

周期量级超短激光脉冲作用下导带 电子的光吸收与碰撞电离^{*}

王晓峰 贾天卿 徐至展

(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)

(中国科学院研究生院,北京 100039)

(2004 年 7 月 21 日收到,2004 年 11 月 4 日收到修改稿)

激光照射下光学材料的损伤过程中,导带电子的加热和碰撞电离是非常重要的过程,影响着导带电子的产生、晶格能量的沉积和破坏.分析了 Drude 模型的局限性,从经典力学出发求解了周期量级激光场中导带电子的运动方程,计算了导带电子的光吸收和碰撞电离,分析了激光强度、载波相位等对碰撞电离的影响.

关键词:周期量级超短激光脉冲,导带电子,碰撞电离

PACC:8240J,4255R,7630P,4225B

1. 引 言

随着激光技术的发展,可以获得的激光脉冲的宽度越来越短,已经进入了周期量级的尺度内^[1,2].脉冲宽度小于 10fs 周期量级激光的出现为材料微加工^[3,4]、生物显微技术^[5]等领域带来不可忽视的机遇.在周期量级超短激光脉冲与物质相互作用的领域内,人们对激光脉冲与二能级原子系统的相互作用^[6]、原子的阈上电离^[7]、高次谐波的产生^[8]、超短激光脉冲在等离子体中的传播^[9]等问题已经做了大量的研究工作. Lenzner 等报道了在波长为 780nm 脉冲宽度从 5ps 到 5fs 的光脉冲作用下不同带隙介质的损伤阈值和烧蚀深度^[10,11],但遗憾的是他们没有考虑激光脉冲周期性的行为.

研究周期量级超短脉冲作用下导带电子的光吸收和碰撞电离是一个很有意义的课题.激光照射下光学材料的损伤主要经历三个过程:导带电子的产生,导带电子的加热,晶格中能量的沉积和破坏^[12,13].导带电子的产生主要有两种途径,即多光子电离和碰撞电离.导带电子吸收激光能量的速率决定了碰撞电离速率的大小,进而决定了哪种途径主导导带电子的产生.导带电子在材料中运动时发射声子,把从激光场中吸收的能量部分或者全部传给

晶格,导致晶体融化、材料损伤.导带电子的加热极大地影响着导带电子的产生和晶格中能量的沉积与破坏,是光学材料破坏过程中非常重要的环节. Lenzner 的实验数据^[10]表明即使在周期量级时间尺度内激光与石英玻璃的相互作用过程中导带电子的碰撞电离依然是材料破坏的主要过程,因此深入研究周期量级超短激光脉冲照射下导带电子的加热与碰撞电离对于正确了解材料破坏机理是很有意义的.

目前主要用经典近似和量子微扰两种方法处理导带电子与激光场的相互作用^[12-14].在强激光场($> 40\text{TW}/\text{cm}^2$)中,导带电子的平均动能远大于光子能量,此时经典理论能够比较准确地描述电子的运动状态.根据经典近似,忽略激光的量子特性,将其看作按激光频率变化的交变电场,电子被连续加速.当激光场较弱时($< 2\text{TW}/\text{cm}^2$),电子主要集中于导带底部,其动能与光子能量相当,此时电子吸收激光能量的量子效应比较显著,量子微扰论适用.然而当激光脉冲压缩到小于 10fs 仅有几个光学周期(800nm)的时候,激光强度一般达到几十甚至几百 TW/cm^2 ,此时量子微扰理论已经不能适应,而且不能简单地按照经典理论把激光脉冲看作按激光频率变化的交变电场,需要注意其振幅随时间的变化,同时载波相位也凸现出其重要性.

^{*} 国家自然科学基金(批准号 60108002)资助的课题.

本文从经典力学出发,以石英玻璃为例研究了周期量级激光脉冲作用下导带电子吸收能量及其发生碰撞电离的速率.并将计算结果与 Drude 模型做了比较,讨论了激光强度、载波相位对碰撞电离的影响.

