

# 激光导致水击穿和等离子体形成过程的物理分析\*

李 明<sup>1,2</sup> 张宏超<sup>1</sup> 沈中华<sup>1</sup> 陆 建<sup>1</sup> 倪晓武<sup>1</sup>

(1 南京理工大学理学院应用物理系, 南京 210094)

(2 淮海工学院教务处, 连云港 222005)

**摘 要** 对短脉冲激光作用水介质中引起光学击穿的机制进行了分析, 通过自由电子密度速率方程的数值解确定激光的击穿阈值. 将数值计算结果与波长在可见光和近红外波段, 脉宽为 ns、ps 和 fs 的激光脉冲在纯净水和含有杂质的水中的实验测量的击穿阈值作了比较. 还计算了等离子体中自由电子密度的演化、等离子体吸收系数和能量密度. 通过解自由电子密度速率方程得到结果与实验测量的值符合得很好.

**关键词** 激光物理; 光学击穿; 脉冲激光; 水; 电子密度

**中图分类号** TN241; TN249 **文献标识码** A

## 0 引言

激光与气态、固态物质的相互作用研究起步较早, 其理论体系较为完整<sup>[1,2]</sup>, 并在激光加工和激光武器领域得到了广泛的应用. 70 年代以来, 激光与液态物质相互作用的研究得到了迅速发展, 特别是短脉冲激光(如 fs 激光器)的产生, 进一步激起了人们对激光与物质相互作用研究的热情<sup>[3~7]</sup>.

激光在液体中击穿的物理机制主要是雪崩电离机制和多光子电离机制. 雪崩过程的建立, 其必要条件是在初期聚焦区域内必须存在一定量的原初电子来充当“种子”电子, “种子”电子可由杂质、热激发电子或多光子电离产生. 多光子电离是一种非线性光学过程, 它只发生在高能量辐射和波长为近红外或更短的区域<sup>[1]</sup>. 但杂质的影响在一些情况下也会变得很弱, 甚至可以忽略, 如短的激光波长和小的激光焦点半径.

本文在对短脉冲激光作用水介质中引起光学击穿的机制进行了分析的基础上, 通过自由电子密度速率方程的数值解确定激光的击穿阈值. 将数值计算的结果与波长在可见光和近红外波段, 脉宽为 ns、ps 和 fs 的激光脉冲在纯净水和含有杂质的水中的实验测量的击穿阈值作了比较. 还计算了等离子体中自由电子密度的演化、等离子体吸收系数和能量密度. 通过解自由电子密度速率方程得到结果与实验测量的值符合得很好.

## 1 激光导致水击穿和等离子体形成过程的物理模型

### 1.1 等离子体密度的速率方程

等离子体密度演化过程的速率方程<sup>[8]</sup>为

$$\frac{d\rho}{dt} = \left(\frac{d\rho}{dt}\right)_m + \eta_{\text{casc}}\rho - g\rho - \eta_{\text{rec}}\rho^2 \quad (1)$$

式(1)右边的第一项用来描述多光子电离, 第二项用来描述雪崩离子化, 第三项描述扩散到激光焦点区域外的电子, 最后一项描述的是电子的复合损失. Docchio<sup>[1]</sup>从试验中估计到 $\eta_{\text{rec}}$ 的经验值为 $\eta_{\text{rec}} = 2 \times 10^{-9} \text{ cm}^3/\text{s}$ .

### 1.2 用光学击穿的速率方程确定等离子体击穿阈值

通过自由电子速率方程的数值解来确定光学击穿阈值, 同时确定自由电子密度在击穿阈值随时间的演化过程, 阈值脉冲能量, 等离子体的吸收系数以及等离子体的能量密度.

选择二个不同的临界电子密度作为介质击穿标准: 1)  $\rho_{\text{cr}} = 10^{20} / \text{cm}^3$ , 在这个标准下, 会产生温度较高、密度较大, 并且用肉眼就会显著观察到闪光的等离子体, 这个标准与实验的真实条件也最接近. 2)  $\rho_{\text{cr}} = 10^{21} / \text{cm}^3$ , 计算结果显示, 对于 ps 和 fs 激光脉冲, 采用这个标准, 得出的理论结果与实验数据会更加接近. 具体采用哪种标准更符合实际由实验的条件决定.

