

## 空气中飞秒激光等离子体荧光辐射光谱研究\*

郭凯敏<sup>1)2)</sup> 高勋<sup>1)</sup> 郝作强<sup>1)</sup> 鲁毅<sup>2)</sup> 孙长凯<sup>1)</sup> 林景全<sup>1)†</sup>

1)(长春理工大学理学院, 长春 130022)

2)(包头师范学院物理科学与技术学院, 包头 014030)

(2011年6月3日收到; 2011年10月18日收到修改稿)

系统地研究了不同聚焦条件下飞秒激光空气等离子体的荧光辐射特性以及空间演化情况. 在紧聚焦情况下, 由于焦点附近比较高的激光强度以及比较高的电子密度, 辐射光谱表现为连续谱和线状原子光谱的叠加. 在弱聚焦情况下, 辐射光谱主要由很多分子线谱组成, 而没有观测到连续谱的产生. 还研究了光谱谱线强度随激光传输距离的演化情况, 结果显示, 光谱谱线的强度变化在一定程度上间接反映了等离子体细丝的演化情况.

**关键词:** 飞秒激光, 等离子体细丝, 荧光光谱, 光学击穿

**PACS:** 52.38. Hb

## 1 引言

高功率飞秒激光脉冲在空气中传输时, 由于非线性克尔自聚焦作用以及其产生的空气等离子体的散焦作用的动态平衡, 会使激光脉冲在空气中成丝传输, 从而在激光脉冲过后, 在其后面留下随时间动态演化的等离子体细丝<sup>[1]</sup>. 一般来讲, 细丝的直径约为 100  $\mu\text{m}$ , 电子密度大约  $10^{15}$ — $10^{18}$   $\text{cm}^{-3}$ , 电子温度大约为 5000 K, 属于低温等离子体, 其辐射的光谱是一种干净的荧光光谱, 在元素的分析及鉴定等领域有着非常广泛的应用.

研究人员已经对超短脉冲激光空气等离子体细丝的荧光辐射光谱进行了广泛的研究<sup>[2-10]</sup>. Gibson 等人利用中心波长为 248 nm 的亚皮秒紫外激光脉冲与氮气作用发现了内层电子跃迁的 55.8 nm 辐射带<sup>[11]</sup>. Talebpour 等观测到空气中等离子体细丝在 330—470 nm 范围内  $\text{N}_2^+$  第一负带系和  $\text{N}_2$  第二正带系带头, 并研究了两者对气压的依赖性<sup>[3]</sup>. Bernhardt 等通过 Stark 加宽的中心为 777.4 nm 的氧原子三线对细丝光谱进行了分析<sup>[9]</sup>. Zhang 和 Hao 等分别研究了等离子体细丝荧光辐射中 383.8 nm 和 504.5 nm 谱线的时间演化, 并以此反映细丝的寿命<sup>[12,13]</sup>. Liu 等研究了空气

中多光子/隧道电离和成丝的竞争, 并发现两者在不同聚焦条件下光谱的不同<sup>[14]</sup>. 然而, 飞秒激光脉冲在空气中诱导光学击穿及成丝情况下所辐射光谱还缺乏细致的研究, 本文将使用具有不同焦距的聚焦透镜对飞秒激光脉冲在大气中进行聚焦, 从而形成不同类型的激光传输: 空气击穿和激光空气成丝, 进而对产生的等离子体辐射光谱进行了分析和空间分辨测量, 提供了一种诊断等离子体细丝的方法.

