

脉冲激光导致水光学击穿阈值计算的简化模型*

李明^{1,2}, 张宏超¹, 沈中华¹, 陆建¹, 倪晓武¹

(1.南京理工大学理学院应用物理系, 江苏南京 210094; 2.淮海工学院教务处, 江苏连云港 222005)

摘要:通过对自由电子密度速率方程的简化, 得到了计算光学击穿阈值的解析式。将计算结果与波长分别在可见光和近红外波段, 脉宽分别为纳秒、皮秒和飞秒的激光脉冲在纯净水和含有杂质的水中实验测量的击穿阈值做了比较, 吻合较好。对于纳秒激光脉冲, 在纯净水中多光子电离提供初始电子, 随后雪崩电离很快在电离的过程中占主导地位。对于短脉冲, 多光子电离作用显得尤为重要, 并且在击穿的过程中复合损失和碰撞损失对击穿阈值的影响逐渐消失。

关键词:激光物理; 光学击穿; 脉冲激光; 水; 雪崩电离

中图分类号: TN241; TN249 **文献标识码:** A **文章编号:** 1007-2276(2005)06-0660-04

Simple model for optical breakdown threshold for water induced by pulse laser *

LI Ming^{1,2}, ZHANG Hong-chao¹, SHEN Zhong-hua¹, LU Jian¹, NI Xiao-wu¹

(1. Department of Applied Physics, College of Science, Nanjing University of Science and Technology, Nanjing 210094, China;

2. Teaching Affairs Office, Huaihai Institute of Technology, Lianyungang 222005, China)

Abstract: An analytical expression of optical breakdown threshold for water has been obtained after simplifying the rate equation of free electron density. The calculating results have been compared with experimentally measured breakdown threshold of pure water and impure water induced by nanosecond, picosecond and femtosecond laser pulses in the visible and near-infrared. For nanosecond laser pulses, the generation of free electrons in distilled water is initiated by multiphoton ionization but then dominated by avalanche ionization. For shorter laser pulses, multiphoton ionization becomes more important, and the effect of collision and recombination on breakdown threshold losses gradually during breakdown. A good quantitative agreement is achieved between calculated and measured results.

Key words: Laser physics; Optical breakdown; Pulse laser; Water; Avalanche ionization

0 引言

激光辐射达到一定的阈值时, 激光会导致介质击穿, 在介质中产生等离子体。自从1963年激光导致空气将高能量的激光脉冲聚焦在透明的介质中, 当击穿首次报道后^[1], 很多科研人员投身到高能激光

收稿日期: 2004-12-02; 修订日期: 2005-02-18

* 基金项目: 国家自然科学基金资助项目(60208004); 教育部青年教师教学科研奖励计划基金资助项目

作者简介: 李明(1958-), 男, 副教授, 博士生, 主要从事激光与液体相互作用等方面研究及教学工作。

与物质的相互作用的领域中来,并从实验和理论上对其进行了大量的研究。随着击穿效应在激光医学中得到了广泛的应用,人们开始对液态物质的光学击穿产生了浓厚的兴趣^[2,3]。特别是短脉冲激光(如飞秒激光器)的产生,进一步激起了人们研究激光与物质相互作用的热情^[4]。

目前,用来解释激光击穿液态水形成等离子体的机制主要有两种^[5,6]——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^[4]。

本文试图用一简化的物理模型来分析激光导致液体光学击穿的物理机制。从自由电子密度速率方程出发,推导出液体中电子雪崩电离速率表达式,进而得出液体中雪崩电离阈值的理论计算公式,并将理论计算结果与实验数据进行了比较分析。

1 雪崩电离和多光子电离

在介质的带宽高于一个光子的能量时,强电磁场与纯净的介质中的电子相互作用会导致非线性过程,如多光子电离和隧道效应,在导带中产生自由电子。自由电子产生后,又可在与原子或分子的碰撞过程中吸收光子。当电子获得足够的能量后,电子与原子或分子的碰撞就可以通过逆韧致辐射再产生一个电子。

在含有杂质的介质中,“种子”电子最有可能也最容易从杂质的电离中获得,而在纯净的介质中,由于电离能较高,介质中的一些原子或者分子会通过多光子吸收来产生“种子”电子。但杂质的影响在短激光波长和小激光焦点半径等情况下也会变得很弱,甚至可以忽略。