### 1.3 等离子体的吸收系数

当激光脉宽一旦大于 40 fs 的情况下, 雪崩电离就在介质击穿过程中占主导地位<sup>[9,10]</sup>. 因此, 可以假设逆韧致吸收在激光脉宽的时间内是主导的吸收过程, 进而等离子体的平均吸收系数<sup>[9]</sup>为

$$\alpha_p = \frac{e^2 \tau / m \epsilon_0 c n}{1 + \omega^2 \tau^2} \frac{\int I(t) \rho(t) dt}{\int I(t) dt} \quad (2)$$

\* 国家自然科学基金(No. 60208004)和教育部青年教师教学科研奖励计划基金资助

Tel: 0518-5585722 Email: lygliming@yahoo.com.cn

收稿日期: 2005-05-17

式(2)右边的第一项因子是逆韧致吸收的吸收截面,第二项因子表示自由电子密度与激光脉冲的相交部分.  $e, m$  分别是电子电量和电子质量,  $\tau, \omega$  为激光脉冲宽度与频率,  $c$  光速,  $I(t)$  为激光强度.

#### 1.4 等离子体能量密度

对于飞秒量级的激光脉冲, 因为复合和碰撞损失在激光脉宽时间内的损失非常的小, 可以忽略不计, 通过  $\epsilon \approx \rho_{cr} \Delta E'$  来估计等离子体的能量密度, 其中  $\Delta E' = \Delta E + \epsilon_{av} = \frac{3}{2} \Delta E$ , 于是有

$$\epsilon \approx \frac{3}{2} \rho_{cr} \Delta E \quad (3)$$

对于长脉冲, 相当大的一部分能量通过电子  $m$  与重粒子  $M$  的碰撞和复合损失掉, 对碰撞损失和复合损失积分<sup>[9]</sup>得

$$\epsilon \approx \frac{3}{2} \Delta E \int_{-\infty}^{+\infty} \left( \frac{m}{M} \frac{\omega^2 \tau}{\omega^2 \tau^2 + 1} \rho(t) + \eta_{rec} \rho(t) \right) dt \quad (4)$$

#### 1.5 物理模型及模拟计算方法

为了能够实现对击穿速率式(1)的求解, 提出以下假设:

1) 对于纯水, 将击穿过程分成两个阶段. 第一阶段只有多光子电离起作用, 不论激光脉宽的长短, 激光焦点至少存在一个电子, 即  $\rho \pi \omega^2 z_R \geq 1$  时, ( $z_R$  为瑞利长度), 雪崩电离就开始起作用. 在第二阶段, 多光子电离和雪崩电离都起作用.

$$\begin{cases} \eta_{casc} = \left( \frac{1}{\omega^2 \tau^2 + 1} \right) \left( -\frac{m \omega^2 \tau}{M} \right) & (\rho \pi \omega^2 z_R < 1) \\ \eta_{casc} = \left( \frac{1}{\omega^2 \tau^2 + 1} \right) \left[ \frac{e^2 I_0 \tau}{c n_0 \epsilon_0 m \Delta E} - \frac{m \omega^2 \tau}{M} \right] & (\rho \pi \omega^2 z_R > 1) \end{cases} \quad (5)$$

2) 对于含有杂质的水, 也分成两个阶段来计算. 假设在激光脉冲作用前, 由于热激发在激光焦点内已存在着一个“种子”电子. 于是  $\rho_0 = 1/V_t$ . 但是由于速率方程中损失项的存在, 在求解的过程中会发现: 随着  $t$  的增长, 电子密度  $\rho$  会很快的衰减为零. 需再假设在介质中处处的自由电子密度都为  $\rho_0$ , 于是, 在激光的初始阶段, 击穿速率方程中的损失项都可以忽略掉, 直到  $\rho$  大于  $\rho_0$  时, 才将损失项加进去. 即

