

文章编号 1004-924X(2025)13-1999-09

激光诱导铝等离子体结构演化及传播机制

赵 洋¹, 张 雷^{2,3*}, 田志辉⁴, 张秀清¹, 马维光^{2,3}, 尹王保^{2,3}

- (1. 中北大学 半导体与物理学院, 山西 太原 030051;
2. 山西大学 激光光谱研究所 量子光学与光量子器件国家重点实验室, 山西 太原 030006;
3. 山西大学 极端光学协同创新中心, 山西 太原 030006;
4. 湖北工程学院 物理与电子信息工程学院, 湖北 孝感 432000)

摘要: 搭建了具有 1 ns 时间分辨率和 0.01 mm 空间分辨率的高时空分辨等离子体瞬态成像系统。在氩气环境与 10 GW/cm² 的激光条件下, 实现了对铝等离子体中中性原子(Al I/Ar I)和一次电离离子(Al II/Ar II)的空间分布动态测量。实验结果表明, 等离子体呈狭长形态, 其轴向膨胀速度高于径向速度。由于激光与氩气层的强耦合作用, 冲击气体层呈现高电离度, 氩离子会与铝蒸气羽核相互重叠, 其形态特征符合激光支持爆轰波理论模型。还讨论了不同类型粒子的寿命, 揭示了上能级能量差异与离子复合过程对激发态粒子布居数衰减速率的影响机制。该成像系统突破了传统成像技术采集强度为观测方向积分值的局限性, 为观察等离子体粒子的分布结构和膨胀过程提供了新方法, 所揭示的等离子体时空演化规律有望为高精度激光诱导击穿光谱应用提供理论支撑。

关键词: 激光光谱; 激光诱导等离子体; 激光支持爆轰波; 粒子分布

中图分类号: O433.4 **文献标识码:** A

doi: 10.37188/OPE.20253313.1999

CSTR: 32169.14.OPE.20253313.1999

Structural evolution and propagation mechanism of laser-induced aluminum plasma

ZHAO Yang¹, ZHANG Lei^{2,3*}, TIAN Zhihui⁴, ZHANG Xiuqing¹, MA Weiguang^{2,3}, YIN Wangbao^{2,3}

- (1. School of Semiconductor and Physics, North University of China, Taiyuan 030051, China;
2. State Key Laboratory of Quantum Optics and Quantum Optics Devices, Institute of Laser Spectroscopy, Shanxi University, Taiyuan 030006, China;
3. Collaborative Innovation Center of Extreme Optics, Shanxi University, Taiyuan 030006, China;
4. School of Physics and Electronic Information Engineering, Hubei Engineering University, Xiaogan 432000, China)

* Corresponding author, E-mail: k1226@sxu.edu.cn

收稿日期: 2025-04-22; **修订日期:** 2025-05-29.

基金项目: 国家重点研发计划资助项目(No. 2017YFA0304203); 长江学者和创新团队发展计划资助项目(No. IRT_17R70); 国家自然科学基金资助项目(No. 12404467, No. 12374377, No. 61975103, No. 627010407); 国家能源石油炼制技术研发中心资助项目(RIPP, SINOPEC); 山西省科技重大专项(No. 201804D131036); 111计划资助项目(No. D18001); 山西省“1331工程”重点学科建设项目资助项目; 山西省基础研究计划项目(No. 202203021212122, No. 202103021223210); 湖北省教育厅科学研究计划项目(No. B2023162)

Abstract: A high space-time resolution imaging system with 1 ns temporal resolution and 0.01 mm spatial resolution was established. The dynamic spatial distributions of neutral atoms (Al I/Ar I) and singly ionized atoms (Al II/Ar II) in plasma induced by 10 GW/cm² are measured in argon gas. The experimental results show that the plasma has an elongated morphology, and axial expansion velocity is faster than radial velocity. Due to the strong coupling between laser and argon, the shocked gas layer has a high ionization degree, and argon ions overlap with aluminum vapor plume. The morphological characteristics are consistent with the laser-supported detonation (LSD) wave. Additionally, the lifetimes of different species are also discussed, and the influence of upper-level energy and ion recombination on population decay rate is elucidated. This work overcomes the limitation of traditional imaging techniques, which only obtain line-of-sight integrated intensity. A novel method for observing the distribution structure of species and the expansion process. The spatiotemporal evolution of plasma is expected to provide theoretical support for the application of high-precision laser-induced breakdown spectroscopy (LIBS).

