

超短脉冲激光与微小水滴相互作用中电子密度和光场的时空分布

王浩若 张冲 张宏超 沈中华 倪晓武 陆健

Spatiotemporal distributions of plasma and optical field during the interaction between ultra-short laser pulses and water nanodroplets

Wang Hao-Ruo Zhang Chong Zhang Hong-Chao Shen Zhong-Hua Ni Xiao-Wu Lu Jian

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, **66**, 127801 (2017) DOI: 10.7498/aps.66.127801

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.127801>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2017/V66/I12>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

超强激光与固体气体复合靶作用产生高能氦离子

Helium ions acceleration by ultraintense laser interactions with foil-gas target

物理学报.2017, 66(8): 085201 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.085201>

Gd 靶激光等离子体 6.7nm 光源的实验研究

Experimental research on laser-produced Gd target plasma source for 6.7 nm lithography

物理学报.2015, 64(23): 235202 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.235202>

基于神光 III 原型的背向散射实验技术研究

Backscattered Light diagnostic technique on Shen Guang-III prototype Laser Facility

物理学报.2013, 62(17): 175202 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.175202>

激光-纳米丝靶相互作用过程中超热电子的加热机理研究

Heating mechanism of hot electrons in the interaction between laser and nanolayered target

物理学报.2012, 61(22): 225202 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.61.225202>

Yb:CaF₂-SrF₂ 激光晶体光谱性能以及热学性能的研究

Spectroscopic and thermal properties of Yb doped CaF₂-SrF₂ laser crystal

物理学报.2012, 61(17): 177801 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.61.177801>

超短脉冲激光与微小水滴相互作用中电子密度和光场的时空分布

王浩若[†] 张冲 张宏超 沈中华 倪晓武 陆健[‡]

(南京理工大学理学院, 南京 210094)

(2017年1月16日收到; 2017年4月10日收到修改稿)

为了研究超短激光脉冲和液滴相互作用过程中电子密度和光场的变化, 基于非线性麦克斯韦方程组和电离速率方程, 构建了激光等离子体非线性瞬态时域耦合模型, 对飞秒激光脉冲击穿微米量级水滴时的电子密度和光场的时空分布进行了计算. 结果显示水滴的击穿阈值最小可达 2 TW/cm^2 , 为同等条件下无边界水介质击穿阈值的 $1/4$. 随着脉冲能量增强, 水滴内自由电子密度峰值区域逆着激光入射方向移动, 且入射光越强, 水滴对光传播的屏蔽越明显. 光束在水滴出射端外部汇聚, 汇聚点的光功率密度可达入射光的 5 倍, 且时域波形出现压缩和变形. 另外, 水滴对激光能量的吸收系数随光强增大而增大, 并最终趋于饱和.

关键词: 激光诱导击穿, 激光与水滴相互作用, 光场分布, 电子密度

PACS: 78.67.Tf, 78.15.+e, 52.38.-r, 52.38.Dx

DOI: 10.7498/aps.66.127801

1 引言

近年来, 随着锁模激光技术和啁啾脉冲放大技术的不断发展, 短脉宽、高功率的激光脉冲的相关研究与应用越来越广泛. 其中, 超短超强激光脉冲与液滴相互作用时, 液滴被激光击穿并在液滴附近产生等离子体, 随后发生诸如等离子体复合辐射发光、液滴形变^[1]、位移^[2]、超热电子^[3]、极紫外辐射^[4]等一系列现象. 对这些现象的解释与应用也越来越受到重视.

针对激光脉冲与水滴的相互作用研究, 大部分是从实验测量开始的. 分别采用电荷耦合器件高速摄影^[5]、抽运探针技术^[6]、红外光谱技术^[4,7]、频闪记录仪录影^[8]等手段对纳秒或飞秒激光和水滴的相互作用过程中水滴的发光和形变进行了观测与记录. 但是由于水滴与激光脉冲相互作用时, 等离子体的自由电子密度会在极短时间内 ($\leq 30 \text{ ns}$) 快速增加^[9], 鉴于当前实验条件的限制, 目前很难

通过实验手段对这个过程进行观测. 针对激光脉冲与水相互作用的耦合过程的理论与数值模拟^[10-12], 目前都包含了一定程度的简化和近似, 例如缓变波近似、傍轴近似等, 且大部分结果适用于激光束的长距离传播. 一般研究等离子体的变化都通过计算自由电子密度来实现, 针对该过程的数值模拟算法和模型, 从一开始的水介质中一维无光场传播模型^[13], 演变到二维轴对称无等离子体扩散模型^[14]. 而在最新的研究中^[15], 通过麦克斯韦方程的自洽解对激光脉冲与水滴相互作用中空间各处自由电子密度最大值的分布进行了计算.

然而, 上述的各类实验或数值计算, 有的在时域上的计算仅限于一维模型, 有的二维模型没有讨论时域上的变化, 有的模型只考虑了衰减和扩散却没有考虑等离子体对光场的全部色散性质. 因此, 本文旨在揭示水滴和超短激光脉冲相互作用的瞬态过程. 我们首先基于麦克斯韦理论构建了非线性瞬态耦合模型, 之后分别对相互作用过程中水滴的击穿阈值、等离子体自由电子密度分布、水滴附近

[†] 通信作者. E-mail: 1412558942@qq.com

[‡] 通信作者. E-mail: lujian@njust.edu.cn

光场分布以及水滴对激光脉冲能量的吸收进行了计算.

2 理论模型

自由电子密度随时间的变化以及密度分布是描述等离子体的重要手段. 水在强激光诱导下的电离机制主要包含多光子电离、碰撞电离、等离子体扩散以及复合等现象. 等离子体自由电子密度 ρ 随时间 t 的变化满足方程^[16]

$$\begin{aligned} \frac{\partial \rho}{\partial t} = & \left(\frac{\beta_K}{K\hbar\omega_0} I^K + \frac{\sigma_A I}{V_i} \rho \right) \left(1 - \frac{\rho}{\rho_{ni}} \right) \\ & + \nabla \cdot (D_i \nabla \rho) - g_i \rho^2 \\ (i = \text{air, water}). \end{aligned} \quad (1)$$

方程(1)右侧第一项描述了多光子电离以及碰撞电离, 式中 K 表示多光子电离的电离阶数; β_K 则为对应电离阶数的多光子电离截面系数; ω_0 和 I 分别为光波的角频率与光强; V_i 为介质的电离势; σ_A 表示碰撞电离的横截面积, 满足方程

$$\sigma_A = \frac{e^2 \tau_c}{c n_i \varepsilon_0 m} \cdot \frac{1}{1 + \omega_0^2 \tau_c^2}, \quad (2)$$

其中, τ_c 表示介质中自由电子与中性分子碰撞发生电离的平均时间间隔, 空气和水的碰撞时间间隔分别为 350 fs^[17] 和 1 fs^[16], e 为电子电荷量, n_i 为介质折射率, ε_0 为真空介电常数; ρ_{ni} 则表示对应介质的中性分子密度.

