

文章编号: 1001-3806(2020)06-0726-06

脉冲 Nd:YAG 激光诱导水滴等离子体的实验研究

尹培琪,王新兵*,武耀星,孙秦,左都罗
(华中科技大学 武汉光电国家研究中心,武汉 430074)

摘要: 为了研究激光诱导液滴等离子体特性,基于脉冲激光与液滴的同步作用,采用直接成像法和阴影法研究了液滴等离子体羽辉膨胀特性及激光作用液滴的运动情况。首先采用增强型电荷耦合器件直接成像法,研究了水滴等离子体的羽辉随时间的演化;其次利用阴影法研究激光作用水滴的阴影图像的演化,观察到激光作用水滴产生的冲击波及液滴团簇的变化,分析计算了冲击波膨胀距离随时间的变化和膨胀速度。结果表明,激光诱导水滴等离子体的膨胀形状近似为椭圆,其中沿激光入射方向的一侧辐射强度较高;100ns 内等离子体的膨胀变化近似为线性膨胀,100ns 后膨胀趋于稳定;冲击波膨胀半径随时间线性增长,冲击波的膨胀速率约为 90m/s。此研究结果可为激光诱导液滴实验提供一定的参考依据。

关键词: 激光技术;液滴等离子体羽辉;阴影法;液滴靶

中图分类号: O539 文献标志码: A doi:10.7510/jgjs. issn. 1001-3806. 2020. 06. 014

Experimental study on water droplet plasma induced by pulse Nd:YAG laser

YIN Peiqi, WANG Xinbing, WU Yaoxing, SUN Qin, ZUO Duluo

(Wuhan National Research Center for Optoelectronics, Huazhong University of Science and Technology, Wuhan 430074, China)

Abstract: In order to study the characteristics of laser-induced droplet plasma, based on the synchronous system of pulsed laser and droplet, the direct imaging method and the shadow method were used to study the expansion characteristics of droplet plasma and the motion of droplets. Firstly, the evolution of the plume of water droplet plasma over time was studied by using the intensified charge-coupled device (ICCD) direct imaging method. Then, the shadow image evolution of laser water droplets was studied by shadow method. The changes of the shock wave and the droplet clusters generated by the laser droplets were observed, the expansion speed and the expansion distance of the shock wave with time were calculated and analyzed. The results show that the plasma expansion shape of droplets induced by laser is approximately elliptical, with one side along the incident direction of the laser having a higher radiation intensity. The expansion of the plasma within 100ns is approximately linear expansion, and the expansion tends to be stable after 100ns. In addition, the shock wave expansion radius increases linearly with time and the shock wave expands at a rate of approximately 90m/s. These findings can provide a reference for laser-induced droplet experiments.

Key words: laser technique; droplet plasma plume; shadow method; droplet target

引言

近年来,随着对激光与液体相互作用研究的增多,其在生物、医学、工业、能源、天体运动等领域得到了越来越广泛的应用。激光与液体相互作用时可以观察到许多有趣的现象,如软 X 射线、冲击波、白光、超热电子^[1-3]等,要解释这些现象需要深入研究了解其背后的作用机理,故激光与液体作用动力学引起了越来越多的关注。如今,液体靶材的形式和种类逐渐多样化、多

作者简介:尹培琪(1995-),女,硕士研究生,主要从事激光诱导液滴等离子体的研究。

* 通讯联系人。E-mail:xbwang@mail.hust.edu.cn

收稿日期:2019-11-27;收到修改稿日期:2020-03-20

元化,从液面、液体射流^[4]到液滴^[5],过渡到低温液体(如液氧、液氮、液氩^[6-7]等),再到一些有机和无机化合物^[8-10],掺杂样品溶液等也进入了研究领域。

当前,液滴靶凭借其具有的多重优势,成为研究人员的青睐对象。一方面由于其质量受限^[11-12],液滴靶激光等离子体的低碎屑高转换率,使其可以作为激光等离子体极紫外光源用于集成电路制造,同时液滴靶等离子体亦可作为水窗波段软 X 射线光源应用于显微成像方面。国内外学者已进行了大量的相关研究,1995 年, JIN 等人^[5]进行了水微滴靶的研究,结果表明,在 13nm 附近获得的极紫外光转换效率接近 1%。2009 年, OKAZAKI 等人^[13]通过激光诱导荧光(laser-induced fluorescence, LIF)成像方法观察 Sn 原子的空

