

引用格式: CUI Zixiao, WU Huace, WU Ding, et al. Spatiotemporal Evolution of Aluminum-lithium Alloy Plasma Using a Coaxial LIBS System under Vacuum[J]. Acta Photonica Sinica, 2023, 52(9):0930002

崔紫宵, 武华策, 吴鼎, 等. 真空中同轴 LIBS 系统下铝锂合金等离子体时空演化行为研究[J]. 光子学报, 2023, 52(9):0930002

# 真空中同轴 LIBS 系统下铝锂合金等离子体 时空演化行为研究

崔紫宵, 武华策, 吴鼎, 刘佳敏, 胡晓涵, 海然, 李聪, 丁洪斌

(大连理工大学 物理学院, 大连 116024)

**摘要:**采用基于线性阵列光纤束的同轴光学结构,在真空环境下利用波长 1 064 nm、脉宽 5 ns、功率密度 6.3 GW/cm<sup>2</sup>的脉冲激光烧蚀铝锂合金靶材,对铝锂合金等离子体发射光谱分别进行时空积分和时空分辨测量。评估了等离子体发光时间~1 μs,发光区域大小~1 cm。进一步研究了激光烧蚀等离子体连续辐射、离子谱线和原子谱线的时空演化行为,给出了激光烧蚀等离子体不同辐射机制的辐射时间尺度。谱线的空间分辨测量发现,Al、Li 元素对应原子及离子的空间分布均有所不同,即真空中激光烧蚀铝锂合金等离子体在横向扩张过程中发生了元素“空间分离”的现象。物种的横向扩张速度研究结果表明,同种元素的离子速度大于其原子速度(Al III>Al II>Al I, Li II>Li I)。此外,对同种电荷态不同元素的原子(离子)速度的差异进行了讨论,并归因于元素的“质量分离”效应和较快的离子复合效应。

**关键词:**激光诱导击穿光谱;铝锂合金;时空演化;等离子体尺寸;扩张速度

中图分类号:O433.1

文献标识码:A

doi:10.3788/gzxb20235209.0930002

## 0 引言

在磁约束聚变装置运行过程中,面向等离子体的材料(Plasma Facing Materials, PFMs)必须承受强烈的辐射、粒子轰击以及高热负荷,发生等离子体与壁相互作用(Plasma Wall Interaction, PWI)。PFMs 受到侵蚀和沉积的影响,性能会发生改变,进而严重影响托卡马克长脉冲或稳态运行,甚至会造成安全事故<sup>[1-3]</sup>。因此,对 PFMs 进行元素诊断和监测,对于理解 PWI 的物理过程,进而改进稳态高约束等离子体运行参数至关重要。基于激光的方法结合光学发射光谱,特别是激光诱导击穿光谱(Laser Induced Breakdown Spectroscopy, LIBS)技术,是一种对材料进行定性和定量分析的有用工具。由于它自身的独特优点,如在真空条件下检测速度快、无需对样品进行预处理、可远程原位分析等,LIBS 成为表征托卡马克壁材料表面元素分布最合适的技术之一<sup>[4-11]</sup>。自 2001 年以来,LIBS 技术已成功应用于国内外多个聚变装置第一壁材料的元素诊断<sup>[12-15]</sup>。2014 年,我们课题组已在 EAST 装置中成功研制安装了远程原位 LIBS 系统,开展了实时测量第一壁上的燃料滞留和杂质分布的研究<sup>[16-20]</sup>。

ENEAC 研究中心的 COLAO F 等开发了一种 LIBS 装置,利用 CF-LIBS 方法对沉积在等离子体表面组件上杂质的元素分布进行定性和定量分析,给出了氩元素的含量,其声称对微量组分浓度的测定精度达到 20%<sup>[21]</sup>。印度的 MAURYA G S 在大气压环境下利用 CF-LIBS 方法离线分析了托卡马克限制器上的杂质沉积层,如 Fe、Cr、Ni、Mo、Mn、Cu、C、Ca 和 Mg 等元素并给出了百分比<sup>[22]</sup>。尽管研究人员利用 CF-LIBS 方法得到了定量分析结果,但其可靠性和准确性仍有待评估。采用 CF-LIBS 的前提是假定等离子体处于热力学平衡状态,不同元素在烧蚀过程中没有元素偏析发生。但在真空条件下,等离子体羽中不同元素的粒子

**基金项目:**国家自然科学基金(No. 12005034),国家磁约束核聚变能发展研究专项(No. 2022YFE03200100),中央高校基本科研业务费资助(No. DUT22RC(3)066)

**第一作者:**崔紫宵, zixiaocui@mail.dlut.edu.cn

**通讯作者:**吴鼎, dingwu@dlut.edu.cn; 丁洪斌, hding@dlut.edu.cn

**收稿日期:**2023-03-27; **录用日期:**2023-05-16

<http://www.photon.ac.cn>

由于质量、所带电荷和所处能级的差异,在膨胀过程中呈现出不同的扩散速度,使得等离子体具有空间非均匀性<sup>[23, 24]</sup>,导致该假设极有可能不成立。因此对等离子体时空演化行为进行研究,是进一步改进真空中 LIBS 定量分析精度的关键内容。

我们课题组前期已经利用垂直光学收集结构研究了 H、Li、C、Si、Mo 和 W 等离子体的时空演化,观察到不同元素纵向扩张速度有所差异<sup>[25, 26]</sup>。然而,对于原位 LIBS 诊断而言,EAST 上可供 LIBS 使用的光学窗口有限,垂直收集结构不是优选方案。同时,在垂直光学结构的有限视场下,部分等离子体会逃出光谱探测区,同轴光学收集结构被认为可能是 ITER 托卡马克装置原位 LIBS 诊断的优选方式。由于铍(Be)的良好物理特性,如强吸氧性、不与氦元素发生反应、良好的导热性、化学溅射低、熔点低、蒸汽压高等性质,ITER 已经确定使用 Be 作为第一壁材料<sup>[27]</sup>。欧洲的 JET 装置已经开始使用 Be 作为第一壁<sup>[28]</sup>。但 Be 具有毒性和易爆性,世界上仅有几个装置拥有进行 Be 实验的授权。在元素周期表中,Al 元素处于 Be 元素的对角线位置,它的性质与 Be 元素的性质相似,因此在实验室中可以通过研究 Al 等离子体来间接了解 Be 的特性。KRETER A 等在 PISCES-B 线性等离子体装置上研究了在等离子体杂质的影响下,Be 的侵蚀、沉积层的形成和燃料滞留行为<sup>[29]</sup>。研究发现,当暴露于 D 等离子体时,金属 Al 表现出与金属 Be 类似的性质,被认为是 Be 的无毒代替品。为了克服高温等离子体对 PFM 的侵蚀,锂(Li)正在被探索作为核聚变反应堆中潜在的第一壁材料<sup>[30]</sup>。一方面,它具有较好的散热性能,对 O<sub>2</sub>、CO、N<sub>2</sub> 和氢同位素气体等杂质具有很强的吸附性,可以提高长脉冲 H 模的等离子体运行性能。另一方面,它容易排出残留燃料,极大地减少了燃料和杂质的再循环,并且没有不可逆的机械表面变化,如开裂、起泡等,保证了第一壁表面可循环利用。EAST 装置中已成功使用锂化壁处理技术<sup>[31, 32]</sup>。因此,我们选取铝(取代 Be)锂合金来代替第一壁上的锂沉积层作为研究对象。我们课题组前期还研究了磁场强度对激光烧蚀铝锂合金等离子体信号强度的影响。在真空环境中,强磁场的存在可能会减缓等离子体羽流的膨胀速度,且光谱发射的持续时间变长,发射光谱强度增强<sup>[33, 34]</sup>。但迄今为止,对铝锂合金样品进行同轴时空 LIBS 测量的研究尚有不足,Al-Li 合金等离子体中各个物种的发光尺寸、发光时间、横向扩张速度等参数信息并不清楚。而这些信息对 LIBS 技术用于托卡马克装置壁诊断中的光学结构设计、门宽等参数设置十分重要。

