

УДК 621.039.66:537.531

© И. В. Курнин, В. В. Акулиничев

ОПТИМИЗАЦИЯ ИЗЛУЧЕНИЯ СУБПИКОСЕКУНДНОЙ ЛАЗЕРНОЙ ПЛАЗМЫ В ДИАПАЗОН "ВОДЯНОГО ОКНА"

Предложена аналитическая модель взаимодействия субпикосекундного лазерного импульса со сверхтонкими пленками. С помощью данной модели рассмотрена оптимизация излучения Ly- α линии углерода, попадающей в диапазон "водяного окна" — 3.38 нм. Дан анализ получения при взаимодействии пленка—лазер оптимальных условий для высвета линии. Результаты расчетов по модели хорошо согласуются с результатами численного моделирования и имеющимися экспериментальными данными.

ВВЕДЕНИЕ

Большое значение по сравнению с электронной приобретает лазерная микроскопия биологических объектов [1, 2]. Поскольку поглощательные свойства углерода и кислорода, входящих в сложные молекулы, различаются в диапазоне так называемого "водяного окна" (2.3–4.4 нм) на порядок, то для данной задачи представляется важным иметь интенсивный плазменный источник излучающий именно в этот диапазон. В настоящей работе с помощью аналитической модели рассматривается оптимизация высвета Ly- α линии углерода (3.38 нм) при взаимодействии субпикосекундного лазерного импульса со сверхтонкими углеродными пленками.

1. АНАЛИТИЧЕСКАЯ МОДЕЛЬ

Для того чтобы выявить условия оптимизации излучения Ly- α линии при облучении тонкой углеродной мишени коротким (субпикосекундным) лазерным импульсом, рассмотрим аналитическую модель взаимодействия. Пусть на углеродную мишень определенной толщины d падает по нормали к ее поверхности лазерный импульс со следующими параметрами [3]: длина волны излучения $\lambda = 0.248$ мкм, длительность импульса $\tau = 700$ фс, интенсивность $I_0 = 10^{16}$ Вт/см². Для данных условий и при выполнении неравенства $0.1 < L_h/\lambda < 1$ выражение для коэффициента поглощения имеет вид [4]:

$$\eta = \frac{16 \cdot \pi}{3} \cdot \left(\frac{v_{ei} \cdot \omega}{\omega_p^2} \right) \cdot \left(\frac{L_h}{\lambda} \right), \quad (1)$$

где ω — частота лазерного излучения, ω_p — плазменная частота, v_{ei} — частота электрон-ионных столкновений, L_h — длина разлета плаз-

мы. Поглощенная лазерная энергия идет на нагрев плазмы по длине, определяемой процессом электронной теплопроводности. Длину пробега тепловой волны за время длительности импульса τ можно представить как

$$L_T \approx (T_e \cdot \tau / m_e \cdot v_{ei})^{1/2}, \quad (2)$$

где T_e — электронная температура, m_e — масса электрона [5]. Тогда с учетом (1) и (2) из равенства полной поглощенной энергии и тепловой энергии плазмы на длине прогрева определим зависимость температуры электронов от параметров лазерного импульса и материала мишени:

$$T_e = 37.66 \cdot N_{i0}^{-2/13} \cdot \lambda^{-8/13} \times \\ \times \tau^{6/13} \cdot I_0^{4/13} \cdot Z^{6/13} \cdot A^{-2/13}, \quad (3)$$

где Z — заряд ядра и A — атомная масса элемента, N_{i0} — начальная концентрация ионов. Здесь и далее в практических формулах T_e измеряется в эВ; $N_{i,e}$ — см⁻³; I_0 — эрг/сек·см²; λ , d — см; τ — сек. Приравняв лазерную энергию, поглощенную за время действия импульса, тепловой энергии электронов на длине мишени, найдем температуру электронов в случае тонкой мишени ($L_T > d$):

$$T_e = 5.9 \cdot 10^7 \cdot (N_{i0} d)^{-1/2} \cdot \lambda^{-1} \cdot \tau \cdot I_0^{1/2} \cdot Z^{1/4} \cdot A^{-1/4}. \quad (4)$$

