

飞秒激光空气等离子体发射光谱的实验研究*

朱竹青¹⁾ 王晓雷^{2)†}

1) (南京师范大学物理科学与技术学院, 江苏省光电技术重点实验室, 南京 210046)

2) (南开大学现代光学研究所, 光电信息技术科学教育部重点实验室, 天津 300071)

(2010年9月2日收到; 2011年2月28日收到修改稿)

对强飞秒激光聚焦在空气中所激发的等离子体的发射光谱进行了实验研究. 结果表明, 光谱特征表现为短波段(截至波长为 340 nm)强烈的连续谱和长波段(波长在 800 nm 附近)强度相对较低的线光谱. 在脉冲宽度(50 fs)保持不变而不断调节激光脉冲能量时, 等离子体光谱形状的特征基本相似; 当激光脉冲能量(1 mJ)保持不变而脉冲宽度从 50 fs 增加至 500 fs 和 1 ps 时, 连续谱的峰值(500 nm)显得格外突出, 并开始呈现出线光谱特征.

关键词: 飞秒激光, 激光空气等离子体, 发射光谱, 线光谱

PACS: 52. 50. - b, 42. 79. - e, 52. 70. Kz

1. 引言

激光等离子体光谱在气体、液体及固体材料成分分析中具有重要作用^[1-4], 一直以来被科学工作者所关注, 其研究内容已包括大气环境的影响^[5]、光谱的时间演化与等离子体通道寿命^[6-11]以及超连续谱^[12,13]等等. 在飞秒激光出现后, 激光功率已经可以达到 10^{14} W 左右, 在这样强的激光场辐照下, 电离机制已由最初的多光子电离和碰撞电离演变成场致电离和隧道电离, 因此所形成的等离子体特征就有所区别, 其复合机制也不相同. 目前, 通过对飞秒激光空气等离子体发射光谱的研究可以更好地对此进行描述.

尽管已有研究报道了飞秒激光气体等离子体的连续谱和线光谱两者之间的时间特性^[14,15], 但对它们的能量分布及其对比研究的报道却不多. 不仅如此, 不同实验条件下的光谱信息也需要被呈现以便定量地控制整个气体等离子体的辐射过程, 包括连续谱的范围以及连续谱与线光谱之间的能量分配等. 本文报道了在不同激光参数条件下所获得的空气等离子体侧向发射光谱的特征分布.

2. 实验装置

实验采用啁啾脉冲放大的掺钛蓝宝石飞秒激光系统, 在恒温、恒压(1×10^5 Pa)及百级超净的实验室中完成. 系统技术指标如下: 脉冲宽度从 50 fs 到 22 ps 可调谐, 最大单脉冲能量为 2 mJ, 脉冲序列重复频率为 1 kHz, 中心波长为 800 nm. 实验光路如图 1 所示.

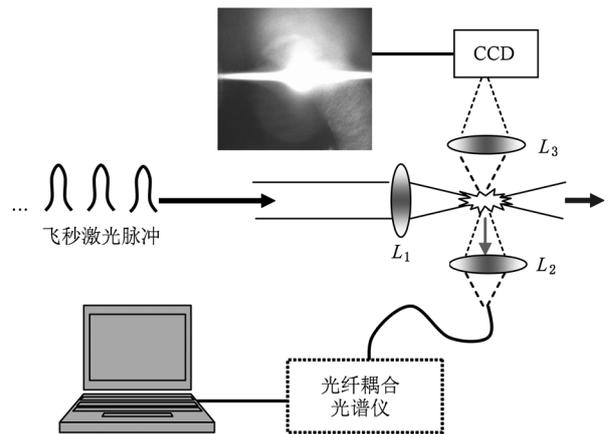


图 1 实验光路示意图

在实验室通常大气环境下(气压 $P = 1 \times 10^5$

* 国家自然科学基金(批准号:10904079)、江苏省光电技术重点实验室基金(批准号:1640703061)和江苏省高等学校研究生科研创新计划(批准号:CX09B-308Z)资助的课题.

