Письма в ЖЭТФ, том 90, вып. 3, с. 199 – 203 © 2009 г. 10 августа

Туннельная ионизация воздуха в сильном поле фемтосекундных лазерных импульсов

А. А. Ионин, С. И. Кудряшов[1)], Л. В. Селезнев, Д. В. Синицын

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

Поступила в редакцию 24 апреля 2009 г.
После переработки 1 июля 2009 г.

С помощью оптико-акустического метода исследован эффект туннельной ионизации воздуха, возбуждаемого мощными одиночными фемтосекундными импульсами с докритическими пиковыми мощностями. С ростом интенсивности лазерного излучения в интервале $\sim 0.5-20$ ПВт/см^2 наблюдается насыщение амплитуды акустического давления с соответствующим снижением показателя нелинейности данной зависимости. Анализ процесса ионизации молекул воздуха в рамках модели туннельной ионизации Аммосова–Делоне–Крайнова предсказывает для данных условий воздействия фемтосекундного лазерного излучения слабонелинейный рост и насыщение выхода однозарядных ионов при степени ионизации воздуха, близкой к 50%.

PACS: 32.80.Rm, 42.50.Hz, 43.35.Ud

1. Взаимодействие интенсивных ультракоротких лазерных импульсов (УКИ) с атомными и молекулярными газовыми средами лежит в основе многих физических явлений – таких, как генерация высших гармоник и аттосекундных импульсов, которые представляют большой интерес как в фундаментальном плане (например, в задачах возбуждения и диагностики одно- и многоэлектронной атомной и молекулярной динамики [1], а также горячей плазмы твердотельной плотности [2, 3]), так и в плане практического применения излучения мягкого рентгеновского диапазона в метрологии наноструктур и нанофотолитографии. Взаимодействие УКИ с атомарными газами хорошо изучено в диапазонах интенсивности $I \sim 10^{-2}-1.0$ ПВт/см^2, где происходит переход от многофотонной к туннельной однократной ионизации атомов при величинах параметра адиабатичности Келдыша $\gamma = \sqrt{U_p/2\Delta} \sim 1$ ($U_{\rm p}$ – потенциал ионизации частиц и $\Delta = e^2|E|^2|/4m\omega^2$ – пондеромоторный потенциал электрона с зарядом e и массой m в лазерном электрическом поле с циклической частотой ω и напряженностью E [4]) с насыщением выхода ионов [4 – 6], а также в области $I \sim 10^2-10^3$ ПВт/см^2, где проявляются, в частности, стабилизация атомов в сильном поле с подавлением [7, 8] и релятивистские эффекты [9]. Между тем промежуточный диапазон $I \sim 1-10^2$ ПВт/см^2, где напряженность лазерного поля E изменяется от суб-атомных до сверх-атомных величин ($E \sim 10^9-10^{10}$ В/см), изучен относительно слабо как для атомных, так и для молекулярных газов [4 – 6, 10]. Последний случай представляет особый интерес, поскольку в более слабых лазерных полях ($E \sim 10^8$ В/см, $I \sim 0.1$ ПВт/см^2) многие относительно простые – двухатомные – молекулы демонстрируют необычный эффект подавления туннельной ионизации (по сравнению с атомами с близким потенциалом ионизации) [10], природа которого не совсем понятна. Напротив, в более сильных полях с $E \sim 10^9$ В/см, $I \sim 10$ ПВт/см^2 можно ожидать более универсального поведения атомов и молекул ввиду значительно большей роли в электронной динамике лазерного поля по сравнению с кулоновским. Взаимодействие атомов и молекул с сильными лазерными полями атомной напряженности также, может проявляться при филаментации УКИ в газах. В частности известно, что средняя по объему филаментов величина $I \sim 0.1$ ПВт/см^2 [11], однако последние данные показывают, что в зонах рефокусировки локальные значения I могут достигать 1 ПВт/см^2 [12], вызывая более сильную ионизацию среды. Поэтому исследование, понимание и описание явления филаментации в прозрачных средах с различными агрегатными состояниями требуют новых экспериментальных и теоретических подходов – в частности, к изучению ионизации этих сред.