2. 理论计算及结果

2.1. 经典 Drude 模型的局限性

经典 Drude 模型认为,金属中的自由电子在运动过程中不断与正离子发生碰撞,平均来讲自由电子要受到一个阻尼力的作用,该阻尼力的大小与自由电子的速度成正比,其方向与自由电子的速度方向相反.电子在激光场中的运动过程用以下方程近似表示为^[15,16]

$$\frac{d\mathbf{P}}{dt} = -\frac{\mathbf{P}}{\tau} - e\mathbf{E}, \quad (1)$$

式中 e 和 \mathbf{P} 分别是电子的电量 and 动量, τ 是单位质量的阻力系数. \mathbf{E} 为电场,可以表示为

$$\mathbf{E} = E_0 \exp(-i\omega t). \quad (2)$$

将(1)式代入方程(2),可以看出导带电子动量响应电场改变做周期性变化

$$\mathbf{P}(t) = \mathbf{P}_0 \exp(-i\omega t),$$

$$\mathbf{P}_0 = -\frac{eE_0}{\frac{1}{\tau} - i\omega}. \quad (3)$$

由电流密度 $\mathbf{j}(t)$ 、电导率 σ 、电子动量 $\mathbf{P}(t)$ 和电场强度 $\mathbf{E}(t)$ 的关系

$$\mathbf{j}(t) = \sigma \mathbf{E}(t),$$

$$\mathbf{j}(t) = -\frac{ne\mathbf{P}(t)}{m}, \quad (4)$$

可以得出金属的交流电导率依赖于频率的变化

$$\sigma(\omega) = \frac{\sigma_0}{1 - i\omega\tau} \quad \sigma_0 = \frac{ne^2}{m}. \quad (5)$$

由能量功率密度可以得出电子从激光场中吸收能量的速率

$$W = \sigma E^2 = \frac{ne^2}{m\left(\frac{1}{\tau^2} + \omega^2\right)} \left(\frac{1}{\tau} + i\omega\right) E^2 \quad (6)$$

式中 $\frac{1}{\tau} \approx 10^{14} - 10^{16} \text{ s}^{-1}$, 微波的圆频率 $\omega \approx 10^{10} \text{ s}^{-1}$,

所以对于微波场来说都有 $\frac{1}{\tau} \gg \omega$. 在这种情况下,

(6)式简化为

$$W = \frac{ne^2 \nu E^2}{m(\nu^2 + \omega^2)}, \quad \nu = \frac{1}{\tau}, \quad (7)$$

这也就是常用来计算电子从激光场中吸收能量速率的经典 Drude 模型^[17,18].

通过回顾可以发现经典 Drude 模型成立的几个基本条件包括:

1) 平面波近似. 一个高斯形状激光脉冲的电场表达式为

$$E = E_0 \exp\left(-2\ln 2 \frac{t^2}{T^2}\right) \sin(\omega t + \varphi). \quad (8)$$

式中 T 为脉冲宽度, ω 为激光频率, φ 为载波相位. 对于长脉冲来讲可以忽略激光包络在一个光周期内的变化,做平面波近似,如图 1(a)(b)所示.但是对于周期量级激光脉冲来讲,脉冲宽度近似于一个或几个光周期,此时包络在一个光周期或者一个波长内的变化不可以忽略,如图 1(c)所示.从图 1 可以看出平面波近似不适应于周期量级脉冲.

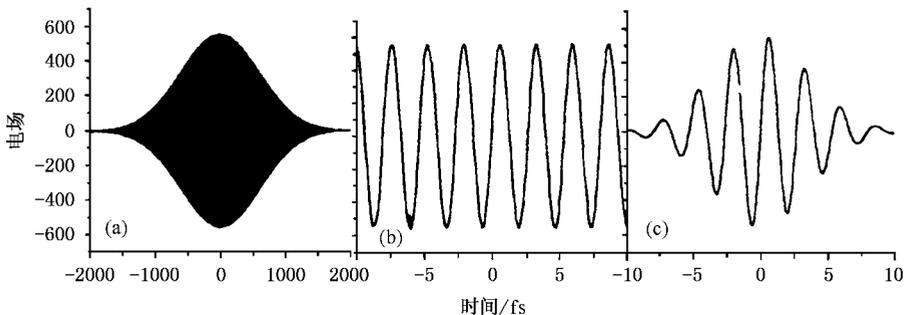


图 1 长脉冲(a)(b)与周期量级超短脉冲(c)的比较.相同的光强对于长脉冲($\lambda = 1 \text{ ps}$)在光周期内可以看作平面波(b),周期量级超短脉冲($T = 6 \text{ fs}$)在光周期内却必须考虑脉冲包络的变化(c)

