

## 双脉冲激光诱导铝等离子体的双波长干涉诊断

张楚蕙, 陆 健, 张宏超, 高 楼, 谢知健

(南京理工大学理学院, 江苏南京 210094)

**摘要:** 双脉冲激光诱导等离子体在激光加工、元素检测、材料去除等领域有广阔的应用前景和发展空间, 对其进行诊断具有重要意义。针对延迟双脉冲激光诱导铝等离子体的作用效果和影响机理, 采用双波长干涉法对其时间演化规律展开研究。基于马赫-曾德尔干涉仪搭建了双波长干涉诊断系统, 得到了双脉冲激光诱导等离子体干涉图。通过对干涉图的处理和分析, 得到了等离子体电子密度随双脉冲激光延迟时间的变化规律。结果表明, 随着双脉冲激光延迟时间的增加, 第二束脉冲激光对等离子体电子密度的增强效果先加强后减弱。其中, 双脉冲激光延迟时间为 10 ns 时, 对等离子体电子密度的增强效果最强, 在 30 ns 时刻, 其中心区域平均电子密度可达  $6.49 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ , 相较于同等能量单脉冲激光诱导等离子体提升了 26%。同时研究了延迟时间对第二束脉冲激光作用机制的影响。研究结果为双脉冲激光诱导等离子体的优化方向提供了参考。

**关键词:** 激光等离子体; 双脉冲激光; 双波长干涉; 电子密度

中图分类号: O439 文献标志码: A DOI: 10.3788/IRLA20210892

## Dual-wavelength interferometric diagnosis of double-pulse laser induced aluminium plasma

Zhang Chuhui, Lu Jian, Zhang Hongchao, Gao Lou, Xie Zhijian

(School of Science, Nanjing University of Science and Technology, Nanjing 210094, China)

**Abstract:** Double-pulse laser-induced plasma has broad application prospects and development space in laser processing, detection of element, material removal and other fields, so it is of great significance to diagnose it. The time evolution law of plasma was obtained by two-wavelength interferometry, to study the effect and mechanism of plasma induced by delayed double-pulse laser. A dual-wavelength interference diagnosis system based on the Mach-Zehnder interferometer was established. It had ability to acquire interferogram of the double-pulse laser-induced plasma. By processing and analyzing the interferogram, the evolution law of plasma electron density with the delay time of double-pulse laser was obtained. The result shows that the effect of the second pulse laser on the plasma electron density first enhances and then weakens with the prolongation of the delay time between double-pulse laser. Among them, when the delay time of the double-pulse laser is 10 ns, the enhancement effect on the plasma electron density is the strongest, when 30 ns, the average electron density in the central region can reach  $6.49 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ , which is 26% higher than that of single-pulse laser-induced plasma with the same energy. Meanwhile, the effect of delay time on the mechanism of secondary pulse laser was studied. The research results provide a reference for the optimization direction of double-pulse laser-induced plasma.

收稿日期: 2021-11-24; 修订日期: 2022-01-13

基金项目: 国家自然科学基金 (11774176)

作者简介: 张楚蕙, 女, 硕士生, 主要从事激光与物质相互作用方面的研究。

导师简介: 陆健, 男, 教授, 博士生导师, 博士, 主要从事激光与材料相互作用机理与光电测试技术方面的研究。

**Key words:** laser plasma; double-pulse laser; two-wavelength interference; electron density

## 0 引言

随着脉冲激光诱导等离子体技术的不断发展,其被广泛应用于激光加工、激光诱导击穿光谱(LIBS)技术、光刻技术等方面<sup>[1-4]</sup>。研究者们发现双脉冲激光诱导等离子体在提高激光能量的吸收率<sup>[5]</sup>、增强 LIBS 信号<sup>[6-8]</sup>以及增强冲击波作用时间及强度<sup>[5,9-10]</sup>等方面展现出了一定的优势,故对双脉冲激光诱导等离子体的增强效果及作用机制展开研究。

