

紧聚焦条件下飞秒激光产生空气等离子体的 动态演化特性

于 洋, 许宽宏, 张天鹏, 李书恒, 张 楠, 朱晓农*

南开大学现代光学研究所光学信息技术科学教育部重点实验室, 天津 300071

摘要 采用具有旋转对称性的三维空间电离模型,对紧聚焦条件下中心波长为 800 nm、脉冲宽度为 50 fs 的激光脉冲产生的空气等离子体的时间和空间特性进行了数值模拟,揭示了整个等离子体区折射率的动态演化过程。计算结果表明:当激光脉冲开始聚焦时,靠近焦点前方的空气首先被电离,随后产生一个中心区域达到饱和、边缘具有很高折射率梯度的水滴状等离子区域;随着激光脉冲继续向焦点传播并越过焦点,等离子体区进一步向前延伸,直至在焦点前后形成一个近乎对称的双卵形结构;脉冲通过焦点区域后,空气等离子体强度沿传播方向逐渐减弱,直到最终完全消失;在 10 倍物镜聚焦下,脉冲能量为 500 μ J、脉冲宽度为 50 fs 的激光脉冲产生的空气等离子体由产生到消失的整个过程约持续 3 ps。理论计算结果与 30 kPa 低气压环境下的实验观测结果相吻合。

关键词 激光光学; 飞秒激光传输; 激光电离; 空气等离子体; 多光子电离; 超快现象

中图分类号 O437

文献标识码 A

doi: 10.3788/CJL201744.0708001

Dynamic Evolution of Air Plasma Induced by Tightly-Focused Femtosecond Laser Pulse

Yu Yang, Xu Kuanhong, Zhang Tianpeng, Li Shuheng, Zhang Nan, Zhu Xiaonong

Institute of Modern Optics, Key Laboratory of Optical Information Science and Technology,

Ministry of Education, Nankai University, Tianjin 300071, China

Abstract Both temporal and spatial characteristics of air plasma induced by tightly-focused laser pulse with central wavelength of 800 nm and pulse width of 50 fs are numerically simulated on the basis of a three-dimensional spatial ionization model with rotational symmetry, and the dynamic evolution of refractive index in whole plasma area is revealed. The simulation results clearly show that, when the laser pulse begins to focus, the ionization of air firstly appears in the region near the focal point. The initially ionized air gradually grows to form a water droplet-like plasma region with saturated electron density at the center and a high refractive index gradient in the peripheral. As the laser pulse propagates through the focal plane, the plasma zone expands forwards and forms an ionization region with almost symmetrical double-oval-shape. After the laser pulse propagates out of the focal region, the intensity of air plasma decreases along the direction of transmission and vanishes finally. Focused by a 10-fold microscope objective, the whole evolution process of the air plasma induced by laser pulse with pulse energy of 500 μ J and pulse width of 50 fs lasts about 3 ps. The simulation results can fit the experimental results obtained under low air pressure of 30 kPa.

Key words laser optics; femtosecond laser propagation; laser ionization; air plasma; multi-photon ionization; ultrafast phenomenon

OCIS codes 140.3538; 190.4180; 260.5210; 320.7120

收稿日期: 2017-01-19; **收到修改稿日期:** 2017-02-22

基金项目: 国家自然科学基金(11274185,61137001)

作者简介: 于 洋(1989—),男,硕士研究生,主要从事超短激光脉冲电离方面的研究。E-mail: yybeata@qq.com

导师简介: 朱晓农(1957—),男,博士,教授,博士生导师,主要从事超短脉冲激光技术与应用方面的研究。

E-mail: xnzhul@nankai.edu.cn(通信联系人)

1 引 言

自激光发明以来,利用激光脉冲产生等离子体一直备受关注^[1-4]。飞秒激光脉冲经过透镜(或曲面反射镜)会聚到空气中时,会使气体分子电离产生空气等离子体,这是超快激光实验室中一种常见的光物理现象。飞秒激光诱导空气等离子体的现象导致锥形辐射^[5]、高次谐波^[6]、太赫兹波^[7]乃至超亮喷射状光束^[8]的产生。在弱聚焦条件下,飞秒激光脉冲的峰值光强一般小于或接近 $10^{13} \text{ W}\cdot\text{cm}^{-2}$,在这种情况下,多光子电离在自由电子的产生过程中起主导作用;对于相对较强的聚焦情况,飞秒激光脉冲的峰值强度足以使原子的库伦势发生扭曲,隧道电离对自由电子的产生起重要作用。使用焦距较短的透镜将飞秒激光聚焦到物质表面或内部来产生等离子体,在微纳加工^[9]、眼科手术^[10]、非线性电离显微术^[11]以及 LIBS(Laser Induced Breakdown Spectroscopy)技术^[12]等诸多应用中扮演着十分重要的角色。

飞秒激光脉冲以光速通过聚焦透镜焦点,并在邻近焦点区域产生空气电离,该过程属于三维空间中的超快动态过程,包括在空间不同位置上电离过程的开始、电离率的提高、电离饱和与各种不同的电子运动弛豫现象,具体反映在自由电子密度 $\rho(r, t)$ 的变化上。自由电子密度的变化同时导致了折射率的改变,进而对入射脉冲的相位进行调制;该现象类似于光克尔效应,将产生新频率光波。此外,从空间分布上来说,等离子体与周边空气之间的界面会极大地影响出射脉冲的空间衍射特性。因此,分析飞秒激光产生空气等离子体的折射率动态演化特性对于深入研究飞秒激光与等离子体相互作用的基本物理规律有重要意义。

