

激光聚焦位置对半球腔约束等离子体光谱增强特性的影响

陈旭东¹, 王静鸽^{1,2*}, 冯 笛¹, 魏嘉威¹, 汪利萍¹, 王 红¹

1. 河南科技大学物理工程学院, 河南 洛阳 471023

2. 洛阳师范学院, 河南省电磁变换与探测重点实验室, 河南 洛阳 471934

摘 要 光谱信号增强是提高激光诱导击穿光谱技术分析性能的重要手段之一, 对等离子体进行空间约束由于装置简单且约束效果好而常被采用, 等离子体的特性会直接影响空间约束的效果, 而等离子体的特性与实验系统中激光的聚焦情况密切相关, 为研究激发光源的聚焦情况对半球形空腔约束等离子体光谱增强特性的影响, 通过控制透镜到样品之间的距离(LTSD)来改变激光的聚焦位置, 分别在无约束和有半球形空腔约束两种实验条件下, 烧蚀合金钢产生等离子体, 采集 15 个不同 LTSD 位置时等离子体的时间演变光谱, 得到谱线强度和增强倍数随着 LTSD 和采集延时的二维空间分布图。研究结果发现: 无约束情况下, 谱线强度分别在 LTSD 为 94 和 102 mm 时出现峰值, 在采集延时小于 8 μs 时, 谱线强度的最大值在 LTSD 为 94 mm 的位置, 采集延时大于 8 μs 后, 谱线强度的最大值出现在 LTSD 为 102 mm 的位置; 当用半球空腔约束等离子体, 谱线强度先后在采集延时范围为 4~10 和 12~15 μs 出现第一次增强和第二次增强。谱线强度出现第二次增强的主要原因是被半球腔内壁反射的冲击波与等离子体相互作用后会继续向前传播, 遇到另一侧的腔壁再次被反射, 进而对等离子体产生二次压缩。分析增强倍数随 LTSD 和采集延时的二维变化关系发现, 第一次增强的最大增强倍数随 LTSD 的变化没有明显规律, 增强倍数在 2~6 之间波动; 谱线第二次增强时的增强倍数相对较高, 最大增强倍数随着 LTSD 变化呈现出先增大再减小, 然后再小幅增加后降低的变化规律, 在 LTSD 为 96 mm 时达到最大值, 两条谱线的最大增强倍数约为 6 倍。分析出现最大增强倍数对应的延迟时间发现, 第一次增强出现的最优延迟时间在 6~9 μs 之间变化, 当 LTSD 在 85~93 mm 范围时, 最优延迟时间保持不变, 当 LTSD 在 94~105 mm 时, 出现先降低再增大的变化规律; 第二次增强出现的延迟时间主要在 14~15 μs , 随着 LTSD 的变化没有明显的变化规律。

关键词 激光诱导等离子体; 半球腔约束; 光谱增强; 聚焦位置

中图分类号: O433.4 **文献标识码:** A **DOI:** 10.3964/j.issn.1000-0593(2021)11-3577-06

引 言

激光诱导击穿光谱技术(laser-induced breakdown spectroscopy, LIBS)由于具有无需样品预处理、远距离检测、多元素同时诊断等优点, 已经被广泛用于工业控制^[1]、环境监测^[2]、食品检测^[3]、空间勘探^[4]等领域。为了改善 LIBS 技术中光谱信号稳定性和重复性差的缺点, 双脉冲激光激发^[5-6]、等离子体束缚^[7-8]以及与其他技术联合应用^[9-10]等方法已经被广泛研究, 其中对等离子体进行空间约束是较简单且有效的方法。Guo 等^[11]提出了半球空腔约束等离子体的方法, 由于半球空腔可以对等离子体进行三维约束, 因此具有较好的

光谱增强效果。等离子体的特性与实验系统中聚焦透镜到样品的距离(lens to sample distance, LTSD)有密切关系^[12], 不同聚焦情况下等离子体的形态、辐射光谱信号强度、等离子体温度及电子密度等参数都有较大差别。对等离子体进行空间约束实际上是在等离子体周围设置屏障, 当冲击波在膨胀过程中遇到障碍物时, 反射的冲击波与等离子体相互作用引起光谱信号增强。由此可见, 空间约束的效果与等离子体的特性也有很大关系。Guo 等^[13]研究了不同聚焦情况下圆柱空腔约束对激光诱导硅等离子体的光谱增强特性, 而该论文主要研究了聚焦透镜焦点在样品表面以下时, 光谱增强特性随着 LTSD 的变化。