第二项 $\nabla \cdot (D_i \nabla \rho)$ 描述了等离子体随时间的自由扩散, 扩散系数 $D_i = \tau_c V_i / 3m$, m 为电子的质量, 在水和空气中分别为 9.5 eV 和 14.6 eV^[18]. 最后一项中的 g_i 则表示等离子体的复合速率. 通过上述方程, 可以对水滴和激光脉冲相互作用过程中等离子体密度进行准确的时域分析.

没有谐波产生时, 单色激光通过等离子体区域时的光场性质主要由散射、三阶光学克尔效应、散焦效应以及非线性吸收等现象决定. 为了描述耦合过程中光波的瞬态结构, 我们使用了基于麦克斯韦电磁场理论的非线性波动方程. 光波的电矢量 \mathbf{E} 满足方程

$$\begin{aligned} \nabla \times (\nabla \times \mathbf{E}) + \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} (\varepsilon_{rL} \mathbf{E}) \\ + \mu_0 \left(\frac{\partial \mathbf{J}}{\partial t} + \frac{\partial^2 \mathbf{P}_{NL}}{\partial t^2} \right) = 0, \end{aligned} \quad (3)$$

其中, ε_{rL} 表示水的线性相对介电常数, 常数 μ_0 为真空的磁导率, \mathbf{J} 是自由电荷的电流密度, \mathbf{P}_{NL}

表示非线性极化矢量. 事实上, 电流密度也反映了电离介质的反馈, 从而为揭示水的电离机制提供了一个渠道. 电流密度可以分为两个部分, $\mathbf{J} = \mathbf{J}_{MPA} + \mathbf{J}_{PL}$, 分别为多光子电离吸收和雪崩电离引起的等离子体效应(包括散焦效应和等离子体吸收). 由多光子电离产生的电流密度 $\mathbf{J}_{MPA} = c n_0 \varepsilon_0 \beta_K I^{K-1} \mathbf{E}$, 其中多光子电离的截面系数 $\beta_K = K \hbar \omega \sigma_K$. 另外, 雪崩电离引起的电流密度 \mathbf{J}_{NL} 可由方程 $\partial_t \mathbf{J} + \mathbf{J} / \tau_c = e^2 \mathbf{E} \rho / m$ 求出, 此方程的解为 $\mathbf{J}_{PL} = c n_0 \varepsilon_0 \sigma_c \rho \mathbf{E}$, 其中 σ_c 是一个与光波频率有关的系数, 满足 $\sigma_c = (e^2 \tau_c / c n_0 \varepsilon_0 m) / (1 - i \omega \tau_c)$, 而碰撞时间 $\tau_c = 1$ fs^[19]. 根据文献[12]可得三阶克尔非线性系数 $n_2 = 2.7 \times 10^{-16}$ m²/W. 为了方便光场的求解, 前文提到的电流密度归一化后代入电极化矢量方程 $\mathbf{P} = \mathbf{P}' + i\mathbf{J}/\omega$ 可推出:

$$\mathbf{P}_{NL} = 2n_0 n_2 \varepsilon_0 I \mathbf{E} + i c n_0 \varepsilon_0 \mathbf{E} (\beta_K I^{K-1} + \sigma_c \rho) / \omega, \quad (4)$$

最后可推出总的相对介电常数为

$$\begin{aligned} \varepsilon_r = \varepsilon_{rL} + 2n_0 n_2 I + i \frac{c n_0 \sigma_c \rho}{\omega} \\ + i \frac{c n_0 \beta_K}{\omega} I^{K-1}. \end{aligned} \quad (5)$$

同时, 由于相对介电常数的变化速度远小于电场的变化速度, 所以电场局部的时间偏导数可进行近似处理: $\partial_t (\varepsilon_r \mathbf{E}) = \mathbf{E} \partial_t \varepsilon_r + \varepsilon_r \partial_t \mathbf{E} \approx \varepsilon_r \partial_t \mathbf{E}$. 所以, 在我们接下来的数值方法中, 波动方程满足下述形式:

$$\nabla \times (\nabla \times \mathbf{E}) + (1/c^2) \partial_t (\varepsilon_r \partial_t \mathbf{E}) = 0. \quad (6)$$

3 计算方法

本文后续的二维计算结果均采用有限元方法. 光波的电矢量方向垂直于纸面 (z 方向), 光束从左向右传播 (x 方向). 光场设定为高斯型脉冲, 光波表达式为

$$E_0 f(x, y, t) \exp[i(\omega t - kx - ky^2/2R(x) + \Phi(x))], \quad (7)$$

其中,

$$f(x, y, t) = \sqrt{\frac{d_0}{d(x)}} \exp \left[-4 \ln \frac{2(t - \tau)^2}{\tau^2} - \frac{c_0 y^2}{d^2(x)} \right],$$

波数 $k = 2\pi n_0 / \lambda$, 脉冲脉宽 $\tau = 100$ fs, 高斯光束的束腰 $d_0 = 100\lambda$, $d(x)$ 为 x 处的光斑直径, $R(x)$ 为光波的曲率半径, $\Phi(x)$ 为高斯场基横模产生的相位

因子. 计算中, 波长 $\lambda = 800 \text{ nm}$. 且本文主要探究脉冲与水滴相互作用过程中光场以及自由电子密度的变化, 激光诱导击穿后的空泡或者水滴形变与破碎等动力学问题本文不做讨论.

4 结果与讨论

4.1 水滴的击穿阈值

水滴是否被激光击穿, 通常是由激光诱导产生的最大自由电子密度是否达到击穿的临界电子密度判定. 之前的研究认为^[20], 液体被逐渐增强的激光辐照后, 内部产生足够高温高压的等离子体在复合时可以向外部辐射可见光, 此时即为液体被击穿的开始. 可出现此闪光点的临界自由电子密度^[21], 一般公认为是 $10^{18} / \text{cm}^3$.

