

延迟双脉冲激光产生的空气等离子体的光谱研究*

林兆祥¹⁾ 吴金泉¹⁾ 龚顺生²⁾

1) 中南民族大学电信学院, 武汉 430074)

2) 中国科学院武汉物理与数学研究所, 波谱与原子分子物理国家重点实验室, 武汉 430071)

(2005 年 7 月 7 日收到, 2006 年 3 月 23 日收到修改稿)

使用激光双光束方法, 对激光大气等离子体的光谱进行了实验研究. 由一台激光器产生的两束激光, 其中一束用于产生等离子体(电离激光束), 另一束则用于对已产生的等离子体施加影响(作用激光束). 作用激光束所引起的光谱特征变化的实验研究结果和相应的初步分析. 结果表明, 在作用激光束的影响下, 激光大气等离子体光谱的强度在整体上都有明显的增加, 而且, 连续光谱的增强大于线状光谱, 短波连续光谱的增强大于长波连续光谱. 作用激光束相对于电离激光束的延时越大, 谱线增强的相对值也越大. 作用激光束对谱线的增强不存在明显的阈值效应. 结果还表明, 作用激光束除导致光谱幅度增强外, 对激光大气等离子体中各种类谱线成分的衰变时间也有明显的影响. 除个别谱线外, 大多数谱线的衰变时间都有不同程度的延长. 对结果的初步分析指出, 上述结果是激光大气等离子体中的自由电子吸收作用激光束的能量后, 在等离子体中有不同传递途径和不同传递效率的体现. 该结果为深入了解激光大气等离子体衰变过程中的微观物理现象提供了新的线索, 也为以延长激光大气等离子体衰变过程为目标的技术应用提供了实验依据.

关键词: 大气等离子体, 双光束, 等离子体光谱, 谱线演化

PACC: 5240, 5150, 5200

1. 引言

将强激光束聚焦于空气中能击穿空气而产生等离子体的现象在激光器发明之后不久就被发现^[1], 并对此进行了多年的理论和实验研究^[2]. 但这些早期的研究工作大多集中在大气等离子体的击穿机理及其阈值特性方面, 对激光大气等离子体产生后的时间演化特性(即复合特性)方面的研究则开展得较少. 上世纪 80 年代以来, 许多以激光产生大气等离子体为基础的应用研究相继出现, 如激光引雷^[3]、激光遥测^[4]、X 射线激光产生^[5], 特别是激光核聚变^[6]和激光喷气推进^[7]等. 为有效地实现这些技术应用, 不仅需要了解激光大气等离子体的产生机理及其阈值特征, 而且也需要对激光大气等离子体的复合过程及其影响因素进行研究.

我们曾经对利用 YAG 纳秒激光器对激光大气等离子体的光谱及其时间演化特性做过一些研究, 给出了激光大气等离子体中各种光谱成分时间演化的一些基本特征^[8,9]. 张杰课题组最近利用飞秒激光器研究激光大气等离子体通道的寿命也取得了一些新进展^[10,11]. 为了进一步探求延长激光大气等离子

体复合过程的原理和技术, 以适应与激光大气等离子体弛豫过程相关的某些应用的需求, 我们采用两束激光对大气中的等离子体进行了光谱研究. 其中, 第一激光束(称为电离激光束)用以激发大气中的等离子体, 第二激光束(称为作用激光束)用来作用在第一束激光所产生的激光大气等离子体上, 并通过改变作用激光束的强度及相对于电离激光束的延时, 来研究作用激光束对已产生的大气等离子体时间演化过程的影响.

2. 实验装置及实验方法

为研究激光对激光大气等离子体复合过程的影响, 我们设计了如图 1 所示的双光束实验装置. 该装置主要利用 YAG 激光器同时产生的两束不同波长(1.06 μm 和 0.532 μm , 分别为该激光器的基波光和二倍频光)的激光, 激光脉宽约 10ns, 重复频率 30Hz. 其中一束(0.532 μm)作为电离激光束击穿大气产生等离子体, 而另一束(1.06 μm)作为作用激光束经过一定延时后与第一激光束共焦作用在实验装置的电离区, 用于向电离激光束所产生的激光大气等离子体施加影响. 由于这两束激光是同一台激光器

* 国家自然科学基金(批准号 50636010)和湖北省自然科学基金(批准号 2005ABA312)资助的课题.