间分布,分析得出 Sn 原子通过预脉冲辐照以 20km/s 的速度向各个方向喷射。同时作者还通过拍摄阴影图观测中性团簇的膨胀行为,发现团簇的扩展速度随着预脉冲强度的增加而增加,进而获得预脉冲的最佳参数。2016 年,HUDGINS 等人^[14]通过实验研究了锡液滴靶的激光等离子体中性团簇碎片动力学问题,获得了平均径向碎片速度和入射激光辐照度之间的关系。华中科技大学 CHEN 等人^[15-16]研究了脉冲激光诱导液滴锡靶等离子体极紫外辐射,分析获得了实现极紫外光源的最佳实验条件。

另一方面,液滴靶可应用于激光诱导击穿光谱技术(laser-induced breakdown spectroscopy, LIBS),为检测液体重金属污染物提供了一种快速、实时分析的新方法,具有分析简便、快速、多元素同时测量等特点^[17],开展基于液体靶的激光诱导击穿光谱技术检测液体中重金属研究具有重要的科学意义和应用价值。由于当高能脉冲激光束聚焦到静止液体表面上时导致液体瞬间气化和电离,产生的冲击波会引起液体表面波动、溅射等,最终导致激光等离子体及谱线强度不稳定,使实验的可重复性及可靠性降低;采用液滴或液体射流靶,由于其更加均匀稳定,能够使液体靶气化、电离得更完全,获得更加稳定与更高强度等离子体辐射谱,可以实现对液体中重金属元素更精确的分析。最近几年,国内外各个研究机构均对激光诱导液体等离子体进行了大量研究。2005 年,YAROSHYK 等人^[4]比较了液体喷射状态和静止液面状态进下水溶液重金属的 LIBS 信号,实验结果表明,在液体喷射状态下样品的金属信号激发率高于静态液面。2008 年,RAI 等人^[8]对工业废水中 Cr 元素进行检测,获得其最低检测限为 3×10^{-5} 。2014 年,SAMU 等人^[9]对水溶液中的金属元素 Ni, Pb, Zn 进行了检测,结果表明,LIBS 可实现对工业废水在线监测。2018 年,WANG 等人^[10]分别利用单双脉冲激光诱导击穿光谱技术(LIBS)对液体中重金属元素的进行检测,发现双脉冲技术可使元素检测线降低两倍多,为基于双脉冲的 LIBS 技术应用于水体中重金属快速检测提供了依据。

本文中基于自行研制的液滴发生器产生竖直流动的均匀液滴,实现了激光与单个液滴的同步作用。在低真空情况下,研究激光与水滴作用的演化过程。通过直接成像法探究不同时刻等离子体膨胀距离和等离子体中心的相对位移,采用阴影法研究水滴团簇及冲击波的膨胀,更加全面地分析了激光与水滴作用过程,为获得较好的等离子体光源和较低的重金属元素检测

限的实验条件打下坚实的基础。

1 实验装置

均匀液滴由液滴发生器产生,液滴发生器主要包括贮藏液滴靶材的液滴罐,供应受控压力的气体系统(氮气),振动装置及金属拉丝模喷嘴。当对液体罐施加一定的恒定压力时,喷嘴的出口处会形成射流。根据瑞利射流不稳定理论,此时射流液柱在表面张力的作用下力学不稳定^[18],当对喷出的射流加以适当频率的振动,能够使液体靶材在喷出后断裂成均匀稳定的液滴。为了提高激光与液滴的作用效率,通过利用激光二极管、光电探测器等装置搭建了一套激光-液滴的同步装置。

激光与液滴靶的同步作用可通过以下方式实现:将连续激光(波长 655nm)聚焦在液滴上,并通过光电探测器探测,由于液滴运动会遮挡激光,探测器会产生 20mV 左右的电信号。探测的信号经过滤波放大后可变成 1V 左右的信号,经同步发生器分频为 1Hz 的脉冲信号,可以用来触发 Nd:YAG 激光器,液滴诊断系统(CCD 和频闪照明灯)及增强型电荷耦合器件(intensified charge-coupled device, ICCD)。Nd:YAG 激光器与液滴同步作用的实验装置如图 1 所示,由探测器获得的液滴信号如图 2 所示。