Key words: laser spectroscopy; laser-induced plasma; laser supports detonation waves; species distribution

1 引言

激光诱导击穿光谱(Laser-Induced Breakdown Spectroscopy, LIBS)通过分析激光诱导等离子体的发射光谱,实现元素快速检测,在工业检测领域具有重要应用^[1-2]。等离子体作为光谱源,其中粒子分布的非均匀性和快速衰减特性是LIBS技术面临的瓶颈^[3]。等离子体内部粒子(如激发态原子、离子、分子)分布的动态变化直接影响LIBS信号的稳定性和灵敏度,制约其定量分析精度。对LIBS时空演化规律的深入解析,不仅能加深对等离子体内复杂物理过程的理解,还为高灵敏时空分辨LIBS定量分析的实现提供指导。

近年来,随着高速成像技术和时间分辨光谱技术的发展,激光诱导等离子体时空演化特性研究在国内外受到广泛关注。Wainwright等^[4]利用发射光谱和高速相机来确定激光诱导等离子体中各种Al烧蚀产物的强度和时空演变,揭示了铝样品形态对AlO分子产生与空间分布规律的影响。Harilal等^[5]将吸收光谱与发射光谱结合,实现了Al等离子体基态/激发态粒子的时空分辨追踪。Kautz等^[6]对飞秒激光与物质相互作用产生的冲击波传播、等离子体行为和结构损伤进行了可视化分析,证实了飞秒激光诱导铀等离子体中原子与分子粒子的早期共存特性。郑培超等^[7]采

用ICCD快速成像结合玻尔兹曼斜线法,明确了铝合金等离子体电子温度与电子密度的时空衰减规律,发现了离子体分层结构与热传导机制的关联性。Cai等^[8]揭示了煤粉挥发分含量对碳粒子空间分布的影响机制,提出基于等离子体形态特征的LIBS定量校正方案。袁舒等^[9]研究了碳化钨铜三元合金产生的等离子体中不同特征谱线的时间演化和空间分布特性以及不同粒子在膨胀过程中的平均速度,解释了多组分等离子体在扩张过程中发生的元素“空间分离”现象和“离子加速”现象。

虽然目前等离子体时空演化已进行了深入的研究,但所采集的图像及光谱强度信息多为等离子体沿探测器采集路径上的发射率积分,无法反映等离子体内部真实的发射特性^[10-12]。本文聚焦铝等离子体在氩气环境中的动力学膨胀过程,结合基于Abel逆变换的时空分辨光学成像技术与时间分辨光谱采集技术,实现了时间(纳秒级)-空间(毫米级)-光谱(多波段)多维数据同步获取,突破了传统LIBS单一维度的观测局限。研究揭示了等离子体内部结构演化规律、各态粒子(原子、离子、分子)的空间分布特征及寿命,期望为LIBS等离子体时空演化机制提供新的见解,并为高灵敏度、高稳定性分析技术的开发提供指导。

2 实 验

LIBS实验装置如图1所示,由三个主要部分组成:等离子体激发系统、双波长差分成像系统和光谱采集系统。LIBS的激发源为高能脉冲激光器(Spectra Physics, INDIHG-20, 波长为1 064 nm, 脉冲持续时间为7 ns, 重复频率为20 Hz)。数字延迟发生器(Stanford Research Systems, DG535)和硅探测器(Thorlabs, DET10A/M)被用来控制图像及光谱采集延时。为了保证脉冲光斑的均匀分布,使用中性密度滤波器来调节激光能量,并用绝对校准的能量计(Ophir, Nova II)和偏振分束器进行监测。利用焦距为50 mm的透镜(L1)将激光束聚焦到样品表面以下,得到的光斑尺寸约为0.3 mm,本实验使用激光能量为50 mJ,相应的激光辐照度为10 GW/cm²。样品被安装在X-Y-Z平台上,每个激光脉冲结束后样品都会移动,保证激光激发样品的新区域。为了保证等离子体在大气压下的纯氩气中膨胀,在样品表面上方放置两个气体管,在激光焦点附近连续吹出氩气,氩气流速为5 L/min。

双波长差分成像系统安装在等离子体右侧,垂直于激光入射轴。使用ICCD1(Andor, iStar DH334T-18U-03)和一个4f光学系统获取等离子体内特定粒子分布的图像。该系统包括两个透镜(L2和L3)和一对带宽为6~10 nm的窄带滤光片(F1和F2)。F1的中心波长与待测粒子的发射谱线相对应,而F2的中心波长与F1临近,但

在其透过范围内没有发射谱线。因此,ICCD1通过F1记录的是粒子的发射强度图像,通过F2记录的是连续背景图像。为了提高信噪比并使波动最小化,为每个粒子设置了特定的ICCD增益(见表1),并且每张图像累积了60个等离子体。为消除烧蚀效应对等离子体成像的干扰,实验在样品表面60个独立位点获取数据,并在采样前对样品表面用2000目砂纸进行抛光处理。最后,对得到的图像进行透光率校正、连续背景相减、阿贝尔反演等处理,得到该粒子的发射率图像。该系统可以直观地展示等离子体中各种粒子的演化过程,揭示等离子体的形态和结构。

表 1 Al和Ar的原子和离子成像所选择的发射谱线、滤光片的中心波长以及每种粒子对应的ICCD增益

Tab. 1 Pairs of filters selected for observing atomic and ionic images of Al and Ar, as well as ICCD gains corresponding to each species under different laser excitation modes

粒子	发射谱线/nm	滤光片 F1 的中心波长/nm	滤光片 F2 的中心波长/nm	ICCD 增益
Al I	394.40	396	365	300
	396.15			
Al II	358.66	358	365	300
Ar I	763.51	764	786	500
Ar II	484.78	488	530	500

