

# 放电等离子体高精度空间分辨光谱测量方法

田轶夫<sup>1</sup>, 李博<sup>1</sup>, 高强<sup>1\*</sup>, 朱志峰<sup>1</sup>, 朱家健<sup>2</sup>, 李中山<sup>1</sup>

1. 天津大学内燃机燃烧学国家重点实验室, 天津 300072

2. 国防科技大学高超声速冲压发动机技术重点实验室, 湖南 长沙 410073

**摘要** 放电等离子体光谱技术及激光诱导击穿光谱技术由于实验系统相对简单、信号强, 很早就被应用于组分测量领域。由于自由放电在时间和空间上都具有随机性, 这使得放电等离子体空间分辨光谱的精确测量变得十分困难; 而激光诱导击穿光谱技术又局限于点测量。介绍了一种基于飞秒激光诱导的放电等离子体一维空间分辨光谱的高精度测量方法。飞秒激光自聚焦可以形成一段丝状弱等离子体通道, 将该等离子体通道靠近高压直流脉冲电极时, 可作为高压电极放电的触发电源。这种触发方式可在规定的时刻触发高压电并诱导其沿着等离子体通道的路径击穿气体。实验多次测量放电开始时刻与激光到达时刻的时间间隔的波动小于  $0.01 \mu\text{s}$ , 证实了使用本方法诱导高压放电具有很高的重复性。由此可知, 利用飞秒激光自聚焦成丝产生的弱等离子体通道诱导高压放电, 可实现对高压放电的空间和时间的精确控制, 进而可以采集放电等离子体通道的一维空间分辨光谱。实验结果表明, 在喷管结构主导的流场环境中, 由于喷管中纯  $\text{N}_2$  与喷管外空气的组分不同, 在高空间分辨光谱中, 可以清晰地看到一维等离子体通道上不同位置的组分浓度变化情况。在一维空间分辨光谱中将  $\text{N}^+$  和  $\text{O}$  光谱信号强度与  $\text{N}_2$  和  $\text{O}_2$  的浓度进行关联, 可实现流场组分的一维在线诊断。该方法不仅具有纳秒激光诱导击穿光谱技术的相同优点, 还具有一维空间分辨能力, 在组分一维精确测量方面极具优势。同时, 该方法还有望实现高时间分辨测量, 对研究放电等离子体的时空演化过程具有重要的意义。

**关键词** 空间分辨光谱; 一维测量; 放电等离子体; 飞秒激光

**中图分类号:** O433.1 **文献标识码:** A **DOI:** 10.3964/j.issn.1000-0593(2020)05-1340-05

## 引言

等离子体光谱<sup>[1]</sup>诊断技术是组分测量常用方法, 具有选择性好, 灵敏度和准确度高等优点。等离子体通常可以由高压放电诱导<sup>[2]</sup>或激光诱导<sup>[3]</sup>产生。高压放电诱导等离子体光谱诊断技术早已得到了广泛的应用, 如火花诱导击穿光谱(spark-induced breakdown spectroscopy, SIBS)<sup>[4]</sup>和介质阻挡放电(dielectric barrier discharge, DBD)<sup>[5]</sup>技术。这类技术的实验系统简单, 产生的等离子体信号强。但是由于放电在时间和空间上具有随机性, 使得等离子体的高时空分辨光谱测量变得十分困难。激光诱导等离子体光谱诊断技术应用也十分广泛, 如激光诱导击穿光谱(laser-induced breakdown spectroscopy, LIBS)技术。LIBS技术具有信号强、且可精确控制等离子体产生的时间和空间位置, 实验系统简单和操作便捷

的优势。传统的 LIBS 技术以纳秒激光作为光源, 所形成的等离子体在空间尺寸上是一个毫米量级的点, 很难实现一维空间分辨测量。近年来随着飞秒激光技术的不断发展, 飞秒成丝<sup>[6]</sup>现象的应用为一维空间分辨的光谱测量提供了新的思路<sup>[7-9]</sup>。然而, 由于飞秒激光的平均功率偏低, 导致成丝信号偏弱, 从而限制了飞秒激光的应用。

等离子体还可以通过耦合激光和放电过程来产生。激光诱导放电可以追溯到 20 世纪 60 年代, 以纳秒激光作为光源, 用于解决高压电的开关需求。由于雪崩电离产生不连续的等离子体通道, 纳秒激光光源逐渐被放弃。飞秒成丝可以形成轴向电子密度接近常数的连续弱等离子体通道<sup>[6]</sup>, 由此飞秒激光逐渐成为诱导放电的主要光源。与此同时, 放电还进一步增强了成丝形成的等离子体通道的信号强度。