本文研究了脉冲宽度为 50 fs 的激光脉冲在 10 倍物镜紧聚焦下产生空气等离子体的时间和空间特性。模拟计算中使用的飞秒激光的脉冲能量为 500 μJ ,理论峰值光强最高可以达到 $10^{17} \text{ W}\cdot\text{cm}^{-2}$,远大于弱聚焦条件下的峰值光强,但小于相对论性强场所要求的 $10^{18} \text{ W}\cdot\text{cm}^{-2}$ 峰值光强。在如此高的峰值光强下,需要同时考虑多光子电离和隧道电离。本文通过数值求解自由电子密度动态速率方程,首先获得了飞秒激光聚焦区中心点的空气等离子体随时间的演化规律,然后拓展到三维空间,在系统相对光束传输方向具有旋转对称性的假设下,得到从初始电离点到形成卵形饱和电子密度空间再到等离子体逐步消失的全过程。其中,双卵形等离子体空间分布与在气体压强为 30 kPa 的实验中观察到的等离子体辐射区域的外形轮廓相吻合。在考虑电子扩散和电子与离子复合作用时,理论模拟得到的空气等离子体由产生到熄灭的整个过程的持续时间约为 3 ps。

2 理论模型和分析

为便于比较,在数值模拟中采用与实验一致的激光参数:脉冲宽度为 50 fs,中心波长为 800 nm,单脉冲能量为 500 μJ ,光束质量品质因数 $M^2 = 1.5$,用于聚焦激光脉冲的 10 倍物镜的数值孔径 $NA = 0.25$ 。束腰半径可表示为

$$w = M^2 \frac{\lambda}{\pi NA} \quad (1)$$

将上述激光参数代入(1)式,可得到聚焦后的束腰半径 $w \approx 1.5 \text{ mm}$,相应的瑞利长度 $z_r \approx 6.1 \text{ mm}$,由此估算出理想情况下或在真空中焦点处的峰值光强为 $1.36 \times 10^{17} \text{ W}\cdot\text{cm}^{-2}$ 。

对激光电离过程而言,通过 Keldysh 参数 γ (代表电离能与电子有质动能之比)可确定多光子电离和隧道电离各自对总电离度的贡献比率^[13],即

$$\gamma = \frac{\omega}{e} \sqrt{\frac{m' c \epsilon_0 n \Delta E}{I}} \quad (2)$$

式中 ω 为激光脉冲的圆频率, e 为电子电荷, I 为光脉冲峰值强度, ΔE 为分子的电离能, m' 为有效电子质量, c 为光速, n 为折射率, ϵ_0 为真空介电常数。中心波长为 800 nm 的飞秒激光脉冲的圆频率 $\omega \approx 2.36 \times 10^{15} \text{ rad}\cdot\text{s}^{-1}$ (对应的单光子能量为 1.55 eV),空气的等效电离能为 14.71 eV,有效电子质量 $m' \approx 4.55 \times 10^{-31} \text{ kg}$ 。此外,选取空气的折射率 $n \approx 1$, $\epsilon_0 = 8.85 \times 10^{-12} \text{ F}\cdot\text{m}^{-1}$, $c = 2.9979 \times 10^8 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$,把这些值代入到(2)式中,得到 $\gamma = 1$ 时对应的光强 $I = 6.16 \times 10^{13} \text{ W}\cdot\text{cm}^{-2}$ 。

根据 Keldysh 理论,当 $\gamma \gg 1$ (即光强 $I \ll 6.16 \times 10^{13} \text{ W}\cdot\text{cm}^{-2}$)时,多光子电离在等离子体的形成过程中

起主要作用。在多光子电离情况下,空气分子的电子同时吸收 10 个波长为 800 nm 的光子才能发生电离。当 $\gamma \ll 1$ 时,隧道电离在等离子体形成的过程中占主导作用,此时的激光电场强度足以使原子或分子的库伦势发生扭曲,电子可以较容易地从原子或者分子中逃逸出去。

在对空气电离过程的模拟分析中,采用的电子密度速率方程^[14-15]为

$$\frac{d\rho}{dt} = \frac{d\rho}{dt_{\text{photo}}} + W_{\text{casc}}\rho - W_{\text{diff}}\rho - W_{\text{rec}}\rho^2, \quad (3)$$

式中 ρ 为电子密度, W_{casc} 为雪崩电离几率, W_{diff} 为电子扩散几率, W_{rec} 为复合几率。(3)式右方的第 1 项 $d\rho/dt_{\text{photo}}$ 表示光致电离作用,包括多光子电离和隧道电离;第 2 项代表雪崩电离或级联电离,该项取决于激光脉冲宽度和电子-原子或分子的平均碰撞时间。当平均碰撞时间小于激光脉冲宽度时,雪崩电离起重要作用;当平均碰撞时间大于激光脉冲宽度时,雪崩电离可以忽略。在固态或液态的透明介质中,电子的平均碰撞时间约为 1 fs^[14,16];对于标准大气压下的气体而言,分子的平均碰撞时间约为 300~800 fs^[14]。因此,对于脉冲宽度为 50 fs 的激光脉冲而言,大气环境下的雪崩电离基本不起作用,这一点完全不同于皮秒和纳秒激光脉冲产生空气电离的情况。公式(3)右方的第 3 项表示电子扩散出聚焦区域的速率,第 4 项表示电子和带正电荷的粒子复合损耗。

