

脉冲能量对飞秒激光等离子体丝形成的影响

姚爽¹, 宋超², 高勋¹, 林景全¹

¹长春理工大学理学院, 吉林 长春 130022;

²长春理工大学化学与环境工程学院, 吉林 长春 130022

摘要 研究了脉冲能量对飞秒激光等离子体丝形成的影响, 基于荧光光谱法和照相图像法得到脉冲能量对飞秒激光等离子体丝长度和成丝起点的影响规律。实验结果表明: 飞秒激光在大气中传输时, 经透镜聚焦后形成较长的等离子体丝; 随着脉冲能量的增大, 等离子体丝的成丝起点位置向聚焦透镜位置移动, 同时等离子体丝的长度增加; 等离子体丝辐射的 N_2 337 nm 荧光谱线强度峰值位置靠近聚焦透镜, 并且整体荧光光谱强度得到增强; 相比于照相图像法, 荧光光谱法测量得到的等离子体丝长度更加可靠。最后对脉冲能量对等离子体丝起点位置的影响进行了理论解释。

关键词 非线性光学; 飞秒激光等离子体丝; 等离子体丝长度; 荧光光谱; 克尔自聚焦效应

中图分类号 O437 **文献标识码** A

doi: 10.3788/LOP54.121901

Effect of Pulse Energy on Formation of Femtosecond Laser Plasma Filament

Yao Shuang¹, Song Chao², Gao Xun¹, Lin Jingquan¹

¹ School of Science, Changchun University of Science and Technology, Changchun, Jilin 130022, China;

² School of Chemistry & Environmental Engineering, Changchun University of Science and Technology, Changchun, Jilin 130022, China

Abstract The effect of pulse energy on the formation of femtosecond laser plasma filament is studied by the fluorescence spectrum method and the photographic imaging method, and the influence of pulse energy on the length and the starting position of femtosecond laser plasma filament is obtained. The experimental results show that the long plasma filament forms after focusing of lens when the femtosecond laser transmits in the air. As the laser energy is increasing, the starting position of plasma filament moves toward the position of the focusing lens and the plasma filament length increases. The position of the peak intensity of the N_2 337 nm fluorescence spectrum is close to the focusing lens, and the whole fluorescence spectrum intensity increases. Compared with the photographic imaging method, the fluorescence spectrum method has high reliability in the plasma filament length measurement. Finally, the influence of pulse energy on the starting position and the length of plasma filament is explained theoretically.

Key words nonlinear optics; femtosecond laser plasma filament; plasma filament length; fluorescence spectrum; Kerr self-focusing effect

OCIS codes 190.7110; 140.3440; 100.0118

收稿日期: 2017-06-22; **收到修改稿日期:** 2017-07-05

基金项目: 国家自然科学基金(61575030)

作者简介: 姚爽(1991—), 女, 硕士研究生, 主要从事飞秒激光等离子丝及烧蚀土壤等离子体特性方面的研究。

E-mail: yaoshuang011@163.com

导师简介: 高勋(1978—), 男, 博士, 教授, 博士生导师, 主要从事强激光与物质相互作用、激光等离子体膨胀动力学、激光诱导击穿光谱技术及其应用等方面的研究。E-mail: lasercust@163.com(通信联系人)

1 引言

飞秒激光在空气中传输时,其峰值功率产生的克尔自聚焦效应会诱导空气击穿电离,产生等离子体和空气等离子体对光束的散焦效应,当克尔自聚焦效应与等离子体散焦效应达到动态平衡时,便会形成较长的等离子体通道(又称为等离子体丝)^[1]。飞秒激光等离子体丝自1995年被发现以来,受到科研人员的广泛关注,在远距离探测^[2]、激光引雷^[3]、飞秒激光加工^[4-5]等方面有广泛的应用前景。近年来,用于远距离环境污染探测的飞秒激光等离子体丝诱导击穿光谱技术被广泛关注^[6-9],飞秒脉冲激光成丝现象成为当前研究领域的热门话题。一方面,飞秒激光等离子体成丝过程中存在如自聚焦、群速色散及光致电离等复杂的线性过程,这导致飞秒脉冲激光在等离子体丝内传输时发生了复杂的时空演变;另一方面,飞秒等离子体成丝过程中存在超连续辐射、太赫兹辐射以及射频辐射等非线性物理过程^[10-11]。飞秒激光等离子体丝的形成与飞秒激光的波长、脉冲宽度、脉冲能量、发散角及透镜聚焦等条件有关,飞秒激光成丝现象可利用荧光法、声学及阴影法等进行光学诊断。Dharmadhikari等^[12]研究了飞秒激光能量对飞秒激光等离子体丝长度的影响,使形成的等离子体丝长度从几米增加到百米量级。俞进等^[13]利用荧光探测和声学诊断方法研究了飞秒激光等离子体丝的形成过程。Liu等^[14]基于光子荧光法观测了飞秒激光脉冲在空气中传输并形成等离子体丝的过程。Point等^[15]利用横向干涉观测了飞秒激光在空气中形成低密度等离子体丝的过程。