2005 年,毛祥磊等人使用 LIBS 法对双脉冲激光诱导硅等离子体的发射光谱进行测量,发现双脉冲激光延迟时间在大于 100 ns 时,双脉冲激光诱导等离子体的电子密度衰减速度小于单脉冲激光等离子体<sup>[11]</sup>。2012 年,刘可等人使用单波长干涉法对双脉冲激光诱导等离子体进行测量,发现在第二束脉冲激光作用后,双脉冲激光等离子体的电子密度大于单脉冲激光等离子体,即双脉冲激光对等离子体的电子密度有增强效果,增加了等离子体作用时间<sup>[12]</sup>。2016 年,宋超等人使用单波长法对延迟双脉冲激光诱导等离子体的膨胀特性及影响机理进行研究,发现共轴双脉冲激光产生空气等离子体的膨胀距离、膨胀速度和冲击波压力均大于单脉冲激光等离子体<sup>[13]</sup>。2020 年,李静逸<sup>[9]</sup>和王国严<sup>[10]</sup>等人使用阴影法对延迟双脉冲激光诱导等离子体的时间演化规律进行研究,发现在最佳延迟时间范围内,双脉冲激光对等离子体的膨胀位移和冲击波强度有增强效果。

对双脉冲激光等离子体进行诊断时,常采用阴影法、LIBS 法、干涉法等。阴影法适用于折射率发生突变的情况,通常采用该方法对等离子体的膨胀特性进行研究。在等离子体形成初期,LIBS 法的光谱信号易受等离子体温度影响;在等离子体形成后期,总粒子密度的波动会影响所得等离子体电子密度的准确度。目前现有的等离子体诊断方法中,干涉法具有高精度、高灵敏度的特点。并且与单波长干涉法相比,双波长干涉法通过对两种波长的干涉图进行处理,能够有效地去除正离子和原子的干扰,提高了测量结果的准确度。综上所述,文中搭建了双波长干涉测量系统,对延迟双脉冲激光诱导等离子体进行诊

断,从而对延迟双脉冲激光对等离子体的作用机制进行研究。

## 1 实验装置及结果

### 1.1 实验装置

激光等离子体激发及其诊断装置如图 1 所示。激发装置(图 1 右侧)由两台调 Q-Nd:YAG 激光器组成,其输出波长为 1064 nm。其中,激光器 2 的脉宽为 7 ns,激光器 3 的脉宽为 10 ns。使用半波片(M4、M5)和偏振分光镜(PBS2、PBS3)对激光能量进行调节,并通过能量计对激光能量进行实时记录。使用合束棱镜 PBS1 对激发光进行合束,形成共轴双脉冲,并通过凸透镜 L4 将两束脉冲激光聚焦在铝靶材的同一位置(光斑直径约为 0.5 mm)。

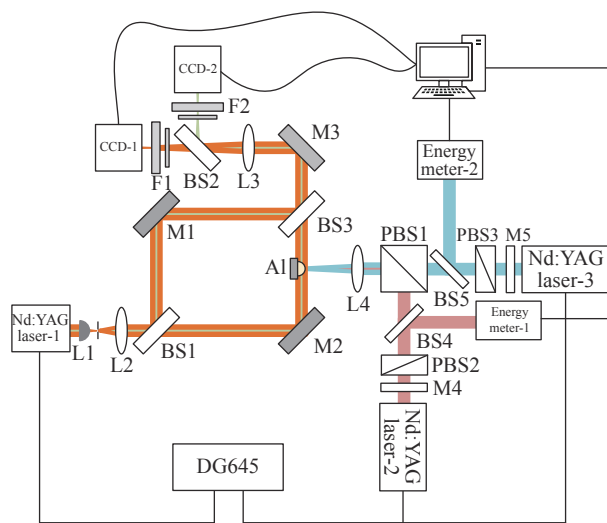


图 1 实验装置图

Fig.1 Diagram of experimental system

诊断装置(图 1 左侧)使用内部含有倍频晶体的调 Q-Nd:YAG 激光器 1 作为测量光源,输出波长为 532 nm 和 1064 nm,脉宽为 7 ns。马赫-曾德尔干涉测量系统由反射镜(M1、M2)和分光镜(BS1、BS3 组成),使用两个 CCD 分别获取 1064 nm 和 532 nm 两种波长的干涉图,并在 CCD 前放置中性滤光片和干涉滤光片。