因此, 在我们的计算中, 通过反复调整入射光的光强, 使得不同半径下的水滴内部的自由电子密度最大值为 $10^{18} / \text{cm}^3$, 记录对应的入射光强, 最终得到如图 1 所示的水滴击穿阈值与水滴半径的曲线图, 图中纵坐标为激光的功率密度. 观察该图可以发现, 水滴的击穿阈值随着水滴增大而减小, 且在水滴小于 500 nm 时, 变化较为剧烈. 当水滴的大小超过 1000 nm 后, 击穿功率密度基本趋近于 $2 \text{ TW}/\text{cm}^2$, 在进行计算时, 我们使用的水滴半径已经达到 $10 \text{ }\mu\text{m}$, 但为了更好地显示小半径部分的变化, 击穿阈值图横坐标只截取了 $10\text{--}1000 \text{ nm}$ 范围.

分析图 1 可知, 总体上水滴的光击穿阈值随液滴半径的增大而减小, 但是这种随半径的变化在水滴半径小于脉冲波长时更为剧烈. 这是因为当水滴尺寸接近或小于脉冲波长时, 光波在水滴附近发生的衍射效应相比于折射更加显著. 因此最终激光脉冲能够入射微小液滴的部分极少, 能量不易沉积在液滴内部, 更难发生击穿.

而当液滴逐渐增大时, 光在液滴附近发生的衍射效应逐渐减弱, 脉冲更容易穿过液滴, 且由于液滴的球形结构导致光的汇聚, 液滴内部脉冲的功率密度会大于无边界水介质中传播的功率密度. 因此液滴的击穿阈值最终也远小于正常情况下水的击穿阈值. 在该模型之前的计算中^[22], 同等条件下无边界水的击穿阈值约为 $8 \text{ TW}/\text{cm}^2$, 是水滴击穿阈值的 4 倍. 需要说明的是, 此阈值计算结果只适用于液滴尺寸远小于激光光斑大小的情况 (在我们

的计算中, 液滴附近光斑尺寸约 $100 \text{ }\mu\text{m}$), 当液滴尺寸接近或超出光斑直径时, 由于入射光功率密度在空间上呈高斯分布, 外侧的入射光强小于中心光强, 因此击穿液滴的阈值会逐渐上升, 但由于大液滴的计算需要占用极大的计算空间与时间, 本文对液滴超过 $10 \text{ }\mu\text{m}$ 的情况暂不做讨论.

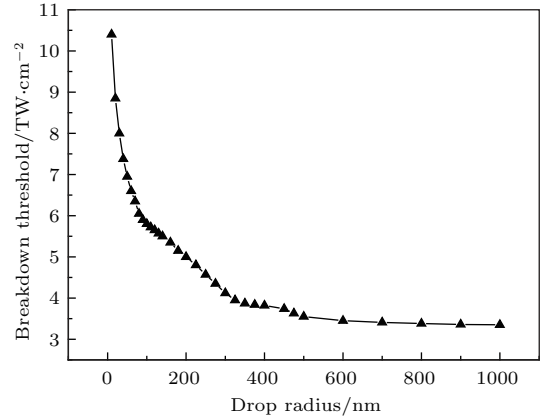


图 1 飞秒激光击穿水滴的阈值与水滴半径的关系 (波长 800 nm , 脉宽 100 fs)

Fig. 1. The relationship between laser-induced droplet breakdown threshold and the radius of droplet, where the wavelength and the pulse width are 800 nm and 100 fs , respectively.

4.2 电子密度与光场分布随时间的变化

激光脉冲穿过水滴的过程中, 不同时刻水滴内部自由电子密度分布如图 2 所示. 其中, 入射光电场强度 $E_0 = 1 \times 10^9 \text{ V}/\text{m}$, 水滴半径 $r = 4 \text{ }\mu\text{m}$, 激光从水滴左侧入射. 需要说明的是, 由于不同时刻自由电子密度的最大值差距较大, 为了鲜明地显示各时刻电子密度的分布形貌, 六幅图的色标没有统一. 观察该图可以发现以下两个特点: 1) 激光和水滴相互作用期间, 因为水的击穿阈值远远低于空气, 电离主要发生在水滴内部, 水滴外部的空气几乎不发生电离; 2) 随着脉冲的传播, 水滴内部的自由电子密度峰值点也随之从左向右移动 (但这一过程与入射光强度有很大关系, 后文会有具体描述), 并且由于水滴对光束的汇聚作用, 自由电子密度在水滴内部靠右位置形成“W”状的空间分布. 且随着等离子体的自然扩散, 脉冲穿过后, 水滴内部的等离子体会集中于水滴左右两侧分布, 入射端峰值低于出射端. 这种分布与最新的计算结果和实验观测结论一致^[15].

对应上述 6 个时刻自由电子密度分布的光场分布计算结果如图 3 所示.