通过采用与参考文献[14-15]类似的计算方法,数值求解(3)式,获得了透镜聚焦区中心点飞秒激光电离空气产生的自由电子密度随时间的演化过程,计算结果如图 1(a)所示。图 1(a)中还绘出了归一化的 50 fs 激光脉冲强度分布。使用激光脉冲宽度($t_L = 50$ fs)对图中时间轴的时间标尺进行约化,0 时刻对应激光脉冲的峰值,负时间代表激光脉冲到达峰值前的时间。从图 1(a)给出的计算结果可以进一步得到图 1(b)中的电子密度随激光脉冲强度的变化曲线。由图 1 可见,在约 $-2t_L$ 时,激光脉冲瞬时强度为 $1.8 \times 10^{12} \text{ W}\cdot\text{cm}^{-2}$,自由电子密度迅速增加;在约 $-1.6t_L$ 时,激光脉冲瞬时强度为 $6.2 \times 10^{13} \text{ W}\cdot\text{cm}^{-2}$,电离机制由多光子电离为主转变为隧道电离占主导(红五星标出位置),此时的电子密度为 $4.3 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$;在约 $-1.4t_L$ 时,激光脉冲瞬时强度为 $8 \times 10^{14} \text{ W}\cdot\text{cm}^{-2}$,自由电子密度达到饱和值。电子密度饱和值被确定为 1 个大气压下空气的数密度,即 $2.7 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ (该计算中未考虑双电荷或多级次电离对电子密度的影响)。

图 1(a)、(b)表明,在所选定的激光参数和紧聚焦条件下,激光脉冲峰值到达之前空气已经完全电离。图 1(c)给出了在更大时间范围内的电子密度演化的完整过程。该过程初期,多光子电离和隧道电离先后起主要作用,而后在电离产生自由电子和自由电子扩散、复合的共同作用下,电子密度超过阈值电子密度,在激光脉冲完全通过电离区后,光电离过程消失,只存在电子损耗机制,于是自由电子密度开始以指数形式下降,直至完全消失。由图 1(c)可见,自由电子完全消失所需时间为脉冲宽度的 1390 倍,即 69.5 ps。因此,在飞秒激光作用下,电离使电子密度达到饱和,并且电子密度的衰减过程在时间轴上是不对称的。

图 1(a)为焦点中心处飞秒脉冲激发空气等离子体的过程随时间的演变特性。实际的飞秒脉冲强度 I

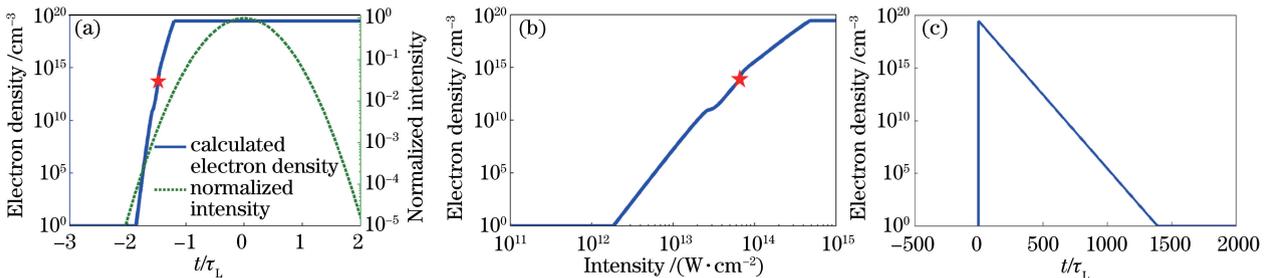


图 1 (a)脉冲宽度为 50 fs、脉冲能量为 0.5 mJ、中心波长为 800 nm 的激光脉冲经 10 倍物镜会聚到空气中时,在焦点中心位置产生的自由电子密度随时间的演变过程的模拟计算结果及归一化飞秒激光脉冲强度分布;

(b)对应于图 1(a)情况下的自由电子密度随激光脉冲强度的变化;(c)自由电子密度随时间演变的全过程

Fig. 1 (a) Calculated time-dependent free electron density in focus center induced by laser pulse with pulse width of 50 fs, pulse energy of 0.5 mJ and center wavelength of 800 nm focused by a 10-fold objective and normalized intensity of femtosecond laser pulse; (b) variation in free electron density with intensity of laser pulse corresponding to Fig. 1(a); (c) overall process of temporal evolution of free electron density

不仅是时间的函数,也是空间的函数,即 $I = I(r, t)$ 。通过把(3)式给出的电子密度速率方程拓展到三维空间,便可得到三维分布的空气等离子体的电子密度 ρ , 即 $\rho = \rho(r, t)$ 。在三维空间中,时间轴和传播方向 z 轴通过光束传播公式 $t = z/c$ (t 为时间)相关联。此处,假定在垂直于光传输方向的平面内光束具有旋转对称性,则电子密度的横向空间依赖性可以通过径向坐标 r 描述。由此,可以分别以 z 和 r 为横轴和纵轴得到一系列不同时刻的空气等离子体的三维空间分布。通过计算三维自由电子密度分布,得到等离子体折射率^[17]的空间分布为

$$n_{\text{plasma}}(r, t) = \sqrt{1 - \omega_p^2 / \omega^2} = \sqrt{1 - \rho(r, t) / \rho_c}, \quad (4)$$

式中 $\omega_p = [4\pi e^2 \rho(r, t) / m]^{1/2}$ 为等离子体频率, $\rho_c = \epsilon_0 m \omega_0^2 / e^2$ 为临界等离子体密度,其中 m 为电子质量。

联合求解方程(3)、(4)式,得到的一系列不同时刻的脉冲宽度为 50 fs 的激光产生的空气等离子体的二维折射率分布,如图 2 所示。图中激光脉冲从左往右传播,激光脉冲中心从每幅图片的左侧进入的时刻作为起始 0 时刻,入射激光的脉冲宽度为 50 fs、脉冲能量为 500 μJ 、中心波长为 800 nm,每幅图的下方均给出了相对 0 时刻的时间延迟。这些图的水平轴和垂直轴分别代表入射激光的传播方向和径向,并且分别以瑞利长度 Z_r 和由(1)式给出的焦点处的束腰半径 w 进行了约化。由图 2 可以看出,当脉冲从左向右传播了 146 fs 时,空气等离子体的折射率出现了微弱的变化,区域的变化可看作长轴在竖直方向的椭圆随着激光脉冲进一步向右传输,空气等离子体折射率变化区域逐渐增大,并且整个变化区域的中心逐渐向焦点方向靠拢。