本文采用半球形空腔对等离子体进行三维空间约束, 采

收稿日期: 2020-10-21, 修订日期: 2021-02-06

基金项目: 国家自然科学基金青年科学基金项目(11504091), 河南科技大学大学生科研训练计划项目(2020186)资助

作者简介: 陈旭东, 2001 年生, 河南科技大学本科生 e-mail: c070516@163.com

* 通讯作者 e-mail: wangjingge1987@126.com

用焦距为 100 mm 的聚焦透镜, 通过调节聚焦透镜的位置, 使透镜到样品之间的距离 LTSD 变化范围为 84~104 mm, 包含了激光聚焦位置在样品表面以下、样品表面和样品表面上三种聚焦情况, 分别采集了无约束和半球腔约束下的等离子体的时间演变光谱, 研究激光的聚焦情况对光谱增强效果的影响。

1 实验部分

实验装置示意图如图 1 所示, 采用波长为 1 064 nm 的 Nd:YAG 调 Q 脉冲固体激光器作为激发光源, 其脉冲宽度为 8 ns, 重复频率设置为 3 Hz, 单脉冲能量设置为 150 mJ, 激光束经过焦距为 100 mm 的平凸透镜 L1 聚焦后穿过半球形空腔(内腔直径为 10 mm)顶部预留的小孔(直径为 3 mm)垂直入射到合金钢样品表面, 半球形空腔由 K 树脂材料制成, 贴合于合金钢样品表面固定。合金钢样品被烧蚀后产生等离子体, 等离子体辐射光经过半球形空腔侧面的直槽口(高为 2.5 mm、半径为 1.5 mm)经焦距为 10 mm 聚焦透镜 L2 聚焦后至光纤端面, 所用传输光纤纤芯直径为 100 μm , 其中光纤端面垂直于样品表面, 传输光纤的另一端与中阶梯光栅光谱仪连接, 等离子体辐射光经过光谱仪分光后通过增强型 CCD (ICCD) 进行光电转换, 所采用的中阶梯光谱仪为 Andor ME5000, 其光谱响应范围为 230~920 nm, 分辨能力为 5 000。

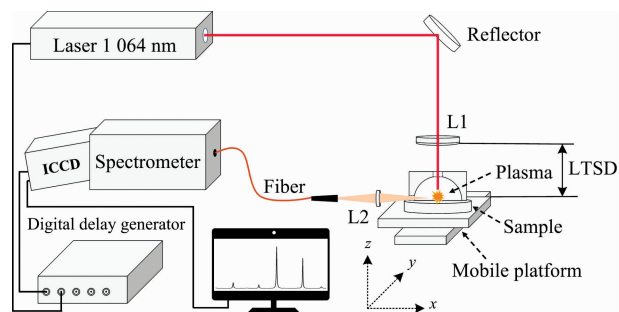


图 1 实验装置图

Fig. 1 Schematic diagram of the experimental system

实验中将聚焦透镜 L1 固定在高精密电动平移台上, 其位置调节定位精度可达 5 μm , 通过调节透镜的位置改变激光的聚焦情况, 本文中用 LTSD 来描述激光的聚焦情况, 实验中控制 LTSD 的变化范围为 85~104 mm, 变化步距为 1 mm。激光在不同的聚焦情况下, 分别采集无约束和半球空腔约束下激光烧蚀合金钢等离子体的时间演变光谱, 光谱采集门宽设置为 1 μs , 采集延时变化范围为 4~16 μs , 每幅光谱图由 20 个激光脉冲累加得到。

2 结果与讨论

2.1 谱线强度对比

选取合金钢等离子体中的 Fe I 374.55 nm 和 Mn I 403.08 nm 两条原子谱线作为分析谱线。由不同 LTSD 位置

处的时间演变实验光谱数据可以得到无约束和半球腔约束下谱线强度随 LTSD 和采集延时的二维空间分布图, 如图 2 所示, 图中的强度是用相应谱线无约束和约束两种情况下的最大谱线强度进行归一化的结果。

