

飞秒激光脉冲在部分激发气体中的传播

李苏宇^{1,2}, 费德厚^{1*}, 金明星¹

¹吉林大学原子与分子物理研究所, 吉林省应用原子分子光谱重点实验室, 吉林 长春 130012;

²吉林大学电子科学与工程学院, 集成光电子学国家重点联合实验室, 吉林 长春 130012

摘要 通过数值求解传播方程,研究了当空气中含有微量处于激发态的氧分子时,飞秒激光脉冲在其中的传播过程,并对比了常压和低压下的结果。数值模拟结果表明,当气体中含有激发态分子时,会影响激光脉冲在其中的传播过程,而且激发态分子所占的比重越大,对激光强度的时间和空间分布的影响越大。

关键词 激光光学; 飞秒激光; 成丝; 等离子体通道; 激发态分子

中图分类号 O437 **文献标识码** A

doi: 10.3788/CJL201744.0902002

Propagation of Femtosecond Laser Pulses in Partially Excited Gas

Li Suyu^{1,2}, Fei Dehou¹, Jin Mingxing¹

¹*Institute of Atomic and Molecular Physics, Jilin Provincial Key Laboratory of Applied Atomic and Molecular Spectroscopy, Jilin University, Changchun, Jilin 130012, China;*

²*College of Electronic Science and Engineering, State Key Laboratory on Integrated Optoelectronics, Jilin University, Changchun, Jilin 130012, China*

Abstract The propagation of femtosecond laser pulse in the air containing a small amount of oxygen molecule in excited state is investigated by numerically solving the propagation equation, and the numerical results in both normal and low atmospheric pressures are compared. The numerical simulation results show that when the air contains excited molecules, it will affect the propagation process of the laser pulse. The bigger the proportion of the excited molecules is, the greater the influence of it on the time and spatial distribution of the laser intensity will be.

Key words laser optics; femtosecond laser; filamentation; plasma channel; excited molecules

OCIS codes 140.3538; 190.5530; 190.3270; 320.2250

1 引言

飞秒激光脉冲在传播过程中,当克尔自聚焦效应和等离子体散焦效应达到动态平衡时,会形成稳定的等离子体通道,又被称为成丝^[1-4]。成丝过程中会发生太赫兹辐射^[5-6]、超连续谱产生^[7-8]、荧光发射^[9-11]等非线性过程。基于丝的特性以及成丝过程中发生的各种非线性效应,飞秒激光成丝在高精细加工^[12-13]、人工降雨^[14-15]、远程探测^[16-17]、激光引雷^[18-19]等领域有着重要应用,这些应用大多是在大气环境中开展的。在实际大气环境中,涉及到的海拔也会不同。对于高层大气,存在着各种波段的电磁波辐射,尤其是在短波长电磁波的作用下,其中的气体分子很容易被激发到较高的能级,从而使部分分子处于激发态。处于激发态的分子电离能很小,其光电离截面大,即便在较弱的激光场的作用下也容易发生电离。当飞秒激光脉冲在其中传播时,一开始就会产生大量等离子体,影响飞秒激光脉冲的自聚焦过程。因此,当气体中含有一定量的处于激发态的分子时,飞秒激光脉冲在其中传播时,必然会呈现与不包含激发态分子气体不同的现象。不过,在过

收稿日期: 2017-03-28; **收到修改稿日期:** 2017-04-25

基金项目: 国家 973 计划(2013CB922200)、国家自然科学基金(11474129)

作者简介: 李苏宇(1987—),男,博士,助理研究员,主要从事激光等离子体中的原子与分子物理方面的研究。

E-mail: suyul1@mails.jlu.edu.cn

* **通信联系人.** E-mail: dhfei@jlu.edu.cn

去的二十多年间,人们主要关注的是飞秒激光脉冲在中性介质中的传播^[1-2,20],目前,还没有关于飞秒激光脉冲在部分激发的气体中传播的报道。

只有当飞秒激光脉冲的初始功率大于自聚焦临界功率时,成丝现象才会发生。由于介质的非线性折射率系数与气压成正比,飞秒激光的初始功率随着气压的减小而增大,因此气压的改变会影响飞秒激光传播过程,这已经被大量的理论和实验研究证实^[21-24]。氧气和氮气是空气的主要成分,氧气由于其电离能低,在相同入射激光的作用下,其多光子电离过程所需的光子数更小,更容易发生电离和激发等过程,对飞秒激光脉冲成丝过程的影响更大。因此,本文选取氧气分子作为研究对象。为了更加真实地反映飞秒激光脉冲的传播过程,需要研究不同气压下,激发态分子对飞秒激光脉冲传播及成丝的影响。本文通过数值求解传播方程,对飞秒激光脉冲在含有激发态氧分子的空气中的传播过程进行了研究。

2 理论模型及方法

对于氧气来说,其基态电离能 $U_0 = 12.063$ eV,第一激发态(在这里仅考虑 2s 态)电离能为 $U_{0(1st)} = U_0/4 = 3.016$ eV。对于 800 nm 激光脉冲,单个光子的能量为 1.55 eV,仅需要两个光子就可以使处于第一激发态的氧原子电离。多光子电离截面可以通过以下公式给出^[1,25]:

$$\sigma_K = \omega_{a.u.} \frac{4^{2n^*}}{\pi\sqrt{2}} |C_{n^*,l^*}|^2 \frac{U_i}{2U_H} v_0^{2n^*+2K-3/2} \exp(2K - v_0) \Phi_0[\sqrt{2(K - v_0)}] \frac{1}{I_0^K}, \quad (1)$$

式中 $\omega_{a.u.} = eE_H/\sqrt{2mU_H} \approx 4.135 \times 10^{16} \text{ s}^{-1}$, $E_H = e^5 m^2/h^4 (4\pi\epsilon_0)^3 \approx 514.225 \text{ GV/m}$, $E_0 = E_H \times$

