

摘要

飞秒涡旋光束在空气中诱导氮荧光发射研究

作者：王雅秋

专业：原子与分子物理

指导教师：李苏宇 副教授

强飞秒激光脉冲在空气中传播，受到自聚焦效应和散焦效应作用，会形成等离子体细丝。飞秒激光在空气中成丝可以辐射出荧光，通过分析和测量荧光光谱，能够深入了解空气中的原子分子经历的动力学过程。涡旋光束是一种具有螺旋形相位波前且中心光强为零的奇异光束，其包含的每一个光子都具有轨道角动量，光束携带的轨道角动量会转移到成丝过程中产生的激发态分子和离子上，会提高成丝过程的复杂程度，从而不可避免地影响荧光发射。然而，关于飞秒涡旋光束成丝诱导荧光发射的研究很少。

本论文研究了飞秒涡旋光束在空气中的氮荧光发射特性。在理论方面，我们首先介绍了飞秒激光成丝的主要物理过程，包含成丝的机制，成丝中的非线性现象。然后主要从分类、产生方法及测量方法三个方面介绍了涡旋光束。在实验方面，我们通过控制空间光调制器来改变拓扑电荷，光谱仪记录不同波长谱线的荧光信号随传播距离的变化，来研究拓扑电荷对涡旋光束成丝诱导的氮荧光发射的影响。研究发现拓扑电荷对飞秒成丝诱导的氮荧光发射有很大影响：氮分子(如 337、357 和 380 nm 谱线)和氮分子离子 (如 391 和 428 nm 谱线)的荧光信号沿传播方向的强度分布有很大差异。根据实验结果，分析讨论了氮荧光的产生机制，发现系间窜越过程可以解释这种差异，这表明在 $N_2(C^3\Pi_u^+)$ 的形成中系间窜越过程扮演了重要的角色。

这项研究促进了对飞秒涡旋激光在空气中成丝产生荧光物理过程的理解，为光与物质的自旋-轨道相互作用奠定了研究基础。

关键词：

飞秒激光脉冲，涡旋光束，成丝，氮荧光

Abstract

Nitrogen fluorescence emission induced by femtosecond vortex beams in air

Author: Yaqiu Wang

Specialty: Atomic and molecular physics

Advisor: Associate Professor Suyu Li

As the femtosecond laser pulse propagates in air, a self-induced plasma channel is generated due to the Kerr self-focusing effect and plasma defocusing effect. Femtosecond laser filaments in the air can radiate fluorescence. By analyzing and measuring the fluorescence spectrum induced by femtosecond laser filamentation, we can gain insight into the dynamics of atoms and molecules in the air. Vortex beams have a helical wave-front and a phase singularity at the pulse center, and each photon in vortex beams carries an OAM. The OAM carried by the beam will be transferred to the excited molecules and molecular ions generated during the filamentation in air. It will increase the complexity of the filamentation process, and inevitably affect the accompanied fluorescence emission. However, there are few studies on the fluorescence emission induced by the filamentation of femtosecond vortex beams.

In this paper, we experimentally study the variation of characteristic nitrogen fluorescence signals induced by femtosecond vortex beams in air with the propagation distance. In theory, we firstly introduce the physical process of the femtosecond laser filamentation, including the mechanism of filament formation, nonlinear phenomena in filamentation. Then the vortex beam is described from three aspects: beam type, generation and measurement. In experiments, we study the effect of topological charge on the nitrogen fluorescence emission induced by femtosecond vortex beams in air by controlling the spatial light modulator to change the topological charge, and the fluorescence signals of spectral lines with different wavelengths are recorded by

the spectrometer along with the propagation distance. It is found that the topological charge has a great influence on the nitrogen fluorescence emission induced by a femtosecond filament: the fluorescence signals from nitrogen molecules (e.g., 337, 357 and 380 nm spectral lines) and molecular nitrogen ions (e.g., 391 and 428 nm spectral lines) differ much in the intensity distribution along the propagation direction. Based on the experimental results, the discrepancy is explained by revisiting the generation mechanisms for nitrogen fluorescence, and it is found that the intersystem crossing scheme can account for it, indicating that in the formation of $\text{N}_2(\text{C}^3\Pi_u^+)$, the intersystem crossing scheme plays a leading role.

