

飞秒激光人工影响天气的物理机理及研究进展

鞠晶晶¹, 刘建胜^{1,2*}, 孙海轶¹, 李儒新¹, See Leang Chin³, 徐至展¹

¹中国科学院上海光学精密机械研究所强场激光物理国家重点实验室, 上海 201800;

²上海师范大学物理系, 上海 200234;

³拉瓦尔大学光学、光子学和激光研究中心(COPL), 加拿大 魁北克 G1V 0A6

摘要 综述了飞秒激光人工影响天气的相关研究结果。从飞秒激光成丝产生的光氧化副产物、热沉积效应、气溶胶形成和水凝结及沉降过程等 4 个方面展开, 综述了飞秒激光在诱导水凝结及降水、人工引雷等领域的研究进展。提出了飞秒激光人工影响环境大气的初步物理图像, 并综述了该技术未来应用于人工影响天气所面临的问题, 探讨了可能的解决方案。

关键词 非线性光学; 飞秒光丝; 光化学反应; 气溶胶; 水凝结

中图分类号 TN249

文献标识码 A

doi: 10.3788/CJL201946.0508004

Physical Mechanism and Research Progress of Femtosecond Laser Based Artificial Atmospheric Modulation

Ju Jingjing¹, Liu Jiansheng^{1,2*}, Sun Haiyi¹, Li Ruxin¹, See Leang Chin³, Xu Zhizhan¹

¹State Key Laboratory of High Field Laser Physics, Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China;

²Department of Physics, Shanghai Normal University, Shanghai 200234, China;

³Center for Optics, Photonics and Laser (COPL), Laval University, Quebec City, Quebec G1V 0A6, Canada

Abstract In this paper, the research works related to femtosecond laser based artificial atmospheric modulation are reviewed. The contents start by describing the research progress on photo-oxidation byproducts, energy deposition, aerosol formation, water condensation, and precipitation that are all induced by femtosecond filamentation. Subsequently, the research progresses on laser induced water condensation and precipitation as well as manual lightning control are reviewed. Finally, a preliminary physical picture of femtosecond laser based atmospheric modulation is proposed, and the technical challenges and their possible solutions towards the practical applications of artificial rainmaking in the future are discussed.

Key words nonlinear optics; femtosecond filamentation; photochemical reaction; aerosol; water condensation

OCIS codes 320.7110; 260.5210; 140.3450

1 引 言

1995 年, Braun 等^[1]报道了空气中近红外(775 nm)飞秒激光的成丝现象。此后几十年, 研究者们针对飞秒光丝的物理机理及其应用开展了大量的研究。宏观上, 在空气中, 飞秒光丝是一条长度远大于瑞利长度的亮白长丝, 其起始位置可通过操纵

激光参数来控制, 长度可以从几厘米持续至几百米^[2-6]。微观上, 飞秒光丝是光克尔自聚焦效应与等离子体自散焦(或高阶克尔效应)之间的动态平衡。空气中, 这一平衡将光丝内部的光强钳制在 5×10^{13} W/cm², 等离子体密度为 1×10^{16} cm⁻³^[1-5]。该过程利用非线性光克尔自聚焦效应克服光束衍射效应, 使得激光强度不断增大^[7]。当激光强度大于原

收稿日期: 2019-01-03; **修回日期:** 2019-01-29; **录用日期:** 2019-02-26

基金项目: 国家重点基础研究发展计划(2011CB808100)、国家自然科学基金(11425418, 61475167)、中国科学院战略性科技先导专项(B类)(XDB16)

* **E-mail:** michaeljs_liu@siom.ac.cn

子/分子内部原子核约束电子的库仑场强时,多光子电离或隧穿电离使得介质内原子/分子形成等离子体。激光脉冲前沿电离介质产生的等离子体会对脉冲后沿的相位进行调制,最终自相位调制效应使激光光谱得到展宽,特别是向短波蓝光方向的展宽,从而将初始近红外激光(常见为 800 nm 掺钛蓝宝石激光)的光谱拓宽至可见光波段,使得等离子体(光丝)区域肉眼可辨^[8]。脉冲过后,产生的等离子体可维持皮秒(ps)/纳秒(ns)量级的时间^[9],随后等离子体复合。介质电离吸收的激光能量以荧光、谐波等方式辐射,并以热沉积形式释放出来。热沉积的能量造成光丝区域急剧热膨胀,瞬时挤压周围空气,在微秒(μs)时间尺度上形成超声波/声波^[10]。随后超声波/声波衰减,排开空气形成寿命为毫秒(ms)量级的低密度空气通道。最后,低密度空气通道在热扩散作用下,恢复到激光入射之前的初始状态^[11]。等离子体在复合过程中,能量热沉积会带来介质的热扩散,等离子体与空气中中性原子/分子的碰撞会激发一系列复杂的光化学反应,生成光化学副产物^[12]。因此,除了肉眼可见的超连续白光辐射^[8],飞秒光丝还有指纹荧光辐射^[13]、三次/高次谐波产生^[14]、太赫兹(THz)辐射^[15]、臭氧(O_3)及氮氧化物等痕量气体产生^[12]等诸多特性。飞秒光丝的这些特性使其在远程遥感及污染物探测^[16]、脉冲压缩^[17]、产生 THz 源^[15]、空气波导^[10]、人工引雷^[18]及局部人工影响天气^[19]等诸多领域有着重要的潜在应用。

本文主要针对近年来飞秒激光非线性成丝在人

工影响天气领域的研究进展进行综述。重点介绍与飞秒激光非线性成丝诱导水凝结及降雪、人工引雷有关的光丝特性,以及这两个领域的最新研究进展。

2 基本原理

2.1 光氧化副产物的产生

对于高斯脉冲而言,当入射激光平均功率大于 $3.72\lambda_0^2/(8\pi n_0 n_2)$ (其中 λ_0 为入射激光波长, n_0 为线性折射率, n_2 为非线性折射率)时,激光场将影响介质折射率 n 的时空分布, $n = n_0 + n_2 I(r, t)$, 其中 $I(r, t)$ 为随空间和时间变化的入射激光强度。介质相对于激光场表现出类似微型凸透镜的自聚焦效应[图 1(a)]。激光束在介质的聚焦下,光强不断提高。当激光场强度足够强时,可迫使介质原子/分子同时吸收多个光子,或者压制原子/分子内部原子核束缚电子的库仑电势壁垒,促进原子内电子摆脱原子核束缚并经多光子电离或隧穿电离逃逸出来成为自由电子。最终形成的正负带电粒子均匀分布的物质形态称为等离子体。等离子体的产生,同样可以带来折射率的变化,折射率的变化 $\Delta n \approx -\rho_e/(2\rho_{cr})$ ^[2], 其中 ρ_e 为等离子体内部的自由电子密度, ρ_{cr} 为等离子体的临界密度。此时,等离子体相对于激光表现出犹如微型凹透镜的自散焦效应[图 1(b)],其随后平衡了介质光克尔“微型凸透镜”的自聚焦效应,阻止了自聚焦效应下激光光强的进一步增强,最终二者达到动态平衡[图 1(c)],并持续远大于瑞利长度的距离,形成光丝。

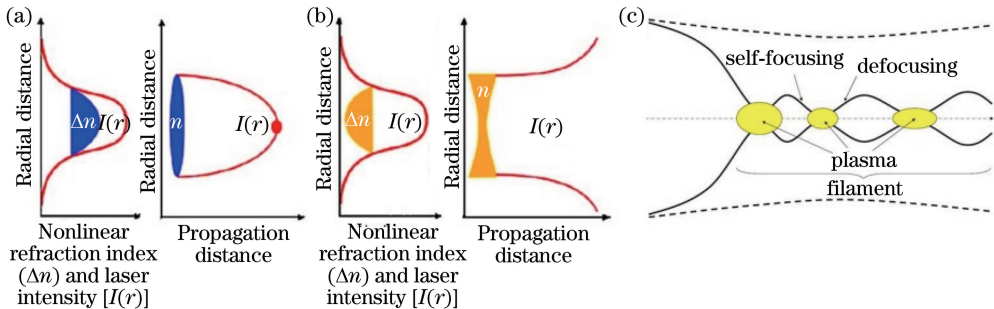


图 1 飞秒激光成丝过程示意图^[2]。(a)自聚焦效应;(b)自散焦效应;(c)光丝内部动态平衡过程

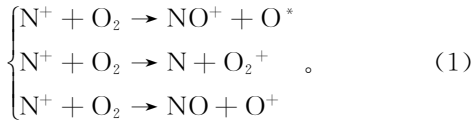
Fig. 1 Schematic of femtosecond laser filamentation process^[2]. (a) Self-focusing effect;

(b) self-defocusing effect; (c) dynamic balance process inside filament

对于空气介质而言,成丝过程中的多光子电离或隧穿电离将空气中的氮气(N_2)和氧气(O_2)分子电离为 N^+ 、 N_2^+ 离子态或 N_2^* 、 O_2^* 等原子/分子的激发态^[20]。在等离子体复合过程中,电子与离子,离子与离子,以及电子/离子与中性原子/分子均有可能发生碰撞,从而引发一系列复杂的光化学反应。

Petit 等^[12]利用脉冲重复频率为 100 Hz、脉冲能量为 12 mJ、脉冲宽度为 80 fs、中心波长为 800 nm 的飞秒激光脉冲,经焦距 $f = 2.8$ m 的透镜在 2 m 长的有机玻璃管(直径为 2.0 cm)中成丝,对光丝产生的痕量气体(如 O_3 、NO 和 NO_2)的分子数密度进行了测量。研究结果表明,伴随等离子体复