当  $\rho \pi \omega^2 z_R < 1$  时

$$\begin{cases} \frac{d\rho}{dt} = \left( \frac{d\rho}{dt} \right)_m + \eta_{casc} \rho \\ \eta_{casc} = \left( \frac{1}{\omega^2 \tau^2 + 1} \right) \left( -\frac{e^2 I_0 \tau}{c n_0 \epsilon_0 m \Delta E} \right) \end{cases} \quad (6)$$

当  $\rho \pi \omega^2 z_R \geq 1$  时

$$\begin{cases} \frac{d\rho}{dt} = \left( \frac{d\rho}{dt} \right)_m + \eta_{casc} \rho - g\rho - \eta_{rec} \rho^2 \\ \eta_{casc} = \left( \frac{1}{\omega^2 \tau^2 + 1} \right) \left( \frac{e^2 I_0 \tau}{c n_0 \epsilon_0 m \Delta E} - \frac{m \omega^2 \tau}{M} \right) \end{cases} \quad (7)$$

3) 基于以上两点, 给定激光波长、脉宽和焦点半径, 就可以通过解速率方程(1)来确定介质击穿的辐照阈值. 在程序中, 需试探着来寻找阈值  $I_{rate}$ , 将不同的光强  $I_0$  代入到上面的微分方程中求解, 直到找到一个值  $I_0 = I_{rate}$ , 使得电子密度  $\rho$  得最大值  $\rho_{max} = \rho_{cr}$  时, 就可以认为  $I_{rate}$  为介质的击穿阈值.  $I_{rate}$  的最大误差保持在 1% 以内.

## 2 计算结果与实验的比较

给出激光脉冲的波长、脉宽、激光焦点半径和是否纯净水, 则可通过上述模型计算出水的击穿阈值, 计算击穿区域的自由电子演化规律、等离子体平均吸收系数和等离子体的能量密度, 以及它们与激光脉冲脉宽之间的关系.

### 2.1 水的击穿阈值

表 1<sup>[10]</sup> 中给出了纯净水中的试验击穿阈值和模型给出的理论阈值. 从表中可以看出, 对于 ns 激光脉冲,  $I_{rate20}$  (假设  $\rho_{cr} = 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ ) 更接近试验结果, 对于 ps 和 fs 光脉冲,  $I_{rate21}$  (假设  $\rho_{cr} = 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ ) 更接近试验结果. 这是由于 ns 激光脉冲在击穿介质的过程中, 电子的复合限制了自由电子的密度, 而对于 ps 和 fs 激光脉冲, 电子复合的影响却很小. 另一方面, fs 激光脉冲击穿与空泡形成有相互影响, 击穿有更高的临界电子密度  $\rho_{cr} = 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ . 从表中也可以看出, 对于 1064 nm 的激光脉冲, 当其脉宽为 30 ps 时, 无论是  $I_{rate20}$  还是  $I_{rate21}$  都与实验的值相差比较大, 不像其它的数据那样与实验数据符合得那样好, 因为这时应是多光子电离和雪崩电离共同作用的结果, 这也说明了模型的缺陷.

表 1 激光击穿阈值

$\tau_L$	$\lambda/\text{nm}$	$2w_0/\mu\text{m}$	$I_{th}$	$I_{rate20}$	$I_{rate21}$
76 ns	750	20	0.2	0.22	1.94
6 ns	1064	7.7	0.5	0.60	1.08
6 ns	532	5.3	0.3	0.41	3.62
30 ps	1064	4.7	4.5	1.1	1.34
30 ps	532	3.4	3.8	0.94	3.61
3 ps	580	5	8.5	7.17	9.18
300 fs	580	5	47.6	40.8	51.6
100 fs	580	4.4	111	84.6	111.9

注: 表中给出了纯净水中的试验击穿阈值和模型给出的理论阈值.  $I_{th}$  试验测得的实际击穿阈值,  $I_{rate20}$ ,  $I_{rate21}$  分别为假设  $\rho_{cr} = 10^{20} \text{ cm}^{-3}$  和  $\rho_{cr} = 10^{21} \text{ cm}^{-3}$  时由自由电子速率方程(1)得到的击穿阈值.