This work is helpful to the understanding of the physical mechanism of fluorescence emission induced by the filamentation of femtosecond vortex beams in air. And it lays a foundation for the study of spin-orbit interaction between light and matter.

Keywords:

femtosecond laser pulse, vortex beam, filamentation, nitrogen fluorescence

目 录

摘 要.....	I
Abstract.....	III
第一章 绪论	1
1.1 引言.....	1
1.2 成丝简介.....	1
1.3 飞秒激光成丝的主要物理过程	3
1.3.1 光强钳制.....	4
1.3.2 自相位调制.....	4
1.3.3 光电离.....	5
1.3.4 多丝现象.....	6
1.4 成丝的控制	7
1.4.1 改变激光的强度分布	8
1.4.2 调节激光初始参数.....	8
1.4.3 其他方法.....	8
1.5 等离子体细丝的测定	10
1.6 本章小结及本论文的主要工作	10
第二章 涡旋光束的介绍	12
2.1 涡旋光束的介绍	12
2.1.1 拉盖尔-高斯光束	13

2.1.2 贝塞尔光束.....	14
2.2 涡旋光束的测量	16
2.2.1 涡旋光束与波的干涉	17
2.2.2 马赫-曾德尔干涉法	18
2.2.3 组合半波片测量法.....	19
2.3 本章小结.....	22
第三章 飞秒涡旋光束在空气中诱导氮荧光发射	23
3.1 引言.....	23
3.2 飞秒涡旋激光的产生	24
3.2.1 激光器直接输出涡旋光束	24
3.2.2 在自由空间中产生涡旋光束	24
3.2.3 在光纤中产生涡旋光束	26
3.3 实验方法.....	28
3.3.1 LG 光束的生成	28
3.3.2 荧光信号的收集.....	29
3.4 结果与讨论	30
3.4.1 TC 对飞秒涡旋光束荧光发射的影响	30
3.4.2 荧光发射的产生机理	37
3.5 本章小结.....	40
第四章 总结与展望	42

4.1 总结.....	42
4.2 展望.....	44
参考文献	45
作者简介	53
致 谢.....	54

第一章 绪论

1.1 引言

处于激发态的分子和原子在受到外来辐射场影响下，从高能级跃迁低能级，会以光子的形式释放能量，此过程称为受激辐射，且外来辐射的能量为两能级的能量差。激光的原理是受激辐射，相比普通光源，其具有单色性、方向性好，亮度高等特点。激光的诞生，标志着光学进入了新篇章。

人们对光学的认知应该追溯于墨子时期，《墨经》中记录了光沿直线传播和小孔成像现象。之后很长一段时间，人们一直在进行对光学现象的探究。直到爱因斯坦在 1917 年提出了受激辐射理论，为激光的产生奠定了基础。Schawlow 和 Townes 等人^[1]于 1958 年第一次实现了微波的受激辐射放大。随后研究者经过大量实验研究，于 1960 年产生第一台红宝石激光器^[2]，标志着光学进入了新篇章。1965 年出现的锁膜技术^[3]，可以实现对激光的振幅调制，使脉冲激光技术更加完善。随着激光技术的逐步发展，人们更希望产生更短脉宽、更高能量的激光，从连续光到皮秒、纳秒到飞秒和阿秒激光。

飞秒激光由于其短脉冲和强度高的优点被应用于科学研究和实际生活中。在与物质相互作用方面，飞秒激光可以用来测量粒子的微观运动^[4]。在微纳加工方面，由于其强度大、作用时间短，可以有效避免材料的热效应^[5]。在实际生活中，飞秒激光可以广泛应用于视力矫正手术、基因突变引起的疾病治疗等医学手术中^[6, 7]。

