

Динамика формирования и развития фемтосекундной лазерной микроплазмы в газах

**В.В.Букин, Н.С.Воробьев, С.В.Гарнов, В.И.Конов,
В.И.Лозовой, А.А.Малютин, М.Я.Щелев, И.С.Яцковский**

Представлены результаты экспериментальных исследований динамики формирования и развития лазерной плазмы, возникающей в микрообъемах газов (микроплазмы) при их многократной ионизации высокоинтенсивными (до $\sim 10^{17}$ Вт/см²) острогофокусированными (в область диаметром 2–3 мкм) фемтосекундными импульсами титан-сапфирового лазера ($\tau_p \simeq 130$ фс, $\lambda = 800$ нм). Проведены прецизионные (с пространственным разрешением ~ 1.5 мкм) интерферометрические измерения пространственно-временного распределения показателя преломления и электронной плотности микроплазмы воздуха и гелия непосредственно во время действия возбуждающего фемтосекундного лазерного импульса и на начальной стадии свободного расширения плазмы. Показано, что формирование микроплазмы происходит в результате практически полной (вплоть до ядер) ионизации исходного газа. Впервые с пикосекундным временным разрешением проведены исследования спектрального континуума и динамики формирования спектральных линий фемтосекундной лазерной микроплазмы воздуха, N₂, Ar и He при нормальных условиях в УФ и видимой областях спектра. Впервые в фемтосекундной плазме газов докритической плотности зарегистрирована генерация второй (четной) гармоники лазерного излучения.

Ключевые слова: фемтосекундная лазерная плазма, многократная ионизация газов, микроинтерферометрия, спектрально-временная диагностика, генерация лазерных гармоник.

1. Введение

Изучение неравновесной лазерной плазмы, возникающей в газах и конденсированных средах при их ионизации высокоинтенсивными УКИ, является одним из важных направлений в физике взаимодействия лазерного излучения с веществом. Данная проблема актуальна как с точки зрения фундаментальной науки – получения новых экспериментальных данных о свойствах крайне неравновесной пространственно неоднородной плазмы высокой плотности и о механизмах ее формирования, развития и взаимодействия с лазерным излучением, так и в связи с многочисленными прикладными задачами – разработкой методов генерации предельно коротких (аттосекундных) световых импульсов, созданием лазерных источников рентгеновского излучения и УФ излучения нанометрового диапазона длин волн для нанолитографии, совершенствованием технологий и разработкой новых методов прецизионного лазерного микро- и наноструктурирования поверхности и объема металлов и прозрачных оптических материалов, в которых возбуждаемая лазерным излучением в газе плазма играет принципиальную и во многом определяющую роль.

В данной работе представлены основные результаты экспериментов по исследованию динамики формирования и развития лазерной плазмы, возбуждаемой при атмосферном давлении в микрообъемах газов (воздух, азот, аргон, гелий) острогофокусированными (в область диаметром порядка нескольких микрометров) высокоинтенсивными (от $\sim 10^{14}$ Вт/см² до $\sim 10^{17}$ Вт/см²) фемтосекунд-

ными лазерными импульсами Ti:сапфирового лазера с длительностью $\tau_p \simeq 130$ фс, энергией до 1 мДж, длиной волны $\lambda = 800$ нм и близким к гауссовому пространственным профилем интенсивности. Такое плазменное образование с характерным диаметром в несколько микрометров и длиной до нескольких десятков микрометров (так называемая микроплазма) является интересным и важным объектом для экспериментальных исследований как в связи с указанными выше фундаментальными и прикладными аспектами данной проблемы, так и в связи с уникальной возможностью изучения поведения вещества и плазмы в сверхсильных лазерных полях (с субрелятивистскими интенсивностями) на относительно простых и компактных фемтосекундных лазерных установках. Действительно, высокое качество излучения фемтосекундного Ti:сапфирового лазера позволяет фокусировать пучок в область диаметром ~ 1 мкм и, тем самым, достигать «вакуумных» интенсивностей вплоть до 10^{18} Вт/см² уже при энергии импульсов около 1 мДж.

Таким образом, само получение микроплазмы с помощью высокоинтенсивных фемтосекундных импульсов не представляет особого труда, однако ее дальнейшее изучение сталкивается с существенными экспериментальными трудностями и, в первую очередь, с недостаточной разработанностью методов исследования нестационарных микроразмерных плазменных образований и протекающих в них сверхбыстрых физических процессов, в том числе методов сверхскоростной лазерной микроинтерферометрии и сверхбыстрой микроспектроскопии лазерной плазмы.

В настоящей работе представлены результаты наших исследований по разработке, созданию и практической реализации таких методов изучения микроплазмы. Ранее [1, 2] мы сообщали о методике прецизионной микроинтерферометрии плазмы микронных размеров, возбуждаемой в газах и оптических средах (кварце) пикосекунд-

В.В.Букин, Н.С.Воробьев, С.В.Гарнов, В.И.Конов, В.И.Лозовой, А.А.Малютин, М.Я.Щелев, И.С.Яцковский. Институт общей физики им. А.М.Прохорова РАН, Россия, 119991 Москва, ул. Вавилова, 38; e-mail: garnov@kapella.gpi.ru

ными лазерными импульсами. Впоследствии эта методика была существенно модифицирована и использована для исследования фемтосекундной микроплазмы [3, 4]. Дополнительно нами был предложен метод электронно-оптической регистрации спектров излучения лазерной микроплазмы [3–6], результаты практического применения которого, наряду с результатами микроинтерферометрических измерений, представлены в настоящей публикации.

2. Прецизионная лазерная микроинтерферометрия фемтосекундной лазерной плазмы

Принципиальная схема разработанного метода и экспериментальной установки для проведения интерферометрических исследований динамики формирования и развития фемтосекундной лазерной микроплазмы и измерения ее параметров представлена на рис.1. Одиночный импульс линейно поляризованного излучения фемтосекундного Ti:сапфирового лазера разделялся полупрозрачным зеркалом на две неравные части, большая из которых (далее – возбуждающий импульс) использовалась для создания плазмы в исследуемом газе, а меньшая (зондирующий импульс) – для просвечивания («стробирования») образующейся плазмы и последующего формирования ее интерференционного изображения на фоторегистрирующем устройстве. Напомним, что принципиально любая из многочисленных методик импульсной лазерной интерферометрии, используемых для диагностики плазмы, которые неоднократно и успешно применялись ранее и применяются в настоящее время в многочисленных экспериментальных работах (см., напр., [1, 2, 7–28] и приведенные там ссылки), основана на регистрации «мгновенных» интерференционных изображений объема возбужденного вещества (плазмы), получаемых с помощью задержанных по времени зондирующих лазерных импульсов «подсветки».

