

文章编号: 0258-7025(2008)10-1491-04

# 飞秒激光诱导水光学击穿的椭球体模型

王亚伟<sup>1</sup> 王立峰<sup>2\*</sup> 邓晓斌<sup>2</sup> 刘莹<sup>2</sup> 卜敏<sup>1</sup>

(江苏大学<sup>1</sup> 理学院,<sup>2</sup> 机械学院, 江苏 镇江 212013)

**摘要** 基于飞秒激光脉冲在焦点区域的成形特征和速率方程,通过对自由电子密度速率方程中电子扩散速率和雪崩速率的修正,提出了适用于飞秒激光脉冲诱导水光学击穿的椭球体(ETS)模型。采用四阶朗格-库塔(Runge-Kutta)方法对该模型进行了脉宽为 100 fs 和 300 fs 情况下的数值模拟。得到了光学击穿阈值以及击穿区域内不同时刻的电子分布,并且预测了焦点区域内不同位置处自由电子随时间的变化趋势。结果表明,用 ETS 模型计算出的水的击穿阈值较传统模型更好地与实验结果吻合。

**关键词** 激光物理;击穿阈值;Runge-Kutta 方法;飞秒激光;水

**中图分类号** TN 241;TN 249 **文献标识码** A **doi**: 10.3788/CJL20083510.1491

## Ellipsoidal Time and Space Model for Femtosecond Laser-Induced Optical Breakdown in Water

Wang Yawei<sup>1</sup> Wang Lifeng<sup>2</sup> Deng Xiaobin<sup>2</sup> Liu Ying<sup>2</sup> Bu Min<sup>1</sup>

(<sup>1</sup> Faculty of Science, <sup>2</sup> School of Mechanical Engineering, Jiangsu University, Zhenjiang, Jiangsu 212013, China)

**Abstract** Based on the shaping characteristic of femtosecond in the focal region and the free electron density rate equation, through modifying the electron diffusion rate and cascade ionization rate, the ellipsoidal time and space (ETS) model for femtosecond laser-induced optical breakdown in water was given. Theoretical breakdown thresholds calculated by ETS model with a Runge-Kutta method were presented under the condition of pulse durations of 100 fs and 300 fs. The optical breakdown thresholds and the electron distribution within the breakdown region at different times were given, and the change of free electrons with time at fixed positions within the region was predicted. Results show that the breakdown threshold of water induced by femtosecond laser using the ETS model is better agreement with experimental result than the classical models.

**Key words** laser physics; breakdown threshold; Runge-Kutta method; femtosecond laser; water

## 1 引 言

自 1960 年 Maiman 第一次报道激光辐射以来,就开始了激光与物质相互作用的研究,其中激光与气体及固体物质相互作用的机制研究起步较早。飞秒激光器的问世更加推进了激光与气体及固体相互作用的应用前景<sup>[1~3]</sup>。20 世纪 60 年代中期,激光技术在医学领域得到应用,考虑到大多数生物软组织和体液的含水量平均达到 85% 质量分数,有的甚至高达 98% 质量分数,此时,激光与固体相互作用模型或理论与实验结果明显不符。在之后诞生的染

料激光器中,激光在抽运染料过程中存在更多的激光对液态物质作用的问题<sup>[4]</sup>,因此,开始了激光与液体(尤其是水)相互作用的研究<sup>[5~10]</sup>。

激光诱导水的光学击穿现象<sup>[5~11]</sup>是激光与液体相互作用的一个主要方面。由于水和其他含水溶液是一种介于气体和固体间的无定形物质,在某一时刻水分子的聚集度具有较大的随机性,致使准自由电子局部势能产生随机涨落,为了研究方便,通常将水视为具有导带-价带的孤对无定形半导体<sup>[12]</sup>。1991 年, Kennedy<sup>[5]</sup> 将水作为孤对无定形半导体处