当脉冲从左边传播了 167 fs,即对应从左到右传播的距离刚好大于 50 μm 时,空气等离子体折射率变化区域的中心开始接近饱和值 0.9923,这个饱和值对应于前文讨论的自由电子密度的饱和值(约为 $2.7 \times 10^{19} \text{cm}^{-3}$)。随着激光脉冲继续向右传输且延迟为 183 fs 时,空气等离子体折射率发生明显变化的区域和折射率达到饱和的区域均继续增大,并且变化区域的中心更加靠近透镜焦点。椭圆状空气等离子体折射率区域开始在靠近焦点方向略有凸起,此饱和区域的边界处已存在显著的折射率梯度。当延迟为 203 fs 即传播距离为 60.9 μm 时,等离子体椭圆靠近焦点一端凸起更加明显,等离子体区的中心也继续向焦点靠近,位置在 $-5Z_r$ 左右,这个整块深蓝色饱和区域被具有相对较大折射率梯度变化的边界所环绕。值得注意的是,此时空气等离子体区右端的折射率梯度明显比其左端的折射率梯度要大得多。

当脉冲传播了 223 fs(对应传播距离为 66.9 μm)时,空气等离子体区域的右边缘尖端出现在焦点中心处,形成了水滴状等离子区域。当延迟为 264 fs 时,空气等离子体区域凸起的部分越过了焦点,此时空气等离子体区域左侧部分开始变得不再饱和,与此同时,前后两部分边界处的折射率梯度也明显不一致。随着时间延迟的增大(305 fs 和 346 fs),空气等离子体区域继续向右迅速扩大,而位于焦点左侧部分的形状则基本保持不变,只是等离子体折射率逐渐趋于未电离的空气折射率。

当时间延迟为 386 fs 时,空气等离子体的饱和区域集中在焦点右边的前端扩大部分,焦点左边空气等离子体的折射率开始趋于未电离的空气折射率。随着激光脉冲继续向右移动,当时间延迟为 468 fs,即对应脉冲传播距离是 285.5 μm 时,空气等离子体区域焦点右边部分扩大到了距离焦点约 8.4 Z_r 的位置处,即 51.2 μm 的位置,此时空气等离子体区域横跨焦点左右两部分的形状已基本对称,呈现一个双卵形的结构,但空气等离子体饱和区域主要集中在焦点的右侧。

随着延迟时间的进一步增加,即当延迟时间超过 509 fs 时,整个人射激光脉冲已传输到对应 $\pm 10Z_r$ 的聚焦区域之外,因此空气等离子体区的外形和大小不再发生明显变化,其折射率向未电离的空气折射率加速退化,电离区边缘的折射率梯度也逐渐减小。当时间延迟为 1 ps 时,大部分等离子体区域的折射率已达到 0.9987 且外围的折射率梯度也大幅降低。延迟时间分别达到 3 ps 和 3.4 ps 时,空气等离子体区域几乎消失,而且空气等离子体区域始终不是对称消失的,而是从左往右逐渐消失的。

由图 2 可知,飞秒激光空气等离子体时空演化的动态过程可以概括为 5 个不同阶段:1)随着飞秒激光脉冲从左向右接近透镜焦点区域,空气等离子体首先在焦点前出现,刚开始时空气等离子体区域呈竖椭圆形,然后逐渐扩展,使得中心处的电子密度最大即折射率最小,接着这个等离子体的中心开始出现大片的电离饱和区域,与此同时,在周边空气的交界处形成很陡的折射率变化边界;2)随着飞秒激光脉冲继续向前传输,空气等离子体区域靠近焦点的一侧发生凸起,该凸起部分沿着传播方向不断扩大,且越来越靠近焦点,而离子

