

Влияние наномасштабных неоднородностей на эффективность нагрева приповерхностной плазмы фемтосекундными лазерными импульсами

Ю.М.Михайлова, В.Т.Платоненко, А.Б.Савельев

С помощью численного моделирования методом «частиц в ячейке» исследовано взаимодействие сверхкоротких (50–200 фс) световых импульсов (в диапазоне интенсивностей $10^{16} - 10^{18}$ Вт/см²) с плотной плазмой на поверхности пористых мишеней. Продемонстрировано увеличение эффективности поглощения фемтосекундных импульсов в мишенях с высокой (более 4) пористостью, зарегистрированное ранее экспериментально. Показано, что наличие наномасштабных пространственных неоднородностей существенно влияет на степень и характер разогрева электронов и ионов плазмы. В частности, средняя энергия и число горячих электронов при облучении неоднородной плазмы оказываются существенно выше, чем в случае однородной плазмы той же плотности. Численное исследование динамики электронов плазмы позволило выявить физические механизмы их нагрева в пористой среде.

Ключевые слова: фемтосекундные импульсы, лазерная плазма, наноструктурированные объекты.

1. Введение

Высокотемпературная плотная плазма, образующаяся на поверхности мишени под действием фемтосекундных импульсов, является в настоящее время предметом интенсивных экспериментальных исследований, направленных на создание эффективных и компактных источников рентгеновских УКИ и быстрых электронов. Особенно актуально использование твердотельных мишеней, обеспечивающих максимальный выход рентгеновского излучения, минимальную длительность рентгеновских импульсов и наибольшие энергии быстрых частиц. Ключевой проблемой при решении этой прикладной задачи является нагрев приповерхностной плазмы мишени до высоких температур. При интенсивностях лазерного импульса свыше 10^{15} Вт/см² (но ниже 10^{18} Вт/см²) большая часть энергии падающего излучения отражается от плотной плазмы. В то же время рост температуры электронов приводит к увеличению теплопроводности плазмы, что также существенно ограничивает эффективность разогрева ее частиц. Увеличение эффективности разогрева плазмы можно обеспечить путем модификации приповерхностного слоя плотной мишени.

Один из наиболее интересных классов мишеней с точки зрения улучшения характеристик приповерхностной плазмы образуют структурированные мишени, среди которых можно выделить коллоидные металлические пленки [1–3], наноразмерные металлические щетки [4, 5] и пористые материалы (как правило, пористый кремний) [6, 7]. Что касается последних, свойства плазмы, формирующейся на их поверхности, существенно зависят от по-

ристости материала P (пористостью называется отношение плотности твердого тела к средней плотности пористого слоя). Увеличение выхода мягкого рентгеновского излучения при облучении низкопористых мишеней ($P \sim 2 - 3$; пористость обусловлена наличием субмикронных каналов в монокристалле кремния) впервые наблюдалось в работе [8], при этом определяющим фактором оказалось формирование низкоплотного плазменного слоя под действием предимпульса.

Однако особый интерес представляет использование высокопористого кремния, обладающего пористостью $P \sim 4 - 7$ и представляющего собой наноструктурированный губчатый слой на поверхности монокристалла со средним размером кластера от 10 до 2–3 нм. При облучении высокопористых образцов, как впервые было продемонстрировано авторами работы [9], происходит существенное повышение эффективности генерации жесткого рентгеновского излучения. При этом наряду с ростом числа горячих электронов наблюдается значительное повышение средней энергии горячего электронного компонента. Ухудшение контраста лазерного импульса в данном случае приводит к исчезновению эффекта.

Экспериментально зарегистрированное увеличение эффективности поглощения фемтосекундных лазерных импульсов в пористых образцах требует теоретического объяснения. Аналитическое описание взаимодействия сверхкоротких лазерных импульсов с пространственно-неоднородными средами чрезвычайно сложно и до сих пор не проводилось, в то же время достаточно эффективными в данном контексте являются методы численного моделирования. В настоящей работе проведены численные исследования взаимодействия фемтосекундного импульса с плазмой твердотельной плотности и влияния пористой структуры мишени на эффективность ее разогрева. Для этого применялся метод «частиц в ячейке» (PIC), усовершенствованный с целью учета кулоновских столкновений между частицами, что особенно важно в режиме умеренных (менее 10^{17} Вт/см²) интенсивностей света.