收稿日期:2008-04-09;收到修改稿日期:2008-06-23

基金项目:江苏省六大人才高峰基金(06-E-059)和江苏大学创新基金(04cx06)资助项目。

作者简介:王亚伟(1957—),男,江苏人,教授,博士生导师,主要从事光信息科学与技术的研究。

E-mail:jszjwyw@yahoo.com.cn

通信联系人。E-mail:wlf020109@163.com

理,结合 Bloembergen 的固体雪崩击穿模型和 Keldysh 的晶体中多光子电离击穿模型,提出水击穿的一阶模型。1999 年, Noack 等<sup>[7]</sup>对脉宽从 100 ns~100 fs 的高功率激光作用下自由电子的演化过程进行了数值模拟。2002 年, Fan 等<sup>[8]</sup>提出了一个新的飞秒击穿模型,有效地计算了包括时间和空间在内的击穿区域内的电子密度演化情况。2005 年, Vogel 等<sup>[9]</sup>修改了 Noack 等<sup>[7]</sup>模型焦点区域的形状。然而,国内关于激光诱导水光学击穿现象的研究相对较少<sup>[10]</sup>。最近,由于激光与液态物质相互作用理论和实验日渐完善与成熟,很多学者已经将这方面的研究成果应用于一些透明材料以及活的生物组织内<sup>[13,14]</sup>。

本文在前人研究的基础上,考虑到飞秒激光脉冲在焦点区域成形的特征,修正了自由电子密度速率方程中电子扩散速率和雪崩速率,提出了适用于飞秒激光脉冲诱导水光学击穿的椭球体(ETS)模型。应用该模型分别研究了脉宽为 100 fs 和 300 fs 的高功率激光脉冲作用下水中等离子体的形成,预测出焦点区域不同位置与不同时刻自由电子密度的分布情况。通过该模型的数值解确定出飞秒激光诱导的水击穿阈值,并与实验结果进行了比较和分析。

## 2 自由电子密度速率方程

为了确定发生光学击穿所需要的脉冲光强阈值,需要计算出激光脉冲作用下的自由电子密度演化情况。描述自由电子密度演化的速率方程为<sup>[7~10]</sup>

$$\frac{d\rho}{dt} = \left(\frac{d\rho}{dt}\right)_{\text{mp}} + \eta_{\text{casc}}\rho - \eta_{\text{diff}}\rho - \eta_{\text{rec}}\rho^2, \quad (1)$$

其中,方程右端的前两项描述的是多光子吸收 $(d\rho/dt)_{\text{mp}}$ 和雪崩电离 $(\eta_{\text{casc}}\rho)$ 生成的电子,后两项表示扩散到焦点区域外的电子损失 $(-\eta_{\text{diff}}\rho)$ 和电子的再结合损失 $(-\eta_{\text{rec}}\rho^2)$ 。雪崩电离速率 $\eta_{\text{casc}}$ 和扩散损失率 $\eta_{\text{diff}}$ 与已生成的自由电子数成正比,而再结合率 $\eta_{\text{rec}}$ 正比于 $\rho^2$ ,是因为它包含有两个带电粒子的相互作用。

## 3 ETS 模型

较为普通的模型都假设焦点区域是一个长为 $z_R$ (瑞利长度)、底面圆半径为 $w_0$ (真空中脉冲光束的束腰半径)的圆柱体<sup>[7,8,10]</sup>。然而,理论和 Ditbacher 等<sup>[15]</sup>的实验表明,焦点区域中心的形状

实际上近似为一椭球体。为此,本文提出了椭球体模型来代替传统模型(见图 1,其中 $a$ 为椭球的半短轴长, $b$ 为椭球的半长轴长)。

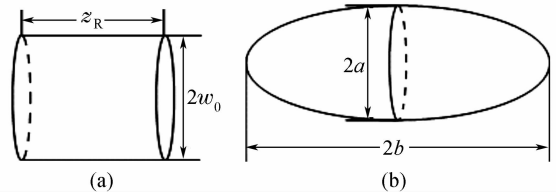


图 1 焦点区域的形状。(a) 圆柱体;(b) 椭球体

Fig. 1 Shape of the focal region. (a) cylinder; (b) ellipsoid

由于电子扩散速率与焦点区域的形状有关<sup>[5]</sup>,焦点区域的变化自然会引起电子扩散速率的变化,此时的电子扩散速率表达式为

$$\eta_{\text{diff}} = \frac{\tau\Delta E}{3m} \left( \frac{6}{a^2} + \frac{2}{b^2} \right), \quad (2)$$

式中 $\tau$ 为电子和重粒子碰撞所需的时间, $\Delta E$ 为水分子的能带值(6.5 eV<sup>[5,7,8]</sup>), $m$ 为电子的质量。