2) 在低频交变电场中电子能够及时传递能量给

晶格而响应电场变化做周期性的振动.超短激光脉

冲持续时间极短功率很大, 导带电子从激光场吸收的能量不能及时传给晶格, 也就不能完全响应电场而做同周期的正弦(或余弦)振动, 即(3)式不适用于周期量级超短脉冲。

3) 对于波长 800nm 的激光来讲, $\omega \approx 10^{15} \text{ s}^{-1}$, 此时 $\omega = \frac{1}{\tau}$, 所以不能由(6)式得出(7)式, Drude 模型得到的电子从电场中吸收能量速率的表达式(7)不适用于近红外的激光场。

2.2. 周期量级超短激光场中导带电子的加热和碰撞电离

通过以上分析可知经典 Drude 模型不能处理周期量级超短激光脉冲与物质相互作用. 下面讨论在不考虑碰撞电离的情况下导带电子动量随时间的变化. 将(8)式带入(1)式并求解方程(1)可以得到电子动量在激光场中的表达式

$$P(t) = -eE_0 \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) \int_{-T}^t \exp\left(\frac{t'}{\tau} - 2\ln 2 \frac{t'^2}{T^2}\right) \times \sin(\omega t' + \varphi) dt'. \quad (9)$$

实际上, 由于碰撞电离的影响电子动量不可能完全按照(9)式演化. 当导带电子能量达到带隙宽度时就会与价带电子发生碰撞电离, 失去能量而落回到导带底部。

2.3. 结果与讨论

对于石英玻璃来讲, 导带与价带的带隙宽度约为 9eV. 根据碰撞电离理论, 当导带电子从激光场中吸收能量动能增加到 9eV 时, 就会与价带电子发生碰撞失去动能跌落到导带底部, 同时生成一个新的动能为零的导带电子^[13, 17]. 两种情况下的计算结果如图 2 所示。

通过比较可以看出, 在经典近似条件下导带电子在发生碰撞电离的区间内能量一直增加, 如图 2(d) 我们的计算结果表明由于导带电子不能完全响应电场的变化能量有增有减, 如图 2(c) 所示. 计算结果也表明周期量级激光脉冲作用下碰撞次数要比 Drude 模型的少 5 次. 改变激光强度也得到了相似的结果. 主要原因在于导带电子与电场并不总是同相位变化, 当电场改变时, 电子在电场中运动既有加速过程又有减速过程. 而经典 Drude 模型中电子一直加速, 见(2)(3)式。

另外, Lenzner 的实验数据表明石英玻璃在 5fs 强激光照射下的损伤阈值约为 1.3 J/cm^2 , 对应的激

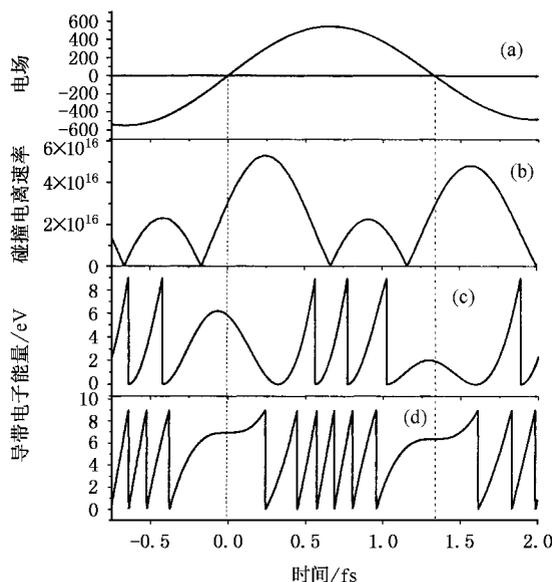


图 2 关于导带电子碰撞电离两种计算方法的比较 (a) 周期量级激光场随时间的变化 (b) 单光子吸收速率 (c) 周期量级激光场中导带电子的能量演化和碰撞电离 (d) Drude 模型中导带电子的碰撞能量演化和碰撞电离(激光中心波长 $\lambda = 0.8 \mu\text{m}$, 脉冲宽度 $T = 6 \text{ fs}$, 能流密度 $F = 0.6 \text{ J/cm}^2$)

