

Многофотонный оптический пробой в воде в поле пикосекундных лазерных импульсов

В.А.Бабенко, Н.Ф.Бункин, Н.В.Суязов, А.А.Сычев

Впервые экспериментально исследована многофотонная ионизация молекул жидкой воды пикосекундными лазерными импульсами; при этом образец воды предварительно подвергался глубокой очистке с помощью «промывки» гелием. Показано, что в этом случае плазменная область занимает практически всю фокальную область внутри образца, т. е. можно говорить о полной экранировке падающего лазерного излучения. Измерены пороги возбуждения оптического пробоя в воде, инициированного по затравочному механизму (затравками являются кластеры из нанопузырей растворенного газа) и по механизму многофотонной ионизации ее молекул. Показано, что гелиевая промывка позволяет существенно повысить порог оптического пробоя для пикосекундных лазерных импульсов. Измерены спектры вспышек оптического пробоя воды, возбужденного по двум указанным механизмам. Впервые получено, что при многофотонной ионизации молекул воды импульсами указанной длительности возникают узкие спектральные линии излучения плазмы. Эти линии можно связать с электрон-вибронными переходами молекул кислорода.

Ключевые слова: оптический пробой, многофотонная ионизация.

1. Введение

Оптический пробой в свободной от поглощающих примесей жидкости может быть обусловлен различными механизмами, среди которых следует выделить два основных. Первый механизм связан с процессом многофотонной ионизации молекул жидкости в интенсивном световом поле (см. обзор [1], где приведена теоретическая модель этого пробоя). Характерным признаком такого пробоя является полная экранировка лазерного излучения в каустике линзы. Указанный эффект возникает вследствие того, что каждая молекула жидкости в каустике ионизована и вся каустика заполнена плазмой. В соответствии с теоретическими представлениями, изложенными в [1], пробой по этому механизму должен носить регулярный характер при достижении порога многофотонной ионизации по интенсивности лазерного излучения; для импульсов длительностью 10 пс – 10 нс порог, по оценкам, составляет порядка 10^{11} Вт/см².

Второй механизм оптического пробоя связан с наличием в жидкости затравочных (как правило, твердотельных) частиц, которые либо эффективно поглощают лазерное излучение (см. обзор [2] и цитируемые там работы по этой тематике), либо достаточно легко ионизируются в поле лазерной накачки, см. [1]. Порог оптического пробоя по второму механизму составляет порядка 10^9 – 10^{10} Вт/см², носит вероятностный (спорадический) характер и

определяется попаданием затравочной частицы внутрь каустики линзы в момент воздействия лазерного импульса. Поскольку в этом случае плазма пробоя локализована на затравочных частицах, эффект экранировки отсутствует. При достаточно высокой плотности затравочных частиц и длинных каустиках вдоль трассы лазерного пучка может возникнуть несколько плазменных вспышек: пробой приобретает множественный (по числу вспышек) характер. Отметим, что под затравочными частицами в данном случае следует понимать внешнюю примесь. Казалось бы, вследствие глубокой очистки жидкости, включающей дистилляцию и фильтрацию, затравочный механизм оптического пробоя должен быть подавлен. Однако этого не происходит: спорадичность пробоя и отсутствие полной экранировки наблюдаются и в глубоко очищенных жидкостях.

В этой связи был предложен механизм пробоя на затравках, спонтанно возникающих внутри самой жидкости. Такими затравками являются бабстонные кластеры. Это стабильные частицы, состоящие из отдельных нанопузырей растворенного газа – бабстонов, которые предсказаны теоретически в работах [3, 4]. Центрами образования бабстонов служат газовые частицы, локально искажающие матрицу молекул жидкости, т.е. по сути дела являющиеся дефектами ее структуры. Бабстон механически и диффузионно устойчив благодаря адсорбции ионов определенного знака на его поверхности, что обуславливает баланс сил поверхностного натяжения и сил кулоновского расталкивания адсорбированных ионов. В работе [4] рассмотрен механизм коагуляции бабстонов и образования бабстонных кластеров; существование бабстонных кластеров в глубоко очищенной воде, содержащей следы ионной примеси, подтверждается в экспериментах по рассеянию лазерного излучения [5–7].