合过程而发生的光化学反应主要有三个分支：



这三个分支发生的概率分别为 43%、51% 和 6%，其产物将与环境中的 N_2/O_2 分子继续发生反应，生成臭氧($\text{O}^* + \text{O}_2 \rightarrow \text{O}_3$)；随后臭氧将氮氧化物(NO_x)氧化，如 $\text{O}_3 + \text{NO} \rightarrow \text{NO}_2 + \text{O}_2$ ；最后被氧化的 NO_x 与空气中的水(H_2O)分子结合，形成硝酸(HNO_3)。Petit 等^[12]的实验结果表明，光丝区域产生的 O_3 、 NO 和 NO_2 的分子数密度分别可达 10^{16} ， 3×10^{14} ， $3 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ ，最终形成的 HNO_3 质量分数可达 10^{-6} 量级。

除了 N_2/O_2 分子参与光化学反应外，水分子进入光丝附近的强激光场区域，通过反应 $\text{H}_2\text{O} + h\nu \rightarrow \text{H} + \text{OH}$ ($h\nu$ 为单光子能量， h 为普朗克常量， ν 为光频率)被解离。生成的 OH 自由基也具有强氧化性，其性质与 O_3 类似，OH 自由基通过与 NO_x 反应($\text{OH} + \text{NO}_2 \rightarrow \text{HNO}_3$)可直接生成 HNO_3 ^[21]。当光丝周围的气体氛围中没有 O_2 存在时， H_2O 分子解

离产生的 OH 自由基在光丝诱导光化学反应及气溶胶形成过程中扮演着至关重要的角色。

中国科学院上海光学精密机械研究所的研究团队利用脉冲重复频率为 1 kHz、脉冲宽度为 50 fs、脉冲能量为 9 mJ、中心波长为 800 nm 的飞秒激光脉冲，经焦距 $f = 70 \text{ cm}$ 的透镜聚焦，在 $50 \text{ cm} \times 50 \text{ cm} \times 20 \text{ cm}$ 的小型扩散云室内成丝。实验发现，在光丝照射约 30 min 后，光丝下方形成约 13 mg 的降雪^[22]。利用 pH 试纸对其酸碱性进行了粗略的测试，发现融化的雪呈酸性(图 2)。随后，利用离子色谱仪对雪花内的 NO_3^- 物质的量浓度进行了精确标定，发现光丝照射 30 min 后，产生 NO_3^- 的物质的量浓度约为 0.01 mol/L ^[22]。由于相关实验在 1000 级超净实验室环境内进行，光丝周围几乎没有可利用的能够中和 HNO_3 的气体，如氨气(NH_3)等气体。结合雪堆的酸性，推测此时的光化学副产物主要为 HNO_3 。在实验室内多次改变光丝周围的温湿度条件，形成的降雪始终呈酸性(图 2)^[23]，再次证实了光丝在实验室环境云室中诱导产生的光氧化副产物主要为无机酸 HNO_3 。

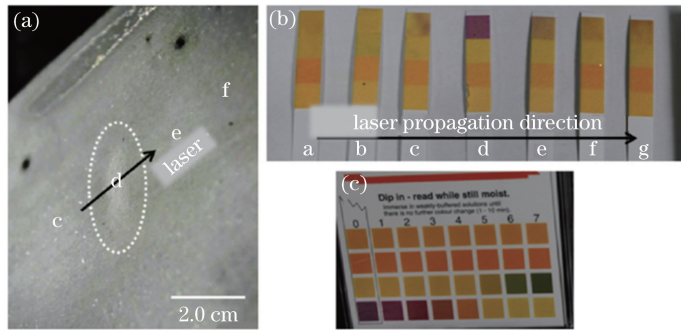


图 2 pH 试纸测得的飞秒激光诱导降雪的酸碱性图^[22]。(a) 飞秒激光成丝诱导雪花形成的雪堆(虚线圈内)；(b) 利用 pH 试纸测得冷盘上不同位置雪/冰的酸碱性；(c) pH 值标准比色卡

Fig. 2 Acid-base property of femtosecond laser induced snow formation measured by using pH test papers^[22]. (a) Snow pile (indicated by white dotted circle) induced by femtosecond laser filamentation; (b) acidity-base property of snow/ice covered on cold plate at different positions measured by using pH test papers; (c) pH standard colorimetric card

当飞秒光丝在室外环境中成丝时，植物光合作用产生的 NH_3 可以与 HNO_3 发生反应，通过 $\text{NH}_3 + \text{HNO}_3 \rightarrow \text{NH}_4\text{NO}_3$ 反应，生成中性的 NH_4NO_3 ^[24]，这有可能排除室外作业时飞秒激光诱导酸雨的可能性。

飞秒光丝产生的光化学副产物，无论是 HNO_3 还是 NH_4NO_3 ，其共同特性是具有吸湿性。这是因为其分子结构中的羟基官能团非常活跃，与其他分子(如挥发性有机物或 H_2O 分子)之间极易通过氢

键结合^[25]，使其表现出易溶于液滴或吸附于介质(如金属)表面的特性。寇拉理论表明^[26]，这些光化学副产物溶于液滴后，可降低液滴的表面张力，辅助降低液滴表面的饱和蒸气压，使液滴表面 H_2O 分子的凝结速率大于蒸发速率，水凝结速率得到提高。因此，在亚饱和相对湿度环境条件下，可启动在光丝吸湿性化学副产物辅助下诱导的水凝结过程^[27]。

2.2 气溶胶的形成

如上所述，在室内环境条件下，飞秒光丝产生的

光氧化副产物主要为吸湿性的无机酸 HNO_3 。 HNO_3 除了与 H_2O 分子结合形成 $\text{HNO}_3\text{-H}_2\text{O}$ 复合物外,还可能与环境中的顺萜酸(CPA)等挥发性有机物分子通过氢键结合,形成 CPA- HNO_3 等复合物^[25]。这些复合物是形成气溶胶的最初始基体。

Saathoff 等^[28] 利用重复频率为 10 Hz,脉冲能量、脉冲宽度分别为 140 mJ、140 fs(或 170 mJ、60 fs),中心波长为 800 nm 的飞秒激光脉冲,在大型云室内(84.5 m^3)成丝,对 $2.5 \text{ nm} \sim 20 \mu\text{m}$ 不同粒子尺寸(D_p)的气溶胶数目浓度 $[\text{d}N/\text{d}(\ln D_p)]$ 进行了测定。实验结果发现,在光纤周围分别填充潮湿氩气(Ar)、潮湿 Ar 和 O_2 、潮湿空气、潮湿空气和 NH_3 、潮湿空气和硫酸铵 $[(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4]$ 时,光纤在 Ar 中成丝产生的白光辐射亮度最高,同时气溶胶的生成速率也最高,气溶胶尺寸以 $6 \sim 20 \text{ nm}$ 为主[图

3(a)]。在其他气体氛围条件下,气溶胶生成速率近似,即便这些气体氛围中预先存在 NH_3 和 $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$,在气溶胶生成速率得到提高的情形下,其气溶胶生成速率相比于潮湿 Ar 氛围仍小得多[图 3(b)]。不同的气体氛围排除了 O_2 和 N_2 同时存在并在光纤辅助下产生 HNO_3 的可能性,通过测量发现气溶胶生成速率较高,且光纤诱导气溶胶的生成不取决于吸湿性无机酸 HNO_3 的生成。他们认为,光纤诱导气溶胶的形成更可能与环境中的 H_2O 分子有关,即 H_2O 分子在成丝过程中被解离为 H 和 OH 自由基,由于 OH 自由基与 O_3 具有氧化性,可将等离子体内离子及激发态原子/分子氧化,产生光氧化副产物,这些光氧化副产物随后与环境中的挥发性有机物分子及 H_2O 分子等结合,从而形成气溶胶。

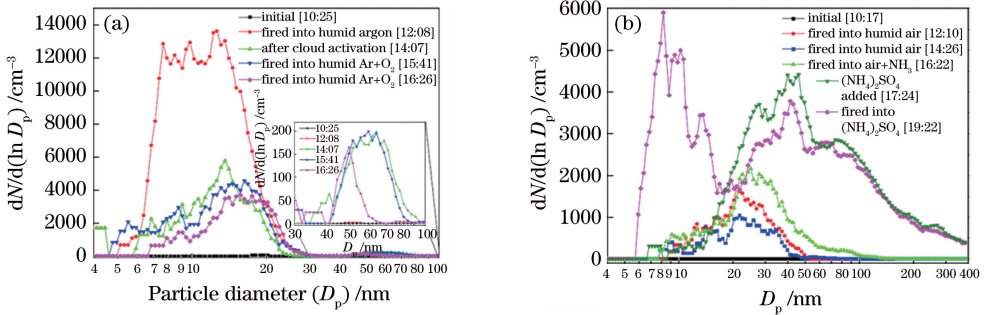


图 3 10 Hz 飞秒光纤在不同气体氛围条件下诱导的气溶胶数目浓度 $[\text{d}N/\text{d}(\ln D_p)]$ 。(a)潮湿氩气(Ar),潮湿氩气(Ar)+氧气(O_2)等;(b)潮湿空气,潮湿空气+氨气(NH_3),潮湿空气+硫酸铵 $[(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4]$ 等^[28]

Fig. 3 Number density $[\text{d}N/\text{d}(\ln D_p)]$ of 10 Hz femtosecond filamentation induced aerosols under different atmospheric conditions. (a) Humid argon (Ar), humid argon (Ar)+oxygen (O_2), etc.; (b) humid air, humid air+ NH_3 , humid air+ $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$, etc. ^[28]

根据 Saathoff 等^[28] 的研究结果,在不同激光参数及环境条件下生成的气溶胶尺寸集中在 $30 \sim 130 \text{ nm}$ 之间,尺寸大于 130 nm 的气溶胶数目较少。