## 2 实验装置

实验使用的美国 Coherent 公司生产的啁啾脉冲放大激光系统 (Hydra-25F), 该系统可以输出单脉冲能量 25 mJ、重复频率 10 Hz、中心波长 800 nm 和脉宽 100 fs 的激光脉冲. 实验中输出光束直径为 1.6 cm (强度的  $1/e^2$ ), 使用的脉冲能量为 20 mJ, 在经过焦距分别为 5, 20 和 50 cm 的透镜分别聚焦之后, 引起空气不同程度的电离. 然后, 在垂直激光传输方向使用光纤光谱仪 (SpectraPro-2500i) 探测等离子体的辐射光信号. 光谱仪使用了 150 刻线的光栅, 具有优于 0.75 nm 的光谱分辨率, 另外, 每个光谱的测量都做了 10 次信号的平均. 光谱仪光纤探头固定在平移台上, 沿激光传输方向

\* 国家自然科学基金 (批准号: 11074027, 60978014, 61178022), 吉林省科技厅基金 (批准号: 20100521, 20100168, 20111812), 吉林省教育厅基金 (批准号: [2009]40), 长春市科技局国际合作项目 (批准号: 09GH01) 和光电信息控制和安全技术重点实验室基金 (批准号: 9140c150302110c1501) 资助的课题.

† E-mail: linjingquan@cust.edu.cn

平行移动, 通过精确移动光纤探头获得等离子体荧光光谱的空间分布.

### 3 实验结果与讨论

图 1 为焦距  $f = 5$  和  $50$  cm 时, 在  $250\text{--}950$  nm 波段的激光等离子体辐射光谱. 这两种情况下的光谱迥然不同, 当使用  $f = 5$  cm 透镜聚焦时, 光谱表现为较强的连续谱, 仅仅在  $800$  nm 附近分布有几条较强的线谱. 而当  $f = 50$  cm 时, 我们测量到很多线谱, 没有测量到连续光谱. 大部分线谱集中分布在  $280\text{--}450$  nm 范围, 少数几条分布在  $620\text{--}830$  nm 范围, 而在图 1(a) 中, 大部分的线谱淹没在连续谱中, 并且, 在该光谱图中  $800$  nm 附近出现的几条很强的线谱没有在图 1(b) 中出现. 这个结果和已有

的文献结果十分符合 [14].

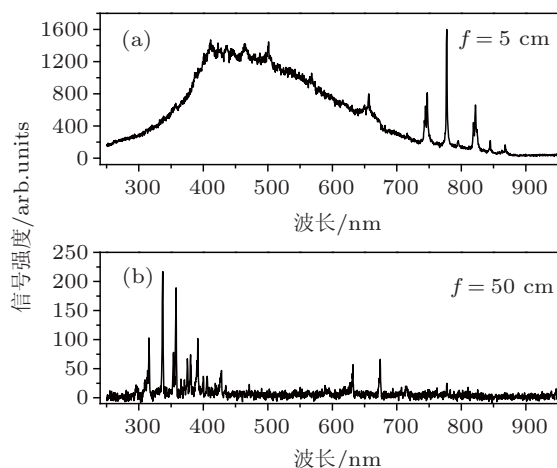


图 1 使用 (a)  $f = 5$  cm 和 (b)  $f = 50$  cm 的透镜聚焦产生的飞秒激光等离子体辐射光谱 (飞秒脉冲能量为  $20$  mJ, 探测位置为焦点位置)