Экспериментальному исследованию оптического пробоя на бабстонных кластерах посвящены работы [8–10]. Количественная теория оптического пробоя, зат-

В.А.Бабенко, А.А.Сычев. Физический институт им. П.Н.Лебедева РАН, Россия, 119991 Москва, Ленинский просп., 53; e-mail: babenko@sci.lebedev.ru, sychev4@yandex.ru

Н.Ф.Бункин, Н.В.Суязов. Научный центр волновых исследований Института общей физики им. А.М.Прохорова РАН, Россия, 119991 Москва, ул. Вавилова, 38; e-mail: nbunkin@kapella.gpi.ru, nvsns@orc.ru

Поступила в редакцию 8 декабря 2008 г., после доработки – 22 мая 2009 г.

равками которого служат бабстонные кластеры, приведена в [11]. Качественно этот процесс происходит следующим образом. Предположим вначале, что каждый бабстон содержит первичный электрон (отметим, что проблема появления первичного электрона существует всегда, вне контекста рассматриваемой задачи, поэтому этот вопрос мы здесь не обсуждаем). Механизм разогрева первичного электрона в поле падающей оптической волны в газовой среде обусловлен дефазировкой его вынужденных колебаний при столкновениях с молекулами газа (см., напр., [12]). Специфика бабстонной системы по сравнению с обычной газовой средой заключается в том, что длина свободного пробега электрона в газе при нормальных условиях ~ 1 мкм, в то время как размер бабстона ~ 100 нм. Следовательно, электрон внутри бабстона разогревается благодаря столкновениям с его стенками. В процессе таких столкновений у электрона есть две возможности. Первая возможность – электрон упруго отскакивает от жидкой стенки, вторая – электрон «прилипает» к жидкой стенке, что обуславливает механизм убьели электронов. Именно благодаря этому механизму оптический пробой на бабстонных кластерах носит пороговый характер.

Отметим, что те же самые процессы протекают и в других бабстонах, составляющих бабстонный кластер; по нашим оценкам, которые подтверждаются экспериментами [6, 7], количество бабстонов в кластере ~ 1000 . При достижении электроном энергии, которая сравнима с потенциалом поверхностной ионизации молекул жидкости, составляющей стенки бабстона (для воды мы использовали оценку 6.5 эВ [13, 14], что все-таки соответствует объемной ионизации, потенциал поверхностной ионизации должен быть еще меньше), происходит лавинная ионизация атомов на стенках бабстона. При этом внутри отдельных бабстонов возрастают электронная температура и давление, что приводит к разрушению жидких стенок бабстонов. В результате бабстонный кластер «схлопывается» (коалесцирует) с образованием парового пузыря микронного размера. Этот процесс был назван вынужденной оптической коалесценцией; он был теоретически описан в [11] и впервые экспериментально изучен в нашей предыдущей работе [15].

Длительность вынужденной оптической коалесценции можно оценить как $\tau = D/v$, где D – толщина оболочки (порядка нескольких ангстрем) между двумя соседними бабстонами, v – скорость звука в жидкости. Взяв для воды $D = 10^{-7}$ см, $v = 1.5 \times 10^5$ см/с, имеем $\tau \sim 10^{-12}$ с, т. е. для лазерного импульса длительностью более 10 пс коалесценция бабстонных кластеров происходит на его фронте. После завершения коалесценции электроны продолжают раскачиваться электрическим полем световой волны внутри парового пузыря микронного размера, заполненного массивными частицами – комплексами из молекул, составляющих жидкую стенку бабстонного кластера. В процессе раскачки электроны вновь испытывают столкновения, но уже не с внутренней поверхностью образовавшегося пузыря, а с молекулярными комплексами. Такие столкновения будут неупругими: электроны будут либо прилипать к этим частицам, либо от них отскакивать, но всегда передавать свою кинетическую энергию молекулам стенки бабстонного кластера и эффективно замедляться, что должно сопровождаться вспышкой тормозного излучения.

В работе [9] был измерен спектр излучения плазмы

при оптическом пробое воды, содержащей бабстонные кластеры, при обстреле импульсами наносекундной длительности на длине волны $\lambda = 1.064$ мкм. В этих экспериментах был использован призменный спектрограф ИСП-30, оптический пробой возбуждался при обстреле образца в импульсно-периодическом режиме с частотой следования импульсов 1 Гц, и излучение вспышки фокусировалось на щель спектрографа. Сами спектры записывались на фотопластинку; поскольку излучение от каждой отдельной вспышки пробоя было очень слабым, время экспозиции для регистрации одной спектрограммы составляло несколько часов. Было получено, что спектр оптического пробоя сплошной и имеет максимум на длине волны примерно 450 нм. Эти результаты объясняются в рамках модели тормозного излучения.