时间分辨光谱采集系统位于等离子体左侧,通过全硅光纤以45°角收集其发射的荧光。然后,将该荧光传输到配备ICCD2(Princeton Instruments, PI-MAX4-1024i)的光栅光谱仪(Princeton Instruments, SP-2750)中。通过调整ICCD2的延迟和门宽设置,获得时间分辨光谱。使用低压汞灯(Newport, 6048)对光谱仪进行波长校准,氘卤素光源(Avantes, AvaLightDH-S-BAL)对光谱强度进行校准。

本实验使用的材料为纯铝(≥99.99%),每组实验测量前样品表面用砂纸抛光。用于成像的滤光片的光谱线和中心波长如表1所示。值得注意的是,Al II线是15条线的叠加,Al II 358.66 nm线是跃迁概率最高的一条。

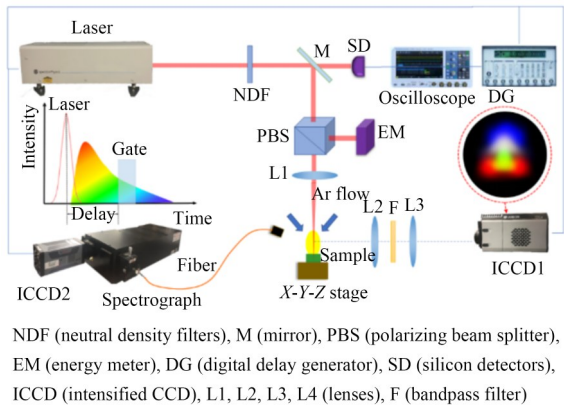


图 1 DP-LIBS实验装置示意图
Fig. 1 Schematic of experimental DP-LIBS setup

3 成像原理

以氩原子为例,使用双波长差分成像系统对其进行瞬态成像。首先,用时间分辨光谱采集系统采集氩气中的铝等离子体光谱,如图 2 所示。选择 Ar I 763.15 nm 发射谱线代表氩原子,据此可选择中心波长为 764 nm 的滤光片 F1 记录氩原子发射强度图像(图 3(a)),选择中心波长为 784 nm 的滤光片 F2 记录连续背景图像(图 3(b)),F1 和 F2 的透过率曲线如图 2 所示。

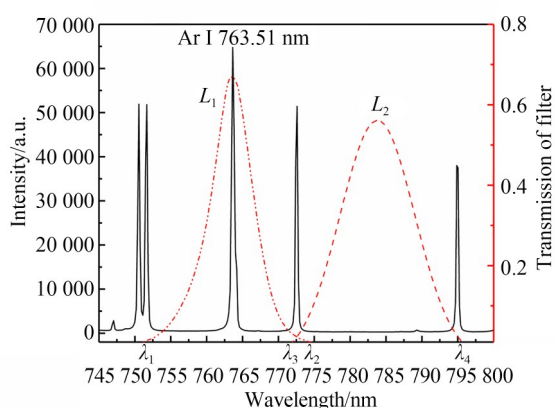


图 2 氩气中的激光诱导铝等离子体在 745~800 nm 波段的发射光谱(延时为 400 ns,门宽为 20 ns)以及氩原子成像所选取的两个窄带滤光片 F1,F2 的透过率曲线

Fig. 2 Emission spectra at 745-800 nm of laser-induced aluminum plasma in argon gas (acquisition delay is 400 ns, gate width is 20 ns) and transmittance curves of narrowband filters F1 and F2 selected for argon atom imaging

根据透过率曲线可以计算 F1 和 F2 所得图像的校正系数:

$$C = \frac{\int_{\lambda_1}^{\lambda_2} L_1(\lambda) d\lambda}{\int_{\lambda_3}^{\lambda_4} L_2(\lambda) d\lambda}, \quad (1)$$

其中: $L_1(\lambda)$ 和 $L_2(\lambda)$ 分别为滤光片 F1,F2 的透过率曲线, λ_1 和 λ_2 为 $L_1(\lambda)=0$ 时所对应的波长, $\lambda_1 < \lambda_2$, λ_3 和 λ_4 为 $L_2(\lambda)=0$ 时所对应的波长, $\lambda_3 < \lambda_4$ 。对于氩原子成像所用滤光片 $C=0.77$ 。用图 3(a)减去图 3(b)与校正系数 C 相乘,得到扣除连续背景后氩原子的积分强度图像(图 3(c)),再对

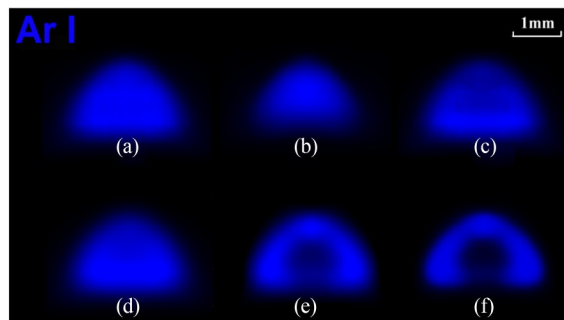


图 3 (a)包含连续背景的氩原子强度分布图像,(b)连续背景强度图像,(c)扣除连续背景后氩原子的积分强度图像,(d)高斯平滑后的氩原子的积分强度图像,(e)Abel 逆变换后氩原子的发射率的分布图像,(f)调整对比度后氩原子的发射率的分布图像