系统延时由 DG645 进行控制,将两束激发光延迟时间设定为 0、10、20、30、50、100 ns;对探测光和

激发光的延迟时间 (即等离子体的膨胀时间) 进行设定, 得到等离子体在 30、130、230、330、430、530 ns 的时间序列干涉图。

### 1.2 实验结果

图 2 为两束脉冲激光延迟时间为 10 ns 时诱导等离子体的时间序列干涉图。第一束脉冲激光能量密度为 7.0 J/cm<sup>2</sup>, 第二束脉冲激光能量密度为 20.8 J/cm<sup>2</sup>, 激光器的能量波动约为 0.6%。激光从干涉图左侧入射, 铝靶材在干涉图右侧, 图中所标注时间为等离子体膨胀时间。

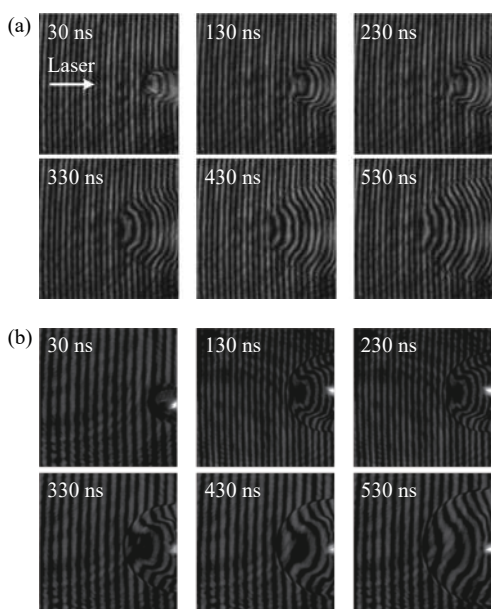


图 2 双脉冲激光等离子体时间序列干涉图。(a) 532 nm 波长激光干涉图; (b) 1064 nm 波长激光干涉图

Fig.2 Time resolved images of plasmas produced by the double-pulse.

(a) 532 nm wavelength laser interferogram; (b) 1064 nm wavelength laser interferogram

## 2 实验数据处理

对干涉图进行处理后得到等离子体的真实相位信息, 因为其具有明显的轴对称结构, 故可利用 Abel 逆变换求解等离子体的折射率分布, 其计算公式如下:

$$n(r) - n_0 = -\frac{\lambda}{\pi} \int_r^R \frac{d\phi(x)/dx}{\sqrt{x^2 - r^2}} dx \quad (1)$$

式中:  $\lambda$  为探测光波长;  $n(r)$  为等离子体折射率;  $n_0$  为空气折射率。

等离子体由大量电子、离子和原子等不同粒子组成, 不同的粒子对等离子体整个区域的折射率影响不同, 一般可表示为<sup>[14]</sup>:

$$n(r) = 1 - \frac{e_0^2}{8\pi^2 \epsilon_0 m_e c^2} \lambda^2 N_e + \sum_k \left( A_k + \frac{B_k}{\lambda^2} \right) \frac{N_k}{N_A} \quad (2)$$

式中:  $e_0$  为元电荷;  $m_e$  为电子质量;  $\epsilon_0$  为真空介电常数;  $c$  为真空中的光速;  $N_A$  为阿伏伽德罗常数;  $N_e$  和  $N_k$  分别代表电子密度和第  $k$  种粒子的密度;  $A_k$  和  $B_k$  为这些粒子的特殊常数。

电子对等离子体折射率起主导作用, 公式 (2) 的第二项为电子对折射率的贡献, 故采用单波长法进行测量时, 可用公式 (3) 对电子密度进行近似计算:

$$N_e = -\frac{8\pi^2 \epsilon_0 m_e c^2}{e_0^2 \lambda^2} (n(r) - 1) \quad (3)$$

