

文章编号: 0253-2239(2004)08-1051-6

激光大气等离子体光谱特性实验研究

李小银¹ 林兆祥² 刘煜炎¹ 陈扬钺¹ 龚顺生²

(¹ 华东师范大学物理系, 上海 200062
² 中国科学院武汉物理与数学研究所, 武汉 430071)

摘要: 报道了对波长为 1.06 μm 的脉冲激光在气体样品中产生的等离子体进行光谱研究的结果。气体样品为一个标准大气压的纯氮、纯氧和空气, 光谱探测范围为 300~900nm。结果表明, 各种气体样品的激光等离子体光谱均表现为连续谱和线状谱的叠加, 文中分别给出了连续谱和线状谱的基本特征, 讨论了这些特征与等离子体物理特性的关系, 并分析了纯氮、纯氧与空气激光等离子体光谱之间的异同。给出了激光等离子体光谱的时间演化和空间分布的基本特征, 并初步讨论了与这些特征相关的等离子体物理特性。这些结果有助于加深对激光等离子体特性和机理, 特别是对等离子体产生后的弛豫过程和复合机制的了解。

关键词: 激光物理; 等离子体光谱; 激光大气击穿; 连续谱; 线状谱
中图分类号: O536 文献标识码: A

Spectroscopic Study on the Behaviors of the Laser-Induced Air Plasma

Li Xiaoyin¹ Lin Zhaoxiang² Liu Yuyan¹ Chen Yangqin¹ Gong Shunsheng²

(¹ Department of Physics, East China Normal University, Shanghai 200062
² Wuhan Institute of Physics and Mathematics, The Chinese Academy of Sciences, Wuhan 430071)

(Received 21 April 2003; revised 20 October 2003)

Abstract: The results of spectroscopic study on the gas plasma induced by a pulsed laser with wavelength of 1.06 μm are reported. The gas samples are pure nitrogen, pure oxygen and air, all at the atmospheric pressure, and the spectral range studied is from 300 nm to 900 nm. The results show that the spectra of laser-induced plasmas for the three kinds of gas samples are composed of continuous spectra and line spectra, the basic features of the continuous spectra and line spectra were given, the possible connections of these spectra features to the characteristics of the laser-induced gas plasma were discussed, and the differences of the laser-induced plasmas between pure nitrogen, pure oxygen and air samples were analyzed. The basic features of time evolution and space distribution for laser-induced plasma spectra were also given and the relations between these features and the laser-induced plasma characteristics were briefly discussed. These results are helpful for the better understanding of the laser-induced plasma characteristics, especially those related to the relaxation process and the recombination mechanism of the plasma after its production.

Key words: laser physics; plasma spectra; laser-induced air breakdown; continuous spectra; line spectra

1 引 言

高功率激光束在大气中传输时, 与大气相互作用将产生一系列光学效应, 大气被激光击穿形成大气等离子体就是其中重要的一种。激光产生大气等

离子体的现象早已被发现, 并已进行了多年的探索和研究^[1~4]。这些研究所取得的成果, 不仅大大增进了人们对激光与大气原子分子相互作用过程中诸多物理现象的了解, 而且还导致了一些重要的实际应用, 如激光核聚变^[5]、强激光传输^[6,7]、X 射线激光产生^[8]等。另一方面, 这些应用的需求又推动了激光大气等离子体研究工作的进展。但已有的研究多

集中在击穿阈值特性的研究方面,而新的激光等离子体应用领域,如激光引雷^[9]、激光大气遥感^[10]、激光推进^[11]等的发展则要求对激光等离子体的各种物理机制开展更为全面和深入的研究。

光谱探测是研究激光大气等离子体产生和演化机制的主要手段。近年来,我们对一个标准大气压(1.013×10^5 Pa,以下简称大气压)的 N_2 、 O_2 和空气在 $1.06 \mu\text{m}$ 纳秒激光激发下的等离子体进行了系统的在 $300 \sim 900 \text{ nm}$ 范围的光谱实验研究,获得了大量的光谱实验数据。本文将主要报道我们对激光大气等离子体光谱频率分布特性以及与此相应的激光等离子体物理特性的研究结果,同时也给出了激光大气等离子体光谱时间变化和空间变化的基本特征。