Fig. 3 (a) Integral intensity image of argon atom include continuous background, (b) Continuous background image, (c) Integral intensity image of argon atom after subtracting the continuous background, (d) Integral intensity image of argon atom after Gaussian smoothing, (e) Emissivity image of argon atom after Abel inversion, (f) Emissivity image of argon atom after contrast adjustment

其进行高斯平滑得到图 3(d)。

二维图像图 3(d)本质上是沿观测方向的各点发射率的累积值,需通过 Abel 逆变换进行重构。该方法实施的前提是等离子体具备严格的轴对称特性,因此图 3 均经过轴对称处理。Abel 逆变换原理如图 4 所示,设定等离子体的对称轴为 x 轴,方向与激光入射方向相反,相机成像方向为 z 轴,任选一个 $x=x_0$ 的横截面,面上任意一点的位置用径向距离 r 表示。因此 ICCD 上某一像素(坐标为 (x_0, y))所接收到光强 $I(y)$ 实际为沿 z 轴不同径向位置粒子发射率 $\epsilon(r)$ 的积分值,其数学表达式为:

$$I(y) = 2 \int_0^{\sqrt{R^2 - y^2}} \epsilon(\sqrt{z^2 + y^2}) dz = 2 \int_y^R \frac{\epsilon(r) r dr}{\sqrt{r^2 - y^2}}, \quad (0 < r < R), \quad (2)$$

其中: R 是等离子体半径,当 $r \geq R$ 时, $\epsilon(r)=0$; $\epsilon(\sqrt{z^2 + y^2})$ 是距 x 轴 $\sqrt{z^2 + y^2}$ 处的局部发射率。对式(2)进行 Abel 逆变换后可以得到等离子

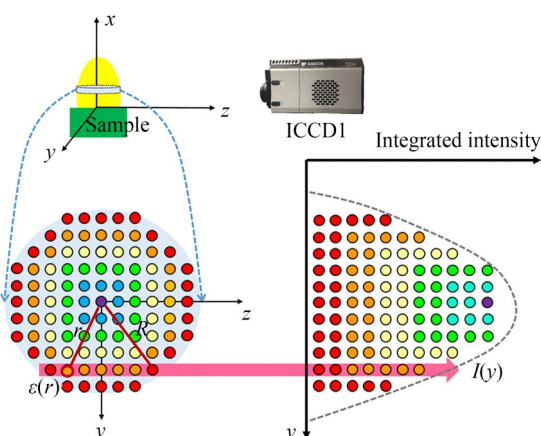


图 4 Abel反演示意图

Fig. 4 Schematic diagram of Abel inversion

体中任意一点的发射率,即:

$$\epsilon(r) = -\frac{1}{\pi} \int_{-y}^y \frac{dI(y)}{dy} \frac{dy}{\sqrt{y^2 - r^2}}. \quad (3)$$

在 Abel 逆变换过程中, Fourier-Hankel 法作为经典数值解法得到了广泛的应用^[11]。其数学基础源于式(2)的 Fourier 变换分析, $I(y)$ 的 Fourier 变换与 $\epsilon(r)$ 的零阶 Hankel 变换存在等价关系。基于此, 发射率分布可通过以下逆变换重构^[13-16]:

$$\epsilon(r) = \frac{1}{2\pi} \int_0^\infty G(\omega) \omega J_0(\omega r) d\omega, \quad (4)$$

式中: $G(\omega)$ 为积分强度的连续 Fourier 变换, $J_0(\omega r)$ 为第一类零阶 Bessel 函数:

$$J_0(\omega r) = \frac{2}{\pi} \int_r^\infty \frac{1}{\sqrt{x^2 - r^2}} \sin(\omega x) dx. \quad (5)$$

针对 ICCD 采集的二维离散辐射数据, 这里采用二维矩阵建立发射率分布与实验数据的直接关联模型:

$$\epsilon(r_i) = \sum_{j=0}^n P_{ij} I(y_j), \quad (6)$$

其中: n 表示对称轴单侧像素数, $r_i = i\Delta r$ ($i = 0, 1, \dots, n$), $y_j = j\Delta y$ ($j = 0, 1, \dots, n$), $\Delta r = \Delta y = R/n$, Δr 和 Δy 代表数据间隔。当频率间隔 $\Delta\omega = \alpha\pi/R$ 时, 将式(4)离散为:

$$\epsilon(r_i) = \frac{\alpha^2 \pi}{2nR} \sum_{k=1}^n k G(\alpha k) J_0\left(\frac{\alpha i k \pi}{n}\right), \quad (7)$$

$$G(\alpha k) = \sum_{j=-n}^{n-1} I(y_j) \cos\left(\frac{\alpha j k \pi}{n}\right), \quad (8)$$

式中经验系数 α 取值为 1。利用式(7)和式(8)对图 3(d) 进行基于 Fourier-Hankel 变换的 Abel 反演, 得到氩原子发射率的分布图像, 如图 3(e) 所示。再进行对比度调整可得到氩原子的发射率图像, 如图 3(f) 所示。用上述方法可以获得等离子体中不同粒子的发射率图像, 组合在一起可以得到等离子体的内部结构与粒子分布。