Ю.М.Михайлова, В.Т.Платоненко. Московский государственный университет им. М.В.Ломоносова, физический факультет, Россия, 119992 Москва, Воробьевы горы

А.Б.Савельев. Международный учебно-научный лазерный центр МГУ им. М.В.Ломоносова, Россия, 119992 Москва, Воробьевы горы

Поступила в редакцию 30 сентября 2004 г.

2. Численное моделирование методом частиц

Используемый в настоящей работе подход – метод «частиц в ячейке» – достаточно широко применяется для моделирования сложных процессов нелинейного взаимодействия света с лазерной плазмой [10]. Базовыми в данном методе являются точные уравнения Максвелла в вакууме и релятивистские уравнения движения частиц. Для решения уравнений Максвелла нами реализован разностный метод FDTD (finite difference time domain) [11], дающий второй порядок точности интегрирования полей по времени и пространству. Граничные условия в идеале обеспечивают прохождение электромагнитного поля сквозь границы вычислительной области, однако при больших углах падения света идеально проводящие границы реализовать не удается, поэтому расчетная область выбиралась достаточно большой. Поскольку интенсивность рассматриваемых лазерных импульсов достигала 10^{18} Вт/см², в модели использовались релятивистские уравнения движения квазичастиц.

Граничные условия для уравнений движения обеспечивают упругое отражение на границах вычислительной области. Модификация метода «частиц в ячейке» (исначально бесстолкновительного) состояла в учете взаимодействия частиц на близких расстояниях путем введения процедуры расчета парных кулоновских столкновений на каждом временном шаге. Эта часть вычислений крайне важна для данного исследования, т. к. одним из основных механизмов поглощения фемтосекундных лазерных импульсов с интенсивностью менее 10^{17} Вт/см² в плазме твердотельной плотности являются электрон-ионные столкновения (обратный тормозной эффект). Более того, как показано в работе [12], учет столкновений важен и при более высоких интенсивностях света для описания разлета плазмы и ускорения ионов.

Кратко процедура учета столкновений заключается в следующем. На каждом временном шаге моделируется непосредственное взаимодействие квазичастиц в пределах одной ячейки. Квазичастицы разбиваются на пары, для каждой пары рассчитывается случайный угол рассеяния и соответственно пересчитываются импульсы частиц. При рассеянии на малые углы скорость изменения среднего квадрата угла электрон-ионного рассеяния $\langle \theta^2 \rangle$ определяется следующим образом:

$$\frac{d\langle \theta^2 \rangle}{dt} = 2V\sigma(V)N_i,$$

где

$$\sigma(V) = 2\pi \left(\frac{Ze^2}{pV} \right)^2 \ln A$$

– сечение рассеяния; V – относительная скорость сталкивающихся частиц; p – импульс; Ze – заряд иона; N_i – плотность ионов; $\ln A$ – кулоновский логарифм. Предполагая, что вероятность рассеяния частицы в интервал углов от θ до $\theta + d\theta$ на временном отрезке Δt есть гауссова функция со средним квадратом угла

$$\frac{1}{2} \langle \theta^2 \rangle = 2\pi \frac{Z^2 e^2 N_i}{p^2 V} \Delta t \ln A,$$

можно найти случайный угол рассеяния для каждой пары частиц [12]:

$$\theta = [-2\langle \theta^2 \rangle \ln(1 - \xi)]^{1/2},$$

где ξ – одно из однородно распределенных случайных чисел от 0 до 1 ($\xi \in [0, 1]$). Таким образом, на каждом временном шаге моделируются кулоновские столкновения частиц в пределах ячейки сетки, причем случайный угол рассеяния частиц зависит от их скоростей, зарядов и концентрации.