Считая разлет плоским, можно определить концентрацию ионов ко времени окончания действия лазерного импульса как $N_i = N_{i0} d / L_p$, где $L_p = d + C_s(2\tau - \tau_T)$ — длина плазмы, C_s — скорость звука в плазме, а τ_T — время, необходимое для прогорания мишени, определяемое из $L_T = d = (T_e \cdot \tau / m_e \cdot v_{ei})^{1/2}$. Таким образом, мы находим $T_e^{(1)}$, $N_i^{(1)}$ и длину плазмы на стадии воздействия на мишень лазерного импульса $L_p^{(1)}$

(соответствующие величины обозначены значком (1)). С окончанием лазерного импульса начинается свободный двусторонний разлет плазмы. Через время t после окончания лазерного импульса значения ионной концентрации и температуры электронов (помечены значком (2)) в плазме могут быть представлены в виде

$$N_i^{(2)} = N_i^{(1)} \frac{L_p^{(1)}}{L_p^{(2)}}, \quad T_e^{(2)} = T_e^{(1)} \left(\frac{L_p^{(1)}}{L_p^{(2)}} \right)^{(\gamma-1)}, \quad (5)$$

где $\gamma = 5/3$, $L_p^{(1)} = d + C_s(2\tau - \tau_T)$, $L_p^{(2)} = L_p^{(1)} + 2C_s \cdot t$.

Чтобы найти значение вывета линейчатого излучения соответствующего иона, необходимо оценить долю ионов определенной кратности ионизации в составе образовавшейся плазмы. Зарядовый состав плазмы найдем на основе системы уравнений зарядовой кинетики [6], полагая, что гидродинамические параметры плазмы меняются медленно по сравнению с характерными временами элементарных процессов. Исходя из характерных параметров разлетающейся плазмы, ограничимся представлением четырех ионов. Таким образом, мы имеем:

$$Y^{(i+1)} = \frac{S^{(i)}}{\alpha^{(i+1)}} Y^{(i)}, \quad \sum_{(i)} Y^{(i)} = 1, \quad (6)$$

где $Y^{(i)} = N_i^{(i)}/N_i$ — обозначает относительную концентрацию ионов определенной степени ионизации i начиная с литийподобного иона, а также обозначены скорости элементарных процессов, относящиеся к данному иону: $S^{(i)}$ — скорость ионизации электронным ударом и $\alpha^{(i)}$ — скорость трехчастичной рекомбинации соответствующего иона, которые определяются согласно [7]. Решая систему уравнений (6), найдем зарядовый состав плазмы в зависимости от гидродинамических параметров плазмы, определяемых толщиной пленки. Далее, чтобы оценить интенсивность излучения для выбранного перехода, рассмотрим переход 2—1 водородоподобного иона углерода. В рамках открытой двухуровневой модели для населенности верхнего уровня имеем

$$N_2^{(H)} = \frac{N_e \cdot N_1^{(H)} V_{1,2}}{A_{2,1} + N_e \cdot V_{2,1}}, \quad (7)$$

где $N_1^{(H)}$ — населенность основного уровня водородоподобного иона, которая находится из (6). То есть населенность верхнего уровня характеризуется скоростями процессов ударного девозбуждения $V_{2,1}$ и спонтанного радиационного распада данного уровня $A_{2,1}$, а также ударным возбуждением нижнего уровня $V_{1,2}$ [5, 6]. Интенсивность излучения в линию определится следующим образом:

$$Q_{2,1} = 1.6 \cdot 10^{-19} A_{2,1} \Delta E_{2,1} N_2^{(H)} L_h, \quad [\text{Вт/см}^2], \quad (8)$$

где $\Delta E_{2,1}$ — энергия данного перехода — измеряется в эВ, а $A_{2,1}$ — в с^{-1} .

Найдем условия, при которых доля водородоподобных ионов в плазме будет максимальной. Полагая для простоты, что при некоторых параметрах плазмы, близких к оптимальным, существуют ионы трех видов (гелийподобные, водородоподобные и атомные ядра), из системы уравнений (6) найдем выражение для $N_i^{(H)}$. Поиск экстремума дает следующее соотношение между температурой электронов и их концентрацией, соответствующее максимальной доле водородоподобных ионов:

$$N_e = 3.03 \cdot 10^{21} \cdot T_e^{3/2} \cdot \frac{\exp\left\{-\left(E_i^{(H)} + E_i^{(He)}\right)/(2T_e)\right\}}{\sqrt{E_i^{(H)} E_i^{(He)}}}, \quad (9)$$

где $E_i^{(He)}$, $E_i^{(H)}$ — энергии ионизации соответствующих ионов (в эВ).

2. СРАВНЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ АНАЛИТИЧЕСКОЙ МОДЕЛИ С ЧИСЛЕННЫМИ РАСЧЕТАМИ И АНАЛИЗ ОПТИМАЛЬНЫХ УСЛОВИЙ ВЫСВЕТА

Эффективность преобразования лазерной энергии в энергию излучения Ly- α линии в зависимости от толщины мишени согласно результатам расчета по аналитической модели представлена на рис. 1. Результаты приведены для двух условий облучения мишени при нормальном падении лазерного импульса с интенсивностью на поверхности углеродной мишени $I_0 = 10^{16} \text{ Вт/см}^2$ и резкой начальной границей плазма—вакуум: 1) $\lambda = 0.248 \text{ мкм}$, $\tau = 700 \text{ фс}$ [3]; 2) $\lambda = 0.308 \text{ мкм}$, $\tau = 500 \text{ фс}$ [8]. Сравнение соответствующих кривых на рис. 1 и 2 показывает, что кроме качественного согласия наблюдается довольно неплохое количественное соответствие между результатами численных расчетов и модельными. Электронная температура тонкой мишени пропорциональна отношению τ/λ в (4): для 1) $\tau/\lambda = 2.82 \text{ пс/мкм}$, для 2) $\tau/\lambda = 1.62 \text{ пс/мкм}$. Поскольку температура электронов в первом случае выше, то для "выравнивания" условий оптимального вывета Ly- α линии углерода, попадающей в диапазон "водяного окна", соответствующая толщина мишени должна быть большей относительно второго варианта. Кроме того, длина мишени определяет массу плазмы, что обеспечивает более высокий уровень интенсивности в первом случае. Данные особенности как раз и можно видеть на рис. 1, 2. Тот факт, что аналитическая модель дает несколько меньшие величины оптимальной толщины

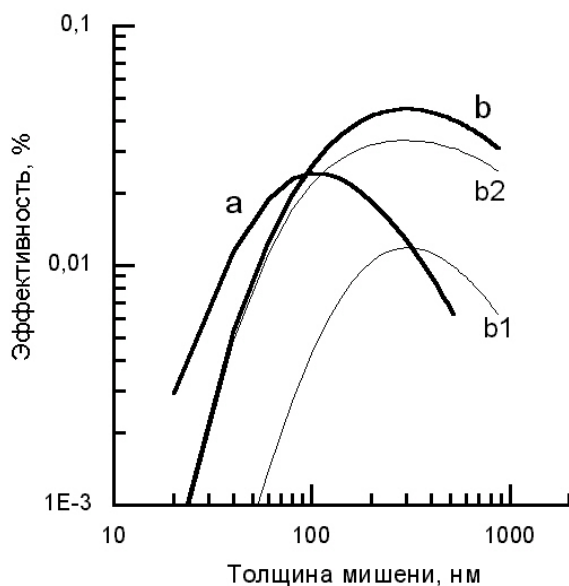


Рис. 1. Эффективность преобразования лазерной энергии в энергию Ly- α линии $\eta_{\text{Ly-}\alpha}$, рассчитанная по аналитической модели как функция толщины мишени d .

a — $\tau = 500$ фс, $\lambda = 0.308$ мкм, $I_0 = 10^{16}$ Вт/см², падение по нормали, условия работы [8], но крутой начальный профиль плотности плазмы; b — $\tau = 700$ фс, $\lambda = 0.248$ мкм, $I_0 = 10^{16}$ Вт/см², падение по нормали; b1 — излучение в течение действия импульса и b2 — после