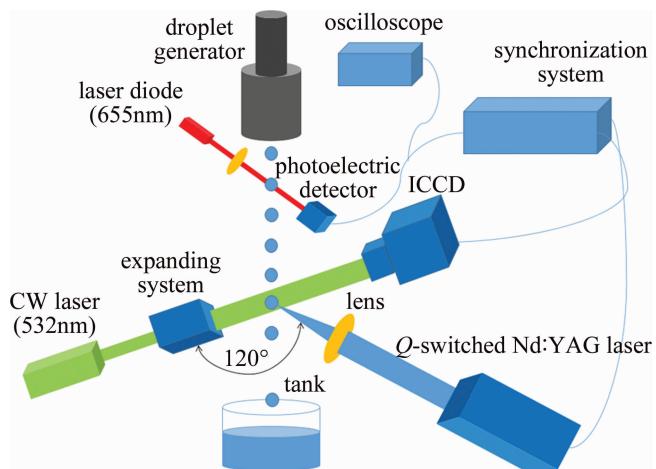


Fig. 1 Laser induced droplet plasma experimental setup

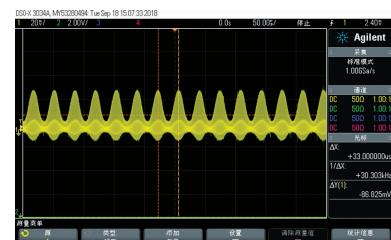


Fig. 2 Signal diagram of the stable droplet

为了检测液滴的运动状态及稳定情况,利用同步频闪照明的方式获得液滴图像,进行一定的图像处理后可得液滴的相关信息(液滴尺寸、距离及速度)。由于水滴靶便宜易得、操作方便,本实验中使用蒸馏水作为液滴靶材。液滴发生器的振动频率约为 30kHz,供应气体压力为 0.13MPa,喷嘴的直径为 100 μm 。观察的液滴位于喷嘴下方 50mm(即 Nd:YAG 激光作用的液滴位置),真空腔腔内气压为 1kPa。图 3 为 CCD 拍摄的液滴图像。液滴直径约为 187 μm ,液滴间距约为 671 μm ,液滴速率约为 19m/s。

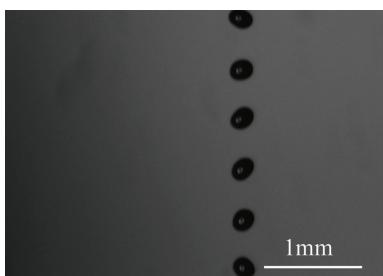


Fig. 3 CCD image of stable droplet at a certain moment

图 4 为实验装置俯视图。直接拍摄法和阴影法均使用这套实验装置,其中 ICCD 放置的位置不变,而阴影法需要在 ICCD 的对面放置一个背景光(连续绿激光),可结合图 1 和图 4 查看。

