

# 激光氧气等离子体光谱的时间演化研究

林兆祥<sup>1</sup>, 吴金泉<sup>2</sup>

1. 中南民族大学电信学院, 湖北 武汉 430074
2. 中南民族大学计算与实验中心, 湖北 武汉 430074

**摘要** 报道了脉冲激光在一个大气压的纯氧(纯度为 99.999 9%)中所产生的等离子体光谱进行时间演化特性研究的结果。激光器的工作波长为 1.06  $\mu\text{m}$ , 光谱探测范围为 300~900 nm。实验结果表明, 激光氧气等离子体光谱均表现为连续谱和线状谱的迭加, 它们的演化过程各不相同。基于各种光谱成分的时间演化特征, 分析了激光氧气等离子体在衰变期间可能存在的一些物理过程及其演化特征, 讨论了激光氧气等离子体寿命较长的主要原因。这些结果有助于加深对激光大气等离子体特性和机理的了解, 为进一步开展延长激光大气等离子体寿命方法的研究提供实验依据。

**主题词** 激光等离子体; 氧气; 时间演化; 光谱

**中图分类号:** O539 **文献标识码:** A **文章编号:** 1000-0593(2006)06-0994-05

## 引言

将强激光束聚焦于空气中能把空气击穿而产生等离子体的现象在激光器发明之后不久就被发现<sup>[1]</sup>, 并对此现象进行了多年的实验和理论研究, Morgan 曾经对这些的工作做过较好的总结<sup>[2]</sup>。但是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, 而对激光大气等离子体产生后的时间演化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, 特别是如激光引雷<sup>[3]</sup>、激光遥测<sup>[4]</sup>等。为有效地实现这些技术的应用, 不仅需要了解激光大气等离子体的产生机制及其阈值特征, 而且也需要对激光大气等离子体的弛豫特征, 即激光大气等离子体产生以后的各种时间演化过程有深入的了解。

我们从 2001 年开始用光谱探测的方法研究激光大气等离子体, 发表了多篇文章<sup>[5-8]</sup>。从已有的工作来看, 激光大气等离子体光谱的衰减过程要比激光在纯氮中产生等离子体的光谱复杂得多, 而且演化时间也要长许多。因此, 很有必要专门对激光在纯净的氧气中产生等离子体的衰减过程进行光谱研究, 以揭示氧气在激光大气等离子体衰减过程中的作用。本文将报道我们对激光氧气等离子体所进行的时间分辨光谱研究, 以及基于研究结果对激光氧气等离子体衰变期间的一些物理过程进行的分析。

## 1 实验及装置

我们的实验装置由激光器, 气体样品装置和光谱检测装置三部分组成, 如图 1 所示, 我们曾经对其细节做过介绍<sup>[6, 7]</sup>, 本文不再重复。

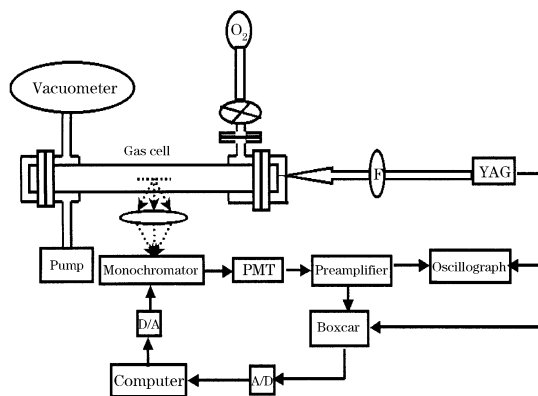


Fig. 1 Experimental setup

实验时, 我们首先将样品室抽真空 (13 Pa), 然后充 99.999 9% 的高纯度氧气到一个标准大气压 ( $1.013 \times 10^5$  Pa), 如此反复 5 次以上, 因此我们可以假定实验所用的样品纯度为 99.999 9% 的高纯氧。采用延时光谱法和谱线演化

收稿日期: 2005-09-08, 修订日期: 2005-11-28

基金项目: 湖北省自然科学基金(2005aba312)资助

作者简介: 林兆祥, 1971 年生, 中南民族大学光信息科学与技术实验室主任, 博士

法来获得激光氧气等离子体的时间分辨光谱,以研究其时间演化特性。从原则上讲,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。

