

激光诱导击穿空气等离子体参数的光谱分析法

汪桂霞, 苏俊宏, 徐均琪, 王青松
(西安工业大学光电工程学院, 陕西 西安 710021)

摘要:空气等离子体的电子温度和密度对激光诱导空气击穿等离子体产生闪光过程的研究有着重要的意义, 本文将纳秒 Nd:YAG 脉冲激光(1064 nm)聚焦于大气中, 诱导其产生等离子体闪光, 并通过 Avantes-ULS3648 型 9 通道的光谱仪采集闪光光谱, 通过光谱分析, 研究了不同延迟时间下激光诱导击穿空气等离子体产生过程中的等离子体电子温度和电子密度的变化情况。根据同一元素不同峰值位发出的光谱, 由相对强度比较法可以得出等离子体电子温度, 由斯塔克展宽法可得到等离子体电子密度的变化, 通过分析发现, 等离子体电子温度和密度均随延迟时间的增大而下降。这些结果对研究强激光作用下空气击穿的气体动力理论机制有一定的科学意义。

关键词:激光诱导击穿光谱(LIBS); 空气等离子体; 等离子体闪光; 电子温度; 电子密度

中图分类号:TN249 **文献标识码:**A **DOI:**10.3969/j.issn.1001-5078.2018.09.003

Spectrum analysis on laser-induced air breakdown plasma parameters

WANG Gui-xia, SU Jun-hong, XU Jun-qi, WANG Qing-song
(Department of Photoelectric Engineering, Xi'an Technological University, Xi'an 710021, China)

Abstract: The electron temperature and density of air plasma have important meanings for researching the process of laser-induced air breakdown plasma. A nanosecond Nd:YAG laser with a wavelength of 1064 nm is used. When the laser is focused on the atmosphere, it will produce a plasma flash. The spectrum of the resulting air breakdown plasma is collected using a Avantes - ULS3648 spectrometer with nine separate channels. The changes of electron temperature and density of the plasma at different delay time are studied by spectral analysis. According to the spectrum of a given element with different peak positions, the electron temperature of the plasma can be obtained by employing the intensity comparative method, and the electron density of the plasma can be obtained by the Stark broadening method. Analysis results show that both the electron temperature and density of the air plasma decrease with the increase of the delay time. This results have a certain scientific significance for aerodynamic theory of air breakdown under high power laser.

Key words: laser-induced breakdown spectroscopy (LIBS); air plasmas; plasmas spark; electron temperature; electron density

基金项目:国家自然科学基金项目(No. 61378050); 科技部国际科技合作项目(No. 2013DFR70620); 陕西省国际合作项目(No. 2016KW-036) 资助。

作者简介:汪桂霞(1982-), 女, 讲师, 在读博士, 主要从事激光薄膜损伤方面的研究。E-mail: noragirl6@126.com

通讯作者:苏俊宏(1963-), 男, 教授, 博士, 主要从事薄膜激光损伤及干涉测量方面的研究。E-mail: sujihong@126.com

收稿日期:2018-01-09; **修订日期:**2018-03-06

1 引言

强激光在空气中经透镜聚焦后,当光束的能量密度超过空气击穿阈值时,在激光束的强电场作用下,空气会发生电离,电离后的电子激烈碰撞,会产生类似于电子崩的现象,同时,空气会对激光进行强烈的吸收,空气的压力会急剧升高,体积膨胀,发生小范围的爆炸,这种现象称为光学击穿,一般光学击穿最先在焦点附近发生^[1-5]。这种光学击穿引起的小范围爆炸过程中,人们就可以观测到激光诱导击穿空气等离子体闪光,闪光的点燃以及闪光过程不仅蕴含了空气等离子体电子温度和密度及其时间演化的信息,还蕴含了获得空气等离子体闪光时各种物理过程及其时间演化的信息。