Численное исследование проводится в рамках двумерной модели 2D3P (частицы движутся в двух пространственных измерениях, при этом их импульсы и электромагнитное поле имеют все три компонента). Рассматривается взаимодействие лазерных импульсов (линейно поляризованный свет, $\lambda = 600$ нм, длительность $\tau = 20 - 200$ фс, интенсивность $I = 10^{16} - 10^{17}$ Вт/см²) с плазмой при наличии резкой границы плотности. Плазма представляет собой тонкий слой, расположенный в плоскости yz , излучение направлено вдоль оси z (рис. 1). Электрический вектор лежит в плоскости мишени yz и имеет гауссову огибающую по времени:

$$E(y, z, t) = E(y) \exp \left[-\frac{(t - t_0 - z/c)^2}{2\tau^2} \right] \sin [\omega(t - z/c)].$$

Плазма предполагается изначально ионизованной, отношение заряда к массе для всех ионов одинаково, кратность ионизации Z (для кремния) задается в зависимости от интенсивности лазерного импульса и не меняется в процессе численного эксперимента, масса иона (Si) составляет 28×1836 масс электрона. В начальный момент времени импульсы электронов задаются с помощью распределения Максвелла с температурой 10 эВ, ионы предполагаются холодными.

Плазма с наномасштабными неоднородностями, представляющая основной интерес в нашем исследовании, состоит из отдельных частиц (кластеров) малого размера и твердотельной плотности, разделенных пустотами. Раз-

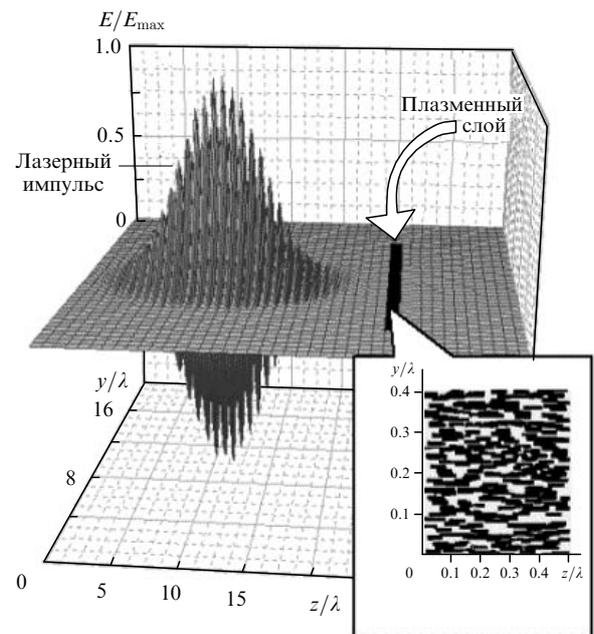


Рис.1. Схема расчетной области. На вставке показан пример моделируемой пористой структуры.

меры кластеров варьируются от 10 до 150 нм, пористость изменяется от нуля до 8, локальная плотность плазмы $n = (60 - 200)n_c$, где n_c – критическая плотность плазмы ($n_c = 3.1 \times 10^{21} \text{ см}^{-3}$ при длине волны света $\lambda = 600 \text{ нм}$). К сожалению, при заданном шаге дискретизации (который определяется доступной вычислительной мощностью ЭВМ, а также требованием отсутствия саморазогрева крупных частиц) реализованный метод расчета накладывает ограничения на минимальный размер кластера плазмы (не менее 10 нм), что не позволяет в точности промоделировать реальный эксперимент с высокопористым кремнием. Тем не менее численный расчет показал, что при варьировании размера кластера в диапазоне 10–50 нм (при постоянной пористости) свойства плазмы (коэффициент поглощения, температура горячих электронов) меняются незначительно, в то же время изменение пористости при постоянном размере кластера сильно влияет на нагрев плазмы. Поэтому закономерности, выявленные в данной работе, остаются в силе и при меньших размерах неоднородностей пористого слоя, соответствующих реальному высокопористому кремнию.

Серии тестов, проведенных со средними интенсивностями падающего импульса $I \sim 10^{14} \text{ Вт/см}^2$, при которых рост температуры плазмы и, следовательно, изменение частоты столкновений в ходе взаимодействия происходят достаточно медленно, показали хорошее согласие результатов численного моделирования с аналитическими формулами Френеля.