## 2 实验结果与讨论

用延时光谱法获得的纯净氧气(一个大气压下)激光等离子体在 300~900 nm 谱段的时间分辨光谱如图 2 所示。图中,我们给出的十条光谱曲线,分别采样于激光脉冲过后的 20, 100, 200, 300, 400 ns; 0.5, 1, 5, 10 和 20  $\mu$ s。其中延时 20 ns 的光谱是最接近激光激发时的光谱,我们称之为初始激发光谱,其他所有延时下的光谱都是与此初始激发光谱

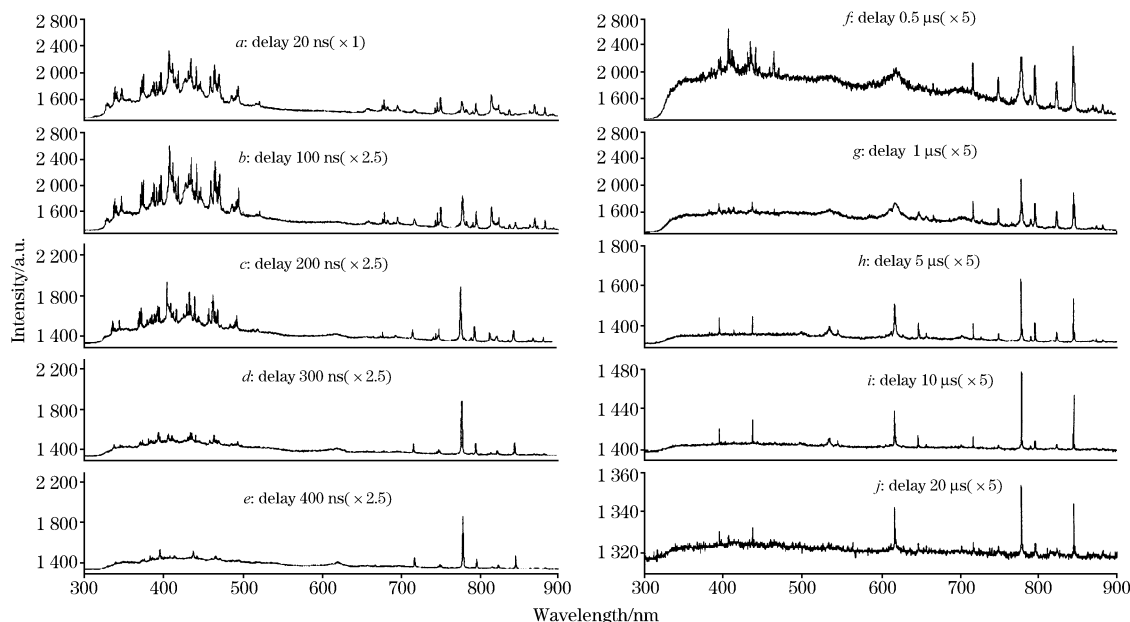


Fig. 2 The temporal emission characteristics of oxygen plasma

从图 2 所示的延时光谱可以看出激光等离子体光谱整体的时间演化趋势,但难以得到详细的线状光谱时间演化形式的信息。为此,我们对图 2 所示光谱中的各种线状光谱进行了光谱认定<sup>[9, 10]</sup>,其结果在表 1 中显示。对那些已经被确认的线状谱,我们还分别进行了谱线演化测量,得到了大量如图 3 所示的时间演化曲线。通过测量这些曲线,我们可以获得各线状谱最长演化时间(寿命),各线状谱的演化寿命也列