В данной работе мы сообщаем об оптико-акустическом (ОА) исследовании эффекта туннельной ионизации молекул воздуха в поле мощных фемтосекундных лазерных импульсов с пиковыми мощностями, приближающимися к критической мощности самофокусировки в воздухе, и интенсивностями $I_0 \sim 0.5-20$ ПВт/см^2 ($\gamma \ll 1$) в режиме

[1)]e-mail: sikudr@sci.lebedev.ru

насыщения однократной ионизации среды. С учетом эффекта самофокусировки УКИ в воздухе условия эксперимента соответствовали условиям ионизации газа в зонах рефокусировки в филаментах. ОА метод регистрации позволил использовать схему эксперимента значительно более простую, чем масс-спектрометрические схемы с атомными или молекулярными пучками в предшествующих исследованиях.

2. В наших ОА исследованиях использовалась экспериментальная установка (рис.1), включающая в себя проточный реактор с встроенной системой акустической регистрации и системой фотовозбужения газов одиночными импульсами титан-сапфирового лазера (Авеста Проект) с длиной волны 744 нм, длительностью $\tau_{1/2}$ около 120 фс (на полувысоте) и энергией до 8 мДж в TEM_{00} моде. Лазерные импульсы фокусировались в пятно диаметром (на уровне $1/e^2$) $2w_0 \approx 12$ мкм (согласно расчетам и измерениям абляции поверхности кремния) непосредственно перед пьезоэлектрическим датчиком MiniWAT-2 [13]. Электрический импульс с датчика подавался на 50-омный вход цифрового осциллографа TDS-2024 (Tektronix), запускавшегося импульсом с быстрого фотодиода DET-210 (Thorlab), засвечиваемого слабым лазерным бликом. В данном исследовании в качестве газовой среды мы брали фильтрованный атмосферный воздух (вследствие его известной критической мощности самофокусировки $W_{\rm crit} \approx 3$ ГВт [14]) и использовали относительно низкие энергии лазерных импульсов (< 0.4 мДж, пиковая мощность $W_0 < 3$ ГВт), что позволяло сфокусировать лазерное излучение до интенсивности $\sim 0.5-20$ ПВт/см^2 непосредственно в фокальной области без филаментации (принято считать, что в филаментах достигается значительно меньшее фиксированное значение интенсивности излучения $I < 0.1$ ПВт/см^2 [11]). Напротив, при энергиях импульсов выше 0.4 мДж ($W_0 > W_{\rm crit}$) мы наблюдали – по мере роста их энергии – единичные и множественные филаменты, сопровождавшиеся выходом полихроматического излучения конической эмиссии, суперконтинуума и высших гармоник. Тем не менее, даже при малых энергиях УКИ, отвечающих докритическим пиковым мощностям, при расчете пиковой интенсивности излучения в фокусе мы учитывали эффект его частичной самофокусировки [15]

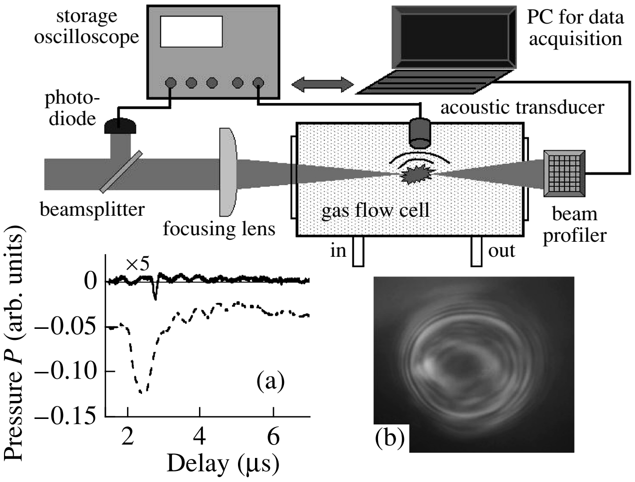

Рис.1. Блок-схема экспериментальной установки для оптико-акустических исследований фемтосекундного лазерного возбуждения газов. (a) ОА сигналы в воздухе при $I \approx 1.3$ ПВт/см^2 (сплошная линия) и 18 ПВт/см^2 (штриховая линия); (b) снимок прошедшего лазерного излучения в дальней зоне (45 см) за фокусом при $I \approx 5$ ПВт/см^2

$$I_0 = \frac{2W_0}{\pi w_0^2}\left(1 - \frac{W_0}{W_{\rm crit}}\right)^{-1}, \qquad (1)$$

где второй множитель в правой части отвечает за самофокусировку УКИ с мощностью W_0.