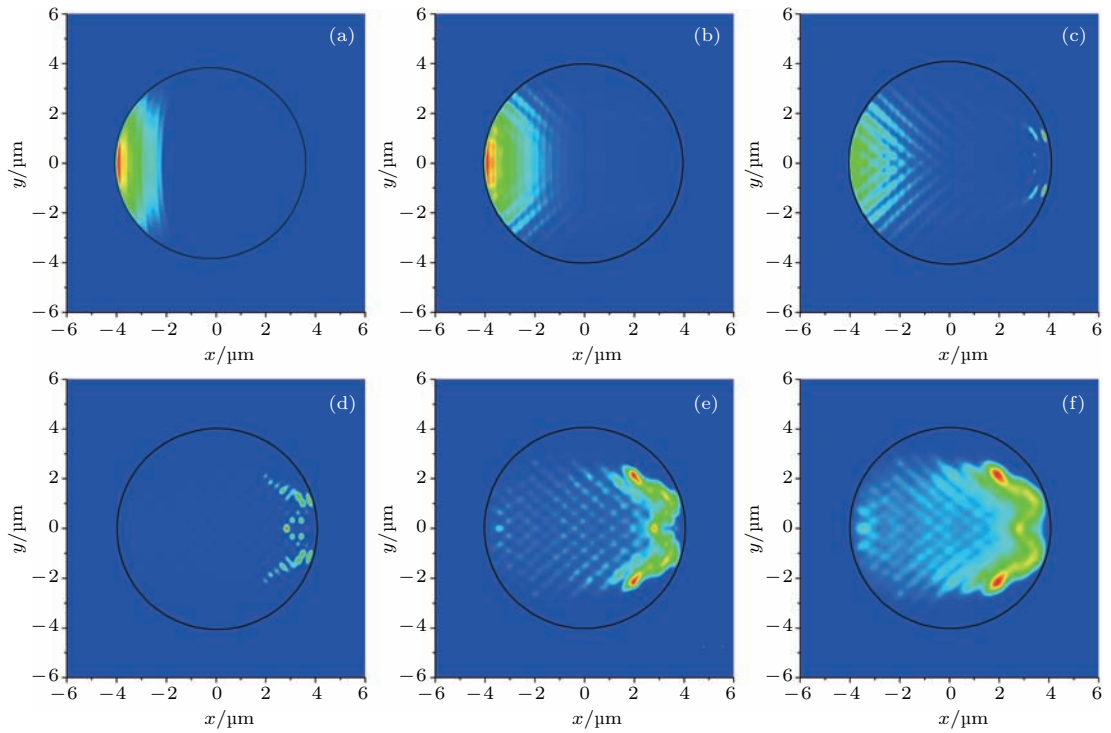


图2 不同时刻水滴内部自由电子密度空间分布(入射光电场强度 1 GV/m, 水滴半径 4 μm , 激光从左向右传播)
(a) 20 fs; (b) 40 fs; (c) 60 fs; (d) 120 fs; (e) 160 fs; (f) 180 fs

Fig. 2. The spatial distributions of free electron densities at different time: (a) 20 fs; (b) 40 fs; (c) 60 fs; (d) 120 fs; (e) 160 fs; (f) 180 fs. The incident electric field is 1 GV/m, the radius of droplet is 4 μm , the laser pulse is z -polarized and propagates from left to right.

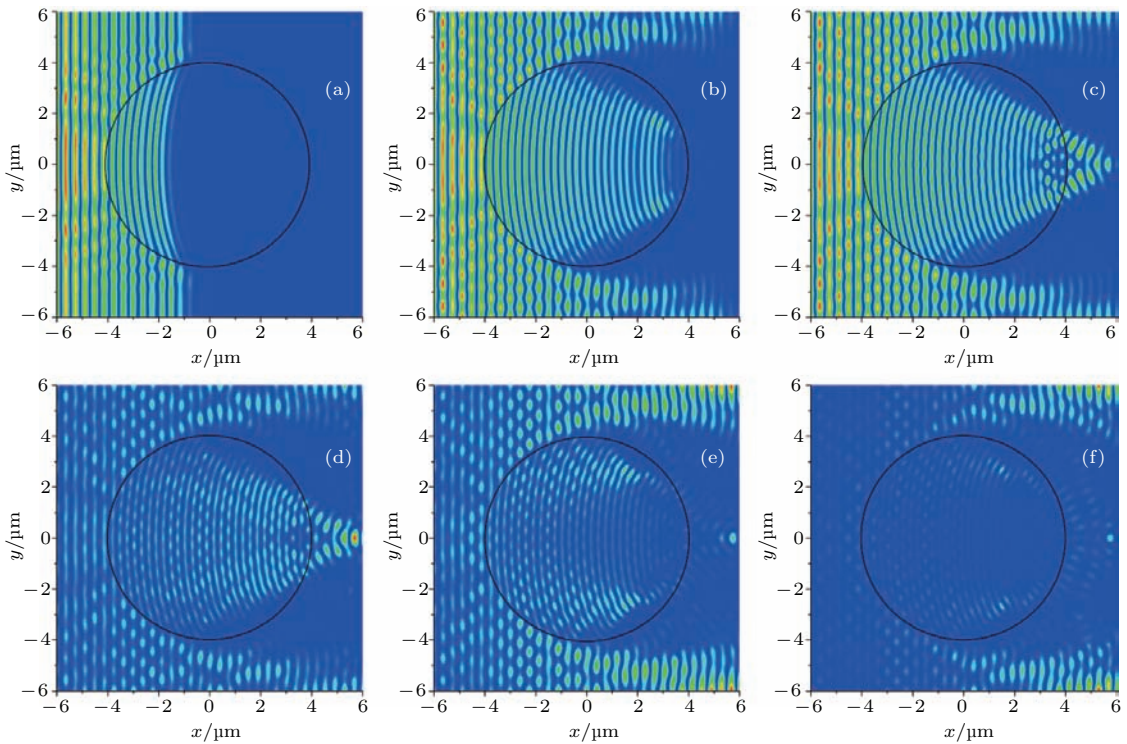


图3 不同时刻水滴附近光功率密度的空间分布(入射光电场强度 1 GV/m, 水滴半径 4 μm , 激光从左向右传播)
(a) 20fs; (b) 40 fs; (c) 60 fs; (d) 120 fs; (e) 160 fs; (f) 180 fs

Fig. 3. The spatial distributions of laser power densities at different time: (a) 20 fs; (b) 40 fs; (c) 60 fs; (d) 120 fs; (e) 160 fs; (f) 180 fs. The incident electric field is 1 GV/m, the radius of droplet is 4 μm , the laser pulse is z -polarized and propagates from left to right.

焦点处激光功率密度随时间的变化如图4所示. 图中, 横坐标表示激光的传播时间, 单位为fs; 纵坐标表示激光脉冲的功率密度, 单位为TW/cm²; 曲线a表示4 μm液滴右侧焦点处激光功率密度随时间的变化, 曲线b表示初始激光脉冲的功率密度随时间的变化. 分析曲线a, b可以发现, 激光脉冲穿过液滴后峰值功率大大增强, 达到了初始峰值功率的5倍左右, 这是由于液滴对光的汇聚作用所致. 同时, 与液滴相互作用后的激光脉冲时域上的脉宽明显变短, 且在50 fs附近发生波形的畸变. 因为超短脉冲传输时发生了自陡峭效应, 脉冲功率密度较高的部分传输速度低于功率密度较低的部分, 从而使得脉冲前部在时域上发生轻微的展宽, 而脉冲后部则由于等离子体电子密度上升时对激光能量的吸收增强而迅速衰落, 最终体现为脉宽的缩短. 而脉冲上升沿发生的畸变, 则是由于入射的高斯激光脉冲瞬时功率密度超过液滴击穿阈值, 光击穿发生后迅速增加的雪崩电离以及等离子体吸收现象使得液滴对光能的吸收突然增加所致.

