундном диапазоне [10, 11, 22], полученные временные зависимости показывают оптико-эмиссионные сигналы для второго УКИ накачки, взаимодействующего с расширяющимся плотным абляционным факелом, а также, возможно, с мишенью позади этого факела. Пиковая интенсивность обоих падающих УКИ накачки ($\sim 10^2$ ТВт/см²) является достаточной для начальной прямой многофотонной ионизации атомной и кластерной компоненты факела, сопровождающейся, в том числе, их фотофрагментацией и завершающейся обратнотормозным поглощением в околоскритической плазме факела с ударным электронным возбуждением его компонент нагретыми электрона-

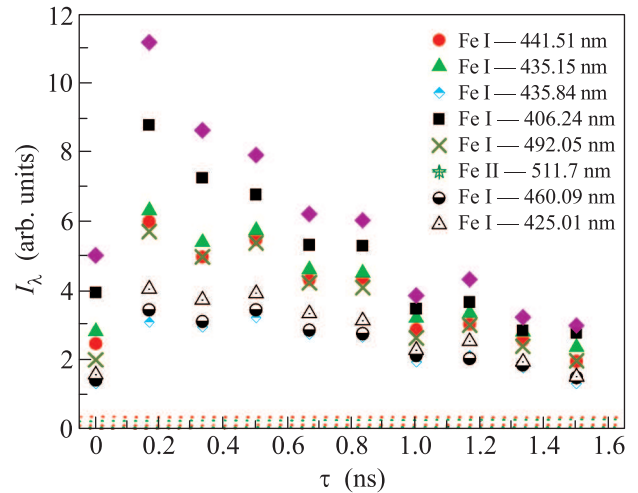


Рис. 5. (Цветной онлайн) Зависимости интенсивности I_λ свечения спектральных линий абляционного факела на поверхности стальной мишени в двухимпульсной схеме от задержки τ (минимальное значение – 0.01 нс) при суммарной пиковой плотности энергии $\Phi_0 \approx 25$ Дж/см². Уровни эмиссии моноимпульса с половинной величиной $\Phi_0 \approx 12$ Дж/см² и близким значением $\Phi_0 \approx 22$ Дж/см² (рис. 2) показаны для сравнения нижними и верхними горизонтальными штриховыми линиями соответствующих цветов для линий FeI 441.51 и 435.15 нм

ми. Тогда начальный участок роста светимости на рис. 3–5 можно связать с оптической эмиссией тонкого слоя плазмы, поглощение в котором растет по мере увеличения его размера (т.е. задержки τ) вплоть до некоторой оптимальной величины. Такое поглощение определяется обратнотормозным эффектом, поскольку достаточно слабая фокусировка излучения на мишень не обеспечивает эффективного резонансного поглощения [23]. Таким образом, с увеличением τ происходит резкий переход от случая сильного отражения (мишень с резкой границей) к режиму сильного поглощения (мишень с умеренно размытой границей). Соответственно, временной максимум интенсивности эмиссии можно соотнести с оптимальным расширением факела, формирующим более пологие градиенты плотности короны в области критической плотности, что обеспечивает наибольшую оптическую толщину факела с околоскритической плотностью (“объемные” энерговыклад и эмиссия факела). Кроме того, для таких умеренных задержек адиабатическое охлаждение плазменной короны, сформированной первым УКИ накачки, не успевает произойти и второй УКИ, эффективно нагревает уже подогретую плазму, что увеличивает выход ее эмиссии. Наконец, последующий спад интенсивно-

сти эмиссии всех спектральных компонент (с увеличением τ), хотя и с несколько отличной динамикой, по-видимому, свидетельствует, что в ходе длительного расширения факела после воздействия первого УКИ он стал уже “оптически тонким”, его температура упала, а область существенного (околокритического) поглощения и энерговклада прижалась к поверхности мишени или даже исчезла, как показывает субнаносекундная динамика уменьшения интенсивности эмиссии факела на рис. 3, 5. При этом более раннее появление максимума и спад интенсивности эмиссии на рис. 3–5 по мере роста Φ_0 отражает, как очевидно, факт более быстрого расширения более горячего исходного факела [22].

4. Таким образом, в настоящей работе с помощью метода оптической эмиссионной спектроскопии исследованы процессы расширения абляционного факела, формирующегося в режиме закритического фазового взрыва под действием пары коллиnearных вырожденных фемтосекундных лазерных импульсов накачки с варьируемой межимпульсной задержкой, и его взаимодействия со вторым импульсом накачки. При этом установлено существование оптимальной величины межимпульсной задержки, обеспечивающей максимальную интенсивность эмиссии всех спектральных компонент. Данное взаимодействие проявляется в форме электронного возбуждения и ионизации вещества факела нагретыми электронами по механизму обратнотормозного поглощения и оказывается наиболее интенсивным (“объемным”) на субнаносекундном временном масштабе ввиду гидродинамического расширения до околокритических значений плотности.