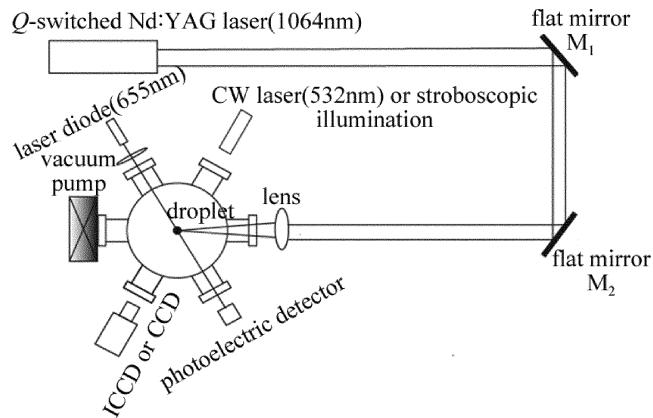


Fig. 4 The top view of experimental setup

利用时间分辨型 ICCD 相机对等离子体羽辉进行直接成像。ICCD 型号为 Stanford 4Quick E-DIG,最小曝光时间为 1ns,门宽调节范围为 1ns ~ 100 μs 。为了避免过曝现象损坏 ICCD,设置曝光时间为 1ns,时间间隔为 10ns,并将镜头光圈调至最小。实验中采用 1064nm Nd:YAG (Innolas SpitLight Compact 200) 激光器,激光能量为 80mJ,重复频率为 1Hz,激光脉冲半峰全宽为 20ns。脉冲激光经透镜(焦距 $f = 100\text{mm}$)聚焦后焦斑直径约为 60 μm (小于液滴直径 200 μm),焦点处功率密度约为 $1.41 \times 10^{11} \text{ W/cm}^2$,不锈钢真空室气

压为 1kPa 左右。

利用阴影法观测液滴团簇及冲击波的演化,将连续激光(波长为 532nm)扩束准直成具有一定宽度的平行光束,光束通过激光液滴作用区域并投影至硫酸纸上,最终由 ICCD 成像。ICCD 门宽设置为 55ns,增益电压为 860V,拍摄时间间隔为 400ns,ICCD 由延时同步系统的信号触发,从而获得激光作用液滴的时间演化过程。

2 实验结果与分析

2.1 水滴等离子体羽辉膨胀动力学

图 5 为不同延时时刻下水滴等离子体的羽辉膨胀图。图中的白色箭头方向为激光的传播方向。由于在拍摄前激光作用已经结束,因此此期间拍摄的等离子体膨胀可近似视为绝热膨胀^[19]。由图 5 可以看出,击穿位置位于液滴的后侧,这是因为水滴对光束有聚焦作用,导致液滴后侧的辐射最强,与 JANZEN 等人^[20]的实验有一致的结果。随着时间的增加,等离子体羽辉逐渐向四周膨胀,等离子体辐射强度逐渐衰减。在等离子体的演化过程中,等离子体辐射的强度分布是不对称的,其中沿激光入射的方向辐射较高。可以观察到前 20ns 等离子体云团较为集中,有较强的辐射强度,30ns 后等离子体云团扩散,中心光强明显减弱,这主要是由于等离子体膨胀使得粒子间的碰撞几率减小,最终导致等离子体的羽辉强度减少。当延时为 100ns 时等离子体辐射变得极微弱,在 300ns 后已无法观察到其可见辐射。

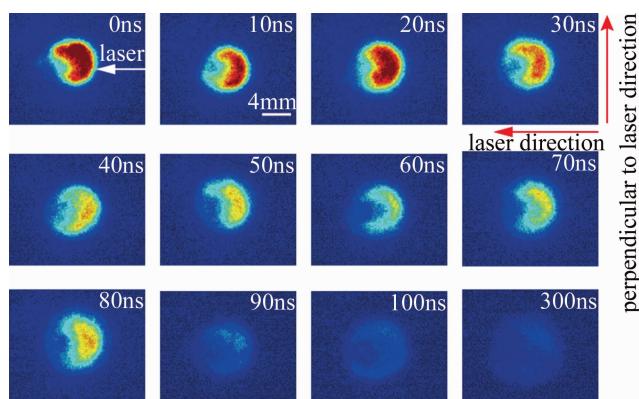


Fig. 5 Droplet plasma plume expansion images

利用 MATLAB 基于二阶矩的方法处理 ICCD 拍摄的时间分辨等离子体羽辉膨胀图。图 6 为不同时刻下等离子体膨胀半径,坐标原点为等离子体中心。为了方便描述等离子体膨胀距离的变化,将图中水平方向视为激光传播方向,那么竖直方向可视为垂直于激光