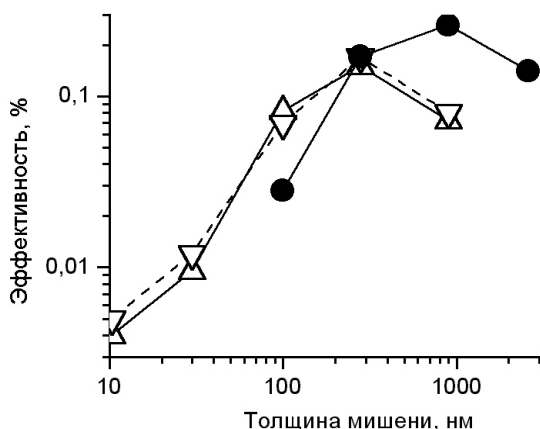


Рис. 2. Расчетная эффективность преобразования лазерной энергии в энергию Ly- α линии $\eta_{\text{Ly-}\alpha}$ как функция толщины мишени d .

● — $\tau = 700$ фс, $\lambda = 0.248$ мкм, $I_0 = 10^{16}$ Вт/см², падение по нормали [3]; условия работы [8] ($\tau = 500$ фс, $\lambda = 0.308$ мкм, $I_0 = 10^{16}$ Вт/см², падение по нормали): Δ — расчет численным кодом "ION" [9], ∇ — результаты расчета из [8]

мишени, можно объяснить тем, что в модели не учитываются пространственные профили параметров плазмы. В целом сравнение результатов позволяет сделать вывод, что предложенная аналитическая модель адекватно описывает ситуацию и показывает неплохое соответствие.

Проанализируем влияние толщины мишени на высвет Ly- α линии. Чтобы получить высвет линии на определенном переходе, необходимо, чтобы в плазме существовали преимущественно ионы требуемой кратности ионизации. Поскольку ионизация происходит в среднем по объему последовательно, то при изменении электронной температуры (увеличении или уменьшении) и постоянной твердотельной плотности плазмы число ионов определенного заряда Z будет увеличиваться либо за счет ионизации электронным ударом ионов с зарядом $Z-1$, либо вследствие трехчастичной ударной рекомбинации ионов с зарядом $Z+1$. То есть доля соответствующих ионов, определяемая скоростями процессов ионизации и рекомбинации, при определенных значениях плотности плазмы и ее температуры имеет максимум. Соотношение между электронной концентрацией и электронной температурой, при которых доля водородоподобных ионов в плазме максимальна, дается формулой (9). Поскольку толщина мишени определяет гидродинамические параметры образуемой плазмы, то ею задаются и условия для образования ионов той или иной кратности ионизации.

Обычно пятно фокусировки для рассматриваемых интенсивностей имеет диаметр 10–20 мкм. При толщине пленки, не превышающей нескольких микрон, разлет образующейся плазмы можно считать плоским. Закон изменения гидродинамических параметров разлетающейся плазмы определяется (5), а концентрация электронов, соответствующая максимуму распределения водородоподобных ионов, пропорциональна

$$\sim T_e^{3/2} \exp\left(-\left(E_i^{(H)} + E_i^{(He)}\right)/(2T_e)\right).$$

Отсюда следует, что соотношение $N_e \sim T_e^{3/2}$ при $N_e^{(1)}$ и $T_e^{(1)}$, определяющих максимальную долю в плазме водородоподобных ионов на момент окончания лазерного импульса, остается справедливым и при дальнейшем разлете плазмы. То есть, несмотря на то что при разлете плазма охлаждается, соответствующее уменьшение электронной концентрации приводит к некоторому сохранению первоначального (на момент окончания лазерного импульса) зарядового состава. Поэтому мы получаем, что для определенной толщины мишени интенсивность Ly- α линии будет оптимальной и при дальнейшем свободном разлете.

Сравним, согласно критерию (9), условия для сплошной мишени и оптимальной толщины