用来描述等离子体密度演化过程的速率方程^[5]为:

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

式中 $\left(\frac{d\rho}{dt}\right)_m$ 为多光子电离; $\eta_{casc} \rho$ 为雪崩离子化, η_{casc} 为雪崩电离速率; $g\rho$ 为扩散到激光焦点区域外的电子, g 为电子散射速率; $\eta_{rec} \rho^2$ 为电子的复合损失, η_{rec}

为电子复合速率。Docchio^[6]从试验中估计出的经验值为 $\eta_{rec} = 2 \times 10^{-9} \text{ cm}^3/\text{s}$ 。

1.1 多光子电离速率

为了使一个电离能为 ΔE 的原子或者分子电离,需要 $k = \langle \Delta E/h\omega + 1 \rangle$ 个光子,其中 $\langle \rangle$ 表示取整。多光子电离速率与 I^k 成正比,其中 I 为激光光束的光强。在激光光强远大于隧道电离频率的情况下,多光子电离的速率^[5,7]为:

$$\left(\frac{d\rho}{dt}\right)_m = A [BI_0]^k \quad (2)$$

式中 $A = \frac{2\omega}{9\pi} \left(\frac{m'\omega}{2h}\right)^{\frac{3}{2}} \exp(2k)\phi(z) \left(\frac{1}{16}\right)^k$; $B =$

$$\frac{e^2}{m'\Delta\omega^2 c \epsilon_0 n_0}, z = \sqrt{2k - \frac{2\Delta E}{h\omega}}; \phi(x) = \exp(-x^2) \int_0^x \exp(y^2) dy。$$

1.2 雪崩电离速率

雪崩电离速率可以从电子与电场相互作用的经典模型得出^[1]。设一个质量为 m 、电量为 e 的自由电子与角频率为 ω 、场强为 E 的电磁场作用,电子在与原子或者分子碰撞的过程中会从电磁场中吸收能量(逆韧致辐射),其获得能量的速率^[5]为:

$$\frac{d\epsilon_1}{dt} = v \left(\frac{e^2 E^2}{m\omega^2}\right) \left(\frac{\omega^2}{\omega^2 + v^2}\right) \quad (3)$$

式中 $v = n_a v_e \sigma_{tr}$, v_e 是有效碰撞频率, n_a 是原子或者分子的密度, σ_{tr} 为电子的运输截面。

如果一个电子与一个重粒子碰撞的过程中没有吸收光子,那么它将会损失能量。该电子在碰撞的过程中损失的能量为:

$$\frac{d\epsilon_2}{dt} = -2 \left(\frac{m}{M}\right) \epsilon_{av} v \left(\frac{\omega^2}{\omega^2 + v^2}\right) \quad (4)$$

式中 ϵ_{av} 是电子的平均能量; M 是原子或者分子的质量,这里指的是水分子的质量。设电子与离子碰撞的时间间隔为 $\tau = 1/v$,由上面的两个式子可以得到:

$$\frac{d\epsilon}{dt} = \frac{d\epsilon_1}{dt} + \frac{d\epsilon_2}{dt} = \left(\frac{e^2 E^2}{m} - \frac{2m\epsilon_{av}\omega^2}{M}\right) \left(\frac{\tau}{\omega^2 \tau^2 + 1}\right) \quad (5)$$

假设电子的能量一旦超过电离能 ΔE ,马上就会再产生一个新的电子:

$$\varepsilon_{av} = \frac{1}{2} \Delta E \quad (6)$$

于是可得电子的雪崩电离速率 $\eta_{casc} = \frac{d\varepsilon}{dt} / \varepsilon_{av}$ 为:

$$\eta_{casc} = \left(\frac{e^2 E^2}{m} - \frac{2m\varepsilon_{av}\omega^2}{M} \right) \left(\frac{\tau}{\omega^2 \tau^2 + 1} \right) / \Delta E \quad (7)$$

激光脉冲峰值光强 I_0 与电磁场 E 之间满足:

$$E^2 = I_0 / cn_0 \varepsilon_0 \quad (8)$$

最后得到每个电子的雪崩电离速率:

$$\eta_{casc} = \left(\frac{\tau}{\omega^2 \tau^2 + 1} \right) \left[\frac{e^2 I_0}{cn_0 \varepsilon_0 m \Delta E} - \frac{m\omega^2}{M} \right] \quad (9)$$