从表中还可以看出, 当激光脉冲大于 10 ns 时, 由于模型中没有考虑到电子的复合损失, 它给出的击穿阈值明显地不符合实际. 原因就是它假设雪崩电离在  $0.1\tau_L$  才开始起作用, 而实际上随着击穿阈值的变化, 雪崩电离开始占主导作用的时间也有

不同,所以它只能在一个相对较窄的范围内与实验数据符合. 对于纳秒脉冲,假设雪崩电离开始占主导优势的时间又往往比实际的时间晚.

### 2.2 等离子体的时间演化

1) 图 1 为不同波长和不同脉宽击穿阈值时的在纯净水中自由电子密度演化. 计算中假设  $\rho_{cr} = 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ , 焦点半径为  $5 \mu\text{m}$ . 实线是多光子电离和雪崩电离共同作用的结果,而虚线是仅有多光子电离作用的结果. 从图中可看出,对于纳秒脉冲,在脉

冲初始阶段,自由电子的密度通过多光子吸收缓慢增长,一旦在焦点区域内产生一个电子,雪崩电离便迅速占据主导地位,在很短的时间内,自由电子的密度迅速升高了几个数量级,但是当电子密度接近击穿的临界电子密度时,由于电子的复合( $\propto \rho^2$ ),自由电子密度的增长就缓慢下来,在这个阶段,电子的损失与复合达到了一种动态平衡. 在脉冲的后沿,由于光强减弱,不能够产生足够的电子来补偿损失的电子,于是,电子密度在脉冲的后沿急剧地下降.

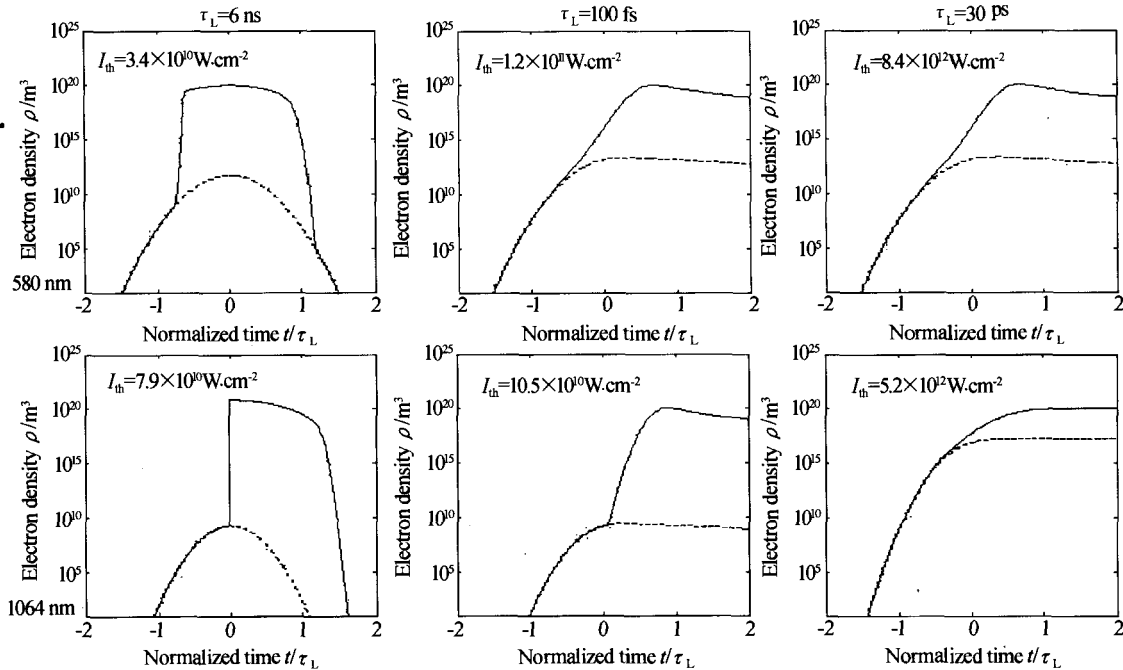


图 1 不同波长和不同脉宽击穿阈值时的自由电子密度演化

Fig. 1 The evolution of electron density for different wavelengths and pulse width breakdown thresholds