本文在阵列光纤束收集系统的基础上,开发了一种同轴 LIBS 系统,模拟 EAST 真空环境,在 10<sup>-5</sup> mbar 的气压条件下对铝锂合金等离子体发射光谱分别进行时空积分和时空分辨测量。评估了等离子体发光时间 ~1 μs,发光区域大小 ~1 cm。进一步研究了连续辐射、离子谱线和原子谱线的时间演化,给出了激光烧蚀等离子体不同辐射机制的辐射时间尺度。进一步采用时空分辨光谱的方式,研究了激光诱导等离子体各类物种(离子和原子)的时空演化特性,获取了各个物种的横向扩张速度,并对等离子体膨胀过程中的元素粒子“空间分离”以及“离子加速”现象进行了较深入的研究,利用“鞘层加速”机制、较快的离子复合效应以及激发态能级差异进行了讨论。

## 1 实验装置

同轴 LIBS 系统实验原理图如图 1 所示,该系统主要由激光器、光谱仪和真空腔室组成。实验采用的是 Q 开关 Nd:YAG 激光器(Brilliant Eazy, Quantel),脉冲宽度为 5 ns,重复频率为 4 Hz,波长为 1 064 nm。脉冲激光先后通过半波片、分束立方晶体、反射镜,以及一个焦距为 50 cm、直径为 10 cm 的平凸透镜后被聚焦到样品表面,烧蚀并产生等离子体。到达样品表面的激光能量为 150 mJ,激光烧蚀光斑直径约为 0.78 mm,对应的激光烧蚀功率密度为 6.3 GW/cm<sup>2</sup>。长为 4.5 cm、宽为 0.6 cm、厚度为 0.3 cm 的条状铝锂合金样品(Al 91.67%, Li 5.00%, Mg 2.14%)安装在带有石英窗口的真空腔室内的二维移动平台上,通过步进电机移动样品实现样品的烧蚀位置的改变。真空腔室连接着一个分子泵和一个机械泵,将腔室内的气压维持在为 5.0 × 10<sup>-5</sup> mbar。激光聚焦透镜(焦距为 50 cm、直径为 10 cm)和收集透镜(焦距为 15 cm、直径为 10 cm)组成了等离子体收集透镜组,用于收集等离子体的发射光,并耦合进光纤束中。光纤束由 20 根直径为 300 μm 的光纤线性排列而成,每根光纤对应着 LIBS 等离子体的不同采集区域,光纤束的另一边被耦合进光谱仪的狭缝中。实验使用的是 ICCD 光谱仪(ICCD-ANDOR iStar, 340T, Shamrock SR-750-R),光栅为 150 刻线/mm,响应波段为 350~800 nm,单测量覆盖波长为 110 nm,入口狭缝宽度为 80 μm。实验中,收集透镜的物像比

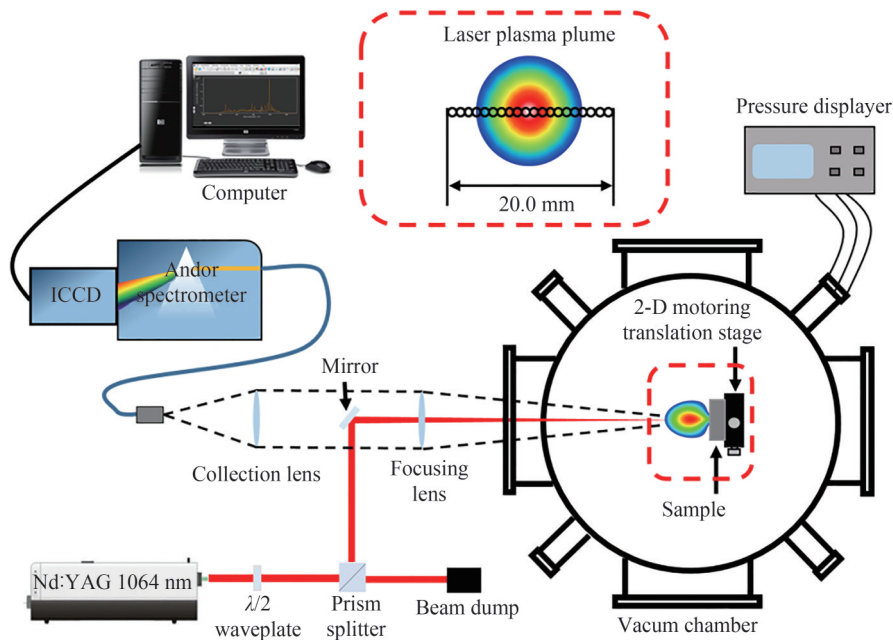


图1 激光诱导等离子体光谱诊断实验原理示意图  
Fig.1 Schematic illustration of laser induced plasma system

50:15,像缩小了约3.3倍,因此,光纤阵列的收集区域约20 mm,单芯光纤的收集范围约1 mm。实验中,为了避免样品表面杂质元素对实验结果造成干扰,先用10个激光脉冲对样品进行清洗预处理。在相同的实验条件下,每一组数据都选取新的烧蚀位置,重复5次,每张光谱由平均5次获得。

实验中光谱的采集时序如图2所示,光谱仪由激光器触发,实验中零时刻 $t_0$ 设置为激光峰值前5 ns。光谱仪门延迟由 $t_d$ 表示,时间积分光谱门宽设置为10  $\mu$ s,时间分辨光谱研究门宽设置为 $t_w=3 \text{ ns}+0.1 \times t_d$ 。

