

## НЕЛИНЕЙНЫЕ ОПТИЧЕСКИЕ ЯВЛЕНИЯ В АТМОСФЕРЕ И ОКЕАНЕ

УДК 536.24, 53.043, 535:621.373.826

# Фазовый взрыв водной капли фемтосекундным лазерным импульсом: I. Динамика оптического пробоя

Ю.Э. Гейнц, А.А. Землянов\*

Институт оптики атмосферы им. В.Е. Зуева СО РАН  
634021, г. Томск, пл. Академика Зуева, 1

Поступила в редакцию 25.02.2009 г.

Представлена физическая модель фазового взрыва оптически прозрачной водной капли в поле интенсивного лазерного излучения фемтосекундной длительности. Теоретически исследована теплофизическая стадия взрыва, связанная с оптическим пробоем жидкости во внутренних областях микронной частицы. Приведены результаты численных расчетов динамики плазмообразования в капле при различной интенсивности облучения, а также выполнены оценки положения и эффективного размера областей пробоя внутри частицы.

**Ключевые слова:** фазовый взрыв, оптический пробой, микрочастица, фемтосекундное излучение.

### Введение

Значительный прогресс, наблюдающийся в последние два десятилетия в развитии фемтосекундных лазерных систем, применение их для широкомасштабных атмосферных исследований вывели на первый план задачу изучения закономерностей нелинейного распространения мощного ультракороткого лазерного излучения (УКИ) при наличии на трассе аэрозольных образований. Присутствие в воздухе аэрозольных частиц, в частности капель воды, существенно изменяет условия распространения лазерного излучения. Взаимодействие интенсивного УКИ с аэрозолем может сопровождаться явлением оптического пробоя и взрывного разрушения частиц [1, 2]. Внутри прозрачной капли в течение всего импульса в местах наибольшей концентрации световой энергии формируются плазменные очаги, которые являются областями активного поглощения лазерного излучения. Частица, таким образом, кроме линейного оптического ослабления проявляет еще и наведенное излучением нелинейное поглощение, что может повлиять на динамические характеристики самого УКИ.

В результате взрыва и фрагментации аэрозольных частиц происходит существенная перестройка физико-химических свойств канала распространения и при частотно-импульсном режиме работы источников УКИ после прохождения первого импульса в цуге условия распространения для последующих импульсов могут быть уже иными. В отличие от известных традиционных экспериментов по взрыву сильно поглощающих микрочастиц длинными лазерными импульсами (например, воздействие излучения CO<sub>2</sub>-лазера на капли воды),

когда излучение напрямую нагревает частицу, приводя к ее взрывному вскипанию (см. монографии [3–5] и ссылки в них), ультракороткое излучение вследствие экстремально высокой плотности мощности ( $\sim 10^{14}$  Вт/см<sup>2</sup>) способно сначала ионизовать внутренние области микрочастицы. Диссипация запасенной в плазменных областях энергии во внутреннюю энергию вещества частицы реализуется, как правило, уже после прохождения лазерного импульса и сопровождается газодинамическим расширением перегретой двухфазной жидкости, приводя к частичному или полному механическому разрушению микрочастицы. Первый и пока единственный известный нам эксперимент по динамике взрыва капель воды в поле излучения фемтосекундного лазера на кристалле сапфира [2] указал на многообразие протекания процесса фрагментации капли при таких условиях и его зависимость от энергии, длительности лазерного импульса и размера частицы.

Необходимо отметить, что задача о фазовом взрыве капли под действием мощного лазерного излучения имеет долгую историю. Возможность светоиндуцированного теплового взрыва капель была теоретически предсказана в [6] при анализе режимов испарения малого объема жидкости под действием излучения. При этом сам взрывной режим испарения связывался с достижением критических параметров вещества в локальных областях капли при быстром неизобарном нагреве жидкости. Экспериментально взрыв капель впервые наблюдался в [7], где исследовалось взаимодействие излучения рубинового лазера ( $\lambda_0 = 0,69$  мкм) и 100–200-мкм подкрашенных капель воды, подвешенных на нитях. Взрыв наступал при превышении некоторого порогового значения по плотности поглощенной частицей энергии излучения, которое в [7] было оценено на уровне  $\sim 20$  Дж/см<sup>2</sup>.

\* Юрий Эльмарович Гейнц (ygeints@iao.ru); Александр Анатольевич Землянов (zaa@iao.ru).

Дальнейшие исследования [8–13], проведенные с использованием излучения лазеров на  $\lambda = 0,69; 1,06; 10,6$  мкм, показали, что взрыв поглощающих капель носит характер выбросов паро-конденсата из фронтальной и теневой поверхностей частиц, где локализованы зоны тепловыделения. В зависимости от размера исходной капли эти выбросы могут быть симметричными относительно направления действия излучения и несимметричными, приобретая с увеличением размера капель явно выраженный фронтальный вид.

Важнейшим моментом в развитии теоретических моделей теплового взрыва жидкости явился оптотермодинамический подход [14–16]. Он основан на изучении влияния параметров воздействующего излучения на ход термодинамических процессов в веществе и позволил качественно и количественно проанализировать задачу, систематизировать экспериментальные данные и осуществить прогноз новых физических эффектов, стимулированных лазерным излучением в конденсированном веществе. В рамках данного подхода тепловые эффекты, реализующиеся в частицах аэрозоля при облучении их мощным световым излучением, трактуются как проявление определенного типа оптотермодинамических переходов вещества.

При расчете таких траекторий для элементарных объемов жидкой и газовой фаз вещества частицы можно количественно оценить макроскопические термодинамические параметры процесса (давление, плотность, температура, массовая доля пара при взрыве, дисперсность образующихся жидкофазных осколков). В частности, такой подход оказался весьма плодотворным в исследованиях динамики абляции твердого вещества при облучении его поверхности мощными лазерными импульсами (см., например, [17, 18]).

В данной статье мы, по нашим данным впервые, проводим комплексное теоретическое рассмотрение теплофизической стадии фазового взрыва оптически прозрачной водной капли при воздействии на нее интенсивных лазерных импульсов фемтосекундной длительности. Особенностью данного режима взрыва является то, что передача световой энергии в жидкость происходит ударно за экстремально короткое время. При этом считается, что в жидкости нет прямого поглощения света, а диссирипция энергии излучения в среду идет через плазмообразование внутри капли. Формирующиеся плазменные области являются в дальнейшем источниками парообразования и причиной механического разрушения или фрагментации капли.