本文利用荧光光谱法和照相图像法研究了脉冲能量对飞秒激光等离子体丝的起点和长度的影响,并对脉冲能量对等离子体丝起点位置的影响进行了理论解释。

2 实验装置

脉冲能量对飞秒激光等离子体丝形成影响的实验装置如图1所示,采用输出中心波长为800 nm、重复频率为1 kHz、脉宽为50 fs的飞秒激光器(Libra-Usp-He型,Coherent公司,美国)输出激光脉冲,经熔石英平凸透镜L1(焦距 $f=500$ mm)诱导击穿空气后形成较长的等离子体丝。等离子体细丝辐射出 N_2 337 nm的荧光光谱信号,在垂直于激光等离子体丝方向上经熔石英透镜L2($f=75$ mm)1:1成像耦合到光纤探头上,由配有增强电荷耦合器件(ICCD)探测器(MAXII型,Princeton Instruments公司,美国,分辨率为 $1024 \text{ pixel} \times 256 \text{ pixel}$)的光栅光谱仪(Spectra Pro500i,Princeton Instruments公司,美国)进行收集。ICCD探测器由飞秒激光器进行触发,探测延时为250 ns,门宽设定为30 ns。采用尼康单反相机(D700型,Princeton Instruments公司,美国)对飞秒激光等离子体丝拍照进行图像采集,相机的曝光时间为 $1/30$ s,光圈值为 $f/3.2$ 。通过800 nm半波片和格兰棱镜组成的能量衰减系统实现输出脉冲能量的改变。实验在1个标准大气压、室温为 25 °C、相对湿度为30%的环境下开展。

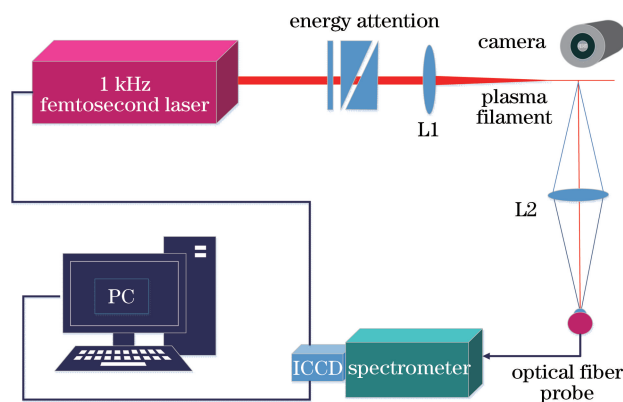


图1 脉冲能量对飞秒激光等离子体丝形成影响的实验装置图

Fig. 1 Experimental setup diagram of pulse energy effect on formation of femtosecond laser plasma filament

3 实验结果与讨论

飞秒激光脉冲诱导电离击穿空气并形成较长的等离子体丝时,等离子体丝内强度为 $10^{13} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$,空气

内分子发生电离击穿,形成的空气等离子体向外辐射出荧光。利用飞秒激光等离子体丝辐射 N_2 337 nm 的荧光光谱强度的空间分布测量等离子体丝的长度^[16]。飞秒激光脉冲能量 $E = 3.27$ mJ,经焦距为 500 mm 的平凸透镜聚焦后形成飞秒激光等离子体丝,飞秒激光等离子体丝不同空间位置处的 N_2 337 nm 荧光光谱如图 2 所示。为了保持 N_2 荧光光谱的实验条件不变,通过移动透镜 L1 的空间位置,实现等离子体丝不同空间位置的 N_2 337 nm 荧光光谱采集。由图 2 可见,等离子体丝距离 L1 460 mm 位置处出现 N_2 337 nm 荧光光谱, N_2 337 nm 荧光光谱在距 L1 460~502 mm 范围内具有较强的谱线强度,并且随着等离子体丝与 L1 距离的增加,等离子体丝内辐射的 N_2 337 nm 荧光光谱强度先增强后减弱,荧光光谱法测量形成的等离子体丝的长度约为 40 mm。