产生的,通过调整它们进入电离区的光路长度(即如图 1 所示将 $0.532\mu\text{m}$ 激光直接经透镜聚焦后产生大气等离子体,而 $1.06\mu\text{m}$ 激光经过多块棱镜反射后再聚焦作用在已产生的大气等离子体上),可以设置不同的光程差,使得作用激光束相对于电离激光束在 30ns 、 60ns 和 100ns 延时的情况下再作用于等离子体上,并对其光谱的时间演化特性进行研究。

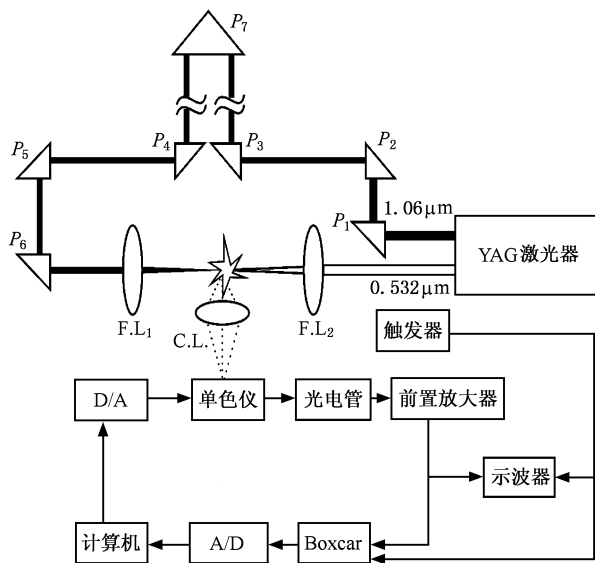


图 1 激光大气等离子体双光束实验装置

图 1 所示实验装置中的其余部分,包括光谱采集、信号处理等与文献 [8] 中所用的相同。光谱检测采用延时光谱和谱线演化两种方法。所谓延时光谱法,是通过改变 Boxcar 积分器采样门(门宽 10ns)相对于激光脉冲的延时来获得一系列的等离子体光谱,从这一系列的光谱中可研究整体光谱的时间演化特性。而谱线演化法则是将光谱仪的波长置于要研究的特定谱线位置,然后用快速示波器捕捉并记录其光谱信号的时间演化特性。原则上讲,这两种方法获得的光谱时间变化信息是等效的,只是前者有利于获得全部光谱的粗略时间变化特性,而后者有利于获得某一谱线的详细时间变化特性。与以往的研究不同的是,本文着重研究在不同强度和不同延时的第二束激光作用下,由第一束激光所产生的大气等离子体光谱演化特性的变化。

3. 实验结果

3.1. 延时光谱法

图 2 为加入和不加入作用激光束情况下的激光

大气等离子体延时光谱的比较。实验条件为电离激光束波长 $\lambda_1 = 0.532\mu\text{m}$, 能量 $E_1 = 70\text{mJ}$, 作用激光束波长 $\lambda_2 = 1.06\mu\text{m}$, 能量 $E_2 = 30\text{mJ}$, 作用激光束相对与电离激光束的延时选定为 30ns 。不管加不加作用激光束,激光等离子体的光谱都取自 Boxcar 采样门的延时相对于电离激光束为 100ns 时的情形。由于作用激光束对电离激光束的延时为 30ns ,所以在有作用光时,激光大气等离子体的光谱取自作用激光束 70ns 之后。从图 2 可以清楚地看出,加入作用光束后,激光大气等离子体光谱从整体上均有明显的增强,而且实验还发现,把作用激光束的能量 $E_2 = 30\text{mJ}$ 加到电离激光束中(即 E_1 从 70mJ 变为 100mJ)所产生的光谱增强效果明显小于用 $E_2 = 30\text{mJ}$ 和 $E_1 = 70\text{mJ}$ 进行双光束激光作用的情形。这说明作用激光束的效果并不简单地等效于激发光束能量地增加。仔细观察还可以发现,对于激光大气等离子体光谱的两大成分,即连续光谱和线状光谱,作用激光束对它们的影响有所不同:对于连续谱,短波段的增强大于长波段,而对线状光谱,则是长波段光谱的增强更为明显。