2 实验系统

为了获得激光等离子体的光谱信息,我们设计并建造了一套专用的激光大气等离子体光谱实验系统。该系统由激光器、气体样品装置和光谱检测装置三部分组成,如图 1 所示。

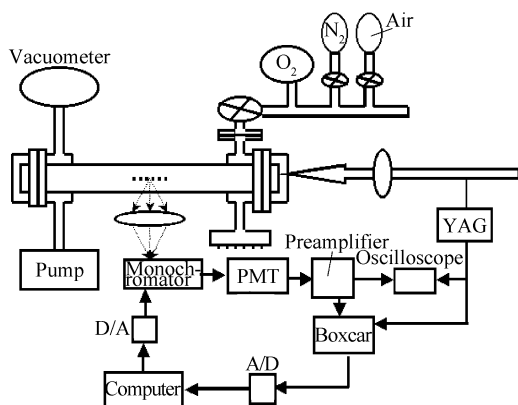


Fig. 1 Experimental setup

其中 Nd:YAG 固体激光器的输出波长为 $1.06 \mu\text{m}$,其单脉冲能量约 500 mJ ,脉冲宽度约 10 ns ,相应的峰值功率高达 $5 \times 10^7 \text{ W}$ 。用焦距约 300 mm 的透镜将此光束聚焦,焦斑尺寸约 $100 \mu\text{m}$,焦点处的激光功率密度大于 10^{10} W/cm^2 ,可方便地击穿一个大气压的各种气体分子。气体样品装置由带光窗的玻璃样品管和相应的充排气及气压测量仪组成。光谱测量装置由输入光学、扫描单色仪、光电倍增管、前置放大器、高频示波器、Boxcar 积分器和计算机组成。样品管抽真空后,再充入一个标准大气压的纯净 N_2 或 O_2 ,或过滤后的空气进行实验。

激光光束经聚焦透镜聚焦于玻璃样品管中,样

品管中的气体在激光束的焦点处被击穿而形成等离子体,等离子体所发出的光在垂直方向上被透镜收集并送入扫描单色仪。单色仪的输出信号由光电倍增管转换成电信号,经放大后由 Boxcar 进行处理,最后由计算机采样并存储 Boxcar 的输出信号。由于单色仪在设定波长范围之内的扫描和 Boxcar 输出信号的采样是在计算机同步控制下进行的,所以单色仪每次扫描时计算机所采集的数据即为激光等离子体在该扫描波长范围内的光谱。

3 实验结果与讨论

3.1 激光等离子体光谱的频率特征

一个大气压的纯净 O_2 、纯净 N_2 和过滤空气在 $300 \sim 900 \text{ nm}$ 波段经辐射定标和归一化的激光等离子体光谱分别示于图 2(a)、图 2(b)和图 2(c)[由 N_2 和 O_2 按比例合成的空气谱示于图 2(d)]。采集这组数据时,激光脉冲与 Boxcar 采样门之间的延时为 20 ns ,基本上可以看成是激光等离子体形成初期的发射光谱。由图 2 可见,在该波段范围内,三种气体的激光等离子体光谱均由连续光谱本底和叠加于其上的诸多线状谱线构成。因此,我们将光谱分成连续谱和线状谱两部分对其特性进行讨论。