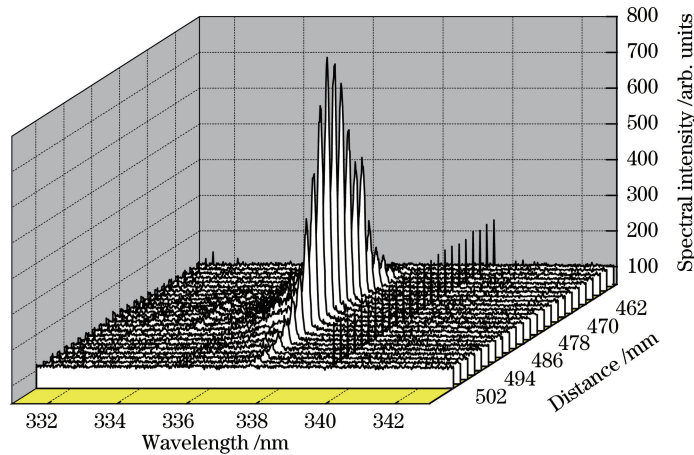


图 2 飞秒激光等离子体丝不同空间位置处的 N_2 337 nm 荧光光谱

Fig. 2 N_2 337 nm fluorescence spectrum of femtosecond laser plasma filament at different space positions

不同脉冲能量的飞秒激光脉冲聚焦形成的等离子体丝辐射的 N_2 337 nm 荧光光谱强度的空间分布如图 3 所示。基于荧光光谱法得到的飞秒激光等离子体丝的起点位置和长度随脉冲能量的变化曲线如图 4 所示。由图可见,随着等离子体丝与透镜距离的增加,飞秒激光等离子体丝内辐射的 N_2 337 nm 荧光光谱强度出现先增强后减弱的变化趋势。随着形成等离子体丝的脉冲能量的增加,等离子体丝辐射的 N_2 337 nm 荧光光谱的空间位置逐渐靠近聚焦透镜,强度峰值位置向聚焦透镜移动,并且整体的荧光光谱强度得到增强。 N_2 337 nm 荧光光谱的出现意味着等离子体丝开始形成,而荧光光谱的消失意味着等离子体丝的形成过程结束。随着作用脉冲能量的增加,空气的克尔自聚焦效应增强^[17],激光光束的非线性克尔自聚焦位置靠近透镜位置,使等离子体成丝起点位置不断向聚焦透镜位置移动,而等离子体成丝终点位置始终在透镜的几何焦点位置,等离子体丝的长度随激光脉冲能量的增加不断增加。等离子体丝形成起点空间位置的移动过程可采用移动焦点模型进行描述,由图 4 可得到理论计算的飞秒激光等离子体丝自聚焦发生溃缩的位置 L_c 随脉冲能量的变化。

图 5 为相机采集到的脉冲能量分别为 1.02, 1.50, 2.02, 2.50, 3.08, 3.27 mJ 时聚焦击穿空气形成的等离子体丝图像。由图可知,随着作用脉冲能量的增加,等离子体丝的起点位置前移,靠近透镜位置,等离子体丝的结束位置几乎不变,等离子体丝的长度随脉冲能量的增加不断变长。从等离子体丝图像中可观察到白色亮带,这是等离子体丝内由四波混频以及自相位调制等非线性过程产生的白光辐射^[18]。随着脉冲能量的增加,等离子体丝内白色亮带的亮度增加,并且在等离子体丝内所处的空间位置向聚焦透镜移动,这与等离子体丝辐射的 N_2 337 nm 荧光光谱强度的演化规律相同。

图 6 为荧光光谱法和照相图像法测量的等离子体丝长度与飞秒激光能量的关系曲线。由图 6 可看出,在透镜焦距 f 为 500 mm 的聚焦条件下,荧光光谱法和照相图像法测量得到的等离子体丝长度均随脉冲能量的增加而增大,但荧光光谱法得到的等离子体丝长度均大于照相图像法测量所得的结果。在脉冲能量为 1.02 mJ 时,荧光光谱法和照相图像法测量得到的等离子体丝长度分别为 14 mm 和 9 mm;在脉冲能量为 3.27 mJ 时,荧光光谱法和照相图像法测量得到的等离子体丝长度分别为 40 mm 和 36 mm。结果表明:随着