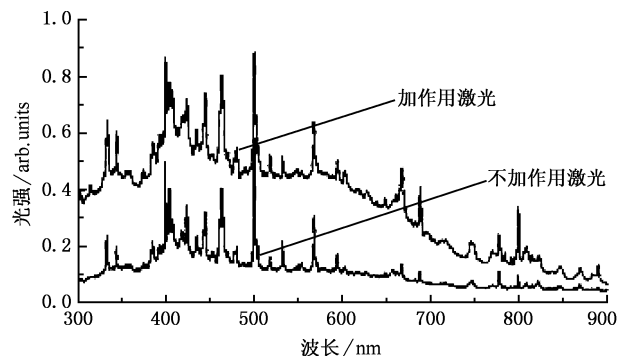


图 2 作用激光束对激光大气等离子体光谱的影响

更详细的延时光谱测量结果示于图 3。电离激光束的实验参数与图 2 所用的相同,但作用激光束的能量 E_2 分别为 0mJ (即不加作用激光)、 15mJ 和 30mJ ,且作用激光束相对于电离激光束的延时分别为图 3(a) 30ns 、图 3(b) 60ns 、图 3(c) 100ns 。在所有情况下,激光等离子体光谱的采样时间总是在作用激光束之后 20ns ,因而图 3(a)(b)(c) 分别为取自电离激光束 50ns 、 80ns 和 120ns 之后的光谱。图 3 除了显示作用激光束对激光大气等离子体光谱强度有明显影响外,还表明:

1) 在相同的延时下,作用激光束的能量 (E_2) 越大,激光大气等离子体光谱的强度增加越大,但两者

并非正比关系,即 $E_2 = 30\text{mJ}$ 时的增加量并不等于 $E_2 = 15\text{mJ}$ 时的两倍.实验还表明,即使作用激光束的能量很小($E_2 \sim 1\text{mJ}$)也会产生可以观测的变化.这说明作用激光束对激光大气等离子体光谱的影响并不存在明显的阈值效应.

2)在实验所用的延时范围内($0\text{--}100\text{ns}$),延时越大,作用激光束所引起的光谱强度的相对增加也越大.这一结果可以从图中看出,即图 3(c)中 $E_2 =$