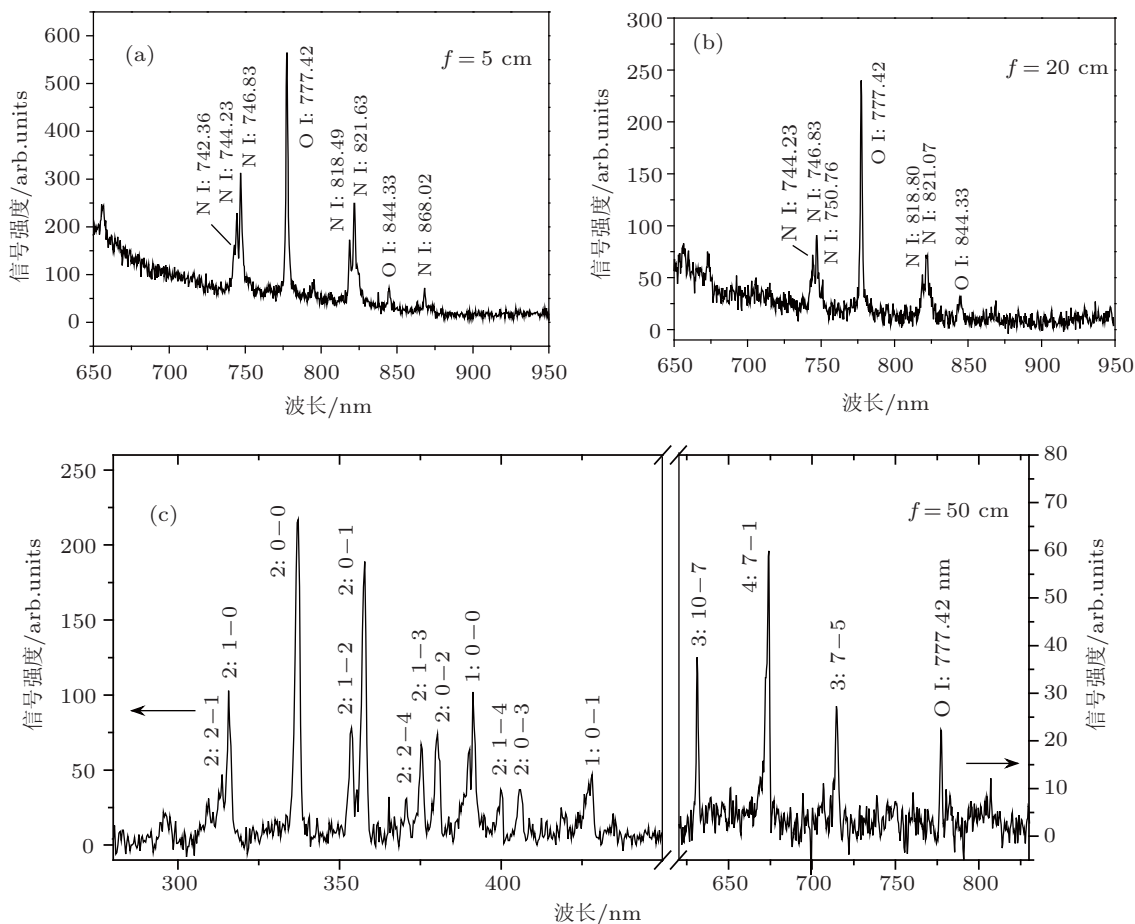


图 2 飞秒激光等离子体荧光辐射光谱. 透镜焦距分别为 (a)  $f = 5$  cm, (b)  $f = 20$  cm 和 (c)  $f = 50$  cm. 激光脉冲能量为  $20$  mJ, 探测位置为焦点位置 (1:  $N_2^+$  第一负带系  $B^2\Sigma_u^+ - X^2\Sigma_g^+$ ; 2:  $N_2$  第二正带系  $C^3\Pi_u - B^3\Pi_g$ ; 3:  $N_2$  第一正带系  $B^3\Pi_g - A^3\Sigma_u^+$ ; 4:  $N_2$  红外余晖带系  $B'^3\Sigma_u^- - B^3\Pi_g$ ; 1 和 2 为振动能级跃迁, 3 和 4 为转动能级跃迁)

我们进而对荧光光谱进行了分析标定, 图 2 为透镜焦距分别是  $5, 20$  和  $50$  cm 情况下激光等离子体的荧光光谱. 从标定的光谱来看, 使用  $f = 5$

和  $20$  cm 透镜时的谱线均为氮和氧原子辐射的线状谱, 分别为 NI:  $744.23, 746.83$  和  $750.76$  nm, OI:  $777.42$  nm, NI:  $818.49, 821.07$  和  $821.63$  nm, OI:

844.33 nm 和 NI: 868.02 nm. 在  $f = 50$  cm 情况下, 光谱主要是  $N_2$  和  $N_2^+$  的辐射谱, 辐射机理明显不同于上述短焦距情况. 在 280—450 nm 波段, 光谱来源于  $N_2^+$  第一负带系  $B^2\Sigma_u^+ - X^2\Sigma_g^+$  和  $N_2$  第二正带系  $C^3\Pi_u - B^3\Pi_g$  的振动能级跃迁<sup>[2,15]</sup>. 其中,  $N_2^+$  的  $B^2\Sigma_u^+$  激发态是由于多光子电离作用把  $N_2$  内层轨道 ( $\sigma_u 2s$ ) 的一个电子电离出来而形成的, 而  $N_2$  的  $C^3\Pi_u$  激发态的形成机理目前还不很清楚<sup>[2]</sup>. 我们的实验结果显示,  $N_2$  第二正带系振动能级  $\nu: 0-0$  跃迁谱带带头 337.1 nm 的强度最大, 信号/背景比值 (S/B) 达 30:1. 在 620—830 nm 波段, 谱线主要来源于  $N_2$  第一正带系  $B^3\Pi_g - A^3\Sigma_u^+$  和红外余晖带系  $B'^3\Sigma_u^- - B^3\Pi_g$  的转动能级跃迁<sup>[15]</sup>, 其中较强的红外余晖带系跃迁带头 673.79 nm 的信号/背景比值  $> 10:1$ . 同时, 我们也观测到较弱的氧原子 OI: 777.42 nm 谱线, 此谱线来源于  $2s^2 2p^3(4S^0) 3s - 2s^2 2p^3(4S^0) 3p$  跃迁,  $J_k = 2$ <sup>[16]</sup>.

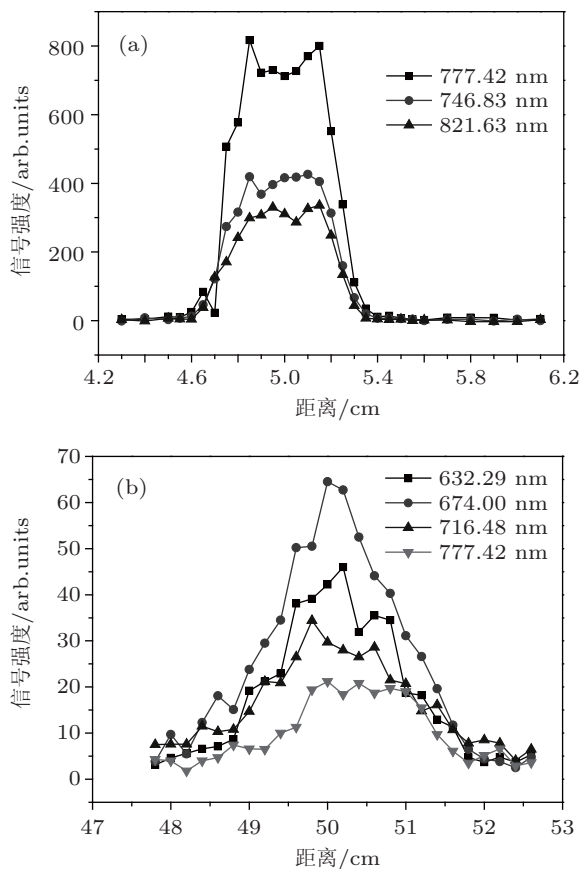


图3 透镜焦距分别为 (a)  $f = 5$  cm, (b)  $f = 50$  cm 时, 激光等离子体荧光光谱中几条谱线的强度随激光传输距离的演化

经过不同焦距的透镜聚焦产生的荧光光谱之所以具有这么大的差别, 主要是因为聚焦之后的激光强度不同. 紧聚焦情况下, 所使用的透镜焦距越小, 焦点位置处的激光强度越大, 这时, 激光强度可