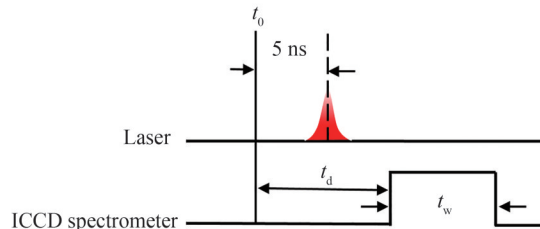


图2 光谱采集时序图  
Fig.2 The time synchronization of the experiment

## 2 结果与讨论

### 2.1 铝锂合金的典型时空积分光谱

图3给出了真空下激光烧蚀Al-Li合金等离子体的典型时空积分发射光谱,光谱仪的门延迟 $t_d$ 设置为0 ns,即激光达到峰值时刻之前的5 ns作为0时刻,门宽 $t_w$ 设置为10  $\mu$ s。由于150刻线光栅每次覆盖波长范围约为110 nm,通过转动光栅位置多次测量,进行拼接,获取了铝锂合金样品在较大波长范围内的发射光谱。文中所有光谱信号均已经用标准光源进行强度相对校准。

如图3所示,在350~680 nm范围内,激光烧蚀Al-Li合金等离子体主要由连续光谱、线状光谱组成。线状谱主要由Al和Li元素的原子谱线、一价离子谱线以及Al的二价谱线组成。图中标识的罗马数字I、II、III分别代表对应元素的原子、一价离子和二价离子谱线。观察到的主要光谱线及相关参数在NIST数据库中查得<sup>[35]</sup>,如表1所示。

可以看出,在没有时间分辨的情况下,等离子体发射光谱具有较强的连续背景辐射。而在发射光谱分

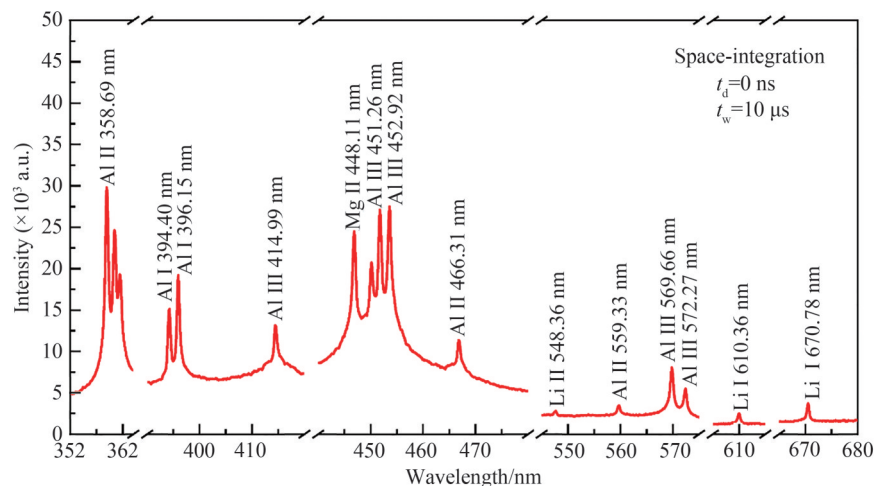


图3 激光烧蚀铝锂合金等离子体时空积分发射光谱

Fig.3 Space-time integral emission spectrum of laser ablated aluminum-lithium alloy plasma

表1 光谱中主要谱线及相关参数

Table 1 Correlation spectral line parameters in spectrum

Species	Wavelength/ nm	Energy of lower state, $E_i/\text{eV}$	Energy of upper state, $E_k/\text{eV}$	$A_{ki}/(\times 10^7 \text{ s}^{-1})$	$g_k$
Al II	358.69	11.85	15.30	2.62	7
Al I	394.40	0.00	3.14	4.99	2
Al I	396.15	0.01	3.14	9.85	2
Al III	414.99	20.55	23.54	20.5	8
Al III	451.26	17.81	20.56	20.9	4
Al III	452.92	17.82	20.55	24.9	6
Al II	466.31	10.60	13.26	2.81	3
Al II	559.33	13.26	15.47	9.26	5
Al III	569.66	15.64	17.82	8.77	4
Al III	572.27	15.64	17.81	8.65	2
Li II	548.36	59.02	61.28	2.27	1
Li I	610.36	1.85	3.88	1.14	4
Li I	670.78	0.00	1.85	3.69	4
Mg II	448.11	8.86	11.63	23.3	8

析中,只有原子(或离子)辐射的特征谱线是进行物种成分以及含量分析的有效信息源,连续辐射背景应尽可能降低。因此为了探测到最佳的 LIBS 光谱信号,需要选择合适的延迟时间来减小连续背景光谱对特征光谱的影响,进行 LIBS 时间分辨测量十分必要。

## 2.2 时间分辨光谱(空间积分)

前面提到 LIBS 测量方法通常是选用原子(离子)谱线做分析,连续辐射是对测量无用的干扰信号,为了能够较优地采集到光谱分析所需的原子(离子)谱线的信号,有必要对等离子体的时间演化过程进行研究。可以通过改变探测的延迟时间来研究光谱的时间演化行为。图4所示为不同时刻激光烧蚀铝锂合金等离子体时间分辨光谱,门宽  $t_w$  设置为 3 ns 加上门延迟时间的 10%,所示光谱均由 20 根光纤信号求和,对采集门宽进行标准化后得到。

通过图4几个典型时刻铝锂合金等离子体空间积分的发射光谱,可以看出连续背景和线状谱的时间演化。在等离子体初期 7 ns 时刻,连续背景占主导位置;在 22 ns 时刻,连续背景减弱,开始出现线状谱,主要是不同元素的离子线,此时的离子线比原子线强;在 170 ns 时刻,连续背景已经很弱,线状谱占主要地位,此时的离子线已经开始减弱,原子线开始变强;在 700 ns 时刻,离子线的强度已经很弱,线状谱主要是由原子线

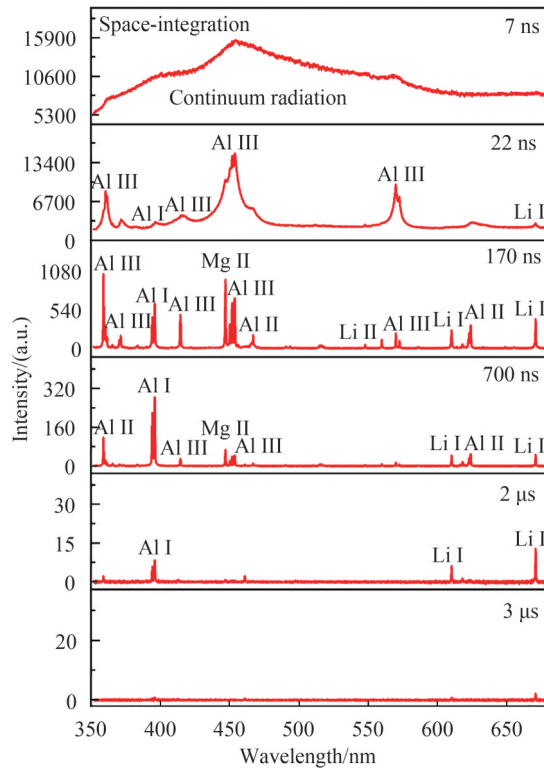


图4 激光诱导铝锂合金等离子体不同时刻时间分辨光谱(20芯光纤信号求和)  
Fig.4 Emission spectrum of laser induced aluminum-lithium alloy plasma at various gate delay times