这种基于 Abel 逆变换的等离子体粒子瞬态成像方法的成像分辨率高, 可以获得等离子体粒子分布的中轴线剖面图。但此方法也有局限性, 由于滤光片的带宽限制, 成像谱线需要在波长附近 10 nm 内无其他谱线干扰, 因此无法对复杂成分的等离子体成像。此方法也无法获取光谱信息。

4 结果与讨论

氩气中激光诱导铝等离子体在不同延时的粒子发射率图像如图 5 所示。ICCD1 采用的延时和门宽分别为 100, 200, 300, 1 000, 1 500, 2 000, 3 000 和 5, 7, 10, 50, 100, 150, 200 ns。为了更好地显示等离子体的内部结构, 以每种粒子的最大发射率进行归一化。需要注意的是, 本文中讨论的离子指的是一次电离离子。

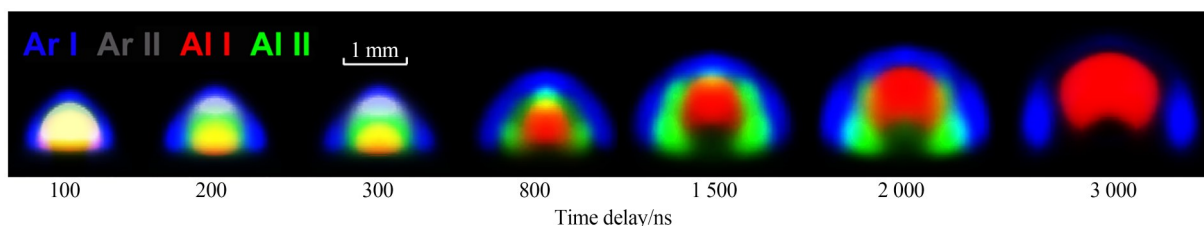


图 5 氩气环境中 Al 等离子体不同延时各粒子的发射率图像

Fig. 5 Emissivity images of species in Al plasma at different delays in argon gas

4.1 形态尺寸与膨胀速度演化

首先观察等离子体的整体形状,所有的发射粒子(氩原子、氩离子、铝离子、铝原子)都呈现接近半球形的形态。如图6所示,通过绘制两个同心半圆来测量等离子体的膨胀半径。基于等离子体辐射强度的空间衰减特性,以发射率最大值的 $1/e$ (约 36.8%) 作为边界判据。两个半圆的中心与激光在样品表面的光斑中心处重合,定义轴向膨胀半径(R_a)表征激光传播方向(x 轴)的扩张程度,径向膨胀半径(R_r)为径向膨胀范围的一半,表征垂直激光方向(r 轴)的扩张程度。该几何参数在等离子体演化过程中是动态变化的。图6展示了氩气环境中 Al 等离子体的轴向膨胀半径、径向膨胀半径以及两者之比。图中测量的数据是等离子体在不同延时拟合测量得到的,这为分析不同激光激发条件下,等离子体轴向和径向膨胀提供了典型的测量值。结果表明,Al 等离子体的 R_a 在 1.08~2.10 mm 之间, R_r 在 0.68~1.53 mm 之间, R_a 与 R_r 之比在 1.36~1.59 之间,说明等离子体沿激光方向有轻微的伸长。 R_a 和 R_r 都随延时的增加而增加,变化曲线基本一致,其中在等离子体产生初期(<300 ns)呈现快速膨胀特征。如图7所示,100 ns 时轴向速度可以达到 2.44×10^5 cm/s,径向速度约为 1.63×10^5 cm/s。而在等离子体演化中后期(>300 ns),径向及轴向膨胀速度缓慢降低并趋于一致。

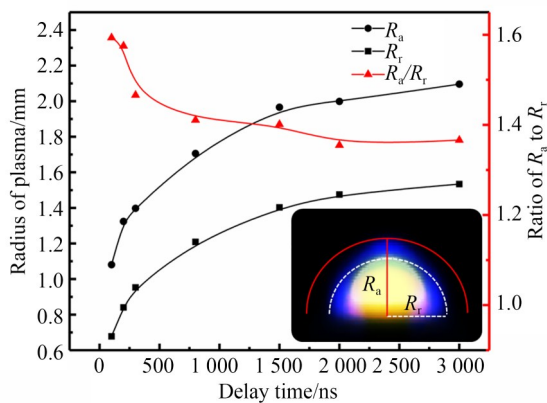


图6 氩气环境中 Al 等离子体的轴向膨胀半径、径向膨胀半径以及两者之比

Fig. 6 Axial expansion radius, radial expansion radius and ratio of them of Al plasma in argon gas