3. В проведенных исследованиях ОА сигналы регистрировались при различных значениях пиковой интенсивности УКИ $I_0 \approx 0.5-20$ ПВт/см^2, достигнутых при постоянной фокусировке путем ослабления энергии импульсов с помощью отражательного поляризационного ослабителя. Регистрируемые ОА сигналы имели вид практически монополярных импульсов давления сжатия с амплитудой $P_{\rm comp}$ (рис.1,a), отражая, согласно предшествующим исследованиям [16], акустическую релаксацию нагретого воздуха в фокальном объеме после суб-микросекундной термализации поглощенной энергии лазерного излучения (при значениях $I \leq 20$ ПВт/см^2 – с образованием ударной волны; см. появление фазы разрежения на рис.1a). В указанном диапазоне интенсивности излучения зависимость $P_{\rm comp}(I_0)$ вначале растет слабонелинейно ($\propto I_0^{2.7}$, по сравнению с $\propto I_0^{8-11}$ при многофотонной ионизации молекул кислорода и азота), а затем приближается к насыщению (рис.2). Соответственно, вследствие высоких – порядка “атомных” (≈ 35 ПВт/см^2 [17]) – значений I_0, использованных в настоящей работе, можно предположить насыщение амплитуды ОА сигнала с ростом I_0 благодаря высокой (близкой к 100%) степени ионизации молекул воздуха в единственном псевдолинейном (с учетом самофокусировки) фокусе. Высокая степень ионизации воздуха независимо подтверждается образованием оптически контрастной лазерной

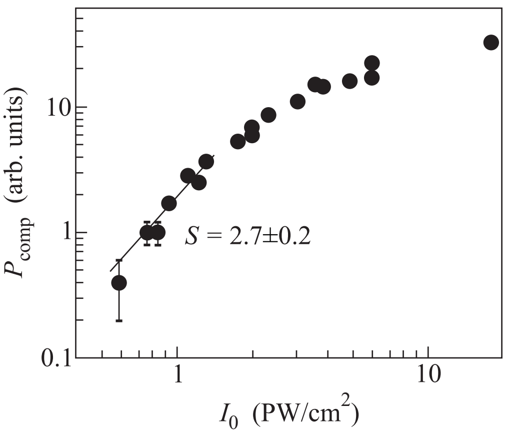

Рис.2. Зависимость амплитуды ОА сигнала давления P_{comp} от I_0 в двойных логарифмических координатах $\log P_{\text{comp}} - \log I_0$. Прямая линия показывает угловой наклон S зависимости при низких I_0

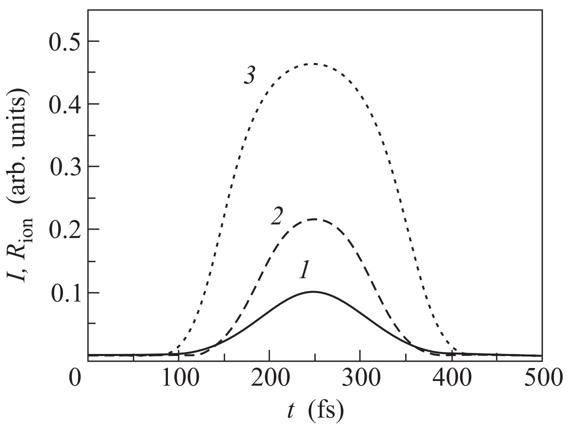

Рис.3. Временные профили константы скорости ионизации R_{ion} для значений $I_0 \approx 3.6$ (кривая *2*) и 18 (кривая *3*) ПВт/см^2. Кривая *1* представляет профиль УКИ, используемый в расчетах

искры с отрицательной вариацией показателя преломления $\delta n \approx -N_{\text{plas}}/2N_{\text{crit}}(744\,\text{нм}) \sim -10^{-2}$ для плотности воздушной плазмы N_{plas}, близкой к плотности молекул в воздухе ($3 \cdot 10^{19}\,\text{см}^{-3}$), и критической плотности плазмы на длине волны 744 нм $N_{\text{crit}}(744\,\text{нм}) \approx 2 \cdot 10^{21}\,\text{см}^{-3}$. В результате оптически контрастная воздушная плазма вызывает рефракцию или рассеяние на них возбуждающих фемтосекундных лазерных импульсов с докритической мощностью (рис.1b). Вместе с тем, при столь высоких значениях I_0 вследствие самофокусировки и модуляционной неустойчивости УКИ можно ожидать формирования в поперечном распределении интенсивности лазерного излучения нескольких конкурирующих нелинейных фокусов (“горячих точек”) [18] с существенно меньшими, чем $I_0 \sim 1{-}10\,\text{ПВт/см}^2$, величинами локальной интенсивности излучения.