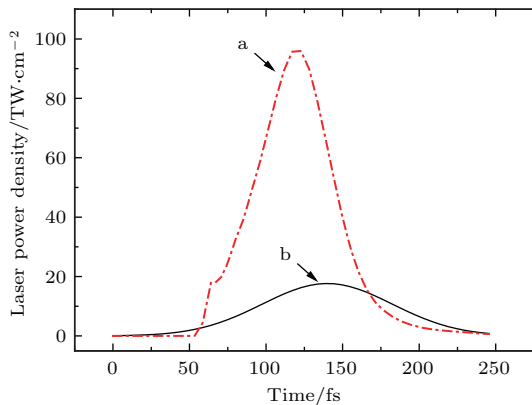


图4 液滴右侧焦点处激光功率密度随时间的变化 (曲线a表示有水滴时的脉冲波形, 曲线b表示同一点无水滴情况下的脉冲波形)

Fig. 4. The variations of the laser power densities with time at the focus point. Curve a represents the case with the droplet. Curve b represents the case without the droplet.

4.3 入射光强对电子密度和光场的影响

前文所述自由电子密度以及光场随时间的变化, 在入射光强改变时, 过程与结果会有一些的变化. 对于同一水滴, 光强改变时的自由电子密度

分布以及光场分布的区别, 分别如图5和图6所示. 激光从水滴左侧入射. 每幅图都选取激光穿过过程中自由电子密度最大值出现的时刻. 观察不同入射光强下水滴内部的自由电子密度分布可以发现, 当入射光强较小时, 等离子体满足前文所述的从左向右蔓延, 且左侧等离子体逐渐消失. 但是当入射光强变强时, 等离子体不再随光的传播向右运动, 而是在贴近左侧水滴边界处形成了圆弧形等离子体层. 因为光强提高后, 水滴左部电离程度会迅速提高, 很快形成接近饱和的等离子体, 对激光的吸收能力显著提高, 反而阻止了激光脉冲继续向右侧传播. 因此光强提高时, 水滴左侧快速生长的等离子体对激光脉冲产生了屏蔽, 使得水滴右部无法吸收足够的光能产生更高的电离.

对比图6中对应时刻的光场分布也可以发现, 随着入射光强的提高, 水滴不再充当透镜, 对脉冲产生汇聚作用, 而是变为一个激光脉冲的吸收体或屏蔽体, 水滴正后方的光强迅速减少, 阻碍了激光脉冲的进一步传播.

为了更详细地说明液滴对激光所起的作用, 我们计算了液滴右侧焦点处激光功率密度随时间的变化, 结果如图7所示. 图中, 横向坐标轴表示脉冲传播的时间, 单位为fs, 纵向坐标轴表示激光脉冲的功率密度, 单位为TW/cm².

对比各曲线峰值功率和脉冲初始峰值功率可以发现, 随着入射光强度增加, 焦点处激光功率密度的增益倍数逐渐降低, 当入射光特别强时, 焦点处脉冲峰值功率密度已接近入射值. 这是因为入射光强较低时, 光击穿产生的等离子体自由电子密度较低, 对激光能量的吸收较少, 光束经液滴汇聚后功率密度明显增强; 但是随着入射光增强, 等离子体对激光的吸收越来越明显, 最终导致激光脉冲的能量大大减弱, 即使被液滴汇聚, 焦点处功率密度无法远大于初始峰值功率密度.

同时, 由于等离子体的吸收和自陡峭效应的强弱都取决于等离子体的自由电子密度大小, 入射光的增强导致水的电离程度提高, 从而加剧了脉冲的脉宽压缩现象. 因此, 入射光越强, 水滴焦点处的脉宽压缩现象就越明显. 而上升沿的波形畸变, 也是由于入射光越强则越早达到击穿阈值从而发生前移.

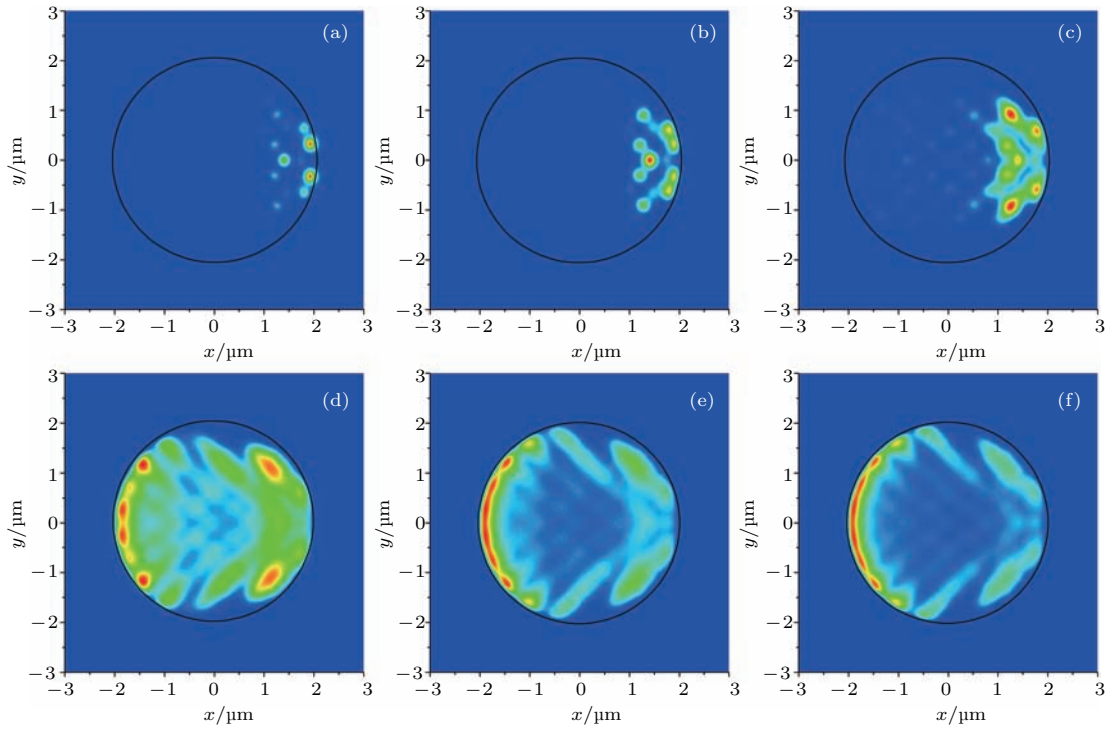


图5 半径为 $2\ \mu\text{m}$ 的水滴在不同入射光强作用下自由电子密度在其最大时刻的空间分布 (激光从左向右传播) (a) 3 GV/m; (b) 6 GV/m; (c) 9 GV/m; (d) 12 GV/m; (e) 15 GV/m; (f) 18 GV/m

Fig. 5. The spatial distributions of free electron densities when the maximum is reached for different incident electric field intensities: (a) 3 GV/m; (b) 6 GV/m; (c) 9 GV/m; (d) 12 GV/m; (e) 15 GV/m; (f) 18 GV/m. The laser pulse is z -polarized and propagates from left to right.