对于 ps 级脉冲来说,由于激光的脉宽很窄,必须提高光强,雪崩电离才能在脉冲的时间内击穿介质. 由于多光子电离  $\propto I^k$ ,而雪崩电离  $\propto I$ ,所以,随着激光脉冲的缩短,多光子电离就逐渐显得尤为重要. 对于 100 fs 的脉冲,多光子电离就在击穿的前期一直主导的作用,直到接近击穿阈值时,雪崩电离才变得显著. 实际上,对于可见光来说,只有当脉宽

小于 40 fs 时<sup>[10]</sup>,多光子电离才能在击穿的整个过程中完全占主导的作用.

2) 图 2 为不同波长和不同脉宽击穿阈值时在含有杂质的水中的自由电子密度演化. 计算中假设  $\rho_{cr} = 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ , 焦点半径为  $5 \mu\text{m}$ . 实线是多光子电离和雪崩电离共同作用的结果,而虚线是仅有多光子电离作用的结果. 假设在脉冲入射前在激光焦

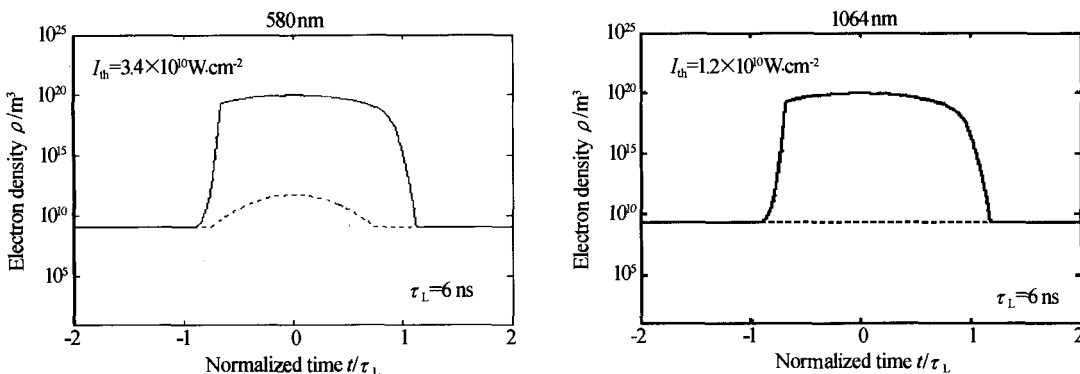


图 2 脉宽为 6 ns 的激光脉冲在含有杂质的水中的自由电子密度的演化

Fig. 2 The evolution of electron density in impure water by laser pulse width 6 ns

区域内已经存在一个电子,因此并不需要多光子电离提供初始电子.从图中可以看出,1064 nm 的激光脉冲要明显低于纯净水的击穿阈值,并且击穿过程也很慢.580 nm 激光脉冲与纯净水中的击穿相同.

### 2.3 等离子体的吸收系数

图 3 给出了等离子体的平均吸收系数与激光脉宽之间的关系.计算等离子体的平均吸收系数采用式(2),并且假设  $\rho_{cr} = 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ ,激光脉冲波长为 580 nm.从图中可以看出,当激光脉冲高于 1 ns 时,等离子体的平均吸收系数几乎保持不变,这是由于 ns 级脉冲的自由电子密度演化规律都很相似,激光脉冲的前一部分由于缺乏种子电子,自由电子的密度几乎可以完全忽略掉,而后一部分由于引发了雪崩电离,激光的能量几乎完全被吸收掉.随着激光脉冲的缩短,等离子体的吸收系数逐渐的减小,在几个 ps 处达到最小值,然后又逐渐的增大.平均吸收系数的逐渐减小是由于自由电子的密度在激光峰值过后相对较晚的时间才达到一个足够高的值.等离子体吸收系数再次增加,是由于随着辐照阈值的增加,多光子电离子在激光脉冲的初期就已经提供了足够多的自由电子,对激光产生了强烈的吸收.