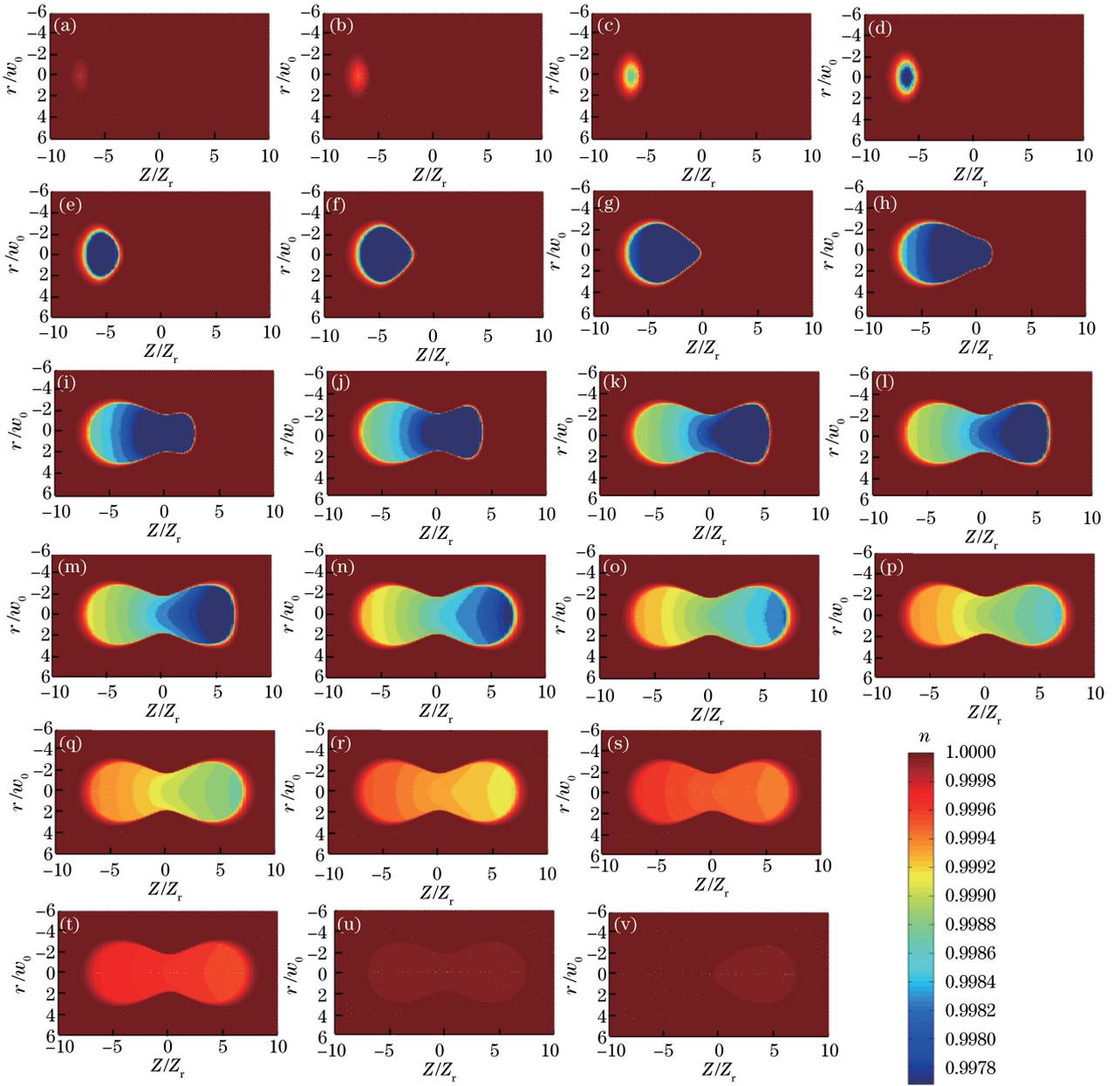


图 2 飞秒激光诱导的空气等离子体的折射率空间分布随时间变化的理论模拟结果。(a) 146 fs;(b) 154 fs;(c) 161 fs;(d) 167 fs;(e) 183 fs;(f) 203 fs;(g) 223 fs;(h) 264 fs;(i) 305 fs;(j) 346 fs;(k) 386 fs;(l) 407 fs;(m) 427 fs;(n) 468 fs;(o) 509 fs;(p) 550 fs;(q) 590 fs;(r) 681 fs;(s) 855 fs;(t) 1 ps;(u) 3 ps;(v) 3.4 ps

Fig. 2 Theoretical simulation results of variation in spatial distribution of refractive index of air plasma induced by femtosecond laser with time. (a) 146 fs; (b) 154 fs; (c) 161 fs; (d) 167 fs; (e) 183 fs; (f) 203 fs; (g) 223 fs; (h) 264 fs; (i) 305 fs; (j) 346 fs; (k) 386 fs; (l) 407 fs; (m) 427 fs; (n) 468 fs; (o) 509 fs; (p) 550 fs; (q) 590 fs; (r) 681 fs; (s) 855 fs; (t) 1 ps; (u) 3 ps; (v) 3.4 ps

体区域的后端即先电离的区域基本没有变化,此时整个离子体区域边缘的折射率梯度呈现出明显的前方陡、后方缓的趋势;3)当等离子体凸起的部分越过焦点中心之后,等离子体的前端开始向侧向迅速扩展,并且其前端头部呈现扁平状,整个空气等离子体的前后区域依然不对称,饱和区域进一步向前扩展,与此同时,后端的空气等离子体开始衰退;4)当飞秒激光脉冲越过焦点,空气等离子体区域不再继续扩展,并呈现出比较对称的双卵形形状,但是其饱和区域依然集中在右侧,即等离子体的前端,而左侧先产生的空气等离子体继续削弱,折射率接近未电离空气的折射率;5)随着飞秒激光脉冲进一步向右传输,空气等离子体区域的双卵形

整体形状保持不变且电离度明显减小,直至由左往右逐渐消失。从模拟结果来看,对应于所选定的激光参数等离子体由产生到消失的整个过程至少持续了 3 ps 以上。

3 实验结果和分析

虽然要从实验上确定飞秒激光生成的空气等离子体区域的电子密度分布和折射率分布并非易事,但从实验上检测和记录空气等离子体的光辐射及其空间分布则相对容易。因此,可以借助等离子体辐射的空间轮廓来间接得到空气等离子体区域电子密度的空间分布。测量激光诱导空气等离子体辐射的实验装置图如图 3 所示。选用的掺钛蓝宝石飞秒激光放大器(型号 HP-Spitfire, 公司 Spectra-Physics, 美国)能够产生脉冲宽度为 50 fs、单脉冲能量为 2 mJ、重复频率为 1 kHz、中心波长为 800 nm 左右的激光脉冲。实验中,由飞秒激光放大器出射的飞秒激光脉冲通过一组反光镜和衰减片后被导入一个数值孔径 $NA=0.25$ 的 10 倍物镜中,最终入射到该物镜上的激光脉冲能量为 $500 \mu\text{J}$,激光的偏振状态为水平偏振(即平行于实验平台)。如前所述,在这种情况下,飞秒激光光束通过 10 倍物镜聚焦后在邻近焦点处的束腰直径约为 $3 \mu\text{m}$ 。由于存在一定程度的自聚焦效应,飞秒激光脉冲会在 10 倍物镜几何焦点略微靠前的地方聚焦,并产生空气等离子体。该空气等离子体的侧向(空间辐射)轮廓通过一个光轴与飞秒激光传输方向相垂直的 25 倍物镜($NA=0.4$)成像到一个 CCD 相机中(型号 Lu135M, Lumenera Inc.)。在成像光路中可以根据需要加入中性密度衰减片,防止 CCD 饱和。根据前期对空气等离子体辐射光谱的测量^[18],空气等离子体辐射的光谱范围通常为 $350\sim 750 \text{ nm}$ 。因此,所选用的 CCD 相机可以满足这个光谱范围的测量。