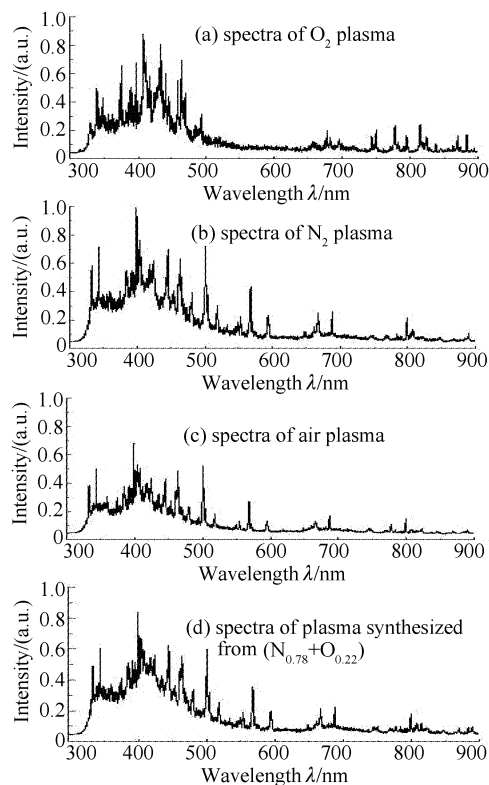


Fig. 2 The plasma spectra of O_2 , N_2 , air and the synthesized air

3.1.1 连续谱

为能更清楚地看出各种气体激光等离子体连续光谱的特征,我们将图 2(a)、图 2(b)、图 2(c)所示的三种光谱图中的线状光谱成分从其底部去除,并经过适当平滑处理,得到如图 3 所示的三种气体激光等离子体的连续光谱的谱型。由图可见,在 300~900 nm 波段,三种气体样品的连续光谱并非均匀分布,而是呈现一个共同的分布特征:在 400~500 nm 和 550~700 nm 两个范围内各出现一个连续光谱带,我们称之为短波带和长波带。连续谱的另一共同特征是:三种气体的短波带在强度上均明显地高于长波带,而且氧气和氮气的短波带连续谱强度比空气要高。

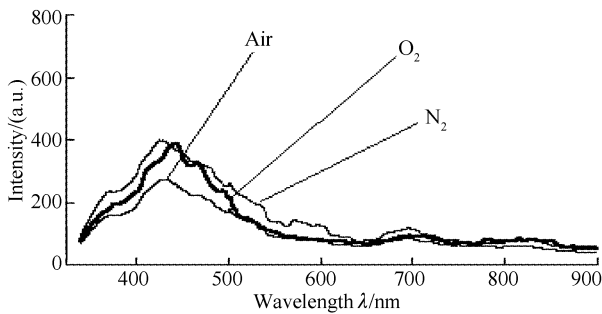


Fig. 3 Continuous spectra of N_2 , O_2 and air plasma

通常认为,激光等离子体中连续光谱辐射主要来自韧致辐射和复合辐射过程。韧致辐射是自由电子与离子碰撞发生自由态—自由态跃迁而辐射电磁波的过程。韧致辐射过程是等离子体能量损失的一种主要机制,其结果是使等离子体中自由电子的温度迅速降低。理论上,单位时间内通过韧致辐射所消耗的能量(即辐射功率)^[12]为

$$P(\lambda, T_e) = 1.90 \times 10^{34} \frac{N_e N_i Z^2}{\lambda^2 (kT_e)^{1/2}} \bar{g} \times \exp\left(-\frac{12359}{kT_e}\right) \quad (\text{W} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{A}^{-1}), \quad (1)$$

式中 λ 为韧致辐射的波长, T_e 为自由电子温度, N_e 、 N_i 分别为等离子体中自由电子和离子的密度, Z 为离子的电荷数, k 为玻尔兹曼常量, \bar{g} 为考虑量子力学效应的修正因子,其值主要在 1~5 范围。我们对测得的激光大气等离子体光谱的连续光谱部分按(1)式所作的计算机模拟结果表明,在激光激发约 20 ns 以后,激光大气等离子体的温度大约在 17000 K,而其电子密度大约在 $10^{16} \sim 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ 。这与文献数据^[13]报道的结果基本上是一致的。

复合辐射过程则是自由电子在与离子的碰撞中被离子俘获而变为束缚态的电子,多余的能量以电

磁辐射的形式释放出来的过程,是等离子体连续光谱的又一重要产生机制。理论分析给出,对于电子能量为 E_n 的束缚能级的复合过程,复合辐射的功率谱^[12]为

$$P(n, f, T_e) = 1.73 \times 10^{-51} N_i N_e \frac{Z^4}{n^3 (kT_e)^{3/2}} \bar{g} \times \exp\left(-\frac{hf - |E_n|}{kT_e}\right) \quad (\text{W} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{s}), \quad (2)$$