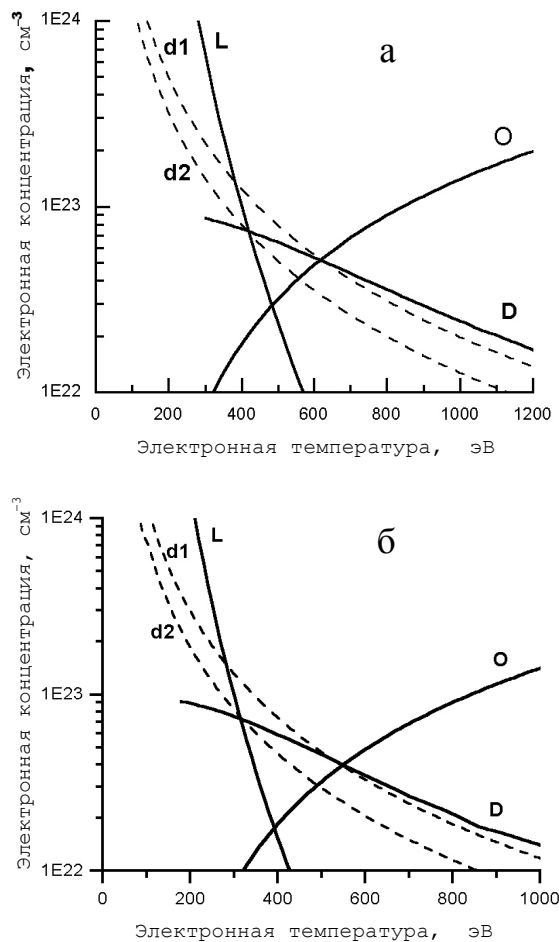


Рис. 3. Зависимость между электронной концентрацией и электронной температурой: О — соответствующая максимуму водородоподобных ионов; D — определяемая динамикой плазмы, согласно (5); L — при взаимодействии с толстой мишенью, согласно (3); d1 и d2 — при взаимодействии с мишенями толщиной d1 (оптимальная толщина) и d2 (максимальная толщина). а — для $\tau = 700$ фс, $\lambda = 0.248$ мкм, $I_0 = 10^{16}$ Вт/см², падение по нормали, 450 нм (d1) и 700 нм (d2); б — для $\tau = 500$ фс, $\lambda = 0.308$ мкм, $I_0 = 10^{16}$ Вт/см², падение по нормали, 250 нм (d1) и 400 нм (d2)

на основе графического решения, представленного на рис. 3. Кривая D характеризует изменение плазменных параметров, согласно (5). Пересечение данной кривой с кривой О (9) означает, что в этой точке реализуется максимум в распределении водородоподобных ионов при заданных параметрах лазерного импульса и определенной толщине мишени. Прохождение через точку пересечения

третьей кривой, представляющей собой соотношение между N_e и T_e при взаимодействии лазерного импульса с тонкой мишенью (4), определяет оптимальную толщину мишени d_1 , которой соответствует максимальный высвет $\text{Ly-}\alpha$ линии углерода. Увеличение толщины постепенно приводит к тому, что длина прогрева L_T становится близкой d и взаимодействие все более напоминает взаимодействие с толстой мишенью. На рис. 3 кривая L представляет собой зависимость для толстой мишени (3). Когда толщина мишени сравнивается с длиной прогрева, точки пересечения кривыми L и d2 зависимости D совпадают. Кривая d2 соответствует предельной толщине, удовлетворяющей условию $d=L_T$. Таким образом, наблюдается самосогласованность аналитической модели.

3. СРАВНЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ АНАЛИТИЧЕСКОЙ МОДЕЛИ С ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫМИ

Проведем сравнение экспериментальных результатов работы [10] с результатами расчета по аналитической модели. Экспериментальные условия состояли в следующем: на углеродную пленку с толщинами, варьируемыми от 10 до 1000 нм, под углом $\theta = 45^\circ$ падал р-поляризованный лазерный импульс с длиной волны излучения 600 нм и длительностью 200 фс. Максимальная интенсивность лазерного излучения на поверхности сверхтонкой пленки составляла $1\text{--}2 \cdot 10^{15}$ Вт/см². В зависимости от толщины углеродной мишени измерялся относительный интегральный выход рентгеновского излучения в области длин волн, не превышающих 10 нм. На рис. 4, а приведена данная экспериментальная зависимость [10], откуда видно, что рентгеновский высвет из плазмы имеет максимум, соответствующий толщине углеродной пленки ≈ 25 нм. Поскольку в исследуемой области излучения плазмы самой яркой является $\text{Ly-}\alpha$ линия углерода [3], а уровень высвета непрерывного излучения плавно спадает, мы можем полагать, что основная составляющая излучения определяется высветом данной линии. Что касается аналитической модели, то единственное отличие данного варианта от представленного выше заключается в том, что здесь мы рассматриваем поглощение р-поляризованного лазерного импульса, падающего под углом θ . В этом случае поглощение лазерного излучения плазмой определяется резонансным механизмом. При выполнении условия $L_h/\lambda < 0.1$, справедливого вследствие относительно небольшой интенсивности излучения и малой длительности импульса, коэффициент поглощения