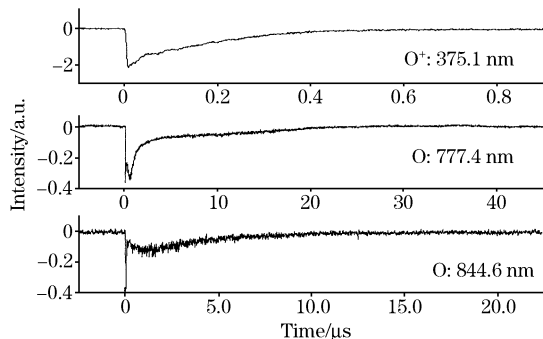


Fig. 3 The temporal development curve of line spectra

进行比较来分析其时间演化特性的。为了便于分析,我们将这些谱线都归一化到同一种坐标刻度下,并采用了相应的放大处理,其放大的倍数已在相应的谱图上注明。需要指出,图 2 所示的光谱曲线均代表激光氧气等离子体在无激光时的自演化光谱,因为我们所用的激光脉冲宽度仅 10 ns,即使是延时最短(20 ns)的初始激发光谱,也是取自激光激发消失之后。从图 2 可以看出激光氧气等离子体光谱均由迭加于连续光谱上的线状光谱组成。同时比较图 2 中的各光谱图可看出其两种光谱成分(即连续光谱和线状光谱)随时间的演化情况。连续谱和大部分线状谱均随延时的加长而变小,但变小的速率并不相同,部分线状谱随延时的增加有“增涨-消失”的过程。

在该表中。

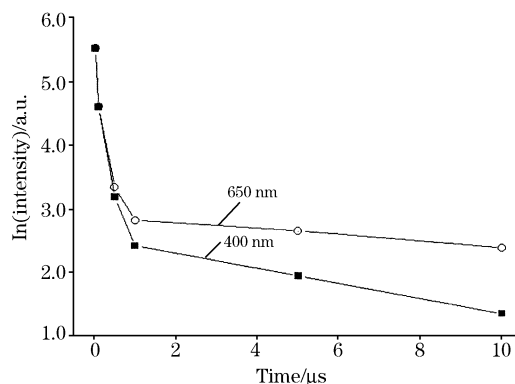


Fig. 4 The temporal development of continuous background

为了分析连续光谱的时间演化特性,我们分别选用图 2 中的有关数据,分别对短波带(400 nm)和长波带(650 nm)连续光谱进行数据处理,其结果如图 4 所示。图中各点的纵坐

标数值是这样得到的：首先对图 2 中的光谱强度扣除本底进行归一化，然后除以相应的放大倍数，并对其结果取对数。从图 4 可见，两种光谱的对数衰变曲线均呈现出两种斜率，反映出两种光谱成分在早期衰变很快，而在后期衰变较慢，转折时间约在  $0.5 \mu\text{s}$  左右。同时，在衰变过程的后期长波带的衰变比短波带更慢。

许多国外专家认为激光等离子体的连续光谱主要产生于复合辐射和韧致辐射两种机制<sup>[11, 12]</sup>。我们的前期工作已经证明利用现有的实验装置得到的等离子体光谱中，短波带连

续谱主要来自韧致辐射的贡献，长波带连续光谱主要来自复合辐射的贡献<sup>[5-8]</sup>。本文的实验结果表明在激光氧气等离子体衰减过程中，存在一个转折点 ( $0.5 \mu\text{s}$  左右)，超过这一时刻韧致辐射和复合辐射的强度减缓的速度都明显变小。同样的现象在激光大气等离子体中也能观察得到<sup>[6]</sup>，而在激光氮气等离子体中却没有<sup>[8]</sup>。根据 Normand 和 Kruger 等的理论分析<sup>[13, 14]</sup>，氧的吸附作用在等离子体形成后  $10^{-6} \text{ s}$  左右开始起作用，那么我们的实验结果可以解释成：由于氧的吸附作用，明显减缓了等离子体中自由电子消失的速度。