† 通讯联系人. E-mail: wangxiaolei@nankai.edu.cn

Pa), 单脉冲能量为 1 mJ、脉冲宽度为 50 fs、重复频率为 1 kHz 的脉冲激光经 $f=5$ cm 透镜聚焦在空气中激发等离子体, 相应的聚焦点光束半径 ($1/e^2$) 约为 $2.5 \mu\text{m}$, 光强约为 10^{17} W/cm^2 , 激光的偏振方向为水平方向 (平行于实验平台). 等离子体区域侧向 (垂直于激光入射方向) 辐射出的光信号被数值孔径为 0.4、放大倍数为 25 的物镜 L_2 收集到 SD2000 型光谱仪的光纤耦合器探头上. 光谱仪与计算机相连, 显示器上实时显示测量到的光谱. 光谱探测范围分别为 200—900 nm 和 500—1200 nm 两个通道所采集到的光谱信号均被计算机存贮. 同时, 我们利用与 L_2 规格相同的物镜 L_3 将等离子体信号成像到电荷耦合器件 (CCD) 的探测面上, 从而可实时观察等离子体的空间分布.

3. 实验结果及分析

3.1. 脉冲宽度为 50 fs、单脉冲能量为 1 mJ 的等离子体光谱

实验中, 我们首先对脉冲宽度为 50 fs、单脉冲能量为 1 mJ 条件下的等离子体光谱进行了研究, 所得结果如图 2 所示. 在这种聚焦条件下, 被激发的空气等离子体的光辐射信号很强, 实验中光谱仪的数据采集积分时间选为 30 ms, 两个通道的数据一并示于图 2 中. 从图 2 可以看出, 等离子体侧向发射光谱的特征表现为强烈的连续谱和分立的线光谱共存.

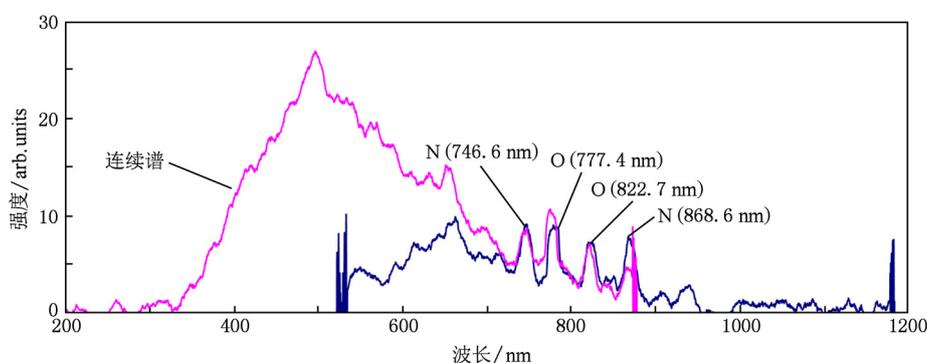


图 2 空气等离子体的侧向发射光谱 激光脉冲宽度为 50 fs, 单脉冲能量为 1 mJ

在强大的激光辐照下, 空气分子首先被电离成正离子分子, 并继续离解成为原子和正离子原子. 一旦这个过程发生, O 原子和 N 原子便通过多光子效应和隧道效应被高度电离. 由于飞秒激光脉冲与空气 (气压 $P=1 \times 10^5$ Pa) 的相互作用过程中一般不涉及到碰撞电离效应 (碰撞时间约为 ps 量级), 因此一价的 N 离子或 O 离子很难会被继续电离成二价或高价离子. 在激光脉冲过后, 处于自由态的电子通过碰撞或扩散等行为又与离子碎片相复合, 在此过程中自由电子将失去其能量发出光辐射, 形成连续谱. 图 2 的实验结果表明, 连续谱的峰值出现在 497 nm 处, 它提示在离子与自由电子的复合过程中, 具有形成该谱线所对应的动能值的电子在所有电子中被俘获的概率最大. 另外, 连续谱的光谱范围在短波段延伸到了 340 nm, 它对应着复合时所俘获的电子所具有的最高动能.

线光谱是原子内部激发态能级之间的电子跃

迁所形成的. 实验中观察到的这些线光谱分别是 O 和 N 的原子线, 依次为 N (746.6 nm), O (777.4 nm), O (822.7 nm) 和 N (868.6 nm). 我们注意到, 这些分立的谱线全部分布在 800 nm 附近, 而这恰恰是我们所用的飞秒激光器的中心波长. 我们对这几条线光谱进行了认证, 即给出了各条线状谱线所对应的跃迁能级对. 波长位于 777.4 和 822.7 nm 处的谱线应该是 O 原子光谱, 相应的跃迁能级对为 $3p(^5P) \rightarrow 3s(^5S^0)$ 和 $3p(^3D) \rightarrow 3s(^3D^0)$; 波长位于 746.6 和 868.6 nm 处的谱线应该是 N 原子光谱, 相应的跃迁能级对为 $3p(^4S^0) \rightarrow 3s(^4P)$ 和 $3p(^4D^0) \rightarrow 3s(^4P)$. 其中 N 原子光谱的两条谱线来自相同的跃迁末态, 根据光谱仪所测强度, 这两个跃迁能级的比值为 9.109/7.721.