1.3 扩散速率

液态水中电子被区域势阱所捕获或者处于溶剂状态,在这些状态下电子的束缚能非常低 (-1.5 ± 0.5 eV)^[7],它们很容易通过碰撞或者单个光子产生二次电离。因为这些状态在阈值附近并不显著影响整个击穿过程,所以可忽略。依据前面的假设,采用高斯光束,焦点区域是半径为 ω_0 ,长为 Zr 的圆柱体,则每个电子的扩散速率^[5,7]为:

$$g = \frac{\tau \Delta E}{3m} \left[\left(\frac{2.4}{\omega_0} \right)^2 + \left(\frac{1}{Zr} \right)^2 \right] \quad (10)$$

2 等离子体击穿阈值简化模型

2.1 初始电子密度

初始的电子可以由多光子电离提供,也可以由杂质的热激发提供^[5]。对于纯净的介质只可能通过多光子电离来提供初始电子,而对于含有杂质的介质来说这两种机制都可能起作用。定义: $\rho_0 = \rho_{\alpha} + \rho_{om}$ 其中 ρ_{α} 表示由热激发提供的初始电子密度, ρ_{om} 表示由多光子电离提供的初始电子密度。

对于初始电子密度可以通过前面已经给出的多光子电离速率方程(2)得到:

$$\rho_{om} = \Delta t A [BI_0]^k \quad (11)$$

假定初始电子由激光脉冲的前沿提供, $\Delta t = \tau_L / 10$, τ_L 为激光脉宽,脉冲前沿的光强为最大光强的一半,于是得到:

$$\rho_{om} = 0.1 \Delta t A [BI_0/2]^k \quad (12)$$

在纯水中,初始电子完全由多光子吸收提供, $\rho_0 = \rho_{om}$ 。

为了方便,可忽略多光子电离的作用,并假设当激光脉冲大于 1 ns 时,光束焦点的区域内已经存在 $N_0 = 10$ 个电子;激光脉冲小于 1 ns 时,光束焦点的区域内已经存在 $N_0 = 1$ 个电子,在该情况下雪崩电离起到显著作用。

2.2 雪崩电离阈值

考虑到 η_{rec} 只有在电子密度很高(介质击穿后)时才很显著,故可在液态水击穿阈值附近忽略电子复合损失。另外,由于存在初始电子,故雪崩电离在此过程中起主要作用,因此又可忽略多光子电离影响,这样由公式(1)可以得到:

$$\frac{d\rho}{dt} = \eta_{casc} \rho - g\rho \quad (13)$$

其解析解为:

$$\rho \approx \rho_0 \exp[(\eta_{casc} - g)t] \quad (14)$$

假设存在着一个最小的辐照强度使等离子体的密度在 $0.5\tau_L$ 的时间内由 ρ_0 增长到临界电子密度,即得到临界电子密度为:

$$\rho_{cr} \approx \rho_0 \exp[(\eta_{cr} - g)0.5\tau_L] \quad (15)$$

$$\eta_{cr} = g + 2(\tau_L)^{-1} \ln(\rho_{cr} / \rho_0) \quad (16)$$

式中 η_{cr} 为与临界电子密度相应的雪崩电离速率。公式(16)与公式(9)的右边相比较可得临界激光光强:

$$I_c = \tau_L [C_1 (1 + \omega^2 \tau^2) / \tau] [g + 2(\tau_L)^{-1} \ln(\rho_{cr} / \rho_0)] + C_1 m \omega^2 / M \quad (17)$$

式中 $C_1 = mc n_0 \varepsilon_0 \Delta E / e^2$ 。上式右边的三项分别是电子扩散损失,雪崩电离产生的电子和碰撞能量损失。从上式可以看出,雪崩阈值与电离能 ΔE 成正比。当激光角频率满足 $\omega^2 \tau^2 \gg 1$ 时, I_c 与 ω^2 成正比。在损失项很小的情况下, I_c 与 τ_L 成反比,显然,这种情况仅适用于短激光脉冲。