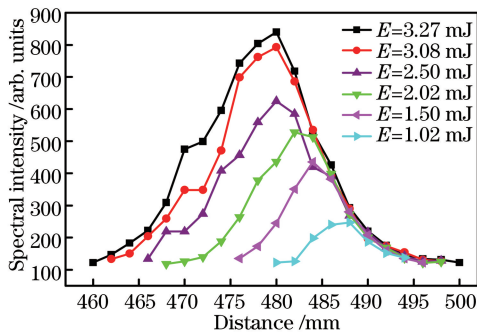


图 3 不同脉冲能量飞秒激光脉冲聚焦形成的等离子体丝辐射的 N₂ 337 nm 荧光光谱强度的空间分布

Fig. 3 Spatial distribution of fluorescence spectral intensity of N₂ 337 nm radiating from focused femtosecond laser pulse with different pulse energies

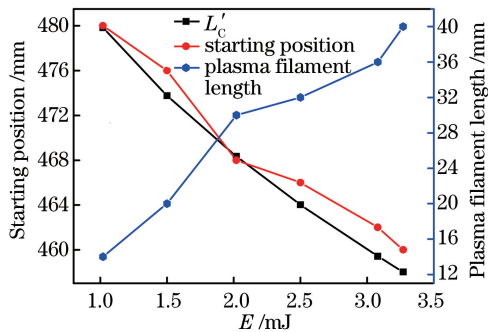


图 4 飞秒等离子体丝起点位置和长度随脉冲能量的变化曲线

Fig. 4 Variation in starting position and length of femtosecond laser plasma filament with pulse energy

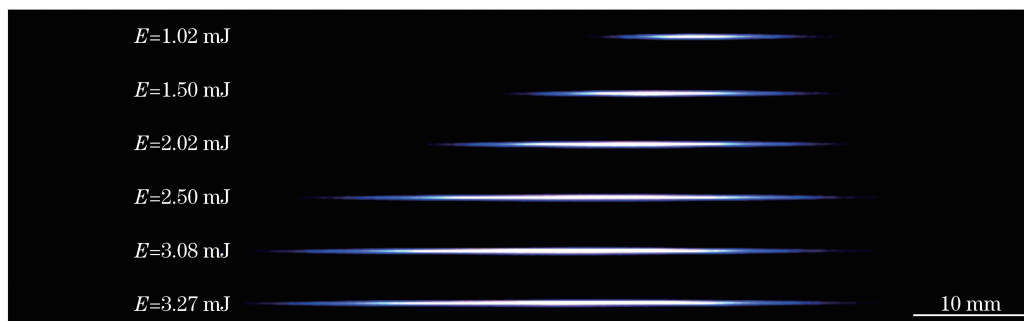


图 5 不同脉冲能量下的等离子体丝图像

Fig. 5 Images of plasma filament under different pulse energies

脉冲能量的增加, 荧光光谱法和照相图像法测量得到的等离子体丝长度之间的差距逐渐变小。荧光光谱法具有高灵敏度, 可对等离子体丝的形成进行快速实时和无破坏性的测量, 且可更加直观地得到等离子体细丝内部不同位置的光谱强度, 为等离子体丝的优化提供了有效的实验依据, 因此利用荧光光谱法测量等离子体丝长度具有较高的可靠性。

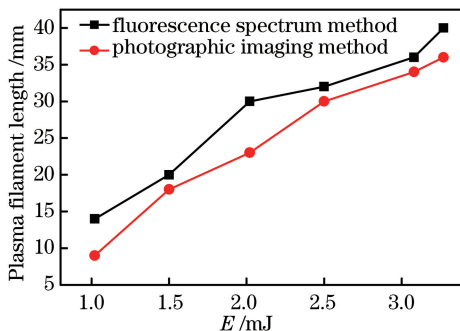


图 6 荧光光谱法和照相图像法测量得到的等离子体丝长度与飞秒激光能量的关系曲线

Fig. 6 Relationship between plasma filament length and femtosecond laser energy measured by fluorescence spectrum method and photographic imaging method