目前,人们已经对激光诱导气体产生等离子体闪光现象进行了大量的研究。在激光产生等离子体闪光光谱方面,Young^[6]等人发现等离子体闪光中的紫外光很强,能被用作光源,其光谱强度超过启动激光的闪光光源;刘玉峰^[7]等人给出了激光诱导击穿大气等离子体光谱随时间演化的直观图像。等离子体闪光也是一种激光维持的爆轰波,在激光聚焦介质时,只有当激光强度达到一定值时,才能发生光学击穿,产生等离子体闪光,通常将能够维持爆轰波传播的最小激光强度称为激光维持爆轰波的传播阈值^[8]。Pirri 等人^[9]和 Mori 等人^[10]人围绕激光维持的爆轰波阈值进行了研究,发现在空气中,激光维持的爆轰波的传播阈值约为 10^7 W/cm^2 ,且其与透镜焦距与激光聚焦光斑直径的比值有很大关系。Sturmer 等人^[11]、Mori 等人^[12]、Kim 等人^[13]和周军等人^[14]做了大量的研究工作,他们得到了激光维持的爆轰波持续时间及过程的许多重要规律及结论。Kawahara 等人^[15]采用光谱仪配合 ICCD 相机测量了等离子体云中不同位置处温度随时间的变化,发现了等离子体闪光时激光维持的爆轰波流场的一些变化规律。但是却少见对激光诱导空气产生等离子体的电子温度和电子密度随延迟时间变化规律的详细报道。本文基于光谱分析对激光诱导击穿空气等离子体的温度和电子密度随延迟时间的变化进行了计算,得到了它们随时间变化的规律。

2 实验原理及装置

每一种物质都有其固定的发光光谱,分析空气闪光光谱,提取光谱的特征发射峰,根据光谱线波长

表,可建立起空气中的元素与其对应的闪光光谱波峰数据库。空气中主要含有 N、O、C、H 等元素,发生空气击穿时,等离子体闪光光谱中可能出现 N、O、C、H 等元素及其相互间组合的电子跃迁特征峰,故可以根据处理分析这些特征发射峰,对激光诱导空气击穿等离子体产生闪光过程中空气等离子体的电子温度和密度进行计算,从而为进一步研究强激光作用下空气击穿的气体动力理论机制打下基础。

激光诱导击穿空气等离子体参数研究的实验原理示意图如图 1 所示。强激光经过光学系统聚焦后,作用于大气而发生闪光,此时光谱仪将等离子体闪光的光谱图记录下来,并传输到计算机内。图 2 为实验装置实物图。装置由光源及衰减片、聚焦光路及控制系统和光谱数据采集和处理几部分组成。实验使用的高功率 Nd:YAG 固体激光器的激光输出波长为 1064 nm,输出能量为 243 mJ,脉冲宽度 10 ns。输出的激光先经过一个衰减器,再经一个焦距为 50 mm 的透镜聚焦到大气中,为了保证激光器输出能量的稳定性,本实验中激光器的输入电压保持不变,对强激光作用下大气产生的激光等离子体光谱,采用 Avantes-ULS3648 型 9 通道的光谱仪进行采集,测试范围为 240 ~ 1075 nm,平均分辨率为 0.12 nm。