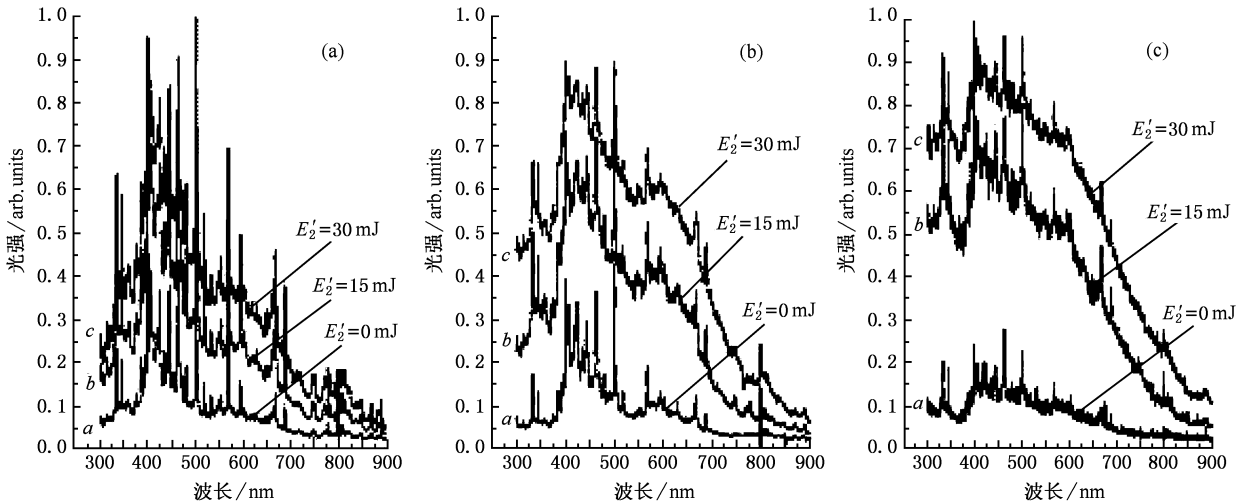


图 3 不同能量和不同延时作用激光束对激光与激光大气等离子体光谱的影响 (a)延时为 30ns;(b)延时为 60ns;(c)延时为 100ns

3.2. 谱线演化法

为研究在各种延时的情况下,激光对激光大气等离子体中各种光谱成分作用的差异,我们对激光大气等离子体光谱中的多条光谱分别作了谱线演化法的测量.一条典型的谱线($\lambda = 391.4\text{nm}$)演化结果如图 4 所示.图 4(a)为仅在电离激光束作用下的时间演化曲线,图 4(b)(c)(d)分别为在电离激光束和作用激光束共同作用下演化曲线(分别表示作用激光束相对于电离激光束的延时为 30ns,60ns 和 100ns).从图 4 可见,在单独用电离激光束激发的情况下,该谱线的强度在电离激光束激发后并呈现单调地衰减(图 4(a)).若将其简单地看成单指数衰变形式,则时间常数 τ 大约为 66ns(衰减到初始强度 $1/e$ 的时间).但是,如果在此衰变过程中加入作用激光束,则衰变过程将在加入作用激光束的时刻又重新升起,并以新的方式衰变(图 4(b)(c)(d)).从图中可以看出作用激光束加入后的影响主要表现在两方面,一是使光谱的强度重新增加,图中反映的特点是作用激光束的延时越大,所产生的相

0mJ 时的光谱小于图 3(a),但图 3(c)中 $E_2 = 15\text{mJ}$, 30mJ 时的光谱分别明显大于图 3(a).这一结果表明越是在激光大气等离子体演化的后期,作用激光束的作用效果越大.

3)作用激光对激光束大气等离子体的连续光谱和线状光谱的影响不同:对连续光谱的影响大于线状光谱,且作用激光束的延时越大,这种差别越明显.

对幅度增加也越大;一是使衰变速率改变,图中反映的特点是在作用激光束影响下衰变速率均变慢.虽然作用激光束对激光大气等离子体光谱中各种光谱成分的影响不同,但是总的说来,作用激光束对于延长激光大气等离子体衰变时间的效果是明显的.例如在图 4 中,对延时为 30ns 的作用光束而言,其影响是将衰变时间从无作用激光束的约 66ns 延长到约 110ns.

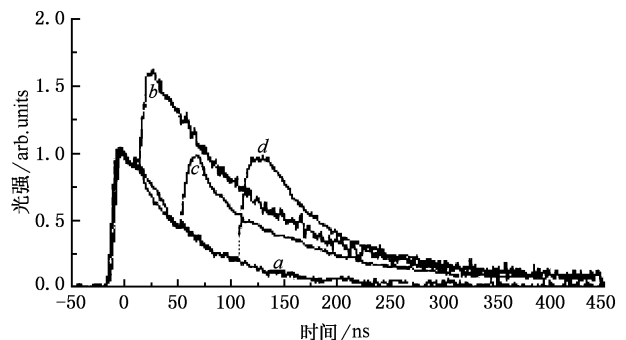


图 4 不同延时作用激光束对激光大气等离子体谱线演化的影响

为获得作用激光束对于激光大气等离子体的各

种光谱成分影响的规律性结果,以进一步了解作用激光束影响的机理,我们对实验获得的一批谱线演化曲线按幅度相对增量 ΔI (%) 和时间相对增量 $\Delta\tau$ (%) 两个参量进行了统计分析.两参量的定义分别为 $\Delta I = \frac{I_2 - I_1}{I_1} \times 100\%$ 和 $\Delta\tau = \frac{\tau_2 - \tau_1}{\tau_1} \times 100\%$. 其

中, I_1 和 I_2 分别为无作用激光束和有作用激光束情况下,在作用激光束加入时刻的光谱强度,而 τ_1 和 τ_2 分别为无作用激光束和有作用激光束时的衰变时间(各自按从初始衰变到 $1/e$ 所用的时间计算).分析结果列于表 1.