组成; 2 μs时刻, 光谱中离子线已经完全消失, 只剩下原子谱线; 3 μs时刻, 原子线强度已经减弱至光谱仪的探测限以下。

### 2.3 光谱信号的时间演化

为了便于分析, 选取铝锂合金等离子体连续背景(481.39 nm位置)、铝原子谱线 Al I 396.15 nm、一价铝离子 Al II 358.69 nm、二价铝离子 Al III 451.26 nm、锂原子谱线 Li I 670.78 nm 和一价锂离子 Li II 548.36 nm 作为分析对象, 图5给出了连续背景和不同元素特征谱线的时间演化。可以看出, 不同谱线维持时间有所不同, 在~1 μs内均已降低到一个相当低的水平, 因此等离子体的发光时间为 1 μs 左右。

从图5中可以进一步看出在真空下激光烧蚀铝锂合金等离子体中不同辐射过程的时间尺度。连续发射

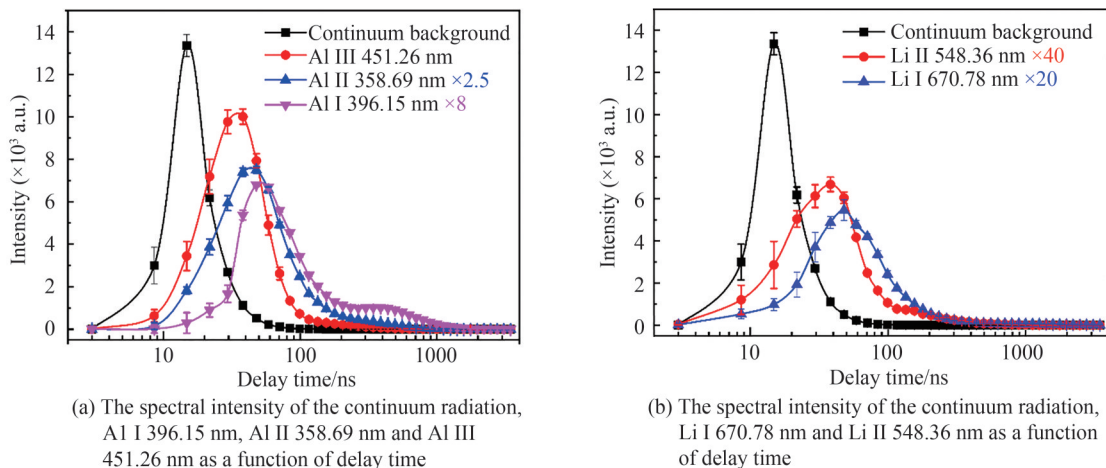


图5 连续背景、Al I 396.15 nm、Al II 358.69 nm、Al III 451.26 nm、Li I 670.78 nm 和 Li II 548.36 nm 光谱强度随时间的演化  
Fig.5 The spectral intensity of the continuum radiation, Al I 396.15 nm, Al II 358.69 nm, Al III 451.26 nm, Li I 670.78 nm and Li II 548.36 nm as a function of delay time

光谱主要在早期 30 ns 内, Al III 451.26 nm 的发光区间为 10~100 ns, 峰值在 40 ns, 维持时间~100 ns; Al II 358.69 nm 的发光区间为 10~200 ns, 峰值在 50 ns, 维持时间~170 ns。离子谱线的下降伴随着原子谱线的上升, Al I 396.15 nm 大约是在 20 ns 后开始出现, 随着等离子体膨胀过程信号先增大后减小, 原子线的强度在 60 ns 达到最大值, 并存在一个较长的拖尾, 发光时间约为 1 000 ns, 该拖尾的存在暗示了有其他能级或者离子复合产生了激发态 Al 原子。观测到不同元素原子谱线和离子谱线发射时间存在较大不同, 离子谱线寿命低于原子寿命谱线。

总之, 等离子体辐射谱线中, 连续谱线主要产生于辐射初期, 且存在时间短; 随着时间的推移, 连续背景光谱强度迅速减小, 此时明显的分立谱线即特征谱线开始出现。在连续背景光谱衰减的同时, 离子谱线强度逐渐达到最大, 然后开始衰减直至消失。离子谱线和原子谱线的时间演化规律不同, 原子谱线以较慢的速度增大, 然后逐渐减小, 比离子谱线强度减小得更慢, 可以持续相当长的时间。这是由于离子相对于激发态原子处于更高的电离态, 衰减地更快, 而原子可由离子复合产生从而存在的时间更长。从光谱信号时间演化分析还可以看出, 连续发射光谱主要在早期 30 ns 内, 50 ns 连续背景基本上降低到相当低的水平, 线状谱仍然保持较高的水平。因此为降低连续背景对信号的影响, 门延迟时间选择在 50 ns 后以获得质量较高的光谱。

#### 2.4 空间分辨光谱及分布(时间积分)

图 6 是当门宽为 10  $\mu$ s 时, 30 ns 时刻铝锂合金等离子体发射光谱的空间分布图, 其 X 轴是波长, Y 轴是等离子体的径向空间位置。可以观察到, 等离子体在真空膨胀过程中, 其中各类物种发光区域有显著差异。

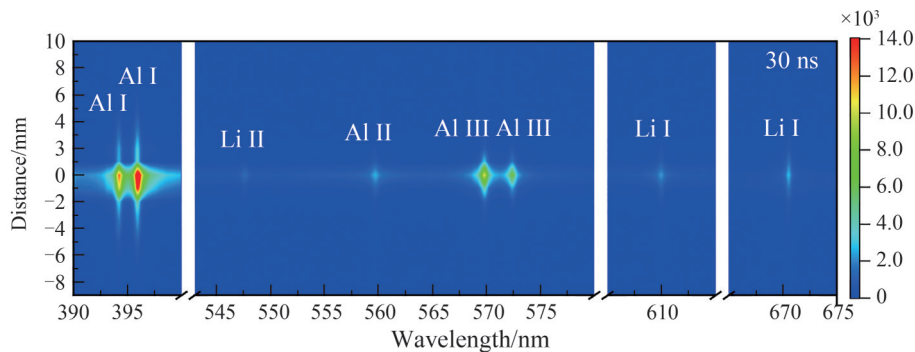


图 6 积分时间 10  $\mu$ s, 门延迟 30 ns 时刻铝锂合金等离子体中 Al I、Al II、Al III、Li I、Li II 的空间分布光谱

Fig.6 Spatial distribution spectra of Al I, Al II, Al III, Li I, Li II in aluminum-lithium alloy plasma at 30 ns, integrated time 10  $\mu$ s

以 Al I 394.40 nm、Al II 559.33 nm、Al III 572.27 nm、Li I 610.36 nm 和 Li II 548.36 nm 为研究对象, 研究了铝锂合金等离子体特征谱线的空间分布特征。如图 7 所示在 30 ns 时刻, 门宽为 10  $\mu$ s 时铝锂合金等离子体中两种元素对应的特征谱线的时间积分的空间分布, 以对应物种发光强度最大值的 5% 作为各自物种发光区域的边界。