$$\eta \sim L_h / \lambda (\sin^2 \theta / \cos \theta).$$

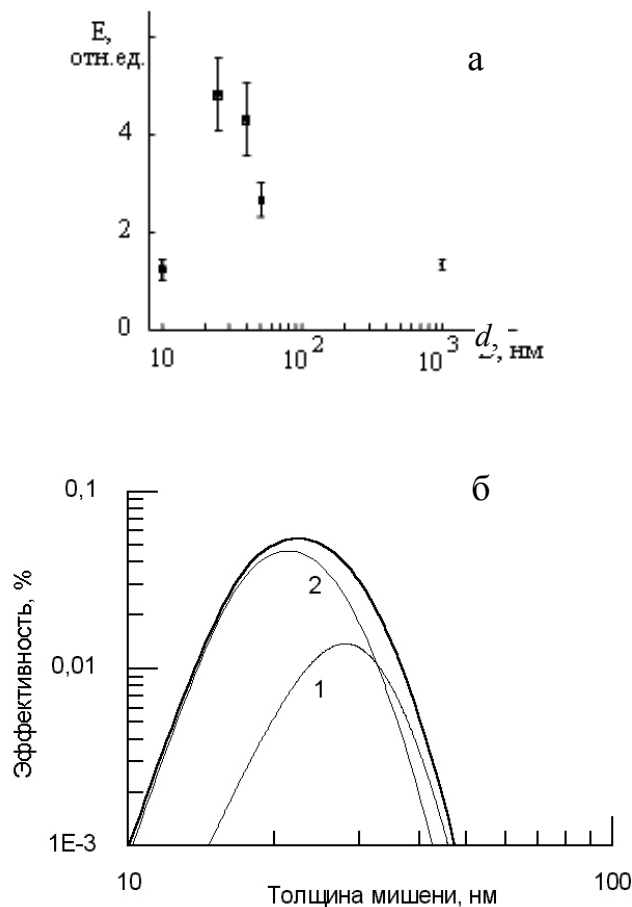


Рис. 4. Зависимость рентгеновского выхода из плазмы от толщины мишени.

а — эксперимент: $\tau = 200$ фс, $\lambda = 0.6$ мкм, $I_0 = 10^{15}$ Вт/см², падение под углом 45°, регистрация излучения с $\lambda < 10$ нм [10]; б — расчет по аналитической модели излучения Ly- α линии углерода для условий эксперимента [10]: 1 — высвет в течение времени воздействия лазерного импульса, 2 — после

риментальных условий представлена на рис. 4, б. Кривая имеет максимум, соответствующий толщине мишени ≈ 20 нм. При толщинах, меньших 10 нм, плазма оказывается сильно перегретой — $T_e \sim d^{-2}$, а быстрый разлет плазмы определяет малую концентрацию электронов. Характерные средние значения электронной температуры и концентрации к моменту окончания воздействия лазерного импульса оказываются следующими: $T_e > 1000$ эВ и $N_e < 10^{22}$ см⁻³. Увеличение толщины мишени ведет к уменьшению температуры электронов плазмы и увеличению электронной плотности. Оптимальные параметры плазмы соответствуют толщине, равной ≈ 20 нм. При дальнейшем увеличении толщины пленки плазма нагревается незначительно, поскольку лазерная энергия идет на прогрев большей толщи мишени. Причем высвет в этом случае определяется главным образом излучением за время действия лазерного импульса (ср. кривые 1, 2 на рис. 4, б). Сравнение эксперимента и теории (рис. 4) показывает, что теоретическая кривая правильно дает как значение толщины, соответствующей максимальному высвету Ly- α линии, так и зависимость по толщине. Малая длительность лазерного импульса и резонансный механизм поглощения определяют быстрый и эффективный энерговклад в мишень, при этом прогораемая толщина мишени невелика. В результате пространственные профили образуемой плазмы симметричны относительно центра мишени, и тем самым ступенчатый модельный профиль плотности плазмы и средней электронной температуры наиболее соответствует ситуации. Таким образом, мы наблюдаем согласие между экспериментом и результатами расчета по теоретической модели. Когда же пространственный профиль плазмы достаточно неоднороден, как например в случае более длинных мощных импульсов и потому более толстых мишеней, соответствующих оптимальному высвету, мы получаем некоторые количественные расхождения (см. рис. 1, 2).