表 1 作用激光束对部分谱线的幅度相对增量和时间相对增量

波长/nm	跃迁形式	$\Delta I/\%$			$\Delta\tau/\%$				
		30ns	60ns	100ns	30ns	60ns	100ns		
370	短波长连续谱	68	403	807	74	41	-14		
475		80	321	730	70	27	-7.8		
700	长波长连续谱	45	259	460	72	87	83		
860		56	214	311	97	85	91		
333.9	$N_2(2^+)$	1—1	57	150	357	61	43	14	
404.1	$C^3\Pi_u \rightarrow B^3\Pi_g$	0—3	27	78	181	76	55	43	
391.4	$N_2(1^-)$	0—0	148	146	540	123	76	32	
424.1	$B^2\Sigma_u^+ \rightarrow X^2\Sigma_g^+$	1—2	146	538	640	109	66	24	
343.7	N^+	$3f(1S) \rightarrow 3f(1P^0)$	75	206	489	108	86	-16	
480.3		$3d(5D^0) \rightarrow 3f(5D)$	65	206	370	115	32	-7	
500.5		$3f(3S) \rightarrow 3f(3P^0)$	44	52	64	-8	-3.9	-5.4	
517.6		$3d(5D) \rightarrow 3f(5P^0)$	37	128	186	99	47	11	
553.6		$3f(5D^0) \rightarrow 3f(5P)$	55	117	400	11	9.7	10.5	
504.5		$3f(3S) \rightarrow 3f(3P^0)$	77	355	820	121	54	13	
567.9		$3f(3D) \rightarrow 3f(3P^0)$	73	309	600	240	184	85	
777.4		$3f(5P) \rightarrow 3f(5S^0)$	150	1500	2100	33	49	34	
822.2		O	$3f(3D) \rightarrow 3f(3D^0)$	75	1567	3100	42	33	23
844.6			$3f(3P) \rightarrow 3f(3S^0)$	173	867	3100	56	37	42
746.6	N	$3f(4S^0) \rightarrow 3f(4P)$	104	529	1350	4.3	4.8	4.7	