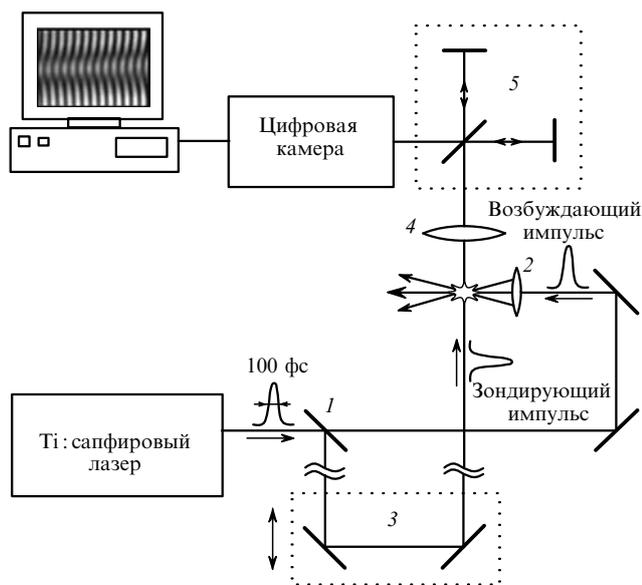


Рис.1. Схема экспериментальной установки для проведения интерферометрических исследований динамики формирования и развития фемтосекундной лазерной микроплазмы:

1 – делитель пучка; 2 – фокусирующий объектив ($F = 8$ мм, $NA = 0.5$); 3 – регулируемая линия задержки; 4 – изображающий объектив ($F = 50$ мм, $NA = 0.5$); 5 – интерферометр Майкельсона.

Основное отличие нашей методики от других заключается в ее прецизионности – сочетании высокого временного (~ 100 фс) и пространственного (~ 1.5 мкм) разрешений и, тем самым, в возможности проведения измерений пространственно-временного распределения показателя преломления и электронной плотности микроплазмы как непосредственно во время действия возбуждающего лазерного импульса (на самой начальной стадии формирования плазмы и ее эффективного взаимодействия с лазерным излучением), так и на стадии ее свободного расширения.

Формирование лазерной плазмы осуществлялось при фокусировке возбуждающего импульса в объем исследуемых газов (воздуха и гелия) с помощью асферического микрообъектива 2 с фокусным расстоянием $F = 8$ мм и числовой апертурой $NA = 0.5$. При этом минимальный поперечный размер сфокусированного гауссова пучка составлял $\sim 2.5 \times 3.5$ мкм (по уровню $1/e^2$). Особо отметим, что размеры и пространственный профиль интенсивности остросфокусированного пучка тщательно измерялись в наших экспериментах (измеренные профили интенсивности приведены ниже на рис.7). Для исследования зависимости параметров плазмы от энергии (интенсивности) возбуждающего импульса перед фокусирующим микрообъективом помещались нейтральные светофильтры, обеспечивающие ослабление энергии импульса в 100 и более раз вплоть до порога пробоя газа (составляющего, например, для воздуха $\sim 2 \times 10^{14}$ Вт/см²).

Зондирующий импульс направлялся в линию переменной оптической задержки, после прохождения которой просвечивал исследуемую микроплазму в направлении, перпендикулярном направлению распространения возбуждающего импульса. Время задержки изменялось при перестройке длины оптической линии с помощью прецизионного шагового двигателя от -1 пс до $+10$ пс с минимальным пространственным шагом 1.5 мкм (что соответствует времени задержки 10 фс). В более широких пределах (в диапазоне сотен пикосекунд) изменение задержки импульсов проводилось ручным перемещением блока зеркал оптической линии вдоль направления распространения зондирующего импульса.

Интерференционное изображение микроплазмы «в лучах» зондирующего излучения строилось на светочувствительной КМОП-матрице цифровой камеры (Elphel Inc., www.elphel.com) высококачественным изображающим объективом ($F = 50$ мм, $NA = 0.5$). Для этого сконцентрированное изображающим объективом зондирующее излучение предварительно направлялось в интерферометр Майкельсона, где разделялось на два когерентных пучка. Поскольку размеры изучаемой микроплазмы были много меньше диаметра зондирующего пучка (~ 3 мм), его основная часть, прошедшая вне области введенной оптической неоднородности, могла использоваться в качестве опорного пучка. Интерферометр Майкельсона в данном случае служил для пространственного разделения опорного и предметного пучков, выбора ориентации и периода интерференционных полос, а также для компенсации разности хода интерферирующих фемтосекундных импульсов. Необходимая точность и стабильность настройки зеркал интерферометра обеспечивалась микрометрическим перемещением линейных и угловых трансляторов. Оптическое увеличение M (размер изображения микроплазмы) могло варьироваться от 20^{\times} до 80^{\times} путем изменения расстояния между изображаю-

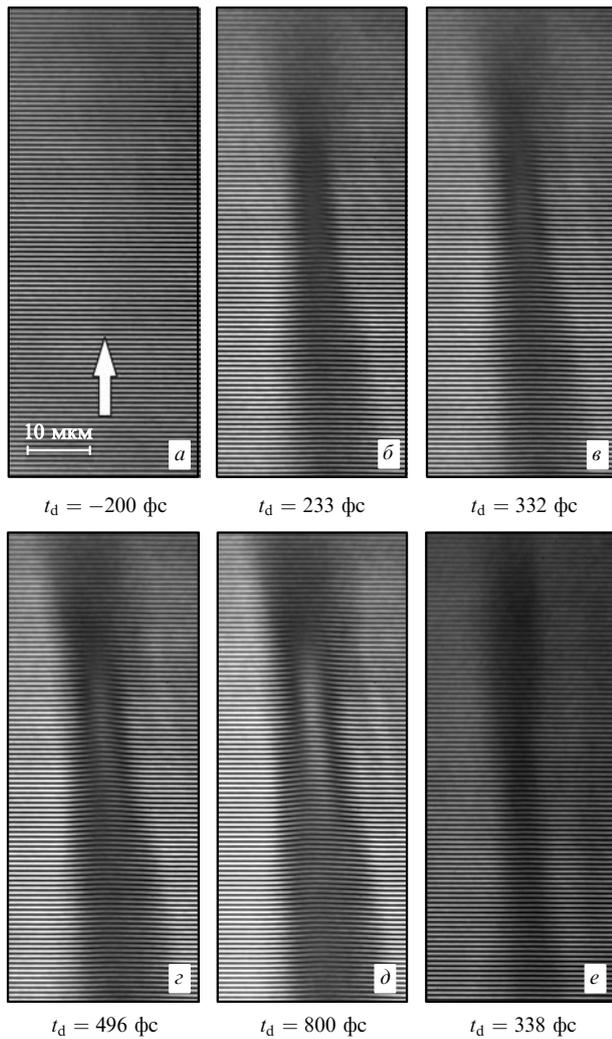


Рис.2. Интерферограммы фемтосекундной лазерной микроплазмы при различных временных задержках t_d зондирующего импульса относительно времени первичного пробоя газа, полученные в воздухе при интенсивности возбуждающих импульсов $I \approx (1 - 2) \times 10^{16}$ Вт/см² (a-d) и в гелии при $I \approx 8 \times 10^{16}$ Вт/см² (e). Стрелкой указано направление распространения возбуждающего импульса.