从图 7 可以看到, 30 ns 时刻 Al I 394.40 nm、Al II 559.33 nm、Al III 572.27 nm、Li I 610.36 nm、Li II 548.36 nm 的等离子体发光区域分别为: 8.6 mm、5.6 mm、4.8 mm、6.9 mm、9.2 mm。对于 Al 元素, 等离子体发光区域: Al I > Al II > Al III, 对于 Li 元素, 等离子体发光区域: Li II > Li I。

由于上述空间分布是时间积分结果, 发光区域大小取决于发光时间和对应物种扩散速度, 两种机制的共同作用决定了发光区域的大小。由图 5(a) 时间演化结果可以看出, Al 元素发光时间 Al I > Al II > Al III, 并且由表 1 也看出发光时间短的上能级能量也较高, 因此 Al 等离子体中 Al III 发光区域最小, Al II 次之, Al I 发光时间最长, 扩散距离最远, 发光区域最大。尽管我们在前期工作已经发现激光烧蚀等离子体过程中形成的“等离子体鞘层”对离子有加速作用<sup>[36, 37]</sup>, 由于不同物种对应激发态能级寿命差异较大, 发光时间反而起主导作用。但由于 Li II 和 Li I 发光时间(寿命)差异较小(图 5(b) 可以看出), 因此, 相近发光时间下, 发光区域大小取决于速度。由于瞬态鞘层的加速作用, 离子速度大, 因此相对于 Li I 发光区域, Li II 发光区域较大。

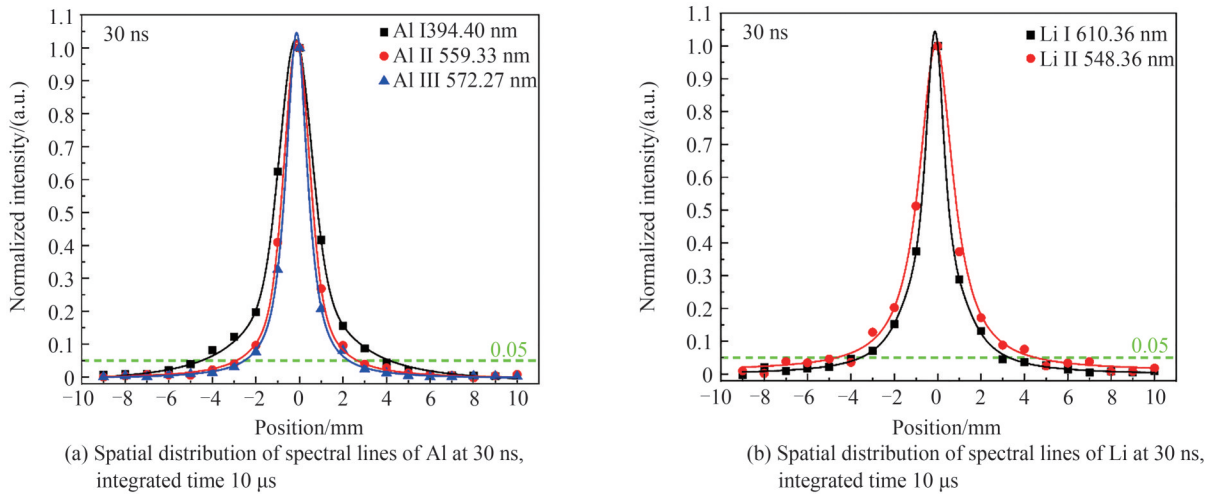
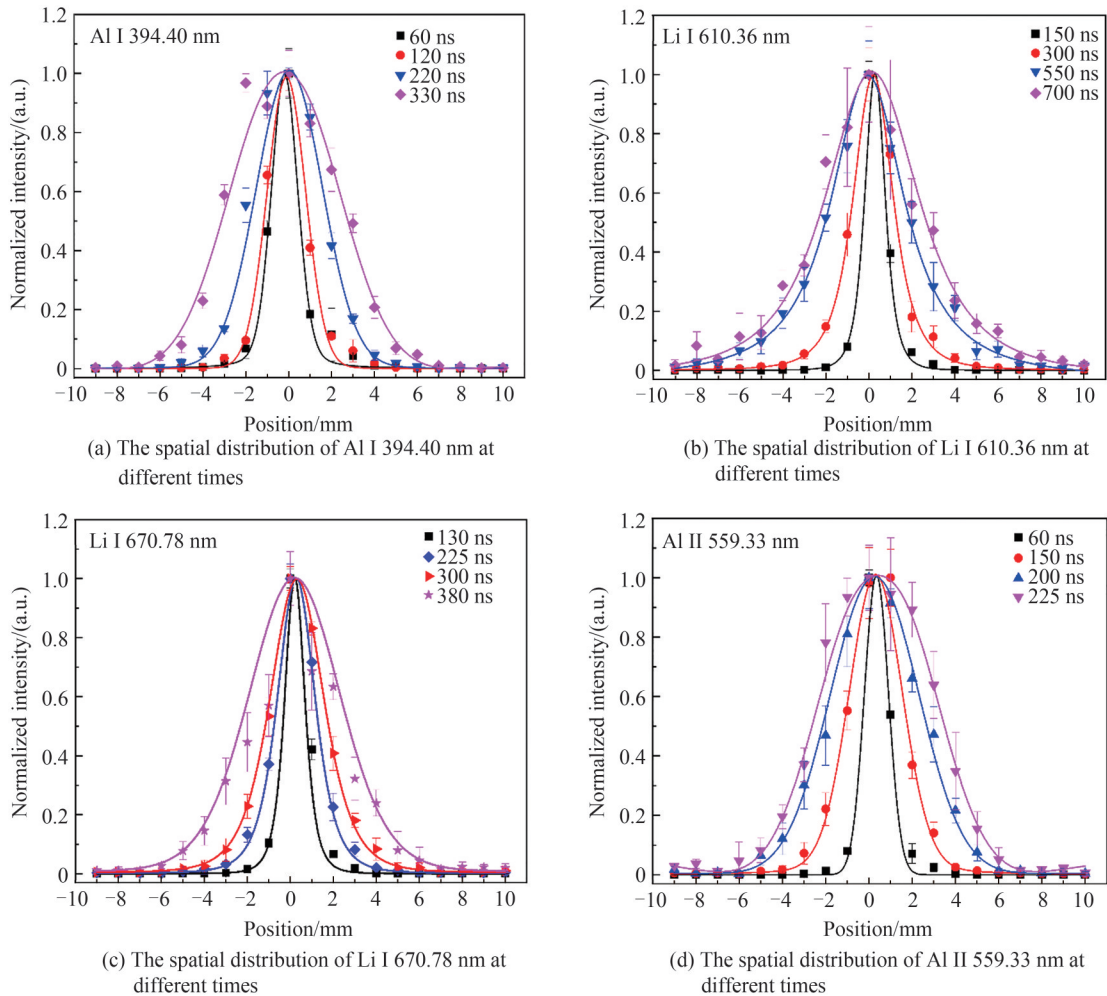