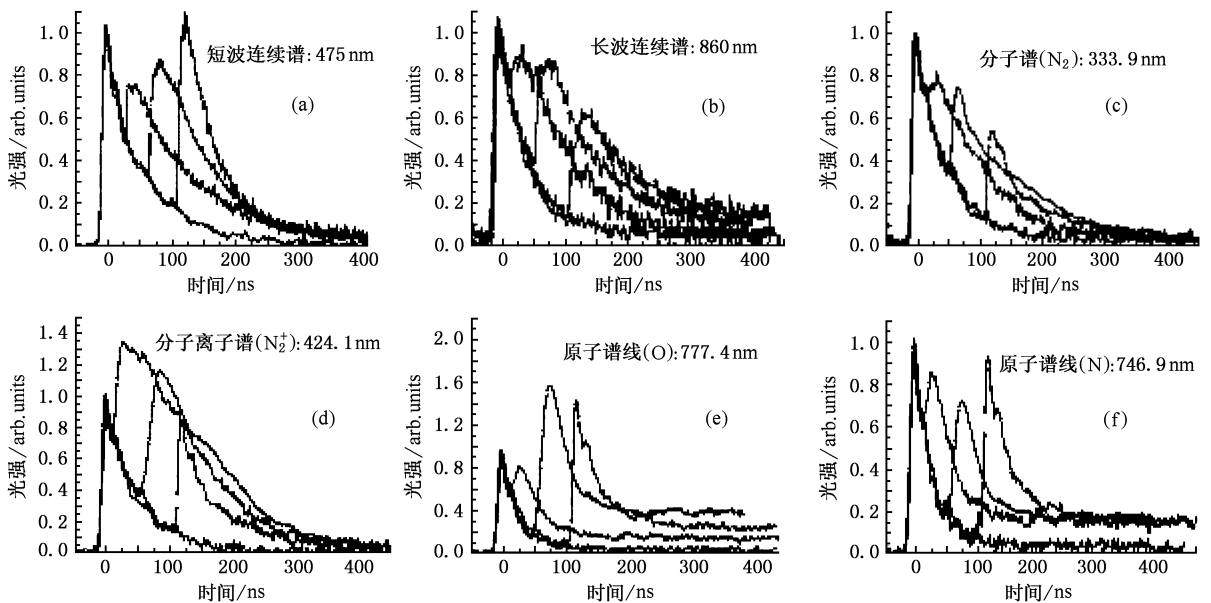


图 5 激光大气等离子体中各类主要谱线的演化 (a)短波连续光谱;(b)长波连续光谱;(c)分子光谱(N_2);(d)分子离子光谱(N_2^+);(e)原子光谱;(f)N 原子光谱

从表 1 可见,对激光大气等离子体光谱的所有光谱成分,作用激光束的加入都会产生可观的幅度相对增量 ΔI (最高可达到 3000% 以上)和一定的时间相对增量 $\Delta\tau$ (除个别情况 $\Delta\tau$ 为负值外,最大的可超过 200%).从谱线成分看,除原子离子 (N^+) 谱线的情况稍复杂外,作用激光对其他几类谱线的影响都呈现一定的规律性.如图 5 所示,对短波连续谱线 ΔI 都随延时而增加(最大达到 800%), $\Delta\tau$ 则随延时而减小,100ns 变负(图 5(a));长波连续谱则和

原子谱 (O, N) 类似,都是 ΔI 随延时而增加, $\Delta\tau$ 则变化不大(如图 5(b)(e)(f)).值得指出的是,对原子谱线在 100ns 延时下,幅度相对增量可高达 3100%,即作用激光束可使谱线强度增加 30 倍以上;分子 (N_2) 和分子离子 (N_2^+) 谱线也有类似变化, ΔI 都随延时而增加, $\Delta\tau$ 则都随延时而减小(图 5(c)(d)).实验测得的原子离子 (N^+) 谱线的表现比较复杂,但仍可将其分为三种类型,如图 6 所示.可见,这三类谱线演化特征分别类似于短波连续谱(图 5(a)),长

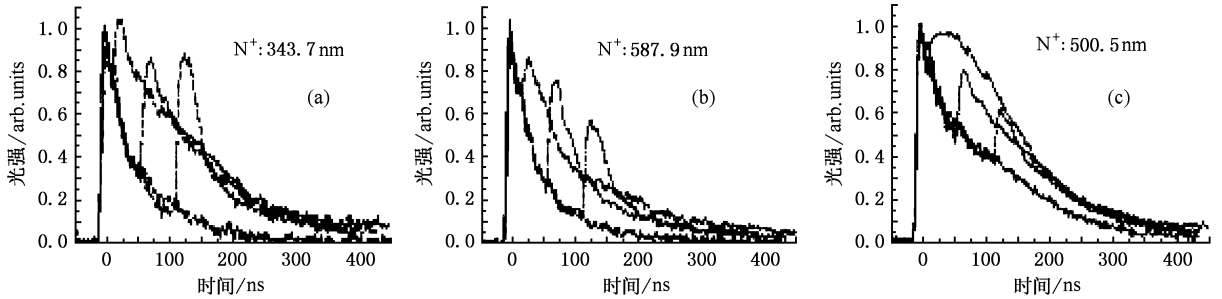


图 6 激光大气等离子体中部分氮原子离子谱线的演化结果 (a) 343.7nm ; (b) 587.9nm ; (c) 500.5nm

波连续谱(图 5(b))和分子离子谱(图 5(d)).