由图 2 可以看出, 无约束情况下, 谱线强度随着 LTSD 的增加都呈现出先增大后减小再增大再减小的变化规律, 不同的采集延时下, 谱线强度分别在 LTSD 为 94 和 102 mm 时出现峰值, 在采集延时小于 8 μs 时, 谱线强度的最大值在 LTSD 为 94 mm 的位置。这一研究结果与我们课题组前期的研究结果一致, 产生这种现象的主要原因与烧蚀位置处的能量密度有关^[14]。而采集延时大于 8 μs 后, 谱线强度的最大值出现在 LTSD 为 102 mm 时, 产生这种现象的主要原因可能是此时激光的焦点位置在样品表面以上, 激光在到达样品表面前击穿空气, 从而改变了样品表面的烧蚀环境, 当采集延时较大时, 这种烧蚀环境的变化使得激光能够更好地耦合至样品表面。

当用半球空腔约束等离子体, 采集延时在 4~10 μs 时, 可以看出谱线强度高于无约束情况下的谱线强度, 且谱线强度随着 LTSD 的变化与无约束情况下类似, 区别在于谱线强度的最大值都在 LTSD 为 94 mm 的聚焦位置。产生光谱信号增强的原因是: 当等离子体产生向外膨胀扩张的趋势时, 由于空气压力的急剧增加, 会产生冲击波, 冲击波也迅速向前传播, 当遇到半球腔内壁时被反射, 反射回来的冲击波使等离子体被压缩在一个很小的区域, 被压缩的等离子体的温度和粒子数密度提高, 导致粒子间碰撞速率增加, 从而增加了高能激发态原子的数量, 进而引起光谱强度增强。另外, 从图 2 还可以看出, 随着采集延迟继续增加, 半球空腔约束下谱线强度出现了第二次增强, 对应的延迟时间为 12~16 μs 。这种现象与 Wang 等的研究类似^[15], 可以将产生这种现象的原因解释为: 当被反射的冲击波与等离子体相互作用后会继续向前传播, 直至遇到另一侧的半球腔内壁, 此时再次被反射, 二次反射的冲击波对等离子体的压缩效应引起了光谱强度的第二次增强。

2.2 增强倍数随 LTSD 的变化

增强倍数指的是用半球腔约束下的谱线强度值除以无约束情况下对应的谱线强度值。用增强倍数来评价半球腔对光谱信号的增强效果, 图 3 是谱线强度增强倍数随 LTSD 和采集延时的二维变化关系。由图中可以更加清晰看出, 随着采集延时的变化, 两条谱线的强度分别在采集延时为 4~10 和 12~16 μs 两个时间段内出现信号增强, 即在整个实验采集的延迟时间内, 谱线强度经历了两次连续增强, 为方便描述, 我们分别称这两次谱线增强为“第一次信号增强”和“第二次信号增强”。通过图 3 也可以看出, 不同 LTSD 时谱线强度的增强倍数也存在明显差异, 且第二次增强时的增强倍数相对较高, 两条谱线的最大增强倍数约为 6 倍。除此之外, 不同 LTSD 时出现最大增强倍数对应的采集延时也存在差别。

由于采用半球空腔约束等离子体时光谱强度出现了两次增强, 为进一步研究两次增强效果分别与 LTSD 的变化关系, 定义最大增强倍数为该 LTSD 时在对应区域的最大增强