3. Результаты и обсуждение

Несмотря на некоторые ограничения, связанные с размерностью модели (2DЗР) и выбором шага дискретизации, численное моделирование позволило выявить следующие закономерности взаимодействия высокотемпературной плотной плазмы с сильным полем короткого светового импульса. Как показывает численный расчет, поглощение энергии лазерного импульса с интенсивностью $10^{16} - 10^{17} \text{ Вт/см}^2$ в однородной плотной плазме незначительно (не более 20 % в случае наклонного падения р-поляризованного света) даже при включении бесстолкновительных механизмов поглощения, таких как вакуумный нагрев. Коэффициент поглощения энергии излучения фемтосекундных импульсов в плазме с нанометровыми неоднородностями (пустотами) оказывается существенно выше. На рис.2,а показан коэффициент поглощения энергии импульса с длительностью 200 фс и интенсивностью $2 \times 10^{16} \text{ Вт/см}^2$ в однородной плазме и плазме с наномасштабными неоднородностями в зависимости от угла падения света. Локальная плотность, пористость и характерный размер кластера неоднородной плазмы соответственно $n = 90n_c$, $P = 5$, $r \sim 30 \text{ нм}$. Видно, что поглощение света при нормальном падении на неоднородную мишень примерно в три раза больше, чем при падении на однородную плоскую мишень. Максимум коэффициента поглощения р-поляризованной волны в неоднородной мишени более чем в два раза превышает максимум поглощения в однородной плазме, кроме того, он шире и смещен в сторону меньших углов падения. Из рис.2,а видно, что чувствительность поглощения к состоянию поляризации излучения падающего импульса в случае неоднородной плазмы значительно ослабляется (кривые, соответствующие р- и s-поляризации падающего света, весьма близки). Наличие пустот в плазме и, сле-

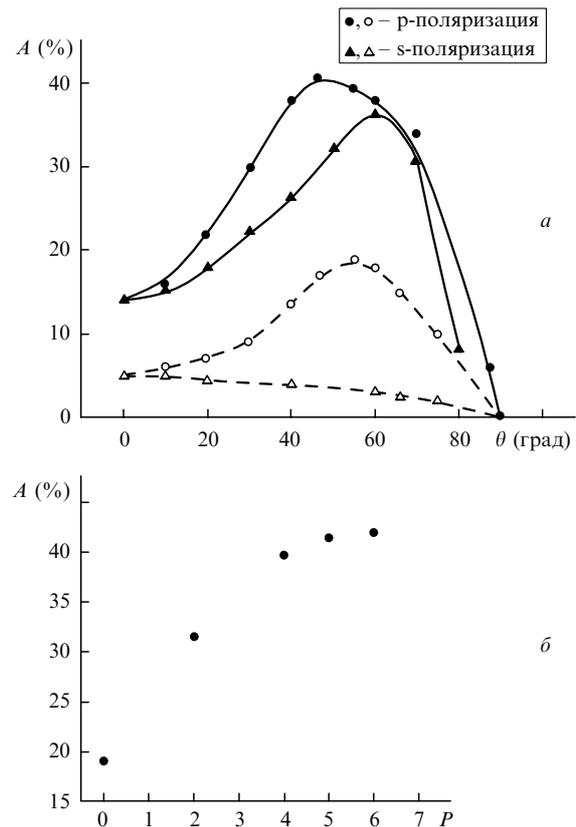


Рис.2. Зависимости коэффициента поглощения A энергии импульса ($\tau = 200 \text{ фс}$, $I = 2 \times 10^{16} \text{ Вт/см}^2$) р- и s-поляризованного света в неоднородной (темные точки) и однородной (светлые точки) плазме ($n = 90n_c$, $P = 5$, $r \sim 30 \text{ нм}$) от угла θ (а) и зависимость коэффициента поглощения A энергии импульса ($I = 10^{16} \text{ Вт/см}^2$, $\tau = 300 \text{ фс}$, $\theta = 47^\circ$) от параметра пористости P при размерах кластеров $r_y = 40 \text{ нм}$ и $r_z = 40 \text{ нм}$ (б).