光强度为 260 TW/cm^2 . 鉴于材料损伤阈值测量的不确定性, 我们采用激光能量密度 0.6 J/cm^2 , 脉冲宽度 6fs (对应功率密度 100 TW/cm^2) 的周期量级激光脉冲, 发现导带电子碰撞电离对材料的破坏依然起主要作用. Rethfeld 在文献 [19] 中指出当脉冲宽度 $\tau \gg t_{\text{MRE}} := [(|\sqrt{2}| - 1) W_{\text{IP1}}]^{-1}$ 时 (t_{MRE} 为碰撞电离的时间尺度, W_{IP1} 为单光子吸收速率, $k = \frac{E_{\text{gap}}}{h\nu}$), 自由电子密度呈指数增加, 碰撞电离模型依然适用. 通过简单计算可以得出光强为 100 TW/cm^2 时平均单光子吸收速率 $W_{\text{IP1}} = 3 \times 10^{16}$, 如图 2(b) 所示. 对于石英玻璃 $k = 6$, $t_{\text{MRE}} = 0.3 \text{ fs}$, 依然满足 $t \gg t_{\text{MRE}}$ 的条件. 可见在周期量级尺度内, 导带电子碰撞电离在材料破坏的过程中仍然起着主导作用。

随着激光强度的增加导带电子在激光场中吸收能量的速率也越来越大, 与激光脉冲作用的过程中发生碰撞电离的次数也越来越多. 我们分别就两种方法的结果做了比较, 如图 3 所示。

可见, 周期量级激光脉冲作用下的碰撞电离的增长要比经典 Drude 模型的结果缓慢, 并且随着激光强度的增加差距越来越大. 由于周期量级超短脉冲在一个光周期内振幅的变化使得导带电子在每个光周期内吸收的能量出现了差别, 从而使得导带电

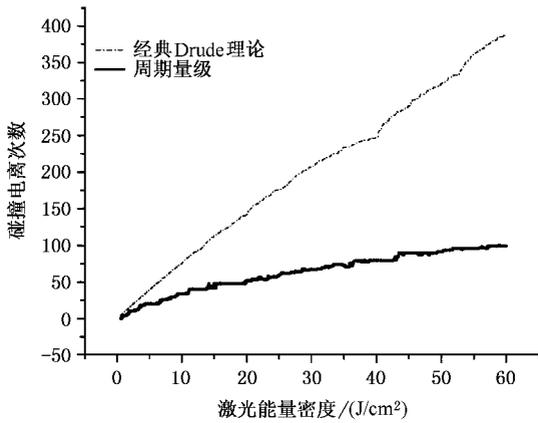


图3 两种计算结果显示激光强度对碰撞电离的影响 虚线显示的为 Drude 模型的结果,实线显示周期量级超短脉冲作用下的碰撞电离.激光中心波长 $\lambda = 0.8\mu\text{m}$ 脉冲宽度 $T = 6\text{fs}$

子发生碰撞电离的次数相对较少.用于处理长脉冲的 Drude 模型,把激光场看作是按激光频率变化的

交变电场,电子在每一个光周期内导带电子吸收的能量完全相同,碰撞电离次数增加得较快.

当激光脉冲进入到周期量级领域时,传统的用来描述长激光脉冲的参数(频率、振幅、偏振方向)已经不足以完全描述周期量级超短激光脉冲,要完全描述一个周期量级超短激光脉冲至少还需要另一个光学参数,那就是载波相位^[20].对于周期量级超短激光脉冲(假设为线偏振) $E(t) = E_0(t)\sin(\omega t + \varphi)$,对于给定的脉冲包络 $E_0(t)$,虽然激光包络相同,但是电场是时间的函数依赖于相位 φ 的变化,如图4所示.基于此,人们围绕载波相位做了很多工作,并取得了一系列的成果^[20-23].

我们计算了载波相位 $\varphi = 0, \pi/3, \pi/2$ 时导带电子的碰撞电离,如图5所示.不同的载波相位对应不同的光场,发生碰撞电离的速率也不同. Drude 模型却表明碰撞电离不受载波相位的影响.