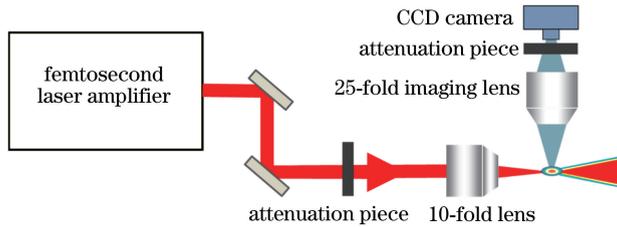


图 3 飞秒激光脉冲激发的空气等离子体空间轮廓的实验测量装置示意图

Fig. 3 Experimental setup diagram for measuring spatial profile of air plasma induced by femtosecond laser pulse

当飞秒激光脉冲在透明介质中传输时,一旦激光脉冲的峰值功率超过临界功率 P_{cr} 就会发生自聚焦效应。临界功率可表示为^[19]

$$P_{cr} = \frac{3.77\lambda_0^2}{8\pi n_0 n_2}, \quad (5)$$

式中 n_0 和 n_2 分别为折射率和非线性折射率系数。在空气中, $n_0=1$, $n_2 \approx 3.2 \times 10^{-19} \text{ cm}^2 \cdot \text{W}^{-1}$, 因此,对于中心波长为 800 nm 的激光来说, $P_{cr} \approx 3 \text{ GW}$ 。实验中所使用的脉冲宽度为 50 fs 的激光脉冲的能量为 $500 \mu\text{J}$,相应的峰值功率 $P \approx 10 \text{ GW}$,因此, $P/P_{cr} \approx 3.3$ 。根据(5)式,考虑到导致空气中产生自聚焦的非线性系数 n_2 的大小与空气密度有关,在一个真空系统中进行激光电离空气实验,研究大气压强对自聚焦效应的影响。图 4(a)、(b)给出了两个不同大气压强下的空气等离子体辐射轮廓(详细的实验结果与分析在参考文献[20]中给出)。除了大气压的变化外,其他实验条件均不变,但图 4(b)中 CCD 相机的曝光时间是图 4(a)中 CCD 相机曝光时间的 6 倍。通过比较图 4(a)、(b),不难发现压强为 30 kPa 下的空气等离子体的辐射信号强度明显小于一个大气压(即压强为 101 kPa)下的空气等离子体的辐射强度。为提高视觉观察效果,分别在图 4(c)、(d)中给出图 4(a)、(b)所对应的伪彩色等高线图。此外,将图 4(a)、(b)横向积分后得到的沿传播方向的归一化信号强度分布由图 4(e)、(f)给出。

通过直接对比图 4(a)、(b),可以发现:当大气压强从 101 kPa 降到 30 kPa 时,整个空气等离子体区域向着远离物镜的方向移动了约 $26 \mu\text{m}$,该现象可能是由激光传播的自聚焦效应引起的。因为空气的折射率和非线性折射率系数直接与气体密度(或大气压强)成正比,当大气压强降低时,自聚焦效应变弱,因此图 4(b)给出的低气压情况下的空气等离子体区域要比对应于正常气压下的图 4(a)中的空气等离子体区域更接近几何焦点。对比图 4(c)、(d)可以发现,两种不同大气压强下空气等离子体位置的差别更加明显。此外,无