4. 结果的初步讨论

激光大气等离子体的维持理论认为,激光对大气等离子体作用的主要机理是等离子体中的自由电子通过逆韧致过程吸收激光能量,来平衡自由电子的能量耗散,从而达到大气等离子体状态的维持^[12,13].本实验结果在一定程度上证实了这种理论的正确性,但从本文给出的时间演化结果可进一步分析出激光大气等离子体在受到另一激光作用后所经历的一些更为复杂的微观物理过程.

图 3 所示的结果表明作用激光束的能量越大,对激光大气等离子体光谱的幅度增量越大,而且对连续光谱的增量明显地大于线状光谱.通常认为,连续光谱主要产生于等离子体中自由电子的韧致辐射过程,且辐射功率正比于自由电子密度和离子密度的乘积^[9,14].因此,上述结果可定性地解释为自由电子通过吸收作用激光束所提供的能量,使其温度重新提升,再通过碰撞电离使等离子体中的自由电子和离子的密度增加,从而导致连续光谱辐射的增强.由于等离子体中的自由电子比其中的原子、分子、离子更容易吸收任意波长的激光能量(通过逆韧致过程)故连续光谱的增强明显大于线状光谱.这里,难

以直接解释的实验结果是,在较大的作用激光束延时下(即在激光大气等离子体中自由电子密度更低的情形下),同样的作用激光束能量可以造成更大比例的连续光谱辐射增强.从激光大气等离子体辐射机理考虑,我们认为,这是自由电子对作用激光束能量吸收的效率与自由电子的密度和温度有密切关系的表现.

图 5 和表 1 的结果表明,作用激光束对不同种类的光谱成分有不同的影响,反映出被吸收的作用激光束能量在激光大气等离子体中的不同传递过程.对连续光谱的长波部分和短波部分所作的谱线演化实验表明,作用激光束对它们有不同的影响(如图 5(a)(b)和表 1 中相应数据所示),这说明连续光谱的长短波部分应分别产生于不同的物理机理.我们曾指出,激光大气等离子体的短波部分来源于自由电子的韧致辐射,长波部分来源于电子离子的复合辐射^[8,9].上述结果则为我们的这种说法提供了一个实验证据.而且,作用激光束对短波辐射的增强大于长波辐射的结果,进一步说明自由电子的韧致辐射是激光大气等离子体中主要的连续辐射机理.激光大气等离子体中线状光谱的起源为原子、分子、离子的激发态辐射.忽略激光大气等离子体中原子、分子和离子对固定波长作用激光能量的吸收,其激发过程主要通过高温自由电子的碰撞和电子离子的

复合两种机理.作用激光束对原子、分子、分子离子和原子离子谱线的增强可以解释为自由电子在吸收作用激光束能量后,分别通过碰撞激发、碰撞电离、碰撞解离电离或复合过程造成.由于实验测量的 N_2 和 N_2^+ 均来自相同的电子态间的跃迁,故作用激光束对其影响具有大致相同的规律;而 N^+ 谱线则来自许多不同的电子激发态的跃迁,故对作用激光束的响应各不相同(见表 1).激光大气等离子体中的原子(N 和 O)谱线产生于等离子体的衰变期间^[8,9],其激发机理为电子离子的解离复合过程.虽然原子谱线也来自不同的电子态跃迁,但由于电子离子解离复合过程的有效控制,使得作用激光束对它们的

影响具有大致相同规律性.所有这些结果都反映出作用激光束所提供的能量在激光大气等离子体中有不同的传递途径和不同的传递效率.

从表 1 可见,对所有光谱成分而言,除个别情形外作用激光束的影响都是使其衰变时间有不同程度的延长,个别可延长两倍以上.等离子体谱线的衰变时间可大于其辐射寿命的情况已有报道^[15],这是激光大气等离子体在衰变期间存在着复杂能量传递和消散过程的表现.而表 1 的实验结果表明,在何时向何态注入能量可以使激光大气等离子体的衰变维持更长的时间,从而为人为地改变激光大气等离子体的衰变过程的技术提供了实验依据.