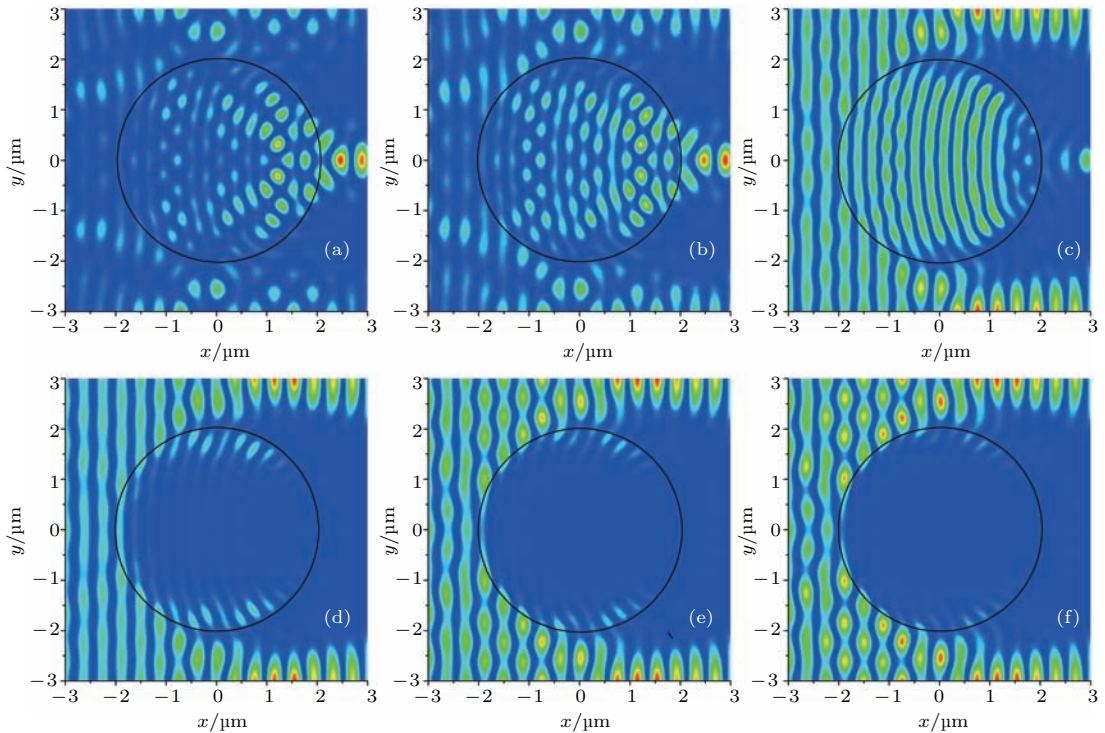


图6 半径为 $2\ \mu\text{m}$ 的水滴在不同入射光强下自由电子密度最大时刻所对应光场分布的形貌图 (激光从左向右传播) (a) 3 GV/m; (b) 6 GV/m; (c) 9 GV/m; (d) 12 GV/m; (e) 15 GV/m; (f) 18 GV/m

Fig. 6. The spatial distributions of laser power densities around the $2\ \mu\text{m}$ droplet when the free electron density maximum is reached for different incident electric field intensities: (a) 3 GV/m; (b) 6 GV/m; (c) 9 GV/m; (d) 12 GV/m; (e) 15 GV/m; (f) 18 GV/m. The laser pulse is z -polarized and propagates from left to right.

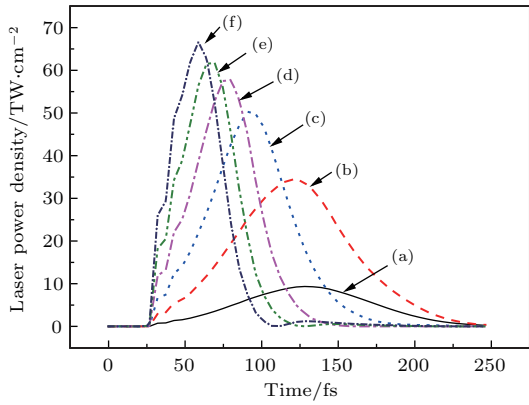


图7 不同入射光强下半径为2 μm的液滴焦点处激光功率密度时域波形 (a) 1.6 TW/cm²; (b) 6.4 TW/cm²; (c) 14.3 TW/cm²; (d) 25.4 TW/cm²; (e) 39.7 TW/cm²; (f) 57.2 TW/cm²

Fig. 7. Time domain changes of laser power densities at the focus point of a 2 μm droplet for different incident intensities: (a) 1.6 TW/cm²; (b) 6.4 TW/cm²; (c) 14.3 TW/cm²; (d) 25.4 TW/cm²; (e) 39.7 TW/cm²; (f) 57.2 TW/cm².

4.4 水滴对激光能量的吸收

通常认为在激光诱导击穿的过程中, 逆韧致辐射吸收占据了激光能量吸收的主导位置. 但是, 由于多光子电离的吸收系数是激光辐射的高次函数, 所以在超短超强激光脉冲与液滴相互作用过程中, 多光子电离对脉冲能量的吸收也发挥了重要作用. 当激光脉冲穿过液滴时, 水分子吸收激光的能量产生电离, 激光脉冲能量因此损耗, 这部分损耗的能量会转化为等离子体的电磁辐射、水分子的内能以及击穿后液滴发生形变与位移的动能.

我们选择了五个粒径不同的水滴进行了计算, 不同水滴吸收的脉冲能量随着电场强度的变化曲线如图8所示. 由于不同大小的水滴吸收能量的数量级差距较大, 我们采用了对数坐标系更直观地显示不同水滴之间的对比.