式中 f 为复合辐射的频率, n 为复合原子(分子)能级的主量子数, E_n 为相应能级的能量,其它符号与(1)式相同。复合辐射的一个明显的特点是其辐射功率与主量子数 n 的三次方成反比,这说明通过复合辐射产生的原子分子大多处在主量子数较低的激发态。

在我们测量到的 O_2 、 N_2 和空气激光等离子体光谱中,我们认为,强度较大、波长较短的连续光谱主要来自韧致辐射的贡献,而强度较小、波长较长的连续光谱主要来自复合辐射的贡献。这是出于以下两方面考虑:一方面,复合辐射与韧致辐射的相对贡献与等离子体温度密切相关,温度越高,电子越不容易被离子俘获,复合辐射的相对贡献越小。在我们的实验情况下,激光击穿产生的等离子体温度相对比较高,因此复合辐射不占主要地位。另一方面,已有的研究曾指出,复合辐射产生的连续谱一般都迭加在韧致辐射产生的连续谱的长波边^[13]。

从图 3 可以看出, O_2 、 N_2 和空气三种等离子体连续谱的长波部分基本相同,但在短波部分,空气的连续谱强度明显的低于纯 N_2 和纯 O_2 的,说明在相同的激发条件下,空气激光大气等离子体中自由电子的韧致辐射明显地低于 N_2 或 O_2 中的自由电子的韧致辐射。考虑到纯净空气与氮气的主要差别在于用大约 20% 的氧取代了氮,而氧对自由电子有比氮大得多的吸附能力^[14]。因此我们分析,氧的出现产生了对自由电子的吸附,减少了参与韧致辐射的自由电子数,从而使空气的韧致辐射强度降低。同时,从图 3 还可看出, N_2 和 O_2 的短波连续谱具有近似相等的强度(O_2 稍偏小)。我们认为,这是在相同激发条件下, O_2 的电离电位较低而产生更多的自由电子和 O_2 的较大电子吸附使自由电子减少两种机制联合作用的结果。

3.1.2 线状谱

从图 2 可以看出, N_2 、 O_2 和空气线状光谱的一个共同特点是:叠加于连续光谱上的强度较大的线状光谱多集中于短波长段。对 N_2 和空气,较强线状谱主要集中在 300~600 nm 段,而对 O_2 ,则主要

集中在 300~500 nm 段。O₂ 在 500~650 nm 段基本上无线状谱,而在 650~900 nm 段,又出现密集的程度较弱的线状谱。从 O₂ 到 N₂ 再到空气 650~900 nm 的长波段的线状谱的数量则依次减少。从图 2 还可看出各种气体激光等离子体线状光谱在线宽方面的特征:图中大部分线状光谱所呈现的线宽均在 1~3 nm 范围,明显的大于相应跃迁谱线的自然线宽和所有光谱仪的分辨力(约 0.1 nm)。一般认为,激光等离子体中强烈的碰撞过程和很强的局部电场都是导致激光等离子体线状光谱谱线增宽的原因。我们发现,实验谱线宽度的明显变化和相应跃迁谱线的斯塔克增宽系数有一定依赖关系,例如,氧原子的 777.4 nm 谱线和 436.9 nm 谱线的斯塔克增宽系数分别为 0.45 和 0.11^[15],其相应谱线的宽度分别为 3 nm 和 1 nm。因此,我们认为斯塔克增宽是激光等离子体谱线增宽的主要机制。

我们已对图 2 所示的三种气体的激光等离子体的大部分分立光谱线作了认证,即给出了各条线状谱线所对应的分子、原子及相关离子中的跃迁能级对,认证结果列于表 1(a)~表 1(c)。从表中可以看出,在纯 N₂ 和纯 O₂ 的初始激发光谱中均含有相应气体的各种粒子成分(即它们的分子、分子离子、原子、原子离子)的谱线。但在同一气压的空气样品中,线状光谱[如图 2(c)所示]并不是纯 N₂ 和纯 O₂ 的简单叠加[如图 2(d)所示],一些原来出现在纯 N₂ 和纯 O₂ 样品中的谱线在空气谱中不再出现,且 O₂ 的谱线比 N₂ 的谱线消失得更多一些。这一结果说明在空气的激光等离子体中存在着与纯 N₂ 和纯 O₂ 中不同的更为复杂的相互作用过程。由于光谱方法可以追踪各种粒子成分和相应的量子状态,因此等离子体光谱研究为详细了解激光大气等离子体的各种相互作用提供了一条有效途径。