文中使用  $\lambda_1$  和  $\lambda_2$  两种波长的激光对等离子体进行诊断, 可由公式 (2) 得到与波长相对应的等离子体折射率:

$$\begin{cases} n_1(r) - 1 = \left( A + \frac{B}{\lambda_1^2} \right) N_e + A_k N_k - 4.49 \times 10^{-14} \lambda_1^2 N_e \\ n_2(r) - 1 = \left( A + \frac{B}{\lambda_2^2} \right) N_e + A_k N_k - 4.49 \times 10^{-14} \lambda_2^2 N_e \end{cases} \quad (4)$$

两式相减可得到等离子体电子密度的计算公式<sup>[15]</sup>:

$$N_e = \frac{(n_2(r) - n_1(r)) \times 10^{14}}{4.49(\lambda_1^2 - \lambda_2^2)} \quad (5)$$

## 3 结果分析与讨论

### 3.1 双脉冲激光诱导等离子体电子密度时空演化

对图 2 中干涉图进行处理, 得到等离子体折射率分布后, 依据公式 (5) 计算得到等离子体的电子密度分布, 如图 3 所示。

为了更直观地对电子密度分布进行分析, 依照图 3 中虚线标注取不同膨胀时间的等离子体电子密度径向分布, 如图 4 所示。

从图 4 中可以看出, 在 30 ns 时, 等离子体外围电子密度最高可达  $9.0 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ , 而内部的电子密度仅为  $4 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$  左右, 呈现明显的等离子体通道特性; 在 230 ns 时, 电子密度下降至  $4 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$  左右, 分布趋于均匀化, 等离子体通道塌陷。纳秒激光诱导形成等离子体时, 在聚焦区域首先发生光电子电离产生“种子电子”, 随后逆韧致吸收迅速占据主导地位, 发

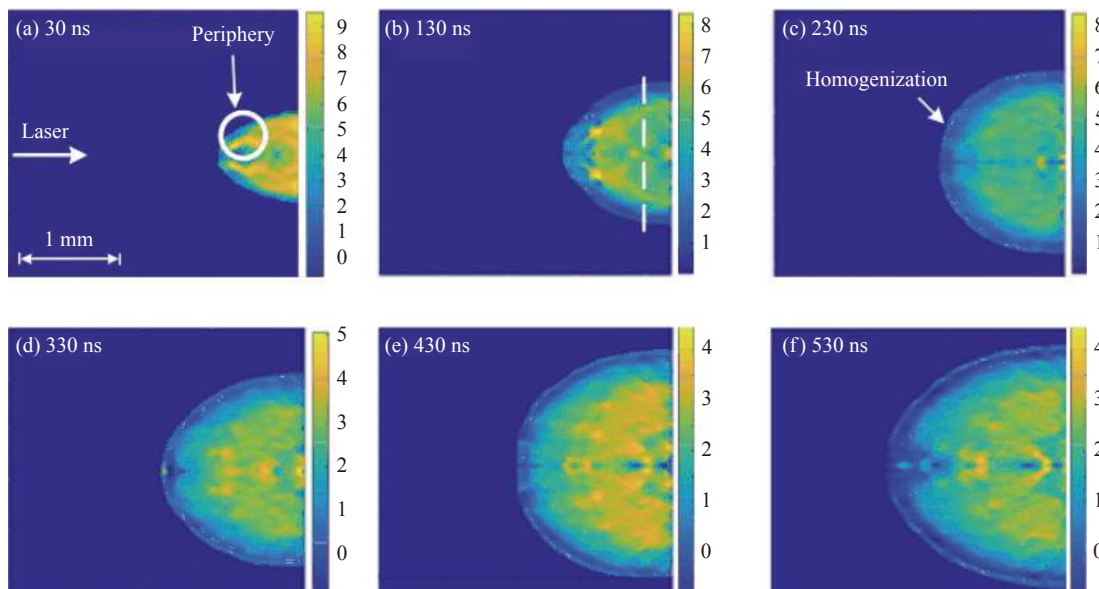


图 3 等离子体的电子密度分布图 (色标单位为  $10^{19} \text{cm}^{-3}$ )