С целью более детальной интерпретации экспериментально наблюдаемой зависимости $P_{\text{comp}}(I_0)$ было проведено моделирование ионизации молекул воздуха УКИ с $I_0 = 0.5{-}20\,\text{ПВт/см}^2$. В данном диапазоне I_0, соответствующем величине параметра адиабатичности Келдыша $\gamma \ll 1$, ожидается преимущественно туннельная, а не многофотонная, ионизация молекул воздуха в поле мощных фемтосекундных лазерных импульсов с “атомными” пиковыми интенсивностями. Соответствующие расчеты вероятности туннельного выхода ионов y_{ion} осуществлялись в несколько шагов. Во-первых, рассчитывались временные зависимости константы скорости ионизации $R_{\text{ion}}(I(t))$ в течение УКИ с гауссовым профилем $I(t) = I_0 \exp[-(t/\tau_{1/2})^2 \ln 2]$ и заданным значением I_0 (рис.3), используя модель Аммосова–Делоне–Крайнова [19] в виде обобщенной функциональной зависимости R_{ion} от приведенной напряженности линейно поляризованного лазерного поля $\varepsilon = \text{E}/E_{\text{at}} = \{I_0/I_{\text{at}}\}^{1/2}$ [20]:

$$R_{\text{ion}}(\varepsilon) = \frac{C}{\sqrt{\varepsilon}} \exp\left(-\frac{2}{3\varepsilon}\right), \qquad (2)$$

где коэффициент C учитывал детали начального состояния частицы (эффективное главное квантовое число для основного состояния молекул бралось равным $n^* = 1$) [4–6, 19, 20], потенциал ее однократной ионизации – для удобства расчетов – как у атома водорода $U_{\text{p}} = 13.6\,\text{эВ}$ (для молекул кислорода $U_{\text{p}} \approx 12.1\,\text{эВ}$, азота – 15.6 эв [21]), а $I_{\text{at}} \approx 35\,\text{ПВт/см}^2$ [17]. Далее, указанные зависимости численно интегрировались в пределах длительности УКИ, давая зависимость выхода ионов $Y_{\text{ion}}(\varepsilon)$ в относительных единицах:

$$Y_{\text{ion}}(\varepsilon) = \int_{-\infty}^{+\infty} R_{\text{ion}}(t)dt \qquad (3)$$

без учета уменьшения плотности нейтральных молекул вследствие ионизации. Расчеты показали, что $Y_{\text{ion}}(\varepsilon)$ медленно – менее чем на 10% – растет в диапазоне $\varepsilon = 2{-}8$ (рис.4), где можно было бы ожидать полную однократную ионизацию молекул воздуха. Соответственно, относительные значения Y_{ion} были нормированы на их максимальное значение $Y_{\text{ion,max}}$ при $\varepsilon \approx 8$ в виде $y_{\text{ion}} = Y_{\text{ion}}/Y_{\text{ion,max}}$, при этом y_{ion} в хорошем приближении можно рассматривать как вероятность выхода однократно ионизованных ионов (рис.4). Полученная зависимость $y_{\text{ion}}(\varepsilon)$ хорошо согласуется с зависимостью $P_{\text{comp}}(\varepsilon)$, давая несколько

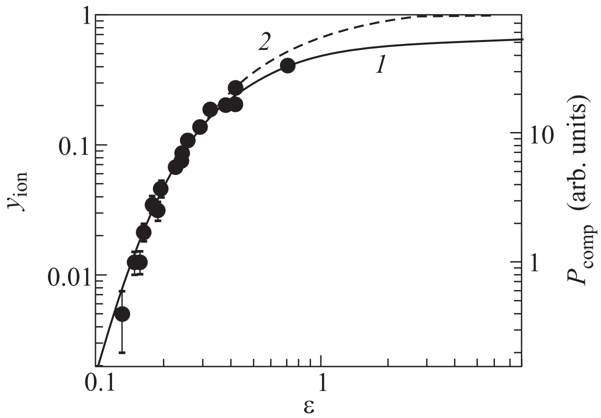

Рис.4. Зависимости амплитуды ОА сигнала давления P_{comp} (темные кружки) и вероятности туннельной ионизации y_{ion} (с учетом, кривая *1*, и без учета, кривая *2* эффекта насыщения) от приведенной напряженности поля ε

завышенные значения при $\varepsilon \leq 1$ вследствие замедления скорости туннельной ионизации из-за соответствующего уменьшения плотности нейтральных молекул.