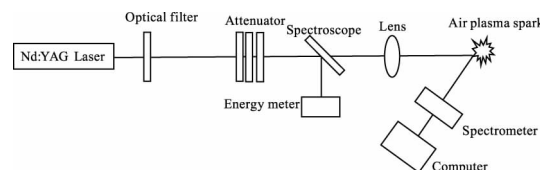


图1 实验原理示意图

Fig. 1 Experimental schematic diagram

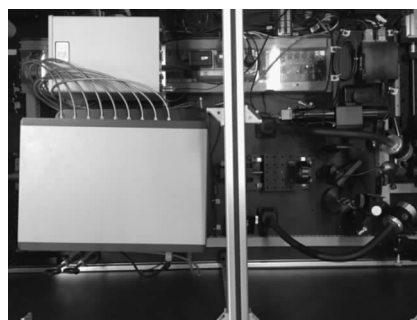


图2 实验装置图

Fig. 2 Experimental apparatus diagram

3 实验结果与分析

3.1 激光诱导击穿空气等离子体光谱分析

由于激光等离子体光谱具有很强的连续背景光

谱,而这种连续背景光谱的持续时间很短,衰减速度快。为了保证光纤光谱仪能接收到足够的光谱信息,实验选取积分时间为5 ms。而有文献报道^[16]等离子体闪光的点燃时间在数十纳秒以内,为了确保光谱仪采集的光谱是空气等离子体闪光点燃后的光谱,在实验中选择延迟时间分别为80 ns,90 ns,100 ns,110 ns,120 ns,130 ns时的光谱曲线,来分析不同延迟时间下激光诱导击穿空气等离子体产生过程中的等离子体温度和电子密度的变化情况。

图3为不同延迟时间下光谱线图,可以看出,激光诱导击穿空气等离子体光谱是由连续光谱和线状光谱叠加而成,激光空气等离子体中的中性原子的谱线大多分布在700~900 nm的红外光谱范围内,这与报道^[7]基本一致。另外,随着延迟时间的增加,700~900 nm内谱线强度峰值逐渐减小。光谱仪同时采集到了作用激光的光谱线,在1064 nm谱线强度峰值在不同的延迟时间基本保持不变。

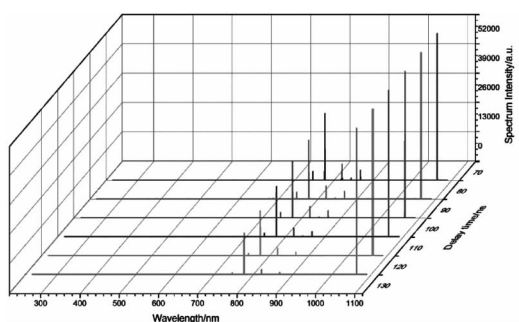


图3 不同延迟时间下的光谱线对比图

Fig. 3 Comparison among spectral lines of air with different delay times

3.2 激光诱导击穿空气等离子体参数分析

3.2.1 等离子体电子温度的计算

假设等离子体满足局部热平衡,即电子速度符合麦克斯韦分布,束缚电子在分立能级上的分布符合玻尔兹曼分布,带电离子密度符合沙哈方程,这个时候的激发温度等于等离子体电子温度,由相对强度比较法得:

$$\ln \frac{I_1}{I_2} = \ln \frac{A_1 g_1 \nu_1}{A_2 g_2 \nu_2} - \frac{E_1 - E_2}{k_B T} \quad (1)$$

式中, g_1, g_2 分别为能量为 E_1, E_2 能级时的简并度(某一个能级上电子可以存在的状态数); A_1, A_2 表示跃迁几率; I_1, I_2 表示谱线强度; ν_1, ν_2 表示谱线波长的倒数; k_B 表示玻耳兹曼常数; T 表示等离子体电子温度。在实际计算过程中发现两条谱线选取

必须满足以下条件:两条谱线必须是同一元素的发射谱;两条谱线之一必须是一种元素的最后线(随着延迟时间增加,最后消失的谱线称为最后线);两条谱线波长不能相隔太近。

对比美国国家标准与技术研究院(National Institute of Standards and Technology, NIST)原子光谱数据库(Atomic Spec-tra Database Lines Data)的标准谱线波长,本实验中选择谱线为 $N(I)746.78$ nm和821.58 nm,最后线为821.58 nm。

根据NIST原子光谱数据库,具体延迟时间对应的光谱信息如表1所示, $\Delta\lambda$ 表示谱线的半高全宽。

表1 两条谱线光谱信息表

Tab. 1 Information comparison between two spectral lines

	延迟时间 /ns	谱线波长		延迟时间 /ns	谱线波长	
		746.78 nm	821.58 nm		746.78 nm	821.58 nm
A_g/s^{-1}	80	7.84×10^7	1.36×10^8	90	7.84×10^7	1.36×10^8
E/eV		11.9955752	11.8444769		11.9955752	11.8444769
I		3748	6882		2886	5598
$\Delta\lambda/nm$		0.16	0.23		0.15	0.22
A_g/s^{-1}	100	7.84×10^7	1.36×10^8	110	7.84×10^7	1.36×10^8
E/eV		11.9955752	11.8444769		11.9955752	11.8444769
I		2344	4979		1493	3723
$\Delta\lambda/nm$		0.14	0.21		0.12	0.19
A_g/s^{-1}	120	7.84×10^7	1.36×10^8	130	7.84×10^7	1.36×10^8
E/eV		11.9955752	11.8444769		11.9955752	11.8444769
I		852	3153		537	2060
$\Delta\lambda/nm$		0.10	0.18		0.08	0.14