实验结果显示, 连续谱的能量明显高于线光谱, 这与文献 [16] 报道的低激光辐照强度 ($2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$) 下的等离子体光谱特征明显不同, 后者表现出更明显的线光谱特征, 而连续谱相对较弱. 在

10^{17} W/cm^2 和 $2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 两种激光强度下等离子体发射光谱的这种差异,揭示了连续辐射和线辐射两种复合机制在高温等离子体和低温等离子体复合机制中各自所占比重的差异.

3.2. 不同脉冲能量下的等离子体光谱

在其他实验条件不变的情况下(脉冲宽度 t 为 50 fs, 光谱数据采集积分时间为 30 ms, 透镜 L_1, L_2 和 L_3 不变), 通过改变激光的脉冲能量来测试等离子体光谱随能量的变化规律. 图 3 给出了单脉冲激

光能量 E 为 1, 0.74, 0.5 和 0.27 mJ 下的光谱(这里只列出了光谱仪单通道(200—900 nm)的数据, 从 900 nm 往长波延伸的光谱数据值很小, 故将其忽略). 图 3 中飞秒激光放电点的激光辐照强度峰值从最高的 10^{17} W/cm^2 变为最低的 $2.7 \times 10^{16} \text{ W/cm}^2$. 结果表明, 四个不同能量下的光谱特征并没发生太大变化, 连续谱的强度仍然高于线光谱, 但连续谱的短波截止频率有所增加. 随着激光能量的降低, 等离子体放电强度迅速减小, 光谱仪探测的光谱信号强度变弱.

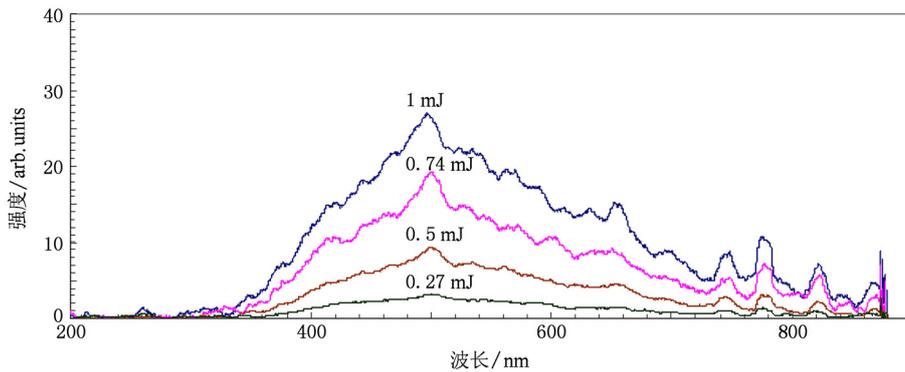


图 3 脉冲宽度为 50 fs 时不同激光能量下的空气等离子体发射光谱

为了定量地研究不同激光能量下的等离子体光谱强度的变化, 我们将整个光谱面积 S (即探测到的光谱信号所覆盖的面积, 也就是所有光谱强度的叠加) 随单脉冲激光能量 E 的变化曲线示于图 4 中. 从图 4 可以看到, 光谱信号对激光能量的依赖关系近似于指数函数. 假设在激光能量降为空气电离阈值时光谱信号刚好消失(光谱面积 S 接近于零), 则根据图 4 给出的曲线所拟合出的近似函数关系为

$$S = 649.73(E - E_{th})^{1.67},$$

其中 E_{th} 为击穿阈值能量. 这一关系表示了探测到光谱信号强度(在脉冲宽度 t 为 50 fs 时)对激发光单脉冲能量的变化关系的实验规律, 指数值 1.67 具体表明了光谱信号强度随激发光单脉冲能量变化的快慢程度, 近似地表明了等离子体强弱与激发光能量的关系. 在这里 E_{th} 约为 0.01 mJ, 对应的光强为 10^{15} W/cm^2 , 该结果略微高于文献[17]报道的 $8.7 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$.