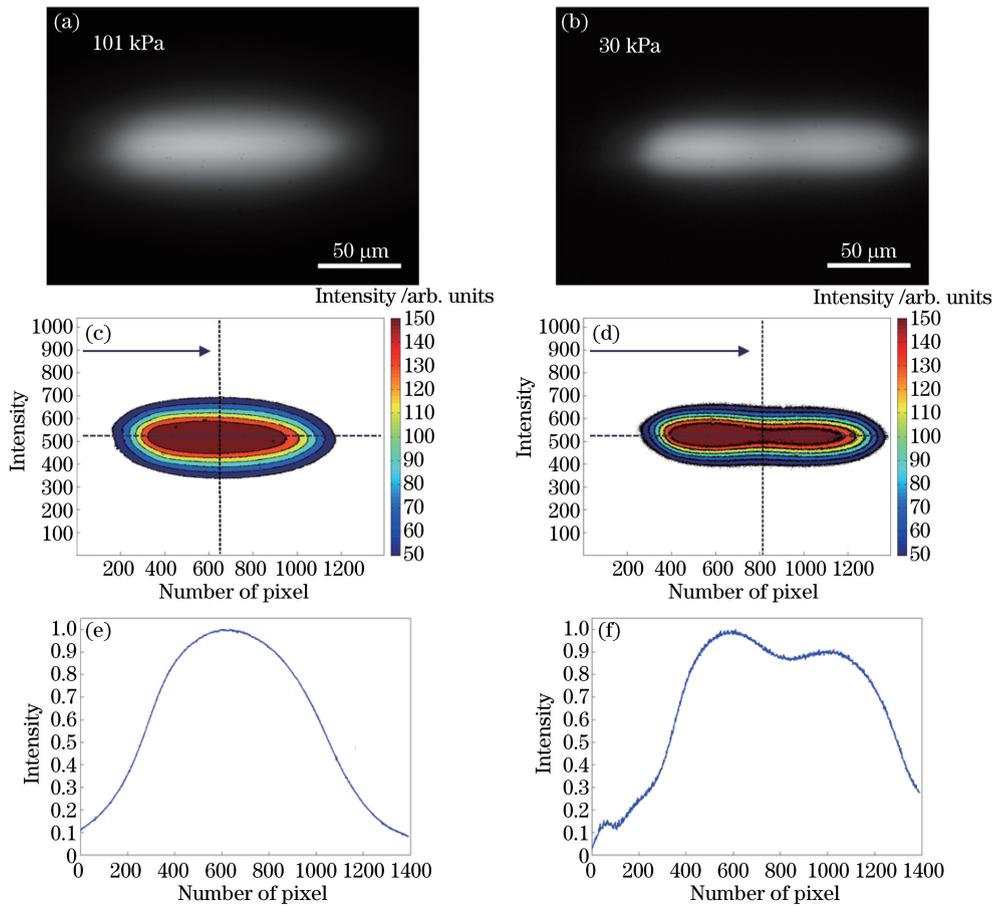


图 4 气体压强分别为(a) 101 kPa 和(b) 30 kPa 时拍摄的飞秒激光产生的空气等离子体侧向轮廓图；
(c)(d)对应图 4(a)、(b)的伪彩色等强度线分布图；(e)(f)对图 4(a)、(b)中的
空气等离子体强度横向分布进行累加并归一化后获得的沿传输方向的信号强度曲线

Fig. 4 Lateral profile of air plasma induced by femtosecond laser when air pressure is (a) 101 kPa and
(b) 30 kPa respectively; (c)(d) pseudo-color intensity contour pictures of Fig. 4 (a) and Fig. 4 (b);
(e)(f) signal intensity curves along transmission direction obtained by accumulating and normalizing
signal intensity lateral distributions of air plasma corresponding to Fig. 4 (a) and Fig. 4 (b)

论是图 4(a)还是图 4(b)，沿着光传播方向的空气等离子体分布都呈现出了一定程度的不对称性，即靠近聚焦物镜一侧的信号强度比远离聚焦物镜一侧的信号强度要略微大一些，这种前后不对称的特点显然与激光脉冲的传播方向以及传输过程中部分激光能量被等离子体吸收而导致激光强度的衰减有关。

由图 1 给出的电子密度的时间演化可以看出，焦点处的空气等离子体在峰值光强到达之前就已经达到饱和。图 2 为等离子体折射率在不同延时情况下的空间分布，更清晰地揭示了在飞秒脉冲越过焦点的过程中空气等离子体的产生、扩展、内部饱和区的出现，以及大折射率梯度边界的形成过程。然而，在图 1、2 给出的理论模拟中，激光脉冲与其自身产生的等离子体的相互作用被忽略。图 1、2 给出的反映等离子体时空演化特性的模拟结果表明被激光脉冲的前沿所激起的空气等离子体将与同一激光脉冲的后续部分相互作用。实际上，激光脉冲作用下空气等离子体的折射率 n 可以用空气折射率与透镜聚焦导致的折射率变化量 Δn_{lens} 、克尔自聚焦导致的折射率变化量 Δn_{Kerr} 和等离子体导致的折射率变化量 Δn_{plasma} 之和来表示，即 $n = n_0 + \Delta n_{\text{lens}} + \Delta n_{\text{Kerr}} + \Delta n_{\text{plasma}}$ 。空气电离导致折射率下降，因此 Δn_{plasma} 为负值。与 Δn_{lens} 不同， Δn_{Kerr} 和 Δn_{plasma} 不仅是空间的函数，也是时间的函数。当 $\Delta n_{\text{Kerr}} + \Delta n_{\text{lens}} > |\Delta n_{\text{plasma}}|$ ，即聚焦效应大于散焦效应时，后续的激光脉冲继续聚焦，直到 $\Delta n_{\text{Kerr}} + \Delta n_{\text{lens}} = |\Delta n_{\text{plasma}}|$ ，聚焦效应等于散焦效应，则激光脉冲不再继续聚焦。当 $\Delta n_{\text{Kerr}} + \Delta n_{\text{lens}} < |\Delta n_{\text{plasma}}|$ 时，即聚焦效应小于散焦效应时，后续的激光脉冲将会被发散。

尽管激光脉冲的后续部分会受到非均匀空间分布空气等离子体的作用而出现发散(等离子体的中间折

射率低,边缘折射率高,相当于一个负透镜),但是此时的总体聚焦效应仍然很大,足以克服空气等离子体的散焦作用。实际中,激光与等离子体的复杂相互作用会导致激光脉冲的后续部分在时间和空间上均发生扭曲。一方面,已经被激发的空气等离子体会通过逆韧致辐射吸收过程从光场获得能量,造成对激光脉冲能量的损耗;另一方面,激光脉冲的后续部分的相位在时间和空间上将受空气等离子体引入的 Δn_{plasma} 所调制。同一激光脉冲的后续部分经过脉冲前端产生的空气等离子体时,除了受到等离子体非线性吸收和非线性衍射效应的作用外,还会受到克尔自聚焦的影响,这种混合作用可能导致焦点附近的有效光束尺寸和实际脉冲峰值强度的增加,这可能是图 4(a)中的空气等离子体区域呈现出椭圆形状而不是理想情况下理论预计的双卵形的原因。