超过  $10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>, 电子密度高达  $3 \times 10^{19}$  cm<sup>-3</sup><sup>[17]</sup>, 而在弱聚焦情况下, 激光强度约为  $4 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>, 电子密度只有  $10^{16}$  cm<sup>-3</sup>. 所以, 紧聚焦情况下, 空气分子被充分电离, 其中有相当一部分分子离子被进一步解离产生原子<sup>[14]</sup>, 并辐射出原子光谱, 与此同时, 由于等离子体密度足够大, 以致电子、原子、离子之间相互的碰撞跃迁概率剧烈增大, 所以辐射出很强的连续光谱. 而在弱聚焦情况下, 激光强度较低, 只有一小部分分子被激发成激发态分子, 或者电离成分子离子, 所以主要辐射光谱为分子光谱.

为了研究等离子体荧光光谱的空间变化规律, 我们分别对  $f = 5$  和 50 cm 焦距下, 等离子体荧光谱线进行了空间分辨测量. 图 3 分别给出了这两种聚焦条件下几条谱线强度随着激光传输距离的演化, 图中大部分谱线的强度变化趋势有较好的一致性. 由于谱线强度是和激光强度、电离势、跃迁概率密切相关的, 谱线强度的演化只能在有限的程度上反映了等离子体的演化. 比如 777.42 nm 谱线, 只有在强聚焦情况下 (图 3(a)), 这条谱线强度才具有很好的信噪比, 而在弱聚焦情况下 (图 3(b)), 激光强度较低, 只有很少的空气分子被电离成原子, 所以这条谱线的强度相对其他谱线尤其是分子谱线的强度来说很弱, 信噪比差, 它的强度演化过程就不能很好地反映等离子体的整体演化过程. 所以, 通过荧光光谱研究等离子体的演化过程时需要挑选合适的谱线, 这样才能更贴切地反映其演化的过程, 或者, 通过测量某一波段内的所有荧光辐射, 来研究细丝的演化过程<sup>[2,10]</sup>. 然而从另一方面来看, 由于特定的谱线来源于特定的能级跃迁, 某些谱线强度的演化, 反映的是等离子体中特定成分随激光传输距离的变化趋势, 例如 777.42 nm 谱线强弱的变化间接反映了等离子体中氧原子密度的变化.

## 4 结论

我们研究了不同聚焦条件下飞秒激光等离子体辐射光谱. 紧聚焦时, 辐射光谱为连续谱和原子谱线的叠加. 而弱聚焦情况下, 光谱发生根本变化, 连续谱消失, 除了较弱的氧原子 OI: 777.42 nm 外, 未探测到其他原子谱线, 光谱主要为分子线谱, 其中在 620—830 nm 波段我们探测到了  $N_2$  第一正带系和红外余晖带系的转动能级跃迁谱带. 这些差异主要是由于不同聚焦条件造成不同量级的激光强度和电子密度引起的. 此外, 我们分析了几条荧光

谱线的强度随激光传输距离的演化, 大部分谱线强度的变化趋势基本一致, 我们可以通过研究某些谱

线强度的演化, 来研究等离子体中特定成分随传输距离的变化.