Физический сценарий фемтосекундного взрыва жидкой частицы, таким образом, можно условно разделить на три последовательные фазы: 1) фаза плазмообразования во внутренних областях капли; 2) фаза вскипания этих областей (нуклеации пара); 3) фаза фрагментации капли. В рамках этого сценария ниже будут рассмотрены первые две фазы взрыва жидкой частицы. Весь материал в целях удобства восприятия разбит нами на две отдельные статьи. В первой детально исследуются ионизация

и формирование свободных зарядов внутри водной капли, устанавливаются расположение и протяженность возникающих «горячих» зон, т.е. областей с повышенной плотностью плазмы. Вторая статья посвящена анализу возможных термодинамических траекторий перегретой жидкости в зонах плазмообразования для установления динамики фазового состояния вещества. Здесь же проводятся оценки степени взрывного испарения перегретых областей капли, а также основных термодинамических параметров жидкости (давление, температура) в конечных точках фазовых траекторий.

Финальная (третья) фаза взрыва, включающая в себя газодинамику образовавшихся паровых полостей и механические деформации поверхности капли, в настоящей статье не рассматривается. Отметим, что в литературе нам известны по крайней мере три теоретические модели взрывной фрагментации жидкой частицы, построенные для ряда специальных случаев. Первая модель описывает центросимметричный взрыв рэлеевской однородно поглощающей частицы [16, 19], когда весь объем жидкости движется по одной термодинамической траектории, становится закритическим веществом, и далее его эволюция подчиняется законам газовой динамики. Вторая модель относится к фронтальному поверхностному взрыву оптически крупной капли [20, 21]. При этом считается, что вследствие резко неоднородного по объему тепловыделения вскипает только узкий приповерхностный слой капли, который, разлетаясь, оказывает обратное давление на «холодное ядро», сжимая его в поперечном к направлению действия излучения направлении. И наконец, третья модель механического разрушения капли описывает ситуацию роста из ее центра одиночного парового пузыря, который увеличивает свой объем за счет испарения горячей жидкости на поверхности фазового раздела. При утончении пленки жидкости, заключенной между паровым пузырем и поверхностью капли до некоторой критической толщины, могут создаться условия для необратимого развития ее возмущений вследствие неустойчивости испарения, что приведет к фрагментации частицы [22, 23].

В рассматриваемом ниже режиме «фемтосекундного» взрыва мы имеем дело с пространственно высоко локализованными зонами парообразования, каждая из которых формируется вблизи поверхности капли и окружена «холодной» жидкостью. При таких условиях картина разрушения капли имеет вид кинжалных выбросов парокапельной смеси через поверхность частицы [2]. Резкая асимметрия процесса деформации капли и локальный характер действия паровых областей на окружающую жидкость не позволяют напрямую использовать для описания стадии фрагментации частицы существующие теоретические модели разрушения. К сожалению, пока нам не встретилось какого-либо адекватного описания данных процессов в микронных частицах и сделать какие-либо выводы относительно порогов разрушения и параметров продуктов взрыва к настоящему времени затруднительно.

## Энергозапас очагов оптического пробоя внутри слабопоглощающей микрочастицы в поле УКИ

Возникновение плазмы в среде при распространении в ней интенсивного лазерного излучения связано с генерацией заряженных частиц (свободных электронов и положительных ионов) под действием света. Основными физическими механизмами фотоионизации конденсированных сред являются каскадная (лавинная) и многофотонная ионизация (МФИ). Конкретная роль каждого из рассмотренных механизмов ионизации в формировании плазмы зависит от интенсивности и длительности лазерного импульса.

Для оценки энергозапаса зон плазмообразования воспользуемся широко известной моделью Друде–Лоренца газа свободных электронов [24]. В рамках данной модели каждый *свободный* (в конденсированной среде квазиволнистый [25]) электрон в плазме обладает как минимум избытком потенциальной энергии, полученной им от электромагнитного поля:  $\Delta E_p^e = E_i$ , где  $E_i$  – потенциал ионизации молекулы жидкости (для воды  $E_i = 6,5 \text{ эВ} \approx 10^{-18} \text{ Дж}$ ). После того как атом или молекула были однократно ионизованы излучением, например вследствие акта одновременного поглощения нескольких фотонов поля или туннелирования сквозь потенциальный барьер, образовавшийся свободный электрон начинает получать энергию от световой волны в серии циклов упругих столкновений с тяжелыми многозарядными частицами по механизму, обратному эффекту тормозного излучения. Эта энергия ( $\Delta E_k^e$ ) идет на увеличение кинетической энергии свободного электрона и преобразуется в его хаотичное поступательное движение. В дальнейшем при выполнении условия  $\Delta E_k^e \geq E_i$  «горячий» электрон ударно может ионизовать другой нейтральный атом. Таким образом, из одного «горячего» электрона образуются два «холодных» с энергией порядка  $E_i$  и т.д. Развивается лавина свободных электронов.

После окончания действия лазерного импульса образовавшаяся в жидкости плазма начинает отдавать свою энергию молекулам воды в результате процесса термализации электронов посредством электрон–ионной рекомбинации и присоединения электронов к нейтральным молекулам. В воде временные рамки данного процесса составляют единицы – десятки пикосекунд [26]. В дальнейшем этот избыток внутренней энергии жидкости, переданный от плазмы, преобразуется в тепловую (нагрев и испарение) и механическую (ударная волна, кавитация) составляющие. Существует еще и радиационный канал диссипации энергии плазмы, визуально наблюдаемый в виде свечения среды, однако он по экспериментальным оценкам [27] достаточно слаб и в дальнейшем учитываться нами не будет.

Фотоионизация нейтральных молекул приводит к появлению дополнительного поглощения

энергии излучения в среде. Нелинейный объемный коэффициент поглощения среды  $\alpha_I$ , связанный с данным процессом, имеет вид

$$\alpha_I = \frac{W_I(I)}{I} E_i (\rho_{nt} - \rho_e), \quad (1)$$

где  $W_I(I)$  – скорость (вероятность) фотоионизации среды;  $\rho_{nt}$  – плотность нейтральных атомов (молекул);  $I$  – интенсивность лазерного излучения;  $\rho_e$  – концентрация свободных электронов (плотность плазмы).

Сама ионизированная среда продолжает поглощать фотоны из электромагнитного поля. Модель Друде–Лоренца дает изменение мнимой части комплексного показателя преломления плазмы  $\alpha_p$  в виде

$$\alpha_p = -\frac{\omega_p^2 \tau_c}{2n_0 \omega (\omega^2 \tau_c^2 + 1)}, \quad (2)$$

где  $\omega_p = \sqrt{e^2 \rho_e / (m_e \epsilon_0)}$  – плазменная частота;  $\tau_c$  – характерное время столкновения свободных электронов с тяжелыми частицами (по данным [28]  $\tau_c \approx 1 \div 3 \text{ фс}$  для воды);  $e$ ,  $m_e$  – заряд и масса покоя электрона;  $\omega$  – частота световой волны;  $n_0$  – линейный показатель преломления среды;  $\epsilon_0$  – универсальная электрическая постоянная ( $\epsilon_0 = 8,8 \cdot 10^{-12} \text{ Ф/м}$ ). Как видно из данного выражения,  $\alpha_p$  пропорциональна мгновенной плотности свободных электронов  $\rho_e$ .