最近中国科学院上海光学精密机械研究所的研究人员对飞秒光纤诱导较大尺寸气溶胶($0.3 \sim 2.0 \mu\text{m}$)的生成速率进行了研究,结果发现相应气溶胶的生成速率随环境相对湿度、入射激光功率等的不断增大(或焦距的缩短)而提高。特别发现随着环境相对湿度的增大, $0.3 \sim 2.0 \mu\text{m}$ 气溶胶数密度呈指数增加;同时,气溶胶的尺寸分布向大尺寸方向推移^[29]。而当入射激光功率和聚焦条件改变时,仅气溶胶的生成速率发生变化,气溶胶的尺寸分布并没有明显改变^[28-29]。

中国科学院大气物理研究所与上海光学精密机械研究所的研究人员,利用重复频率为 1 kHz、脉冲能量为 7.5 mJ、脉冲宽度为 30 fs、中心波长为

800 nm 的飞秒激光脉冲,在 1000 级超净实验室云室内成丝,对光纤诱导 $15 \sim 700 \text{ nm}$ 气溶胶的生成情况进行了实验研究^[30]。由实验结果可以看出,尽管激光单脉冲能量相对较低,但 1 kHz 光纤诱导气溶胶的生成速率仍比 Saathoff 等^[28] 的研究结果提高了约两个数量级(图 4,其中 N_a 为气溶胶总的数密度, m_a 为质量);生成 NO_x 的分子数密度高约 3 个数量级;同时,气溶胶尺寸分布的中心尺寸以 $30 \sim 200 \text{ nm}$ 为主。

高效的气溶胶生成速率可能与实验中用到的高重复频率飞秒脉冲有关。脉冲的高重复频率特性缩小了相邻两个脉冲之间的时间间隔,使光纤的一些非线性效应(如热沉积效应)能够互相衔接。累积效应使得光纤生成光氧化副产物的速率大大提高。这些吸湿性物质与环境不可避免的挥发性有机物分子结合形成复合物,有利于后续气溶胶生成

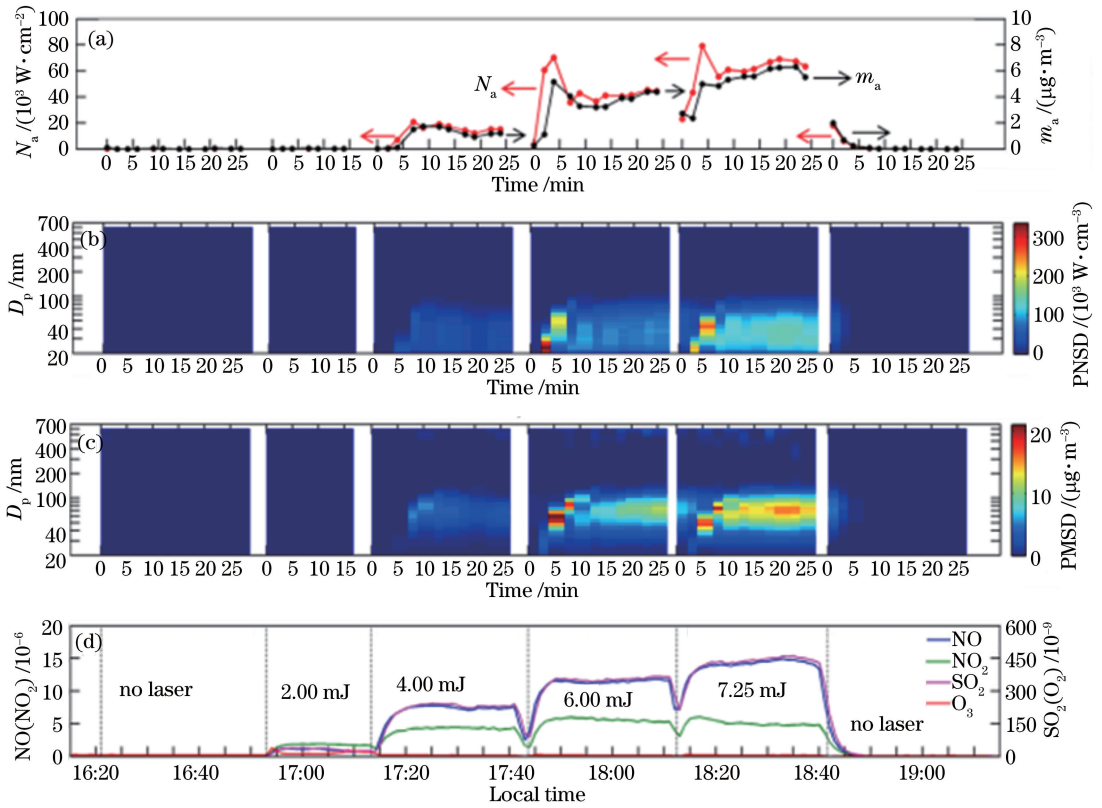


图 4 1 kHz 飞秒激光诱导气溶胶及痕量气体的形成^[30]。(a) N_a 和 m_a 随时间的变化；(b)气溶胶数目尺寸分布(PNSD)随时间的变化；(c)气溶胶质量尺寸分布(PMSD)随时间的变化；(d)痕量气体与周围环境气体的混合质量比随时间的变化
Fig. 4 Formation of particles and trace gases induced by 1 kHz laser filamentation^[30]. (a) N_a and m_a versus time; (b) particle number size distribution (PNSD) versus time; (c) particle mass size distribution (PMSD) versus time; (d) temporal evolution of mass mixing ratios between trace gases and ambient air

速率的提高及分布尺寸的增长。

之前的研究对气溶胶可能的形成过程及组分进行了推测,而 Mongin 等^[24]利用重复频率为 10 Hz、脉冲能量为 180 mJ、脉冲宽度为 80 fs、中心波长为 800 nm 的飞秒激光脉冲在室外空气中成丝,利用气溶胶质谱仪(AMS)对光丝生成气溶胶的质量及组分进行了精确分析,结果如图 5 所示。实验结果表明,室外环境中,飞秒激光照射后,60~600 nm 气溶

胶的总质量增加 40%,证实了气溶胶从无到有的生成过程,而不是激光击碎背景气溶胶而来的。气溶胶中主要成分为 NH_4NO_3 和有机物,二者质量比为 2:1。此实验中,由于环境大气富含植物光合作用产生的 NH_3 痕量气体,其与光丝产生的 HNO_3 通过 $NH_3 + HNO_3 \rightarrow NH_4NO_3$ 反应生成中性的吸湿性盐 NH_4NO_3 ,并与环境中的挥发性有机物分子共同构成飞秒激光诱导气溶胶的主要成分。该实验结果

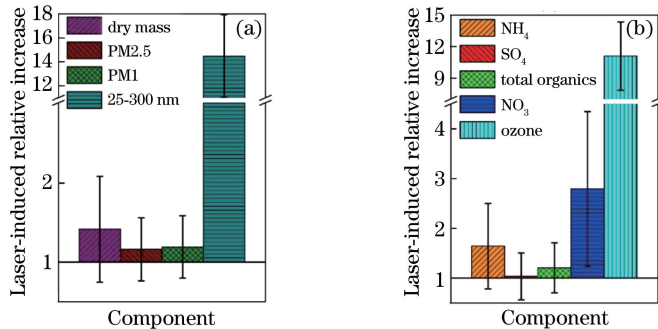


图 5 10 Hz 飞秒激光诱导气溶胶生成的组分分析。(a)不同尺寸气溶胶的质量增长；(b)气溶胶内部不同组分的质量分布^[24]
Fig. 5 Component analysis of 10 Hz femtosecond filamentation induced aerosol formation^[24]. (a) Mass increase of different size aerosols; (b) mass distribution of different components inside aerosols

排除了飞秒激光诱导酸雨的可能性。

随后, Petrarca 等^[31]利用重复频率为 10 Hz、脉冲能量为 3 J、脉冲宽度为 30 fs、中心波长为 800 nm 的飞秒激光脉冲在扩散云室中成丝, 研究了百太瓦级大功率飞秒激光成丝诱导气溶胶的形成情况。实验结果表明: 25~300 nm 气溶胶的生成速率随激光功率密度(I)的增加呈指数增加(图 6), 气溶胶尺寸主要集中在

50~60 nm。光丝产生之前[图 6(a), $I < 150 \text{ GW/cm}^2$], 并没有形成气溶胶; 而光丝产生之后[图 6(a), $I > 150 \text{ GW/cm}^2$], 气溶胶数密度与光丝数目呈线性关系。由于光束空间尺寸的限制, 光丝数目在激光强度不断提高的条件下, 最终达到饱和[图 6(b), $I > 500 \text{ GW/cm}^2$], 而实验结果表明气溶胶数目在光丝数目饱和后, 相对激光强度仍然呈指数增长。

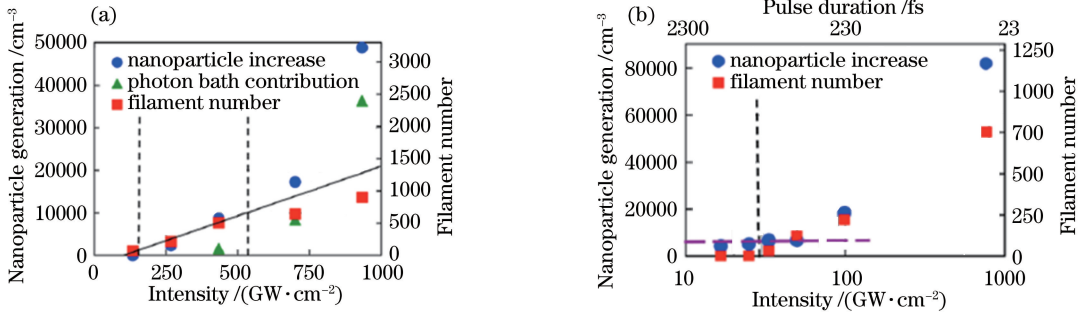


图 6 飞秒激光诱导纳米颗粒气溶胶粒子数密度与光丝数目及光子浴贡献的关系图^[31]。(a)激光诱导纳米粒子数密度、激光光丝数目及光子浴贡献随激光强度的变化;(b)激光诱导纳米粒子数密度与光丝数目随激光强度及脉冲宽度的变化
Fig. 6 Relationship among number density of femtosecond filamentation induced nanoparticle aerosols, filament number, and photon bath contribution^[31]. (a) Laser-induced nanoparticle number density, filament number and photon bath contribution versus laser intensity; (b) laser-induced number density and filament number versus laser intensity or pulse duration