由表1数据可以看出,随着延迟时间的增加,选取的两条谱线的强度都在依次减小,且由表1可知, $A_1 g_1 = 7.84 \times 10^7 s^{-1}$, $A_2 g_2 = 1.36 \times 10^8 s^{-1}$, $\nu_1 = \frac{1}{746.78}$, $\nu_2 = \frac{1}{821.58}$ 。而 $k_B = 1.3806505 \times 10^{-23}$,结合表1数据,代入公式(1),可以求得不同延迟时间的等离子体电子温度,计算结果见表2。

表2 等离子体电子温度计算结果表

Tab. 2 Calculated results of electron temperature of air plasma

延迟时间/ns	80	90	100	110	120	130
$T/(\times 10^4 K)$	1.1510	0.8463	0.5883	0.3825	0.2055	0.1972

由表2可以得到延迟时间与激光诱导击穿空气等离子体电子温度之间的关系如图4所示,可以看出,随着延迟时间的增加,等离子体电子温度降低,并且用激光诱导击穿空气产生的空气等离子体电子

温度很高,可达到 10^4 K,这与文献^[7,16]报道结果一致。从拟合曲线中可以看出,当延迟时间是 84.7 ns 时,电子温度约为 1×10^4 K,当延迟时间是 103.4 ns 时,电子温度降为 0.5×10^4 K,说明在不到 20 ns 时间内,激光诱导击穿空气等离子体电子温度随时间衰减迅速,即此时正处于空气等离子体产生的初期,与等离子体电子温度密切相关的韧致辐射过程和解离复合过程都很强,这与文献^[7]报道结果相近。

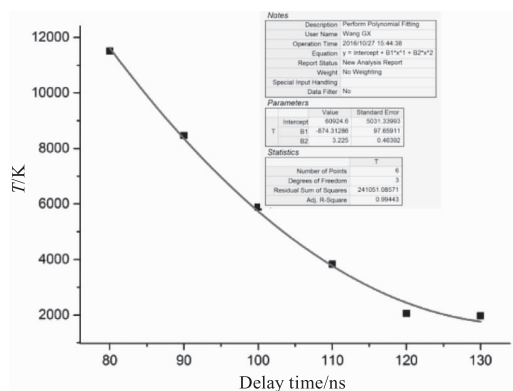


图4 等离子体电子温度随延迟时间变化图

Fig. 4 Curve of delay time and electron temperature of plasma

3.2.2 等离子体电子密度的计算

电子密度 (N_e) 也是表征激光诱导空气等离子体光谱特性的重要参数,它直接影响等离子体形成及膨胀过程中的许多动力学反应速率。基于光谱线的宽度是等离子体电子密度的函数,从实验测得的谱线的半高全宽可获得等离子体电子密度,在激光诱导击穿产生的等离子体基础上,由于电子展宽的贡献占主要地位,故有:

$$\Delta\lambda = 2w \frac{N_e}{10^{17}} \quad (2)$$

式中, w 表示电子碰撞参数,其与谱线波长范围及等离子体电子温度密切相关,如表3所示^[17]。

表3 电子碰撞参数表

Tab. 3 Electron impact parameters

	波长范围 /nm	$T/(\times 10^4 \text{ K})$					
		0.25	0.5	1	2	4	8
w	742.3 ~ 746.8	2.99×10^{-2}	3.68×10^{-2}	4.75×10^{-2}	6.28×10^{-2}	7.85×10^{-2}	8.78×10^{-2}
	818.4 ~ 822.3	2.74×10^{-2}	3.4×10^{-2}	4.46×10^{-2}	6×10^{-2}	7.62×10^{-2}	8.67×10^{-2}