Мгновенная плотность свободных электронов в среде может быть определена из скоростного уравнения, учитывающего многофотонный и каскадный механизмы ионизации, а также снижение концентрации электронов за счет их рекомбинации с ионами [27]:

$$\frac{\partial \rho_e(\mathbf{r}, t)}{\partial t} = W_I(I)(\rho_{nt} - \rho_e(\mathbf{r}, t)) + \frac{\sigma_c}{n_0^2 E_i} \rho_e I(\mathbf{r}, t) - v_r \rho_e^2(\mathbf{r}, t), \quad (3)$$

где

$$\sigma_c = \frac{1}{(\omega^2 \tau_c^2 + 1)} \left[ \frac{\omega_p^2 \tau_c}{c \rho_e} - \frac{m_e \omega^2 E_i n_0}{M} \right]$$

– сечение каскадной ионизации молекулы;  $v_r$  – скорость рекомбинации;  $c$  – скорость света в вакууме;  $M$  – масса молекулы воды;  $t$  – время. Мы не учитываем диффузию свободных электронов из области пробоя, считая ее действие пренебрежимо малым за время рекомбинации зарядов в фемтосекундной плазме [29].

Тогда результирующий объемный коэффициент поглощения энергии световой волны  $\alpha_N$  при плазмообразовании находится из (1)–(3):

$$\alpha_N(\mathbf{r}, t) = 2k\alpha_p + \alpha_I = \sigma_c \rho_e + \frac{W_I}{I} E_i (\rho_{nt} - \rho_e), \quad (4)$$

где  $k = \frac{2\pi}{\lambda_0}$  – волновое число.

Соответственно объемная плотность энергии  $\Delta w_p$ , запасенная плазмой, может быть рассчитана интегрированием по времени произведения  $\alpha_N$  на интенсивность лазерного излучения:

$$\Delta w_p(\mathbf{r}, t) = \int_0^t \alpha_N(\mathbf{r}, t') I(\mathbf{r}, t') dt'. \quad (5)$$

Здесь  $\mathbf{r}$  — радиус-вектор точки среды.

Дальнейший анализ будем проводить в рамках модели короткого импульса излучения, когда его длительность  $t_p$  много меньше характерного времени снижения плотности плазмы  $\tau_d = (v_r \rho_e^m)^{-1}$ , где  $\rho_e^m = \rho_e(t_p)$  — концентрация свободных электронов, достигнутая к концу импульса. Условие  $t_p \ll \tau_d$  говорит о том, что при расчете величины  $\rho_e^m$  с помощью (3) можно не учитывать слагаемые, ответственные за релаксацию плазмы. Оценка времени  $\tau_d$  для воды при  $v_r \approx 2 \cdot 10^{-15} \text{ м}^3/\text{с}$  [30] и  $\rho_e^m = \rho_e^c = 10^{27} \text{ м}^{-3}$  дает  $\tau_d \sim 500 \text{ фс}$ . Здесь  $\rho_e^c$  — критическая плотность свободных электронов, при которой плазменная частота  $\omega_p$  сравнивается с частотой лазерного излучения и плазма начинает резонансно поглощать энергию светового поля, т.е. становится полностью непрозрачной для излучения.

Для большинства практических ситуаций достаточно рассмотреть фотоионизацию молекул воды по механизму многофотонного поглощения:

$$W(I) = v_{mpa} I^l(\mathbf{r}, t) / \rho_{nt},$$

где  $v_{mpa}$ ,  $l$  — скоростной коэффициент и степень многофотонной ионизации молекулы вещества соответственно (для воды  $l = 5$  на длине волны  $\lambda_0 = 800 \text{ нм}$ ). Таким образом, в рамках сделанных предположений уравнение (3) принимает вид

$$\frac{\partial \rho_e(\mathbf{r}, t)}{\partial t} = v_{mpa} I^l(\mathbf{r}, t) \left( 1 - \frac{\rho_e(\mathbf{r}, t)}{\rho_{nt}} \right) + v_{cas} \rho_e(\mathbf{r}, t) I(\mathbf{r}, t), \quad (6)$$

где  $v_{cas} = \sigma_c / n_0 E_i$  — коэффициент каскадной ионизации.

Предположим далее для упрощения выкладок, что временной профиль лазерного излучения, действующего на среду, имеет ступенчатую форму с длительностью  $t_p$  и пиковой интенсивностью  $I_m$ . В этом случае решение (6) при очевидном условии  $\rho_e \ll \rho_{nt}$  ( $\rho_{nt} \approx 10^{28} \text{ м}^{-3}$ ) приводит к выражению

$$\rho_e(\mathbf{r}, t) = \frac{v_{mpa} I_m^{l-1}(\mathbf{r})}{v_{cas}} \left[ \exp(v_{cas} I_m t) - 1 \right], \quad t \leq t_p. \quad (7)$$

Подстановка (7) в (4), (5) дает искомое выражение для энергозапаса плазмы в поле лазерного излучения к концу действия импульса  $t = t_p$ :

$$\Delta w_p(\mathbf{r}, t_p) = \rho_e(\mathbf{r}, t_p) E_i = \frac{v_{mpa}}{v_{cas}} E_i I_m^{l-1}(\mathbf{r}) \left[ \exp(v_{cas} I_m(\mathbf{r}) t_p) - 1 \right]. \quad (8)$$

Таким образом, в рамках использованной модели плазмы прирост внутренней энергии жидкости в результате ее плазмообразования пропорционален локальной интенсивности светового излучения.

Оценим  $\Delta w_p$  по порядку величины, предположив, что в какой-либо области жидкости достигается критическая плотность свободных электронов  $\rho_e^c$ . Тогда, подставляя в (8) табличное значение энергии ионизации молекулы воды, получим:  $\Delta w_p \approx 1 \text{ ГДж}/\text{м}^3$ . При нормальных условиях это соответствует приросту удельной плотности внутренней энергии  $\Delta \epsilon_p = \Delta w_p / \rho_0 \approx 1 \text{ МДж}/\text{кг}$  ( $\rho_0$  — плотность воды).