Fig.3 Electron density distribution diagram of plasma (Unit of the color bar is  $10^{19} \text{cm}^{-3}$ )

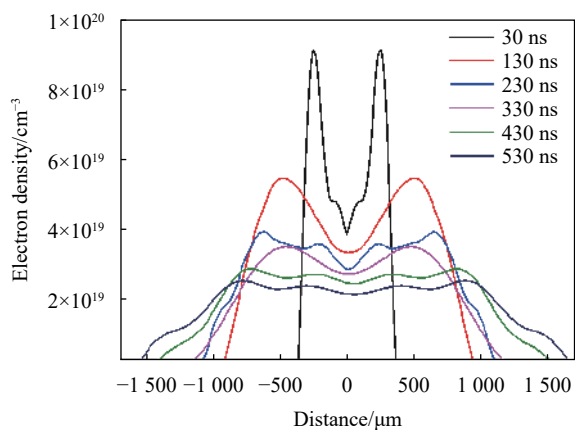


图 4 等离子体电子密度横截面分布

Fig.4 Cross sectional electron density distribution in plasma

生雪崩电离,产生爆轰波。由于爆轰波的作用,等离子体沿径向迅速膨胀,导致其外围电子密度高,内部电子密度低,形成等离子体通道。随着时间增加,等离子体外围电子与离子相结合,导致外围电子密度迅速下降;与此同时,等离子体膨胀速度减慢,两者共同作用使得等离子体通道塌陷。

### 3.2 单、双脉冲激光等离子体电子密度分析

对能量密度为  $7.0 \text{ mJ/cm}^2$  (与双脉冲激光中第一束脉冲激光能量相等)、 $27.8 \text{ mJ/cm}^2$  (与双脉冲激光能量总和相等) 的单脉冲激光诱导等离子体与能量密度为“ $7.0+20.8$ ”  $\text{mJ/cm}^2$ 、延迟时间为  $50 \text{ ns}$  的双脉冲激

光诱导等离子体的中心区域电子密度进行对比,其随等离子体膨胀时间的变化趋势如图 5 所示。

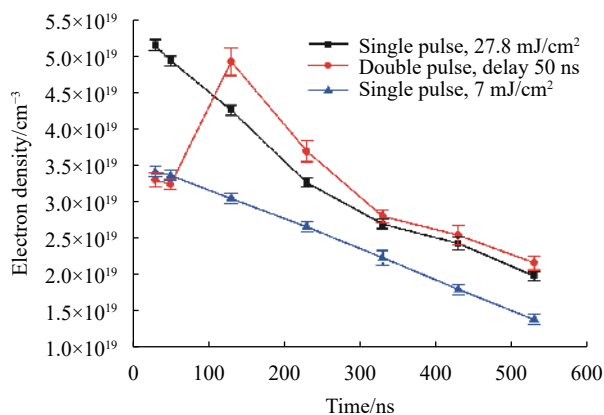


图 5 单、双脉冲激光诱导等离子体电子密度对比图

Fig.5 Comparison of plasma electron density induced by double-pulse laser and single-pulse laser

随着等离子体膨胀时间的增加,双脉冲激光诱导等离子体电子密度的变化表现为以下几个阶段。

阶段 1: 第一束脉冲激光作用在铝靶材表面后产生“种子电子”,继续吸收激光能量,发生雪崩电离,电子密度迅速增加形成预等离子体。阶段 2: 在第二束脉冲激光作用前,随着时间增加,预等离子体发生衰变,电子密度开始下降,其下降趋势与图 5 中蓝色曲线 ( $7.0 \text{ mJ/cm}^2$  单脉冲激光等离子体) 相同。阶段 3:



第二束脉冲激光开始作用后,预等离子体通过逆韧致辐射吸收效应吸收一部分激光能量,对预等离子体进行再加热,一部分激光透过预等离子体作用在铝靶材表面,形成新等离子体,导致电子密度增加。在 130 ns 时,等离子体电子密度从  $3.22 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$  增加到  $4.91 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ ,相较于  $7.0 \text{ mJ/cm}^2$  单脉冲激光等离子体(即预等离子体)的电子密度提高了 62%,相较于  $27.8 \text{ mJ/cm}^2$  单脉冲激光(即与双脉冲激光能量总和相同)诱导形成的等离子体电子密度提高了 15%。说明第二束脉冲激光对预等离子体电子密度有增强作用。阶段 4:随着时间增加,第二个等离子体发生衰变,但其电子密度值始终大于单脉冲激光诱导的等离子体。

### 3.3 不同延迟时间对双脉冲激光诱导等离子体电子密度的作用效果分析

对不同延迟时间的双脉冲激光诱导等离子体的电子密度作用效果和机制进行研究。图 6 为不同延迟时间的双脉冲激光诱导等离子体中心区域电子密度随等离子体膨胀时间的变化趋势。

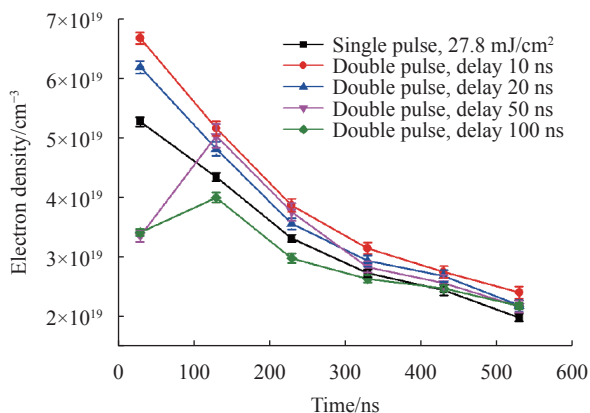


图 6 双脉冲激光等离子体电子密度随脉冲间延迟的变化趋势

Fig.6 Variation of electron density induced by double-pulse laser plasma with delay time

从图 6 中可以看出,双脉冲激光延迟时间在 0~50 ns 时,对等离子体电子密度有增强效果。当双脉冲激光延迟时间增加到 100 ns,等离子体形成初期电子密度小于单脉冲激光等离子体,当膨胀时间大于 430 ns 时,其电子密度大于单脉冲激光等离子体,即双脉冲激光诱导等离子体的电子密度下降速度更小,可增加等离子体的存在时间,并且双脉冲激光对等离

子体电子密度的作用效果为先增强后减弱。

对延迟时间在 0~50 ns 的双脉冲激光对等离子体电子密度的增强效果进行分析时,由于等离子体在不同膨胀时间的电子密度值相差巨大,很难进行对比。故文中利用双脉冲激光诱导等离子体相对于同等能量的单脉冲激光诱导等离子体的电子密度上升百分比,对双脉冲激光诱导等离子体的电子密度增强效果进行评估,其计算公式为:

$$\eta = \frac{N_{eD} - N_{eS}}{N_{eS}} \quad (6)$$

式中:  $N_{eD}$  为双脉冲激光诱导等离子体的电子密度;  $N_{eS}$  为单脉冲激光诱导等离子体的电子密度。电子密度上升百分比  $\eta$  的大小表示等离子体电子密度的增加程度,上升百分比越大,表明双脉冲激光对等离子体电子密度的增强效果越显著。当  $\eta = 0$  时,表示此时对等离子体的电子密度没有增强。

等离子体在同一时刻下,电子密度上升百分比随双脉冲激光延迟时间的变化趋势如图 7 所示。其  $x$  轴为双脉冲激光延迟时间,  $y$  轴为电子密度上升百分比  $\eta$ ,第二束脉冲激光未作用的点不参与对比。

