

基于一维辐射转移方程的等离子体发射谱线线形模拟

王超 陈传松 满宝元 刁翠英 付洪波

(山东师范大学物理与电子科学学院, 山东 济南 250014)

摘要 利用一维辐射转移理论模型对无自蚀现象存在时 Al I(394.4 nm)和 Al I(396.1 nm)在不同延迟时间下的谱线进行了模拟。为使结果更为可靠,模拟过程中对模型中的参数处理方式进行了改进,最大限度地减少了独立参数的个数,在此条件下给出了能级粒子数密度随延迟时间演化的空间分布情况。通过研究该模型中粒子数空间分布半径参数对谱线线形的影响,得到了谱线自蚀深度与谱线对应上下能级粒子数密度空间分布半径比值的关系并给出了分析结果。此外还研究了频移参数对谱线线形的影响,得出了判断谱线频移的依据,并从实验上得到了验证。

关键词 光谱学;谱线模拟;一维辐射转移;频移

中图分类号 O433.4 **文献标识码** A **doi**: 10.3788/LOP48.033001

Plasma Emission Line Shape Simulation Based on One-Dimensional Radiative Transfer Model

Wang Chao Chen Chuansong Man Baoyuan Diao Cuiying Fu Hongbo

(College of Physics and Electronics, Shandong Normal University, Jinan, Shandong 250014, China)

Abstract The line shapes of Al I (394.4 nm) and Al I (396.1 nm) were theoretically simulated based on the one-dimensional radiative transfer model without self-reverse effect. In order to get a more reliable result, an model improvement of the parameter handling approach was made to minimize the number of independent parameters. The revolution of spatial population density distribution of species was shown in different delay times. The effects of population density distribution parameters to the line profile were studied. The relationship between the depth of self-reverse and the population density distribution parameters ratio of lower and upper levels were analysed. A method to judging the line shift was experimentally verified by studying the effects of shift parameter to line profile too.

Key words spectroscopy; line simulation; one-dimensional radiative transfer; shift

OCIS codes 300.6500; 020.3690; 020.6580; 350.5400

1 引言

谱线展宽机制的拓宽是建立在谱线线形研究不断深入的基础上,其中采用计算机模拟谱线线形方法在谱线展宽理论发展中扮演着重要的角色^[1]。在各种展宽机制中,自吸收效应会给实验结果的确定带来影响,Bredice等^[2~4]研究了在自吸收现象不显著时对谱线半峰全宽的影响。自吸收现象产生的原因主要是由于等离子体空间分布不均匀性引起的,如文献^[5,6]分别提出了“二区”及“三区”模型。这2种模型的缺点在于粒子数密度的空间分布是不连续的,事实上即使选择一次性函数方式递减粒子数由等离子体中心向边缘区域也能得到对称的自蚀谱线线形^[7]。本文采用基于一维辐射转移方程的理论模型,假设等离子体形状是轴对称的,粒子数密度分布在空间上是连续变化的,其分布采用高斯(Gauss)型分布函数来描述,特别是该理论考虑了斯塔克(Stark)展宽和频移的影响,由此得到的自蚀谱线线形是非对称的,与实验结果相符合。

收稿日期: 2010-11-09; **收到修改稿日期**: 2010-12-29

基金项目: 国家自然科学基金(10874103)资助课题。

作者简介: 王超(1986—),男,硕士研究生,主要从事谱线展宽和频移等方面的研究。

E-mail: superchaucer@gmail.com

导师简介: 满宝元(1961—),男,教授,主要从事激光与物质相互作用等方面的研究。

E-mail: byman@sdsu.edu.cn(通信联系人)

2 实验与理论模拟方法

所采用的实验装置可参考文献[8,9]。Nd:YAG 固体激光器输出波长为1064 nm,脉宽为10 ns,重复频率为10 Hz的脉冲激光束经直角棱镜M垂直改变光路后,再经凸透镜L1($f=6.5$ cm)会聚后烧蚀Al靶体表面产生等离子体。靶面烧蚀直径为0.6 mm。与激光束垂直方向放置的柱面透镜组L2和L3($f=20$ cm)将距离靶体表面2 mm处的等离子体薄层的发射光谱1:1成像在光谱仪的狭缝上,经光谱仪内部光栅色散后由ICCD将光谱信号转换成电信号后在计算机上输出。实验过程中激光脉冲能量为30 mJ,狭缝宽度为20 μm ,延迟时间间隔为100 ns,实验中背景气体始终保持在101 kPa空气环境中。出于验证理论结果的需要,我们利用相同装置也采集了Pb的相应谱线。实验中通过改变L1与靶体表面之间的距离 D 来获得自蚀谱线,实验数据在无自蚀谱线时 $D=6.5$ cm,在产生自蚀谱线时 $D=5.9$ cm,其余条件一致。