$(U_i/U_H)^{3/2}$ (U_i 和 U_H 分别为给定原子和氢原子的电离能, h 为约化普朗克常量), $|C_{n^*,l^*}|^2 = \frac{2^{2n^*}}{n^* \Gamma(2n^*)} [n$ 和

l 分别为主量子数和角量子数, $n^* = n - \delta_l$ 和 $l^* = l - \delta_l$ 为相应的有效量子数, $\delta_l = n - (U_i/U_H)^{-1/2}$ 为量子数亏损], Γ 表示伽马函数。 $\kappa = K \equiv \text{mod}(v_0 + 1)$ 为多光子电离过程所需的最少光子数,其中 $v_0 \equiv U_i/h\omega_0$, ω_0

为激光中心圆频率。 $\Phi_m(x) = \frac{x^{2|m|+1}}{2} \int_0^1 \frac{\exp(-x^2 t) t^{|m|}}{\sqrt{1-t}} dt = \exp(-x^2) \int_0^x (x^2 - y^2)^{|m|} \exp(y^2) dy$, 常量

$f(l, m) = \frac{(2l+1)(l+|m|)!}{2^{|m|} (|m|)! (l-|m|)!}$ (m 为磁量子数), 对于本研究考虑的情形, $l = m = 0$, $f(0, 0) = 1$ 。需要

说明的是,文献中以氢原子作为参考原子,在计算处于第一激发态氧原子的多光子电离截面的时候,需要用氢原子第一激发态能量作为参考,即 $U_{H(1st)} = 3.4$ eV。通过以上公式计算得到氧原子第一激发态的双光子电离截面 $\sigma_2 = 4.28 \times 10^{-22} \text{ m}^4 \cdot \text{W}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$,而对于处于基态的氧原子,其多光子电离截面为 $\sigma_8 = 3.77 \times 10^{-128} \text{ m}^{16} \cdot \text{W}^{-8} \cdot \text{s}^{-1}$ 。需要说明的是,本研究将氧原子的多光子电离截面用于计算氧分子的电离,实现对飞秒激光脉冲在含有激发态氧分子的气体中传播的定性分析。严格意义上,不能这么处理,这是因为氧分子经过解离才能产生氧原子,氧分子和氧原子的电离能是存在差别的。不过,由于计算氧分子的多光子电离很繁琐,在大部分工作中均利用氧原子的电离能和多光子电离截面研究成丝过程^[1]。本研究也做了这种近似,即利用激发态氧原子替代激发态氧分子。

通过数值求解描述激光传播的非线性薛定谔方程(NLSE),对飞秒激光脉冲在气体介质中传播过程进行研究:

$$\frac{\partial E}{\partial z} = \frac{i}{2k_0} T^{-1} \left(\frac{\partial^2}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \right) E - \frac{ik''}{2} \frac{\partial^2 E}{\partial \tau^2} + ik_0 n_2 T |E|^2 E - \frac{\sigma}{2} (1 + i\omega_0 \tau_c) T^{-1} \rho_e E - \frac{1}{2} \sum_s K_s \hbar \omega_0 \sigma_{K_s} (\rho_s - \rho_{e,s}) |E|^{2K_s-2} E, \quad (2)$$

式中 r 为光束半径, ρ_e 为电子密度; τ 是延迟时间变量, $\tau = t - z/v_g$ ($v_g = \partial\omega/\partial k|_{\omega_0}$), $k_0 = 2\pi/\lambda_0$ 和 $\omega_0 = 2\pi c/\lambda_0$ 分别为波矢和中心角频率, c 为真空中光速。方程右边第一项表示光束的横向衍射,第二项表示群速度色散 GVD 效应,其中 $k'' = \partial^2 k/\partial\omega^2|_{\omega_0}$ 为 GVD 系数,第三项为等离子体散焦(虚部,其中 σ 是逆轭致辐射截面, τ_c 是电子碰撞时间)和等离子体吸收(实部), n_2 表示介质的非线性折射率系数(即克尔系数)。最后一项表示多光子吸收,其中 $\beta_K = K\hbar\omega_0 n_{\text{air}} \sigma_K$ 为多光子吸收系数, σ_K 为多光子电离系数。 $K = \text{mod}(U/h\omega_0 + 1)$ 为

多光子电离所需最少的光子数, U 为电离能。克尔效应项中的算符 $T = 1 + (i/\omega_0)\partial_\tau$ 表示自陡峭效应, 而 $T^{-1} = 1 - (i/\omega_0)\partial_\tau$ 表示空间-时间聚焦效应。需要指出的是, 在多光子吸收项(方程右边最后一项)中, s 表示气体种类。

电子密度 ρ_e 可由以下公式计算:

$$\frac{\partial \rho_e}{\partial \tau} = \sum_s \sigma_{K_s} (\rho_s - \rho_{e,s}) |E|^{2K_s}. \quad (3)$$

考虑氧气和处于第一激发态氧分子的电离, 其中氧气密度为 $\rho_o = 5 \times 10^{24} \text{ m}^{-3}$, 处于第一激发态的氧分子的密度为 $\rho_o^{(1st)} = \rho_o \times \eta$, η 为处于第一激发态分子所占的比重。采用氧气的非线性折射率系数即 $n_{2,o} = 1.6 \times 10^{-23} \text{ m}^2/\text{W}^{[26]}$ 。但由于激发态氧原子相关数据的缺乏, 为了定性研究部分激发的空气中的成丝, 将气体全部为激发态氧原子情况下的非线性折射率取为 $n_{2,o}^{(1st)} = 2.0 \times 10^{-22} \text{ m}^2/\text{W}$, 比处于基态的氧原子大了一个量级。因此总的非线性折射率为 $n_2 = n_{2,o}^{(1st)} \times \eta + (1 - \eta) \times n_{2,o}$ 。另一方面由于第一激发态氧原子的折射率与氧原子不同, 其 GVD 系数也与氧原子不同, 但由于 GVD 效应对低压情形的影响不大^[10], 即便 GVD 效应明显, 其对成丝之后的传播影响较小, 在这里就没考虑第一激发态氧原子的 GVD 效应。GVD 系数取为空气的参数, 即: $k'' = 2 \times 10^{-29} \text{ s}^2/\text{m}$ 。