1.2 成丝简介

飞秒激光产生后，人们开始研究其在各种非线性介质的传输过程。在早期的研究中，人们主要集中在纳米量级的脉冲^[8]。但由于物质相互作用的时间小于纳米量级，产生的等离子体通道很短，因此研究者们认为强激光脉冲不适合在空气中长距离传输。一直到 1995 年，Braun 等人利用脉宽 200 fs、重复频率 10 Hz、

波长 775 nm、能量 15 mJ 的飞秒激光脉冲在空气中传播^[9]，发现在传播路径的反射镜上有损伤，激光强度没有减弱，反而增强了。这证明飞秒激光在空气中产生了自聚焦效应，可以长距离传输，我们称这种传输过程为成丝。后续越来越多的研究者证明飞秒激光在空气中可以长距离传输，且生成的丝可达到 km 量级^[10, 11]。

飞秒激光脉冲在空气中传播，介质的折射率会发生改变，可以表示为^[12]：

$$n \approx n_0 + n_2 I(r, t) \quad (1.1)$$

式中 n_0 是线性折射率， $n_2 = \frac{3\text{Re}(\chi^{(3)})}{2n_0}$ 是非线性克尔系数， I 为激光光强。由于高斯光束的光强分布不均匀，即光束中心位置的强度高，边缘处强度低。使得其在空气中传播时，会引起介质中心的折射率高于边缘的折射率，对光束有类似凸透镜的作用效果，使光束会聚。这种过程称为自聚焦效应，如图 1.1(a)。

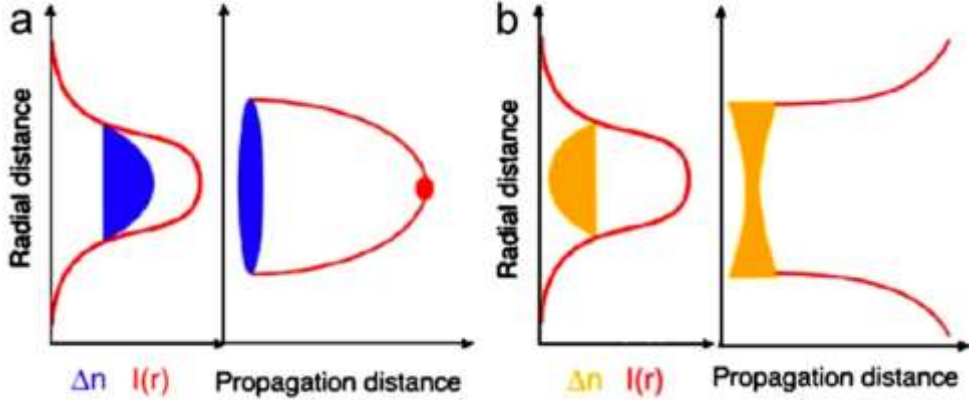


图 1.1 成丝过程中(a)自聚焦效应；(b)散焦效应^[13]。

脉冲强度由于自聚焦效应作用会不断增加，直到达到一定值(空气中原子、分子的电离阈值)时，会发生光电离，形成低密度的等离子体。这些等离子体会导致空气的折射率降低，从而影响光束在空气中的传播。我们称其为等离子体的散焦效应，如图 1.1(b)所示。等离子体产生所引起的折射率的变化表示为：