表 1 所示的三种样品激光等离子体线状光谱的另一个特点是,所有样品中的离子谱线均为原子或分子的一价离子的谱线,没有发现有高价离子(被剥离电子数多于 1 的离子)的谱线存在。这一结果与 Armstrong 等^[15]报导有大量高价离子谱线存在的结果不同。我们认为这种差异可能是由样品气压不同造成。文献^[15]报导的是较低气压下的实验结果,而我们的实验均在一个大气压下进行,更接近正常气压的状况。一方面,由于气压不同使单个分子吸收激光能量而电离的途径和机制不同,导致所产生的离子价次不同;另一方面,高压下高价离子更容易通过碰撞而猝灭,故观测不到相应的高价离子

谱线。如果是前一种原因,则说明在高压下,由级联电离机制^[16]产生的激光等离子体有更高的自由电子产生效率。

Table 1 (a) The identification of plasma spectra in N₂

Species	Wavelength λ /nm	Transition
N ₂ ⁺	424.1	B ² Σ_u^+ → X ² Σ_g^+
N ₂	339.9, 399.7	C ³ Π_u → B ³ Π_g
	343.7	3p(¹ S) → 3s(¹ P ^o)
	480.3	3d(³ D ^o) → 3p(³ D)
	500.5	3d(³ P ^o) → 3p(³ S)
	504.5	3p(³ S) → 3s(³ P ^o)
	517.6	3d(⁵ D) → 3p(⁵ P ^o)
	553.5	3p(⁵ D ^o) → 3s(⁵ P)
	568.0	3p(³ D) → 3s(³ P ^o)
N	648.3	4p(³ D) → 3d(³ D ^o)
	746.9	3p(⁴ S ^o) → 3s(⁴ P)
	821.7	3p(⁴ P ^o) → 3s(⁴ P)
	868.3	3p(⁴ D ^o) → 3s(⁴ P)

Table 1 (b) The identification of plasma spectra in O₂

Species	Wavelength λ /nm	Transition
O ₂ ⁺	435.1, 459.7	A ² Π_u → X ² Π_g
	811.8, 824.0, 834.7	b ⁴ Σ_u^- → a ⁴ Σ_u
O ₂	339.2, 341.5	C ¹ Σ_u^- → X ³ Σ_g^-
	348.1	A ³ Σ_u^+ → X ³ Σ_g^-
	391.4	B ³ Σ_u^- → X ³ Σ_g^-
	869.8	b ¹ Σ_g^+ → X ³ Σ_g^-
O ⁺	371.5, 372.9, 375.1	3p(⁴ S ^o) → 3s(⁴ P)
	385.6, 386.6, 388.5	3d(⁴ D) → 3p(⁴ D ^o)
	394.7, 395.7, 397.6	3p(² P ^o) → 3s(² P)
	407.6	3d(⁴ F) → 3p(⁴ D ^o)
O	435.1	3p(⁴ P ^o) → 3s(⁴ P)
	616.2	4d(⁵ D ^o) → 3p(⁵ P)
	646.2	5s(⁵ S ^o) → 3p(⁵ P)
	715.7	3p(¹ D ₂) → 3s(¹ D ₂ ^o)
	748.1	3p(³ D) → 3s(³ P ^o)
	777.4	3p(⁵ P) → 3s(⁵ S ^o)
	795.1	3d(³ F ^o) → 3s(³ D ^o)
	822.2	3p(³ D) → 3s(³ D ^o)
	844.6	3p(³ P) → 3s(³ S ^o)

Table 1(c) The identification of plasma spectra in air

Species	Wavelength λ /nm
N ₂	333.9, 399.7
N ₂ ⁺	424.2
N ⁺	343.7, 480.3, 500.5, 517.9, 553.6, 567.9
N	747.2, 821.7, 868.3
O ⁺	375.1, 388.5, 407.6, 435.1
O	777.4, 795.1, 822.1, 844.6