虽然处于激发态的分子在激光的作用下, 很快发生电离, 产生等离子体, 但本研究假设仅有很少的分子处于激发态, 对电子碰撞以及逆韧致辐射等过程的影响可以忽略。因此, 本研究选取了参考文献[1]给出的电子碰撞时间和逆韧致辐射截面的数据, 即 $\tau_c = 3.5 \times 10^{-13} \text{ s}$ 和 $\sigma = 5.1 \times 10^{-24} \text{ m}^2$ 。这些是常压下的数据, 在涉及其他气压时, 会考虑这些参数与气压的关系: $n_2(p) = n_2(p_0) \times p$, $\tau_c(p) = \tau_c(p_0)/p$, $\sigma(p) = \sigma(p_0) \times \frac{p [1 + \omega_0^2 \tau_0^2(p_0)]}{p^2 + \omega_0^2 \tau_0^2(p_0)}$, $k''(p) = k''(p_0) \times p$ 和 $\beta_K(p) = \beta_K(p_0) \times p^{[21]}$ 。在计算中, 所采用的激光初始包络为 $E(r, t) = \sqrt{I_0} \exp(-r^2/\omega_0^2) \exp(-t^2/\tau_p^2)$, 其中 I_0 表示初始激光强度, 本研究中光束半径选为 $\omega_0 = 1.3 \text{ mm}$, 激光脉宽选为 $\tau_p = 70 \text{ fs}$ 。

3 结果与讨论

在计算中, 选取激发态分子所占比重 η 为 0%, 0.1%, 0.5%, 1.0%, 5.0% 和 10.0%, 分别研究了飞秒激光脉冲在其中的传播, 如图 1 所示, 实验时气压为 1 atm (1 atm = 101.325 kPa), 初始激光强度为 1 TW/cm²。通过计算多光子电离速率的公式 $W = \sigma_K I^K$ (I 为最大光强) 可知, 对于本研究采用的初始激光强度 $I_0 = 1 \text{ TW/cm}^2$, 处于激发态的氧分子电离速率比处于基态的氧分子大了约 10 个数量级, 说明激发态分子容易发生电离。从图 1(b) 可以看出, 在相同的激光作用下, 随着 η 的增大, 在传播初期电离产生的等离子体增多, 其散焦作用增大, 对克尔自聚焦效应起到了抑制作用, 以至于激光强度增加和光束尺寸减小变得缓慢[图 1(a) 和 (c)], 自聚焦发生溃缩的位置增大[图 1(a) 和 (b)]。这种对溃缩的抑制作用也使得激光脉冲所能达到的最大强度减小, 以至于在脉冲溃缩发生之后, 等离子体密度的最大值也变小。此外, 随着 η 的增大, 电离消耗的能量也会增多, 如图 1(d) 所示, 因此相同能量的激光脉冲所能维持的成丝长度越短。这些现象表明当气体介质中含有处于激发态的分子时, 会对飞秒激光的传播以及成丝过程造成不利影响。

当 η 达到一定值(如 $\eta = 5\%$) 时, 激光脉冲入射之后会产生大量等离子体, 这会导致出现等离子体散焦作用强于克尔自聚焦效应的情形。在这种情况下, 随着传播距离的增加 ($z < 1 \text{ m}$), 激光强度呈现减小的趋势[图 1(a) 中加粗的蓝色划线], 等离子体密度也相应减小[图 1(b) 中加粗的蓝色划线]。此外, 由于等离子体散焦作用的增强, 光束半径不但没有减小反而逐渐增大, 如图 1(c) 中的蓝色划线所示。不过, 当激光强度减小到一定程度后, 等离子体密度也相应减小, 克尔自聚焦作用又会强于等离子体的散焦作用, 使激光脉冲的强度增大, 电子密度增加, 光束半径减小。不过, 由于存在大量等离子体, 在激光强度很小的时候, 等离子体散焦就与克尔自聚焦达到了平衡, 光强很小, 如图 1(a) 中加粗的蓝色划线所示。这些现象表明, 当气体中含有大量激发态分子时, 飞秒激光脉冲不能在其中成丝。

需要特别说明的是, 由于采用的激光初始空间包络为高斯型, 峰值附近电离产生的等离子体大于两端, 会导致这样的结果: 脉冲中心处等离子体散焦作用强于克尔自聚焦, 两端则相反, 其结果是脉冲峰值处的强

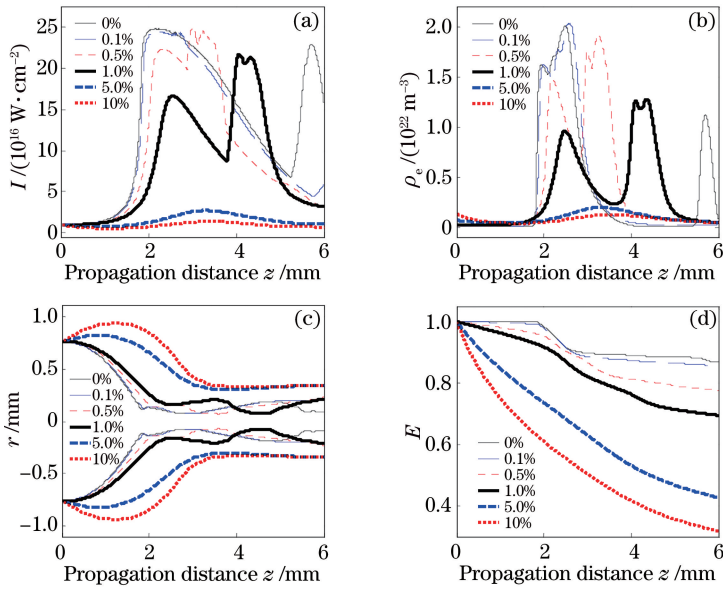


图 1 气压为 1 atm 时,不同 η 下飞秒激光脉冲在空气传播过程中(a)最大光强 I , (b)轴上电子密度 ρ_e , (c)光束半径 r 和(d)能量 E 的演化

Fig. 1 Evolution of (a) maximum intensity I , (b) on-axis electron density ρ_e , (c) beam radius r and (d) energy E of femtosecond laser pulse propagating in air with different η while the air pressure is 1 atm

度减小,两端强度增大,很快出现了空间上的劈裂,如图 2(d)所示(图 2 实验时气压为 1 atm,初始激光强度为 1 TW/cm^2)。此外,从图 2(a)~(f)可以看出,随着 η 的增大,激光脉冲在空间上的劈裂程度也会增大,以至于在 $\eta=5\%$ 时,光束在空间上完全劈裂开来。利用这一性质,可以通过一束初始高斯光束制备实验所需的环状光束^[27]。