щим объективом и цифровой камерой. Увеличение M измерялось с помощью стандартной штриховой миры (с шагом между штрихами 10 мкм), помещаемой в место расположения микроплазмы.

На рис.2, a-d представлены интерферограммы лазерной микроплазмы воздуха, зарегистрированные при различных временных задержках зондирующих импульсов относительно времени первичного пробоя газа возбуждающими импульсами с пиковой («вакуумной») интенсивностью $I \approx (1 - 2) \times 10^{16}$ Вт/см². Аналогично случаю возбуждения плазмы пикосекундными импульсами [1, 2] полученные интерферограммы демонстрируют существование трех стадий процесса формирования и развития фемтосекундной лазерной микроплазмы: стадию первичной ионизации (оптического пробоя) газа и возникновения «холодной» плазмы в каустике сфокусированного пучка (так называемой плазменной нити, минимальные поперечные размеры которой практически совпадают с размерами перетяжки возбуждающего пучка); стадию эффективного взаимодействия образовавшейся плазмы с возбуждающим излучением, длящуюся вплоть до окончания действия лазерного импульса и сопровождающуюся

поглощением возбуждающего излучения, интенсивным нагревом и быстрым расширением плазменной нити; стадию свободного расширения плазмы с существенно (на порядок) меньшей скоростью разлета. При этом главным отличием пространственной структуры фемтосекундной микроплазмы от пикосекундной является ее аксиальная симметрия и отсутствие расширяющегося плазменного образования в форме «пузыря», возникающего в центре пикосекундной плазмы и распространяющегося навстречу возбуждающему излучению [1, 2].

На рис.2, e приведена интерферограмма лазерной микроплазмы гелия, которая демонстрирует значительно менее выраженное искажение (изгиб) интерференционных полос, что связано со значительно меньшей электронной плотностью гелиевой плазмы по сравнению с воздушной и, как следствие, с меньшим наведенным показателем преломления и слабым фазовым возмущением зондирующего импульса.

На рис.3, a-e представлены полученные из приведенных выше интерферограмм картины пространственного распределения фазы зондирующего импульса после прохождения им микроплазмы. Восстановление фазы осуществлялось с использованием стандартного фурье-алгоритма [29, 30] и свободно распространяемого программного обеспечения IDEA (Interferometric Data Evaluation Algorithms, <http://optics.tu-graz.ac.at/idea/idea.html>).

Зарегистрированные пространственные распределения фазы позволяют восстановить картину пространст-

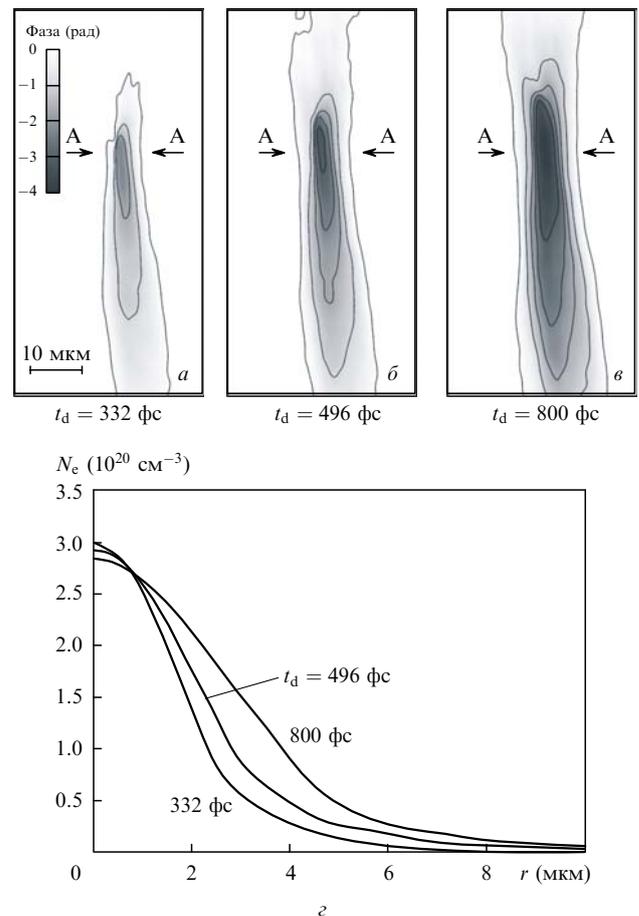


Рис.3. Восстановленные из интерферограмм рис.2, b-d распределения фазы зондирующего импульса при различных временных задержках (a-c) и распределения концентрации электронов микроплазмы в радиальных сечениях AA (z).

венного распределения показателя преломления в лазерной микроплазме с помощью стандартной процедуры обратного преобразования Абея при дополнительных, обычных в подобных случаях предположениях об осевой симметрии плазмы.

Основной причиной изменения показателя преломления в лазерной плазме, как известно, является «отрицательный» вклад свободных электронов, приводящий к уменьшению показателя ее преломления до значений, меньших единицы. Связь между изменением концентрации электронов плазмы $N_e(t)$ и показателем преломления $n(t)$ в рамках модели Друде определяется следующими известными соотношениями:

$$n(t) = \left\{ n_0^2 - \left[\frac{\omega_p(t)}{\omega} \right]^2 \right\}^{1/2}, \quad \omega_p^2(t) = \frac{N_e(t)e^2}{\epsilon_0 m_e}, \quad (1)$$

где $\omega = 2.35 \times 10^{15}$ рад/с – угловая частота зондирующего излучения ($\lambda = 800$ нм); t – время; $\omega_p(t)$ – плазменная частота; e и m_e – заряд и масса электрона; ϵ_0 – диэлектрическая проницаемость в вакууме; n_0 – показатель преломления невозмущенного газа.