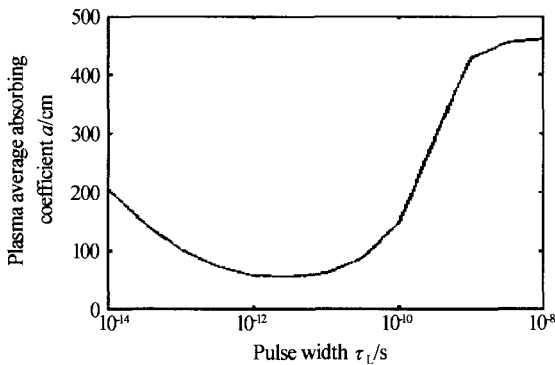


图 3 等离子体平均系数与激光脉宽之间的的关系

Fig. 3 The relation between plasma average absorbing coefficient and laser pulse width

### 2.4 等离子体能量密度

图 4 为击穿区域的能量密度与激光脉宽之间的关系.计算时假设临界自由电子密度为  $\rho_{cr} = 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ ,焦点半径为  $5 \mu\text{m}$ ,激光脉冲波长为 580 nm.计算出阈值附近的自由电子密度的演化后,再采用式(4)计算击穿区域的能量密度.可见,当激光脉宽大于 1 ns 时,等离子体的平均吸收系数几乎保持恒定.当激光脉冲小于几个 ps 时,激光脉冲的能量逐渐的减小,而等离子体的平均吸收系数逐渐的增大,两者共同作用的结果相互抵消,在这个范围等离子体密度的值几乎保持不变.

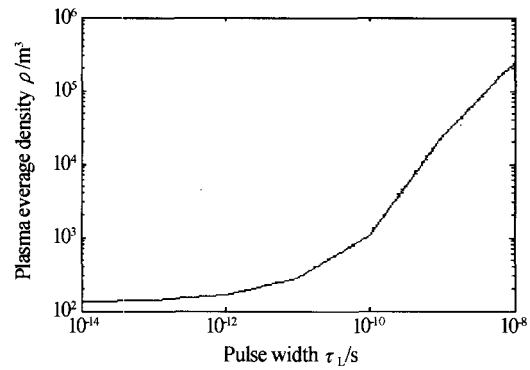


图 4 击穿区域的能量密度与激光脉宽之间关系

Fig. 4 The relation between energy density in breakdown area and the laser pulse width

激光通过产生自由电子和对自由电子的加速将能量耦合到介质中.自由电子获得能量后,又通过碰撞和复合将能量传给等离子体中的重粒子,导致了原子和离子的加热.显然,碰撞和复合的多少以及等离子体的加热与激光的脉宽成正比.电子冷却(通过碰撞将能量传输给重粒子)时间仅几个 ps.由于电子的复合速率与  $\rho^2$  成正比,所以对于较低和中等电子密度复合时间要长一些.当  $\rho_{cr} = 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ ,大约需要 40 ps 的时间,自由电子密度才能从它的峰值下降一个数量级.

对于 fs 激光脉冲,激光脉冲要小于电子冷却和复合的时间,在激光的脉冲内几乎没有什么能量能够传输给粒子,所以等离子体的能量密度由自由电子的密度以及平均能量决定:  $\epsilon = (3/2)\rho_{cr}\Delta E$ .当脉冲脉宽大于几个 ps 时,在激光脉冲持续的时间内,电子就会不断的将从激光脉冲获得能量传给重粒子,从而导致了等离子体的密度随着脉冲脉宽的增加而增加.当脉冲脉宽大于几十个 ps 的时候,通过激光场产生的电子与电子的复合损失之间建立了一种平衡,等离子体随着激光脉宽增加的速度将更快.当激光脉冲大于 1 ns 时,由于等离子体的演化规律的变化,  $\epsilon(t/t_L)$  的斜率也发生了变化.对于 ns 脉冲,电子密度在很大的范围内保持恒定,然而计算的电子密度与激光脉宽成正比.