Table 1 The laser-induced oxygen plasmas spectra identification

Species	$\lambda_1/\text{nm}$	$\lambda_2/\text{nm}$	$\tau/\mu\text{s}$	Transition
$\text{O}_2^+$	435.1, 459.7, 567.9	434.8, 459.9, 567.8	0.5	$A^2\Pi_u \rightarrow X^2\Pi_g$
	824.0	824.0	0.5	$b^4\Sigma_u^- \rightarrow a^4\Pi_{ui}$
$\text{O}_2$	339.2, 341.5	339.22, 341.42	0.5	$C^1\Sigma_u^- \rightarrow X^3\Sigma_g^-$
	348.1	347.93	0.5	$A^3\Sigma_u^+ \rightarrow X^3\Sigma_g^-$
	391.4	391.28	0.5	$B^3\Sigma_u^- \rightarrow X^3\Sigma_g^-$
	869.8	869.78	0.5	$b^1\Sigma_u^+ \rightarrow X^3\Sigma_g^-$
$\text{O}^+$	371.49, 372.96, 375.1	371.3 ~ 374.9	0.5	$3p(4S^0) \rightarrow 3s(4P)$
	385.59, 386.61, 388.48	384.3 ~ 388.3	0.5	$3d(4D) \rightarrow 3p(4D^0)$
	394.73, 395.72, 397.58	394.5 ~ 398.3	0.5	$3p(2P^0) \rightarrow 3s(2P)$
$\text{O}$	394.9	394.8	1.0	$4p(5P) \rightarrow 3s(5S^0)$
	437	437.1	1.0	$4p(3P) \rightarrow 3s(3S^0)$
	533.5	533.1	1.0	$5d(5D^0) \rightarrow 3p(5P)$
	544.2	543.5	1.0	$6s(5S^0) \rightarrow 3p(5P)$
	616.2	615.8	1.0	$4d(5D^0) \rightarrow 3p(5P)$
	646.2	646.1	1.0	$5s(5S^0) \rightarrow 3p(5P)$
	715.7	715.7	10	$3p(1D_2) \rightarrow 3s(1D_2)$
	748.1	748.1	10	$3p(3P) \rightarrow 3s(3S^0)$
	777.4	777.4	30	$3p(5P) \rightarrow 3s(5S^0)$
	795.1	795.1	20	$3d(3F^0) \rightarrow 3s(3D^0)$
	822.2	822.1	20	$3p(3D) \rightarrow 3s(3D^0)$
	844.6	844.6	20	$3p(3P) \rightarrow 3s(3S^0)$

$\lambda_1$  is the wavelength obtained in this experiment,  $\lambda_2$  is the given wavelength from Refs. [9] and [10], and  $\tau$  is the longest decay time when we can see out the spectrum in this experiment

至于线状光谱的时间演化，综合图 2 和表 1 可以看出，激光氧气等离子体在其产生的初期，线状光谱主要由氧的离子谱线组成，而相应的中性原子分子的谱线则较少。这表明在激光激发过程中，多数的氧分子被激发到其相应离子的激发态或高激发态，前者可以辐射出相应的分子离子光谱，后者则经由解离过程形成相应原子离子的激发态而辐射出原子离子光谱线。上述结果的另一特点是，在初始光谱中基本上不出现氧的高阶离子谱，说明激光大气等离子体中的自由电子主要来自相应原子或分子最外层价电子的剥离。这一特点表明，用激光击穿大气的方法产生等离子体基本上不涉及高阶离子的激发。也就是说，用此方法产生高电子密度等离子体时，其激发能量的利用效率还是较高的。

从图所示的激光氧气等离子体演化过程可以看出其线状光谱演化的一些突出特点。首先，在初始激发光谱中出现的离子谱线均呈现出很快的衰减速率，大约在  $0.1 \sim 0.5 \mu\text{s}$  期间，这些离子谱线基本上衰减到零。但是，在此后激光大气

等离子体中又有一批新的线状光谱出现，并相继经历各自的“增涨-衰减”过程，其持续时间可延至激发激光脉冲后几十微秒。对这些谱线的认证表明，这些新生的光谱多来自中性的氧原子的辐射光谱辐射。这种时间演化特性的典型例子是图 3 所示的氧原子  $\text{O}777.4 \text{ nm}$  的时间演化测量结果。可见，这些谱线的时间演化确实具有复杂形式，都可明显看出其滞后于激发激光脉冲的增涨和衰减过程。我们认为，这类谱线主要产生于激光大气等离子体复合过程中的中性粒子激发态再集居。

从表 1 还可以看出，并不是所有的氧原子的衰减时间都是数十微秒，也存在寿命较短的原子光谱。我们认为这一实验结果是各种氧原子的来源不同所致。例如  $\text{O}777.4 \text{ nm}$ ，是我们所观测到的所有线状光谱中寿命最长的线状谱，根据文献[9]给出的原子能级图，我们可以得到图 5 所示部分氧原子的能级图。