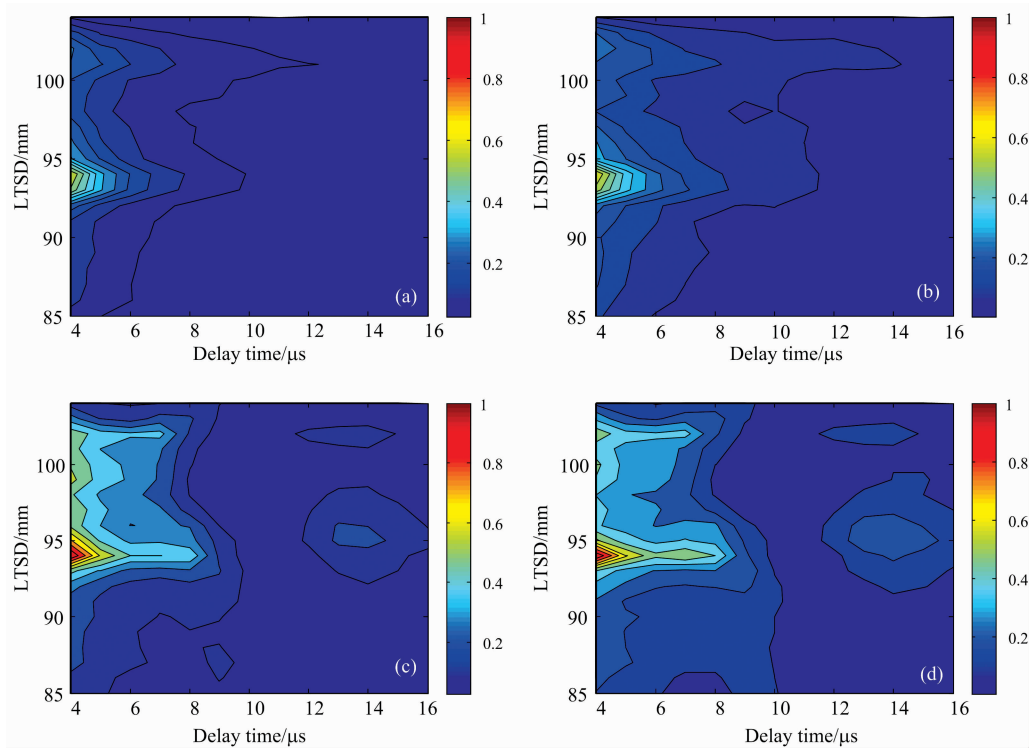


图 2 谱线强度随 LTSD 和采集延时的变化关系

(a): 无约束 Fe I 374.55 nm; (b): 无约束 Mn I 403.08 nm; (c): 约束 Fe I 374.55 nm; (d): 约束 Mn I 403.08 nm

Fig. 2 Distributions of the spectral line intensity with the laser energy and delay time

(a): Fe I 374.55 nm without confinement; (b): Mn I 403.08 nm nm without confinement;

(c): Fe I 374.55 nm with confinement; (d): Mn I 403.08 nm with confinement

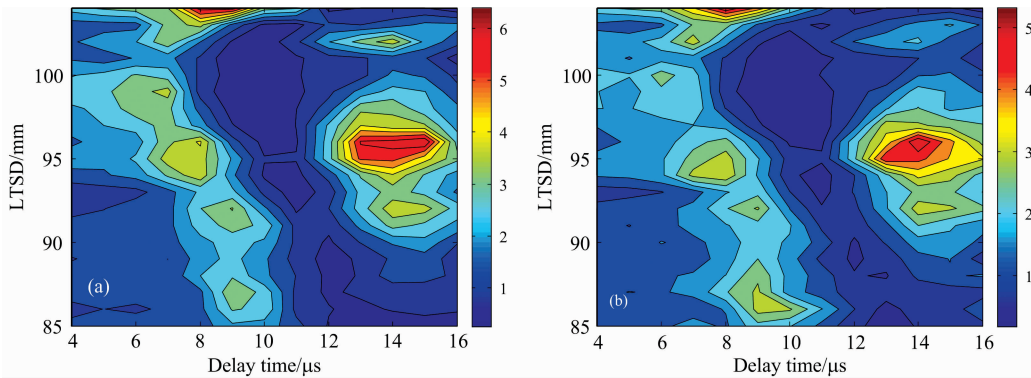


图 3 增强倍数随 LTSD 和采集延时的变化关系

(a): Fe I 374.55 nm; (b): Mn I 403.08 nm

Fig. 3 Distribution of the enhanced factors as a function of the laser energy and delay time

(a): Fe I 374.55 nm; (b): Mn I 403.08 nm

倍数，相对应的采集延时为最优采集延时。图 4 是在最优采集延时下，分析谱线最大增强倍数随 LTSD 的演化关系，其中图 4(a)为采集延时在 4~10 μs 期间谱线第一次增强的最大增强倍数随 LTSD 的变化图，图 4(b)为采集延时在 12~16 μs 期间谱线第二次增强的最大增强倍数随 LTSD 的变化图。可以看出，第一次增强的最大增强倍数随 LTSD 的变化没有明显规律，增强倍数在 2~6 之间波动；第二次增强的最