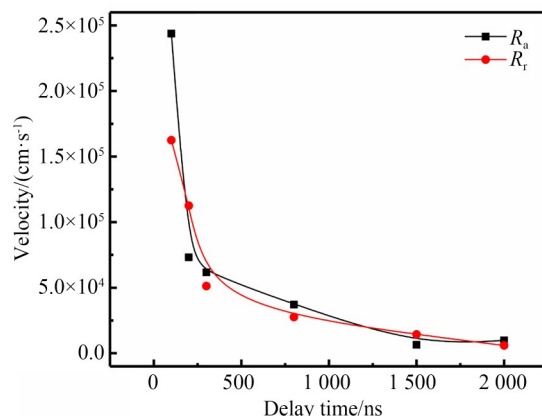


图7 氩气环境中 Al 等离子体不同延时的轴向径向膨胀速度曲线

Fig. 7 Axial and radial expansion velocity curves of Al plasma at different delays in argon

4.2 内部结构与粒子分布演化

在初始阶段(0~100 ns),粒子混合特征与激光-气体强耦合主导。离子体产生初期,氩原子呈球壳状包裹整个等离子体,其内部呈现氩离子与铝蒸气(含铝原子、铝离子)的混合重叠状态。中轴线粒子的发射率分布曲线如图8所示,此时,冲击气体层呈现高电离度,氩离子分布范围很大,因此会与铝蒸气羽核相互重叠。这种特殊结构源于激光与氩气层的强耦合作用,导致混合区前部有一个高温区域。该阶段等离子体的传播驱动力来源于激光能量沉积产生的轴向压力梯度,促使等离子体向激光脉冲传播的方向加速运

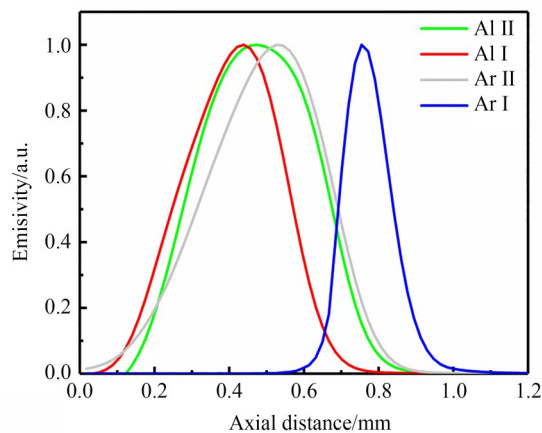


图8 氩气环境中 Al 等离子体 100 ns 时等离子体中轴线各粒子的发射率

Fig. 8 Emissivity of species along central axis of Al plasma at 100 ns in argon

动,由此呈现出狭长的形态。根据以往工作^[17-22],这种等离子体的传播模型属于激光支持爆轰(LSD)波。

在中期演化阶段(200~800 ns),分层结构形成与流体动力学为主导。由图 5 可以观察到,等离子体沿激光入射方向(即图中等离子体对称轴从上至下)呈现 Ar I(外层)、Ar II(次外层)、Al II(内层)、Al I(核心)的同心层状结构分布。铝蒸气羽核顶部被氩离子层覆盖,氩原子层包裹整个等离子体。此时,等离子体的膨胀演化更多地由流体动力学决定,随着延迟的增加,氩离子的薄层在 300 ns 后消失。

在后期阶段(1 500~3 000 ns),热梯度驱动粒子再分布。铝原子体积占据主导,并分布在蒸汽羽的顶部。这是由于蒸汽羽的顶部与环境气体直接接触,此处温度低、冷却速度较快,温度梯度驱动铝离子以更高复合速率转化为中性原子,直至 3 000 ns 后消失。而等离子体底部与铝靶材接触,由于金属的热效应,此处维持较高温度,铝离子的冷却速度相对较慢,可以持续存在的时间更长。该现象在氩原子分布中得到佐证:3 000 ns 时底部氩原子仍处于激发态,而顶部氩原子已恢复至基态。

4.3 粒子衰减过程分析

比较几种粒子的寿命可以发现,等离子体中离子的寿命显著短于中性原子。具体而言,氩离子在 800 ns 内完全衰减,铝离子寿命可以达到 2 000 ns,而氩原子和铝原子的发射信号均持续至 3 000 ns。为定量表征衰减过程的差异,通过对各粒子发射率图像的总强度进行 ICCD 门宽和增益校正,获得的各粒子发射衰减曲线如图 9 所示。通过对数据拟合发现,所有强度随时间演化呈现出经典的指数衰减^[23],拟合曲线的线性相关系数 $R^2>0.99$ 。值得关注的是,Al 原子在 800 ns 时出现信号强度增强的异常现象。该现象与等离子体离子复合机制密切相关:Al 离子与电子复合导致原子密度上升。为消除此干扰,保证衰减规律的准确性,Al 原子数据拟合仅采用 800 ns 后的数据。通过指数函数拟合可以获得不同粒子的特征时间常数 τ 。表 2 列出了不同粒子发射谱线的上能级、 τ 和衰减速率 $1/\tau$ 。数据显示 τ 越小,发射谱线衰减越快,这可能与成像所用谱线的上

能级 E 有关。由于激发态粒子布居数 N 遵循玻尔兹曼分布: $N \propto e^{-E/k_B T}$ (式中 k_B 为玻尔兹曼常量),因此随等离子体温度 T 的下降,处于上能级的粒子布居数呈指数减少,并且 E 越高, N 衰减速率越快,发射谱线衰减也越快。除此之外,等离子体中后期,温度下降会导致一次离子通过辐射复合释放能量,形成原子,这也是离子寿命短原子寿命长的原因之一。