Очевидно, что содержание бабстонных кластеров в жидкости должно резко уменьшаться после ее тщательной дегазации и деионизации. В работе [10] был обоснован и экспериментально реализован метод глубокого обезгаживания образцов предварительно деионизованной и очищенной от твердотельных примесей воды с их последующей «промывкой» гелием. В результате такой обработки действительно удается существенно уменьшить концентрацию бабстонных кластеров. В нашей предыдущей работе [15] показано, что обработанная по этой методике вода обладает повышенной оптической прочностью, что позволяет получать в ее образцах рекордно высокие световые интенсивности и наблюдать ряд нелинейно-оптических явлений. Так, например, при интенсивности излучения $\sim 10^{13}$ Вт/см² удалось реализовать режим оптического пробоя, при котором определенный участок каустики заполнен плазмой; за этим участком излучение отсутствует, т. е. наблюдается эффект экранировки. Поскольку в соответствии с оценками, сделанными в [1], теоретический порог пробоя по механизму многофотонной ионизации значительно меньше интенсивностей, реализуемых в этом эксперименте, в работе [15] был сделан вывод о том, что мы экспериментально реализовали оптический пробой именно по механизму многофотонной ионизации. Взяв для потенциала объемной ионизации воды значение 6.5 эВ, имеем для $\lambda = 1.064$ мкм оценку для числа фотонов $N \approx 5 - 6$. Насколько нам известно из литературы, это первое достоверное наблюдение оптического пробоя прозрачной жидкости в пикосекундном диапазоне длительностей импульса, при котором возникает эффект экранировки. В описанном ниже эксперименте мы приводим новые данные по оптическому пробое воды в режиме многофотонной ионизации ее молекул.

2. Порог оптического пробоя в воде

Настоящая работа посвящена исследованию оптического пробоя воды в поле пикосекундных лазерных импульсов. Экспериментальная установка схематически представлена на рис.1. Для исследования использовались одиночные импульсы Nd³⁺:YAG-лазера длительностью ~ 20 пс и энергией до нескольких миллиджоулей. Установка для генерации таких импульсов описана в работах [15, 16].

Максимальная выходная энергия одиночного импульса излучения после его выделения из цуга импульсов и последующего двухкаскадного усиления составляла 10 мДж, спектральная ширина излучения была порядка

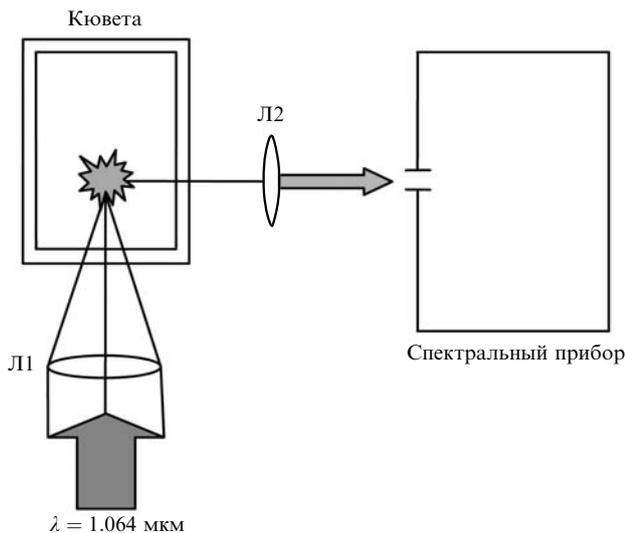


Рис.1. Схема регистрации оптического пробоя в кювете с водой; Л1, Л2 – линзы.

1 см^{-1} . Диаметр выходного пучка равнялся 1 мм . Это излучение линзой Л1 с фокусным расстоянием F_1 направлялось на кювету с водой. Рассеянное под углом 90° излучение регистрировалось миниспектрометром с волоконно-оптическим входом, подробно описанным в [15].