Как установлено в [16], закритический взрыв реализуется при импульсном выделении в единице массы жидкости количества теплоты, не меньшего удвоенной теплоты испарения жидкости  $Q_e$  (для воды при атмосферном давлении  $Q_e \approx 2,2 \text{ МДж}/\text{кг}$ ). Сравнивая полученную оценку с  $Q_e$ , видим, что закритические термодинамические траектории движения вещества при оптическом пробое капель воды маловероятны и адиабаты разгрузки «горячей» жидкости в зонах плазмообразования преимущественно будут проходить ниже критической изоэнтропии воды.

Необходимо заметить, однако, что проведенная оценка энергозапаса жидкости, строго говоря, не окончательна. Во-первых, нет никаких принципиальных ограничений на то, что плотность свободных электронов в фемтосекундной плазме может в несколько раз превысить ее критическое значение  $\rho_e^c$ . На возможность этого указывалось, например, в работе [30] при теоретическом рассмотрении оптического пробоя воды в поле фемтосекундного УФ-лазера.

Во-вторых, использованная для оценок модель плазмы (модель Друде—Лоренца) помимо ограничения  $\rho_e \leq \rho_e^c$  не учитывает изменения кинетической энергии свободных электронов между актами соударения с нейтральными атомами, а также исходит из предположения их однократной ионизации. Это приводит к занижению электронной температуры газа отрицательно заряженных частиц, которая в среднем может быть выше температуры, соответствующей состоянию электрона с энергией  $E_i$ . В литературе известна модель плазмы Rethfeld [31], где учтено неравномерное распределение кинетической энергии свободных электронов в зоне проводимости вещества. В рамках этой модели показатель поглощения лазерного излучения плазмой  $\alpha_p$  выше примерно в  $[l(2^{1/l}-1)]^{-1}$  раз, чем по модели Друде—Лоренца при одном и том же значении электронной концентрации  $\rho_e$ . В рассматриваемом случае это приведет к росту суммарного коэффициента поглощения плазмы более чем на треть.

Кроме того, как показано в классической работе [32], в условиях ультракороткого высоконинтенсивного лазерного облучения жидкости при расчете плотности электронов вместо энергии ионизации атома  $E_i$  необходимо использовать эффективный

потенциал ионизации  $\tilde{E}_i$ , значение которого выше на величину колебательной энергии электрона в электромагнитном поле:

$$\tilde{E}_i = E_i + \frac{e^2 |E|^2}{4m_c\omega^2},$$

где  $E$  – напряженность электрического поля;  $m_c$  – приведенная масса экситона. При «пробойной» для воды интенсивности лазерного излучения фемтосекундной длительности  $I_0 \sim 10^{13}$  Вт/см<sup>2</sup> [27] получим  $\tilde{E}_i = 7$  эВ, что согласно (4) опять увеличит энергозапас плазменных областей.

Наконец, в сверхсильных электромагнитных полях может происходить повторная ионизация атомов и молекул [33]. Этот процесс связан с тем, что свободный электрон при определенных условиях способен взаимодействовать с «родительским» положительным ионом так, что в акте их столкновения рождается еще один свободный электрон. Сам ион при этом увеличивает свой положительный заряд на единицу, а в среде происходит прирост плотности свободных электронов  $\rho_e$ . Возможен и иной сценарий дополнительного увеличения плотности лазерной плазмы, когда процесс фотоионизации среды происходит в несколько стадий, а именно: первичная ионизация молекулы, ее диссоциация на ион и нейтральный остаток и, наконец, ионизация этого нейтрального атома с образованием уже двух свободных электронов [34].

Все отмеченные выше обстоятельства могут привести к заметному повышению достижимых значений электронной концентрации, а значит, величины запасенной в плазме энергии светового поля и, как следствие, к реализации в некоторых областях капли закритического взрыва жидкости.

## Конфигурация и эффективный размер зон плазмообразования в водных каплях

Пространственный профиль интенсивности оптического поля внутри слабопоглощающих водных капель, освещенных световой волной, имеет неоднородную структуру и характеризуется в общем случае наличием двух главных максимумов, так называемых «горячих» точек, расположенных вблизи поверхности капли в освещенной и теневой полусферах соответственно (рис. 1). В оптически крупных частицах, параметр дифракции  $x_a = 2\pi a_0/\lambda_0$  которых значительно больше единицы, превышение интенсивности локального оптического поля  $I$  в «горячих» точках над интенсивностью падающей волны  $I_0$  может достигать нескольких порядков величины (см., например, [35]). Именно в данных областях прежде всего и происходит плазмообразование.

Пространственное распределение значений  $I(\mathbf{r})$  рассчитывается, как правило, с помощью теории Ми, в рамках которой оптические поля представля-

ляются в виде бесконечных сходящихся рядов по сферическим гармоникам с коэффициентами, зависящими от морфологии и оптических свойств частицы. При ультракоротком облучении, когда пространственная протяженность лазерного импульса  $l_p = ct_p$  становится сравнимой с диаметром частицы  $2a_0$ , необходимо учитывать переходной характер формирования внутреннего оптического поля, что выражается в уникальной зависимости локальной интенсивности от времени в каждой точке внутри частицы [36].

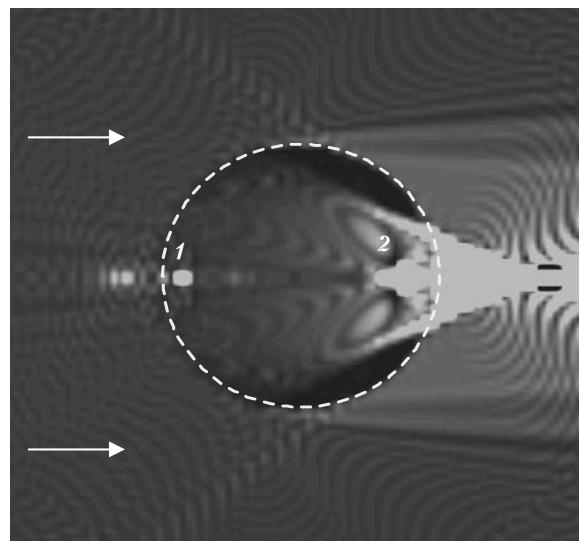


Рис. 1. Пространственное распределение нормированной плотности энергии оптического поля  $\bar{w}$  в окрестности 30-мкм водной капли (экваториальное сечение) при падении на нее фемтосекундного лазерного излучения ( $\lambda_0 = 800$  нм,  $t_p = 100$  фс). Излучение падает слева направо, более светлые области соответствуют большим значениям  $\bar{w}$ . Цифрами обозначены главные максимумы поля в освещенной (1) и теневой полусферах (2) частицы

Для расчета пространственно-временного распределения интенсивности светового поля внутри сферической частицы может быть использована модифицированная нестационарная теория Ми, оперирующая с Фурье-спектром лазерного импульса. Детали данной методики представлены, например, в [37]. Характерными особенностями нестационарного рассеяния светового излучения являются затягивание временного профиля интенсивности во внутренних областях частицы после прохождения лазерного импульса, а также прогрессирующее с укорочением импульса снижение абсолютной величины максимумов интенсивности в «горячих» точках частицы [36].