Радиальные распределения концентрации электронов фемтосекундной микроплазмы воздуха (в сечении, соответствующем максимальной плотности плазмы) на различных стадиях ее развития представлены на рис.3,з. Полученные данные свидетельствуют о чрезвычайно высокой степени ионизации микроплазмы уже на этапе ее взаимодействия с возбуждающим импульсом. Концентрация плазмы в фокусе сразу после прохождения высокоинтенсивного лазерного импульса достигает $\sim 3 \times 10^{20}$ см $^{-3}$, что очень близко к максимально возможной (при атмосферном давлении) концентрации электронов плазмы полностью (вплоть до ядер) ионизованного воздуха N_e^{\max} , равной $\sim 3.6 \times 10^{20}$ см $^{-3}$. Столь высокие электронные концентрации возникают в фемтосекундной плазме воздуха при интенсивностях возбуждающих импульсов, больших $\sim 10^{16}$ Вт/см 2 . В случае возбуждения гелия практически полная ионизация газа была зафиксирована при интенсивностях $I \simeq 4 \times 10^{16}$ Вт/см 2 . (Максимально возможная концентрация электронов в гелии $N_e^{\max} \simeq 5 \times 10^{19}$ см $^{-3}$.)

Уменьшение показателя преломления лазерной плазмы относительно показателя преломления невозмущенного газа характерно для подобного рода экспериментов. В то же время в некоторой области лазерной микроплазмы в воздухе (рис.4) нами было зафиксировано значительное увеличение показателя преломления до значений, больших единицы. Данный эффект наблюдался в сравнительно узком интервале временных задержек зондирующего импульса ($t_d \simeq 20 - 100$ фс) относительно момента возникновения пробоя, т.е. лишь в присутствии возбуждающего плазму высокоинтенсивного лазерного излучения. Добавка Δn к показателю преломления достигала ~ 0.04 , и суммарный показатель преломления составлял ~ 1.04 , что существенно превышало его значение для окружающего воздуха ($n_0 \simeq 1.000278$).

Одной из возможных причин возникновения положительной добавки к показателю преломления плазмы может быть наведенная сильным лазерным полем аномально большая оптическая керровская нелинейность, ранее не наблюдавшаяся в лазерной плазме. В многочисленных работах по изучению оптической керровской нелинейности лазерной плазмы (см., напр., [31, 32] и приведенные там ссылки) максимальные измеренные значения не-

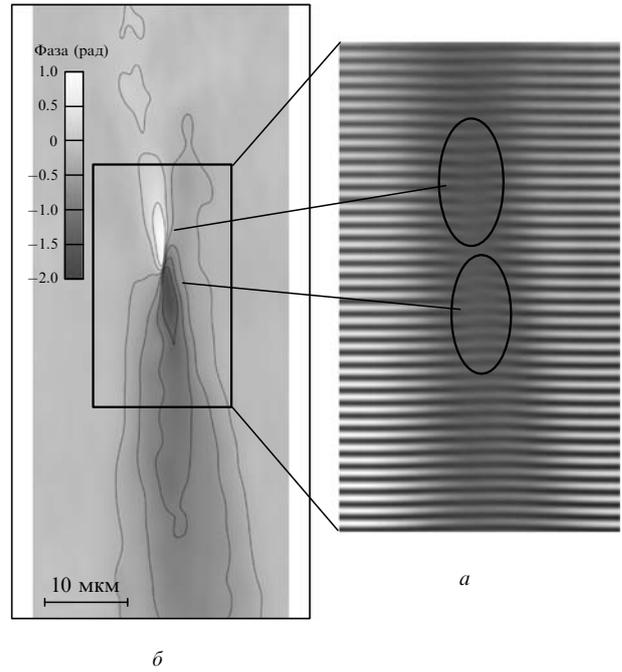


Рис.4. Интерферограмма фемтосекундной микроплазмы воздуха, зарегистрированная во время действия интенсивного ($I \simeq 2 \times 10^{16}$ Вт/см 2) возбуждающего лазерного импульса (а), и восстановленная фаза зондирующего излучения (б). Положительное изменение фазы может свидетельствовать о существовании в плазме областей с показателем преломления, большим единицы.

линейного показателя преломления n_2 составляли $\sim 5 \times 10^{-19}$ см 2 /Вт [32]. Выполненные оценки показывают, что в наших экспериментах n_2 может в несколько раз превышать указанное значение.

В заключение отметим, что увеличение показателя преломления в фемтосекундной абляционной плазме алюминевой мишени, впервые наблюдавшееся в работе [27], не могло быть связано с оптической керровской нелинейностью, поскольку проявлялось лишь спустя сотни пикосекунд после окончания действия возбуждающего импульса.

Нельзя исключить, однако, что обнаруженное увеличение показателя преломления может быть обусловлено пространственно-временными ограничениями использованной в экспериментах схемы регистрации интерференционных изображений.

3. Сверхскоростная спектрально-временная диагностика фемтосекундной лазерной микроплазмы

Наряду с изучением динамики пространственно-временной структуры, а также измерениями профиля показателя преломления и электронной концентрации фемтосекундной лазерной микроплазмы, нами были проведены исследования спектрально-временной динамики излучения микроплазмы в УФ и видимом спектральных диапазонах на начальном этапе ее формирования и развития – от момента возникновения лазерной искры (излучения континуума) до появления и начала формирования отдельных спектральных линий. Поскольку излучение плазмы в виде спектрального континуума формируется еще в присутствии возбуждающего лазерного импульса (в нашем случае фемтосекундного), а физические процес-

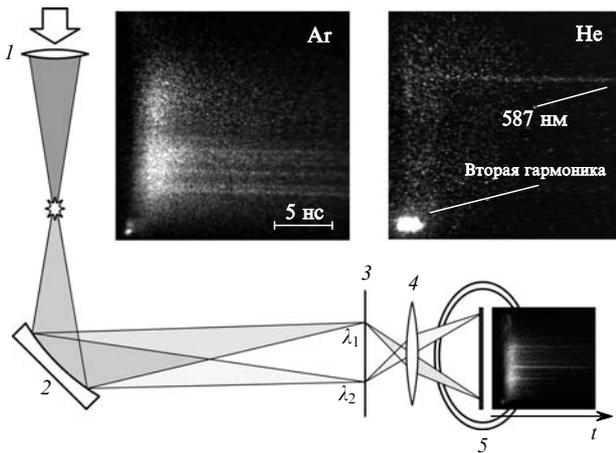


Рис.5. Схема эксперимента по изучению сверхбыстрой спектрально-временной динамики фемтосекундной лазерной плазмы с использованием электронно-оптического метода регистрации:

1 – фокусирующий объектив ($F = 8$ мм, $NA = 0.5$); 2 – вогнутая дифракционная решетка; 3 – плоскость изображения дифракционной решетки ($\lambda_1 < \lambda_2$); 4 – изображающий объектив; 5 – ЭОК. На вставках приведены динамические спектры плазмы в Ar и He.