В работе исследовалась очищенная от твердотельных микровключений вода разного состава. Во-первых, химически чистая вода (вода-I), не содержащая газовой фазы и хранившаяся в специальных ампулах, которые обеспечивают отсутствие контакта с атмосферным воздухом, и, во-вторых, чистая вода, но насыщенная воздухом (вода-II). Эти образцы воды отличаются друг от друга по отношению к рассеянию зондирующего излучения на длине волны 0.63 мкм : наибольшим рассеянием обладает вода-II. Уровень рассеяния света в ней превышает таковой в воде-I приблизительно в 20 раз. Причиной дополнительного рассеяния является присутствие в воде-II бабстонных кластеров, что подтверждают данные экспериментов по рассеянию света на бабстонных кластерах (см. [5–7]).

Исследования воды-I и воды-II проводились по двум направлениям: изучалась оптическая прочность воды и определялись спектральные характеристики свечения вспышки оптического пробоя в воде. В настоящее время существуют два метода определения оптического пробоя в жидкостях, описанных в [1]. Первый метод основан на исследовании рассеяния света на возникающих в воде при пробое газовых пузырках. Этот метод обычно используется при изучении оптического пробоя лазерными импульсами длительностью короче 10 пс . Для более длинных импульсов применяется метод определения порога оптического пробоя, основанный на регистрации световой вспышки. В настоящей работе мы регистрировали оптический пробой по сигналу рассеяния падающего лазерного излучения (т. е. на $\lambda = 1.064 \text{ мкм}$) из каустики под углом 90° . На рис.2 показана зависимость энергии I_s сигнала рассеяния падающего лазерного излучения от энергии W этого излучения; само падающее излучение фокусировалось линзой с фокусным расстоянием $F_1 = 70 \text{ мм}$ в кювету с водой-I либо с водой-II.

Из сравнения графиков на рис.2 следует, что порог пробоя существенно зависит от концентрации газа в воде. Для воды-II, содержащей воздух и, как следствие,

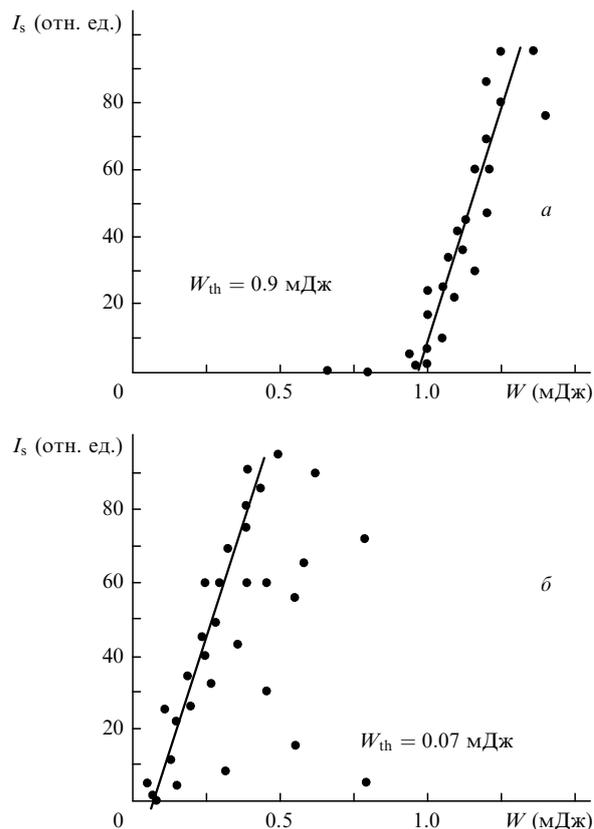


Рис.2. Зависимости энергии I_s рассеянного под углом 90° к оптической оси падающего лазерного излучения от энергии импульса для воды-I (дегазированной) (а) и воды-II (с наличием бабстонных кластеров) (б).