对于在介质中传播的激光脉冲,其折射率为 $n = n_0 + n_{\text{Kerr}} - n_p$,其中 $n_0 \approx 1$, $n_{\text{Kerr}} = n_2 I(r, t)$ 和 $n_p = \rho_e(r, t)/(2\rho_c)$ 分别表示空气折射率、非线性克尔折射率和等离子体折射率, ρ_c 为等离子体临界密度。对于不包含激发态分子的氧气,在脉冲自聚焦发生溃缩之前,克尔自聚焦效应强于等离子体散焦作用: $n_{\text{Kerr}} > n_p$ 。由于通常采用的激光脉冲在时域上是高斯型的,脉冲中心的折射率会大于脉冲前、后沿的折射率,这样脉冲前后沿的传播速度大于脉冲峰值的传播速度,使得脉冲后沿逐渐赶上脉冲峰值,从而形成很陡峭的后沿,使脉冲的时域形状变得不对称,如图 3(a)所示(图 3 实验时气压为 1 atm,初始激光强度为 1 TW/cm^2)。这就是通常所指的自陡峭效应^[1,28-30],这种现象在固体介质中更为明显^[28]。

在激光脉冲发生溃缩时,等离子体密度会急剧增加,使得脉冲峰值 $n_p > n_{\text{Kerr}}$,由于等离子体寿命在纳秒量级,远大于飞秒激光脉冲的持续时间,可以认为脉冲后沿和峰值处的离子体密度相同,因此对于脉冲后沿也有 $n_p > n_{\text{Kerr}}$ 。在这种情况下,脉冲峰值和后沿速度大于前沿速度,因此后沿会逐渐赶上前沿,使得激光脉冲在传播过程中,其峰值发生明显的时域前移,如图 3(a)所示。而较大的等离子体密度正是导致溃缩之后峰值发生前移的原因,如果在激光脉冲传播的初始阶段等离子体密度就比较大,脉冲峰值会不会更快地前移呢?为了解决这个问题,图 3(a)~(f)给出了 η 为 0%, 0.1%, 0.5%, 1.0%, 5.0% 和 10.0% 时,轴上强度 $I(t, z)$ 随传播距离和时间的演化。从图 3(b)可以看出,当 $\eta=0.1\%$ 时,几乎与不含有激发态分子气体的情形[图 3(a)]相同。不过,当 $\eta=0.5\%$ 时,在脉冲刚发生溃缩位置处,其峰值就已经发生时域前移了[图 3(c)],这在 $\eta=1.0\%$ 时更为明显[图 3(d)]。对于这一现象,解释如下:随着 η 的增加,脉冲峰值和后沿处会有更多的等离子体,使它们的折射率进一步减小,因而脉冲峰值和后沿传播得更快,导致脉冲峰值更快地前移。当 η 大到一定值之后,激光脉冲不能在其中成丝,其峰值的时域前移更为明显,如图 3(e)和(f)所示。

从图 3(a)~(d)还可以看到,在传播过程中,脉冲会发生时域上的劈裂。不过,随着 η 的增加,脉冲发生劈裂的位置明显延后了。在不含有激发态氧分子时,脉冲在 $z=2.1 \text{ m}$ 附近发生劈裂,如图 3(a)所示,而当 $\eta=1\%$ 时,脉冲发生时域劈裂的位置却在 $z=3.8 \text{ m}$ 附近。

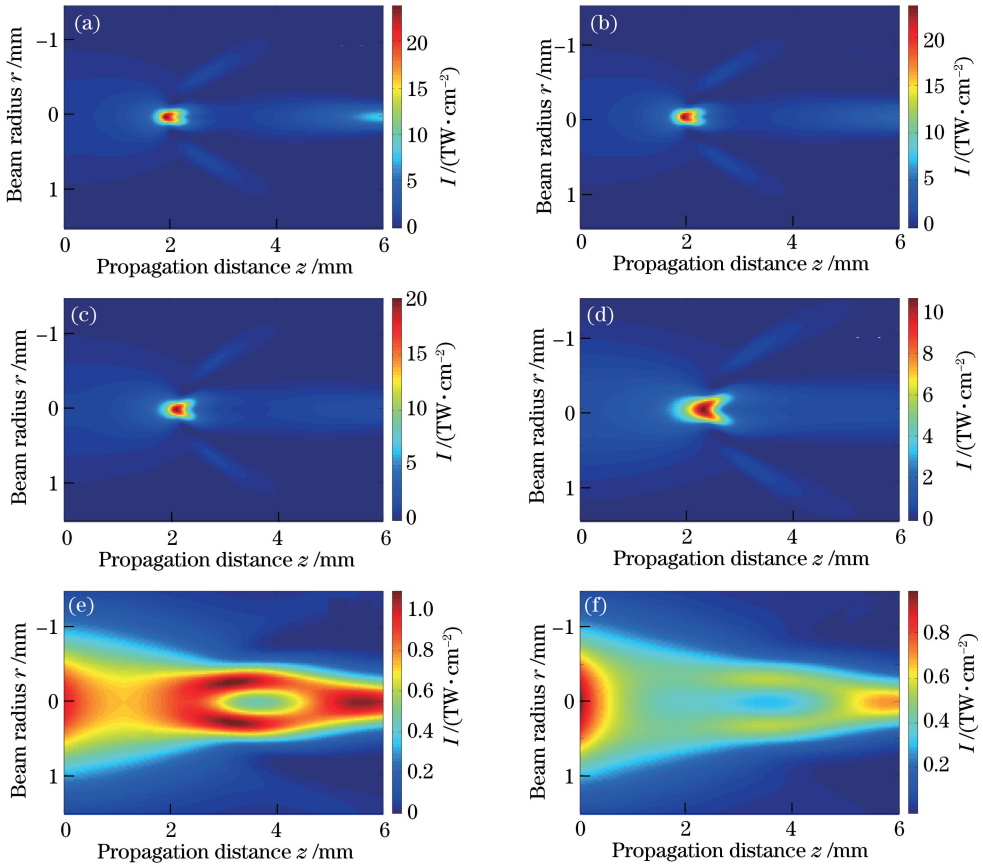


图 2 气压为 1 atm, η 分别为 (a) 0%, (b) 0.1%, (c) 0.5%, (d) 1.0%, (e) 5.0% 和 (f) 10.0% 时, 激光强度 $I(r, z)$ 在 $t=0$ 时刻的空间分布