сы, определяющие развитие и трансформацию континуума, вообще говоря, характеризуются сверхбыстрыми (пикосекундными и субнаносекундными) временами, первоочередной экспериментальной задачей было создание метода сверхскоростной спектрально-временной диагностики, отвечающего необходимым требованиям по временному разрешению и спектральной чувствительности. Для этого была выбрана методика исследования быстропротекающих процессов и регистрации слабых световых сигналов с использованием высокоскоростных электронно-оптических камер (ЭОК) [33, 34].

Схема предложенного и экспериментально реализованного метода сверхскоростной спектрально-временной диагностики фемтосекундной лазерной микроплазмы представлена на рис.5. Одиночные импульсы описанного выше фемтосекундного Ti:сапфирового лазера, сфокусированные асферическим микрообъективом ($F = 8$ мм, $NA = 0.5$) до пиковой интенсивности $I \simeq (0.9 - 2.5) \times 10^{17}$ Вт/см², создавали плазму в исследуемых газах (воздух, азот, аргон, гелий), находящихся при атмосферном давлении. Аксиально расположенная вогнутая дифракционная решетка формировала пространственно разделенные спектральные изображения микроплазмы, которые с заданным увеличением отображались проекционным объективом на фотокатод ЭОК и разворачивались во времени. Взаимно перпендикулярное расположение плоскости дисперсии спектрометра и направления развертки ЭОК обеспечивало наблюдение двумерных спектрально-временных картин излучения плазмы.

Используемая в экспериментах ЭОК (разработанная в ИОФ РАН им. А.М.Прохорова [6, 33, 34]) обладала высокой спектральной чувствительностью (2.1 мА/Вт на $\lambda = 800$ нм, S1-фотокатод) и достаточным динамическим диапазоном (не менее 10), что позволяло надежно регистрировать и изучать спектрально-временную динамику свечения фемтосекундной плазмы в широком диапазоне длин волн ($\lambda \simeq 300 - 1100$ нм) с временным разрешением ~ 2.4 пс при скоростях развертки вплоть до $\sim 5 \times 10^9$ см/с.

На рис.6,а представлены развернутые во времени спектры излучения фемтосекундной лазерной микроплаз-

мы, возникающей при оптическом пробое азота, и табулированные («статические») спектры линий его свечения (NIST Atomic Spectra Database, <http://physics.nist.gov/PhysRefData/ASD/>). Из приведенных данных видно, что на начальном, но, вообще говоря, достаточно протяженном этапе развития, длящемся сотни и тысячи пикосекунд после начала формирования плазмы, ее свечение представляет собой непрерывный спектральный континуум. Выделенные спектральные линии (по крайней мере, в исследуемой видимой области $\lambda \simeq 380 - 660$ нм) начинают формироваться лишь спустя несколько наносекунд, по мере остывания плазмы. Как бы возникая из континуума, первоначально широкие линии быстро сужаются и изменяются по интенсивности. При этом некоторые линии, достаточно интенсивно выраженные в «статических» спектрах, относительно слабо проявляют себя в представленных динамических спектрах плазмы, и, наоборот, некоторые достаточно яркие «в динамике» линии слабо выделяются в интегрированных по времени спектрах, что, очевидно, связано с существованием быстрых и медленных процессов излучательной рекомбинации в неравновесной плазме.

Динамическая картина формирования спектров плазмы, представленная на рис.5 и 6 (динамические спектры излучения лазерной плазмы аргона и гелия показаны на вставках к рис.5), не только весьма наглядна, но и достаточно информативна и может служить существенной основой как для качественного, так и для количественного теоретического анализа процессов, протекающих в крайне неравновесной лазерной плазме. В частности, по изменению ширины спектральных линий можно пытаться оценить температуру и скорость остывания плазмы, а по затуханию и отношению интенсивностей линий – скорости соответствующих рекомбинационных процессов.

На рис.6,в,г в качестве примеров приведены временные изменения интенсивности группы спектральных линий азота (вблизи $\lambda \simeq 500$ нм) и изменения интенсивности континуума (в области между соседними линиями), затухающие с характерными временами τ порядка нескольких наносекунд. На рис.6,б представлены профили спектров излучения азотной плазмы, зарегистрированные во временном диапазоне 0–10 нс. Видно, что в процессе развития плазмы изменяется как абсолютная интенсивность линий, так и отношение интенсивностей различных спектральных компонент.

Поскольку подробный анализ полученных результатов выходит за рамки настоящей публикации, отметим лишь, что вплоть до последнего времени проведение адекватного анализа спектров крайне неравновесной (в частности, фемтосекундной) лазерной плазмы и протекающих в ней сверхбыстрых процессов в значительной степени ограничивается отсутствием необходимых экспериментальных данных, подобных тем, которые получены в данной работе. В предшествующих работах по исследованию динамики спектрального состава излучения лазерной плазмы в видимой области временное разрешение ограничивалось в основном нано- и микросекундными диапазонами (см., напр., [35, 36]), что не позволяло в деталях исследовать наиболее интересный и наименее изученный начальный этап формирования и развития плазмы.