图7 延迟时间 30 ns、积分时间 10  $\mu$ s 时 Al 和 Li 谱线的空间分布  
Fig.7 Spatial distribution of spectral lines of Al and Li at delay time 30 ns, integrated time 10  $\mu$ s

### 2.5 粒子空间分布(时间分辨)及扩散速度

为了探究原子和离子在等离子体膨胀过程的速度差异,图 8(a)~(f) 分别给出了 Al I 394.40 nm、Li I 610.36 nm、Li I 670.78 nm、Al II 559.33 nm、Li II 548.36 nm、Al III 572.27 nm 特征谱线在不同时刻的空间分布。需要提及的是,这里的空间分布均为时间分辨与前面的时间积分光谱有所不同,对应的光谱门宽为 3 ns 加上门延迟时间的 10%。例如,延迟时间为 60 ns 对应的门宽为 9 ns,延迟时间为 330 ns 的对应的门



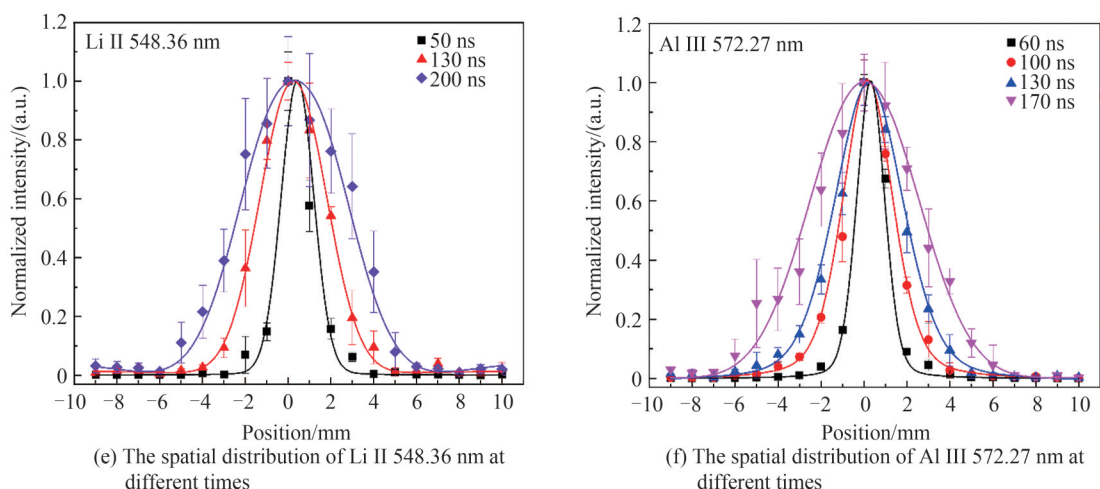


图 8 Al I 394.40 nm、Li I 610.36 nm、Li I 670.78 nm、Al II 559.33 nm、Li II 548.36 nm、Al III 572.27 nm 特征谱线在不同时刻的空间分布

Fig. 8 The spatial distribution of Al I 394.40 nm, Li I 610.36 nm, Li I 670.78 nm, Al II 559.33 nm, Li II 548.36 nm and Al III 572.27 nm at different times

宽为 36 ns。并进一步绘制了原子谱线和离子谱线的对应时刻和扩张位置的关系,线性拟合得到了不同粒子在等离子体膨胀过程中的平均扩张速度,如图 9 所示。表 2 给出了铝锂合金中不同物种速度的汇总,也包括

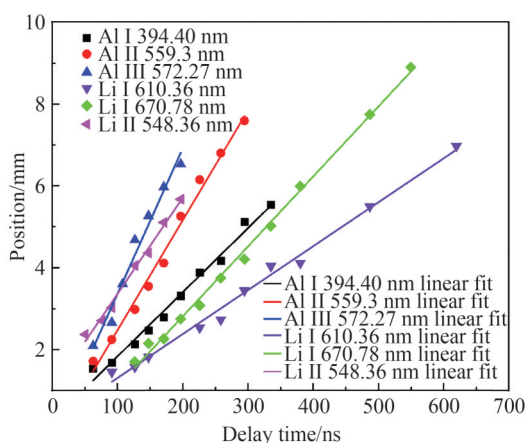


图 9 两种元素对应原子和离子的速度拟合

Fig. 9 Velocity fitting diagram of two elements corresponding to atoms and ions

表 2 铝锂合金中两种元素对应原子和离子速度汇总

Table 2 Summary of atomic and ion velocities corresponding to two elements in aluminum-lithium

Species	Wavelength/nm	Atomic velocity/ ( $\text{km} \cdot \text{s}^{-1}$ )	Univalent ion velocity/ $(\text{km} \cdot \text{s}^{-1})$	Divalent ion velocity/ $(\text{km} \cdot \text{s}^{-1})$
Al I	394.40	$15.7 \pm 0.6$	/	/
Al I	396.15	$15.1 \pm 0.3$		
Al II	358.69	/	$18.6 \pm 0.5$	/
Al II	559.33	/	$26.9 \pm 0.9$	/
Al III	569.66	/	/	$48.6 \pm 0.8$
Al III	572.27	/	/	$35.5 \pm 2.5$
Li I	610.36	$10.7 \pm 0.4$	/	/
Li I	670.78	$17.1 \pm 0.3$	/	/
Li II	548.36	/	$23.5 \pm 0.9$	/



了另外额外三条Al元素的特征谱线(Al I 396.15 nm、Al II 358.69 nm、Al III 569.66 nm)的扩张速度。

可以发现,对于同一种元素,离子速度大于中性原子速度,即Al III>Al II>Al I, Li II>Li I,这是由于在激光烧蚀过程中形成的等离子体鞘层对离子有加速作用。激光产生的等离子体主要通过电子-离子逆韧致辐射碰撞吸收纳秒脉冲激光能量而形成,电子-离子的热化时间( $10^{-10}\sim 10^{-11}$  s)比纳秒激光脉冲持续时间短得多,所以激光作用期间电子和离子虽可能处于热平衡状态。然而,由于巨大的质量差异,电子速度会远高于离子速度,电子会更早地从样品表面逃逸,导致样品表面附近产生的电子和等离子体在空间上发生了电荷分离,这些电子少部分会逃逸,大部分被等离子体边缘处的自生电场约束,形成了一个“瞬态鞘层”,前期研究已经在激光烧蚀高Z金属W等离子体中证实了电子逃离形成了“瞬态鞘层”的存在<sup>[36,37]</sup>。由于在等离子体鞘层中存在径向电场,离子会受电场力的作用,因此同种元素中离子的速度大于中性原子的速度。对于不同元素的同种电荷态粒子速度差异,正常应是质量小的粒子速度较大, $Li^{0+}>Al^{0+}$ ,  $Li^+>Al^+$ ,即“质量分离效应”。然而测量结果为,Al II 559.33 nm>Li II 548.36 nm>Al II 358.69 nm,而Li I 670.78 nm>Al I 394.4 nm $\approx$ Al I 396.15 nm>Li I 610.36 nm。质量小的速度似乎并不总是大,粒子质量差异导致的质量分离效应并不能完全解释光谱实验测得的结果。这可能是由于,速度测量是利用某条光谱谱线测得,单一光谱可能不能代表某类物种的整体速度;另外形成等离子体过程中存在着各个复杂反应,例如Al I发光可能存在着较快的离子Al III复合产生Al II,较快的Al II与电子复合产生Al I,导致光谱结果可能存在着“伪加速”现象。需要说明的是,上述过程仅仅是一种推测性讨论,涉及等离子体膨胀过程中更加复杂的物理化学过程,有待进一步研究加以确认。