最近, 我们开发了飞秒激光成丝诱导放电测速技术(FALED)<sup>[10]</sup>, 实现了激光对放电的时空及能量的精确控制,

收稿日期: 2019-04-28, 修订日期: 2019-08-18

基金项目: 国家自然科学基金项目(51806149, 91741205)资助

作者简介: 田轶夫, 1994 年生, 天津大学机械工程学院硕士研究生

\* 通讯联系人 e-mail: qiang.gao@tju.edu.cn

e-mail: tianyifu@tju.edu.cn

不仅解决了测速问题,还为一维组分精确测量提供了可能。本文在以喷管结构为主导的流场中,拍摄放电等离子体的一维高精度空间分辨光谱,就组分及浓度的一维精确测量方法的可行性进行验证。对比分析等离子体通道上不同位置的光谱信息,以及不同组分的一维分布信息。

## 1 实验部分

实验光路及装置示意图如图 1 所示,由喷管系统、飞秒激光系统、高压放电系统和光信号收集系统组成。喷管是一个内径为 2.5 mm 的玻璃管,喷管与气体质量流量计相连供应纯  $N_2$ ,喷管外侧协流供应干燥的空气。飞秒 Ti: sapphire 激光器(Spitfire Ace, Spectra-Physics)产生基频 800 nm,脉宽 45 fs,重复频率 10 Hz 的激光,激光单脉冲能量为 6 mJ。飞秒激光由一块焦距为 500 mm 的石英透镜聚焦,形成长度约为 15 mm 的等离子体光丝,光丝置于喷管正上方。

飞秒激光器的前置外触发信号(TTL)提前激光脉冲约 2.9  $\mu\text{s}$ 。TTL 信号触发 DG 535 延迟触发器,然后由 DG 535 输出信号触发高压电源。高压放电系统由一台直流脉冲高压电源(MINISTROBOKIN 20, HSPS)和一对尖端电极组成。电压输出峰值为 5 kV。高压电源的高压端和接地端分别接在两个尖端电极上(如图 1 所示),将尖端电极沿等离子体光丝轴向同侧布置,两电极分别位于光丝两端并与其高度相同,正负电极间距为 10 mm,电极与光丝水平距离约 1 mm,其中接地端电极靠近激光入射方向。

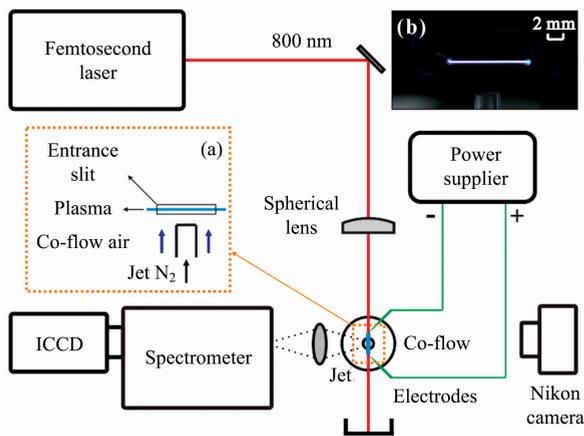


图 1 实验光路及装置示意图

(a): 光谱仪狭缝主视图; (b): 飞秒激光成丝诱导放电照片

Fig. 1 A schematic diagram of the experimental optical path and devices

(a): The main view of the spectrometer slit;

(b): A photo of femtosecond laser filamentation-guided discharge

光信号收集系统由光谱仪(Action 2300i, Princeton Instrument)、ICCD 相机(PI Max-3, Princeton Instrument)和单反相机(D90, Nikon)组成。等离子体光丝的发射光成倒像于光谱仪狭缝处,且与狭缝平行等高[如图 1(a)所示],这样即可获得沿光丝方向的空间分辨光谱。飞秒激光成丝诱导放电的照片[如图 1(b)所示]由单反相机获得,相机曝光时间为

1/10 s。

## 2 结果与讨论

### 2.1 高空间分辨光谱测量的前提条件

直接对比自由放电和飞秒激光成丝诱导放电的照片如图 2 所示。在尖端电极两端施加高电压,当电极间电场强度大于极限击穿场强时,电极间的气体会被击穿而形成放电[如图 2(a)所示]。但是由于放电的随机性,放电的时间和空间位置都不确定。对于放电等离子体光谱测量来说,则很难将放电产生的不规则丝状等离子体清晰完整地成像到光谱仪中,同时 ICCD 相机也很难进行同步的记录。