довательно, низкая средняя плотность, приводят к уменьшению отражательной способности и теплопроводности плазмы и, кроме того, делают возможным резонансное возбуждение плазмонов на удвоенной частоте поля (т.е. в области плотностей плазмы $n \approx 4n_c$). Это обуславливает увеличение коэффициента поглощения в плазме с наномасштабными неоднородностями. На рис.2,б приведена зависимость коэффициента поглощения импульса ($I = 10^{16} \text{ Вт/см}^2$, $\tau = 300 \text{ фс}$, $\theta = 47^\circ$) от параметра пористости, полученная в численном расчете.

Численный расчет показывает, что генерация горячих электронов в плазме на поверхности наноструктурированной мишени происходит эффективнее, чем в однородной плазме. На рис.3 представлены распределения электронов плазмы по энергии после взаимодействия с лазерным импульсом ($I = 2 \times 10^{16} \text{ Вт/см}^2$). На рис.3,а приведена зависимость числа электронов от кинетической энергии движения в направлении, перпендикулярном «средней» поверхности мишени (т.е. от энергии, соответствующей импульсу p_z), а на рис.3,б – от кинетической энергии движения параллельно «средней» поверхности (т.е. соответствующей импульсу p_y). Для сравнения распределения для однородной (сплошная кривая) и неоднородной (точки) мишеней показаны на одном рисунке. В распределениях электронов по энергии можно различить два экспоненциальных участка, каждый из которых можно интерпретировать как часть распределения Максвелла с определенной температурой. Сильные флуктуации в хво-

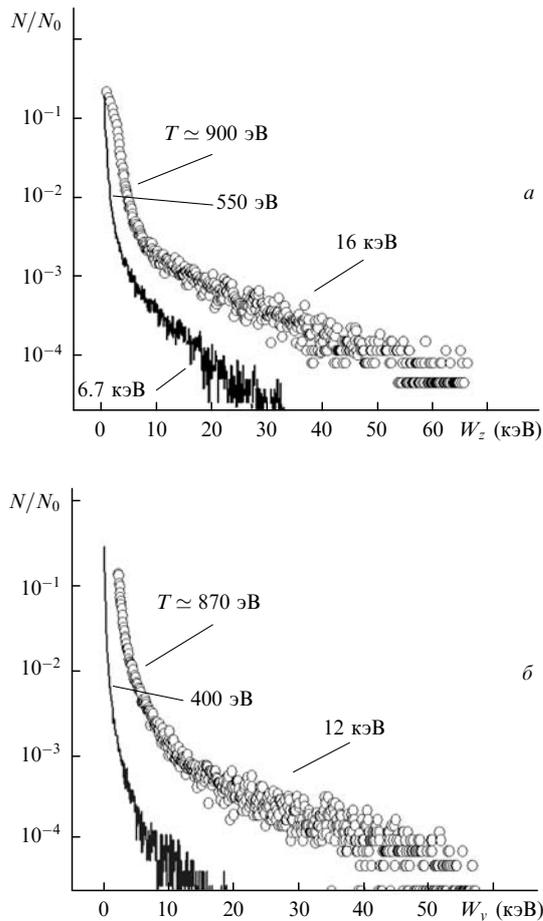


Рис.3. Распределения электронов по энергии в направлении, перпендикулярном (а) и параллельном (б) «средней» поверхности пористой (точки) и однородной (сплошные кривые) мишеней ($n = 90n_c$, $P = 5$, $r \sim 40$ нм), после воздействия р-поляризованного лазерного импульса с параметрами $\lambda = 0.6$ мкм, $I = 2 \times 10^{16}$ Вт/см², $\tau = 200$ фс, $\theta = 45^\circ$. Число электронов N нормировано на их полное число N_0 .

сте распределения возникают вследствие малого числа частиц, используемых в модели, а также из-за происходящих в плазме сильно нелинейных процессов.

В области низких энергий находятся тепловые электроны с температурой $T = 550$ и 400 эВ в однородной плазме и 900 и 870 эВ – в неоднородной. Температура горячих электронов, расположенных в хвосте распределения, увеличивается в пористой среде более чем в два раза и достигает 16 и 12 кэВ вместо 6.7 кэВ, получаемых в однородной плазме. Число горячих электронов в неоднородной плазме оказывается примерно в три раза больше, чем в однородной. Важно отметить существенное различие в распределении горячих и тепловых электронов по пространству для сплошной и пористой мишеней. В первом случае тепловые электроны содержатся в плотной плазме и их распределение по энергии слабо анизотропно, горячие электроны в основном находятся в области плазменной короны и их распределение по энергии сильно анизотропно. В плазме с наномасштабными неоднородностями в области высокой плотности присутствуют как тепловые, так и горячие электроны, а их распределения по энергии почти изотропны.