气溶胶在光丝数目饱和后仍保持指数增长的原因可能是光丝周围超强光子浴的贡献。在没有电离存在的条件下, 超强光子浴分布可能促进背景中的 H₂O 分子和有机物分子解离产生自由基, 如 OH 自由基等。OH 自由基可以氧化周围环境空气中的 N₂/O₂ 分子激发态, 产生 O₃/NO_x, 同样可以诱发一系列光化学反应, 生成吸湿性光化学副产物, 从而促进气溶胶的形成。

光子浴的强弱最终由激光能流大小来体现。因此, 在强激光场条件下, 成丝生成气溶胶的速率将不再仅仅依赖于光丝数目或光丝覆盖面积, 还与激光能流呈线性关系。在 Ar 氛围下, 光丝诱导的高效气溶胶的形成, 也排除了飞秒激光诱导气溶胶对吸湿性光化学副产物(如 HNO₃/NH₄NO₃)的依赖。因此, 只要环境中存在挥发性有机物或 H₂O 分子, 相比环境气体氛围, 光子浴/强激光场条件对飞秒激光成丝诱导气溶胶的形成更加重要。或者说, 气溶胶的形成将不再受限于光丝诱导吸湿性光化学副产物的形成, 而与激光能流/光子浴强度紧密相关。因此, 飞秒激光影响环境大气的有效区域, 也可能由光丝区域向足够强的激光能流所覆盖的区域扩展, 其

作用范围可能比前人预想的更大。

中国科学院上海光学精密机械研究所的研究人员利用低频 200 TW 飞秒激光(重复频率为 1 Hz、脉冲能量为 6 J、脉冲宽度为 30 fs、中心波长为 800 nm)在超净实验室环境中成丝, 对 15~700 nm 气溶胶的生成速率进行了测量。实验结果表明: 生成气溶胶的尺寸集中在 50 nm 左右。生成气溶胶的数密度与人工影响天气播撒碘化银(AgI)纳米颗粒数密度近似^[32]。

2.3 次级冰晶的产生

在预先存在冰晶的过冷云(如卷积云)环境中, 飞秒光丝可将背景冰晶击碎, 形成次级冰晶(图 7, 其中 t 为激光照射冰晶的时间)^[33]。次级冰晶的产生时间为飞秒激光脉冲过后 1 μs 量级的时间内。因此, 关系到次级冰晶产生的非线性效应, 只可能与成丝过程产生的冲击波/声波(飞秒激光脉冲过后 1 μs 量级时间内产生)有关。研究结果表明, 飞秒光丝诱导次级冰晶的产生分为 3 个步骤: 1) 飞秒光丝遇到冰晶, 成丝过程将冰晶击碎; 2) 击碎的冰晶在冲击波作用下, 蒸发为水蒸气; 3) 水蒸气在过冷的环境下重新结冰形成次级冰晶。

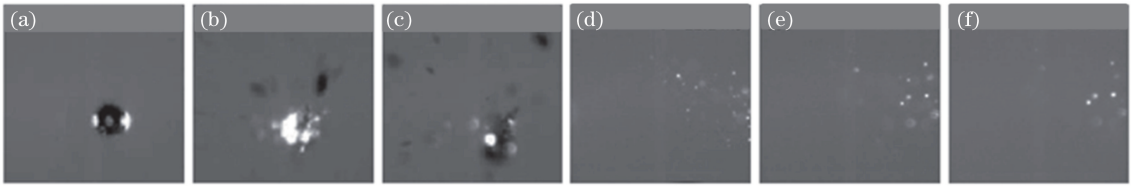


图 7 飞秒激光诱导次级冰晶产生的时间演化图。

(a) $t = -12 \mu\text{s}$; (b) $t = 0 \mu\text{s}$; (c) $t = 12 \mu\text{s}$; (d) $t = 12.1 \text{ ms}$; (e) $t = 19.1 \text{ ms}$; (f) $t = 20.1 \text{ ms}$ ^[33]

Fig. 7 Temporal evolution of femtosecond filamentation induced secondary ice crystal formation.

(a) $t = -12 \mu\text{s}$; (b) $t = 0 \mu\text{s}$; (c) $t = 12 \mu\text{s}$; (d) $t = 12.1 \text{ ms}$; (e) $t = 19.1 \text{ ms}$; (f) $t = 20.1 \text{ ms}$ ^[33]

由于冰晶相对于液滴表面的饱和蒸汽压偏低,因此次级冰晶可作为次级冰核,迅速诱导水凝结的发生,引起云雾光学厚度的增加。Leisner 等^[34]利用 10 Hz 飞秒激光在模拟卷积云环境的大型云室

(84.5 m^3)内成丝,证实了在预先存在冰晶的情况下,飞秒激光照射几分钟之内,云室内冰晶数目增加 2 个数量级,云室内云雾光学厚度增加 2~3 个数量级(图 8)。

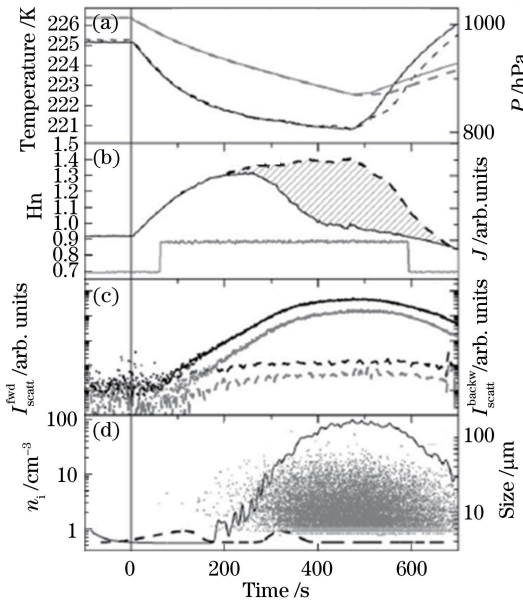


图 8 飞秒激光脉冲照射卷积云诱导其云雾光学厚度及冰晶浓度的增加。(a)有(实线)或没有(虚线)飞秒激光诱导作用时,云室内气相温度(T)及压强(P)随时间的变化;(b)有(实线)或没有(虚线)飞秒激光诱导作用时,相对湿度(H_{r_i})及激光操作周期(J)随时间的变化;(c)有(实线)或没有(虚线)飞秒激光诱导作用时,前向($I_{\text{scatt}}^{\text{fwd}}$)及后向($I_{\text{scatt}}^{\text{backw}}$)探测光散射强度随时间的变化;(d)有(实线)或没有(虚线)飞秒激光诱导作用时,冰晶数密度(n_i)及冰粒尺寸分布随时间的变化。黑线和灰线分别对应左或者右侧纵坐标轴^[34]

Fig. 8 Increase of optical density and ice crystal density of cirrus cloud irradiated by femtosecond laser pulses. (a) With (solid lines) and without (dashed lines) femtosecond filament action, gas phase temperature (T) and pressure (P) versus time; (b) with (solid lines) and without (dashed lines) femtosecond filament action, relative humidity with respect to ice phase (H_{r_i}) and duration of laser operation (J) versus time; (c) with (solid lines) and without (dashed lines) femtosecond filament action, variation of forward ($I_{\text{scatt}}^{\text{fwd}}$) or backward ($I_{\text{scatt}}^{\text{backw}}$) light-scattering intensity versus time; (d) with (solid lines) and without (dashed lines) femtosecond filament action, variation of ice particle number concentration (n_i) and ice particle size distribution versus time. Black and gray curves corresponding to left and right vertical axes, respectively^[34]

2.4 热沉积效应

激光热沉积效应除了激发光丝产生冲击波/声波外,还可能扰动周围气流进行热力学运动。而

剧烈的气流运动是伴随飞秒激光诱导水凝结及沉降的一个重要现象。中国科学院上海光学精密机械研究所的研究人员利用重复频率为 1 kHz、脉冲

能量为 9 mJ、脉冲宽度为 50 fs、中心波长为 800 nm 的飞秒激光脉冲在扩散云室(顶部温度为室温,底部温度为 $-50\text{ }^{\circ}\text{C}$)内成丝,实验发现光丝诱导气流热力学运动的速度随着脉冲重复频率的增加而增大^[35]。将光丝假设为一个温度恒定的热源,其温度由光丝热沉积能量的大小决定,基于此,对云室内热力驱动下的流体场进行模拟。结果发现,光丝上方和下方均有气旋形成(图 9)。这

可能是因为在等离子体复合过程中,释放出的部分能量以热能形式沉积下来。光丝区域的急剧热膨胀首先引起冲击波的产生,随着介质的热扩散,光丝区域周围形成低密度通道。由于低密度通道内温度高、压强低,周围气体在压力差作用下向低压区域移动。来自不同方向的气体在光丝区域压强最低点碰撞,高速穿过光丝低密度区域,拖曳周围气体,形成气旋。