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Тогда электронная температура плазмы определится как

$$T_e = 6.52 \cdot 10^{36} \cdot \frac{I_0^2 \cdot \tau^4}{Z \cdot A \cdot \lambda^2 \cdot N_{i0}^2 \cdot d^2} \cdot \frac{\sin^2 \theta}{\cos \theta}. \quad (10)$$

И далее, согласно модели (5–8), мы получаем выражение для интенсивности высвета Ly- α линии. Эффективность преобразования лазерной энергии в энергию линии в зависимости от толщины сверхтонкой мишени, определяемая аналитической моделью, для рассматриваемых экспе-

Таким образом, предложенная аналитическая модель взаимодействия субпикосекундного лазерного импульса со сверхтонкими пленками адекватно отражает происходящие процессы. Расчеты по данной модели позволяют оптимизировать линейчатый высвет лазерной плазмы. В результате согласования параметров взаимодействия лазер—пленка возможно использовать менее мощные лазерные системы для получения того же уровня излучения плазмы в заданный диапазон, что является актуальным для лазерной микроскопии биологических объектов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Stead A.D., Cotton R.A., Page A.M. et al. The use of laser-plasma produced soft X-rays to study the ultrastructure of living biological material // Proc. SPIE. 1993. V. 2015. P. 2–9.
2. Shinohara K., Ito A., Kinjo Y. X-ray microscopy of biological specimens with laser plasma X-rays // Proc. SPIE. 1993. V. 2015. P. 10–19.
3. Andreev A.A., Teubner U., Kurnin I.V., Forster E. Prospects of "water window" X-ray emission from subpicosecond laser plasmas // Applied Physics B. 2000. V. 70. P. 505–515.
4. Kieffer J.-C., Audebert P., Chaker M. et al. Short-pulse laser absorption in very steep plasma density gradients // Phys. Rev. Lett. 1989. V. 62, N 7. P. 760–763.
5. Мак А.А., Соловьев Н.А. Введение в физику высокотемпературной лазерной плазмы. Л.: Изд. ЛГУ, 1991. 151 с.
6. Держиев В.И., Жидков А.Г., Яковленко С.И. Излучение ионов в неравновесной плотной плазме. М.: Энергоатомиздат, 1986. 160 с.
7. Colombant D., Tonon G. X-ray emission in laser-produced plasmas // J. Appl. Phys. 1973. V. 44. P. 3524–2537.
8. Dzhidzhoev M.S., Gordienko V.M., Kolchin V.V. et al. Generation of incoherent picosecond X-ray pulses: resonant production and advantage of thin films' usage // J. Opt. Soc. Am. B. 1996. V. 13. P. 143.
9. Andreev A.A., Kurnin I.V. Numerical simulation of subpicosecond laser plasma X-ray emission // J. Opt. Soc. Am. B. 1996. V. 13. P. 405–409.
10. Бабаев В.Г., Волков П.В., Гордиенко В.М. и др. Перегрев фемтосекундной плазмы в свободно висящих сверхтонких углеродных пленках // Квантовая электроника. 1997. Т. 24, № 4. С. 291–292.

Институт аналитического приборостроения РАН, Санкт-Петербург

Материал поступил в редакцию 08.10.2001.

OPTIMIZATION OF SUBPICOSECOND LASER PLASMA EMISSION IN THE "WATER WINDOW" RANGE

I. V. Kurnin, V. V. Akulinichev

Institute for Analytical Instrumentation RAS, Saint-Petersburg

The analytical model of interaction of a subpicosecond laser pulse with ultrathin films is offered. With the help of the given model, the optimization of a carbon Ly- α line emission falling in the range of "water window" — 3.38 nm is considered. The analysis of optimum conditions for line emission at film-laser interaction is given. The results of calculations using the model are in agreement with those of numerical simulations and the available experimental data.