Fig. 2 Spatial distribution of laser intensity $I(r, z)$ at $t=0$ moment while the air pressure is 1 atm and η is (a) 0%, (b) 0.1%, (c) 0.5%, (d) 1.0%, (e) 5.0% and (f) 10.0%, respectively

在人们生活的环境中,空气始终处于中性,不会存在激发态分子,在其中产生大量激发态分子比较困难。不过,对于高层大气,由于存在着各种波段的电磁波辐射,在短波长电磁波的作用下,空气中的分子很容易被激发到较高的能级,从而处于较为稳定的激发态。为了更加真实地反映成丝过程,接下来,选取气压为 0.2 atm 的情形,对飞秒激光脉冲在其中的传播进行数值模拟。气压 p 和海拔 h 之间的关系满足: $p = p_0 \exp[-(h - h_0)/h_p]$, 其中 $h_p = RT/Mg \approx 8$ km, 其中 $p_0 = 1$ atm 和 $h_0 = 0$ km 分别为海平面处的气压和海拔^[23]。气压为 0.2 atm 时对应的海拔约为 $h = 12.8$ km。由于自聚焦临界功率 $P_{cr}(p)$ 与压强成反比,即 $P_{cr}(p) = P_{cr}(p_0)/p$, 此处采用文献[21]的处理方法,即保持 $P_{in}(p)/P_{cr}(p)$ 和 ω_0 的值固定,其中 $P_{in}(p)$ 为压强为 p 时激光的入射功率, ω_0 为激光光束的初始半径。这样,两种气压下的自聚焦收缩距离 L_c 几乎相同,更方便研究。由于脉宽和光束半径保持不变,因此在气压为 0.2 atm 时,激光的入射强度为 $I_0 = 5$ TW/cm²。

图 4 给出了气压为 0.2 atm、激光的初始强度为 5 TW/cm² 的情况下, η 分别为 0%, 0.1%, 0.5%, 1.0%, 5.0% 和 10.0% 时, 最大光强、轴上电子密度、光束半径和激光能量随传播距离 z 的演化。通过对比图 4 和图 1, 可以看到激光最大强度几乎没有变化, 等离子体密度仅为常压下 1/5 左右, 光束半径也增大了, 这与前人的结果一致^[21-24]。而且当 $\eta = 5.0\%$ 和 10.0% 时, 也不能成丝。不过, 在这两种情况下, 依然存在一个明显的差别: 在常压下, 脉冲溃缩的位置均在 $z = 2.0$ m 附近, 只是随着 η 的增加, 脉冲溃缩位置略微地增大了, 例如, 当 $\eta = 1\%$ 时, $L_c \approx 2.4$ m; 而在低压情况下, 随着 η 的增加, 脉冲溃缩位置明显增大了, 例如, 当 $\eta = 0.1\%$ 时, $L_c \approx 2.0$ m; 而当 $\eta = 1.0\%$ 时, $L_c \approx 4.0$ m。

从图 5 可以看到在低压情况下, 当空气中不含有激发态氧分子时, 脉冲在空间上就已经出现了明显的劈裂, 这与常压下的情况存在着明显的差异。而在含有激发态氧分子之后, 劈裂更加明显。这表明在低压情况下更容易通过飞秒激光成丝制备环状光束。而在 η 达到一定值(如 5%)之后, 激光脉冲在传播的初始阶段

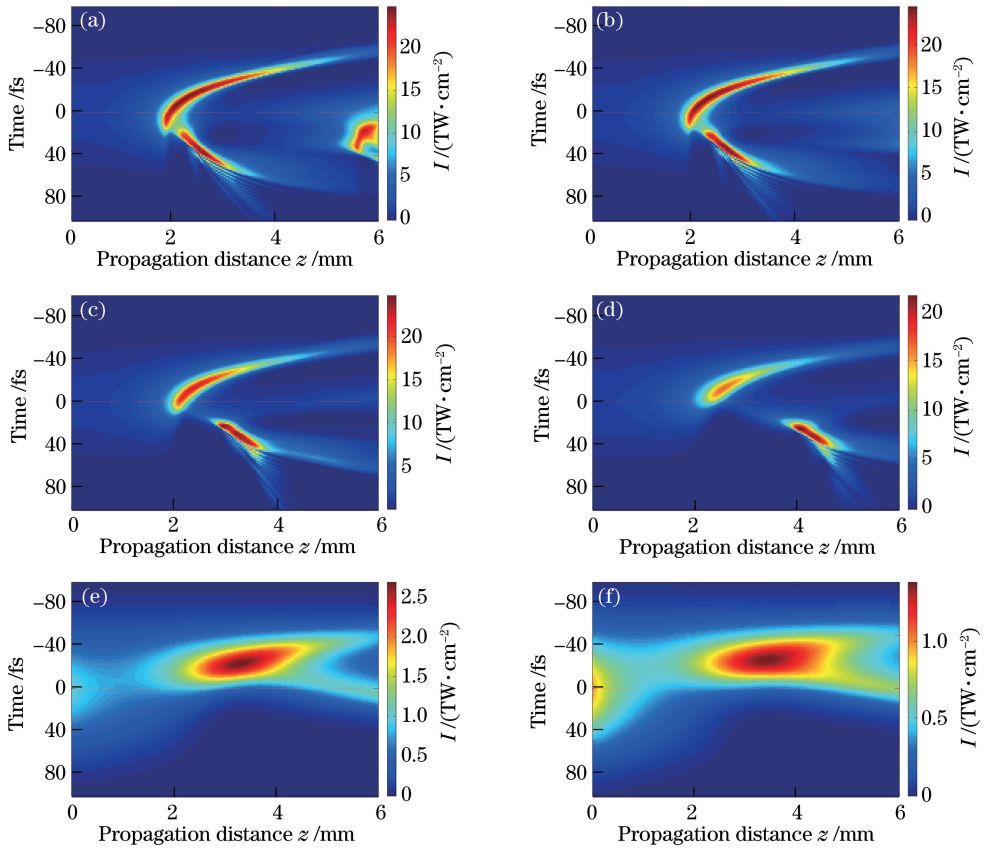


图 3 气压为 1 atm, η 分别为(a) 0%, (b) 0.1%, (c) 0.5%, (d) 1.0%, (e) 5.0%和(f) 10.0%时, 轴上强度 $I(t, z)$ 随传播距离和时间的演化