большое количество бабстонных кластеров, порог оптического пробоя по энергии лазерного импульса оказался равным $W_{th} = 0.07 \text{ мДж}$. В то же время, для воды-I, имеющей значительно меньшее число бабстонных кластеров, порог оптического пробоя равен $W_{th} = 0.9 \text{ мДж}$, т. е. оптически более прочной является вода-I с меньшим содержанием растворенного газа. В обоих случаях при энергии импульса, превышающей пороговое значение W_{th} , визуально наблюдалась вспышка пробоя. Полученная на рис.2,б зависимость свидетельствует о том, что оптический пробой в воде носит затравочный характер. Отметим также, что оптический пробой в воде-I можно было охарактеризовать полной экранировкой возбуждающего излучения за плазменной вспышкой. Этот эффект подтверждался практически полным отсутствием сигнала на $\lambda = 1.064 \text{ мкм}$ за каустикой по ходу падающего лазерного импульса (соответствующий датчик на рис.1 не показан). В то же время, при обстреле воды-II эффекта экранировки не было: сигнал за каустикой ослаблялся незначительно.

Отметим, что при измерениях порога оптического пробоя никак не учтен эффект самофокусировки в отличие от нашей предыдущей работы [13], где при исследовании различных нелинейно-оптических эффектов в воде-I самофокусировка была одним из ключевых. В настоящее время нами проводятся измерения пороговой интенсивности оптического пробоя в воде-I с использованием линз с разным фокусным расстоянием. Мы надеемся, что в этих экспериментах нам удастся выделить роль самофокусировки при возбуждении оптического пробоя в воде-I, хотя интуиция подсказывает, что самофокуси-

ровка в данном случае может приводить к слегка заниженным данным по сравнению с измеренными значениями пороговой интенсивности. В то же время, при пробое в воде-II самофокусировка не должна сказываться. Действительно, в случае воды-II каустика линзы содержит кластеры из бабстонов, которые должны коагулировать на фронте лазерного импульса с образованием парогазовых пузырей микронного размера. Это, очевидно, приводит к тому, что лазерный импульс испытывает дополнительное рассеяние из каустики уже на своем фронте, т.е. развитие самофокусировки в этом случае затруднено.

3. Спектральные особенности оптического пробоя в воде

Исследование спектров вспышки оптического пробоя также проводилось по схеме, показанной на рис.1. Фокусировка излучения в кювету осуществлялась линзой Л1 с фокусным расстоянием $F_1 = 17$ мм. Излучение вспышки пробоя линзой Л2 проецировалось на входную щель миниспектрометра, позволявшего регистрировать спектр в диапазоне длин волн от 180 до 1100 нм.

Исследование оптического пробоя в воде проводилось для воды-I и воды-II. Спектры вспышек пробоя показаны на рис.3. Обращает на себя внимание возникно-

вление интенсивных линий свечения при пробое воды-I. Отметим, что эти спектры характеризовались, как правило, только одной узкой линией (ее ширина по полувысоте составляла примерно 50 нм). Случаи возникновения двух и более пиков были крайне редки. Отметим также, что эффект самофокусировки, который наверняка присутствует при оптическом пробое в воде-I, не должен проявляться на спектральных характеристиках вспышек.

В случае пробоя воды-II, содержащей воздух в виде бабстонных кластеров, такого интенсивного излучения в УФ области спектра не наблюдалось. При этом, как показали дальнейшие исследования, спектр вспышки был практически сплошным с максимумом в синей области спектра на $\lambda \approx 450$ нм. Сплошной характер спектра в этом случае может быть обусловлен тормозным излучением электронов в плазме оптического пробоя на бабстонных кластерах, в согласии с результатами работы [9]. Уровень спектральной яркости тормозного излучения в одиночном импульсе был недостаточен для регистрации с помощью используемого нами миниспектрометра, что и продемонстрировано на рис. 3,г. Напомним, что при одних и тех же условиях фокусировки энергетический порог пробоя воды-II примерно в 10 раз меньше порога пробоя воды-I. Поскольку этот процесс сопровождается разогревом каустики и тепловой дефокусировкой излучения (для воды коэффициент преломления убывает с ростом температуры), оказывается, что в случае воды-II интенсивность излучения в каустике линзы всегда ниже, чем при пробое воды-I, несмотря на то, что вода-II и вода-I обстреливались импульсами с одинаковыми энергиями. С этим, по-видимому, связано отсутствие изолированных спектральных максимумов при пробое воды-II.

На рис.4 приведена диаграмма, показывающая положения спектральных максимумов, наблюдаемых при пробое воды-I. Данные были получены по результатам двенадцати вспышек пробоя.