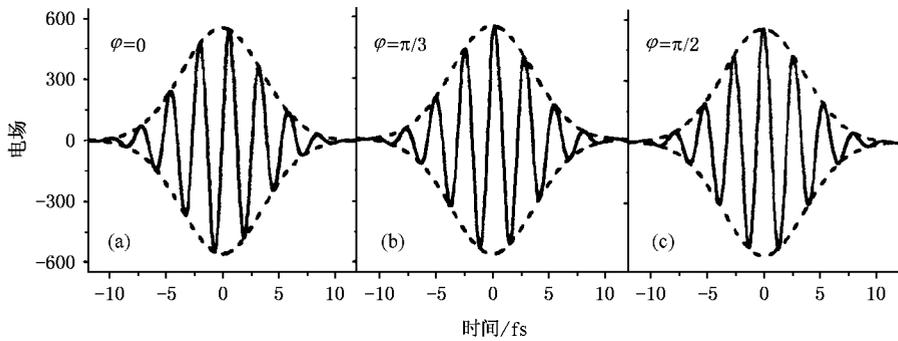


图4 周期量级激光脉冲电场随时间的演化依赖于相位 φ 的变化 (a) $\varphi = 0$ (b) $\varphi = \frac{\pi}{3}$ (c) $\varphi = \frac{\pi}{2}$ 时电场取得最大值

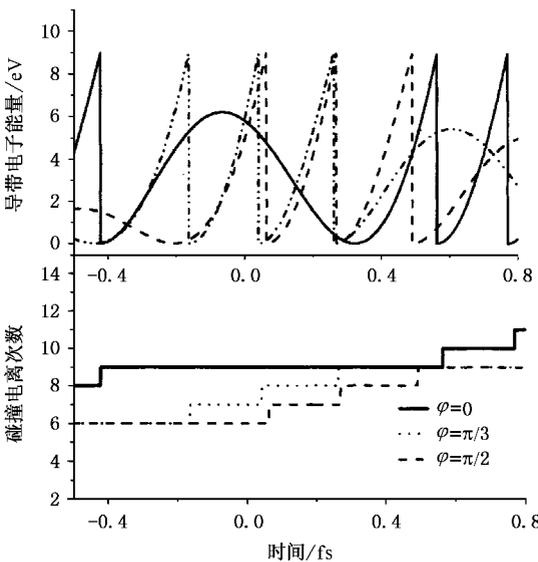


图5 不同载波相位的周期量级超短激光脉冲作用下导带电子的碰撞电离($\lambda = 0.8\mu\text{m}$,脉冲宽度 $T = 6\text{fs}$,能流密度 $F = 0.6 \text{ J/cm}^2$)

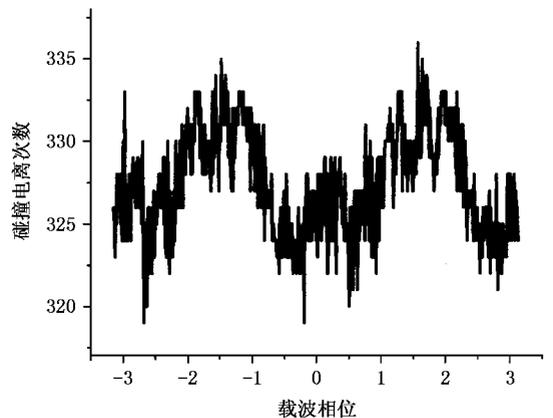


图6 周期量级超短激光脉冲作用下载波相位对导带电子碰撞电离的影响(激光中心波长 $\lambda = 0.8\mu\text{m}$,脉冲宽度 $T = 6\text{fs}$,能流密度 $F = 100\text{J/cm}^2$)

可见对于周期量级超短激光照射下导带电子的光吸收和碰撞电离, Drude 模型已经不能正确描述这种极端的物理过程. 对于周期量级超短激光脉冲与物质相互作用的极短过程, 还有许多问题有待解决.

3. 结 论

本文从经典自由电子理论出发, 以石英玻璃为

例研究了周期量级激光脉冲作用下导带电子加热与碰撞电离. 发现用来处理激光脉冲与电子相互作用的 Drude 模型已经不再适用. 本文通过数值计算研究了周期量级激光脉冲作用下导带电子吸收能量及其碰撞电离过程, 详细讨论了激光强度、载波相位等对导带电子碰撞电离的影响并与 Drude 模型的结果进行了比较.

感谢曾志男博士富有启发性的讨论.