### 3 结论

本文在 $10^{-5}$  mbar的真空条件下,以铝锂合金为样品,在线性光纤束采集系统的基础上,开发了一种同轴LIBS系统。对铝锂合金等离子体发射光谱分别进行时间积分和时空分辨测量,评估了等离子体发光时间 $\sim 1\ \mu\text{s}$ ,发光区域大小 $\sim 1\ \text{cm}$ 。同时研究了铝锂合金等离子体发射的时空演化行为,结果表明连续背景、不同元素的原子谱线和离子谱线随时间的演化规律有所不同,并给出了激光烧蚀等离子体不同辐射机制的辐射时间尺度。观察到了铝锂合金等离子体在真空膨胀过程中元素分布具有空间不均匀性。对于离子加速现象,利用“鞘层加速效应”物理机制解释了同种元素的离子速度大于其原子速度的结果。对于同种电荷态不同元素速度差异,利用“质量分离”效应以及较快的离子复合效应进行了讨论。该研究为LIBS在EAST壁诊断的应用提供了有用的信息,有助于深入理解激光烧蚀等离子体真空膨胀物理过程,同时为LIBS定量分析模型也提供了一定的参考。

#### 参考文献

- [1] LI Cong, FENG Chunlei, ODERJI H Y, et al. Review of LIBS application in nuclear fusion technology [J]. *Frontiers of Physics*, 2016, 11(6): 1-16.
- [2] MERCADIER L, SEMEROK A, KIZUB P A, et al. In-depth analysis of ITER-like samples composition using laser-induced breakdown spectroscopy [J]. *Journal of Nuclear Materials*, 2011, 414(3): 485-491.
- [3] GRIGORE E, GHERENDI M, BAIASU F, et al. The influence of N on the D retention within W coatings for fusion applications [J]. *Fusion Engineering and Design*, 2019, 146: 1959-1962.
- [4] SCHWEER B, BEYENE G, BREZINSEK S, et al. Laser techniques implementation for wall surface characterization and conditioning [J]. *Physica Scripta*, 2009, T138: 014008.
- [5] YAMAMOTO K Y, CREMERS D A, FERRIS M J, et al. Detection of metals in the environment using a portable laser-induced breakdown spectroscopy instrument [J]. *Applied Spectroscopy*, 1996, 50(2): 222-233.
- [6] GRISOLIA C, SEMEROK A, WEULERSSE J M, et al. In-situ tokamak laser applications for detritiation and co-deposited layers studies [J]. *Journal of Nuclear Materials*, 2007, 363-365: 1138-1147.
- [7] GIERSE N, SCHWEER B, HUBER A, et al. In situ characterisation of hydrocarbon layers in TEXTOR by laser induced ablation and laser induced breakdown spectroscopy [J]. *Journal of Nuclear Materials*, 2011, 415(1): S1195-S1198.
- [8] FARID N, LI Cong, WANG Hongbei, et al. Laser-induced breakdown spectroscopic characterization of tungsten plasma using the first, second, and third harmonics of an Nd: YAG laser [J]. *Journal of Nuclear Materials*, 2013, 433(1-3): 80-85.
- [9] HAI Ran, WU Xingwei, XIN Yu, et al. Use of dual-pulse laser-induced breakdown spectroscopy for characterization of the laser cleaning of a first mirror exposed in HL-2A [J]. *Journal of Nuclear Materials*, 2014, 447(1-3): 9-14.