从图8中可以发现, 随着入射激光脉冲电场强度的增强, 水滴吸收的能量随之增大. 水滴越大, 发生电离区域的截面积越大, 因而水滴对激光能量的吸收值越高. 但是, 由于随着水滴的增大, 入射水滴的激光总能量会发生变化, 单纯观察吸收的绝对值不具有对比性. 因此, 我们假设水滴对脉冲能量的吸收满足:

$$Q_a = \kappa Q_i, \quad (8)$$

其中 Q_a 表示水滴吸收的脉冲能量, Q_i 表示入射水滴的脉冲能量, κ 则为吸收系数. 通过计算水滴吸

收能量与入射总能量之比, 即可求得水滴的吸收系数, 结果如图9所示.

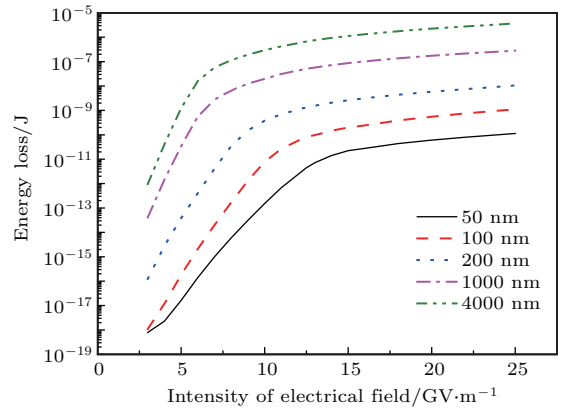


图8 不同粒径水滴吸收的激光脉冲能量值随激光电场强度的变化

Fig. 8. The energy loss variations with incident laser intensities under different sizes of droplets.

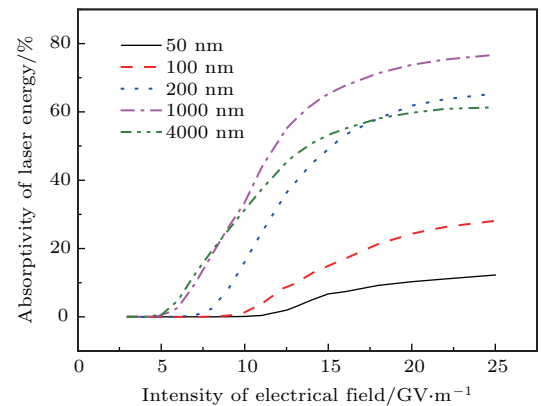


图9 不同粒径水滴对激光脉冲能量的吸收系数随激光电场强度的变化

Fig. 9. The energy absorptivity variations with incident laser intensities under different sizes of droplets.

观察图9可以发现, 随着激光脉冲电场强度的增强, 水滴对脉冲能量的吸收系数呈现S形增长. 因为随着激光脉冲强度的提高, 在水滴内部诱导产生的等离子体的自由电子密度随之提高, 等离子体对激光脉冲的吸收能力随之增强. 所以吸收比在电场强度较低时, 随着电场强度增加持续上升. 但是当光强提高到一定程度时, 由于水滴内部的等离子体接近于饱和, 正如4.2节所述, 主要集中在激光入射水滴的一侧. 而饱和等离子体对激光能量的吸收能力与脉冲的能量成正比, 即水滴对能量的吸收系数会趋近于一个稳定值.

从图9还可以发现, 随着水滴半径的改变, 水滴对脉冲能量的吸收能力会出现明显变化. 因此, 我们又计算了不同入射脉冲光强下水滴的脉冲能

量吸收比例随水滴半径的变化, 结果如图 10 所示. 水滴对脉冲能量的吸收能力随着水滴增大呈现复杂的波动变化, 但是总体上是先增加、再缓慢降低. 因为水滴与激光脉冲的相互作用过程, 是光波、等离子体、水分子以及水滴球形边界之间各种复杂的耦合过程, 任意一个变量出现变化, 都会使得最终水滴对脉冲能量的吸收能力出现不同的变化. 在这一点上, 很难通过对曲线的拟合或方程的推导得到水滴对激光脉冲能量吸收比随水滴半径变化的近似方程. 但是通过定性分析曲线图, 仍可发现一些规律. 在水滴半径增大过程中, 水滴对脉冲能量的吸收比先迅速增加. 因为当水滴的尺寸小于脉冲波长时, 光波在水滴附近很容易发生衍射绕过水滴, 从而无法吸收脉冲能量. 当水滴尺寸超出激光脉冲的波长时, 激光与水滴相互作用中衍射效应减弱, 而更趋近于几何光学, 水滴对光产生汇聚作用, 而汇聚的光更容易在水滴内部诱导产生等离子体, 从而反过来对脉冲能量形成吸收. 由图 10 可见, 当水滴超过 2.5 μm 时, 随水滴增大, 能量吸收比反而普遍呈现缓慢降低的趋势, 这可能是因为随水滴增大, 由于高斯激光脉冲强度的空间分布等原因, 导致入射激光能量的空间分布不再均匀, 使计算穿过水滴的脉冲总能量偏大, 最终导致能量吸收系数略微偏低.

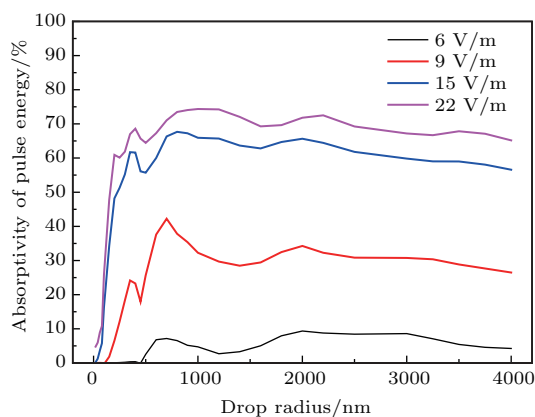


图 10 水滴对脉冲能量的吸收系数随水滴半径的变化
Fig. 10. The energy absorptivity variations with radius of droplet under different incident laser intensities.