- [1] Baltuska, Wei Z, Pshenichnikow M S and Wiersma D A 1997 *Opt. Lett.* **22** 102
- [2] Schenkel B, Biegert J and Keller U 2003 *Opt. Lett.* **28** 1987
- [3] Lenzner M, Krüger J, Sartania S, Cheng Z, Spielmann Ch, Mourou G, Kautek W and Krausz E 1998 *Phys. Rev. Lett.* **80** 4076
- [4] Li C D, Wang D L, Luo L, Yang H and Gong Q H 2000 *Physics* **29** 719 [in Chinese] 李承德、王丹翎、罗乐、杨宏、龚旗煌 2000 *物理* **29** 719]
- [5] Spielmann C, Burnett N H, Sartania S, Koppitsch R, Schnürer M, Kan C, Lenzner M, Wobrauschek P and Krausz F 1997 *Science* **276** 661
- [6] Lee W. Casperson 1998 *Phys. Rev. A* **57** 609
- [7] Grasbon F, Paulus G G, Walther H, Villoresi P, Sansone G, Stagira S, Nisoli M and De Silvestri S 2003 *Phys. Rev. Lett.* **91** 173003
- [8] Tempea C, Geissler M and Brabec T 1999 *J. Opt. Soc. Am. B* **16** 669
- [9] Zhang Q J, Sheng Z M and Zhang J 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 798 [in Chinese] 张秋菊、盛政明、张杰 2004 *物理学报* **53** 798]
- [10] Lenzner M, Krüger J, Sartania S, Cheng Z, Ch. Spielmann, Mourou G, Kautek W and Krausz F 1998 *Phys. Rev. Lett.* **80** 4076
- [11] Lenzner M, Krüger J, Kautek W and Krausz F 1999 *App. Phys. A* **69** 465
- [12] Jia T Q, Chn H and Wu X 2000 *Acta Phys. Sin.* **49** 1277 [in Chinese] 贾天卿、陈鸿、吴翔 2000 *物理学报* **49** 1277]
- [13] Jia T Q, Xu Z Z, Li R X, Feng D H, Li X X, Cheng C F, Sun H Y, Xu N S and Wang H Z 2004 *J. App. Phys.* **95** 5166
- [14] Jones S C, Praunlich P, Casper R T *et al* 1989 *Optical. Engineering.* **28** 1039
- [15] Ashcroft N W *et al* 1976 *Solid State Physics* (New York : Cornell University) p16
- [16] Max Born and Wolf 2001 *Principles of Optics* (Cambridge : Cambridge University) p749
- [17] Stuart B C, Feit M D, Herman S, Rubenchik A M, Shore B W and Perry M D 1996 *Phys. Rev. B* **53** 1749
- [18] Stuart B C, Feit M D, Rubenchik A M, Shore B W and Perry M D 1995 *Phys. Rev. Lett.* **74** 2248
- [19] Rethfeld B 2004 *Phys. Rev. Lett.* **92** 187401
- [20] Milosevic' D B, Paulus G G and Becker W 2002 *Phys. Rev. Lett.* **89** 153001
- [21] Zeng Z N, Li R X, Yu W and Xu Z Z 2003 *Phys. Rev. A* **67** 013815
- [22] Paulus G G, Grasbon F, Walther H, Villoresi P, Nisoli M, Stagira S, Priori E and De Silvestri S 2001 *Nature* **414** 182
- [23] Lemell C, Tong X M, Krausz F and Burgdörfer J 2003 *Phys. Rev. Lett.* **90** 076403

Photon absorption of conduction band electrons and impact ionization under irradiation of few-cycle ultrashort laser pulses^{*}

Wang Xiao-Feng Jia Tian-Qing Xu Zhi-Zhan

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

(*Graduate School of the Chinese Academy of Sciences , Beijing 100039 , China*)

(Received 21 July 2004 ; revised manuscript received 4 November 2004)

Abstract

We discuss the limitation of classical Drude Model , solve the kinematics equation for electrons in the few-cycle laser field , and calculate the photon absorption of conduction-band electrons(CBE) and impact ionization under irradiation of few-cycle ultrashort laser pulses . The effects of laser intensity , carrier-envelope-phase on impact ionization are discussed .

Keywords : few-cycle ultrashort laser pulses , conduction band electrons , impact ionization

PACC : 8240J , 4255R , 7630P , 4225B

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China(Grant No. 60108002).