Другим важным экспериментальным результатом, полученным в настоящей работе, явилось обнаружение процесса генерации второй (четной) гармоники фемтосе-

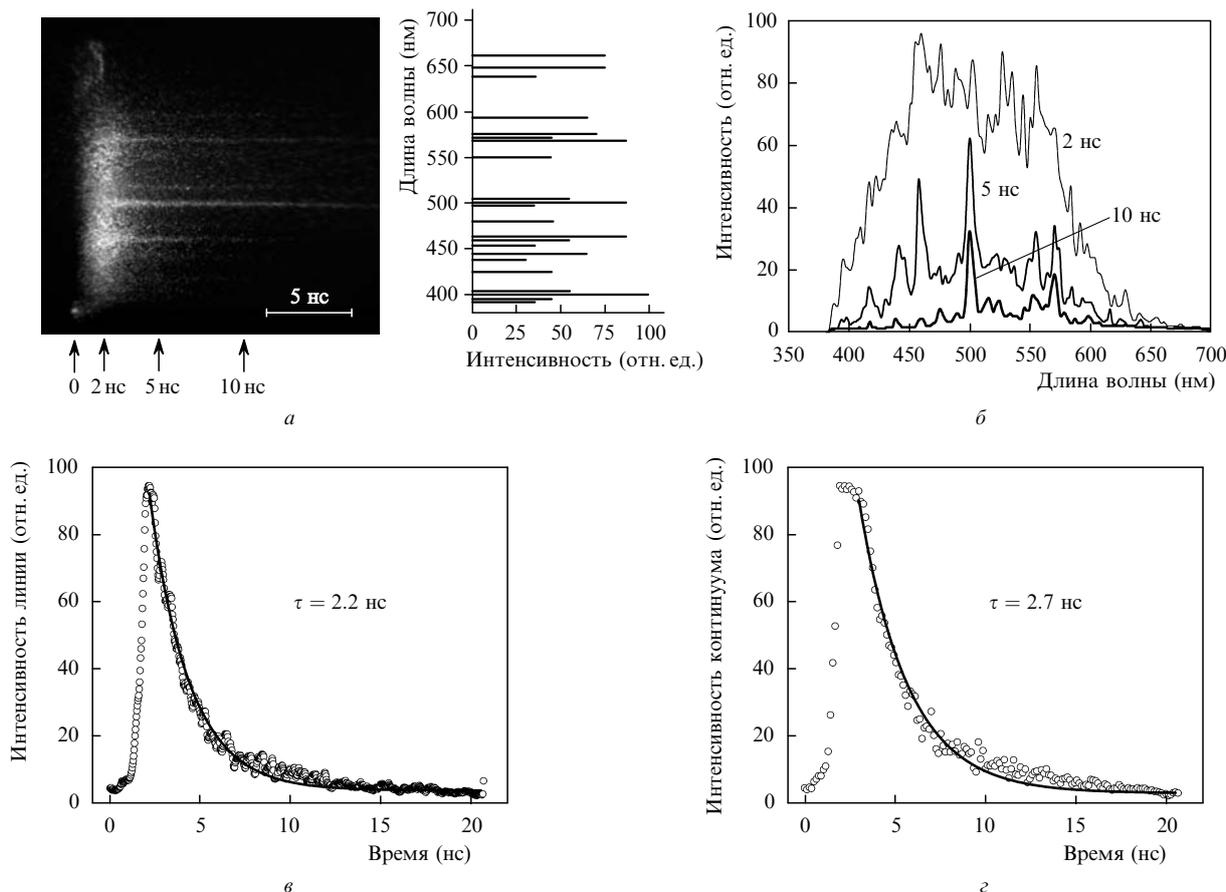


Рис.6. Спектрально-временная динамика фемтосекундной лазерной плазмы азота (при атмосферном давлении): временная развертка спектров фемтосекундной плазмы и «статические» спектры азота в диапазоне $\lambda \approx 380 - 660$ нм (а), спектры излучения плазмы в различные моменты времени (б), временные зависимости интенсивности спектральных линий и спектрального континуума вблизи $\lambda = 500$ нм (τ – характерное время затухания интенсивности) (в, г).

кундных лазерных импульсов в плазме оптического пробоя газов. Вторая (плазменная) гармоника была зарегистрирована во всех четырех исследованных средах – воздухе, азоте, аргоне и гелии. На приведенных электронно-оптических изображениях временных спектров (рис.5,6) вторая гармоника имеет вид светящейся точечной области, положение которой на спектральной шкале соответствует половине длины волны возбуждающего лазерного излучения ($\lambda/2 = 800$ нм/2 = 400 нм), а на временной шкале совпадает с возбуждающим плазму фемтосекундным лазерным импульсом. Несмотря на то что ограниченное временное разрешение ЭОК не позволяет измерить длительность второй гармоники и изучить динамику ее формирования (регистрируемые ЭОК длительности импульсов гармоники и лазерного фемтосекундного импульса суть ее аппаратные функции с шириной ~ 2.4 пс), а ограниченное дифракционной решеткой спектральное разрешение не позволяет в деталях исследовать структуру спектра второй гармоники, сам факт ее обнаружения не вызывает сомнения. Насколько известно авторам, до наших экспериментов в литературе отсутствовали сообщения о наблюдении генерации второй гармоники фемтосекундных лазерных импульсов в плазме докритической плотности, возникающей при оптическом пробое газов. Данное обстоятельство представляется весьма удивительным и даже парадоксальным, учитывая поистине огромное число экспериментальных и теоретических работ, посвященных исследованию процессов и механиз-

мов генерации лазерных гармоник высших (вплоть до нескольких сотен) нечетных степеней в плазме газов именно фемтосекундными импульсами. Кроме того, ранее вторая лазерная гармоника подробно изучалась и экспериментально наблюдалась в газовой плазме, создаваемой пикосекундными импульсами [37–40]. По всей видимости, указанное обстоятельство объясняется существенным (на порядки) различием эффективностей преобразования излучения в нечетные и четные гармоники (генерация последних, напомним, в рамках дипольного приближения в пространственно однородной немагнитной плазме запрещена) и, как следствие, необходимостью использования в экспериментах значительно более чувствительных методов регистрации слабых оптических сигналов, каким и является описанный выше метод электронно-оптической регистрации.

В рамках настоящей работы были детально изучены интегральные по времени пространственные распределения интенсивности второй гармоники. Для этого использовалась ПЗС-камера (Hamamatsu C4880), на чувствительную матрицу которой аксиально расположенным проекционным объективом ($F = 8$ мм, $NA = 0.5$) отображалась область вблизи фокальной плоскости фокусирующего объектива (область формирования плазмы), соответствующая минимальному поперечному размеру пучка второй гармоники. Как показали эксперименты, эта область отвечала положению перетяжки возбуждающего плазму лазерного пучка.