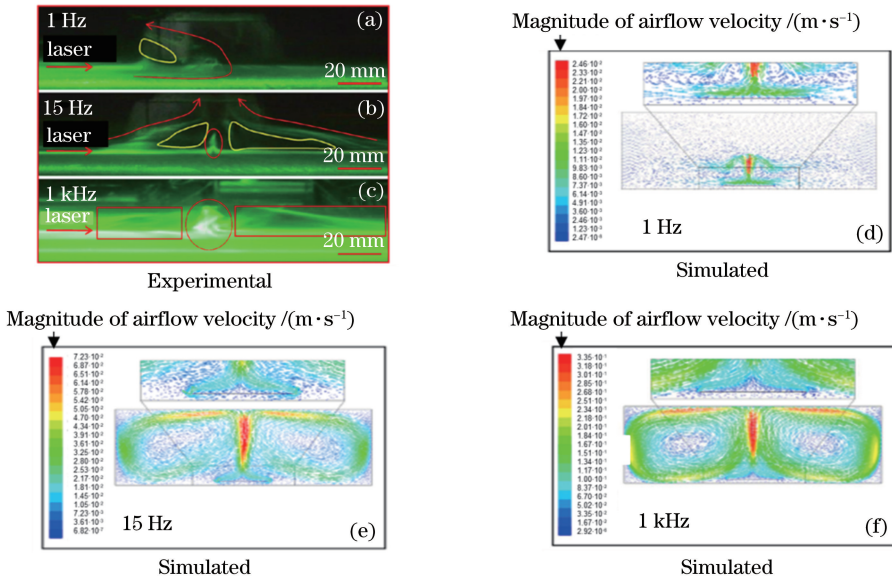


图 9 不同重复频率的飞秒光丝诱导气流热力学运动^[35]。(a)(d) 1 Hz;(b)(e) 15 Hz;(c)(f) 1 kHz

Fig. 9 Femtosecond filamentation induced airflow thermodynamic motion under different repetition rates^[35]. (a)(d) 1 Hz; (b)(e) 15 Hz; (c)(f) 1 kHz

基于光丝热沉积效应诱发气流热力学运动的模拟结果,与实验观测到的现象基本吻合,因此证实了光丝热沉积效应是驱动气流剧烈运动的主要原因。当改变激光单脉冲能量和光束的外部聚焦条件时,气流运动的形状变化不大,但气流速度与等离子体辐射白光强度相对应,即与等离子体密度相对应。等离子体密度越大,辐射白光强度越强,光丝周围气流热力学运动速度越快。因此,可通过提高脉冲重

复频率、激光能量及缩短激光聚焦焦距等方式,提高光丝内部等离子体密度,从而增大光丝周围气流运动强度^[36-37]。当光丝周围填充的气体氛围不同时,气流热力学运动速度也会略有不同。当气体氛围分别为 Ar、 N_2 和 He 时,实验结果表明,Ar 氛围内形成光丝的白光辐射强度最大,对应的气流速度最快;He 氛围内形成光丝的白光辐射强度最小,对应的气流速度最慢(图 10)。该结果验证了不同气体氛

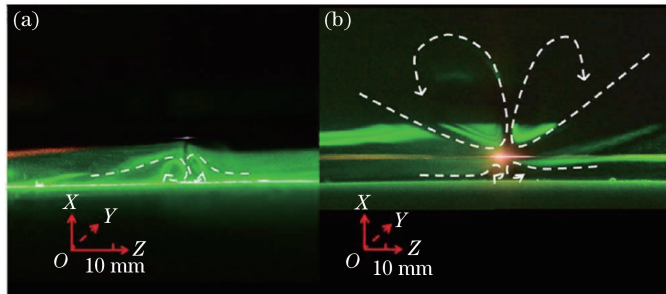


图 10 不同气体氛围条件下,飞秒光丝诱导气流热力学运动图^[38]。(a)潮湿空气;(b)潮湿氦气

Fig. 10 Femtosecond filamentation induced airflow thermodynamic motion under different ambient air conditions^[38]. (a) Humid air; (b) humid helium

围下激光电离气体原子/分子产生的等离子体密度不同,从而使得热沉积效应不同,最终的气流热力学运动速度及气旋形状也不同^[38],因此等离子体密度是影响热沉积效率及光丝周围气流热力学运动强度的最关键因素。

随着脉冲重复频率的提高,相邻脉冲产生的光丝

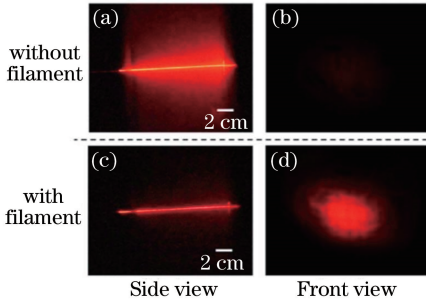


图 11 1.55 μm 通信激光空气中传输的散射图。(a)(c)侧面图;(b)(d)前向图;

(e)不同飞秒光丝重复频率下 1.55 μm 通信激光的透过功率^[39]

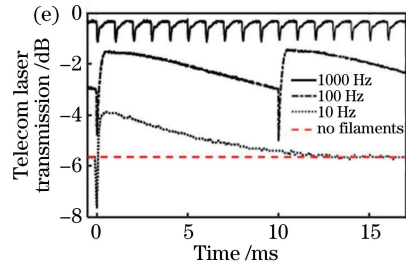


Fig. 11 Scattering images of 1.55 μm telecom laser propagating in air. (a)(c) Side view; (b)(d) front view; (e) transmission powers of 1.55 μm telecom laser through femtosecond filaments at different repetition rates^[39]

3 技术进展

3.1 飞秒激光成丝诱导水凝结及降雪

飞秒激光成丝诱导水凝结,可形成肉眼可分辨的、尺寸在微米甚至亚毫米量级的液滴。2010年,Rohwetter等^[41]利用重复频率为10 Hz、脉冲能量为220 mJ、脉冲宽度为60 fs、中心波长为800 nm的飞秒激光脉冲在云室内及环境大气中成丝,探测到2.4~500 μm液滴的生成。实验结果如图12所示,结果表明:当飞秒激光照射云室内潮湿气体时(温度 $T = -24\text{ }^{\circ}\text{C}$,相对湿度 $H_r \approx 230\%$),液滴的总质量增加,证实了激光诱导产生了新的凝结液滴。同时,小尺寸(如小于20 μm)液滴数密度降低,中等尺寸(20~100 μm)液滴数密度翻倍。当飞秒激光照射环境大气($T = 2.9\text{ }^{\circ}\text{C}$, $H_r \approx 92\%$)约1.0 ms后,激光雷达(LIDAR)信号显示光丝区域米氏散射信号增强约0.6%,但在实验中并没有观测到水汽沉降发生。

随后,Henin等^[42]利用重复频率为10 Hz、脉冲能量为160 mJ、脉冲宽度为240 fs、中心波长为800 nm的飞秒激光脉冲在河边潮湿的环境中成丝,经过28轮长达133 h的实验,发现当 $H_r > 70\%$ 时,可以观测到飞秒光丝诱导微米量级凝结液滴的产生。离子色谱仪对光丝周围粒子的阴离子成分的分析显示,阴离子主要由 NO_3^- 、 NO_2^- 和 SO_4^- 构成,因此推测成丝过程发生了复杂的光氧化反应,而生成

热沉积效应得以连续,将环境的杂乱气流及液滴排开,可形成稳定的低密度通道,从而可提高后续信号/探测激光的指向性及透过率等(图11),该手段未来有望成为恶劣天气条件下提高激光传输的信号稳定性及降低衰减的创新技术手段之一^[39-40]。这个通道的时间窗口约为0.1~1.0 ms,通道口径为毫米量级。

的吸湿性光氧化副产物有可能是辅助诱导水凝结的重要贡献者。

Petit等^[43]通过改变激光参数发现,较小尺寸粒子(20~300 nm)的生成速率随着激光能量的提高及脉冲宽度的缩短呈线性增长。通过形成多丝等方法,扩大光丝覆盖的区域面积,也可以提高较小尺寸(<600 nm)粒子的生成速率。然而,改变激光偏振及聚焦条件,粒子的生成速率变化不大。较大尺寸(>300 nm)粒子的生成不再依赖于激光参数,而更多的是依赖于环境中水汽的含量。飞秒激光诱导较大尺寸气溶胶的形成,将不仅仅依赖于光丝电离过程,更依赖于环境中充足的 H_2O 分子。

当紫外光(248 nm)与800 nm飞秒激光脉冲共同照射潮湿空气环境时,由于紫外激光的光子能量高,促进了 H_2O 分子的解离。同时,生成的OH自由基也参与光氧化反应,因此,248 nm与800 nm激光共同作用时,吸湿性 HNO_3 等的生成速率得到更大提高。实验结果表明,在248 nm紫外激光辅助下,飞秒激光成丝诱导25~300 nm粒子的生成速率提高了5倍,远超过紫外光及飞秒激光单独诱导形成气溶胶粒子数目的总和^[44]。

中国科学院上海光学精密机械研究所的研究小组,通过实验发现了飞秒激光诱导雪花的形成(图13)^[23]。实验在扩散云室中进行,观察到激光照射30 min后,有13 mg左右的雪形成,雪花的形状与光丝周围环境的温湿度有关^[45]。雪量紧密依赖于