Чтобы ответить на вопрос о причинах эффективного нагрева электронов в плазме с наномасштабными неоднородностями, необходимо рассмотреть динамику электронной компоненты, в частности поведение электронов

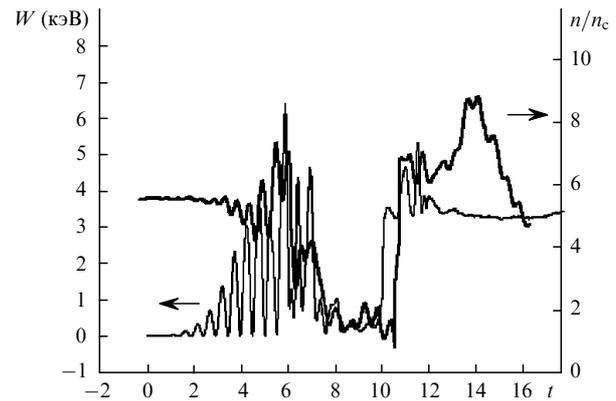


Рис.4. Эволюция кинетической энергии квазиэлектрона и плотность вещества в области, которую он пересекает во время своего движения ($I = 5 \times 10^{16}$ Вт/см²).

в неоднородном электромагнитном поле на границах вещество–пора. Мы проследили движение нескольких квазиэлектронов в тонком слое вблизи поверхности мишени в процессе взаимодействия с фемтосекундным импульсом. На рис.4 показана эволюция кинетической энергии одного из квазиэлектронов и плотность вещества в области, которую он пересекает во время своего движения. Хорошо виден необратимый скачок энергии электрона на границе поры. Рассмотрев множество траекторий различных электронов, мы пришли к выводу, что необратимые скачки энергии на границах плазма–вакуум (которые со временем размываются) являются типичными для быстрых электронов и происходят благодаря локальной нерегулярности электрического поля на границах пор. Эффективность таких необратимых процессов, по существу представляющих собой столкновения электронов с границей вещества, непосредственно зависит от площади поверхности плазма–вакуум. За счет развитой поверхности и внутренних пустот в наноструктурированных мишенях площадь поверхности плазма–вакуум существенно увеличивается. Так, в высокопористом кремнии при $P = 5$ площадь поверхности поглощающего слоя увеличивается в 600 раз. Это означает, что число электронов, взаимодействующих с неоднородной электромагнитной волной вблизи границы плазма–вакуум, также возрастает. Более того, поскольку при интенсивности лазерного импульса $I > 10^{16}$ Вт/см² амплитуда осцилляций электронов ($r_{osc} \geq 10$ нм) становится сравнимой с межкластерным расстоянием ($r_{pore} \sim 10$ нм), электроны, ускоряющиеся вблизи границы плазма–вакуум, как правило, покидают кластер, в котором находились первоначально. Это приводит к увеличению эффективной частоты столкновений электрона с поверхностью, за счет чего электроны способны набирать энергию до нескольких килоэлектронвольт.

Кроме того, как отмечалось выше, одним из факторов, способствующих увеличению средней энергии электронов в условиях пониженной средней плотности, является резонансное возбуждение электронных плазменных волн на частотах, близких к $2\omega_0$, т.е. в области плазмы с плотностью около $4n_c$. Резонанс поглощения энергии падающего излучения при этом довольно широк: при интенсивности лазерного импульса $I = 3.8 \times 10^{17}$ Вт/см² и плотности плазмы $n \approx 7n_c$ коэффициент поглощения оказывается лишь вдвое меньше резонансной величины.

Таким образом, увеличение эффективности нагрева плазмы на поверхности наноструктурированных мишеней по сравнению с эффективностью нагрева однородной плотной плазмы плоских мишеней обусловлено увеличением площади поверхности плазма–вакуум и понижением средней плотности плазмы.