本文所采用的理论方法可参考文献[10],在这里给出简要介绍。一维辐射转移方程形式为

$$dI(x, \nu) = [\epsilon(x, \nu) - \kappa(x, \nu)]I(x, \nu) dx, \quad (1)$$

式中 $I(x, \nu)$ 代表光谱辐射流密度, $\epsilon(x, \nu)$ 和 $\kappa(x, \nu)$ 分别表示光谱发射系数和吸收系数,若以等离子体中心为原点,三者都是等离子体径向距离 x 和辐射频率 ν 的函数。对(1)式进行积分可得

$$I(\nu) = \frac{1}{\phi(\infty, \nu)} \int_{-\infty}^{\infty} \phi(x, \nu) \epsilon(x, \nu) dx, \quad (2)$$

式中 $\phi(x, \nu) = \exp\left[-\int \kappa(x, \nu) dx\right]$ 。发射和吸收系数的表达式为

$$\epsilon(x, \nu) = An_2(x)h\nu f(x, \nu)/(4\pi), \quad (3)$$

$$\kappa(x, \nu) = [B_{12}n_1(x) - B_{21}n_2(x)]h\nu f(x, \nu)/c, \quad (4)$$

式中 A, B_{12}, B_{21} 分别表示自发辐射系数,受激吸收系数和受激辐射系数。 $f(x, \nu)$ 是谱线线型函数,实验当中谱线的展宽机制主要为Stark展宽^[11],故 $f(x, \nu)$ 为洛伦兹(Lorentz)线型表达式为

$$f(x, \nu) = \frac{c\omega}{2\pi\lambda_0^2} n_e(x) \left/ \left\{ \left[\frac{c\omega}{2\lambda_0^2} n_e(x) \right]^2 + \left[\nu - \nu_0 + \frac{cd}{\lambda_0} n_e(x) \right]^2 \right\} \right., \quad (5)$$

式中 c 代表光速, λ_0 为特征谱线中心波长, ν_0 为对应中心频率, ω 和 d 分别表示谱线的Stark展宽和频移参数。(3)~(5)式中, $n_e(x), n_1(x)$ 和 $n_2(x)$ 分别表示电子密度空间分布函数,特征谱线对应下能级和上能级粒子空间分布函数,它们被假设为Gauss型分布函数

$$n_e(x) = N_{e0} \exp(-x^2/\sigma_e^2), \quad (6)$$

$$n_1(x) = N_{10} \exp(-x^2/\sigma_1^2), \quad (7)$$

$$n_2(x) = N_{20} \exp(-x^2/\sigma_2^2), \quad (8)$$

式中 N_{e0}, N_{10}, N_{20} 分别表示电子密度,低能级和高能级粒子数密度在原点处的最大值, $\sigma_e, \sigma_1, \sigma_2$ 则分别表示对应的高斯分布半径参数,并且 N_{10} 和 N_{20} 之间满足

$$N_{20}/N_{10} = g_2 \exp[-h\nu_0/(k_B T_e)]/g_1, \quad (9)$$

式中 g 表示各自能级统计权重, h 为Plank常数, k_B 表示波尔兹曼(Boltzmann)常数, T_e 为电子温度。为了与实验结果进行比较,(2)式得到的最终计算结果需要与仪器函数进行卷积,仪器函数为高斯函数,对应的半峰全宽由仪器分辨率给出。

3 结果与讨论

3.1 谱线模拟

利用上述模型,文献[10]给出了某一延迟时间下Al I双共振线的自蚀谱线模拟。但是该模型也存在不足之处,即相互独立的调节参数过多且不易确定,比如在自蚀存在条件下,无法利用谱线的展宽和强度来确定出等离子体的电子密度和电子温度,只能够估测,因此在这种情况下得出的其他参数的可靠性不高。

模拟中为尽量减少独立参数的个数,模拟对象选为无自蚀的特征谱线Al I(394.4 nm)($^2P_{1/2}^0 - ^2S_{1/2}$)和Al I(396.1 nm)($^2P_{3/2}^0 - ^2S_{1/2}$),其中 $^2S_{1/2}$ 为2条谱线相同上能级对应谱项,为区分二者下能级,在对应物理量下标中加注“a和b”来区分 $^2P_{1/2}^0$ 和 $^2P_{3/2}^0$ 。所需要电子温度和电子密度分别由Saha-Boltzmann图解法和Al I