3.2 激光大气等离子体光谱的时间特性

研究激光大气等离子体光谱的时间演化特性,

是了解其复合机制的一个重要手段。实验上我们采用了两种方法,即延时光谱法和谱线演化法来对其进行研究。图 4 所示为用谱线演化法对几种谱线研究的实验结果。可见,有的光谱呈现快速的近似单指数的演化[图 4(a)],有的呈现先快后慢的演化[图 4(b)],有的则在演化过程中经历衰减-增长-衰减的复杂过程[图 4(c)]。通过对大量类似实验结果的分析,可得到激光大气等离子体光谱时间演化的如下一些特点:

1) 初始激发光谱中的各种光谱成分的衰减速

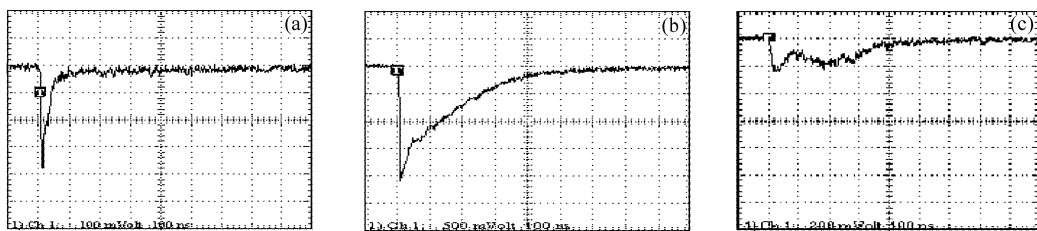


Fig. 4 Temporal characteristic of some plasma

3.3 激光大气等离子体光谱的空间特性

激光大气等离子体通常表现为一个在空间上比较稳定的泪滴状的发光椭球。我们实验中获得的激光大气等离子体球的图像如图 5 中的白色亮点所示。考虑到激光大气等离子体球的形成与激光能量在空间的扩展相关,且具有不对称结构,我们对激光大气等离子体球的光谱进行了空间分辨研究。作为一个例子,图 6 给出了在图 5 所示激光等离子体球 a、b 两处所测得的空间分辨光谱图。从上、下、前、后四个方向向等离子体的中心逼近,空间分辨光谱呈现如下类似的变化特征:

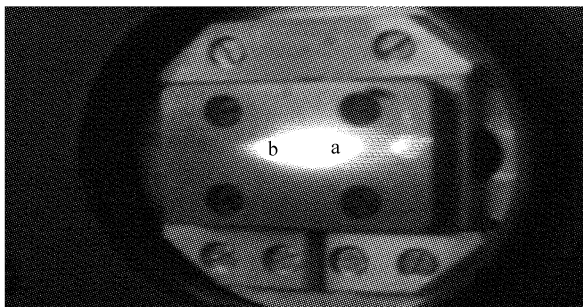


Fig. 5 The picture of a laser induced air plasma

1) 随着向中心逼近,连续光谱的强度增大,线状光谱相对于连续光谱的比值降低。这表明激发的增强主要导致激光等离子体中自由电子温度的升高,从而使其韧致辐射的连续谱相对增强。

2) 随着向中心逼近,线状谱线的线宽明显增

度和形式各不相同,但实验测得的大部分线状光谱成分的演化时间均长于其谱线寿命,是相应激发态在激光等离子体复合过程中演化的表现。

2) 随着延时的增加,在许多初始激发的线状光谱逐渐消失的同时,有许多新的线状光谱不断地出现,预示在激光等离子体复合过程中,有态-态间的能量交换过程存在。

3) 延时较长的线状光谱大多是各种成分的原子的激发态光谱,表明能量转移过程主要由离子激发态向原子激发态进行。

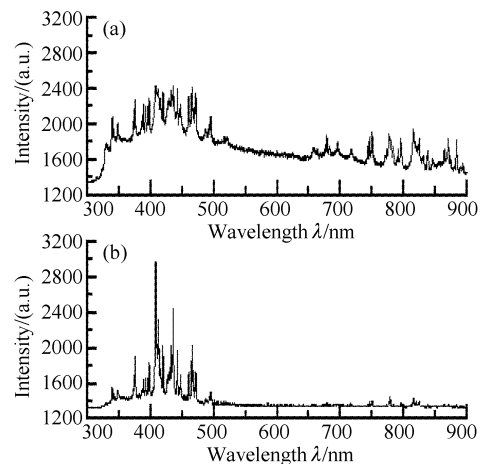


Fig. 6 The plasma spectra taken at locations a and b. 说明激发增强导致的高温高速电子,使谱线的碰撞加宽和斯塔克加宽增大。