为了使雪崩电离启动,焦点区域内 $V_f$ 至少得有一个“种子”电子。然而,事实上仅有一个“种子”电子并不能确保雪崩电离的启动,10 个“种子”电子的存在才是更加合理的前提,对皮秒和飞秒脉冲更是这样<sup>[5]</sup>。由此可见,焦点区域的变化对雪崩电离开始的时间也会有相应的影响。这时雪崩速率对自由电子密度的影响为

$$\left(\frac{d\rho}{dt}\right)_{\text{casc}} = \begin{cases} \eta_{\text{casc}}\rho & \rho V_f > 10 \\ 0 & \rho V_f < 10 \end{cases}, \quad (3)$$

式中椭球体的体积 $V_f = 4/3\pi a^2 b$ 。

考虑到飞秒激光脉冲在焦点区域内的传播情况,光强的表达式为

$$I(t, z) = I_{\text{max}} \frac{w_0^2}{w^2(z)} \exp\left[(-4 \ln 2) \left(\frac{t - z/c}{\tau_p}\right)^2\right], \quad (4)$$

式中 $I_{\text{max}}$ 为脉冲的最大光强值, $\tau_p$ 为激光脉宽。为了形象直观地了解光强随位置和时间变化情况,图 2 给出了相对光强随位置和时间变化曲线。

## 4 ETS 模型的应用

用四阶朗格-库塔(Runge-Kutta)方法数值求解(1)式。纯水中的初始电子密度 $\rho(0, z) = 0$ <sup>[8]</sup>。为了比较模型改进后的结果,同样数值求解了如下两种情况下自由电子密度的演化情况:1)  $\lambda = 580 \text{ nm}$ ,  $w_0 = 2.2 \text{ }\mu\text{m}$ 且 $\tau_p = 100 \text{ fs}$ ; 2)  $\lambda = 580 \text{ nm}$ ,  $w_0 = 2.5 \text{ }\mu\text{m}$ 且 $\tau_p = 300 \text{ fs}$ 。

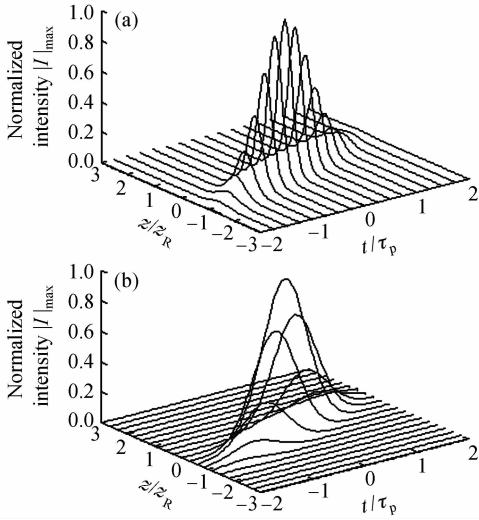


图2 相对光强随位置  $z$  (a) 和时间  $t$  (b) 的变化关系  
Fig. 2 Evolution of the relative laser intensity dependent on position  $z$  (a) and time  $t$  (b)

#### 4.1 击穿阈值

将不同的光强值  $I_{\max}$  代入(1)式中求解,直到由模型数值解出的最大自由电子密度  $\rho_{\max}$  等于光击穿的临界电子密度  $\rho_{\text{cr}}$  ( $10^{21} \text{ cm}^{-3}$ [7,10]),此时的光强值  $I_{\max}$  就是所要求的击穿阈值光强  $I_{\text{th}}$ ,如表 1 所示。

表 1 飞秒激光诱导的击穿阈值

Table 1 Breakdown threshold of water induced by femtosecond laser

$\tau_p$ /fs	Breakdown threshold, $I_{\text{th}} / (10^{11} \text{ W/cm}^2)$	
	Theoretical value	Experimental measurement
100	109.1	111 <sup>[10]</sup>
300	51.09	47.6 <sup>[10]</sup>

#### 4.2 电子密度在时间和空间上的变化情况

图 3 和 4 分别给出上述两种情况下,自由电子密度在  $z/z_R$  从 -3 到 3,时间  $t/\tau_p$  为 -1,0,1 和 2 处的分布情况,以及时间  $t/\tau_p$  从 -2 到 2, $z/z_R$  为 -2,-1,0,1 和 2 处的分布情况。为了便于比较,将时间和空间都进行了归一化处理。