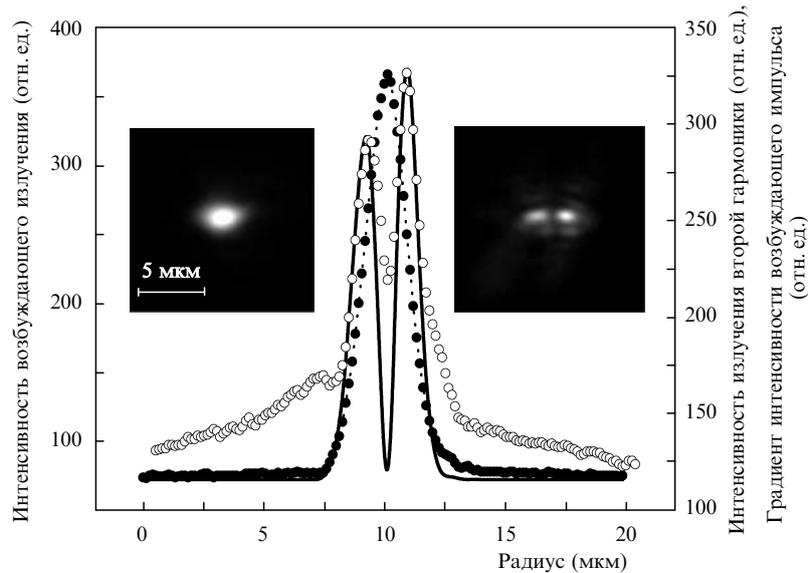


Рис.7. Изображения (на вставках), а также пространственные распределения интенсивности сфокусированного возбуждающего фемтосекундного импульса (●) и излучения второй гармоники (○), генерируемой в микроплазме воздуха. Сплошная кривая – градиент интенсивности возбуждающего импульса.

Пространственные профили интенсивностей излучения второй гармоники и исходного лазерного пучка в перетяжке представлены на рис.7. В силу исходной эллиптичности гауссова пространственного профиля выходного излучения Ti : сапфирового лазера измеренный профиль сфокусированного пучка в перетяжке также имел характерную эллиптичность и размер $\sim 2.5 \times 3.5$ мкм (по уровню $1/e^2$). Плоскость поляризации падающего излучения совпадала с большой осью эллипса. Приведенные на рис.7 изображения пучков исходного излучения и второй гармоники, а также распределения их интенсивностей в сечении вдоль большей оси эллипса демонстрируют характерную пространственную структуру второй гармоники с двумя пиками интенсивности, ориентированными вдоль направления плоскости поляризации возбуждающего пучка. При этом профиль интенсивности излучения второй гармоники в максимумах интенсивности полностью совпадает с профилем градиента интенсивности возбуждающего излучения в плоскости поляризации.

Указанные факты свидетельствуют в пользу реализации одного из возможных механизмов генерации второй гармоники в лазерной плазме с пространственно неоднородным распределением плотности, предложенного в работе [37] и впоследствии развитого в [38–40]. В работах [37, 38] было теоретически показано, что при наличии градиента показателя преломления в плазме докритической плотности запрет на генерацию второй гармоники снимается и такая плазма может являться источником излучения на удвоенной частоте из-за наличия не исчезающего члена с нелинейной восприимчивостью второго порядка в наведенной нелинейной поляризации. В работе [38] было получено простое выражение для вектора поляризации плазмы на удвоенной частоте в лазерном поле с гауссовым пространственным распределением излучения:

$$P(2\omega) = [2s\chi_{fe}^{(2)}(2\omega)/w_0^2] [E^2 r - 4E(Er)/\epsilon_p], \quad (2)$$

где E – напряженность электрического поля; $\chi_{fe}^{(2)}(2\omega)$ – нелинейная восприимчивость второго порядка; s – числен-

ный коэффициент, характеризующий механизм первичной ионизации газа; ϵ_p – диэлектрическая проницаемость плазмы; w_0 и r – радиус перетяжки и радиальная координата гауссова пучка. Соотношение (2) полностью описывает все наблюдаемые в наших экспериментах особенности генерации второй гармоники: наличие двух пространственных пиков интенсивности и их ориентацию вдоль плоскости поляризации исходного лазерного поля, соответствие пространственного профиля интенсивности излучения гармоники градиенту профиля интенсивности возбуждающего пучка (а следовательно, как отмечалось выше в разд.2, соответствие градиенту плотности плазмы), сложную структуру поляризации второй гармоники, представляющую собой суперпозицию в основном линейно поляризованной (в той же плоскости, что и исходный пучок) компоненты и небольшой доли радиально поляризованного излучения [38].

Таким образом, предложенный задолго до появления первых фемтосекундных лазеров механизм генерации второй гармоники в лазерной плазме докритической плотности, предполагающий лишь наличие выраженного градиента показателя преломления плазмы, по всей видимости, нашел свое экспериментальное подтверждение в проведенных нами исследованиях.

4. Заключение

Разработан метод сверхскоростной прецизионной интерферометрической диагностики пространственно-временной динамики лазерной плазмы микронных размеров, возникающей при оптическом пробое газов высокоинтенсивными ($I = 10^{14} - 10^{17}$ Вт/см²) остросфокусированными фемтосекундными импульсами Ti : сапфирового лазера ($\lambda = 800$ нм, $\tau_p \approx 130$ фс). Впервые с микронным пространственным разрешением проведены измерения мгновенного распределения профиля показателя преломления и электронной концентрации фемтосекундной лазерной микроплазмы докритической плотности в воздухе и гелии во время действия возбуждающего лазерного импульса.

Предложен и экспериментально реализован новый электронно-оптический метод сверхскоростной спектрально-временной регистрации излучения плазмы и нелинейно-оптической трансформации лазерного излучения, позволивший впервые с пикосекундным временным разрешением исследовать динамику формирования и развития спектрального континуума и спектральных линий фемтосекундной лазерной плазмы в газах (воздух, азот, аргон, гелий) и впервые зарегистрировать процесс генерации второй (четной) гармоники фемтосекундных лазерных импульсов в плазме докритической плотности.

Работа выполнена в рамках программ Президиума РАН «Фемтосекундная оптика и новые оптические материалы» и Отделения ФН РАН «Оптическая спектроскопия и стандарты частоты», а также при поддержке гранта РФФИ № 06-02-17014.