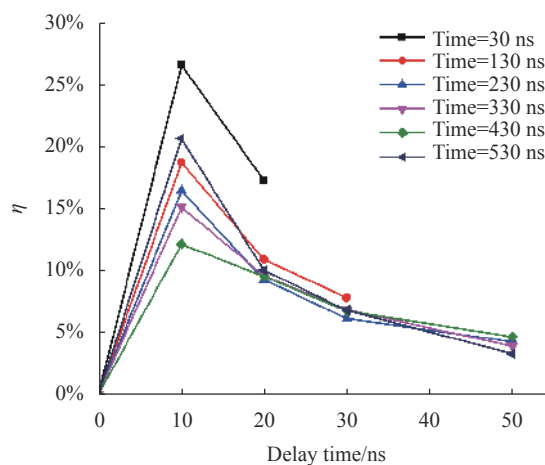


图 7 等离子体电子密度上升百分比

Fig.7 Plasma electron density rise percentage

双脉冲激光延迟时间在 0~50 ns 范围内,等离子体膨胀时间分别为 30、130、230、330、430、530 ns 时,  $\eta$  均先增大后减小,并且其峰值点对应的延迟时间为 10 ns。即随着双脉冲激光延迟时间的增加,双脉冲激光对等离子体电子密度的增强作用先加强后减弱,其原因如图 8 所示。

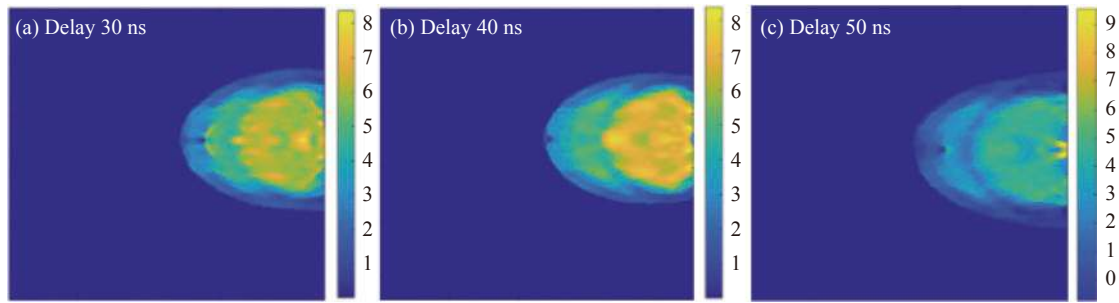


图 8 130 ns 时刻,不同延迟时间的等离子体电子密度分布图(色标的单位为  $10^{19} \text{ cm}^{-3}$ )

Fig.8 Plasma electron density distribution diagram with different delay times at 130 ns (Unit of the color bar scale is  $10^{19} \text{ cm}^{-3}$ )

在等离子体膨胀时间为 130 ns 时,随着双脉冲激光延迟时间的增长,预等离子体和第二束脉冲激光诱导形成的等离子体间的分层逐渐明显,等离子体顶端电子密度明显低于靠近靶材位置的电子密度,并且顶端的电子密度逐渐降低。当延迟时间较短时,第二束脉冲激光主要作用在预等离子体上,对预等离子体进行再加热,预等离子体通过逆韧致辐射吸收大部分激光能量,发生二次电离,且该电离机制主要为雪崩电离。当延迟时间较长时,由于扩散复合效应,预等离子体电子密度降低,第二束脉冲激光对其作用效果减弱,大部分能量透过预等离子体直接作用于铝靶材表面,形成了新的等离子体,其冲击波将预等离子体沿逆激光入射方向推进,导致分层现象明显。

#### 4 结 论

对双脉冲激光诱导等离子体的作用效果展开研究,利用双波长马赫-曾德尔干涉测量系统获得了单脉冲和不同延迟双脉冲激光诱导形成等离子体的时间序列干涉图。实验结果表明,延迟双脉冲激光中的第二束脉冲激光对第一束脉冲激光诱导形成的等离子体有增强效果,并且第二束脉冲激光与第一束脉冲激光间的延迟时间会对等离子体的作用效果产生影响。双脉冲激光延迟时间在 0~100 ns 内,随着延迟时间的增加,第二束脉冲激光对等离子体的增强效果先增加后减小,当双脉冲激光延迟时间为 10 ns 时,等离子体增强效果最强,其电子密度相较于同等能量单脉冲激光提高了 26%;当双脉冲激光延迟时间增加至 100 ns 时,初期电子密度小于单脉冲激光等离子体,由于其电子密度下降速度更低,430 ns 后其电子密度大于单脉冲激光等离子体。