Экспериментальная часть работы выполнена в университете ИТМО при государственной финансовой поддержке ведущих университетов Российской Федерации (субсидия 074-U01), а теоретический анализ результатов – в ФИАН и МИФИ при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект # 14-02-00460_a).

1. A. Kuchmizhak, S. Gurbatov, O. Vitrik, Yu. Kulchin, V. Milichko, S. Makarov, and S. Kudryashov, *Scientific Reports* **6**, 19410 (2016).
2. A. Kuchmizhak, O. Vitrik, Y. N. Kulchin, D. Stozhenko, A. Mayor, A. Mirochnik, S. Makarov, V. Milichko, S. I. Kudryashov, N. Inogamov, and V. Zhakhovsky, *Nanoscale* **8**, 12352 (2016).
3. E. I. Ageev, S. I. Kudryashov, N. V. Nikonov, R. K. Nuryev, A. A. Petrov, A. A. Samokhvalov, and V. P. Veiko, *Appl. Phys. Lett.* **108**, 084106 (2016).
4. K. Maximova, A. Aristov, M. Sentis, and A. V. Kabashin, *Nanotechnology* **26**, 065601 (2015).
5. R. Streubel, S. Barcikowski, and B. Gökce, *Opt. Lett.* **41**, 1486 (2016).
6. X. Y. Wang and M. C. Downer, *Opt. Lett.* **17**, 1450 (1992).
7. K. Sokolowski-Tinten, J. Bialkowski, A. Cavalleri, D. von der Linde, A. Oparin, J. Meyer-ter-Vehn, and S. I. Anisimov, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 224 (1998).
8. С. И. Ашитков, Н. А. Иногамов, В. В. Жаховский, Ю. Н. Эмиров, М. Б. Агранат, И. И. Олейник, С. И. Анисимов, В. Е. Фортвов, *Письма в ЖЭТФ* **95**, 192 (2012).
9. C. Wu and L. V. Zhigilei, *Appl. Phys. A* **114**, 11 (2014).
10. А. А. Ионин, С. И. Кудряшов, Л. В. Селезнев, Д. В. Сеницын, А. Ф. Бункин, В. Н. Леднев, С. М. Першин, *ЖЭТФ* **143**, 403 (2013).
11. A. A. Ionin and S. I. Kudryashov, *Int. J. Heat & Mass Transfer* **99**, 383 (2016).
12. A. Semerok and C. Dutouquet, *Thin Solid Films* **453–454**, 501 (2004).
13. D. E. Roberts, A. du Plessis, and L. R. Botha, *Appl. Surf. Sci.* **256**, 1784 (2010).
14. M. Spyridaki, E. Koudoumas, P. Tzanetakakis, C. Fotakis, R. Stoian, A. Rosenfeld, and I. V. Hertel, *Appl. Phys. Lett.* **83**, 1474 (2003).
15. J. Penczak, R. Kupfer, I. Bar, and R. J. Gordon, *Spectrochimica Acta Part B* **97**, 34 (2014).
16. J. Mildner, Ch. Sarpe, N. Götte, and M. Wollenhaupt, Th. Baumert, *Appl. Surf. Sci.* **302**, 291 (2014).
17. K. Oguri, Y. Okano, T. Nishikawa, and H. Nakano, *Phys. Rev. Lett.* **99**, 165003 (2007).
18. N. Zhang, X. Zhu, J. Yang, X. Wang, and M. Wang, *Phys. Rev. Lett.* **99**, 167602 (2007).
19. P. M. Leguay, A. Lévy, B. Chimier, F. Deneuville, D. Descamps, C. Fourment, C. Goyon, S. Hulin, S. Petit, O. Peyrusse, J. J. Santos, P. Combis, B. Holst, V. Recoules, P. Renaudin, L. Videau, and F. Dorchies, *Phys. Rev. Lett.* **111**, 245004 (2013).
20. L. V. Fletcher, H. J. Lee, T. Döppner et al. (Collaboration), *Nat. Photon.* **9**, 274 (2015).
21. И. А. Артюков, Д. А. Заярный, А. А. Ионин, С. И. Кудряшов, С. В. Макаров, П. Н. Салтуганов, *ПЖЭТФ* **99**, 54 (2014).
22. S. Singha, Z. Hu, and R. J. Gordon, *J. Appl. Phys.* **104**, 113520 (2008).
23. Б. Н. Гершман, Н. Г. Денисов, В. Л. Гинзбург, *УФН* **61**, 561 (1957).