В табл.1 приведены результаты эксперимента по измерению спектров при пробое воды-I, а также взятые из [17] границы спектральных полос поглощения молекулярных и ионных комплексов с указанием соответствующих переходов между электронными термами. Мы видим, что все зарегистрированные нами при многофотонном пробое воды-I спектральные пики в принципе могут быть связаны с электронными переходами указанных в третьем столбце табл.1 частиц. Очевидно, что в данном случае не может быть такого же хорошего соответствия между экспериментальными результатами и табличными данными, как при пробое атмосферного воздуха. Преобладание той или иной области указанных в третьем столбце табл.1 спектральных полос зависит от многих факторов, в том числе от кинетики образования указанных комплексов в жидкой воде, распределения

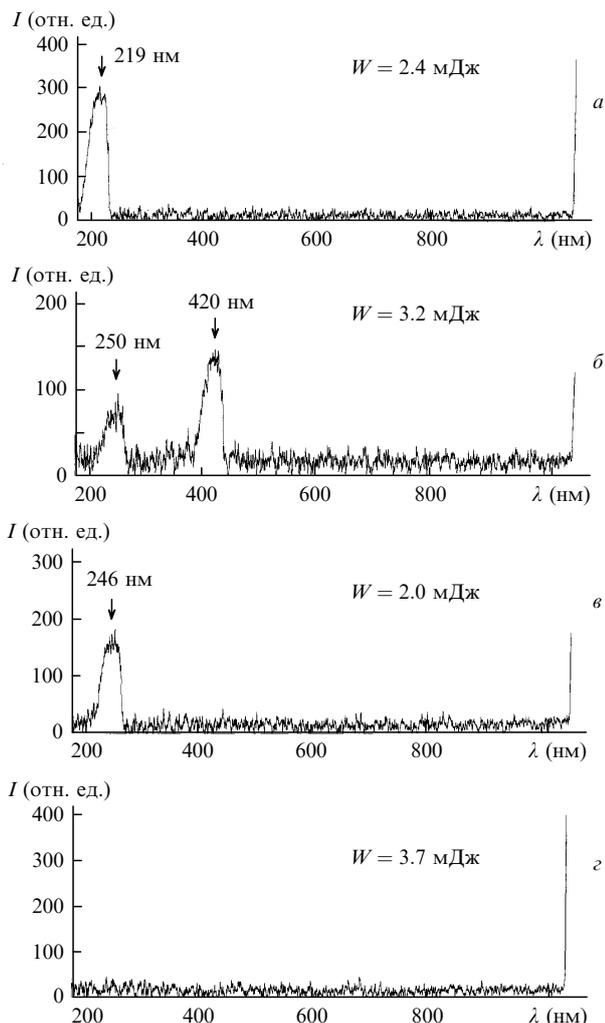


Рис.3. Спектры отдельных вспышек пробоя для воды-I (а-е) и воды-II (г) при различной энергии лазерного импульса.

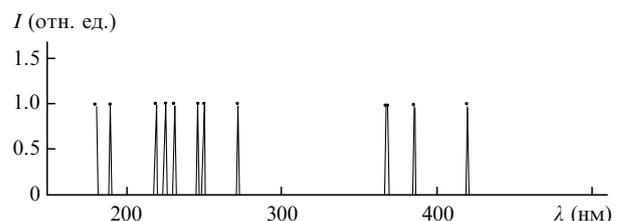


Рис.4. Диаграмма положений максимумов линий свечения вспышки при многофотонном пробое в воде-I.

Табл.1.

λ_{\max} (нм)	$\Delta\lambda$ (нм)	Обозначения спектральных полос поглощения молекулярных и ионных комплексов с указанием электронных термов
180, 190	175–535	O ₂ (полоса Шумана–Рунге), V ³ Σ _u ⁻ – X ³ Σ _u ⁻
	194–653	O ₂ ⁺ , A ² Π _u – X ² Π _g
219, 225, 231, 246, 250, 272	175–535	O ₂ (полоса Шумана–Рунге), V ³ Σ _u ⁻ – X ³ Σ _u ⁻
	194–653	O ₂ ⁺ , A ² Π _u – X ² Π _g
	260–410	ОН, A ² Σ ⁻ – X ² Π
368, 369, 386	260–410	ОН, A ² Σ ⁻ – X ² Π
	254–479	O ₂ (полоса Герцберга II), C ¹ Σ _u ⁻ – X ³ Σ _g ⁻
420	421–566	ОН, V ² Σ ⁺ – A ² Σ
	370–438	O ₂ (полоса Герцберга III), C ³ Δ _u – a ¹ Δ _g

Примечание: погрешность определения λ_{\max} составляет ± 1 нм.