#### 参 考 文 献:

- [1] Zong Nan, Hu Weimin, Wang Zhimin, et al. Research progress on laser-produced plasma light source for 13.5 nm extreme ultraviolet lithography [J]. *Chinese Optics*, 2020, 13(1): 28-42. (in Chinese)
- [2] Zhang J, Wang W M, Yang X H, et al. Double-cone ignition scheme for inertial confinement fusion[J]. *Philosophical Transactions of The Royal Society A-mathematical Physical and Engineering Sciences*, 2020, 378(2184): 20200015.
- [3] Gao Heyan, Jing Xing, Li Lan, et al. Effect of energy density on material migration mechanism in millisecond laser ablation of aluminum target [J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2021, 50(S2): 20210264. (in Chinese)
- [4] Ma Yufei, He Ying, Yu Xin, et al. Research progress of laser source used in laser induced plasma ignition [J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2016, 45(11): 1136003. (in Chinese)
- [5] Xia Shengqiang, Cai Jixing, Zhang Xiaoyun, et al. Numerical analysis of temperature field and stress field of fused silica irradiated by millisecond-nanosecond combined pulse laser [J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2021, 50(S2): 20200415. (in Chinese)
- [6] Piñon V, Fotakis C, Nicolas G, et al. Double pulse laser-induced breakdown spectroscopy with femtosecond laser pulses [J]. *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, 2008, 63(10): 1006-1010.
- [7] Long Jiangmi, Chen Xiaobo, Zhao Guoying. Luminescence enhancement effect of Ag@SiO<sub>2</sub> coreshell nanoparticles on Eu-PMMA films [J]. *Chinese Optics*, 2021, 14(6): 1341-1347. (in Chinese)
- [8] Ren Jia, Gao Xun. Detection of heavy metal Pb in soil by filament-nanosecond laser induced breakdown spectroscopy [J]. *Optics and Precision Engineering*, 2019, 27(5): 1069-1074. (in Chinese)

- [9] Li J, Zhang W, Guo L, et al. Experimental study of different pulse delays on the phenomenon of double shock waves induced by a millisecond-nanosecond combined-pulse laser [J]. *Applied Optics*, 2020, 59(24): 7338-7342.
- [10] Wang Guoyuan, Sun Jingya, Ji Pengfei, et al. Modulation and mechanism of shockwaves induced on metals by femtosecond laser double-pulse[J]. *Journal of Physics D-applied Physics*, 2020, 53(16): 165104.
- [11] Mao X, Zeng X, Wen S, et al. Time-resolved plasma properties for double pulsed laser-induced breakdown spectroscopy of silicon [J]. *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, 2005, 60(7-8): 960-967.
- [12] Liu Ke, Yi Youmin, Li Liangbo. Experimental investigation of delayed double pulse laser produced plasma in air [J]. *Acta Physica Sinica*, 2012, 61(22): 301-307. (in Chinese)
- [13] Song C, Gao X, Wang J. Study on the collinear delay double pulse laser induced air plasma expansion by optical interference [J]. *Optik*, 2016, 127(15): 6081-6086.
- [14] Breitling D, Schittenhelm H, Berger P, et al. Shadowgraphic and interferometric investigations on Nd: YAG laser-induced vapor/plasma plumes for different processing wavelengths [J]. *Applied Physics A-Materials Science & Processing*, 1999, 69(S): S505-S508.
- [15] Cao Eryan, Wang Kaixun. Application of two-wavelength laser interferometer to diagnostics of argon plasma jets [J]. *Chinese Journal of Lasers*, 1986, 13(1): 47-50. (in Chinese)