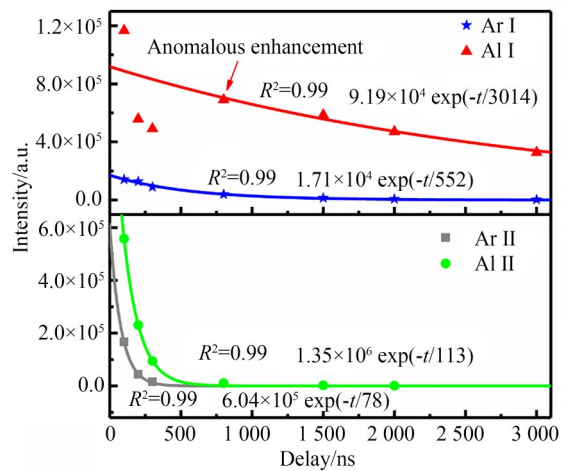


图 9 氩气环境中 Al 等离子体中各粒子发射强度衰减曲线
Fig. 9 Decay curves of emission intensity for species in Al plasma in argon

表 2 不同粒子发射谱线的上能级、时间常数和衰减速率
Tab. 2 Upper energy levels, time constants, and decay rates for emission lines of different species

粒子	谱线波长/nm	上能级/eV	τ /ns	衰减速率 (1/ τ)
Al I	394.40	3.14	3014	0.000 33
	396.15			
Ar I	358.66	13.17	552	0.001 81
Al II	763.51	15.30	113	0.008 85
Ar II	484.78	19.68	78	0.012 82

5 结 论

本文采用基于 Abel 逆变换的等离子体瞬态成像技术,揭示了氩气环境中激光诱导铝等离子体的时空演化规律与物理机制。实验结果表明,在氩气环境与 10 GW/cm² 激光辐照条件下,等离

子体呈现典型狭长形态,100 ns 时其轴向膨胀速度 (2.44×10^5 cm/s) 显著高于径向 (1.63×10^5 cm/s);通过粒子分布时空演化分析发现,等离子体初期(<100 ns)激光-气体强耦合作用形成高电离冲击层,导致氩离子与铝蒸气羽核产生空间重叠,这种特征表明等离子体传播模型属于 LSD 型;中期(200~800 ns)演化受流体力学主导,呈现氩原子壳层包裹铝蒸气核的层状结构;后期(>1 500 ns)则因热梯度驱动发生粒子再分布。粒子发射强度呈现出经典的指数衰减,证实离子寿命显著短于中性原子,建立了上能级能量差异

与离子复合对粒子寿命的影响机制。该成果深化了对激光等离子体膨胀动力学与粒子演化机制的理解,为 LIBS 信号空间选择性采集提供了理论依据,进一步为高精度 LIBS 定量分析系统的开发提供理论支持。

作者贡献声明:

赵洋:方法提出,论文构思和撰写;
张雷:实验指导和论文审核;
田志辉、张秀清:实验数据分析;
马维光、尹王保:实验指导和论文审核。

参考文献:

- [1] 莫凯峰,唐云,杨泽恩,等. 激光诱导荧光辅助激光诱导击穿光谱对合金结构钢中 Mo 的定量分析[J]. 光学精密工程, 2024, 32(20): 2999-3005.
MO K F, TANG Y, YANG Z E, *et al.* Quantitative analysis of Mo in alloy structural steel using laser-induced fluorescence assisted laser-induced breakdown spectroscopy[J]. *Optics and Precision Engineering*, 2024, 32(20): 2999-3005. (in Chinese)
- [2] 刘树林,王猛,李安,等. 高精度煤质成分快速定量分析 LIBS 系统研究[J]. 光学精密工程, 2024, 32(10): 1470-1480.
LIU S H, WANG M, LI A, *et al.* Study on LIBS system for high-precision coal components rapid and quantitative analysis[J]. *Optics and Precision Engineering*, 2024, 32(10): 1470-1480. (in Chinese)
- [3] YAO S C, YU Z Y, HOU Z Y, *et al.* Development of laser-induced breakdown spectroscopy based spectral tandem technology: a topical review[J]. *TrAC Trends in Analytical Chemistry*, 2024, 177: 117795.
- [4] WAINWRIGHT E R, DEAN S W, DE LUCIA F C, *et al.* Effect of sample morphology on the spectral and spatiotemporal characteristics of laser-induced plasmas from aluminum[J]. *Applied Physics A*, 2020, 126(2): 83.
- [5] HARILAL S S, KAUTZ E J, PHILLIPS M C. Spatiotemporal evolution of emission and absorption signatures in a laser-produced plasma[J]. *Journal of Applied Physics*, 2022, 131(6): 063101.
- [6] KAUTZ E J, PHILLIPS M C, HARILAL S S. Unraveling spatio-temporal chemistry evolution in laser ablation plumes and its relation to initial plasma conditions[J]. *Analytical Chemistry*, 2020, 92(20): 13839-13846.
- [7] 郑培超,刘红弟,王金梅,等. 激光诱导铝合金等离子体的时间演化过程研究[J]. 中国激光, 2014, 41(10): 260-266.
ZHENG P CH, LIU H D, WANG J M, *et al.* Study on time evolution process of laser-induced aluminum alloy plasma[J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2014, 41(10): 260-266. (in Chinese)
- [8] CAI J B, DONG M R, ZHANG Y S, *et al.* Temporally and spatially resolved study of laser-induced plasma generated on coals with different volatile matter contents[J]. *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, 2021, 180: 106195.
- [9] 袁舒,吴鼎,武华策,等. 真空下激光烧蚀碳化钨铜多组分等离子体发射光谱的时空演化研究[J]. 光谱学与光谱分析, 2023, 43(5): 1394-1400.
YUAN S H, WU D, WU H C, *et al.* Study on the temporal and spatial evolution of optical emission from the laser induced multi-component plasma of tungsten carbide copper alloy in vacuum[J]. *Spectroscopy and Spectral Analysis*, 2023, 43(5): 1394-1400. (in Chinese)
- [10] AGUILERA J A, ARAGÓN C, BENGOCHEA J. Spatial characterization of laser-induced plasmas by deconvolution of spatially resolved spectra[J]. 2002: ThD1.
- [11] 王静鸽,李贺贺,李新忠,等. 基于 Abel 逆变换的激光诱导等离子体辐射特性研究[J]. 光谱学与光谱分析, 2019, 39(1): 250-256.
WANG J G, LI H H, LI X ZH, *et al.* Investigation on the characteristic of laser induced plasma by Abel inversion[J]. *Spectroscopy and Spectral*