3.3. 不同脉冲宽度下的等离子体光谱

保持激光单脉冲能量 1 mJ 不变的情况下, 采用改变飞秒激光放大系统中压缩器的等效光栅对间距引入啁啾从而拓展脉冲宽度的方法, 将激光的脉

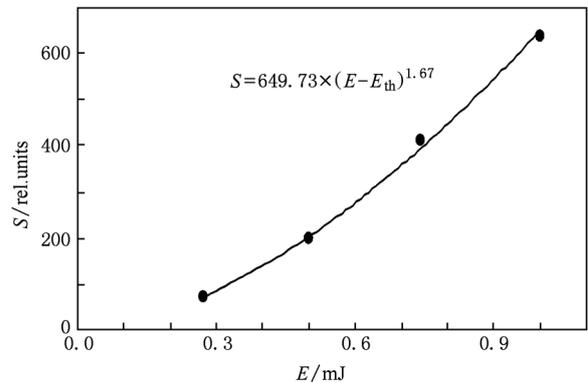


图 4 脉冲宽度为 50 fs 时不同激光能量下的光谱面积

冲宽度 t 从 50 fs 调到 500 fs 和 1 ps, 测量了脉冲宽度 t 在 500 fs 和 1 ps 两种情况下的等离子体侧向光谱强度, 所得结果如图 5 所示.

由于脉冲宽度的增加, 相应的激光强度随之下降, 所激发的等离子体放电强度变弱, 因此对于脉冲宽度 t 为 500 fs 和 1 ps 的激光, 光谱仪的积分时间分别选为 60 和 120 ms 以增强探测到的光谱信号, 同时还能够提高信噪比. 与脉冲宽度 $t = 50 \text{ fs}$ 时的光谱(图 2)相比, 此时长波段附近分立的线光谱已经不明显, 而连续谱依然突出. 在连续谱中, 在

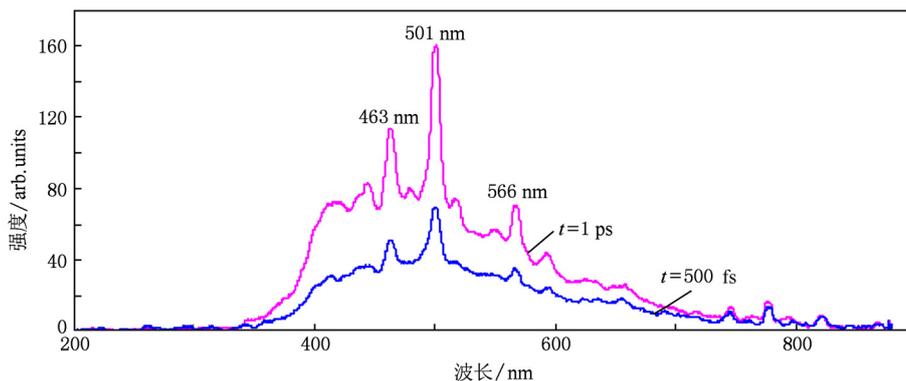


图5 激光脉冲宽度 t 分别为 500 fs 和 1 ps 时激发的空气等离子体发射光谱

500 nm 附近出现了三个明显的峰,开始呈现出了线光谱的特征,这一现象在脉冲宽度 $t = 50$ fs 时的光谱中没有发现. 这三个峰所对应的波长依次为 463, 501 和 566 nm, 其中位于 501 nm 处的谱强度最高. 我们初步认为这可能是 O 和 N 的离子分立谱(考虑存在光谱的展宽), 其中波长位于 463 nm 处的谱线应该是 O_2^+ 离子光谱, 相应的跃迁能级对为 $A^2\Pi_u \rightarrow X^2\Pi_g$; 波长位于 501 和 566 nm 处的谱线应该是 N^+ 离子光谱, 相应的跃迁能级对分别为 $3d(^3P^0) \rightarrow 3p(^3S)$ 和 $3p(^3D) \rightarrow 3s(^3P^0)$. 这表明, 随着脉冲宽度的增加, 激光的峰值功率有所下降, 相应的等离子体发射的连续谱能量下降, 与此同时, 附着在连续谱中的 O 和 N 的离子谱被显现了出来.