4. Заключение

Проведенные численные исследования позволяют сделать вывод о возможности увеличения эффективности поглощения света в высокотемпературной плотной плазме за счет модификации поверхностного слоя твердотельной мишени. В частности, численный расчет показал, что при наклонном падении фемтосекундных импульсов коэффициент поглощения в плазме высокопористых наноструктурированных мишеней превышает коэффициент поглощения в сплошной мишени более чем в два раза. Важной выявленной особенностью плазмы с наномасштабными неоднородностями является эффективная генерация горячих электронов: число горячих электронов в неоднородной плазме возрастает в три раза по сравнению с их числом в однородной плазме. Существенные различия наблюдаются также в распределении горячих и тепловых электронов по пространству. В случае однородной плазмы тепловые электроны содержатся в плотной плазме и их распределение по энергии слабо анизотропно, горячие электроны в основном находятся в области плазменной короны и их распределение по энергии сильно анизотропно. В случае плазмы с наномасштабными неоднородностями в области высокой плотности присутствуют как тепловые, так и горячие электроны, их распределения по энергии почти изотропны, а температура горячих электронов значительно выше, чем в плазме сплошных мишеней.

Увеличение эффективности нагрева фемтосекундной лазерной плазмы и генерации горячих частиц при ис-

пользования наноструктурированных мишеней объясняется понижением средней плотности плазмы, ее тепло- и электропроводности, а также значительным увеличением площади поверхности плазма–вакуум. Ключевую роль в возрастании температуры и числа горячих электронов играет рост эффективной частоты необратимых процессов взаимодействия быстрых электронов с неоднородным электромагнитным полем вблизи границы пор (т. е. увеличение частоты столкновений электронов с поверхностью вещества).

Работа выполнена при поддержке грантов РФФИ № 04-02-16341 и 02-02-16563.

1. Murnane M.M., Kapteyn H.C., Gordon S.P., Bokor J., Glytsis E.N., Falcone R.W. *Appl. Phys. Lett.*, **62**, 1068 (1993).
2. Gordon S.P., Donnelly T., Sullivan A., et al. *Opt. Lett.*, **19**, 484 (1994).
3. Wulker C., Theobald W., Gnass D.R., et al. *Appl. Phys. Lett.*, **68**, 1338 (1996).
4. Gordienko V.M., Dzhidzhoev M.S., Joukov M.A., et al. *Proc. Conf. «Superstrong Fields in Plasmas»* (New York: AIP, 1998, v. 426, pp 241–252).
5. Kulcsar G., AlMawlawi D., Budnik F.W., Herman P.R., Moskovits M., Zhao L., Marjoribanks R.S. *Phys. Rev. Lett.*, **84**, 5149 (2000).
6. Волков Р.В., Гордиенко В.М., Джиджоев М.С., Жуков М.А., Михеев П.М., Савельев А.Б., Шашков А.А. *Квантовая электроника*, **24**, 1114 (1997).
7. Nishikawa T., Nakano H., Uesugi N., Serikawa T. *Appl. Phys. B*, **66**, 567 (1998).
8. Nishikawa T., Nakano H., Ahn H., Uesugi N. *Appl. Phys. Lett.*, **70**, 1653 (1997).
9. Волков Р.В., Гордиенко В.М., Джиджоев М.С., Каменев Б.В., Кашкаров П.К., Пономарев Ю.В., Савельев А.Б., Тимошенко В.Ю., Шашков А.А. *Квантовая электроника*, **25**, 3 (1998); Волков Р.В., Гаврилов С.А., Голишников Д.М., Гордиенко В.М., Михеев П.М., Савельев А.Б., Серов А.А. *Квантовая электроника*, **31**, 241 (2001).
10. Pukhov A. *Rep. Prog. Phys.*, **66**, 47 (2003).
11. Taflöve A., Brodwin M.E. *IEEE Trans. on Microwave Theory & Techn.*, **23**, 623 (1975).
12. Weber S., Bonnaud G., Gauthier J.-C. *Phys. Plasmas*, **8**, 387 (2001).