- [10] FANTONI R, ALMAVIVA S, CANEVE L, et al. Hydrogen isotope detection in metal matrix using double-pulse laser-induced breakdown-spectroscopy [J]. *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, 2017, 129: 8-13.
- [11] FARID N, WANG Hongbei, LI Cong, et al. Effect of background gases at reduced pressures on the laser treated surface morphology, spectral emission and characteristics parameters of laser produced Mo plasmas [J]. *Journal of Nuclear Materials*, 2013, 438(1-3): 183-189.
- [12] HAI Ran, FARID N, ZHAO Dongye, et al. Laser-induced breakdown spectroscopic characterization of impurity deposition on the first wall of a magnetic confined fusion device: experimental advanced superconducting tokamak [J]. *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, 2013, 87: 147-152.
- [13] KARHUNEN J, HAKOLA A, LIKONEN J, et al. Development of laser-induced breakdown spectroscopy for analyzing deposited layers in ITER [J]. *Physica Scripta*, 2014, T159: 014067.
- [14] HUBER A, SCHWEER B, PHILIPPS V, et al. Development of laser-based diagnostics for surface characterisation of wall components in fusion devices [J]. *Fusion Engineering and Design*, 2011, 86(6-8): 1336-1340.
- [15] MERCADIER L, HERMANN J, GRISOLIA C, et al. Analysis of deposited layers on plasma facing components by laser-induced breakdown spectroscopy: towards ITER tritium inventory diagnostics [J]. *Journal of Nuclear Materials*, 2011, 415(1): S1187-S1190.
- [16] ZHAO Dongye, LI Cong, HU Zhenhua, et al. Remote in situ laser-induced breakdown spectroscopic approach for diagnosis of the plasma facing components on experimental advanced superconducting tokamak [J]. *Review of Scientific Instruments*, 2018, 89(7): 073501.
- [17] HU Zhenhua, LI Cong, XIAO Qingmei, et al. Preliminary results of in situ laser-induced breakdown spectroscopy for the first wall diagnostics on EAST [J]. *Plasma Science and Technology*, 2017, 19(2): 025502.
- [18] HU Z, GIERSE N, LI C, et al. Development of laser-based technology for the routine first wall diagnostic on the tokamak EAST: LIBS and LIAS [J]. *Physica Scripta*, 2017, T170: 014046.
- [19] LI Cong, SUN Liying, HU Zhenhua, et al. An in situ diagnostic method for monitoring of fuel retention on the first wall under long-pulse operation of experimental advanced superconducting tokamak [J]. *Physica Scripta*, 2020, 2020(T171): 014069.
- [20] LIU P, ZHAO D Y, SUN L Y, et al. In situ diagnosis of Li-wall conditioning and H/D co-deposition on the first wall of EAST using laser-induced breakdown spectroscopy [J]. *Plasma Physics and Controlled Fusion*, 2018, 60(8): 085019.
- [21] COLAO F, ALMAVIVA S, CANEVE L, et al. LIBS experiments for quantitative detection of retained fuel [J]. *Nuclear Materials and Energy*, 2017, 12: 133-138.
- [22] MAURYA G S, JYOTSANA A, KUMAR R, et al. In situ analysis of impurities deposited on the tokamak flange using laser induced breakdown spectroscopy [J]. *Journal of Nuclear Materials*, 2014, 444(1-3): 23-29.
- [23] LI Cong, YOU Jiajia, WU Huace, et al. Temporal and spatial evolution measurement of laser-induced breakdown spectroscopy on hydrogen retention in tantalum [J]. *Plasma Science and Technology*, 2020, 22(7): 074008.
- [24] WU Huace, LI Cong, WU Ding, et al. Spatiotemporal dynamic characterization of the laser-induced plasma of a mixed material (WCCu) under variable ablation angles in a vacuum [J]. *Journal of Analytical Atomic Spectrometry*, 2022, 37(10): 2069-2081.
- [25] LI Cong, ZHAO Dongye, WU Xingwei, et al. Spatial resolution measurements of C, Si and Mo using LIBS for diagnostics of plasma facing materials in a fusion device [J]. *Plasma Science and Technology*, 2015, 17(8): 638-643.
- [26] ZHAO Dongye, LI Cong, WANG Yong, et al. Temporal and spatial dynamics of optical emission from laser ablation of the first wall materials of fusion device [J]. *Plasma Science and Technology*, 2017, 20(1): 014022.
- [27] FEDERICI G, SKINNER C H, BROOKS J N, et al. Plasma-material interactions in current tokamaks and their implications for next-step fusion reactors [R]. Office of Scientific and Technical Information (OSTI), 2001.
- [28] DEKSNIS E B, PEACOCK A T, ALTMANN H, et al. Beryllium plasma-facing components: JET experience [J]. *Fusion Engineering and Design*, 1997, 37(4): 515-530.
- [29] KRETER A, DITTMAR T, NISHIJIMA D, et al. Erosion, formation of deposited layers and fuel retention for beryllium under the influence of plasma impurities [J]. *Physica Scripta*, 2014, T159: 014039.
- [30] MOIR R W. Liquid first walls for magnetic fusion energy configurations [J]. *Nuclear Fusion*, 1997, 37(4): 557-566.
- [31] LI J, GUO H Y, WAN B N, et al. A long-pulse high-confinement plasma regime in the experimental advanced superconducting tokamak [J]. *Nature Physics*, 2013, 9(12): 817-821.
- [32] XU G S, WAN B N, LI J G, et al. Study on H-mode access at low density with lower hybrid current drive and lithium-wall coatings on the EAST superconducting tokamak [J]. *Nuclear Fusion*, 2011, 51(7): 072001.
- [33] HAI R, LIU P, WU D, et al. Effect of steady magnetic field on laser-induced breakdown spectroscopic characterization of EAST-like wall materials [J]. *Journal of Nuclear Materials*, 2015, 463: 927-930.
- [34] LIU Ping, HAI Ran, WU Ding, et al. The enhanced effect of optical emission from laser induced breakdown spectroscopy of an al-li alloy in the presence of magnetic field confinement [J]. *Plasma Science and Technology*, 2015, 17(8):

- 687–692.
- [35] NIST Atomic Spectra Database ver.5.8[DB]. National Institute of Standards and Technology, <https://www.nist.gov/pml/atomic-spectra-database>.
- [36] WU Ding, ZHANG Lei, LIU Ping, et al. Diagnostic study of laser-produced tungsten plasma using optical emission spectroscopy and time-of-flight mass spectroscopy [J]. *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, 2017, 137: 70–76.
- [37] WU Ding, SUN Liying, LIU Jiamin, et al. Dynamics of prompt electrons, ions, and neutrals of nanosecond laser ablation of tungsten investigated using optical emission [J]. *Physics of Plasmas*, 2019, 26(1): 013303.

## Spatiotemporal Evolution of Aluminum–lithium Alloy Plasma Using a Coaxial LIBS System under Vacuum

CUI Zixiao, WU Huace, WU Ding, LIU Jiamin, HU Xiaohan, HAI Ran, LI Cong,  
DING Hongbin

(*School of Physics, Dalian University of Technology, Dalian 116024, China*)

**Abstract:** As an important technique for in-situ wall diagnostics in tokamaks, Laser-Induced Breakdown Spectroscopy (LIBS) has been demonstrated to effectively detect fuel retention and element distribution on the wall surface of the Experimental Advanced Superconducting Tokamak (EAST). However, despite its potential, the accurate quantitative analysis of wall surface elements remains a critical challenge for LIBS technology. One of the primary factors contributing to this challenge is the significant spatiotemporal non-uniformity exhibited by the laser-induced plasma under vacuum conditions. Therefore, investigating the spatiotemporal evolution of the plasma holds great significance for optimizing signal quality and enabling qualitative and quantitative analysis in wall diagnostics using LIBS. In this work, the researchers employed a coaxial optical structure based on a linear array of optical fibers, this setup enabled them to perform spatiotemporal integration and spatiotemporal resolution measurements of aluminum–lithium alloy plasma emission spectra generated by pulsed laser ablation at a wavelength of 1 064 nm, a pulse width of 5 ns, and a power density of 6.3 GW/cm<sup>2</sup> under vacuum conditions. The emission time of the plasma was evaluated to be  $\sim 1 \mu\text{s}$ , and the emission area size was  $\sim 1 \text{ cm}$ . The spatiotemporal evolution behavior of continuous radiation, ionic lines, and atomic lines were analyzed to determine the emission time scale of different radiative mechanisms of laser-ablated plasma. Spatially resolved measurements revealed that the spatial distributions of aluminum (Al) and lithium (Li) atoms and ions were distinct from each other, revealing an element “spatial separation” phenomenon that occurred during the lateral expansion of the laser-ablated aluminum–lithium alloy plasma in a vacuum environment. The results of the spatiotemporal evolution of the species’ lateral expansion velocity showed that the ion velocity of the same element was greater than its atomic velocity (Al III > Al II > Al I, Li II > Li I), this discrepancy in velocities can potentially be attributed to the acceleration provided by the formed transient sheath. Additionally, the study discussed the differences in velocity among different elements in the same charge state, attributing it to the “mass separation” effect and ions recombination. In conclusion, this work aimed to tackle the challenges associated with quantitative analysis of wall surface elements using LIBS in tokamaks. By employing a coaxial optical structure and conducting detailed spatiotemporal measurements, the researchers gained valuable insights into the plasma’s behavior during laser ablation. The study shed light on the emission time scale of various radiative mechanisms, spatial distributions of elements, and the velocities of ions and atoms. These findings contribute to understanding plasma–wall interactions in tokamak devices, providing crucial information for the development of advanced wall diagnostics techniques in fusion research.

**Key words:** Laser-induced breakdown spectroscopy; Aluminum–lithium alloy; Plasma size; Spatiotemporal evolution; Expanding velocity

**OCIS Codes:** 300.6220; 300.6350; 300.6400