在图 4(b)中,大气压强减小到 30 kPa 时, Δn_{Kerr} 和 Δn_{plasma} 都随着空气密度的减小而减小,这就意味着自聚焦效应和等离子体的散焦效应都大幅减弱,从而解释了低气压情况下整个空气等离子体区域向远离聚焦物镜的方向移动的现象。自聚焦效应和等离子体散焦效应的减弱实际上反映了激光脉冲电离空气过程中非线性效应的减弱,即激光与等离子体相互作用强度显著减小。由于图 2 给出的理论计算没有考虑激光和等离子体的相互作用,因此只有在大气压强较低的情况下,理论计算结果才会与实验观测结果相吻合。

4 结 论

以脉冲宽度为 50 fs、脉冲能量为 500 μJ 、中心波长为 800 nm 的激光脉冲为输入脉冲,分别在一维时域(即空间一点处的时间变化)和具有柱对称性的三维时空内求解电子密度速率方程,得到了紧聚焦($NA = 0.25$)飞秒激光电离空气过程中自由电子密度和相应等离子体折射率的动态演化特性。在以透镜焦点中心为研究对象的单纯时域模拟中,对于给定的激光参数,在多光子电离和隧道电离的共同作用下,电离导致的自由电子密度会远在激光脉冲的峰值到达之前达到饱和。在不考虑自聚焦效应的三维时空模拟中,飞秒激光脉冲激发的空气等离子体逐渐演变为双卵形,并且其内部很大的区域会出现饱和,致使在与周边空气的交界处出现很高的折射率梯度,形成明显的空气-等离子体界面。飞秒激光脉冲一旦到达焦点附近的瑞利区,双卵形等离子体大约在 3 ps 内便会先后消失。数值模拟获得的双卵形等离子体形态与低气压下的实验观测结果相一致。在环境气体压强为 30 kPa、实验所用激光参数与理论模拟完全相同的条件下,空气等离子体辐射的空间轮廓确实呈现双卵形,并且整个空气等离子体的中心在 101 kPa 正常大气压强下向着远离透镜方向偏移。

参 考 文 献

- [1] Bloembergen N. Laser-induced electric breakdown in solids[J]. IEEE Journal of Quantum Electronics, 1974, 10(3): 375-386.
- [2] Morgan C G. Laser-induced breakdown of gases[J]. Reports on Progress in Physics, 1975(38): 621-665.
- [3] Vogel A, Noack J, Hüttman G, *et al.* Mechanisms of femtosecond laser nanosurgery of cells and tissues[J]. Applied Physics B, 2005, 81(8): 1015-1047.
- [4] Keefer D R. Lasers-induced plasmas and applications[M]. New York: Marcel Dekker, 1989: 169.
- [5] Nibbering E T, Curley P F, Grillon G, *et al.* Conical emission from self-guided femtosecond pulses in air[J]. Optics Letters, 1996, 21(1): 62-65.
- [6] Baeva T, Gordienko S, Pukhov A. Theory of high-order harmonic generation in relativistic laser interaction with overdense plasma[J]. Physical Review E, 2006, 74(4): 046404.
- [7] D'Amico C, Houard A, Franco M, *et al.* Conical forward THz emission from femtosecond-laser-beam filamentation in air[J]. Physical Review Letters, 2007, 98(23): 235002.
- [8] Xu Z, Zhu X, Yang Y, *et al.* Super-luminescent jet light generated by femtosecond laser pulses[J]. Scientific Reports, 2014, 4: 3892.
- [9] Furusawa K, Takahashi K, Kumagai H, *et al.* Ablation characteristics of Au, Ag, and Cu metals using a femtosecond Ti:sapphire laser[J]. Applied Physics A, 1999, 69(s1): S359-S366.
- [10] Lubatschowski H. Update on fs laser technology in ophthalmology[J]. Klinische Monatsblätter Für Augenheilkunde, 2013, 230(12): 1207-1212.

- [11] Zhao Y, Zhang N, Yang J, *et al.* Laser-induced air ionization microscopy[J]. Applied Physics Letters, 2006, 88(24): 241102.
- [12] Knight A K, Scherbarth N L, Cremers D A, *et al.* Characterization of laser-induced breakdown spectroscopy (LIBS) for application to space exploration[J]. Applied Spectroscopy, 2000, 54(3): 331-340.
- [13] Keldysh L V. Ionization in the field of a strong electromagnetic wave[J]. Journal of Experimental and Theoretical Physics, 1965, 20(5): 1307-1314.
- [14] Noack J, Vogel A. Laser-induced plasma formation in water at nanosecond to femtosecond time scales: Calculation of thresholds, absorption coefficients, and energy density[J]. IEEE Journal of Quantum Electronics, 1999, 35(8): 1156-1167.
- [15] Yu Yang. The characteristics of micro air plasma and super-luminescent jet light generated by femtosecond laser pulses [M]. Tianjin: Nankai University, 2014.
于 洋. 飞秒激光产生空气等离子体和超亮喷射状光束的特性研究[M]. 天津: 南开大学, 2014.
- [16] Chin S L. Femtosecond laser filamentation[M]. New York: Springer, 2010: p1.
- [17] Couairon A, Mysyrowicz A. Femtosecond filamentation in transparent media[J]. Physics Reports, 2007, 441(2/4): 47-189.
- [18] Zhu X N, Fu R L. Emission spectra of microplasma generated by femtosecond laser pulses[J]. SPIE, 2002, 4914: 58-67.
- [19] Marburger J H. Self-focusing: Theory[J]. Progress in Quantum Electronics, 1975, 4: 35-110.
- [20] Xu Kuanhong. Investigations of the characteristics of femtosecond laser induced air plasma and the performances of optical coherence tomography system[D]. Tianjin: Nankai University, 2011.
许宽宏. 飞秒激光诱导空气等离子体特性和光学相干层析系统性能研究[D]. 天津: 南开大学, 2011.