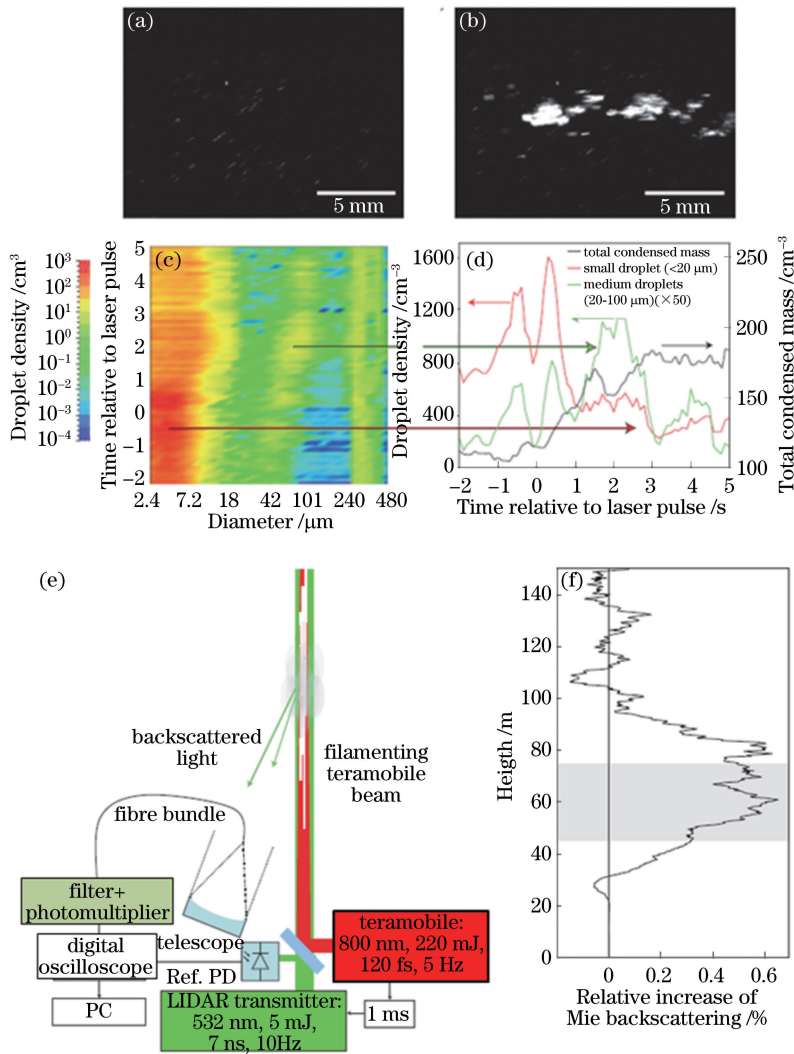


图 12 飞秒激光诱导水凝结。(a)云室内飞秒光丝照射之前的侧面散射图;(b)云室内飞秒光丝照射之后的侧面散射图;(c)不同尺寸液滴数密度随激光照射持续时间变化的二维图;(d)不同尺寸液滴数密度随激光照射持续时间变化的线性图;(e)飞秒激光与环境大气相互作用的示意图;(f)背向米氏散射信号的相对增长率^[41]

Fig. 12 Femtosecond laser induced water condensation. (a) Side scattering image of scene inside chamber without laser filament; (b) side scattering image of scene inside chamber with laser filament; (c) 2D image of different size droplet density versus laser irradiation duration; (d) line image of different size droplet density versus laser irradiation duration; (e) sketch of femtosecond laser interacting with ambient atmosphere; (f) relative increase rate of Mie backscattering signals^[41]

脉冲链的重复频率及光丝周围气流热力学运动的速度^[23]。经分析推测,激光成丝区域产生的凝结液滴可能在随气流运动进入上方或下方的过冷区域后冻结为冰粒,然后冰粒随潮湿气流运动,吸附水汽,尺寸不断增长,直至其重力效应足够克服气流黏滞力及空气浮力,而后以雪花的形式降落下来。在高速相机的辅助拍摄下,整个雪花形成的微观过程被直观呈现^[32]。根据实验结果,雪花主要来源于凝结液滴在过冷区域的直接冻结,冻结后的冰粒随潮湿气流运动,通过进一步吸附水汽,与其他冰粒碰撞并凝结,冰粒尺寸进一步增长,形成较大尺寸的雪花,从

而证实了之前对激光诱导雪花形成物理过程的推测。

在相同的温湿度环境下,当改变气体氛围时,飞秒光丝产生的降雪量与等离子体密度紧密相关^[46]。这可能是由于光丝热沉积效应与等离子体密度紧密相关,热沉积效应决定了气流热力学运动的速度。而气流热力学运动通过加速不同温度潮湿气体的混合,以及冰晶与液滴的碰撞过程,促进降雪过程的发生。因此,制约飞秒激光诱导降雪量大小的关键因素也可能是光丝内等离子体密度或激光能量热沉积效率。随后,通过用加热丝代替光丝,在云室内验证

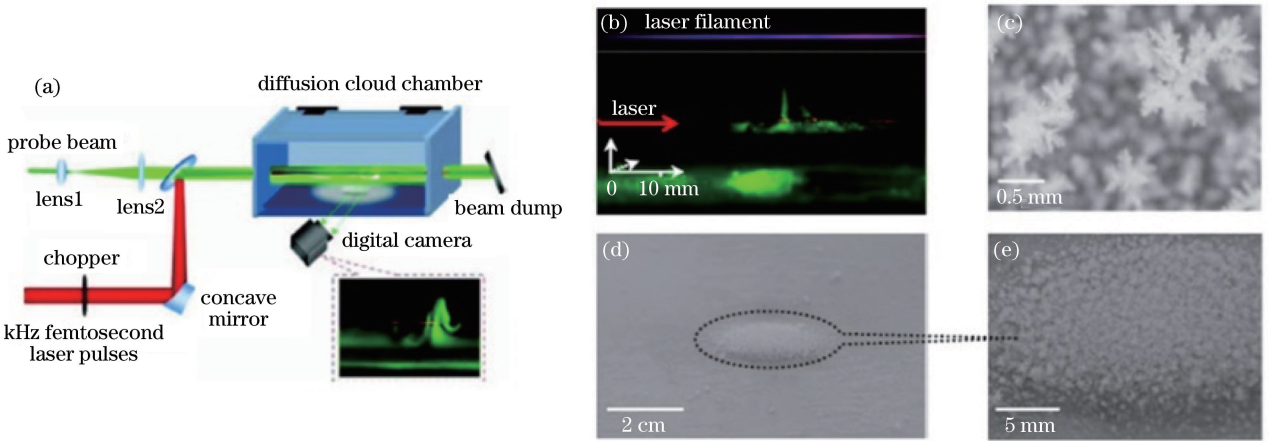


图 13 飞秒激光诱导雪花的形成。(a)实验装置图;(b)无探测光照射时云室内光丝图(顶图);光丝周围探测光诱导的米氏散射图(底图);(c)图 13(b)中雪花特写;(d) 1 kHz 激光脉冲照射 2 h 后整个底板形成的雪花图;(e)图 13(d)中的雪花特写^[22]

Fig. 13 Femtosecond laser induced snow formation. (a) Schematic of experimental setup; (b) fluorescence of laser filament in cloud chamber without probe beam (top), and Mie scattering patterns around filament induced by probe beam (bottom); (c) close-up shot for snowpack in Fig. 13(b); (d) laser induced snow formation on whole bottom base plate after firing 1 kHz laser pulse for 2 h; (e) close-up shot for snowpack in Fig. 13(d)^[22]

了光丝热沉积效应诱导气流热力学运动是促成飞秒激光诱导雪花形成的主要机制^[47]。

经过之前一系列的研究发现,实现飞秒激光诱导水凝结到沉降过程的转变,需要满足 3 个条件:1)较大温差条件的存在;2)冷热气流的有效混合;3)光丝生成气溶胶可有效诱导水凝结的发生。若满足这 3 个条件,即便光丝周围的湿度处于亚饱和状态,也同样可以诱导雪花的形成^[23,37]。

3.2 飞秒激光人工引雷

基于飞秒激光成丝产生的等离子通道长度可延伸至几百米^[48],且具有优良导电性^[49],近几十年来,世界各地(如瑞士、中国、日本、加拿大和墨西哥等)的科学家相继开展了基于激光的雷电控制研究工作^[50-54]。然而,截至目前鲜有成功的案例。前人研究表明^[4,55],制约飞秒光丝人工引雷成功率的关键因素有 2 个:1)光丝区域内部等离子体寿命太短;2)光丝内部等离子体通道非连续。

最新研究结果显示,相比等离子体通道的良好导电性,在等离子体复合后,产生的低密度空气通道(寿命约为 1 ms 量级)更有可能是触发高压放电的关键因素^[56]。未来可通过提高光丝热沉积效应及脉冲的重复频率和光丝区域低密度通道的连续性,来提高光丝的导电效率,最终飞秒光丝引雷的成功率有望得到进一步提高。

4 讨 论

综上所述,飞秒激光成丝影响环境大气的途径

有三类(图 14):第一类,通过电离过程产生光氧化副产物,经二元/三元核化过程^[21],形成气溶胶/云凝结核,诱导水凝结及降水;第二类,通过光丝直接击碎背景中的冰晶形成次级冰晶,次级冰晶作为冰核,诱导后续水凝结及降水;第三类,通过光丝产生的冲击波或气流急剧的热力学运动,形成超饱和环境,通过激活超饱和环境背景中的云凝结核/冰核,诱导水凝结及降水。

其中第一类飞秒激光成丝影响环境大气的途径大致可分为 4 步^[57-58]:1)飞秒光丝产生的光氧化副产物与空气中的挥发性有机物及 H₂O 分子集合,经二元/三元核化过程形成临界分子簇;2)临界分子簇进一步吸附空气中的光氧化副产物、H₂O 分子和其他吸湿性无机酸分子,形成气溶胶;3)气溶胶中的无机酸分子、挥发性有机物分子和 H₂O 分子经凝结过程(开尔文效应),尺寸进一步增长,形成云凝结核;4)云凝结核与环境中的水汽结合,形成凝结液滴(寇拉理论),如果环境中存在可利用的吸湿性气体,其与云凝结核结合,可降低凝结核表面的饱和蒸汽压,促进云凝结核吸附水汽,从而使尺寸增大。

飞秒光丝产生的吸湿性光氧化副产物,参与二元/三元核化过程生成复合物,复合物通过分子键结合周围原子/分子生成气溶胶,或者这些光氧化副产物直接吸附于预先存在的气溶胶表面。光氧化副产物自身具有的吸湿特性,辅助气溶胶降低其表面临界饱和蒸汽压,增强其吸附水汽的能力,从而对光丝