(396.1 nm)的 Stark 展宽得到。由于理论上粒子数在无限远处才衰减为零,实际处理中(2)式积分范围,根据 ICCD 对等离子体羽大小在各延迟时间下拍照确定,在本文实验条件下为 $-0.4 \sim 0.4$ mm。假定粒子数空间密度分布函数是高斯型函数,其标准偏差为 $\sigma/\sqrt{2}$,为保证等离子体各能级的粒子数在设定的空间分布范围边缘衰减到零,因此需要满足 $3\sigma/\sqrt{2} \leq 0.4$ mm,当近似取等号成立时,令 $\sigma_e = \sigma_1 = 0.19$ mm。在理论拟合过程当中,调节 N_{1b0} 和 σ_2 的数值来模拟出延迟时间 500 ns 时 394.4 nm 谱线的形貌。因为 394.4 nm 和 396.1 nm 谱线对应跃迁的上能级是相同的,因此必须保证

$$N_{1b0}/N_{1a0} \approx g_{1b}/g_{1a}, \quad (10)$$

以及 σ_2 不变使这 2 条谱线对应跃迁下能级按照 Boltzmann 分布所算出的同一上能级粒子数是相同的。在其后各延迟时间下采用相同条件,利用 394.4 nm 谱线模拟所确定的参数,来模拟出 396.1 nm 的谱线,以此来保证所选取参数的合理性。利用以上参数调节原则,得到了在各个延迟时间下的模拟谱线,结果如图 1 的粗线所示,图中细线为实验得到的谱线线形。

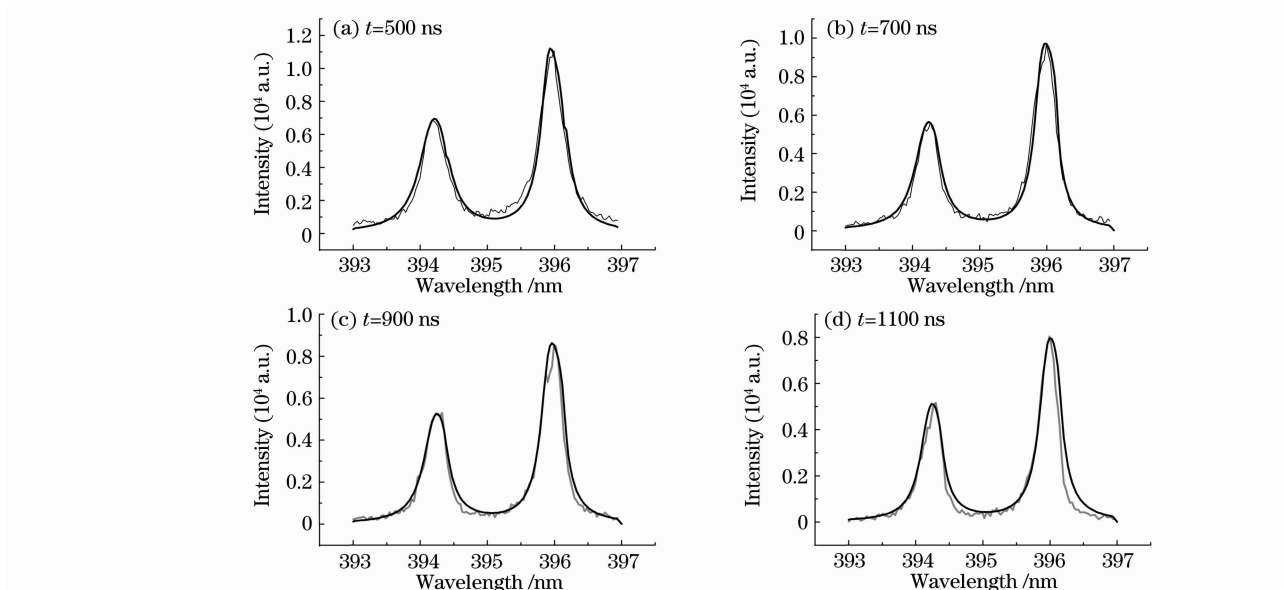


图 1 不同延迟时间下理论模拟谱线与实验谱线对比图

Fig. 1 Theoretical simulation and experimental result at different delay times

此外,根据上述结果做出了这 2 条谱线对应跃迁能级在各延迟时间下原子数密度空间分布图。由于各能级空间分布函数形式一致,且等离子体中心处能级原子数密度初值之间关系满足(9)和(10)式,所以谱项 $^2P_{1/2}^0$, $^2P_{3/2}^0$ 和 $^2S_{1/2}$ 对应 3 个能级的粒子数密度空间分布图像的时间演化趋势是一致的,谱项 $^2S_{1/2}$ 对应能级粒子数密度 $N(^2S_{1/2})$ 的空间分布随时间演化图像,如图 2 所示。