Пространственный профиль нормированной плотности энергии

$$\bar{w}(\mathbf{r}) = w_0^{-1} \int_0^\infty I(\mathbf{r}, t) dt$$

( $w_0$  – плотность энергии падающего излучения) в экваториальном сечении водной капли, облученной

фемтосекундным лазерным импульсом, показан на рис. 1. Как видно, и в данном случае качественно также можно выделить две зоны повышенной концентрации внутренней световой энергии, причем их местоположение совпадает с координатами, вычисленными с помощью стационарной теории Ми. Так, например, для представленного на рис. 1 варианта абсолютный максимум плотности энергии поля расположен в теневой полусфере по главному диаметру на расстоянии  $r = r_2 = 0,68a_0$  от центра частицы. Временная динамика относительной интенсивности поля  $B = I(t)/I_0$  в этой точке показана на рис. 2.

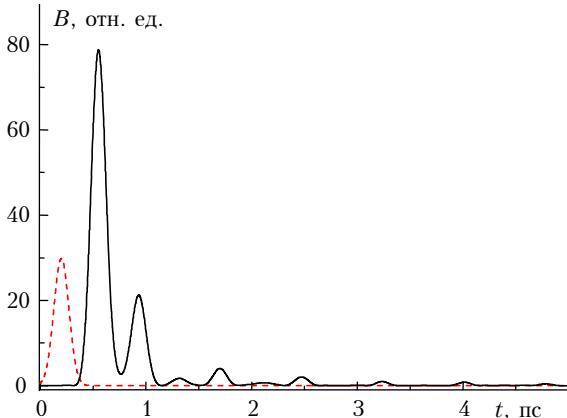


Рис. 2. Временное поведение относительной интенсивности оптического поля  $B(r_i)$  внутри водной капли в точке его абсолютного максимума. Параметры расчета соответствуют рис. 1. Пунктиром показан временной профиль падающего излучения (в произв. ед.)

Удаленность точки максимума интенсивности поля от освещенной поверхности частицы приводит к тому, что световой волне требуется конечное время для распространения в данную область и максимум интенсивности оказывается смещенным по шкале времен относительно исходного импульса. В дальнейшем, после выхода лазерного импульса из частицы, оптическое поле внутри нее существует еще достаточно долго, а его интенсивность, затухает, пульсируя во времени.

Причиной этого являются высокодобротные резонансные моды частицы (моды «шепчущей галереи», ШГ), которые с большой вероятностью возбуждаются широким спектральным контуром падающего излучения и удерживают электромагнитное поле внутри частицы, концентрируя его вблизи поверхности. Характерное время жизни таких мод в микронных каплях воды может составлять сотни пикосекунд [5].

Очевидно, что подобная нетривиальная временная динамика интенсивности поля может повлиять на пространственное распределение концентрации свободных электронов формирующейся в поле ультракороткого лазерного импульса плазмы по сравнению с облучением частицы непрерывным излучением.

Рис. 3 показывает распределение концентрации свободных электронов вдоль главного диаметра

водной капли, облученной фемтосекундным лазерным импульсом. Данное распределение получено из численного решения уравнения (3) с использованием для вычисления временной зависимости интенсивности внутреннего поля нестационарной теории Ми. Отрицательные значения абсциссы (рис. 3) соответствуют теневой полусфере капли.

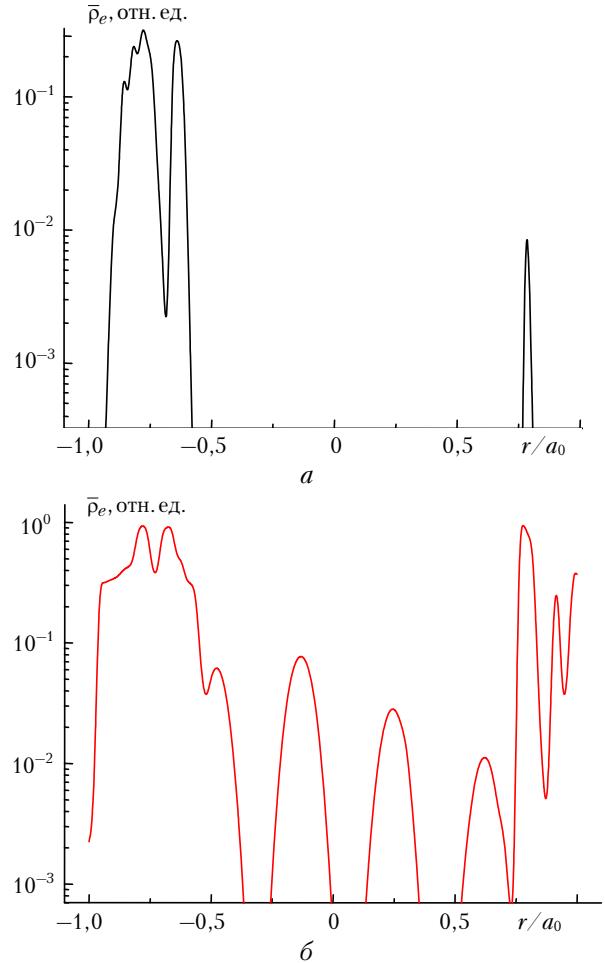


Рис. 3. Распределение относительной концентрации свободных электронов  $\bar{\rho}_e = \rho_e / \rho_e^c$  вдоль главного диаметра водной капли с  $a_0 = 30$  мкм, облученной лазерным импульсом с  $t_p = 100$  фс и пиковой интенсивностью  $I_0 = 0,1$  (а) и 1 ТВт/см<sup>2</sup> (б). Графики построены к моменту времени  $t = 1$  пс после начала действия излучения

Интенсивность оптического поля падающей на частицу электромагнитной волны изначально была выбрана ниже порога пробоя воды:  $I_0 < I_{bd}$  ( $I_{bd} \sim 10^{13}$  Вт/см<sup>2</sup> по данным [27]). При этом, однако, в области абсолютного максимума интенсивности внутреннего поля частицы электронная концентрация, как видно из рис. 3, б, может достигать критического для пробоя значения  $\rho_e^c$ .

В освещенной полусфере капли значение  $\bar{\rho}_e$  в «горячей» точке более чем на порядок величины ниже (рис. 3, а), но при повышении интенсивности излучения здесь также реализуются предпробойные значения электронной концентрации (рис. 3, б).

Центральные области капли остаются слабо затронутыми плазмообразованием.