населенностей колебательных подуровней возбужденного электронного состояния (эффективной температуры) и вероятностей переходов между отдельными колебательными подуровнями данного электронного состояния. При этом неконтролируемым фактором в случае оптического пробоя воды по многофотонному механизму ионизации является температура плазменной области. Это, очевидно, связано с тем фактом, что на времена порядка 20 пс режим теплообмена между плазменной областью и окружающей жидкостью не устанавливается. Отсюда следует, что распределения заселенностей колебательных подуровней возбужденного электронного состояния от импульса к импульсу не воспроизводятся; здесь также следует учитывать флуктуации энергии в импульсах. Эти причины объясняют отсутствие повторяемости результатов спектральных измерений. В то же время, при пробое атмосферного воздуха теплообменом в нашем диапазоне длительностей импульсов можно пренебречь и, кроме того, температура плазмы в таком случае существенно выше, чем при пробое воды. С этим, по-видимому, и связана хорошая воспроизводимость результатов при пробое атмосферного воздуха и их соответствие табличным данным.

4. Заключение

Оптический пробой в поле пикосекундных лазерных импульсов был исследован в обработанных по методике гелиевой промывки и в необработанных образцах воды. Показано, что обработанные образцы обладают существенно более высокой прочностью по отношению к оптическому пробое. Кроме того, оптический пробой в обработанных образцах сопровождается полной экранировкой падающего излучения. Наконец, в спектрах свечения плазмы в обработанных образцах впервые обнаружены характеристические спектральные линии, которые можно связать с переходами в электронных термах нейтральных и ионизованных молекул кислорода, а также радикалов ОН.

Работа поддержана РФФИ (гранты № 06-02-16926-а, 08-02-90252-Узб-а, 06-02-16507-а) и грантом НШ-2099.2008.2).

- Kennedy P.K., Hammer X., Rockwell B.A. *Prog. Quantum Electron.*, **21**, 155 (1997).
- Лямшев Л.М. *УФН*, **135**, 637 (1981).
- Бункин Н.Ф., Бункин Ф.В. *ЖЭТФ*, **100**, 512 (1992).
- Бункин Н.Ф., Бункин Ф.В. *ЖЭТФ*, **123**, 828 (2003).
- Бункин Н.Ф., Суязов Н.В., Ципенюк Д.Ю. *Квантовая электроника*, **35**, 180 (2005).
- Бункин Н.Ф., Суязов Н.В., Шкирин А.В., Игнатьев П.С., Индукаев К.В. *Квантовая электроника*, **39**, 367 (2009).
- Бункин Н.Ф., Игнатьев П.С., Индукаев К.В., Суязов Н.В., Шкирин А.В. *ЖЭТФ*, **135**, 917 (2009).
- Бункин Н.Ф., Лобеев А.В. *Квантовая электроника*, **21**, 319 (1994).
- Bunkin N.F., Lobeyev A.V., Mikhalevich V.G. *Phys. Vibr.*, **7**, 205 (1999).
- Бункин Н.Ф., Бакум С.И. *Квантовая электроника*, **36**, 117 (2006).
- Bunkin N.F., Bunkin F.V. *Laser Phys.*, **3**, 63 (1993).
- Райзер Ю.П. *Лазерная искра и распространение разрядов* (М.: Наука, 1974).
- Boyle J.W., Glormley J.A., Hockanadel C.T. *J. Phys. Chem.*, **73**, 2886 (1969).
- Grand D., Bernas A., Amouyal E. *Chem. Phys.*, **44**, 73 (1979).
- Бабенко В.А., Бункин Н.Ф., Суязов Н.В., Сычев А.А. *Квантовая электроника*, **37**, 804 (2007).
- Babenko V.A., Sychev A.A. *J. Rus. Laser Research*, **20**, 478 (1999).
- Кузнецова Л.А., Кузьменко Н.Е., Кузяков Ю.Е., Пластинин Ю.А. *Вероятности оптических переходов двухатомных молекул* (М.: Наука, 1980, с. 121–134).