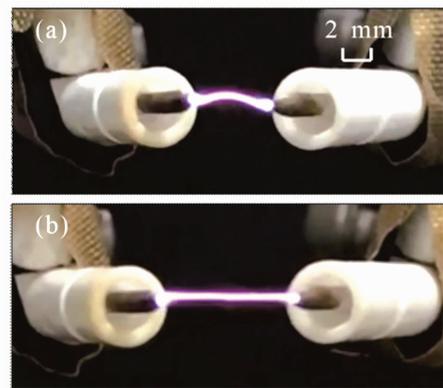


图 2 (a)自由放电; (b)飞秒激光成丝诱导放电  
Fig. 2 (a) Free electric discharge; (b) femtosecond laser filamentation-guided discharge

电极间距增大,当电极间电场强度小于放电击穿极限场强时,在施加相同高压电时,高压电极不能实现击穿放电。然而,将飞秒激光自聚焦形成的丝状等离子体通道靠近高压电极尖端时,可以触发并诱导高压放电[如图 2(b)所示]。这种触发方式可以使放电在规定的时刻严格按照激光路径击穿。

连续记录多次放电的光信号和电压信号,测得放电时刻相对激光到达时刻的时间间隔基本不发生变化,时间间隔的抖动在 0.01  $\mu\text{s}$  以内。通过飞秒激光成丝不仅可以成功地触发并诱导高压电极形成放电,这种放电还具有很好的重复性,在本实验条件下,诱导放电频率为 10 Hz。凭借飞秒激光实现了对放电时间和空间的精确控制,由此可以对放电形成的等离子体进行高空间分辨光谱测量。

### 2.2 放电等离子体的高空间分辨光谱测量

在喷管[如图 3(c)所示]中通入纯  $N_2$ ,喷管外侧伴随干燥的空气协流,将光谱仪狭缝与飞秒激光成丝诱导放电等离子体平行等高放置,拍摄放电等离子体的高空间分辨光谱图[如图 3(a)所示]。实验中选用 300 grooves  $\cdot \text{mm}^{-1}$  的光栅,ICCD 相机与激光的延迟时间为 0  $\mu\text{s}$ ,曝光时间为 1  $\mu\text{s}$ ,光谱图最小分辨率为 9  $\mu\text{m} \cdot \text{pixel}^{-1}$ 。图 3(a)的纵坐标代表光谱的空间尺寸(6 mm),图 3(c)为此空间尺寸下的实物图,喷管(右)和放电等离子体(左)。图 3(c)中负电极位于放电等离子