### 5 比较与分析

表 2 给出了 ETS 模型和传统模型分别数值求解出的飞秒激光诱导水光学击穿的击穿阈值以及与实验结果的偏差。通过比较发现 ETS 模型得出的击穿阈值比传统模型更接近于实验结果。但是由于计算过程中利用的许多参数,如击穿时的临界电子密度、雪崩电离的平均自由时间等到目前为止还不能通过实验直接测量,所以进行的计算虽然在一定范围内与实验吻合,但仍需要更深一步的实验和理

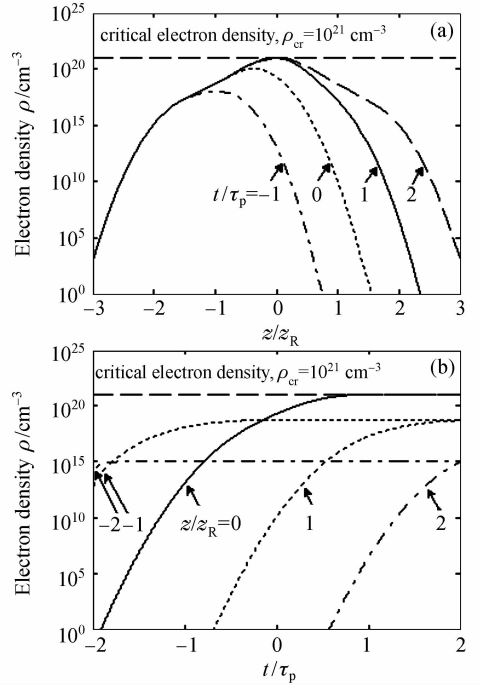


图3 自由电子密度关于时间和位置的变化曲线  
Fig. 3 Evolution of the free-electron density dependent on time and position ( $\lambda = 580 \text{ nm}$ ,  $\omega_0 = 2.2 \mu\text{m}$ ,  $\tau_p = 100 \text{ fs}$ ,  $\tau = 1 \text{ fs}$ )

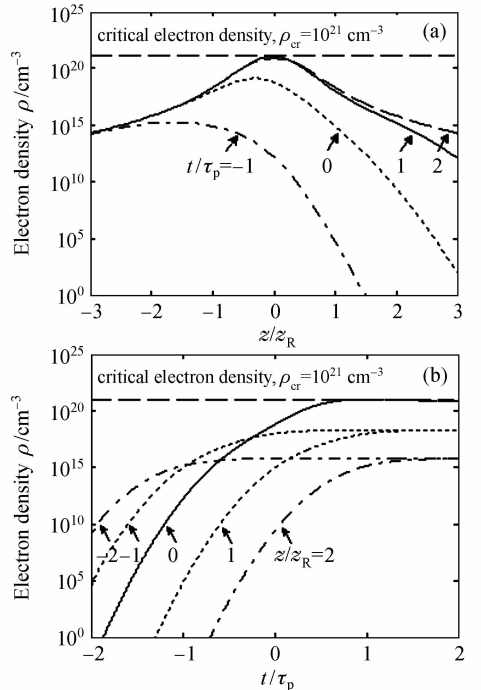


图4 自由电子密度关于时间和空间的变化曲线  
Fig. 4 Evolution of the free-electron density dependent on time and space ( $\lambda = 580 \text{ nm}$ ,  $\omega_0 = 2.5 \mu\text{m}$ ,  $\tau_p = 300 \text{ fs}$ ,  $\tau = 1 \text{ fs}$ )

论研究。

表 2 传统模型和 ETS 模型得出的击穿阈值

Table 2 Breakdown threshold of water determined by classical model and ETS model

$\tau_p$ /ps	Breakdown threshold, $I_{th} / (10^{11} \text{ W/cm}^2)$						Experimental measurement
	Noack model		Fan model		ETS model		
	Theoretical value	Discrepancy	Theoretical value	Discrepancy	Theoretical value	Discrepancy	
100	84.0 <sup>[7]</sup>	24.3%	94.0 <sup>[8]</sup>	15.3%	109.1	1.7%	111 <sup>[11]</sup>
300	39.0 <sup>[7]</sup>	18.1%	43.0 <sup>[8]</sup>	9.7%	51.09	7.3%	47.6 <sup>[11]</sup>

## 6 结 论

由于实际情况下的焦点区域为椭球体而非圆柱体,本文对自由电子密度速率方程中电子扩散速率和雪崩速率进行了修正。同时考虑到飞秒激光脉冲在焦点区域的传播特征,得出了适用于飞秒激光脉冲诱导水光学击穿 ETS 模型。应用该模型数值求解了脉宽为100 fs和300 fs情况下的理论击穿阈值。比较发现,该模型所得阈值与 Vogel 等的实验结果更吻合,说明了 ETS 模型的合理与正确性。还分别计算了击穿区域内不同时刻处的电子分布与焦点区域内不同位置处自由电子密度随时间的变化趋势。