Fig. 3 Evolution of the on-axis intensity $I(t, z)$ with time and propagation distance while the air pressure is 1 atm and η is (a) 0%, (b) 0.1%, (c) 0.5% (d) 1.0%, (e) 5.0% and (f) 10.0%, respectively

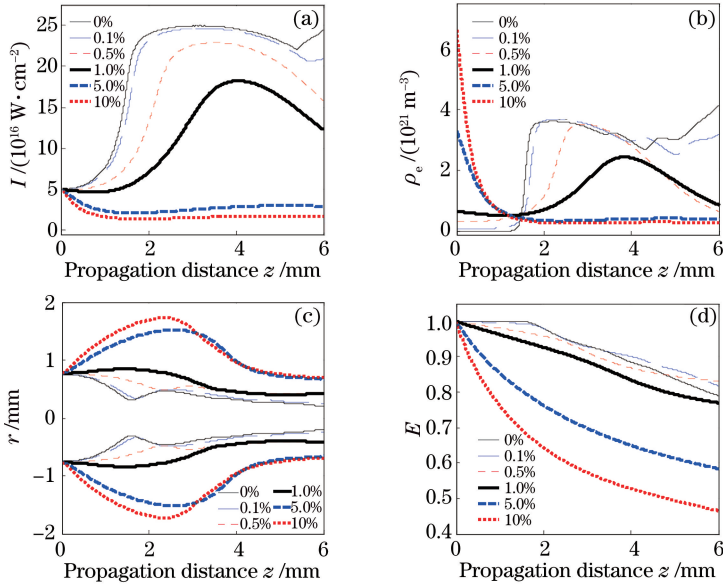


图 4 气压为 0.2 atm 时, 不同 η 下飞秒激光脉冲在空气传播过程中(a)最大光强 I , (b)轴上电子密度 ρ_e , (c)光束半径 r 和(d)能量 E 的演化

Fig. 4 Evolution of (a) maximum intensity I , (b) on-axis electron density ρ_e , (c) beam radius r and (d) energy E of femtosecond laser pulse propagating in air with different η while the air pressure is 0.2 atm

就在空间上劈裂,如图 5(e)和(f)所示。此外,一般情况下,只有在激光脉冲发生溃缩之后,脉冲才会在空间上出现劈裂,如图 2(a)~(d)以及 5(a)和(b)所示。不过对于气压较低的情形,却并非如此:当 $\eta=1.0\%$ 时,激光强度在 $z=4$ m 附近才达到了最大值,如图 4(a)所示,不过在 $z=2$ m 附近激光脉冲就已经在空间上发生了明显的劈裂,如图 5(d)所示,这完全不同于常压下的情形。

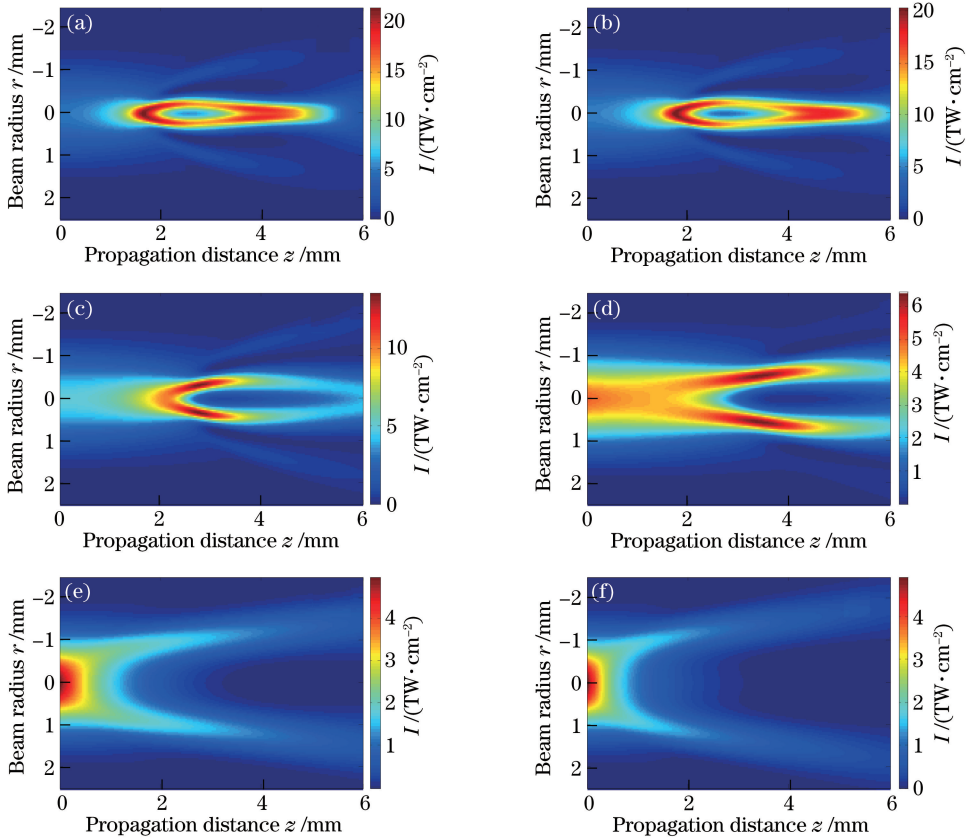


图 5 气压为 0.2 atm, η 分别为(a) 0%, (b) 0.1%, (c) 0.5%, (d) 1.0%, (e) 5.0%和(f) 10.0%时, 激光强度 $I(r, z)$ 在 $t=0$ 时刻的空间分布