- 
- [1] Braun A, Korn G, Liu X, Du D, Squier J, Mourou G 1995 *Opt. Lett.* **20** 73
- [2] Talebpour A, Petit S, Chin S L 1999 *Opt. Commun.* **171** 285
- [3] Talebpour A, Abdel-Fattah M, Bandrauk A D, Chin S L 2001 *Laser Phys.* **11** 68
- [4] Gravel J F, Luo Q, Boudreau D, Tang X P, Chin S L 2004 *Anal. Chem.* **76** 4799
- [5] Hao Z Q, Zhang J 2004 *Phys.* **33** 741 (in Chinese) [郝作强, 张杰 2004 物理 **33** 741]
- [6] Xu H L, Daigle J F, Luo Q, Chin S L 2006 *Appl. Phys. B* **82** 655
- [7] Luo Q, Xu H L, Hosseini S A, Daigle J F, Théberge F, Sharifi M, Chin S L 2006 *Appl. Phys. B* **82** 105
- [8] Xu H L, Kamali Y, Marceau C, Simard P T, Liu W, Bernhardt J, Méjean G, Mathieu P, Roy G, Simard J R, Chin S L 2007 *Appl. Phys. Lett.* **90** 1101
- [9] Bernhardt J, Liu W, Théberge F, Xu H L, Daigle J F, Châteauneuf M, Dubois J, Chin S L 2008 *Opt. Commun.* **281** 1268
- [10] Hao Z Q, Zhang J, Yu J, Zhang Z, Zhong J Y, Zang C Z, Jin Z, Wang Z H, Wei Z Y 2006 *Acta Phys. Sin.* **55** 299 (in Chinese) [郝作强, 张杰, 俞进, 张喆, 仲佳勇, 臧充之, 金展, 王兆华, 魏志义 2006 物理学报 **55** 299]
- [11] Gibson G, Luk T S, Mcpherson A, Boyer K, Rhodes C K 1989 *Phys. Rev. A* **40** 2378
- [12] Zhang Z, Lu X, Liang W X, Hao Z Q, Zhou M L, Wang Z H, Liu X, Zhang J 2009 *Opt. Express* **17** 3461
- [13] Hao Z Q, Zhang J, Li Y T, Lu X, Yuan X H, Zheng Z Y, Wang Z H, Ling W J, Wei Z Y 2005 *Appl. Phys. B* **80** 627
- [14] Liu W, Luo Q, Chin S L 2003 *Chin. Opt. Lett.* **1** 56
- [15] Lofthus A, Krupenie P H 1977 *J. Phys. Chem. Ref. Data* **6** 113
- [16] NIST 2007 <http://physics.nist.gov/PhysRefData/ASD/index.html>
- [17] Liu X L, Lu X, Liu X, Xi T T, Liu F, Ma J L, Zhang J 2010 *Opt. Express* **18** 26007

# The fluorescence feature of plasma induced by femtosecond laser pulses in air\*

Guo Kai-Min<sup>1)2)</sup> Gao Xun<sup>1)</sup> Hao Zuo-Qiang<sup>1)</sup> Lu Yi<sup>2)</sup>  
Sun Chang-Kai<sup>1)</sup> Lin Jing-Quan<sup>1)†</sup>

1) (*School of Science, Changchun University of Science and Technology, Changchun 130022, China*)

2) (*School of Physical Science and Technology, Baotou Teachers College, Baotou 014030, China*)

(Received 3 June 2011; revised manuscript received 18 October 2011)

## Abstract

Effects of focusing conditions on femtosecond laser induced plasma fluorescence in air are investigated by using different focal length lenses. Under the tightly focusing condition, the fluorescence spectra are composed mainly of continuous spectrum and line spectra from N and O atoms, which is due to the higher laser intensity and corresponding higher electron density than those in the case of weakly focused laser beam. In the latter case, only line spectra from air molecules are observed. Besides, the intensity of line spectrum as a function of propagation distance is measured, which reveals the evolution of the plasma filaments.

**Keywords:** femtosecond laser, plasma filaments, fluorescence spectra, optical breakdown

**PACS:** 52.38. Hb

---

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11074027, 60978014 and 61178022), the Jilin Commission of Science and Technology (Grant Nos. 20100521, 20100168 and 20111812), the Educational Commission of Jilin Province (Grant No. [2009]40), the International Cooperation projects of Changchun Technology Division (Grant No. 09GH01), and the Science and Technology on Electro-optical Information Security Control Laboratory (Grant No. 9140c150302110c1501).

† E-mail: linjingquan@cust.edu.cn