## 3 结论

考虑到多光子电离和雪崩电离的形成条件和作用来对自由电子速率方程进行适当简化,并以通过自由电子密度速率方程的数值解来确定水的激光光学击穿阈值.数值计算的结果与波长在可见光和近红外波段,脉宽为 ns、ps 和 fs 的激光脉冲在水中的实验测量击穿阈值较好吻合.通过该模型还可计算得到了等离子体中自由电子密度的演化、等离子体吸收系数和能量密度.

## 参考文献

- 1 Docchio F, Regondi P, Capon M R C, *et al.* Study of the temporal and spatial dynamics of plasmas induced in liquids by nanosecond Nd : YAG laser pulses 1—Analysis of the plasma starting times. *Appl Opt*, 1988, **27**(17):3661~3668
- 2 倪晓昌,王清月. 时空分布的超短激光脉冲烧蚀电介质材料时等离子体的产生. 光子学报, 2004, **33**(9): 1035~1039  
Ni X C, Wang C Y. *Acta Photonica Sinica*, 2004, **33**(9): 1035~1039
- 3 Lauterborn W. High-speed photography of laser-induced breakdown in liquids. *Appl Phys Lett*, 1972, **21**(1): 27~29
- 4 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. 激光技术, 2002, **26**(4): 258~232  
Ni X W, Chen X, Lu J. *Laser Technology*, 2002, **26**(4): 258~232
- 5 Kennedy P K, Boppart S A, Hammer D X, *et al.* A first-order model for computation of laser-induced breakdown thresholds in ocular and aqueous media—Part I: Comparison to experiment. *IEEE J Quantum Electron*, 1995, **31**(12):2250~2257
- 6 张琳,张连顺,许棠,等. 生物组织光学参数的离体和体无损测量. 光子学报, 2004, **33**(11):1378~1381  
Zhang L, Zhang L S, Xu T, *et al.* *Acta Photonica Sinica*, 2004, **33**(11):1378~1381
- 7 黎高平,王雷,杨照金,等. 长脉冲高能激光能量测试技术的研究. 光子学报, 2004, **33**(9):1111~1114  
Li G P, Wang L, Yang Z J, *et al.* *Acta Photonica Sinica*, 2004, **33**(9):1111~1114
- 8 Ready J F. Effect of high-power laser radiation. 1st ed. New York: Academic Press Inc, 1971. 20~104
- 9 Nahen K, Vogel A. Plasma formation in water by picosecond and nanosecond Nd : YAG laser pulses—I; Plasma transmission, scattering, and reflection. *IEEE J Quantum Electron*, 1996, **32**(4): 861~871
- 10 Joachim N, Vogel A. Laser-induced plasma formation in water at nanosecond to femtosecond time scales calculation of thresholds, absorption coefficients, and energy density. *IEEE J Quantum Electron*, 1999, **35**(8): 1155~1167

## Physical Analyses of Optical Breakdown and Plasma Formation in Water Induced by Laser

Li Ming<sup>1,2</sup>, Zhang Hongchao<sup>1</sup>, Shen Zhonghua<sup>1</sup>, Lu Jian<sup>1</sup>, Ni Xiaowu<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Nanjing University of Science and Technology, School of Science, Nanjing 210094

<sup>2</sup> Huaihai Institute of Technology, Teaching of Fairs of Fice, Lianyungang 222005

Received date: 2005-05-17

**Abstract** The physical mechanism of optical breakdown induced by short-pulse laser in water was analyzed, and the laser breakdown threshold was determined with a numerical calculating method for the rate equation of free electron density. The numerical calculating results were compared to experimentally measured breakdown threshold of pure water and impure water by nanosecond, picosecond and femtosecond laser pulses in the visible and near-infrared. On this basis, the evolution of the electron density and the absorption coefficient and energy density of the plasma during the laser pulse were gotten. A good quantitative agreement was found between calculated and measured values.

**Keywords** Laser physics; Optical breakdown; Pulse laser; Water; Electron density



**Li Ming** was born on Nov. 11, 1958, in Jiangsu Province China. He received his B. S. degree from Xuzhou Normal University in 1982 and his M. S. degree from Nanjing University in 2000, respectively. Now he is a vice professor in Huaihai Institute of Technology. He is working in the field of interaction of laser and material.