当具有高峰值功率的飞秒激光在空气中传输时, 激光经过空气后, 其折射率会发生变化, 出现非线性克尔自聚焦效应, 并使空气击穿电离形成等离子体, 因此飞秒激光等离子体丝自聚焦发生溃缩的位置 L_c (距离激光输出端口的距离), 即等离子体丝的起点位置, 可表示为^[19]

$$L_c = \frac{0.367k\omega_0^2}{\{[(P_{in}/P_c)^{1/2} - 0.852]^2 - 0.0219\}^{1/2}}, \quad (1)$$

式中 $k = 2\pi/\lambda$ 为波数, $\omega_0 = 3.8 \text{ mm}$ 为束腰半径, P_{in} 为入射激光的功率, $P_c = 3.77\lambda_0^2/(8\pi n_0 n_2)$ 为自聚焦临界功率。当飞秒激光经焦距为 f 的透镜聚焦后, 自聚焦溃缩位置 L'_c 满足

$$\frac{1}{L'_c} = \frac{1}{L_c} + \frac{1}{f}. \quad (2)$$

通过(1)式和(2)式可以计算得到自聚焦溃缩位置 L'_c , 不同激光脉冲能量下的 L'_c 如表 1 所示。

表 1 不同激光脉冲能量下的自聚焦溃缩位置

Table 1 Self-focusing collapse positions under different laser pulse energies

E / mJ	$P_{in} / (10^{10} \text{ W})$	L'_c / mm
1.02	2.04	479.83
1.50	3.00	473.75
2.02	4.04	468.33
2.50	5.00	464.02
3.08	6.16	459.41
3.27	6.54	458.02

由图 4 可以看出, 理论计算得到的自聚焦溃缩位置与 N_2 337 nm 荧光光谱法测量得到的飞秒激光等离子体丝起点位置接近。随着入射飞秒激光功率 P_{in} 的增大, 经透镜聚焦后的等离子体丝自聚焦溃缩位置 L_c 随之减小, 表明随着入射激光能量的增加, 由于克尔自聚焦效应的存在, 使飞秒激光等离子体丝的起点位置向透镜位置移动。实验结果表明, 飞秒激光脉冲能量对激光等离子体丝的形成具有重要影响。

4 结 论

基于荧光光谱法和照相图像法开展了脉冲能量对飞秒激光等离子体丝形成的影响研究。实验结果表明, 随着等离子体丝与透镜位置距离的增大, 等离子体丝内辐射的 N_2 337 nm 荧光光谱强度存在先增强后减弱的变化趋势。随着聚焦形成飞秒激光等离子体丝脉冲能量的增加, 由于存在克尔自聚焦效应, 等离子体丝辐射的 N_2 337 nm 荧光光谱强度的峰值位置向聚焦透镜移动, 并且整体的荧光光谱强度得到增强。利用荧光光谱法与照相图像法观察得到的等离子体丝的形成具有相同的变化规律, 照相图像法观察到的等离子体丝长度偏小。由于荧光光谱法具有高灵敏度, 因此荧光光谱法测得的等离子体丝长度具有较高的可靠性。研究表明, 脉冲能量对飞秒激光等离子体丝的形成具有重要影响。

参 考 文 献

- [1] Yang H, Zhang J, Yu W, *et al.* Long plasma channels generated by femtosecond laser pulses[J]. *Physical Review E*, 2001, 65(1): 016406.
- [2] Defense Technical Information Center. Remote femtosecond laser induced breakdown spectroscopy (LIBS) in a standoff detection regime[R]. Florida: University of Central Florida Orlando School of Optics, 2006: ADA520381.
- [3] Zhang Shichang, Zhang Dongdong, Yan Ping, *et al.* Laboratory simulation of femtosecond laser guided lightning discharge[J]. *Acta Physica Sinica*, 2007, 56(9): 5293-5297.
张适昌, 张东东, 严萍, 等. 飞秒激光引导闪电的模拟实验研究[J]. *物理学报*, 2007, 56(9): 5293-5297.
- [4] Xing Songling, Liu Lei, Zou Guisheng, *et al.* Effects of femtosecond laser parameters on hole drilling of silica glass [J]. *Chinese J Lasers*, 2015, 42(4): 0403001.
邢松龄, 刘磊, 邹贵生, 等. 飞秒激光参数对石英玻璃微孔加工的影响[J]. *中国激光*, 2015, 42(4): 0403001.
- [5] Wang Haozhu, Yang Fenghe, Yang Fan, *et al.* Investigation of femtosecond-laser induced periodic surface structure on molybdenum[J]. *Chinese J Lasers*, 2015, 42(1): 0103001.
王浩竹, 杨丰赫, 杨帆, 等. 飞秒激光在金属钼表面诱导产生纳米量级周期条纹结构的研究[J]. *中国激光*, 2015, 42(1): 0103001.
- [6] Gurevich E L, Hergenröder R. Femtosecond laser-induced breakdown spectroscopy: Physics, applications, and