3.2 谱线线形与参数关系

Tetsuo Sakka 等^[10]讨论了谱线在自吸收存在的条件下各参数对于谱线线形的影响。单一地改变 σ 的数值实质上是在改变谱线对应跃迁能级粒子数相对分布空间的大小,也就是等离子体形成高能级粒子数空间分布中

中心的致密区域和边缘的稀疏区域的相对空间大小,形成光学厚或者光学薄等离子体,进而影响谱线的自蚀程度。选用 500 ns 时的模拟谱线(394.4 nm)参数为参考值,保持 σ_1 数值不变而单一改变 σ_2 的数值,图 3 所示为自蚀深度(即为谱线强度最大值与自蚀处强度最小值之差,图中纵坐标已被归一化)与 σ_1/σ_2 的关系。

同文献[7]相比,可发现自蚀深度与 σ_1/σ_2 之间并非存在单一的递增关系,在选用的参数条件下,自蚀深

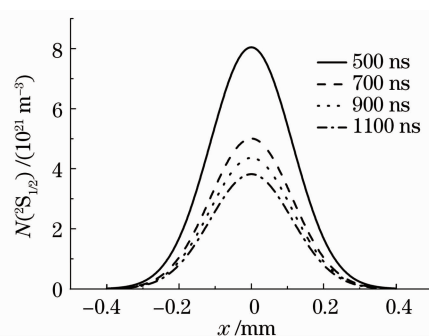


图 2 $N(^2S_{1/2})$ 空间布局随时间演化

Fig. 2 Temporal revolution of spatial distribution of $N(^2S_{1/2})$

度出现最大值时 $\sigma_1/\sigma_2 \approx 1.5$ 。当 $\sigma_1/\sigma_2 > 1.5$ 时,发现谱线对应跃迁上下能级存在明显相对疏密的空间分布区域,上能级分布区域更加集中,并且随着 σ_1/σ_2 数值的增大,这种相对分布愈加明显(图 4),但自蚀深度并没有因此变大反而减小。这是因为单一减小 σ_2 数值,在造成等离子体空间分布区域疏密程度对比加大的同时,特征谱线跃迁对应上能级的粒子数密度减小,造成自蚀谱线强度整体下降,所以自蚀深度不增反降。当 $1.3 < \sigma_1/\sigma_2 < 1.5$ 时,随着 σ_1/σ_2 数值增大而自蚀深度加大,说明此时 σ_2 减小对高能级上的粒子数的减少造成的影响并不大。当 $1 < \sigma_1/\sigma_2 < 1.3$ 时,自蚀现象消失,谱线表现为峰值处附近出现‘平顶’现象。随着 σ_1/σ_2 数值的减小,这种现象越来越不明显,表明谱线自吸收程度也越来越小。

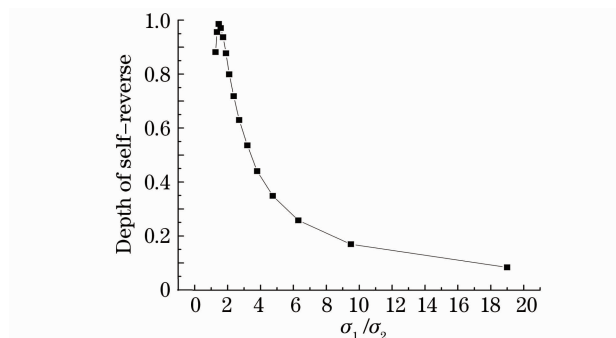


图 3 Al I (394.4 nm) 谱线自蚀深度随 σ_1/σ_2 的变化

Fig. 3 Depth of self-reverse of Al I(394.4 nm) versus σ_1/σ_2

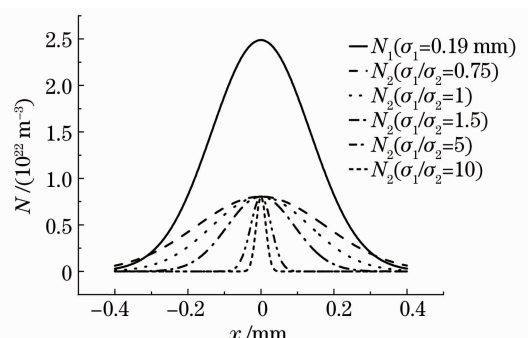


图 4 不同 σ_1/σ_2 比值下 $N_1(^2P_{1/2})$ 与 $N_2(^2S_{1/2})$ 的空间分布

Fig. 4 Spatial distribution between $N_1(^2P_{1/2})$ and $N_2(^2S_{1/2})$ at different σ_1/σ_2 values