Рис. 4 показывает временную динамику плотности свободных электронов в точках, соответствующих местоположению главных максимумов оптического поля капли.

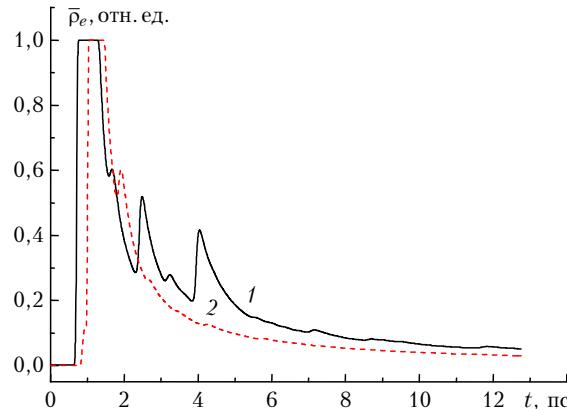


Рис. 4. Временной ход относительной концентрации свободных электронов в точках максимумов интенсивности внутреннего оптического поля в теневой (1) и освещенной (2) полусферах водной капли с  $a_0 = 30$  мкм при падении на нее лазерного импульса с  $t_p = 100$  фс и пиковой интенсивностью  $I_0 = 1$  ТВт/см<sup>2</sup>

Хорошо прослеживаются все отмеченные выше особенности нестационарного режима фотоионизации микрочастицы (см. обсуждение рис. 2). Пульсирующий характер интенсивности внутреннего оптического поля частицы приводит к пульсациям электронной концентрации, временное затягивание интенсивности поля модами ШГ выражается в длинном «хвосте» временной динамики  $\rho_e$ , наконец, максимумы концентрации свободных электронов в теневой и освещенной полусферах частицы смешены во времени друг относительно друга.

Важным представляется оценить средний размер областей с повышенной плотностью плазмы, т.е. областей внутри капли, где электронная концентрация превышает некоторый заданный уровень  $\bar{\rho}_e^*$ :  $\bar{\rho}_e^* \leq \bar{\rho}_e(\mathbf{r}, t) \leq 1$ . Представление о пространственной форме очагов пробоя внутри частицы дает рис. 5, где показаны объемное распределение плотности энергии световой волны в окрестности водной капли и сами плазменные очаги, построенные для значения порога  $\bar{\rho}_e^* = e^{-1}$ . Параметры расчета соответствуют рис. 3, б.

Отметим, что распределение концентрации электронов, приведенное на рис. 5, указывает на резко очерченные границы очагов пробоя. Кроме того, видна характерная форма плазменных структур в виде тел вращения, локализованных на главном диаметре частицы. Последнее обстоятельство есть следствие предсказываемой теорией светорассеяния симметрии распределения интенсивности внутреннего оптического поля частицы по азимутальному углу при освещении ее плоской волной. Очевидно, что размеры очагов пробоя будут зави-

сеть от радиуса частицы и интенсивности падающей световой волны.

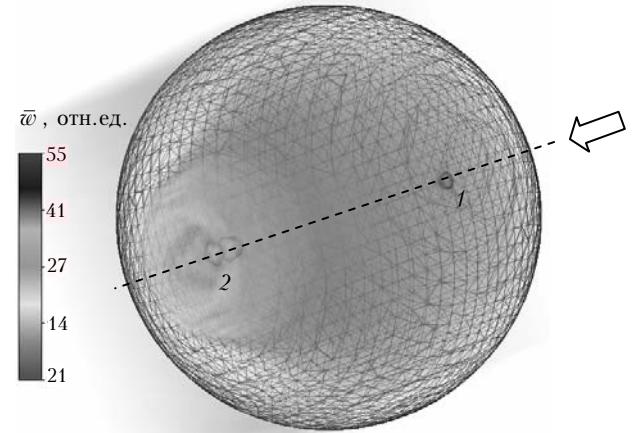


Рис. 5. Пространственное распределение нормированной плотности энергии оптического поля и плазменные очаги (показаны цифрами) внутри водной капли, освещенной фемтосекундным лазерным импульсом. Направление падения излучения показано стрелкой

Средний радиус плазменных зон, локализованных в «горячих» точках освещенной  $r_{e1}$  и теневой  $r_{e2}$  частей капли, определим исходя из пространственного распределения концентрации свободных электронов плазмы  $\bar{\rho}_e(\mathbf{r}, t)$ , сформировавшегося к моменту времени  $t$ :

$$r_{e12}(t) = \left[ \frac{1}{\int_{V_{e1e2}} \bar{\rho}_e(\mathbf{r}, t) d\mathbf{r}} \int_{V_{e1e2}} \bar{\rho}_e(\mathbf{r}, t) |\mathbf{r} - \mathbf{r}_{e12}|^2 d\mathbf{r} \right]^{1/2}.$$

Здесь

$$\mathbf{r}_{e12}(t) = \frac{1}{\int_{V_{e1e2}} \bar{\rho}_e(\mathbf{r}, t) d\mathbf{r}} \int_{V_{e1e2}} \bar{\rho}_e(\mathbf{r}, t) \mathbf{r} d\mathbf{r}$$

— радиус-вектор центра тяжести распределения  $\bar{\rho}_e(\mathbf{r})$  в каждой из полусфер, а интегрирование проводится отдельно по их объемам.

Графики зависимостей относительных эффективных объемов плазмообразования  $\bar{V}_{e12} = r_{e12}^3(t)/a_0^3$ , сформировавшихся в водных каплях к моменту времени  $t = 1$  пс в поле фемтосекундного лазерного импульса, при варьировании размера частиц  $a_0$  и интенсивности излучения  $I_0$  приведены на рис. 6.

Расчет проведен для воды при следующих значениях величин:

$$l = 5, \quad v_{mpa} = 2,51 \cdot 10^{-48} \text{ м}^7 \cdot \text{с}^4 / \text{Дж}^5, \\ v_{cas} = 1,93 \cdot 10^{-4} \text{ м}^2 / \text{Дж} [29], \quad t_p = 10^{-13} \text{ с} \quad \lambda_0 = 800 \text{ нм}.$$

Считалось, что образующаяся в период действия лазерного импульса плазма не оказывает обратного влияния на пространственно-временное распределение электромагнитного поля в частице.