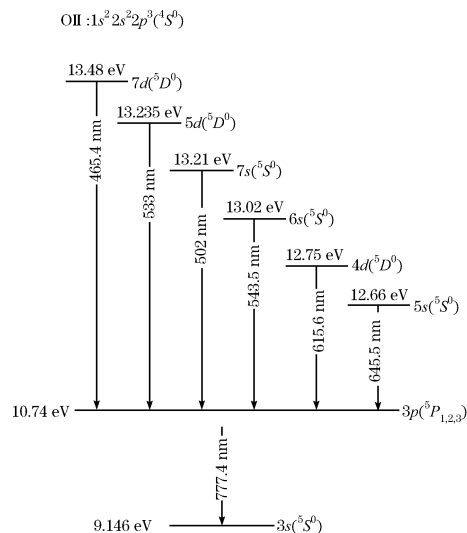
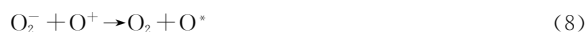
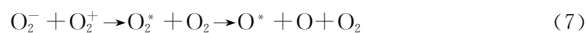
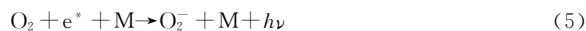
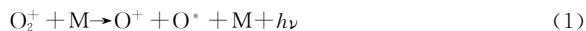


Fig. 5 Part of atomic energy levels of oxygen

从中我们不难看出， $3p(^5P)$ 态的氧原子可以同时由 6 种不同的高能态的氧原子产生，因此它的寿命最长是很好理解的。一般来说，在激光氧等离子体形成以后（非激光作用下），产生激发态氧原子的过程有以下几种：



式中 M 表示碰撞的第三体，至于这六种更高的能级分别由哪些过程产生的这一问题，我们目前正在研究，相信不久的将来会有详细的报道。但是有一点可以肯定，氧的吸附(5)和去吸附过程(6)是在等离子体衰变后期( $>0.5 \mu\text{s}$ )产生大量长寿命氧原子光谱的重要原因。

### 3 总 结

通过实验得到了激光氧等离子体中各种光谱成分的时间演化特性，分析其产生的原因，并通过谱线强度随时间演化的方法获得了各种线状光谱的演化过程。这些的结果使我们能够确认激光大气等离子体复合过程中氧的吸附作用是减缓复合速度的重要原因，进一步研究这一过程将有助于帮助我们找到延缓等离子体衰减的方法，从而为激光大气等离子体应用研究开辟新的思路。

### 参 考 文 献

- [1] Meyard R G, Haught A F. Phys. Rev. Lett., 1963, 11: 401.
- [2] Grey-Morgan C. Rep. Prog. Phys., 1975, 38: 621 and reference therein.
- [3] La Fontaine B, Vidal F, Comtois D. IEEE Trans. Plas. Sci., 1999, 27: 688.
- [4] Radzieski L J, Cremers D A, Hoffman N M. Anal. Chem., 1983, 55: 1246.
- [5] LIN Zhao-xiang, CHANG Qi-hai, CHENG Xue-wu, et al(林兆祥, 常启海, 程学武, 等). Nuclear Physics Review(原子核物理评论), 2002, 19: 88.
- [6] LIN Zhao-xiang, LI Xiao-yin, CHENG Xue-wu, et al(林兆祥, 李小银, 程学武, 等). Spectroscopy and Spectral Analysis(光谱学与光谱分析), 2003, 23: 421.
- [7] LI Xiao-yin, LIN Zhao-xiang, LIU Yu-yan, et al(李小银, 林兆祥, 刘煜炎, 等). Acta Optica Sinica(光学学报), 2004, 24: 1051.
- [8] LIN Zhao-xiang, WU Jin-quan, GONG Shun-sheng(林兆祥, 吴金泉, 龚顺生). Optics and Optoelectronic Technology(光学与光电子技术), 2005, 3(1): 22.
- [9] Bashkin Stanley, Stoner John O. Atomic Energy Levels and Grotrian Diagrams. Amsterdam: North-Holland Publishing Company. Oxford American Elsevier Publishing Company, INC., 1978.
- [10] Krupenie Paul K. J. Phy. Chem. Ref. Data, 1972, 1: 423.
- [11] Demichelis C. IEEE Journal of Quantum Electronics, 1969, QE-5: 188.
- [12] Yu P Raizer. Sov. Phy. Usp., 1980, 23(11): 789.
- [13] Laux C O, Gessman R J, Kruger C H, et al. Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, 2001, 68(4): 473.
- [14] Normand D, Cornaggia C, Lavancier J, et al. Phys. Rev. A, 1991, 44: 475.