3) 随着向中心逼近,再生的原子线状光谱的强度明显增大。这一结果表明,强激发导致的高温高速自由电子除增大了韧致辐射外,其能量的一部分也用于原子分子的碰撞激发。

参 考 文 献

- 1 Maker P D, Terhune R W, Savage C M. Optical third harmonic generation, in proceedings of the 3rd International Conference on Quantum Electronics, Paris (1963), Grivvet P and Bloembergen N eds., Columbia University Press, New York, 1964. 1559~1576
- 2 Brown R T, Smith D C. Laser induced gas breakdown in

- the presence of preionization. *Appl. Phys. Lett.*, 1973, **22**(5):245~247
- 3 Shen Y R. *The Principle of Non linear Optics*. New York: John Wiley and Sons, 1984
- 4 Zhang Jingtao, Zhang Wenqi, Xu Zhizhan. Fine structures in angular distribution of above-threshold ionization. *Acta Optica Sinica* (光学学报), 2002, **22**(5):513~516 (in Chinese)
- 5 Shigemori K, Nakai M, Azechi H *et al.*. Feed-out of rear surface perturbation due to rarefaction wave in laser-irradiated targets. *Phys. Rev. Lett.*, 2000, **84**(23):5331~5335
- 6 Lu Baida. *Propagation and Control of High-Power Laser*. Beijing: National Defence Industry Publishing Company, 1999 (in Chinese)
- 7 Yu Huade, Chen Zhaoyang, Xu Zhizhan *et al.*. Non-relativistic intense laser propagation characteristics in the plasma. *Acta Optica Sinica* (光学学报), 2002, **22**(1):1~5 (in Chinese)
- 8 Preiedhorsky W, Lier D, Day *et al.*. Hard X-ray measurements of 10.6-micron laser-irradiated targets. *Phys. Rev. Lett.*, 1981, **47**(23):1661~1665
- 9 La Fontaine B, Vidal F, Comtois D *et al.*. The influence of electron density on the formation of streamers in electrical discharges triggered with ultrashort laser pulses. *IEEE Trans. Plas. Sci.*, 1999, **27**(3):688~700
- 10 Cremer D A, Radziemski L J. Detection of chlorine and fluorine in air by laser-induced breakdown spectrometry. *Anal. Chem.*, 1983, **55**:1252~1256
- 11 Keeler D, Jeng S M, Welle R. Laser thermal propulsion using laser sustained plasmas. *Acta Astronautica*, 1987, **15**:367~376
- 12 Bekefi G. *Radiation Processes in Plasmas*. New York: Wiley, 1966
- 13 D'Yachkov L G, Golubev O A, Kobzev G A *et al.*. Studies of continuum radiation from nitrogen, oxygen and carbon dioxide plasmas in the vacuum ultraviolet region. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 1978, **20**:175~189
- 14 Lin Zhaoxiang, Li Xiaoyin, Gong Shunsheng *et al.*. Spectroscopic study on the time-evolution behaviors of the laser-induced air plasma. *Spectroscopy and Spectral Analysis* (光谱学与光谱分析), 2003, **23**(3):421~425 (in Chinese)
- 15 Griem H R. *Spectral Line Broadening by Plasmas*. New York: Academic Press Inc., 1974
- 16 Armstrong R, Lucht R, Rawlins W. Spectroscopic investigation of laser initiated low pressure plasmas in atmospheric gases. *Appl. Opt.*, 1983, **22**(10):1573~1577
- 17 Bekefi G. *Principles of Laser Plasmas*. John Wiley & Sons, Inc., 1976