## 参 考 文 献

- Wang Xinlin, Dai Nengli, Li Yuhua *et al.*. Ablation of metallic glasses by femtosecond laser pulses [J]. *Chinese J. Lasers*, 2007, **34**(9):1297~1302  
王新林,戴能利,李玉华等. 金属玻璃飞秒激光烧蚀特性[J]. *中国激光*, 2007, **34**(9):1297~1302
- He Fei, Cheng Ya. Femtosecond laser micromachining: frontier in laser precision micromachining [J]. *Chinese J. Lasers*, 2007, **34**(5):595~622  
何飞,程亚. 飞秒激光微加工:激光精密加工领域的新前沿[J]. *中国激光*, 2007, **34**(5):595~622
- Yang Junyi, Ma Hongliang, Lu Bo *et al.*. Raman spectroscopy study of phase transformation of TiO<sub>2</sub> rutile single crystal induced by infrared femtosecond laser [J]. *Acta Optica Sinica*, 2007, **27**(10):1909~1912  
杨俊毅,马洪良,鲁波等. 飞秒激光诱导二氧化钛金红石单晶体相变的拉曼光谱研究[J]. *光学学报*, 2007, **27**(10):1909~1912
- Ni Xiaowu, Chen Xiao, Lu Jian. Study on the mechanism of interaction between laser and liquid material [J]. *Laser Technology*, 2002, **26**(4):258~261  
倪晓武,陈笑,陆建. 激光与液态物质相互作用机理的研究进展[J]. *激光技术*, 2002, **26**(4):258~261

- P. K. Kennedy. A first-order model for computation of laser-induced breakdown thresholds in ocular and aqueous media—Part I: Theory [J]. *Quantum Electron.*, 1995, **31**(12):2241~2249
- Q. Feng, J. V. Moloney, A. C. Newell *et al.*. Theory and simulation on the threshold of water breakdown induced by focused ultrashort laser pulses [J]. *Quantum Electron.*, 1997, **33**(2):127~137
- J. Noack, A. Vogel. Laser-induced plasma formation in water at nanosecond to femtosecond time scales: calculation of thresholds, absorption coefficients, and energy density [J]. *Quantum Electron.*, 1999, **35**(8):1156~1167
- C. H. Fan, J. Sun, J. P. Longtin. Breakdown threshold and localized electron density in water induced by ultrashort laser pulses [J]. *Appl. Phys.*, 2002, **91**(4):2530~2536
- A. Vogel, J. Noack, G. Huttman *et al.*. Mechanisms of femtosecond laser nanosurgery of cells and tissues [J]. *Appl. Phys. B*, 2005, **81**(8):1015~1047
- Li Ming, Zhang Hongchao, Shen Zhonghua *et al.*. Physical analyses of optical breakdown and plasma formation in water induced by laser [J]. *Acta Photonica Sinica*, 2005, **34**(11):1610~1614  
李明,张宏超,沈中华等. 激光导致水击穿和等离子体形成过程的物理分析[J]. *光子学报*, 2005, **34**(11):1610~1614
- A. Vogel, J. Noack, K. Nahen *et al.*. Energy balance of optical breakdown in water at nanosecond to femtosecond time scales [J]. *Appl. Phys. B*, 1999, **68**(2):271~280
- Chen Xiao. Studies on mechanisms of the interaction between high-power laser and matter in water [D]. Nanjing: Nanjing University of Science and Technology, 2004. 4  
陈笑. 高功率激光与水下物质相互作用过程与机理研究[D]. 南京:南京理工大学, 2004. 4
- W. Watanabe, T. Tamaki, K. Itoh. Femtosecond laser micromachining and biological therapy [J]. *Laser Physics*, 2008, **16**(8):263~269
- A. Vogel, N. Linz, S. Freidank *et al.*. Femtosecond-laser nanocavitation in water: implication for optical breakdown threshold and cell surgery [J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2008, **134**(4):1159~1168
- H. Ditbacher, J. R. Krenn, A. Leitner *et al.*. Surface plasmon polariton-based optical beam profiler [J]. *Opt. Lett.*, 2004, **29**(12):1408~1410