大增强倍数首先随着 LTSD 的增大而增大，在 LTSD=96 mm 时达到最大值，两条谱线在该延时区域的最大增强倍数约为 6 倍，随着 LTSD 继续增大，第二次最大增强倍数逐渐降低，LTSD 超过 101 mm 后，又出现小幅的先上升后下降的趋势。这一变化规律与图 2 中无约束情况下谱线强度的变化规律类似。

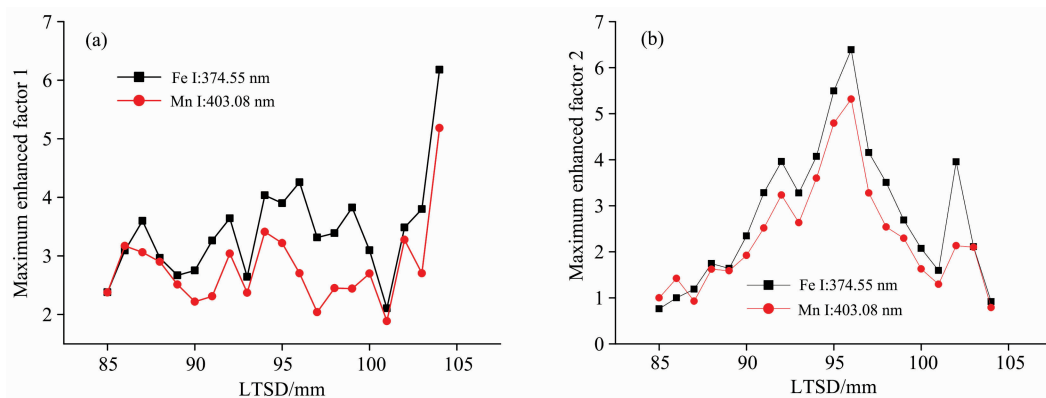


图 4 最大增强倍数随 LTSD 的变化关系

(a): 第一次增强; (b): 第二次增强

Fig. 4 Optimal enhanced factor as a function of LTSD

(a): The first enhancement; (b): The second enhancement

为统计两次连续增强出现的延迟时间,找出上述每一个最大增强倍数对应的延迟时间,如图 5 所示。由图可知,第一次增强出现的延迟时间集中在 6~9 μs,且在 LTSD 为 85~93 mm 时保持不变,当 LTSD 在 94~105 mm 时,最大增强倍数出现的延迟时间呈现先降低再增大的变化规律,这主要是由于聚焦光斑的尺寸经过了由大变小再从小变大的过程,相对应的能量密度也具有相同的变化规律,引起激光冲击波的能量先逐渐增大后逐渐减小,大能量的冲击波具有较快的传播速率,能够在更短的时间被腔内壁反射并与等离子体发生相互作用,进而在较早的时间引起光谱强度增强。第

二次增强出现的延迟时间集中在 14~15 μs,此时冲击波和等离子体经过衰减能量都较低,随着时间演变,等离子体扩散至更大的尺寸,因此随着 LTSD 的变化最大增强出现的时间没有明显的变化规律。由图 5 也可以看出,伴随着等离子体产生的冲击波经半球腔壁反射后第一次到达等离子体需要 6~9 μs,再经另一侧半球腔壁反射到达等离子体需要 14~15 μs。也就说明在一定的实验参数下,空间约束不仅使光谱强度增强(第一次增强),而且在延迟时间足够长时会引使其再次增强(第二次增强)。