- [1] Meyand R G , Haught A F 1963 *Phys. Rev. Lett.* **11** 401 (in Chinese) [李小银、林兆祥、龚顺生等 2004 光学学报 **24** 1051]
- [2] Grey-Morgan C 1975 *Rep. Prog. Phys.* **38** 621
- [3] La Fontaine B , Vidal F , Comtois D *et al* 1999 *IEEE Trans. Plas. Sci.* **27** 688
- [4] Radzieski L J , Cremers D A , Hoffman N M 1983 *Anal. Chem.* **55** 1246
- [5] Preiedhorsky W , Lier D , Day *et al* 1981 *Phys. Rev. Lett.* **47** 1661
- [6] Shigemori K , Nakai M , Azechi H *et al* 2000 *Phys. Rev. Lett.* **84** 5331
- [7] Keeler D , Jeng S M , Welle R 1987 *Acta Astronautica* **15** 367
- [8] Lin Z X , Li X Y , Gong S S *et al* 2003 *Spectroscopy and Analysis* **23** 421 (in Chinese) [林兆祥、李小银、龚顺生等 2003 光谱学与光谱分析 **23** 421]
- [9] Li X Y , Lin Z X , Gong S S *et al* 2004 *Acta Optica Sinica* **24** 1051
- [10] Lu X , Xin T T , Li Y J , Zhang J 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 3404 (in Chinese) [鲁 欣、奚婷婷、李英俊、张 杰 2004 物理学报 **53** 3404]
- [11] Hao Z Q , Zhang J , Li Y T *et al* 2005 *Applied Physics b-Lasers and Optics* **80** 627
- [12] Keefer D R 1989 *Laser-sustained Plasmas , in Laser-induced Plasma and Applications* , L. J. Radziemski and D. A. Cremers , Eds New York , Marcel Dekker , Inc) 169—203
- [13] Raizer YU P 1980 *Sov. Phys. Usp.* **23** 789
- [14] Bekefi G 1966 *Radiation Processes in Plasmas* (New York , Wiley)
- [15] Armstrong R A , Lucht R A , Rawlin W T 1983 *Applied Optics* **22** 1573

Spectroscopic study on the air plasma induced by delayed dual laser pulses^{*}

Lin Zhao-Xiang¹⁾ Wu Jin-Quan¹⁾ Gong Shun-Sheng²⁾

¹ *College of Electrics and Information Engineering, South-Central University for Nationalities, Wuhan 430074, China*

² *Wuhan Institute of Physics and Mathematics, Chinese Academy of Sciences National*

Key Lab of Magnetic Resonance and Atomic Physics, Wuhan, 430071, China

(Received 7 July 2005; revised manuscript received 23 March 2006)

Abstract

By using a two laser beam method, the spectra of laser-induced air plasmas (LIAP) were studied experimentally. Two laser beams of a laser were used in the experiment. One of the beams was used to create the plasmas, which is called the ionizing-laser-beam (ILB), and the other beam was used to give influence to the plasmas, called action-laser-beam (ALB). This paper reports the experimental results and give a preliminary analysis of the modifications to the spectral characteristics due to the influence of the ALB. The experimental results indicated that the total spectral intensity of laser-induced air plasmas increased obviously under the action of the ALB. The increment of continuous spectra was greater than that of the line spectra; the increment of the short wavelength band was greater than that of the long wavelength band. The longer the delay-time of ALB behind the ILB, the larger the increase of spectra intensities. There is no threshold for the ALB to increase the laser-induced air plasmas spectral intensity. The results also showed that besides increasing the intensity, the decay-time for most of lines would increase under the influence of ALB. The preliminary analyses indicated that the results may be caused by electrons in the plasma which transfer their energy absorbed from the ALB via different routs with different efficiencies. These results provides some new sight into the microscopic mechanisms of the decay of laser-induced air plasmas, and also provides some experimental evidences for prolonging the decay-time of laser-induced air plasmas for some technical applications.

Keywords: laser-induced air plasma, dual laser beam, plasmas spectra, spectral temporal development

PACC: 5240, 5150, 5200

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 50636010), and the Natural Science Foundation of Hubei Province, China (Grant No. 2005ABA312).