3 计算结果与实验比较

利用上述公式,使用不同波长、脉宽、焦点半径的激光脉冲,计算出水的击穿阈值,并将计算的结果与已知的实验数据进行比较,得出了以下结论。

(1) 表 1 给出了纯净水中的试验击穿阈值和根据模型理论计算的阈值。从表中可以看出,根据模型理论计算的阈值与试验击穿的阈值^[5,7]在数量级上吻合很好,当激光脉冲宽度变小时,逐步出现差异。这是因为纳秒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,而对于皮秒和飞秒激光脉冲,电子复合的影响却很小。另外,飞秒激光脉冲光学击穿导致空泡形成会产生影响,即击穿有更高的临界电子密度。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,不像其他的数据那样与实验数据相吻合。

表 1 光学击穿阈值

Tab.1 Optical breakdown threshold

τ_L	λ/nm	$2w_0/\mu\text{m}$	I_{th}/Jcm^{-2}	I_c/Jcm^{-2}
76 ns	750	20	0.2	0.12
6 ns	1064	7.7	0.5	0.76
6 ns	532	5.3	0.3	0.16
30 ps	1064	4.7	4.5	3.76
30 ps	532	3.4	3.8	1.39
3 ps	580	5	8.5	12.3
300 fs	580	5	47.6	116.8
100 fs	580	4.4	111	365.7

I_{th} : Experimentally measured breakdown threshold of pure water

I_c : Calculated breakdown threshold of pure water by the model

(2) 表 2 给出了几种激光脉冲分别在纯净水中和自来水中的击穿阈值。 I_{th1} 为在纯净水中实验测量的击穿阈值^[7], I_{th2} 为在自来水中实验测量的击穿阈值。从表中可以看出,无论是纯净水中的击穿阈值,还是自来水中的击穿阈值,用该简化模型计算得到的理论值与实验值都符合得很好。对于纳秒激光脉冲和红

表 2 光学击穿阈值

Tab.2 Optical breakdown threshold

τ_L	λ/nm	$2w_0/\mu\text{m}$	I_{th1}/Jcm^{-2}	I_{th2}/Jcm^{-2}	I_c/Jcm^{-2}
7 ns	1064	22	0.182	0.05	0.036
3 ns	532	26	0.0879	0.0935	0.069
80 ps	1064	26	1.90	1.91	0.74
400 fs	580	22	12.6	12.6	9.76
100 fs	580	17	57.7	56.0	29.6

I_{th1} : Experimentally measured breakdown threshold of pure water

I_{th2} : Experimentally measured breakdown threshold of impure water

外激光,自来水中的击穿阈值明显低于纯净水中的击穿阈值,而对于可见光,自来水中的击穿阈值与纯净水中的击穿阈值相近,介质的击穿阈值不受杂质的影响,对于皮秒和飞秒脉冲,介质的击穿阈值都不受杂质的影响,这与实验数据相吻合。

4 结 论

通过对自由电子速率方程中多光子电离、雪崩电离以及电子扩散等诸因素的分析,可以认为雪崩电离在等离子体密度演化过程中起主要作用,由此得出了脉冲激光导致水击穿的光学击穿阈值表达式,计算结果与实验结果相吻合。对于纳秒激光脉冲,在纯净水中多光子电离提供初始电子,随后雪崩电离很快在电离的过程中占主导地位。对于更短脉冲,多光子电离的作用就显得更为重要,并且在击穿的过程中复合损失和碰撞损失对击穿阈值的影响逐渐消失。

参 考 文 献:

- [1] Ready J F. Effect of high-power laser radiation[M]. New York: Academic Press Inc, 1971. 12-57.
- [2] Lauterborn W. High-speed photography of laser-induced breakdown liquids[J]. Appl Phys Lett, 1972, 21(1): 27-29.
- [3] NI Xiao-wu, CHEN Xiao, LU Jian. Study on the mechanism of interaction between laser and liquid material[J]. Laser Technology (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): 258-261.
- [4] Nahen K, Vogel A. Plasma formation in water by picosecond and nanosecond Nd:YAG laser pulses-I: plasma transmission, scattering, and reflection[J]. IEEE J Quantum Electron, 1996, 32(4): 861-871.
- [5] Joachim Noack, Alfred Vogel. Laser-induced plasma formation in water at nanosecond to femtosecond time scales calculation of thresholds, absorption coefficients, and energy density[J]. IEEE J Quantum Electron, 1999, 35(8): 1155-1167.
- [6] 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 I: analysis of the plasma starting times [J]. Appl Opt, 1988, 27(17): 3661-3668.
- [7] 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[J]. IEEE J Quantum Electron, 1995, 31(12): 2250-2257.