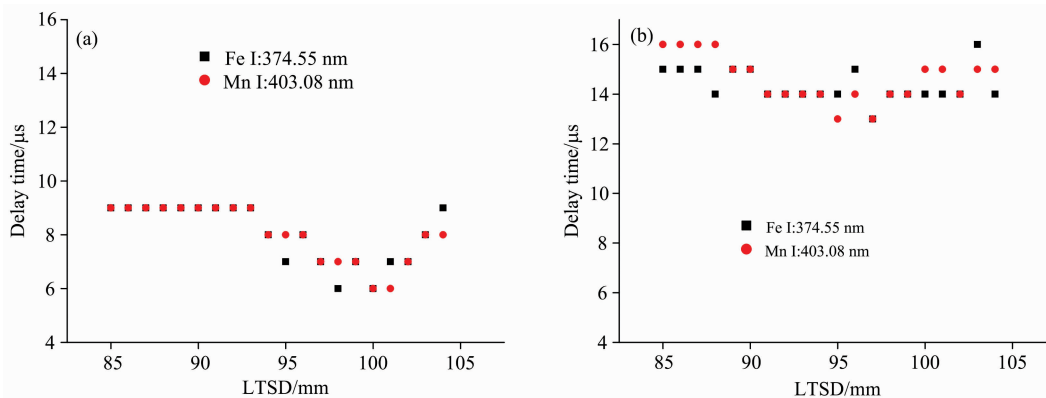


图 5 最优采集延时随 LTSD 的变化关系

(a): 第一次增强; (b): 第二次增强

Fig. 5 Optimal delay time as a function of LTSD

(a): The first enhancement; (b): The second enhancement

3 结 论

为了研究激光聚焦情况对半球形空腔约束等离子体光谱增强效果的影响,通过改变聚焦透镜到样品之间的距离,本文分别在无约束和半球空腔约束情况下采集 LTSD 在 85~104 mm 范围内变化时的激光诱导合金钢等离子体时间演变

光谱,选取 Fe I 374.55 nm 和 Mn I 403.08 nm 为分析谱线,对比研究了无约束和半球空腔约束下谱线强度随 LTSD 和采集延时的二维变化关系,并得到了增强倍数随 LTSD 和采集延时的变化。实验结果表明:两种实验条件下,随着 LTSD 的变化,谱线强度都呈现出先增大后减小再增大最后减小的变化规律;半球空腔约束下谱线强度在整个采集的延迟时间内先后出现第一次增强和第二次增强,两次光谱增强

出现的延时时间分别为 6~9 和 14~15 μs , 且第二次增强更加明显, 最大增强倍数达到 6 倍, 对应的 LTSD 为 96 mm。由此说明, 在特定的实验参数下, 采用半球空腔约束激光诱导等离子体, 不仅使光谱强度增强, 而且在延迟时间足够长时会出现光谱信号再次增强现象, 这主要是由于被反射的冲

击波遇到半球腔另一侧的内壁再次被反射进而再次压缩等离子体引起的。本文的研究结果有助于进一步解释等离子体约束引起信号增强的物理机理, 也对优化 LIBS 实验系统的关键参数具有重要意义。

References

- [1] Lu Shengzi, Dong Meirong, Huang Jianwei, et al. *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, 2018, 140: 35.
- [2] Meng Deshuo, Zhao Nanjing, Wang Yuanyuan, et al. *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, 2017, 137: 39.
- [3] Alam M A, Markiewicz-Keszycza M, Pasquet C, et al. *Talanta*, 2020, 219: 121258.
- [4] Jung J, Yang J H, Yoh J J. *Journal of Analytical Atomic Spectroscopy*, 2020, 35(6): 1103.
- [5] Cui M C, Deguchi Y, Wang Z Z, et al. *Frontiers in Physics*, 2020, 8: 237.
- [6] Prochazka D, Porizka P, Novotny J, et al. *Journal of Analytical Atomic Spectroscopy*, 2020, 35(2): 293.
- [7] Asamoah E, Ye X, Yao H B, et al. *Laser and Particle Beams*, 2020, 38(1): 61.
- [8] Zhao S Y, Gao X, Chen A M, et al. *Applied Physics B-Lasers and Optics*, 2020, 126(1): 7.
- [9] Zhang W, Zhou R, Liu K, et al. *Talanta*, 2020, 216: 120968.
- [10] Li Q Z, Zhang W, Tang Z Y, et al. *Journal of Analytical Atomic Spectroscopy*, 2020, 35(3): 626.
- [11] Guo L B, Li C M, Hu W, et al. *Appl. Phys. Lett.*, 2011, 98: 131501.
- [12] Wang J G, Li X L, Li H H, et al. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, 2020, 53(25): 255203.
- [13] Guo J, Shao J F, Wang T F, et al. *Journal of Analytical Atomic Spectroscopy*, 2017, 32(2): 367.
- [14] WANG Jing-ge, CHEN Xing-long, FU Hong-bo, et al(王静鸽, 陈兴龙, 付洪波, 等). *Acta Opt. Sin. (光学学报)*, 2014, 34(9): 0930006.
- [15] Wang Y, Chen A M, Sui L Z, et al. *Journal of Analytical Atomic Spectroscopy*, 2016, 31(10): 1974.