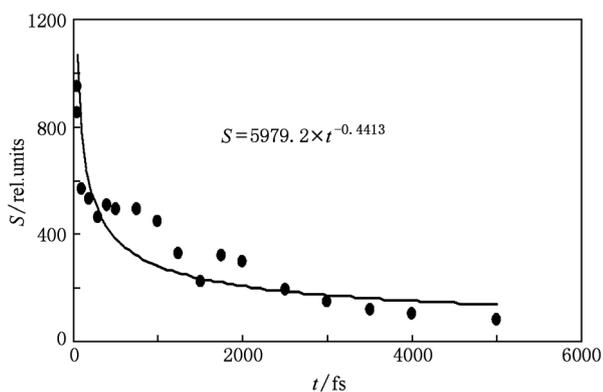


图6 脉冲宽度 t 为 50 fs—5 ps 时的等离子体光谱面积

此外, 我们在保持单脉冲能量 1 mJ 不变的情况下, 依然通过引入啁啾的方式将激光脉冲宽度 t 从 50 fs 连续调节到 5 ps, 获得了一系列不同脉冲宽度下的光谱分布数据, 其中光谱面积 S 与脉冲宽度 t 的对应关系示于图 6. 由图 6 可见, 光谱面积从脉冲宽度 $t = 50$ fs 时的 950 下降到了脉冲宽度 $t = 5$ ps 时

的 84, 即在激光能量不变但脉冲宽度增加 100 倍的情况下, 其光谱覆盖面积降低了约 9/10. 根据图 6 的数据, 拟合获得的光谱面积与脉冲宽度之间的函数关系为

$$S = 5979.2t^{-0.4413},$$

其中 t 的范围为 50 fs—5 ps. 这一函数关系表明了探测到的光谱信号强度随激发光脉冲宽度变化的实验规律, 指数值 -0.4413 具体表明了光谱信号强度随脉冲宽度变化的快慢程度, 近似地表明了等离子体强弱与激发光脉冲宽度的关系.

4. 结 论

本文实验研究了掺钛蓝宝石激光放大系统产生的飞秒激光的脉冲宽度、能量等参量对空气等离子体发射谱的影响, 包括脉冲宽度为 50 fs、单脉冲能量为 1 mJ、脉冲宽度为 50 fs、不同脉冲能量以及单脉冲能量为 1 mJ、不同脉冲宽度(分别为 500 fs 和 1 ps)这三种情况下的等离子体光谱的特征分布, 同时还给出了光谱强度与脉冲能量以及脉冲宽度之间的实验关系式. 光谱探测范围为 200—900 nm 和 500—1200 nm 的两个通道所采集到的信号同时被计算机存贮. 实验得到的主要结论如下: (1) 在激光脉冲宽度为 50 fs、单脉冲能量为 1 mJ 时所产生的等离子体光谱中, 主要特征表现为连续谱和分立的线光谱共存, 其中连续谱的范围为 340—740 nm, 线光谱是 N 和 O 的原子光谱 N(746.6 nm), O(777.4 nm), O(822.7 nm) 和 N(868.6 nm) 均位于激发光的中心波长 800 nm 附近, 并且连续谱的强度明显高于线光谱. (2) 保持脉冲宽度为 50 fs 不变, 单脉冲能量分别为 1, 0.74, 0.5 和 0.27 mJ 时所激发的等离子体光谱特征基本不变, 连续谱的强度仍然高于

线光谱,但连续谱的短波截止频率有所增加. 光谱信号面积 S (在脉冲宽度为 50 fs 时) 与激光能量 E 的实验关系为 $S = 649.73(E - E_{th})^{1.67}$. (3) 保持单脉冲能量为 1 mJ 不变,脉冲宽度分别为 500 fs 和 1 ps 时所激发的等离子体光谱表明,随着脉冲宽度的增加,长波段附近的线光谱已经不明显,而连续谱

依然突出. 连续谱在 463,501 和 566 nm 处出现了三个明显的峰,呈现出了线光谱的特征. 相应的光谱信号面积 S 与脉冲宽度 t 之间的实验关系为 $S = 5979.2t^{-0.4413}$.

感谢朱晓农教授在实验方面对本文工作的帮助.