- Analysis*, 2019, 39(1): 250-256. (in Chinese)
- [12] MOTTO-ROS V, MA Q L, GRÉGOIRE S, *et al.* Dual-wavelength differential spectroscopic imaging for diagnostics of laser-induced plasma [J]. *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, 2012, 74: 11-17.
- [13] DONG J Y, KEARNEY R J. Symmetrizing, filtering and Abel inversion using Fourier transform techniques[J]. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 1991, 46 (3) : 141-149.
- [14] BUIE M J, PENDER J T P, HOLLOWAY J P, *et al.* Abel's inversion applied to experimental spectroscopic data with off axis peaks[J]. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 1996, 55(2): 231-243.
- [15] ÁLVAREZ R, RODERO A, QUINTERO M C. An Abel inversion method for radially resolved measurements in the axial injection torch[J]. *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, 2002, 57(11): 1665-1680.
- [16] CANDEL S M. An algorithm for the Fourier-Bessel transform [J]. *Computer Physics Communications*, 1981, 23(4): 343-353.
- [17] YU J, MA Q L, MOTTO-ROS V, *et al.* Generation and expansion of laser-induced plasma as a spectroscopic emission source [J]. *Frontiers of Physics*, 2012, 7(6): 649-669.
- [18] BAI X S, MA Q L, PERRIER M, *et al.* Experimental study of laser-induced plasma; influence of laser fluence and pulse duration[J]. *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, 2013, 87: 27-35.
- [19] MA Q L, MOTTO-ROS V, BAI X S, *et al.* Experimental investigation of the structure and the dynamics of nanosecond laser-induced plasma in 1-atm argon ambient gas [J]. *Applied Physics Letters*, 2013, 103(20): 204101.
- [20] 赵洋, 张雷, 程年恺, 等. 二元激光等离子体的时空演化机制研究[J]. *光谱学与光谱分析*, 2023, 43(7): 2067-2073.
- ZHAO Y, ZHANG L, CHENG N K, *et al.* Research on space-time evolutionary mechanisms of species distribution in laser induced binary plasma [J]. *Spectroscopy and Spectral Analysis*, 2023, 43 (7): 2067-2073. (in Chinese)
- [21] ZHAO Y, ZHANG L, HOU J J, *et al.* Species distribution in laser-induced plasma on the surface of binary immiscible alloy[J]. *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, 2019, 158: 105644.
- [22] ZHAO Y, ZHANG L, HOU J J, *et al.* Species distribution in laser-induced plasma on the surface of binary immiscible alloy[J]. *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, 2019, 158: 105644.
- [23] BABUSHOK V I, DELUCIA F C Jr, DAGDI-GIAN P J, *et al.* Kinetic modeling of the laser-induced breakdown spectroscopy plume from metallic lead[J]. *Applied Optics*, 2003, 42(30): 5947-5962.

作者简介:



赵 洋(1993—),女,山西晋中人,讲师,2015年于福建师范大学获得学士学位,2021年于山西大学获得博士学位,主要从事激光光谱技术的研究。E-mail: yangzhao@nuc.edu.cn

通讯作者:



张 雷(1981—),男,山西运城人,教授,博士生导师,2003年于沈阳航空航天大学获得学士学位,2008年于山西大学获得博士学位,主要从事激光诱导击穿光谱融合检测、激光复合光谱立体侦察、机器视觉等技术的研究。E-mail: k1226@sxu.edu.cn