体上方,正电极位于放电等离子体下方,从上到下代表飞秒激光入射方向。图 3(a)从上到下代表负、正电极间放电等离子体的发射光谱,将其沿等离子体方向积分得到光谱曲线

[如图 3(b)所示],图 3(a)和图 3(b)的横坐标相同,代表光谱的波长(350~800 nm)。

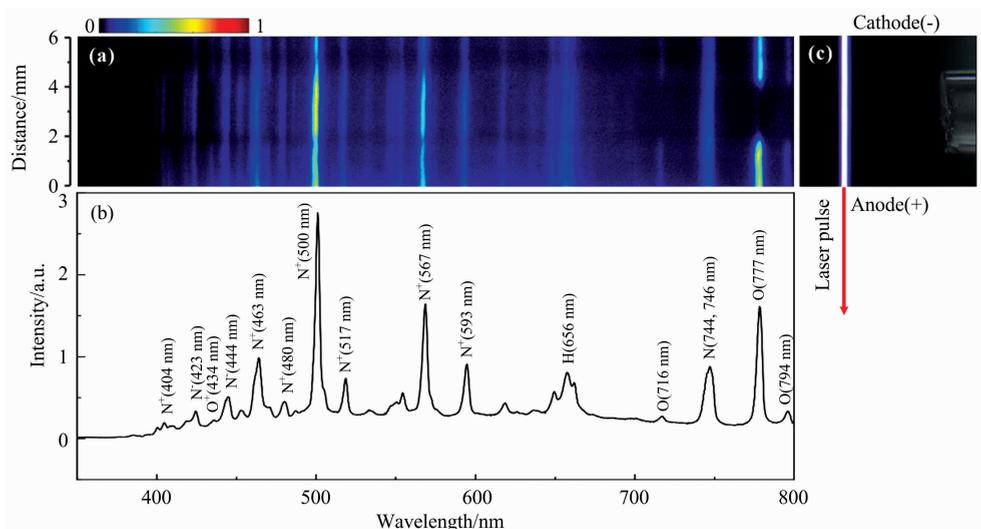


图 3 (a)放电等离子体的一维空间分辨光谱图(光谱仪狭缝与等离子体通道平行);  
(b)沿等离子体方向积分的光谱曲线图;(c)放电等离子体与喷管相对位置

Fig. 3 (a) One-dimensional spatially resolved spectrum of the discharge plasma (spectrometer slit parallel to the plasma channel);  
(b) spectral curve integrated along the plasma direction; (c) the relative position of discharge plasma and jet

与纳秒 LIBS 相似,飞秒激光成丝诱导放电形成的等离子体也以原子光谱为主,其过程是:在飞秒激光自聚焦形成的等离子体通道两端施加高压电场,其激光诱导产生的等离子体中的自由电子可作为种子源,直接被高压电场加速并引发电子雪崩。从光谱中可以看出,该方法极大地降低了韧致辐射的干扰。如果能够使原子发射光谱强度与气体组分浓度建立关联,则可以实现组分及浓度的精确测量。值得注意的是,飞秒激光成丝诱导放电具有的一维空间分辨能力。

从图 3(a)可以明显看出,在 O<sup>+</sup>(777, 794 和 716 nm)和 O<sup>+</sup>(434 nm)等特征光谱信号的中间位置出现明显空缺。其原因是喷管喷出的气体与空气组分不同,为纯 N<sub>2</sub>,所以在喷管对应的等离子体通道中间区域,不能看到 O 和 O<sup>+</sup>的特征光谱信号。同时可以注意到, N<sup>+</sup>(500, 567 和 463 nm)等特征光谱的信号强度在等离子体通道的中间位置明显强于两端。其原因是纯 N<sub>2</sub> 的体积分数(100%)要大于空气中 N<sub>2</sub> 的体积分数(约 78%),所以喷管对应位置处的 N<sup>+</sup>等特征光谱的信号强度明显更强。综上,由一维等离子体通道的高空间分辨光谱可以直接观察到,由于气体环境中不同位置的气体组分及浓度的不同,而导致不同位置特征光谱的信号强度不同。由此可以推测,在飞秒激光成丝诱导放电这种方法中,气体组分及浓度的变化可以和特征光谱的信号强度建立联系,这也为一维组分及浓度的定量测量提供了可能。

为了进一步研究一维等离子体通道上不同位置的气体组分及浓度与光谱信号强度的关联性,沿等离子体通道选取与喷管中心对称的三个位置 P1, P2 和 P3 (如图 4 插图所示),相邻位置间距为 1.5 mm,插图左侧为正电极,右侧为负电

极。从图 3(a)上获取三个位置处所对应的光谱信息,绘制不同位置的光谱曲线图(如图 4 所示)。图 4 的横纵坐标分别代表波长和光谱信号相对强度。由图 4 插图所示,等离子体通道上的 P2 位置对应喷管中心纯 N<sub>2</sub> 区域, P1 和 P3 位置对应喷管外侧空气区域。从谱线种类上看, N<sup>+</sup> 的特征谱线在三个位置均能明显看到,而且线宽基本相同。不同的是,由于 N<sub>2</sub> 在不同位置的体积分数不同,所以 P2 位置的 N<sup>+</sup> 信号强度要明显强于 P1 和 P3。而在 P1 和 P3 位置能够明显看到 O 和 O<sup>+</sup> 等特征谱线,而在 P2 位置几乎看不到。不同位置的氮和氧的光谱信号强度与气体组分(P2: N<sub>2</sub>-100%, O<sub>2</sub>-0%; P1, P3: N<sub>2</sub>-78%, O<sub>2</sub>-21%)相互对应。