5 结 论

计算得到波长 800 nm 的 100 fs 激光脉冲和微米量级水滴相互作用中的自由电子密度和光场的时空分布. 结果显示微小水滴的击穿阈值随自身

半径增大而减小, 最终稳定在 2 TW/cm² 附近, 仅为同等条件下无边界水介质击穿阈值的 1/4. 由于激光等离子体的吸收随光强增加而增强, 因此液滴内部产生的等离子体随入射光增强会逆着激光传播方向移动, 并最终集中分布在激光入射端的液滴内表面. 受水滴球形结构影响, 光束在液滴外侧发生汇聚, 汇聚点的激光功率密度可达入射光的 5 倍, 且高斯型激光脉冲穿过水滴后在时域上会出现延迟、脉宽压缩以及上升沿波形畸变等现象, 入射光越强, 脉宽的压缩越明显, 可达入射脉宽的 1/2. 另外, 水滴对激光脉冲能量的吸收系数随光强增大而增大, 并在光强较大时吸收系数达到饱和, 此饱和吸收系数与液滴尺寸相关. 本文涉及的相互作用过程中的变量有限, 诸如激光脉冲的波长、脉宽等变量对此过程的影响还需开展进一步的研究.

参考文献

- [1] Gelderblom H, Lhuissier H, Klein A L, Bouwhuis W, Lohse D, Villermaux E, Snoeijer J H 2016 *J. Fluid Mech.* **794** 676
- [2] Kurilovich D, Klein A L, Torretti F, Lassise A, Hoekstra R, Ubachs W, Gelderblom H, Versolato O O 2016 *Phys. Rev. Appl.* **6** 014018
- [3] Peng X Y, Zhang J, Jin Z, Liang T J, Zhong J Y, Wu H C, Liu Y Q, Wang Z H, Chen Z L, Sheng Z M, Li Y T, Wei Z Y 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 2625 (in Chinese) [彭晓昱, 张杰, 金展, 梁天骄, 仲佳勇, 武慧春, 刘运全, 王兆华, 陈正林, 盛政明, 李玉同, 魏志义 2004 物理学报 **53** 2625]
- [4] Banine V Y, Koshelev K N, Swinkels G H P M 2011 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **44** 253001
- [5] Lindinger A, Hagen J, Socaciu L D, Bernhardt T M, Wöste L, Duft D, Leisner T 2004 *Appl. Opt.* **43** 5263
- [6] Courvoisier F, Boutou V, Favre C, Hill S C, Wolf J 2003 *Opt. Lett.* **28** 206
- [7] Geints Y E, Kabanov A M, Matvienko G G, Oshlakov V K, Zemlyanov A A, Golik S S, Bukin O A 2010 *Opt. Lett.* **35** 2717
- [8] Klein A L, Visser C W, Bouwhuis W, Lhuissier H, Sun C, Snoeijer J H, Villermaux E, Lohse D, Gelderblom H 2015 *Phys. Fluids* **27** 91106
- [9] Wu B 2008 *Appl. Phys. Lett.* **93** 101104
- [10] Geissler M, Tempea G, Scrinzi A, Schnürer M, Krausz F, Brabec T 1999 *Phys. Rev. Lett.* **83** 2930
- [11] Kolesik M, Wright E M, Moloney J V 2004 *Phys. Rev. Lett.* **92** 253901
- [12] Dubietis A, Gaižauskas E, Tamošauskas G, Di Trapani P 2004 *Phys. Rev. Lett.* **92** 253903
- [13] Fan C H, Sun J, Longtin J P 2002 *J. Appl. Phys.* **91** 2530
- [14] Saxena I, Ehmman K, Jian C 2014 *Appl. Opt.* **35** 8283
- [15] Efimenko E S, Malkov Y A, Murzanev A A, Stepanov A N 2014 *J. Opt. Soc. Am. B* **31** 534

- [16] Jarnac A, Tamosauskas G, Majus D, Houard A, Mysyrowicz A, Couairon A, Dubietis A 2014 *Phys. Rev. A* **89** 033809
- [17] Hong Z F, Zhang Q B, Rezvani S A, Lan P F, Lu P X 2016 *Opt. Express* **24** 4029
- [18] Linz N, Freidank S, Liang X, Vogelmann H, Trickl T, Vogel A 2015 *Phys. Rev. B* **91** 621
- [19] Noack J, Vogel A 1999 *IEEE J. Quant. Electron.* **35** 1156
- [20] Kennedy P K 1995 *IEEE J. Quant. Electron.* **31** 2241
- [21] Kennedy P K, Hammer D X, Rockwell B A 1997 *Prog. Quant. Electron.* **21** 155
- [22] Zhang C, Lu J, Zhang H C, Shen Z H, Ni X W 2016 *IEEE J. Quant. Electron.* **52** 1

Spatiotemporal distributions of plasma and optical field during the interaction between ultra-short laser pulses and water nanodroplets

Wang Hao-Ruo[†] Zhang Chong Zhang Hong-Chao Shen Zhong-Hua
Ni Xiao-Wu Lu Jian[‡]

(School of Science, Nanjing University of Science and Technology, Nanjing 210094, China)

(Received 16 January 2017; revised manuscript received 10 April 2017)

Abstract

The transient changes of free electron density distribution and light field intensity during the interaction between the femtosecond Gaussian laser pulses and millimeter scale water droplets are studied. Based on the nonlinear Maxwell's equations and the ionization rate equation, a transient coupled model is proposed to describe the laser plasma produced in water droplet. The changes of electron density and light field with time are obtained by the finite element method.

The calculation results show that the laser induced breakdown threshold in the droplet is about 2 TW/cm², one quarter of that in a boundaryless water medium under the same condition. We find that the region of plasma generated in the droplet will move along the laser direction at first, however, when the incident laser intensity becomes larger, it will move in the direction opposite to the laser beam propagation and the plasma shielded effect becomes more obvious. The laser beam converged by the droplet focuses outside the droplet, and its power density is five times larger than that of the incident laser. There happen the laser pulse duration compression and waveform distortion at the focus point due to the plasma absorption, and the absorption energy increases with the laser intensity increasing and reaches a saturation finally.

We expect the model and calculation results to be able to be used for the study of laser pulse propagation in cloud or rain, the precision control of droplet by laser or eye surgery by laser, and other laser technology applications.

Keywords: laser-induced breakdown, interaction between laser and droplet, optical field distribution, electron density

PACS: 78.67.Tf, 78.15.+e, 52.38.-r, 52.38.Dx

DOI: 10.7498/aps.66.127801

[†] Corresponding author. E-mail: 1412558942@qq.com

[‡] Corresponding author. E-mail: lujian@njust.edu.cn