Этот эффект был учтен при записи скорости изменения вероятности ионизации y_{ion} в виде [6]

$$dy_{\text{ion}}/dt = (1 - y_{\text{ion}})R_{\text{ion}}(t), \tag{4}$$

соответствующем асимптотической вероятности однократной ионизации

$$y_{\text{ion},\infty}(\varepsilon) = 1 - \exp\left(-\int_{-\infty}^{+\infty} R_{\text{ion}}(t)dt\right). \tag{5}$$

Полученная расчетная зависимость $y_{\text{ion},\infty}(\varepsilon)$ показывает лучшее согласие с зависимостью $P_{\text{comp}}(\varepsilon)$ во всем диапазоне условий эксперимента, несмотря на пространственное усреднение экспериментально измеряемой величины P_{comp} по фокальному объему (количественный учет этого эффекта весьма затруднителен). Заметим, что прямое сопоставление этих зависимостей обосновано четкой корреляцией ОА и оптогальванических (ионизационных) сигналов, регистрируемых при фокусировке мощных фемтосекундных лазерных импульсов в атомных и молекулярных газах, которая была установлена в наших предыдущих работах [22].

Вместе с тем, несмотря на видимое хорошее согласие экспериментальных ОА данных и результатов моделирования, пиковые интенсивности УКИ $I_0 \sim 1{-}10$ ПВт/см^2, при которых наблюдается насыщение экспериментально регистрируемого ОА сигнала и расчетного выхода однозарядных молекулярных ионов, оказываются существенно завышенными по сравнению с экспериментально измеряемыми интенсивностями насыщения I_{sat} выхода большинства атомных и некоторых молекулярных ионов – обычно $I_{\text{sat}} \sim 0.1{-}1$ ПВт/см^2, причем $I_{\text{sat}} \propto (U_p/\hbar\omega)^2 I_{\text{at}}$ [17]. Однако стоит отметить, что, в отличие от атомов, многие – даже простые двухатомные – молекулы (O_2, Cl_2, HCl), как более сложные многоядерные и многоэлектронные системы, демонстрируют подавление туннельной ионизации при довольно умеренных значениях $I_0 \sim 0.1$ ПВт/см^2 [10], и природа этого явления до сих пор не совсем понятна. Поэтому можно предположить, что высокие интенсивности насыщения однократной ионизации молекул воздуха в настоящей работе являются одним из проявлений сложной электронной динамики молекул в сильных лазерных полях, которая несомненно требует дальнейших исследований.

В заключение отметим, что степень ионизации воздуха в псевдолинейном (с учетом самофокусировки) фокусе в настоящей работе напоминает *среднюю* степень ионизации воздуха ($\approx 10\%$) в длинных филаментах, создаваемых УКИ с аналогичными параметрами излучения (за исключением пиковой мощности) и условиями фокусировки [23]. Такое хорошее согласие результатов настоящей работы и работы [23] может указывать на возможность достижения внутри газовых филаментов более высоких локальных значений $I \sim 1{-}10$ ПВт/см^2 (в зонах рефокусировки), чем считается в настоящее время (≤ 0.1 ПВт/см^2 [11]), равно как и более высоких степеней ионизации газов. Соответственно, многие параметры (в частности, плотность) газовой плазмы и механизмы ее образования (туннельный механизм вместо многофотонного), используемые в настоящее время для моделирования и описания явления филаментации, могут оказаться иными. Поэтому, несмотря на полученные в последние годы некоторые подтверждения значительного усиления лазерного поля (≤ 1 ПВт/см^2) и ионизации в зонах рефокусировки в филаментах [12], в этой области, на наш взгляд, также требуются дальнейшие систематические исследования.