结合表1最后线的 $\Delta\lambda$ 数据以及表2计算得等离子体电子温度结果,由式(2)可以得到不同延迟时间下的等离子体电子密度,如表4所示。

表4 等离子体电子密度计算结果表

Tab. 4 Calculated results of electron density of plasma

延迟时间 /ns	80	90	100	110	120	130
$N_e/(\times 10^{17} \text{ cm}^{-3})$	2.2875	2.1881	1.2138	0.7132	0.6757	0.5255

由表4计算结果可以得到延迟时间与激光诱导击穿空气等离子体电子密度之间的关系如图5所示。由图5可以看出,用激光诱导击穿空气产生的空气等离子体电子密度很高,可达到 10^{17} cm^{-3} ,这与文献^[2,7,16]报道结果一致。且随着延迟时间的增加,等离子体电子密度降低,曲线的走势与文献^[16]报道结果一致。从拟合曲线中可以看出,当延迟时间是 87 ns 时,电子密度约为 $2 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$,当延迟时间是 107 ns 时,电子密度降为 $1 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$,即在 20 ns 时间内,激光诱导击穿空气等离子体电子密度随时间衰减迅速。文献^[2]认为,空气被强激光击穿的主要机制就是光子吸收和级联电离,而光子吸收和级联电离过程初始阶段,电子密度随时间的衰减非常迅速,这也说明此阶段正处于空气等离子体产生的初期,而且激光诱导击穿空气产生等离子体的持续时间应大于数百纳秒,这与文献^[3]的结论相符。

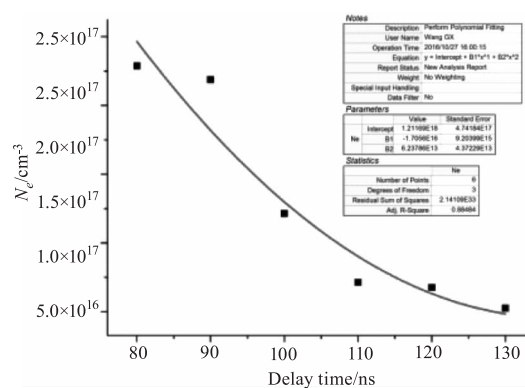


图5 等离子体电子密度随延迟时间变化图

Fig. 5 Curve of delay time and electron density of plasma

4 结论

根据发射光谱理论,光谱线的强度与电子温度和电子密度有密切的关系,所以激光诱导产生的等离子体温度和电子密度是表征光源对样品元素的激发能力的重要参数。通过测量空气等离子体参数,能够了解不同实验条件下等离子体辐射增强的机理,并且得到空气等离子体温度和密度及其时间演化的信息,以及空气等离子体闪光时各种物理过程及其时间演化的信息,对研究在空气中激光维持爆

轰击的产生机制也有着重要的意义。并且等离子体前沿的扩张就是激光维持爆轰波的波前,空气等离子体温度和密度随时间的变化,揭示了空气等离子体的产生和膨胀过程。

本文用 Nd:YAG 脉冲纳秒激光器输出的 1064 nm 强光束击穿大气,Avantes-ULS3648 型 9 通道的光谱仪采集闪光光谱,对产生的激光大气等离子体闪光光谱进行了分析,根据 NIST 原子发射谱线数据库和空气等离子体发射谱,提出了用相对强度比较法计算等离子体电子温度,用斯塔克展宽法计算等离子体电子密度得方法,最终得到激光诱导击穿空气产生的空气等离子体电子温度可达 10^4 K,电子密度可达到 10^{17} cm $^{-3}$,且它们都随着延迟时间的增加而降低。从分析过程和计算结果可以看出,用上述方法计算等离子体电子温度和电子密度是可靠的,这些结果对于提高在大气环境下所进行的在线测量结果的准确性和精确性也具有重要的科学意义。

参考文献:

- [1] Maker P D, Terhune R W, Savage C M. Quantum electronics III [M]. New York: Columbia University Press, 1964:1559.
- [2] SUN Cengwei, LU Qisheng, FAN Zhengxiu, et al. Laser irradiation effect [M]. Beijing: National Defence Industry Press, 2002:94. (in Chinese)
孙承伟, 陆启生, 范正修, 等. 激光辐照效应 [M]. 北京: 国防工业出版社, 2002:94.
- [3] CHEN Lang, LU Jianying, WU Junying, et al. Laser supported detonation wave [M]. Beijing: National Defence Industry Press, 2011:27. (in Chinese)
陈朗, 鲁建英, 伍俊英, 等. 激光支持爆轰波 [M]. 北京: 国防工业出版社, 2011:27.
- [4] ZHANG Xiaoxu. Optics diagnosis experimental research on atmosphere ionized by laser [J]. Electro-Optic Technology Application, 2017, 32(4):60-63. (in Chinese)
张晓许. 激光电离空气的光学诊断实验研究 [J]. 光电技术应用, 2017, 32(4):60-63.
- [5] WANG Hao, ZHANG Panxiao, LI Qixiang, et al. Mechanism research on air ionization and break down by laser [J]. Laser & Infrared, 2015, 45(12):1418-1422. (in Chinese)
王浩, 张藩潇, 李其祥, 等. 激光电离击穿空气机理研究 [J]. 激光与红外, 2015, 45(12):1418-1422.
- [6] Young M, Hercher M, Chung Y W. Some characteristics of laser-induced air sparks [J]. Journal of Applied Physics, 1966, 37(13):4938-4940.
- [7] LIU Yufeng, DING Yanjun, PENG Zhimin, et al. Spectroscopic study on the time evolution behaviors of the laser-induced breakdown air plasma [J]. Acta Phys. Sin., 2014, 63(20):205205. (in Chinese)
刘玉峰, 丁艳军, 彭志敏, 等. 激光诱导击穿空气等离子体时间分辨特性的光谱研究 [J]. 物理学报, 2014, 63(20):205205.
- [8] Smith D C. Gas breakdown with 10.6- μ -wavelength CO $_2$ laser radiation [J]. Journal of Applied Physics, 1970, 41(11):4501-4505.
- [9] Pirri A N, Schlier R, D Northam. Momentum transfer and plasma formation above a surface with a high power CO $_2$ laser [J]. Applied Physics Letter, 1972, 21(3):79-81.
- [10] Mori K, Komurasaki K. Influence of the focusing f number on the heating regime transition in laser absorption waves [J]. Journal of Applied Physics, 2002, 92(10):5663-5667.
- [11] Sturmer E, Allmen M. Influence of laser-supported detonation waves on metal drilling with pulsed CO $_2$ laser [J]. Journal of Applied Physics, 1978, 49(11):5648-5654.
- [12] Mori K, Komurasaki K, Katsurayama H, et al. Laser produced plasma in high-speed flows [C]. 24th International Congress on High-speed Photography and Photonics, 2001, 4183:829-836.
- [13] Kim J U, Lee H J, Kim C, et al. Characteristics of laser-produced plasmas in a gas filled chamber and in a gas jet by using a long pulse laser [J]. Journal of Applied Physics, 2003, 94(9):5497-5503.
- [14] ZHOU Jun, FENG Liwei, LIU Zhenhua. Laser-induced plasma by high speed photography [J]. Journal of Applied Optics, 2011, 32(5):1027-1031. (in Chinese)
周军, 冯伟利, 刘勇, 徐振华. 激光等离子体闪光高速摄影法实验研究 [J]. 应用光学, 2011, 32(5):1027-1031.
- [15] Kawahara N, Beduneau J L, Nakayama T. Spatially, temporally, and spectrally resolved measurement of laser-induced plasma in air [J]. Appl Phys B, 2007, 86:605-614.
- [16] 陆建, 倪晓武, 贺安之. 激光与材料相互作用物理学 [M]. 北京: 机械工业出版社, 1996:10.
- [17] Hans R Griem. Plasma spectroscopy [M]. McGraw-Hill Book Company, 1964:461.