从图 4 中还可以看到, P3 位置的 N, N<sup>+</sup>, O 和 O<sup>+</sup> 等信号强度要强于 P1。P3 和 P1 对应位置的气体环境同样是空气组分,其所有谱线峰值位置均相同,但是 P3 位置原子和离子谱线的信号强度整体都要强于 P1。这一现象从图 3(a)的光谱图也可观察到,正电极侧的信号强度要强于负电极侧,信号强度的变化趋势基本是线性变化的。这一现象在 Arantchouk 等的研究<sup>[11]</sup>中也曾涉及到。流注放电持续时间在几十纳秒,这么短的时间内,重粒子(主要是正离子和中性粒子)在此空间尺寸(6 mm)下几乎没有发生运动,在放电空间的位置近似不变。由此可以猜测其原因可能与电子雪崩结构和流注放电特性有关,飞秒激光成丝在诱导放电之前已经形成了一条弱等离子体通道,流注在建立过程中是沿该等离子体通道呈中心对称,由负电极向正电极辐射状的锥型空间结构,所以在正极侧的信号强度要偏强。

我们可以通过比值的方法来进行一维标定,一维标定实

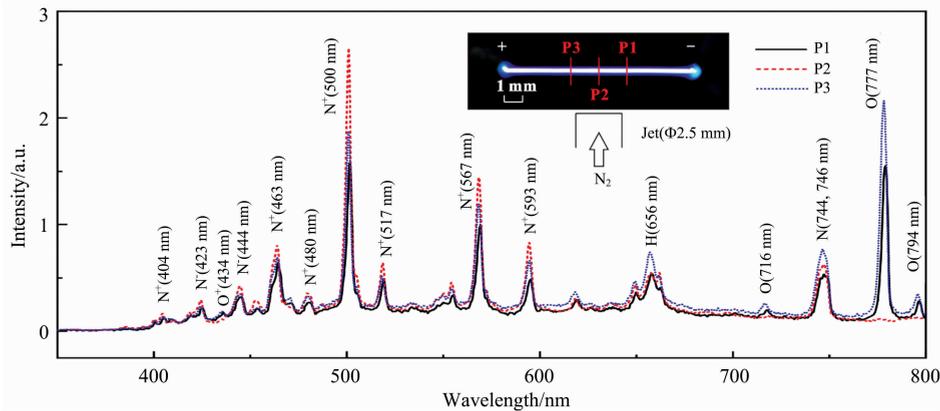


图 4 放电等离子体通道上不同位置的光谱曲线图, 插图为光谱选取位置

Fig. 4 Spectral curves at different locations on the discharge plasma channel, along with an illustration shows the location of the spectrum

验是在干燥的空气环境中进行, 将各组分浓度已知的干燥空气从喷口喷出, 并拍摄飞秒激光成丝诱导放电的一维空间分辨光谱作为参考光谱。将实验(吹纯  $N_2$ )测得的一维空间分辨光谱与参考光谱求比值(如图 5 所示), 以  $N^+$  (500 nm) 和

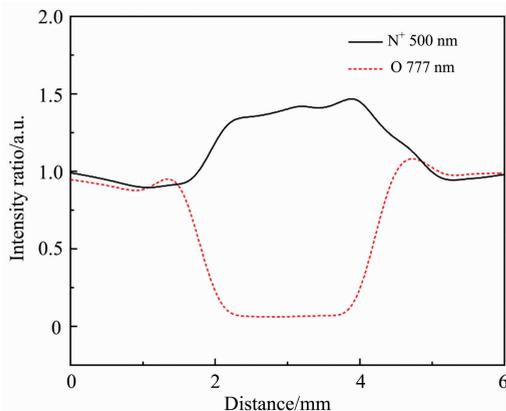


图 5 放电等离子体通道上  $N^+$  和 O 信号强度比值的一维分布定标曲线图

Fig. 5 One-dimensional distribution calibration curves of the signal intensity ratios of  $N^+$  and O atom on the discharge plasma channel

O (777 nm) 信号为例, 可得到粒子信号强度比值的一维分布图。因为两组实验采用相同的空气协流, 所以  $N^+$  和 O 的信号强度比值在喷管外侧位置接近于 1。同时在外侧位置与喷管中心的边界层出现了过渡段, 这一特点符合由喷管结构主导的流场特征。O 的信号强度比值在喷管中心位置接近于 0, 而  $N^+$  的信号强度比值在此位置出现了明显的峰值。与定标组的空气组分相比, 在喷管中心对应位置, 纯  $N_2$  等离子体中  $N^+$  的信号强度比空气等离子体中  $N^+$  的信号强度高, 其比值约为 1.4 左右, 接近纯  $N_2$  与空气中  $N_2$  的浓度比。这一实验结果验证了飞秒激光成丝诱导放电一维组分浓度测量的可行性。