我们还考察了 Stark 频移参数 d 的正负(分别对应着无自蚀特征谱线的红移和蓝移)对谱线线形的影响。当增大 σ_2 值使 $\sigma_1/\sigma_2 < 1$ 时,谱线对应跃迁高能级上的粒子数密度空间分布相对更均匀,使其在等离子体分布空间的稀疏层状结构不明显,这意味着谱线自吸收程度的减弱。这时谱线虽然没有明显的自蚀现象但是也开始变得不对称,在该理论模型中,谱线的这种不对称现象是由于 Stark 频移引起的,表现为谱线的整体红移或者蓝移。图 5 和图 6 分别表示无自蚀和自蚀存在条件下频移参数正负对于线形的影响。在自蚀现象存在条件下,谱线形状的差异更易于辨认,可以根据谱线由于自蚀形成两侧峰值的高低来判断无自蚀特征谱线的频移方向,当自蚀谱线左侧峰高时,表明无自蚀特征谱线蓝移,反之为红移。并且在实验中得到与此结论相符的结果,在无自蚀时,我们观察到的发生红移的谱线[Al I(394.4nm), Al I(396.1nm)以及部分 Pb 原子谱线]或是蓝移的谱线[主要为 Pb I(261.4 nm), Pb I(280.2 nm), Pb I(282.3 nm)和 Pb I(287.3 nm)]在发生自蚀时都出现了与理论结果相符的现象。图 7 中给出了 Al I(396.1nm)和 Pb I(280.2nm)谱线的示例。通过以上分析,可以利用谱线的形貌来定性判断频移是红移还是蓝移,可给出一个谱线频移的直观判断。

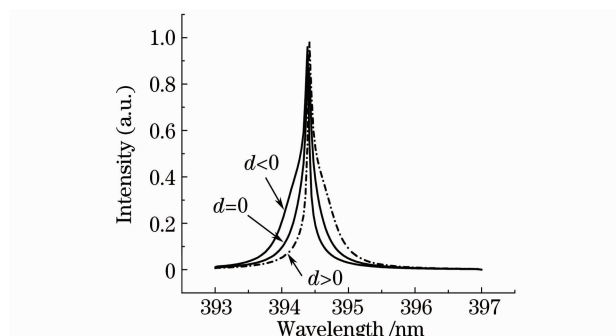


图 5 无自蚀情况下 Stark 频移参数对线形的影响 ($\sigma_1/\sigma_2 = 0.76$)

Fig. 5 Effect of Stark shift parameter to line shape without self-reversed line shape ($\sigma_1/\sigma_2 = 0.76$)

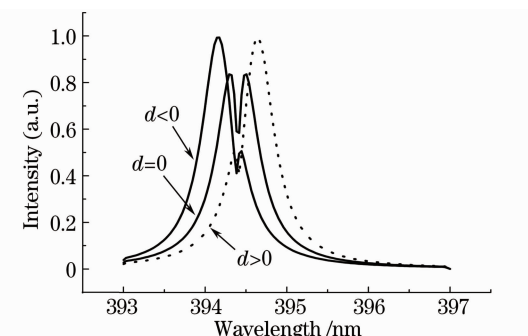


图 6 有自蚀情况下 Stark 频移参数对线形的影响 ($\sigma_1/\sigma_2 = 1.5$)

Fig. 6 Effect of Stark shift parameter to the self-reversed line shape ($\sigma_1/\sigma_2 = 1.5$)