- [1] Radziemski L J, Cremers D A 1989 *Laser-induced Plasmas and Applications* (Boca Raton: CRC) p295
- [2] Geertsen C, Mauchien P 1995 *Collection in Application of Particle and Laser Beams in Materials Technology* (Netherlands: Kluwer) p237
- [3] Telle H H 1996 *Proc. SPIE* **2730** 160
- [4] Sattmann R, Monch I, Krause H, Noll R, Couris S, Hatziaopoulou A, Mavromanolakis A, Fotakis C, Larrauri E, Miguel R 1998 *Appl. Spectrosc.* **52** 456
- [5] Yalcin S, Crosley D R, Smith G P, Faris G W 1999 *Appl. Phys. B* **68** 121
- [6] Vadillo J M, Milan M, Laserna J J 1996 *J. Anal. Chem.* **355** 10
- [7] Borghese A, Merola S S 1998 *Appl. Opt.* **37** 3977
- [8] Lin Z X, Li X Y, Cheng X W, Li F Q, Gong S S 2003 *Spectrosc. Spect. Anal.* **23** 421 (in Chinese)[林兆祥、李小银、程学武、李发泉、龚顺生 2003 光谱学与光谱分析 **23** 421]
- [9] Li X Y, Lin Z X, Liu Y Y, Chen Y Q, Gong S S 2004 *Acta Opt. Sin.* **24** 1051 (in Chinese)[李小银、林兆祥、刘煜炎、陈扬铨、龚顺生 2004 光学学报 **24** 1051]
- [10] Lu X, Xi T T, Li Y J, Zhang J 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 3404 (in Chinese)[鲁欣、奚婷婷、李英竣、张杰 2004 物理学报 **53** 3404]
- [11] Lin Z X, Wu J Q, Gong S S 2006 *Acta Phys. Sin.* **55** 5892 (in Chinese)[林兆祥、吴金泉、龚顺生 2006 物理学报 **55** 5892]
- [12] Corkum P B, Rolland C 1986 *Phys. Rev. Lett.* **57** 2268
- [13] Brodeur A, Chin S L 1998 *Phys. Rev. Lett.* **80** 4406
- [14] Sirven J B, Bousquet B, Canioni L, Sarger L 2004 *Spectrochim. Acta B* **59** 1033
- [15] Baudelet M, Guyon L, Yu J, Wolf J P 2006 *J. Appl. Phys.* **99** 084701
- [16] Zhu X N, Fu R L 2003 *Proc. SPIE* **4914** 58
- [17] Wang X L, Zhang N, Zhao Y B, Li Z L, Zhai H C, Zhu X N 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 354 (in Chinese)[王晓雷、张楠、赵友博、李智磊、翟宏琛、朱晓农 2008 物理学报 **57** 354]

Experimental study on emission spectra of air plasma induced by femtosecond laser pulses*

Zhu Zhu-Qing¹⁾ Wang Xiao-Lei^{2)†}

1) (*Key Laboratory of Optoelectronic Technology of Jiangsu Province, School of Physical Science and Technology, Nanjing Normal University, Nanjing 210046, China*)

2) (*Key Laboratory of Optoelectronic Information Science and Technology of Ministry of Education, Institute of Modern Optics, Nankai University, Tianjin 300071, China*)

(Received 2 September 2010; revised manuscript received 28 February 2011)

Abstract

The emission spectra produced in ambient air with focused strong femtosecond laser pulses are studied experimentally. The results show the emission spectrum presents the short-wavelength continuum spectrum with stronger intensity (cutoff wavelength 340 nm) and long-wavelength line spectrum with less weak intensity (near 800 nm). A similar spectrum shape can be acquired with fixed pulse width 50 fs and adjustable laser pulse energy. When the pulse energy is 1 mJ and the pulse width increases from 50 fs to 1 ps, the peak value of continuum spectrum located in 500 nm wavelength becomes strong and gradually presents the line spectrum characteristics.

Keywords: femtosecond laser pulses, laser-induced air plasma, emission spectra, line spectrum

PACS: 52.50.-b, 42.79.-e, 52.70.Kz

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 10904079), the Foundation of Key Laboratory of Optoelectronic Technology of Jiangsu Province, China (Grant No. 1640703061) and the Scientific Research Innovation Program for the Graduate Students in Institution of Higher Education of Jiangsu Province, China (Grant No. CX09B-308Z).

† Corresponding author. E-mail: wangxiaolei@nankai.edu.cn