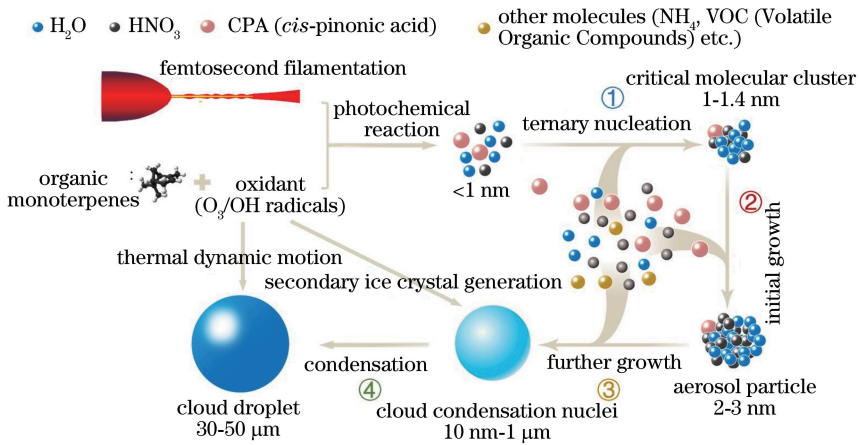


图 14 飞秒激光成丝影响环境大气物理图像

Fig. 14 Physical picture of femtosecond laser-based atmosphere modulation

诱导成云致雨的过程起到积极的促进作用。

提高环境的湿度和水汽含量,不仅可以提高气溶胶的生成速率,而且可以使气溶胶粒径谱向大尺寸方向展宽。出现该现象的原因是:飞秒强激光对 H_2O 分子解离过程中产生的 OH 自由基与 O_3 类似, OH 自由基具有强氧化性,可促进光化学反应过程的产生,从而提高复合物的生成效率,进而提高气溶胶的核化速率。在复合物经核化过程产生的临界分子的初始增长过程中,主要靠分子之间的极性互相结合,初始生长为稳定气溶胶的过程需要 H_2O 分子数目远大于其他化学分子的数目^[58]。因此,当环境中有充足的 H_2O 分子时,可能会促进其与其他分子通过极性结合在临界分子簇上,形成较大尺寸的气溶胶,从而使气溶胶粒径谱向大尺寸方向展宽。

由此可见,光丝生成气溶胶的速率最终与光丝内部等离子体密度或环境的温湿度条件,即 H_2O 分子含量紧密相关。光丝内部等离子体密度越高,则环境湿度越大,越有利于光氧化副产物和气溶胶的形成,从而促使气溶胶粒径谱向大尺寸方向展宽。由于在大气环境中,光丝生成气溶胶的主要成分为吸湿性盐类,因此产生的气溶胶可通过吸湿增长,诱导水凝结为液滴。较大尺寸的气溶胶,由于其表面张力相对较小,更容易吸附水汽,凝结形成较大尺寸的液滴。而较大尺寸的液滴,特别是尺寸大于 $50 \mu m$ 液滴的形成,可打破云滴谱的均一性,通过碰撞并增长,触发链式反应,从而有利于降水过程的发生。

飞秒激光成丝影响环境大气的第二类 and 第三类途径中,光丝诱导气流热力学运动,通过积极混合不同温度的潮湿气体,形成过饱和态。光丝产生的冲击波有可能通过挤压周围的潮湿环境气体,形成短

暂的过饱和态(亚微秒)。特别是当光丝周围环境存在较大的温差时,气流热力学运动或冲击波辅助形成过饱和环境,可激活过饱和环境中光丝产生的气溶胶或背景中预先存在的气溶胶,成为云凝结核,对成云致雨过程同样具有重要意义。未来利用高功率(TW-PW 量级)飞秒激光远程诱导水凝结及降水的应用中,还可能有多丝形成,多丝的形成可扩大冲击波效应、气流热力学运动等影响的空间范围,最终形成气溶胶,水凝结及降水的效率有可能更高。

若光丝周围为低温($T < 0 \text{ } ^\circ C$)环境,飞秒光丝气流热力学运动或冲击波形成的过饱和区域中,云凝结核通过水凝结过程而形成的液滴,随着光丝周围气流的剧烈热力学运动,进入低于 $0 \text{ } ^\circ C$ 的低温区域,可能被冻结为冰粒,由液态变为固态。由于冰粒相对于液滴表面饱和蒸汽压小很多,经 Wegener-Bergeron-Findeisen(WBF)过程,水汽分子优先吸附在冰粒表面,因此这些冻结的冰粒有可能经 WBF 过程形成大尺寸冰粒/雪花并沉降下来。如果光丝周围环境中预先存在冰晶,成丝过程产生的超声波及热沉积效应会击碎这些冰晶形成次级冰晶,随后同样经 WBF 过程促进降雪等沉降过程的发生。

飞秒激光影响环境大气的三种途径分别与飞秒光丝非线性效应中的光化学反应、冲击波及热沉积效应紧密相关。相同环境条件下,这三种途径对激光参数的依赖关系基本一致,即激光功率越高,影响环境大气的效率就越高。至于哪一种途径占优势,则取决于环境条件中的温度、湿度及冰晶含量等参数。

尽管飞秒激光人工影响环境大气的物理图像已见雏形,但是从室内研究到室外的应用,仍然面临着诸多问题:

1) 移动作业时, 需要提高可移动式飞秒激光器的抗震能力。

2) 为了提高作业效率, 可能需要大功率、高重复频率的飞秒激光脉冲, 而这类激光器的小型化、集成化及高频稳定输出亟待解决。

3) 即便在飞秒激光器条件成熟的情况下, 大功率飞秒激光脉冲长程传输及光丝的精确定位, 需要将飞秒激光的发射技术与大气中的衍射、散射及群速度色散等效应相结合, 设计形成完善的激光发射设备, 并建立控制激光参数的自适应光学理论模型。

4) 为将飞秒激光光丝成功运送到目标位置, 还需配合气象探测的相关数据, 结合光丝周围的云雾环境条件(如温度、湿度和冰晶含量等), 设计不同的技术方案, 以提高光丝影响环境大气的效率及范围。

5) 微观上, 飞秒光丝诱导光化学反应及气溶胶形成的过程, 目前还存在很多不清楚的地方, 例如: 在排除 HNO_3 存在的 Ar 环境中, 气溶胶生成速率较存在 HNO_3 副产物的空气环境中更高; 在光丝数目饱和的情形下, 气溶胶生成速率依然随激光功率的提高呈指数增长等, 说明气溶胶的形成并不仅仅取决于光丝内电离过程及光氧化副产物的生成。

为了更好地理解及控制气溶胶(或云凝结核)的形成过程, 还需要从分子动力学的角度, 对飞秒光丝诱导的光氧化副产物及其形成复合物、气溶胶等过程的物理机理, 以及对激光能量、脉冲宽度和环境温度湿度等参数的依赖关系进行深入的研究。

因此, 针对飞秒激光人工影响天气未来走向应用, 研究者们还需要通过不断的深入研究, 认真理清以下问题: 1) 如何保障可移动式飞秒激光稳定、可靠的作业能力, 并针对人工影响环境大气应用, 考虑目前的飞秒激光大气传输理论模型是否已足够完善? 2) 完善飞秒激光与不同云雾环境相互作用过程的物理图像, 同时探索其以四两拨千斤的方式启动宏观尺度水凝结及沉降过程的关键点; 3) 从分子动力学的角度, 给出飞秒光丝光化学反应过程与光丝非线性效应之间的依赖关系, 研究影响气溶胶(或云凝结核)生成效率的关键参数。

5 结束语

对飞秒激光成丝人工影响环境大气的基本原理及最新研究进展进行了综述。飞秒光丝可通过三个途径积极影响云凝结核的生成及后续水凝结和降水过程, 即: 1) 通过光化学反应生成的吸湿性盐类, 与环境中的挥发性有机物分子及 H_2O 分子结合形成

气溶胶, 或者直接吸附于环境中预先存在的气溶胶颗粒中, 从而促进水凝结及降水过程; 2) 光丝的热沉积产生超声波, 或热扩散形成低密度通道, 扰动周围气流进行热力学运动, 通过挤压周围潮湿气体或者混合不同温湿度潮湿气体, 形成过饱和态, 促进光丝产生吸湿性气溶胶或背景中的气溶胶诱导水凝结及降水; 3) 光丝击碎预先存在的冰晶, 形成次级冰晶, 通过 WBF 过程, 促进水凝结及降水过程。飞秒激光成丝技术在人工影响天气领域的发展只有短短几年时间, 未来该项技术走向应用, 将主要依赖于飞秒激光技术的不断发展, 以及对飞秒激光与云雾相互作用的物理机理研究的不断深入。

参 考 文 献

- [1] Braun A, Korn G, Liu X, Du D, *et al.* Self-channeling of high-peak-power femtosecond laser pulses in air[J]. *Optics Letters*, 1995, 20(1): 73-75.
- [2] Couairon A, Mysyrowicz A. Femtosecond filamentation in transparent media[J]. *Physics Reports*, 2007, 441(2/3/4): 47-189.
- [3] Bergé L, Skupin S, Nuter R, *et al.* Ultrashort filaments of light in weakly ionized optically transparent media[J]. *Reports on Progress in Physics*, 2007, 70: 1633-1713.
- [4] Kasparian J, Wolf J P. Physics and applications of atmospheric nonlinear optics and filamentation[J]. *Optics Express*, 2008, 16(1): 466-493.
- [5] Chin S L. Femtosecond laser filamentation[M]. New York: Springer, 2010.
- [6] Durand M, Houard A, Prade B, *et al.* Kilometer range filamentation[J]. *Optics Express*, 2013, 21(22): 26836-26845.
- [7] Marburger J H. Self-focusing: theory[J]. *Progress in Quantum Electronics*, 1975, 4: 35-110.
- [8] Nishioka H, Odajima W, Ueda K I, *et al.* Ultrabroadband flat continuum generation in multichannel propagation of terrawatt Ti:sapphire laser pulses[J]. *Optics Letters*, 1995, 20(24): 2505-2507.
- [9] Liu J S, Duan Z L, Zeng Z N, *et al.* Time-resolved investigation of low-density plasma channels produced by a kilohertz femtosecond laser in air[J]. *Physical Review E*, 2005, 72(2): 026412.
- [10] Lahav O, Levi L, Orr I, *et al.* Long-lived waveguides and sound-wave generation by laser filamentation[J]. *Physical Review A*, 2014, 90(2): 021801.
- [11] Vidal F, Comtois D, Chien C Y, *et al.* Modeling the