$$\Delta n(r, t) = -\frac{\rho(r, t)}{2\rho_c} \quad (1.2)$$

其中 $\rho(r, t)$ 为自由电子密度。 $\rho_c = \epsilon_0 m_e \omega_0^2 / e^2$ 为等离子体临界密度。

这两种效应一直存在于激光脉冲的传播中，二者相互竞争，最终达到平衡，且为动态平衡，形成等离子体细丝，如图 1.2 所示。

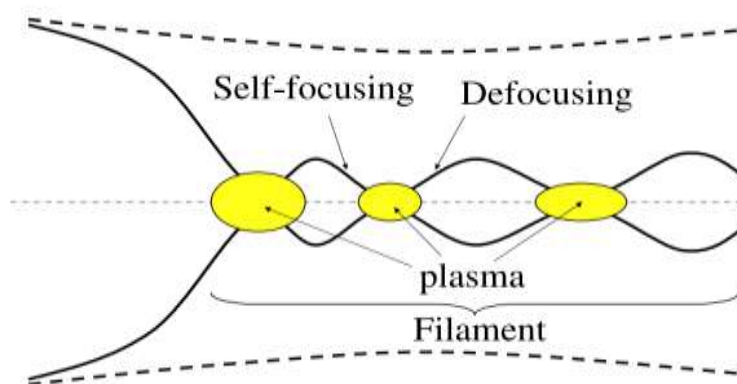


图 1.2 激光脉冲在空气中形成的等离子体细丝示意图^[14]。

关于飞秒激光成丝的机制，研究者提出了如下三种模型。

移动焦点模型：激光脉冲可以看作是由一片片有特定的功率的时间切片组成^[15, 16]。当切片的峰值功率大于自聚焦临界功率时，会发生自聚焦效应，峰值越大，切片成丝的位置就越靠前^[8, 17]。而功率小于自聚焦临界功率的切片会发生衍射，这些时间切片集合在一起形成了丝。

自引导模型：等离子体细丝的形成主要与克尔自聚焦效应、等离子体散焦效应以及脉冲自身的衍射有关^[9]。当飞秒激光在空气中传输时，这三种效应相互竞争，达到动态平衡，最终形成细丝。由于过程中会消耗一部分能量，所以丝不会一直形成。

空间动态补偿模型：激光脉冲在介质中传播时，脉冲前沿强度由于克尔自聚焦效应会不断增加，直到达到一定值(空气中原子、分子的电离阈值)时，会发生光电离，产生低密度的等离子体，从而引起脉冲后沿经历散焦过程^[18, 19]。同时，由于多光子吸收效应作用，等离子体随着脉冲前沿强度降低而减少。此时，脉冲的自聚焦效应又会得到加强，使光束发生再聚焦，最后形成周期性的聚焦-散焦-再聚焦过程，使激光脉冲实现长距离传播。

1.3 飞秒激光成丝的主要物理过程

飞秒激光脉冲在空气中传播时，成丝过程会产生多种非线性效应，例如光强

钳制、自相位调制、光电离和多丝现象等。下面对这几种非线性现象的物理机制进行简单地介绍。

1.3.1 光强钳制

通过前面成丝模型的介绍，克尔自聚焦效应、光束自身的衍射和等离子体散焦效应一直贯穿于等离子体细丝的形成过程中。其中自聚焦效应对光束有会聚作用，使脉冲强度不断增加。而散焦效应对光束有发散作用，使脉冲强度降低，抑制这种增加。这样在一定程度上限制了激光脉冲的强度，使激光强度钳制于一定值，我们称这种现象为光强钳制(clamped intensity)，称“一定值”为钳制强度。

Braun 等人^[9]在 1995 年，提出钳制强度可以描述为：

$$n_2 I = \frac{\rho(I)}{2\rho_c} + \frac{(1.22\lambda_0)}{8\pi n_0 w_0^2} \quad (1.3)$$

其中，光丝直径为 $w_0 \sim \left(\frac{2P_{cr}}{\pi}\right)^{1/2} \left(\frac{\sigma_K \tau_p \rho_{at}}{0.76n_2 \rho_c}\right)^{1/2(K-1)}$ ，等离子体密度为

$$\rho(I) \sim \left[\frac{(0.76n_2 \rho_c)^K}{\sigma_K \tau_p \rho_{at}} \right]^{1/(K-1)}, \text{ 通过计算，得出光丝中光强为 } I \sim \left(\frac{0.76n_2 \rho_c}{\sigma_K \tau_p \rho_{at}} \right)^{1/(K-1)}。$$