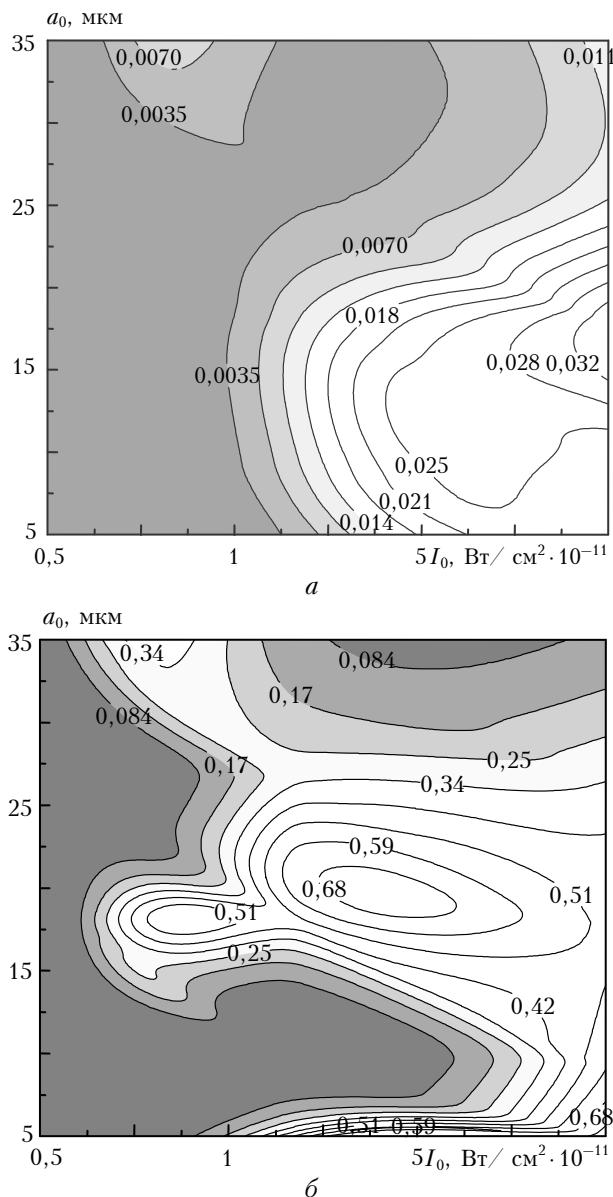


Рис. 6. Линии равных уровней эффективных объемов плазмы пробоя  $\bar{V}_{e1}$  (а) и  $\bar{V}_{e2}$  (б) (в %) в зависимости от радиуса водных капель  $a_0$  и интенсивности падающего излучения  $I_0$

Из анализа представленных рисунков видно, что при прочих равных условиях эффективный объем зоны плазмообразования в задней (теневой) полусфере капли всегда больше, чем в передней (освещенной). Кроме того, видна достаточно устойчивая тенденция к увеличению объемов  $V_{e12}$  с ростом интенсивности облучения. При этом зависимость от радиуса капли немонотонная, объемы плазмообразования максимальны в диапазоне размеров  $a_0 = 10 \div 20$  мкм. Наибольшие значения эффективных объемов, полученные для рассмотренного диапазона изменения величин, составляют примерно 1% относительно всего объема капли.

Столь малые значения эффективного объема плазменных областей свидетельствуют об их чрез-

вычайно высокой пространственной локализации внутри частицы, что является характерной особенностью фемтосекундной плазмы, т.е. плазмы, образовавшейся в веществе под воздействием высокоинтенсивного фемтосекундного лазерного излучения. Сравнивая между собой два механизма, приводящих к росту  $\rho_e$ , а именно многофотонную и каскадную ионизацию молекул вещества, видим, что первый из них при ультракоротком лазерном облучении является преобладающим и дает первоначальный прирост электронной концентрации в воде до величин  $\sim 10^{20} \div 10^{23}$  м<sup>-3</sup>. В это же время в поле наносекундного лазерного импульса многофотонная ионизация успевает довести концентрацию электронов только до границы  $\sim 10^{16} \div 10^{18}$  м<sup>-3</sup> [26], а дальше развивается лавина. Поскольку при МФИ скорость увеличения плотности плазмы характеризуется степенной зависимостью от интенсивности излучения:  $d\rho_e/dt \propto I^l$ , а каскадный механизм дает лишь первую степень:  $d\rho_e/dt \propto I$ , то и пространственная форма очагов пробоя жидкости фемтосекундным излучением имеет более узкий профиль, чем в поле длинного лазерного импульса.

В дальнейшем будет показано, что пространственное распределение концентрации электронов внутри водной капли определяет поле избыточного давления жидкости, реализующееся в результате диссипации плазмы после ее облучения фемтосекундным лазерным импульсом. Следовательно, можно заключить, что области повышенного давления, являющиеся центрами гидродинамического возмущения, расположены на главном диаметре сферической частицы, недалеко от ее поверхности. Они имеют относительно небольшие размеры и резко очерченные границы. В теневой полусфере капли очаг взрыва, как правило, находится ближе к центру, чем в освещенной полусфере, и характеризуется большим пиковым давлением и большим геометрическим размером. Это обуславливает наблюдающуюся в экспериментах по фемтосекундному взрыву частиц асимметрию в кинетике разлета продуктов разрушения частицы с преобладанием выбросов из теневой зоны по направлению действия лазерного излучения [2].

1. Courvoisier F., Boutou V., Favre C., Hill S.C., Wolf J.-P. Plasma formation dynamics within a water microdroplet on femtosecond time scales // Opt. Lett. 2003. V. 28. N 3. P. 206–208.
2. Lindinger A., Hagen J., Socaciu L.D., Bernhardt T.M., Wöste L., Duft D., Leisner T. Time-resolved explosion dynamics of H<sub>2</sub>O droplets induced by femtosecond laser pulses // Appl. Opt. 2004. V. 43. N 27. P. 5263–5269.
3. Zuev V.E., Zemlyanov A.A., Kopytin Yu.D., Kuzikovskii A.V. High-power laser radiation in atmospheric aerosols. Holland, Dordrecht: D. Reidel Publ. Corp., 1984. 291 p.
4. Геинц Ю.Э., Землянов А.А., Копытин Ю.Д. Нелинейная оптика атмосферы. Л.: Гидрометеоиздат, 1989. 256 с.
5. Геинц Ю.Э., Землянов А.А., Зуев В.Е., Кабанов А.М., Погодаев В.А. Нелинейная оптика атмо-