- triggering of streamers in air by ultrashort laser pulses [J]. *IEEE Transactions on Plasma Science*, 2000, 28(2): 418-433.
- [12] Petit Y, Henin S, Kasparian J, *et al.* Production of ozone and nitrogen oxides by laser filamentation [J]. *Applied Physics Letters*, 2010, 97(2): 021108.
- [13] Xu H L, Azarm A, Bernhardt J, *et al.* The mechanism of nitrogen fluorescence inside a femtosecond laser filament in air [J]. *Chemical Physics*, 2009, 360(1/2/3): 171-175.
- [14] Aközbek N, Iwasaki A, Becker A, *et al.* Third-harmonic generation and self-channeling in air using high-power femtosecond laser pulses [J]. *Physical Review Letters*, 2002, 89(14): 143901.
- [15] Tzortzakis S, Méchain G, Patalano G, *et al.* Coherent subterahertz radiation from femtosecond infrared filaments in air [J]. *Optics Letters*, 2002, 27(21): 1944-1946.
- [16] Chin S L, Xu H L, Luo Q, *et al.* Filamentation “remote” sensing of chemical and biological agents/pollutants using only one femtosecond laser source [J]. *Applied Physics B*, 2009, 95(1): 1-12.
- [17] Couairon A, Biegert J, Hauri C P, *et al.* Self-compression of ultra-short laser pulses down to one optical cycle by filamentation [J]. *Journal of Modern Optics*, 2006, 53(1/2): 75-85.
- [18] Pépin H, Comtois D, Vidal F, *et al.* Triggering and guiding high-voltage large-scale leader discharges with sub-joule ultrashort laser pulses [J]. *Physics of Plasmas*, 2001, 8(5): 2532-2539.
- [19] Wolf J P. Short-pulse laser for weather control [J]. *Reports on Progress in Physics*, 2018, 81(2): 026001.
- [20] Kossyi A, Yu Kostinsky A, Matveyev A, *et al.* Kinetic scheme of the non-equilibrium discharge in nitrogen-oxygen mixtures [J]. *Plasma Sources Science and Technology*, 1992, 1(3): 207-220.
- [21] Seinfeld J H, Pandis S N, Noone K. Atmospheric chemistry and physics: from air pollution to climate change [J]. *Physics Today*, 1998, 51(10): 88-90.
- [22] Ju J J, Liu J S, Wang C, *et al.* Laser-filamentation-induced condensation and snow formation in a cloud chamber [J]. *Optics Letters*, 2012, 37(7): 1214-1216.
- [23] Ju J J, Sun H Y, Sridharan A, *et al.* Laser-filament-induced snow formation in a subsaturated zone in a cloud chamber: experimental and theoretical study [J]. *Physical Review E*, 2013, 88(6): 062803.
- [24] Mongin D, Slowik J G, Schubert E, *et al.* Non-linear photochemical pathways in laser-induced atmospheric aerosol formation [J]. *Scientific Reports*, 2015, 5: 14978.
- [25] Zhao J, Khalizov A, Zhang R Y, *et al.* Hydrogen-bonding interaction in molecular complexes and clusters of aerosol nucleation precursors [J]. *The Journal of Physical Chemistry A*, 2009, 113(4): 680-689.
- [26] Laaksonen A, Korhonen P, Kulmala M, *et al.* Modification of the Köhler equation to include soluble trace gases and slightly soluble substances [J]. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 1998, 55(5): 853-862.
- [27] Rohwetter P, Kasparian J, Wöste L, *et al.* Modelling of HNO₃-mediated laser-induced condensation: a parametric study [J]. *The Journal of Chemical Physics*, 2011, 135(13): 134703.
- [28] Saathoff H, Henin S, Stelmaszczyk K, *et al.* Laser filament-induced aerosol formation [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2013, 13(9): 4593-4604.
- [29] Hu X K, Ju J J, Li R X, *et al.* Femtosecond laser-induced 0.3-2.0 μm aerosol formation [J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2019, 46(3): 0308001.
胡兴凯, 鞠晶晶, 李儒新, 等. 飞秒激光诱导 0.3-2.0 μm 气溶胶的形成 [J]. *中国激光*, 2019, 46(3): 0308001.
- [30] Ran L, Deng Z, Ju J J, *et al.* Femtosecond laser filament induced particles and their cloud condensation nuclei activity [J]. *Atmospheric Environment*, 2019, 206: 271-279.
- [31] Petrarca M, Henin S, Stelmaszczyk K, *et al.* Multijoule scaling of laser-induced condensation in air [J]. *Applied Physics Letters*, 2011, 99(14): 141103.
- [32] Ju J J, Sun H Y, Hu X K, *et al.* Temporal evolution of condensation and precipitation induced by a 22-TW laser [J]. *Optics Express*, 2018, 26(3): 2785-2793.
- [33] Matthews M, Pomel F, Wender C, *et al.* Laser vaporization of cirrus-like ice particles with secondary ice multiplication [J]. *Science Advances*, 2016, 2(5): e1501912.
- [34] Leisner T, Duft D, Mohler O, *et al.* Laser-induced plasma cloud interaction and ice multiplication under cirrus cloud conditions [J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2013, 110(25): 10106-10110.
- [35] Sun H Y, Liu J S, Wang C, *et al.* Laser filamentation induced air-flow motion in a diffusion cloud chamber [J]. *Optics Express*, 2013, 21(8): 9255-9266.
- [36] Sun H Y, Liang H, Liu Y H, *et al.* Differently patterned airflows induced by 1-kHz femtosecond laser filaments in a cloud chamber [J]. *Applied*

- Physics B, 2015, 121(2): 155-169.
- [37] Ju J J, Leisner T, Sun H Y, *et al.* Laser-induced supersaturation and snow formation in a sub-saturated cloud chamber[J]. Applied Physics B, 2014, 117(4): 1001-1007.
- [38] Liu Y H, Sun H Y, Ju J J, *et al.* Vortices formation induced by femtosecond laser filamentation in a cloud chamber filled with air and helium[J]. Chinese Optics Letters, 2016, 14(3): 031401.
- [39] Schimmel G, Produit T, Mongin D, *et al.* Free space laser telecommunication through fog[J]. Optica, 2018, 5(10): 1338.
- [40] Schubert E, de la Cruz L, Mongin D, *et al.* Dual-scale turbulence in filamenting laser beams at high average power[J]. Physical Review A, 2016, 94(4): 043808.
- [41] Rohwetter P, Kasparian J, Stelmaszczyk K, *et al.* Laser-induced water condensation in air[J]. Nature Photonics, 2010, 4(7): 451-456.
- [42] Henin S, Petit Y, Rohwetter P, *et al.* Field measurements suggest the mechanism of laser-assisted water condensation[J]. Nature Communication, 2011, 2: 456.
- [43] Petit Y, Henin S, Kasparian J, *et al.* Influence of pulse duration, energy, and focusing on laser-assisted water condensation [J]. Applied Physics Letters, 2011, 98(4): 041105.
- [44] Matthews M, Henin S, Pomel F, *et al.* Cooperative effect of ultraviolet and near-infrared beams in laser-induced condensation [J]. Applied Physics Letters, 2013, 103(26): 264103.
- [46] Liu Y H, Sun H Y, Liu J S, *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.
- [47] Ju J J, Liu J S, Liang H, *et al.* Femtosecond laser filament induced condensation and precipitation in a cloud chamber[J]. Scientific Reports, 2016, 6: 25417.
- [48] Rodriguez M, Bourayou R, Méjean G, *et al.* Kilometer-range nonlinear propagation of femtosecond laser pulses [J]. Physical Review E, 2004, 69(3): 036607.
- [49] Comtois D, Chien C Y, Desparois A, *et al.* Triggering and guiding leader discharges using a plasma channel created by an ultrashort laser pulse [J]. Applied Physics Letters, 2000, 76(7): 819-821.
- [50] Bazelyan E M, Raizer Y P. The mechanism of lightning attraction and the problem of lightning initiation by lasers [J]. Physics-Uspokhi, 2000, 43(7): 701-716.
- [51] Uchida S, Shimada Y, Yasuda H, *et al.* Laser-triggered lightning in field experiments[J]. Journal of Optical Technology, 1999, 66(3): 199-202.
- [52] Rambo P, Schwarz J, Diels J C. High-voltage electrical discharges induced by an ultrashort-pulse UV laser system[J]. Journal of Optics A: Pure and Applied Optics, 2001, 3(2): 146-158.
- [53] 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.
- [54] Wang T J, Wei Y X, Liu Y X, *et al.* Direct observation of laser guided corona discharges [J]. Scientific Reports, 2016, 5: 18681.
- [55] Kasparian J, Ackermann R, Andre Y B, *et al.* Progress towards lightning control using lasers [J]. Journal of the European Optical Society: Rapid Publications, 2008, 3: 08035.
- [56] Point G, Arantchouk L, Thouin E, *et al.* Long-lived laser-induced arc discharges for energy channeling applications [J]. Scientific Reports, 2017, 7(1): 13801.
- [57] Zhang R, Wang L, Khalizov A F, *et al.* Formation of nanoparticles of blue haze enhanced by anthropogenic pollution [J]. Proceedings of the National Academy of Sciences, 2009, 106(42): 17650-17654.
- [58] Zhang R Y, Khalizov A, Wang L, *et al.* Nucleation and growth of nanoparticles in the atmosphere [J]. Chemical Reviews, 2012, 112(3): 1957-2011.