Fig. 5 Spatial distribution of laser intensity $I(r, z)$ at $t=0$ moment while the air pressure is 0.2 atm and η is (a) 0%, (b) 0.1%, (c) 0.5%, (d) 1.0%, (e) 5.0% and (f) 10.0%, respectively

图 6 给出了气压为 0.2 atm, 激光的初始强度为 $5 \text{ TW}/\text{cm}^2$ 的情况下, η 分别为 0%, 0.1%, 0.5%, 1.0%, 5.0%和 10.0%时, 轴上强度 $I(t, z)$ 随传播距离和时间的演化。从图 6 中可以看到, 相比于常压的情形, 脉冲峰值时域前移的现象更为明显, 在 $\eta=0.1\%$ 时就与 $\eta=0$ 时的情形有了差异, 如图 6(b) 所示。随着 η 的增加, 在脉冲发生溃缩的位置处, 其峰值前移更为明显, 如图 6(c) 和(d) 所示。此外, 当 η 为 0.5%和 1.0%时, 脉冲在时域上不会出现劈裂, 如图 6(c) 和(d) 所示, 这与常压下的结果有着明显的差别。

4 总 结

本研究数值模拟了飞秒激光脉冲在含有激发态氧分子的空气中的成丝。研究表明当空气中含有激发态分子时, 飞秒激光脉冲在其中的传播过程会受到影响。由于激发态分子容易电离, 当其所占比重 η 越大时, 产生的等离子体越多, 等离子体散焦作用越强, 会导致溃缩位置的增大; 同时消耗的能量也越多, 丝的长度大大减小。这些都不利于激光的远距离传播。通过分析激光强度的时间和空间分布发现: 在空间上, 脉冲会发生劈裂, 随着 η 的增加, 劈裂程度越大, 利用这一性质可以制备环状光束, 产生环状等离子体波导; 而在时间上, 脉冲在传播过程中会发生自陡峭, 而且脉冲后沿和峰值位置都会向脉冲前沿移动, 使脉冲峰值发生时域上的前移, 而且 η 越大, 峰值前移越明显, 此外, 随着传播距离的增加, 脉冲在时域上也会发生劈裂。而当气压降低时, 观察到的结果会有所不同: 在空间上的劈裂更为明显, 而且当 η 增大到一定值(1.0%)之后, 激光

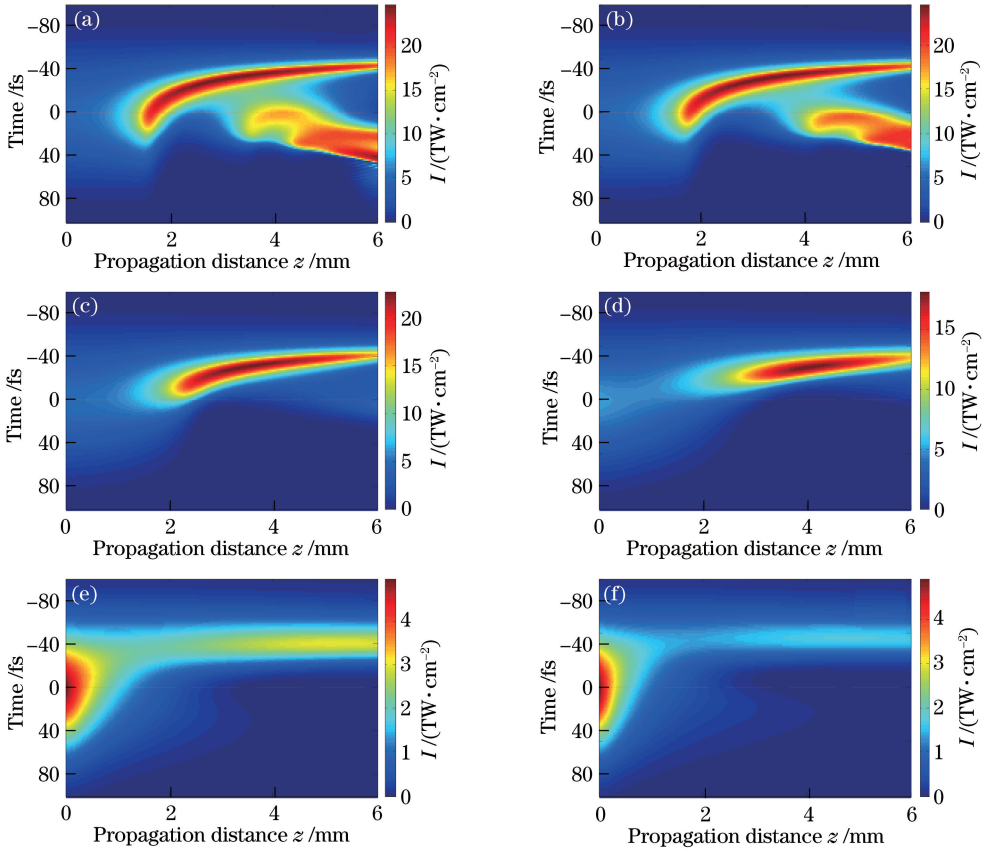


图 6 气压为 0.2 atm, η 分别为(a) 0%, (b) 0.1%, (c) 0.5%, (d) 1.0%, (e) 5.0%和(f) 10.0%时, 轴上强度 $I(t, z)$ 随传播距离和时间的演化

Fig. 6 Evolution of the on-axis intensity $I(t, z)$ with time and propagation distance while the air pressure is 0.2 atm and η is (a) 0%, (b) 0.1%, (c) 0.5% (d) 1.0%, (e) 5.0% and (f) 10.0%, respectively

脉冲在溃缩之前就发生了劈裂;而在时间上,在 η 较小(0.1%)的情况下就已经能够促进脉冲峰值的前移,而且当 η 较大(0.5%和 1.0%)时,脉冲不会出现时域上的劈裂。