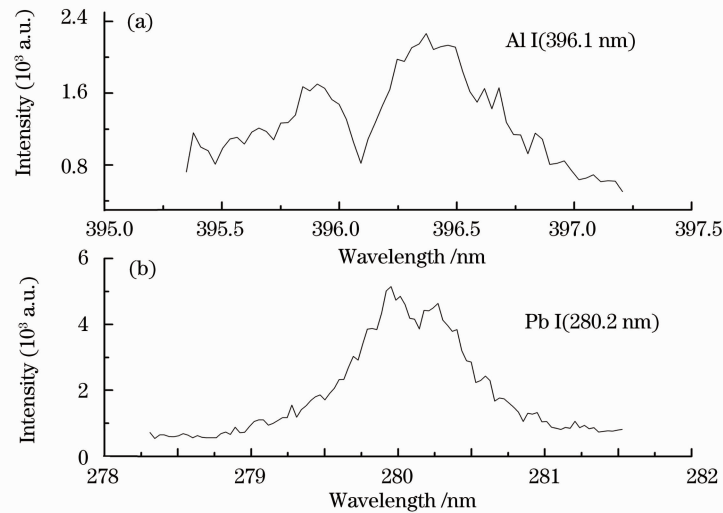


图7 自蚀存在条件下 Al I (396.1 nm)(a)和 Pb I (280.2 nm)(b)特征谱线
Fig. 7 Self-reversed line profile of Al I (396.1 nm) (a) and Pb I (280.2 nm) (b)

4 结 论

激光诱导 Al 等离子体在不同延迟时刻下的光谱图像(394.4 nm 和 396.1 nm),可由基于一维辐射转移方程的理论模型模拟出来,并得出了该模型下能级粒子数密度空间分布随延迟时间演化的关系图。此外,以模拟结果为基础考察了模型中参数对线形的影响,得出谱线自蚀深度随 σ_1/σ_2 增大出现先变大后减小的趋势,并指出自蚀深度的减小是因为谱线强度整体下降造成的。另外通过研究自蚀存在时频移参数与线形的关系从而得出了定性判断谱线频移的直观方法,即当自蚀存在时若谱线左侧峰值高于右侧,则该谱线在无自蚀时 Stark 频移为蓝移,反之为红移。

参 考 文 献

- 1 E. Stambulchik, Y. Maron. Plasma line broadening and computer simulations: a mini-review[J]. *High Energy Density Phys.*, 2010, **6**(1): 9~14
- 2 F. Bredice, F. O. Borges, H. Sobral *et al.*. Evaluation of self-absorption of manganese emission lines in laser induced breakdown spectroscopy measurements[J]. *Spectrochimica Acta Part B*, 2006, **61**(12): 1294~1303
- 3 A. M. El Sherbini, Th. M. El sherbini, H. Hegazy *et al.*. Evaluation of self-absorption coefficients of aluminum emission lines in laser-induced breakdown spectroscopy measurements[J]. *Spectrochimica Acta Part B*, 2005, **60**(12): 1573~1579
- 4 Hssaine Amamou, Andre Bois, Belkacem Ferhat *et al.*. Correction of the self-absorption for reversed spectral lines: application to two resonance lines of neutral aluminium[J]. *J. Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 2003, **77**(4): 365~372
- 5 J. Hermann, C. Boulmer-Leborgne, D. Hong. Diagnostics of the early phase of an ultraviolet laser induced plasma by spectral line analysis considering self-absorption[J]. *J. Appl. Phys.*, 1998, **83**(2): 691~696
- 6 R. F. G. Meulenbroeks, P. A. A. van der Heijden, M. C. M. van de Sanden *et al.*. Fabry-Perot line shape analysis on an expanding cascaded arc plasma in argon[J]. *J. Appl. Phys.*, 1994, **75**(6): 2775~2780
- 7 Toshiharu Tako. Self-absorption of spectral line[J]. *J. Phys. Soc. Japan*, 1961, **16**(10): 2016~2032
- 8 B. Y. Man, X. T. Wang, A. H. Liu. Transport of plasmas produced by pulsed laser ablation of HgCdTe[J]. *J. Appl. Phys.*, 1998, **83**(7): 3509~3513
- 9 C. S. Chen, A. H. Liu, G. Sun *et al.*. Analysis of laser damage threshold and morphological changes at the surface of HgCdTe crystal[J]. *J. Opt. A*, 2006, **8**(1): 88~92
- 10 Tetsuo Sakka, Takashi Nakajima, Yukio H. Ogata. Spatial population distribution of laser ablation species determined by self-reversed emission line profile[J]. *J. Appl. Phys.*, 2002, **92**(5): 2296~2303
- 11 B. Y. Man, Q. L. Dong, A. H. Liu *et al.*. Line-broadening analysis of plasma emission produced by laser ablation of metal Cu[J]. *J. Opt. A: Pure Appl. Opt.*, 2004, **6**(1): 17~21