- сферного аэрозоля. Новосибирск: Изд-во СО РАН, 1999. 260 с.
6. Кузиковский А.В. Динамика сферической частицы в мощном оптическом поле // Изв. вузов. Физ. 1970. № 5. С. 89–94.
  7. Кузиковский А.В., Погодаев В.А., Хмелевцов С.С. Испарение водной капли под действием светового импульса // Инж.-физ. ж. 1971. Т. 20. № 1. С. 21–25.
  8. Погодаев В.А., Букатый В.И., Хмелевцов С.С., Чистякова Л.К. Динамика взрывного испарения водных капель под действием оптического излучения // Квант. электрон. 1971. № 4. С. 128–130.
  9. Баринов В.В., Сорокин С.А. Взрывы водных капель под действием оптического излучения // Квант. электрон. 1973. № 2. С. 5–11.
  10. Kafalas P., Ferdinand A.P. Fog droplet vaporization and fragmentation by 10,6 μm laser pulse // Appl. Opt. 1973. V. 12. N 1. P. 29–33.
  11. Kafalas P., Herrman I. Dynamics and energetics of the explosive vaporization of fog droplet by 10,6 μm laser pulse // Appl. Opt. 1973. V. 12. N 4. P. 772–775.
  12. Колосов М.А., Рудаев В.К., Соколов А.В., Стрелков Г.М. Экспериментальное изучение воздействия интенсивного ИК-излучения на крупные капли воды // Радиотехн. и электрон. 1974. Т. 19. № 1. С. 45–49.
  13. Коровин В.Я., Иванов Е.В. Экспериментальное исследование воздействия излучения CO<sub>2</sub>-лазера на капли воды // III Всесоюзн. симпоз. по распространению лазерного излучения в атмосфере: Тезисы докл. Томск: ИОА СО АН СССР, 1975. С. 93–94.
  14. Бункин Ф.В. Новая область лазерной физики – опто-термодинамика // Письма в ЖЭТФ. 1974. Т. 19. Вып. 5. С. 302–305.
  15. Мартынюк М.М. Фазовый взрыв метастабильной жидкости // Физ. горения и взрыва. 1977. Т. 13. № 2. С. 213–229.
  16. Землянов А.А., Кузиковский А.В., Погодаев В.А., Чистякова Л.К. Микрочастица в интенсивном оптическом поле // Проблемы оптики атмосферы. Новосибирск: Наука, 1982. С. 3–28.
  17. Lorazo P., Lewis L.J., Meunier M. Short-pulse laser ablation of solids: From phase explosion to fragmentation // Phys. Rev. Lett. 2003. V. 91. N 22. P. 225502-1–225502-4.
  18. Perez D., Lewis L.J. Thermodynamic evolution of materials during laser ablation under pico and femtosecond pulses // Appl. Phys. A. 2004. V. 79. N 4–6. P. 987–990.
  19. Carls J.C., Brock J.R. Explosion of a water droplet by pulsed laser heating // Aerosol Sci. and Technol. 1987. V. 7. N 1. P. 79–90.
  20. Carella J.P., Autric M., Dufresne D., Vigliano P., Bournot Ph. Pulsed CO<sub>2</sub> laser-induced effects on water droplets // AIAA J. 1988. V. 26. N 1. P. 65–71.
  21. Гейнц Ю.Э., Землянов А.А. Взрывное вскипание крупных водных капель под действием интенсивного лазерного излучения // Оптика атмосф. и океана. 1993. Т. 6. № 11. С. 1426–1434.
  22. Лоскутов В.С., Стрелков Г.М. О взрывном испарении водяной капли под действием лазерных импульсов на  $\lambda = 1,06$  и 2,36 мкм // Оптика и спектроскопия. 1982. Т. 53. Вып. 5. С. 888–892.
  23. Zeng Y., Lee C. F. Modeling droplet breakup processes under micro-explosion conditions // Proc. Combustion Inst. 2007. V. 31. N 2. P. 2185–2193.
  24. Райзер Ю.П. Физика газового разряда. М.: Наука, 1987. 592 с.
  25. Sacchi C.A. Laser-induced electric breakdown in water // J. Opt. Soc. Amer. B. 1991. V. 8. Iss. 2. P. 337–345.
  26. Vogel A., Noack J., Huttman G., Paltauf G. Mechanisms of femtosecond laser nanosurgery of cells and tissues // Appl. Phys. B. 2005. V. 81. N 8. P. 1015–1047.
  27. Vogel A., Noack J., Nahen K., Theisen D., Bush S., Parlitz U., Hammer D.X., Noodjin G.D., Rockwell B.A., Birngruber R. Energy balance of optical breakdown in water at nanosecond to femtosecond time scales // Appl. Phys. B. 1999. V. 68. N 2. P. 271–280.
  28. Sun Q., Jiang H., Liu Y., Wu Z., Yang H., Gong Q. Measurement of the collision time of dense electronic plasma induced by a femtosecond laser in fused silica // Opt. Lett. 2005. V. 30. Iss. 3. P. 320–322.
  29. Землянов А.А., Гейнц Ю.Э. Пороги оптического пробоя прозрачной микрочастицы вnano-, пико- и фемтосекундном диапазонах длительностей лазерных импульсов // Оптика атмосф. и океана. 2004. Т. 17. № 4. С. 306–311.
  30. Fan C.H., Sun J., Longtin J.P. Breakdown threshold and localized electron density in water induced by ultrashort laser pulses // J. Appl. Phys. 2002. V. 91. N 4. P. 2530–2536.
  31. Rethfeld B. Unified model for the free-electron avalanche in laser-irradiated dielectrics // Phys. Rev. Lett. 2004. V. 92. P. 187401–1–4.
  32. Келдыш Л.В. Ионизация в поле сильной электромагнитной волны // Ж. эксперим. и теор. физ. 1964. Т. 47. С. 1945–1956.
  33. Van der Hart H.W., Burnett K. Recollision model for double ionization of atoms in strong laser fields // Phys. Rev. A. 2000. V. 62. P. 013407–1–10.
  34. Liu W., Luo Q., Chin S.L. Competition between multiphoton/tunnel ionization and filamentation induced by powerful femtosecond laser pulses in air // Chin. Opt. Lett. 2003. V. 1. N 1. P. 56–59.
  35. Пришивалко А.П. Оптические и тепловые поля внутри светорассеивающих частиц. Минск: Наука и техника, 1983. 190 с.
  36. Землянов А.А., Гейнц Ю.Э. Внутренняя и внешняя фокусировка оптического поля фемтосекундного импульса при дифракции на сферической частице // Оптика атмосф. и океана. 2003. Т. 16. № 10. С. 898–902.
  37. Shifrin K.S., Zolotov I.G. Nonstationary scattering of electromagnetic pulses by spherical particles // Appl. Opt. 1995. V. 34. N 3. P. 552–558.

#### Geints Yu.E., Zemlyanov A.A. Phase explosion of a water droplet by a femtosecond laser pulse:

##### I. Dynamics of optical breakdown.

The physical model of phase explosion of optically transparent water droplet irradiated by intensive laser radiation of femtosecond duration is presented. The specific regime of droplet explosion caused by optical breakdown of a liquid in internal areas of a micron-sized particle is theoretically investigated. The results of numerical calculations of the plasma dynamics in a droplet produced by various intensity of laser radiation, and also estimations of position and the effective size of breakdown areas in a particle are presented.