4. Таким образом, в настоящей работе с помощью оптико-акустического метода исследован эффект туннельной ионизации молекул воздуха, возбуждаемых сфокусированными мощными одиночными ИК фемтосекундными импульсами с докритическими пиковыми мощностями. По мере роста интенсивности лазерного излучения отмечается слабонелинейный рост и насыщение амплитуды акустического давления сжатия, что разумно согласуется с насыщением туннельного выхода однозарядных ионов соответствующих молекул при степени ионизации воздуха, близкой к 50%, рассчитанной в рамках модели Аммосова–Делоне–Крайнова. Высокие интенсивности насыщения однократной ионизации молекул воздуха в настоящей работе – порядка 10 ПВт/см^2 – могут отражать сложную электронную динамику многоядерных молекул в сильных лазерных полях, требующую дальнейших исследований.

---

1. M. Drescher, M. Hentschel, R. Kienberger et al., Nature **419**, 803 (2002).
2. Y. Okano, K. Oguri, T. Nishikawa, and H. Nakano, Appl. Phys. Lett. **89**, 221502 (2006).
3. U. Zastrau, C. Fortmann, L.F. Cao et al., Phys. Rev E **78**, 066406 (2008).
4. Н. Б. Делоне, М. В. Федоров, УФН **158**, 215 (1989).
5. S. L. Chin, *From Multiphoton to Tunnel Ionization*, in: Advances in *Multi-Photon Processes and Spectroscopy*, Eds. S. H. Lin, A. A. Villaeys, and Y. Fujimura, Singapore, World Scientific, 2004, Ch.3.
6. C. J. G. J. Uiterwaal, D. Xenakis, D. Charalambidis et al., Phys. Rev. A **57**, 392 (1998).
7. Q. Su, J. H. Eberly, and J. Javanainen, Phys. Rev. Lett. **64**, 862 (1990); K. C. Kulander, K. J. Schafer, and J. L. Krause, Phys. Rev. Lett. **66**, 2601 (1991).
8. M. V. Fedorov, in: *Super-Intense Laser-Atom Physics*, Eds. B. Piraux, A. L'Huillier, and K. Rzcazewski, New York, Plenum Press, 1993, Vol.**316**, p.245.
9. В. С. Попов, Б. М. Карнаков, В. Д. Мур, Письма в ЖЭТФ **79**, 320 (2004).
10. E. P. Benis, J. F. Xia, X. M. Tong et al., Phys. Rev. A **70**, 025401 (2004).
11. H. R. Lange, A. Chiron, J.-F. Ripoche et al., Phys. Rev. Lett. **81**, 1611 (1998).
12. J. Song, X. Wang, X. Hu et al., Appl. Phys. Lett. **92**, 092904 (2008).
13. S. I. Kudryashov, V. D. Zvorykin, A. A. Ionin et al., Appl. Phys. Lett. **92**, 101916 (2008).
14. A. Couairon and A. Mysyrowicz, Phys. Rep. **441**, 47 (2007).
15. С. А. Ахманов, А. П. Сухоруков, Р. В. Хохлов, УФН **93**, 19 (1967).
16. J. Yu, D. Mondelain, J. Kasparian et al., Appl. Opt. **42**, 1 (2003).
17. Н. И. Коротеев, И. Л. Шумай, *Физика мощного лазерного излучения*, М.: Наука, 1991, гл.2; K. C. Kulander and M. Lewenstein, *Multiphoton and Strong-Field Processes*, in: *Atomic, Molecular and Optical Physics Handbook*, Eds. G. W. F. Drake, New York, AIP Press, 1996, Ch.72.
18. S. A. Hosseini, Q. Luo, B. Ferland et al., Phys. Rev. A **70**, 033802 (2004); О. Г. Косарева, Н. А. Панов, В. П. Кандидов, Оптика атмосферы и океана **18**, 223 (2005).
19. М. В. Аммосов, Н. Б. Делоне, В. П. Крайнов, ЖЭТФ **91**, 2008 (1986).
20. Н. Б. Делоне, В. П. Крайнов, *Атом в сильном световом поле*, М.: Атомиздат, 1978, гл.8; см. также В. С. Попов, УФН **174**, 921 (2004).
21. И. С. Григорьев, Е. З. Мейлихов (ред.), *Физические величины*, М.: Энергоатомиздат, 1991, гл.32.
22. В. Д. Зворыкин, А. А. Ионин, С. И. Кудряшов и др., Письма в ЖЭТФ **88**, 10 (2008); A. A. Ionin, S. I. Kudryashov, Yu. N. Ponomarev et al., Opt. Commun. **282**, 45 (2009).
23. F. Theberge, W. Liu, P. Tr. Simard et al., Phys. Rev. E **74**, 036406 (2006).