参 考 文 献

- [1] Couairon A, Mysyrowicz A. Femtosecond filamentation in transparent media[J]. Physics Reports, 2007, 441: 47-189.
- [2] Chin S L. Femtosecond laser filamentation[M]. New York: Springer, 2010.
- [3] Li S Y, Guo F M, Yang Y J, *et al.* Defocusing role in femtosecond filamentation: higher-order Kerr effect or plasma effect?[J]. Chinese Physics B, 2015, 24(11): 114207.
- [4] Li S, Jin M. Group velocity dispersion effect on the collapse of femtosecond laser pulses in air: a revised form for Marburger's law[J]. Chinese Optics Letters, 2015, 13(12): 121901.
- [5] Zhao J, Chu W, Wang Z, *et al.* Strong spatial confinement of terahertz wave inside femtosecond laser filament[J]. ACS Photonics, 2016, 3(12): 2338-2342.
- [6] Zhang Z, Chen Y, Chen M, *et al.* Controllable Terahertz radiation from a linear-dipole array formed by a two-color laser filament in air[J]. Physical Review Letters, 2016, 117(24): 243901.
- [7] Zhang L, Xi T, Hao Z, *et al.* Supercontinuum accumulation along a single femtosecond filament in fused silica[J]. Journal of Physics D: Applied Physics, 2016, 49(11): 115201.
- [8] Jang D G, Nam I H, Kim M S, *et al.* Generation of broadband supercontinuum light by double-focusing of a femtosecond laser pulse in air[J]. Applied Physics Letters, 2015, 107(13): 131105.
- [9] Shi Y, Chen A, Jiang Y, *et al.* Influence of laser polarization on plasma fluorescence emission during the femtosecond filamentation in air[J]. Optics Communications, 2016, 367(15): 174-180.
- [10] Li H, Jiang Y, Li S, *et al.* Research on the fluorescence emission from water vapor induced by femtosecond

- filamentation in air[J]. *Chemical Physics Letters*, 2016, 662(1): 188-191.
- [11] Li H, Li S Y, Li S C, *et al.* Nitrogen fluorescence induced by the femtosecond intense laser pulses in air[J]. *High Power Laser Science and Engineering*, 2016, 4(e7): 1-7.
- [12] Zhang Yanjie, Song Haiying, Liu Haiyun, *et al.* Fabrication of millimeter-scaled holes by femtosecond laser filamentation[J]. *Chinese J Lasers*, 2017, 44(4): 0402012.
张艳杰, 宋海英, 刘海云, 等. 飞秒激光成丝制备毫米级深孔[J]. *中国激光*, 2017, 44(4): 0402012.
- [13] Cao Xiaowen, Zhang Lei, Yu Yongsan, *et al.* Application of micro-optical components fabricated with femtosecond laser[J]. *Chinese J Lasers*, 2017, 44(1): 0102004.
曹小文, 张 雷, 于永森, 等. 飞秒激光制备微光学元件及其应用[J]. *中国激光*, 2017, 44(1): 0102004.
- [14] Rohwetter P, Kasparian J, Stelmasczyk K, *et al.* Laser-induced water condensation in air[J]. *Nature Photonics*, 2010, 4: 451-456.
- [15] Liu Y, Sun H, Liu J, *et al.* Laser-filamentation-induced water condensation and snow formation in a cloud chamber filled with different ambient gases[J]. *Optics Express*, 2016, 24(7): 7364-7373.
- [16] Kasparian J, Rodriguez M, Méjean G, *et al.* White light filaments for atmospheric analysis[J]. *Science*, 2003, 301(5629): 61-64.
- [17] Xu H, Cheng Y, Chin S L, *et al.* Femtosecond laser ionization and fragmentation of molecules for environmental sensing[J]. *Laser & Photonics Reviews*, 2015, 9(3): 275-293.
- [18] Du Shengzhe, Zhu Zhongbin, Liu Yaoxiang, *et al.* Optimization of femtosecond laser guided corona discharges[J]. *Chinese J Lasers*, 2017, 44(6): 0601009.
杜盛喆, 朱忠彬, 刘尧香, 等. 飞秒激光诱导电晕放电的优化设计研究[J]. *中国激光*, 2017, 44(6): 0601009.
- [19] Rodriguez M, Sauerbrey R, Wille H, *et al.* Triggering and guiding megavolt discharges by use of laser-induced ionized filaments[J]. *Optics Letters*, 2002, 27(9): 772-774.
- [20] Chin S L, Wang T J, Marceau C, *et al.* Advances in intense femtosecond laser filamentation in air[J]. *Laser Physics*, 2011, 22(1): 1-53.
- [21] Li S Y, Guo F M, Song Y, *et al.* Influence of group-velocity-dispersion effects on the propagation of femtosecond laser pulses in air at different pressures[J]. *Physical Review A*, 2014, 89(2): 023809.
- [22] Qi X, Ma C, Lin W. Pressure effects on the femtosecond laser filamentation[J]. *Optics Communications*, 2016, 358: 126-131.
- [23] Couairon A, Franco M, Méchain G, *et al.* Femtosecond filamentation in air at low pressures: part I: theory and numerical simulations[J]. *Optics Communications*, 2006, 259: 265-273.
- [24] Hu Y, Nie J, Ye Q, *et al.* Femtosecond laser filamentation with different atmospheric pressure gradients[J]. *Optik-International Journal for Light and Electron Optics*, 2016, 127(23): 11529-11533.
- [25] Perelomov A M, Popov V S, Terent'ev M V. Ionization of atoms in an alternating electric field[J]. *Journal of Experimental & Theoretical Physics*, 1966, 23(5): 924-934.
- [26] Loriot V, Hertz E, Faucher O, *et al.* Measurement of high order Kerr-refractive index of major air components[J]. *Optics Express*, 2009, 17(16): 13429-13434.
- [27] Scheller M, Mills M S, Miri M A, *et al.* Externally refuelled optical filaments[J]. *Nature Photonics*, 2014, 8: 297-301.
- [28] Rothenberg J E. Space-time focusing: breakdown of the slowly varying envelope approximation in the self-focusing of femtosecond pulses[J]. *Optics Letters*, 1992, 17(19): 1340-1342.
- [29] DeMartini F, Townes C H, Gustafson T K, *et al.* Self-steepening of light pulses[J]. *Physical Review*, 1967, 164(2): 312-323.
- [30] Moses J, Malomed B A, Wise F W. Self-steepening of ultrashort optical pulses without self-phase-modulation[J]. *Physical Review A*, 2007, 76(2): 021802(R).