研究者们针对光强钳制进行了大量研究。Kasparian 等人计算得出，激光强度在空气中的钳制光强约为 $5 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ ，等离子体丝直径可达到约为 $100 \mu\text{m}$ ^[20, 21]。Brodeur 等人得出在凝聚态介质中，丝的直径可以达到几微米^[22, 23]。Li 等人发现激光在火焰中也会有光强钳制效应，钳制强度大约是空气中的一半^[24]。在后续的研究中，人们证实激光在液态介质中也存在光强钳制^[25]。

1.3.2 自相位调制

在前面对自聚焦效应的介绍中，当激光脉冲强度很大时，介质的折射率会随强度变化。根据光束在介质中传播的折射率公式 $n(t) = n_0 + n_2 I(t)$ ，可以得出介质折射率与激光脉冲强度随时间的变化有关，这会导致光束在传播过程中发生相位移动，产生新的频率成分，这一过程称为自相位调制(Self-phase modulation: SPM)。此时激光的瞬时频率为：

$$\omega(t) = -\frac{\partial \phi}{\partial t} \approx \omega_0 - \frac{n_2 \omega_0}{c} z \frac{\partial I(r, t)}{\partial t} \quad (1.4)$$

其中 z 为激光的传播距离， $\frac{\partial I}{\partial t}$ 是激光强度随时间的变化函数，

$\Delta \omega(t) = -\frac{n_2 \omega_0}{c} z \frac{\partial I(r, t)}{\partial t}$ 为新的频率部分。

自相位调制使脉冲获得了一个频率调制，对应脉冲前端频率减小产生红移谱分量，脉冲后沿出现频率增大产生蓝移谱分量，从而使光谱得到展宽，如图 1.3 所示。

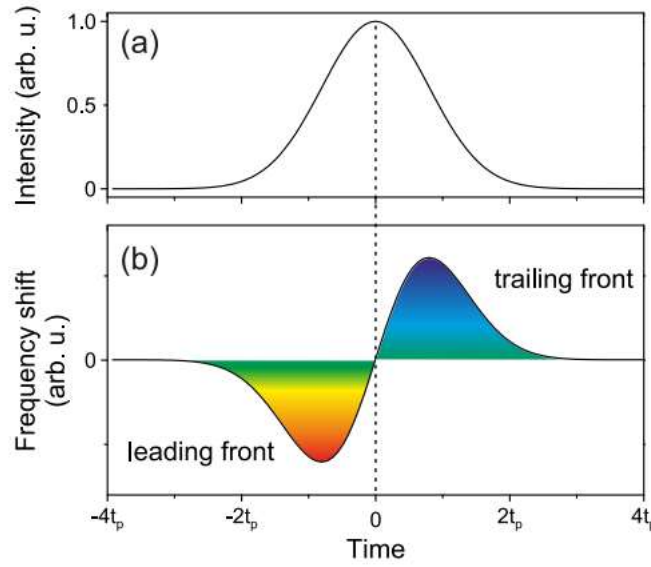


图 1.3 (a)高斯脉冲的自相位调制；(b)其产生瞬时频率的变化^[26]。

1.3.3 光电离

飞秒激光在介质中传播时，由于自聚焦效应作用脉冲强度会增强，当达到一定强度时，介质中的原子与分子的电子会吸收光子由束缚态变为连续态，该过程称为光电离。光电离可以分为多光子电离^[25]、隧穿电离^[27, 28]和越垒电离^[29, 30]三种。

激光在空气中传播，通常是多个光子同时参与反应，因此出现了多光子的概念。多光子电离(multiphoton: MPI)是指原子中的束缚电子吸收多个光子，能够实现从束缚态到连续态的跃迁，如图 1.4(a)所示。要想实现多光子电离，激光脉冲强度必须足够大。但是要想实现能级的移动，电子需要更多的能量摆脱束缚，实际上电子吸收的光子要大于多光子电离需要的光子，这个过程叫做阈上电离

以上内容仅为本文档的试下载部分，为可阅读页数的一半内容。如要下载或阅读全文，请访问：<https://d.book118.com/208053134070006042>