# The Time-Evolution Study on the Laser-Induced Oxygen Plasmas Spectra

LIN Zhao-xiang<sup>1</sup>, WU Jin-quan<sup>2</sup>

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

2. Center of Computing and Experimenting, South-Central University for Nationalities, Wuhan 430074, China

**Abstract** The present paper reports the results of spectroscopic study on the oxygen plasma induced by a pulsed laser with a wavelength of 1.06  $\mu\text{m}$ . The gas samples were pure oxygen (99.999 9%) and the spectral range was from 300 to 900 nm. The temporal behavior of the spectra was measured. The experiment results showed that the spectra could be divided into continuous spectra and line spectra. Each component of the spectra attenuated according to the disparate mode along temporal development. The microcosmic physical processes and mechanisms were analyzed. The reason for the longer plasma spectral lifetime was discussed. These works were helpful to better understanding of the microscopic mechanisms during the decay of the laser-induced air plasmas, and also provide more experimental evidences for prolonging the decay time of plasmas in some technical applications.

**Keywords** Laser induced plasma; Oxygen; Temporal development; Spectra

(Received Sep. 8, 2005; accepted Nov. 28, 2005)

## 《光谱学与光谱分析》2006 年征订启事

欢迎投稿 欢迎订阅

《光谱学与光谱分析》1981 年创刊，国内统一刊号：CN 11-2200/O4，国际标准刊号：ISSN 1000-0593，CODEN 码：GYGFED，国内外公开发刊，大 16 开本，192 页，月刊；是中国科协主管，中国光学学会主办，钢铁研究总院、中国科学院物理研究所、北京大学、清华大学共同承办的学术性刊物。北京大学出版社出版，每期售价 30.00 元，全年 360 元；国内邮发代码 82-68，国外发行代码 M905。刊登主要内容：激光光谱测量、红外、拉曼、紫外、可见光谱、发射光谱、吸收光谱、X 射线荧光光谱、激光显微光谱、光谱化学分析、国内外光谱化学分析领域内的最新研究成果、开创性研究论文、学科发展前沿和最新进展、综合评述、研究简报、问题讨论、书刊评述。

《光谱学与光谱分析》适用于冶金、地质、机械、环境保护、国防、天文、医药、农林、化学化工、商检等各领域的科学研究单位、高等院校、制造厂家、从事光谱学与光谱分析的研究人员、高校有关专业的师生、管理干部。

《光谱学与光谱分析》为我国首批自然科学核心期刊，中国科协优秀科技期刊，中国科协择优支持基础性、高科技学术期刊，中国科技论文统计源刊，“中国科学引文数据库”，“中国物理文摘”，“中国学术期刊文摘”，同时被国内外的 CSCI, SCI, AA, CA, EI, PKJ, MEDLINE 等文献机构收录。根据国家科技部信息研究所发布信息，中国科技期刊物理类影响因子及引文量《光谱学与光谱分析》都居前几位。

《光谱学与光谱分析》的主管单位为中国科协，主办单位为中国光学学会，承办单位为钢铁研究总院、中国科学院物理研究所、北京大学、清华大学。《光谱学与光谱分析》的主编为黄本立院士。

欢迎新老客户到全国各地邮局订阅，若有漏订者可直接与光谱学与光谱分析期刊社联系。

联系地址：北京市海淀区学院南路 76 号，光谱学与光谱分析期刊社

邮政编码：100081

联系电话：010-62181070, 62182998

电子信箱：chnghpxygpfx@vip.sina.com; 修改稿专用邮箱：mengzh1018@vip.sina.com

网 址：<http://gpxygpfx.periodicals.net.cn>