1. Гарнов С.В., Конов В.И., Малютин А.А., Царькова О.Г., Яцковский И.С., Даусингер Ф. *Квантовая электроника*, **33** (9), 758 (2003).
2. Garnov S.V., Konov V.I., Malyutin A.A., Tsarkova O.G., Yatskovsky I.S., Dausinger F. *Laser Phys.*, **13** (3), 386 (2003).
3. Garnov S.V., Bukin V.V., Vorobiev N.S., Malyutin A.A., Konov V.I., Schelev M.Ya. *Techn. Dig. of Int. Conf. on Coherent and Nonlinear Optics (ICONO/LAT'2005)* (St.Peterburg, 2005, IWJ2).
4. Garnov S.V., Bukin V.V., Malyutin A.A., Konov V.I., Vorobiev N.S., Schelev M.Ya. *Proc. Int. Symp. on Topical Problems of Nonlinear Wave Physics (NWP-2005)* (St.Peterburg, N.Novgorod, 2005, p. 45).
5. Garnov S.V., Konov V.I., Lozovoi V.I., Malyutin A.A., Schelev M.Ya., Vorobiev N.S. *Conf. Programm of Int. Symp. on Modern Problems of Laser Physics (MPLP'04)* (Novosibirsk, 2004).
6. Garnov S.V., Konov V.I., Lozovoi V.I., Malyutin A.A., Schelev M.Ya., Vorobiev N.S. *Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Eng.*, **5580**, 811 (2005).
7. Belland P., De Michelis C., Mattioli M. *Opt. Commun.*, **3**, 7 (1971).
8. Attwood D.T., Coleman L.W. *Appl. Phys. Lett.*, **24**, 408 (1974).
9. Azechi H., Oda S., Tanaka K., Norimatsu T., Sasaki T., Yamanaka T., Yamanaka C. *Phys. Rev. Lett.*, **39**, 1144 (1977).
10. Attwood D.T., Sweeney D.W., Auerbach J.M., Lee P.H.Y. *Phys. Rev. Lett.*, **40**, 184 (1978).
11. Attwood D.T. *IEEE J. Quantum Electron.*, **14** (12), 909 (1978).
12. Raven A., Willi O. *Phys. Rev. Lett.*, **43**, 278 (1979).
13. Власов Н.Г., Корчажкин С.В., Мацонашвили Р.Б., Петряков В.М., Соболев С.С., Чалкин С.Ф. *Оптика и спектроскопия*, **59** (4), 934 (1985).
14. Da Silva L.B., Barbee T.W., Cauble R. Jr., Celliers P., Ciarlo D., Libby S., London R.A., Matthews D., Mrowka S., Moreno J.C., Ress D., Trebes J.E., Wan A.S., Weber F. *Phys. Rev. Lett.*, **74**, 3991 (1995).
15. Shao Y.L., Ditmire T., Tisch J.W.G., Springate E., Marangos J.P., Hutchinson M.H.R. *Phys. Rev. Lett.*, **77**, 3343 (1996).
16. Sarkisov G.S., Bychenkov V.Yu., Novikov V.N., Tikhonchuk V.T., Maksimchuk A., Chen S.-Y., Wagner R., Mourou G., Umstadter D. *Письма в ЖЭТФ*, **66** (12), 787 (1997).
17. Ditmire T., Gumbrell E.T., Smith R.A., Djaoui A., Hutchinson M.H.R. *Phys. Rev. Lett.*, **80** (4), 720 (1998).
18. Breiting D., Schittenhelm H., Berger P., Dausinger F., Hugel H. *Appl. Phys. A*, **69**, S505 (1999).
19. Sarkisov G.S., Bychenkov V.Yu., Novikov V.N., Tikhonchuk V.T., Maksimchuk A., Chen S.-Y., Wagner R., Mourou G., Umstadter D. *Phys. Rev. E*, **59**, 7042 (1999).
20. Edwards M.J., MacKinnon A.J., Zweiback J., Shigemori K., Ryutov D., Rubenchik A.M., Keilty K.A., Liang E., Remington B.A., Ditmire T. *Phys. Rev. Lett.*, **87**, 085004 (2001).
21. Couaeron A., Berge L. *Phys. Rev. Lett.*, **88**, 135003-1 (2002).
22. Smith R.F., Dunn J., Nilsen J., Shlyaptsev V.N., Moon S., Filevich J., Rocca J.J., Marconi M.C., Hunter J.R., Barbee T.W. *Phys. Rev. Lett.*, **89**, 065004-1 (2002).
23. Garnov S.V., Malyutin A.A., Tsarkova O.G., Konov V.I., Dausinger F. *Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Eng.*, **4637**, 31 (2002).
24. Kim K.-Y., Alexeev I., Milchberg H.M. *Opt. Express*, **10** (26), 1563 (2002).
25. Tang H., Guilbaud O., Jamelot G., Ros D., Klisnick A., Joyeux D., Phalippou D., Kado M., Nishikino M., Kishimoto M., Sukegawa K., Ishino M., Nagashima K., Daido H. *Appl. Phys. B*, **78**, 975 (2004).
26. Richardson M., Koay C.-S., Takenoshita K., Keyser C., Bernath R., George S., Teerawattansook S. *Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Eng.*, **5580**, 434 (2005).
27. Filevich J., Rocca J.J., Marconi M.C., Moon S.J., Nilsen J., Scofield J.H., Dunn J., Smith R.F., Keenan R., Hunter J.R., Shlyaptsev V.N. *Phys. Rev. Lett.*, **94** (3), 035005 (2005).
28. Giulietti A., Galimberti M., Gamucci A., Giulietti D., Gizzi L., Koester P., Laate L., Tomassini P., Vaselli M. *Techn. Dig. of Int. Conf. on Coherent and Nonlinear Optics (ICONO/LAT'2005)* (St.Peterburg, 2005, IWJ3).
29. Takeda M., Ina H., Kobayashi S. *J. Opt. Soc. Am.*, **72**, 156 (1982).
30. Nugent K. *Appl. Opt.*, **24**, 3101 (1985).
31. Власов Д.В., Гараев Р.А., Коробкин В.В., Серов Р.В. *ЖЭТФ*, **49**, 1033 (1979).
32. Pennington D.M., Hennesian M.A., Hellwarth R.W. *Phys. Rev. A*, **39**, 3003 (1989).
33. Щелев М.Я. *Труды ФИАН*, **155**, 3 (1985).
34. Андреев А.Н., Дубовик А.С., Дегтярева В.П., Монастырский М.А., Щелев М.Я. *Высокоскоростная фотография и фотоника в исследовании быстропотекающих процессов*. Под ред. А.М.Прохорова (М.: Логос, 2002, с. 464).
35. Yalcin S., Crosley D.R., Smith G.P., Faris G.W. *Appl. Phys. B*, **68**, 121 (1999).
36. Zeng X., Mao X., Mao S.S., Yoo J.H., Greif R., Russoo R.E. *J. Appl. Phys.*, **95** (3), 816 (2004).
37. Jha S.S. *Phys. Rev. Lett.*, **15**, 412 (1965).
38. Bethune D.S. *Phys. Rev. A*, **23**, 3139 (1981).
39. Malcuit M.S., Boyd R.W., Davis W.V., Rzaewski K. *Phys. Rev. A*, **41**, 3822 (1990).
40. Mullin C.S., Kim D., Feller M.B., Shen Y.R. *Phys. Rev. Lett.*, **74**, 2678 (1995).