- perspectives[J]. *Applied Spectroscopy*, 2007, 61(10): 233A-242A.
- [7] Labutin T A, Lednev V N, Ilyin A A, *et al.* Femtosecond laser-induced breakdown spectroscopy[J]. *Journal of Analytical Atomic Spectrometry*, 2016, 31(1): 90-118.
- [8] Wu Keyan, Ren Zhongguo, Su Rongbo, *et al.* Enhanced laser-induced breakdown spectroscopy on Co sample with double femtosecond laser pulses[J]. *High Power Laser and Particle Beams*, 2016, 28(8): 082002.
吴柯岩, 任忠国, 苏容波, 等. 双飞秒激光脉冲诱导击穿光谱增强特性研究[J]. *强激光与粒子束*, 2016, 28(8): 082002.
- [9] Chen Na, Liu Yaoxiang, Du Shengzhe, *et al.* Research progress in applications of nanosecond and femtosecond laser-induced breakdown spectroscopy[J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2016, 53(5): 050003.
陈娜, 刘尧香, 杜盛喆, 等. 纳秒、飞秒激光诱导击穿光谱技术的应用研究进展[J]. *激光与光电子学进展*, 2016, 53(5): 050003.
- [10] Hoyer W, Knorr A, Moloney J V, *et al.* Photoluminescence and terahertz emission from femtosecond laser-induced plasma channels[J]. *Physical Review Letters*, 2005, 94(11): 115004.
- [11] Garlati E, Carretta S, Schnack J, *et al.* Response to "Comment on 'Theoretical design of molecular nanomagnets for magnetic refrigeration' "[J]. *Applied Physics Letters*, 2014, 105(4): 046102.
- [12] Dharmadhikari J A, Deshpande R A, Nath A, *et al.* Effect of group velocity dispersion on supercontinuum generation and filamentation in transparent solids[J]. *Applied Physics B*, 2014, 117(1): 471-479.
- [13] Yu Jin, Hao Zuoqiang, Zhang Jie, *et al.* Acoustic diagnostics of plasma channels in air induced by intense femtosecond laser pulses[J]. *Acta Physica Sinica*, 2005, 54(3): 1290-1294.
俞进, 郝作强, 张杰, 等. 用声学诊断方法测量激光等离子体通道的长度与电子密度[J]. *物理学报*, 2005, 54(3): 1290-1294.
- [14] Liu Y, Wen Q, Xu S, *et al.* Pulse characterization during femtosecond laser filamentation in air by two-photon fluorescence measurement[J]. *Applied Physics B*, 2011, 105(4): 825-831.
- [15] Point G, Milián C, Couairon A, *et al.* Generation of long-lived underdense channels using femtosecond filamentation in air[J]. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 2015, 48(9): 094009.
- [16] Gao Xun, Du Chuang, Li Cheng, *et al.* Detection of heavy metal Cr in soil by the femtosecond filament induced breakdown spectroscopy[J]. *Acta Physica Sinica*, 2014, 63(9): 095203.
高勋, 杜闯, 李丞, 等. 基于飞秒激光等离子体丝诱导击穿光谱探测土壤重金属 Cr 元素含量[J]. *物理学报*, 2014, 63(9): 095203.
- [17] Talebpour A, Petit S, Chin S L. Re-focusing during the propagation of a focused femtosecond Ti: Sapphire laser pulse in air[J]. *Optics Communications*, 1999, 171(4): 285-290.
- [18] Watanabe W, Itoh K. Spatial coherence of supercontinuum emitted from multiple filaments[J]. *Japanese Journal of Applied Physics*, 2001, 40(2A): 592-595.
- [19] Peñano J R, Sprangle P, Hafizi B, *et al.* Transmission of intense femtosecond laser pulses into dielectrics[J]. *Physical Review E*, 2005, 72(3): 036412.