Effect of Laser Focusing on Laser-Induced Plasma Confined by Hemispherical Cavity

CHEN Xu-dong¹, WANG Jing-ge^{1, 2*}, FENG Di¹, WEI Jia-wei¹, WANG Li-ping¹, WANG Hong¹

1. School of Physics and Engineering, Henan University of Science and Technology, Luoyang 471023, China

2. Henan Key Laboratory of Electromagnetic Transformation and Detection, Luoyang Normal University, Luoyang 471934, China

Abstract Spectral enhancement is one of the key methods to improve Laser-Induced Breakdown Spectroscopy (LIBS) analysis performance. Spatial confinement of plasma is often used due to its simple device and better confinement effect. The characteristics of plasma will directly affect the spatial confinement. The properties of the plasma are closely related to the focusing of the laser in the experimental system. In order to study the effect of the laser focusing on the spectral enhancement of the plasma confined by a hemispherical cavity, the condition of the laser focusing was changed by adjusting the distance between the lens and the sample (Lens to Sample Distance, LTSD). Under the experimental configurations without and with confinement, the alloy steel sample was ablated to produce plasma, and the time evolution spectra at 15 different LTSD positions were collected. The two-dimensional spatial distributions of the spectral line intensity and enhancement factor with LTSD and acquisition delay were obtained. The results had shown that the spectral line intensity of the plasma without confinement peaks when the LTSD was 94 and 102 mm, respectively. When the acquisition delay was less than 8 μs , the maximum value of the spectral line intensity was at the LTSD of 94 mm. The maximum intensity appeared at the LTSD of 102 mm when the delay time was greater than 8 μs . Moreover, the line intensity has two sequential enhancements when the hemispherical cavity confined the plasma. The delay time ranges corresponding to these two enhancements were 4~10 and 12~15 μs . The main reason for the second enhancement is that the shockwave reflected by the inner wall of the hemispherical cavity will continue to propagate after interacting with the plasma and it will encounter the other side of the cavity wall and be reflected again secondary compress the plasma. The two-dimensional distribution of the enhancement factor with LTSD and delay time was analyzed. It is found that the maximum enhancement factor of the first enhancement has no obvious trend with the change of LTSD and the enhancement factor

fluctuates from 2 to 6. The maximum enhancement factor of the second enhancement first increases and decreases as the LTSD changes and decreases after a small increase. The enhancement factor is relatively high. It reaches the maximum when the LTSD is 96 mm, and the maximum enhancement factor is about 6. The delay time corresponding to the maximum enhancement factor was defined as the optimal delay time. It is found that the optimal delay time for the first enhancement varies from 6 to 9 μs . When the LTSD is in the range of 85~93 mm, the optimal delay time remains unchanged. When the LTSD varies from 94 to 104 mm, the optimal delay time of the first enhancement first decreases and then increases. However, the optimal delay time of the second enhancement maintains at a range from 14 to 15 μs , and there is no obvious change with the change of LTSD.

Keywords Laser-induced plasma; Hemispherical cavity confinement; Spectral enhancement; Focusing position

(Received Oct. 21, 2020; accepted Feb. 6, 2021)

* Corresponding author

敬告读者——《光谱学与光谱分析》已全文上网

从 2008 年第 7 期开始在《光谱学与光谱分析》网站(www.gpxygpx.com)“在线期刊”栏内发布《光谱学与光谱分析》期刊全文,读者可方便地免费下载摘要和 PDF 全文,欢迎浏览、检索本刊当期的全部内容;并陆续刊出自 2004 年以后出版的各期摘要和 PDF 全文内容。2009 年起《光谱学与光谱分析》每期出版日期改为每月 1 日。

《光谱学与光谱分析》期刊社