### 3 结 论

利用飞秒激光自聚焦形成的弱等离子体通道触发并诱导高压直流脉冲放电, 实现对放电时间和空间的精确控制, 进而实现了放电等离子体光谱的一维空间分辨测量。该方法不仅与纳秒激光诱导击穿光谱技术具有相同优势, 而且还将其扩展到一维测量。该方法还具有时间分辨测量的潜力, 对研究等离子体光谱的时空演化过程具有十分重要的意义。

### References

- [1] Kotzagianni M, Yuan R, Mastorakos E, et al. Combustion and Flame, 2016, 167: 72.
- [2] Hsieh K C, Wang H, Locke B R. Plasma Processes and Polymers, 2016, 13(9): 908.
- [3] Jantzi S C, Motto-Ros V, Trichard F, et al. Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy, 2016, 115: 52.
- [4] Rahman K M, Kawahara N, Matsunaga D, et al. International Journal of Hydrogen Energy, 2016, 41(32): 14283.
- [5] Ouyang L, Cao Z, Wang H, et al. Journal of Alloys and Compounds, 2017, 691: 422.
- [6] Li B, Zhang D, Liu J, et al. Applied Sciences, 2019, 9(9): 1906.
- [7] Gao Q, Zhang D, Li X, et al. Sensors and Actuators A: Physical, 2019, 287: 138.
- [8] Li B, Zhang D, Li X, et al. Journal of Physics D: Applied Physics, 2018, 51(29): 295102.
- [9] Zhang D, Gao Q, Li B, et al. Optics Express, 2019, 27(3): 2159.
- [10] Li B, Tian Y, Gao Q, et al. Optics Express, 2018, 26(16): 21132.
- [11] Arantchouk L, Honnorat B, Thouin E, et al. Applied Physics Letters, 2016, 108(17): 173501.

# High Accurate Spatially Resolved Measurements of Discharges Plasma Spectra

TIAN Yi-fu<sup>1</sup>, LI Bo<sup>1</sup>, GAO Qiang<sup>1\*</sup>, ZHU Zhi-feng<sup>1</sup>, ZHU Jia-jian<sup>2</sup>, LI Zhong-shan<sup>1</sup>

1. State Key Laboratory of Engines, Tianjin University, Tianjin 300072, China

2. Science and Technology on Scramjet Laboratory, National University of Defense Technology, Changsha 410073, China

**Abstract** Discharge plasma spectroscopy and laser-induced breakdown spectroscopy are widely used in the flow field diagnostics owing their simplicity and strong signal intensity. Due to the random nature of the discharge, the time and space of the discharge are hard to be controlled, so it is difficult to measure the discharge plasma spectra accurately, and the laser-induced breakdown spectroscopy is limited to point measurements. In this paper, we introduce a method of one-dimensional spatially resolved discharge plasma spectra measurements, based on femtosecond laser filamentation-guided discharge. Femtosecond lasers beam self-focusing could create a filamentous weak plasma channel, and this weak plasma channel can be used as a trigger source for the high voltage discharge when it is close to the pair of high voltage electrodes. This triggering way can trigger and guide the discharge to breakdown the air along the path of the plasma channel at a specified time. Under the experimental conditions, the fluctuation of the time interval between laser pulse arriving and the start of discharge is less than  $0.01 \mu\text{s}$ , which indicates that the laser filamentation-guided discharge is highly repeatable. Therefore, using the femtosecond laser can realize the precise control of the time and space of the discharge, and one-dimensional spatially resolved spectra of discharge plasma can be accurately collected. In a jet flow field environment, the mixture fraction in the jet is different from the ambient air. The experimental results show that the changes in the species concentration at different locations can be seen clearly from one-dimensional spatially resolved spectra. By correlating the concentrations of  $\text{N}_2$  and  $\text{O}_2$  with the signal intensity of  $\text{N}^+$  and  $\text{O}$  atom, one can realize a one-dimensional measurements of the species concentration. Compared with nanosecond laser-induced breakdown spectroscopy, this method not only has the same advantages, but also has one-dimensional spatial resolution. Meanwhile, this method has the potential to achieve high temporally resolved measurement, which is of great significance for studying the spatiotemporal evolution process of the discharge plasma.

**Keywords** Spatially resolved spectroscopy; One-dimensional measurement; Discharge plasma; Femtosecond laser

(Received Apr. 28, 2019; accepted Aug. 18, 2019)

\* Corresponding author