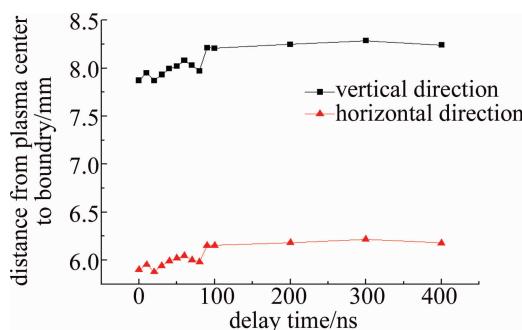


Fig. 6 The distance from the plasma boundary to the center varies with time
的方向。由图 6 可以看出, 等离子体图像近似为椭圆形, 且水平方向的等离子体尺寸(8mm 左右)始终大于竖直方向(6mm 左右)。随着膨胀时间的增加, 等离子体逐渐扩散, 且在沿激光方向与垂直于激光方向有相似的膨胀趋势。100ns 内等离子体的膨胀变化近似为线性膨胀, 这是因为等离子体的加速度快速下降, 速度缓慢增加, 大约在 100ns 后膨胀速度稳定。等离子体中心的相对位移随时间的变化如图 7 所示。设置 0ns 时刻等离子体的中心位置为参考原点, 则沿激光传播方向的位移为正值。在水平方向看, 等离子体中心位移随时间线性增大, 有逆着激光传播方向移动的趋势。MIZOGUCHI^[21] 的报告中指出, 在利用纳秒激光作为预脉冲烧蚀锡液滴的过程中, 观察到等离子体可见云团则向着入射激光方向移动的现象。在竖直方向上可看出等离子体中心基本稳定, 部分较大的偏移, 主要是来自水滴自身位置的不稳定。

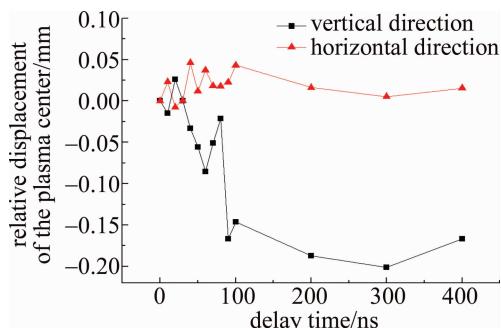


Fig. 7 The relative displacement of the plasma center varies with time

2.2 阴影法探测水滴等离子体特性

为了探究羽辉结束后等离子体的行为, 基于激光水滴同步作用搭建一套阴影成像系统。Nd:YAG 激光入射方向与观察方向之间夹角为 120°, 可结合图 1 和图 4 查看。图 8 是脉冲激光作用水滴的阴影演化图。将图像中箭头方向视为激光入射方向, 图中每幅小图最上面的黑色横线为扩束准直望远镜的标尺。由于本实验中使用的真空腔为低真空约为 1kPa, 腔体中仍存在残留空气, 故通过阴影法不仅可以观察到等离子体

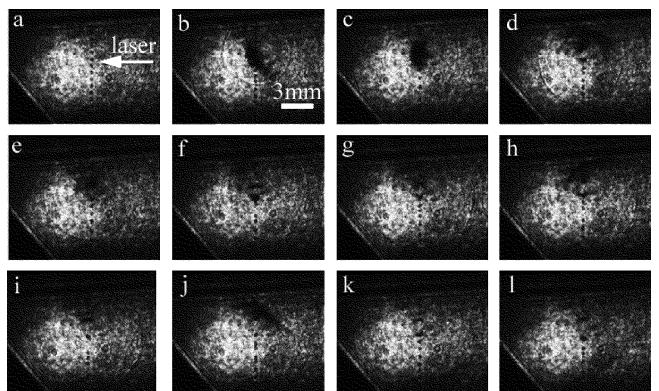


Fig. 8 ICCD images at different time

a—no laser b~f—after laser; 1μs, 1.4μs, 1.8μs, 2μs, 2.4μs g~l—after laser; 2.8μs, 3μs, 3.4μs, 3.8μs, 4μs, 6μs
团簇的变化, 也可以观察到冲击波的演化。

图 8 展示了在激光作用水滴后 6μs 内等离子体的演化。可以看出, 激光作用水滴后产生了明显的冲击波和等离子体团簇; 激光作用水滴产生的冲击波形状近似为圆形, 与空气中激光击穿液柱的冲击波形状较为不同^[22]。在 1μs 时水滴周围已产生了明显的冲击波且已传播至视场一半, 3μs 时冲击波快速传播至视场边缘附近, 大约在 6μs 后扩散出 ICCD 的视场, 无法再继续观察。同时也可观测到等离子体团簇的变化, 在激光作用液滴 1μs 后, 液滴碎裂并形成一团致密蒸汽即中性团簇^[23], 这是由等离子体膨胀产生的反作用力导致的, 其主要集中在液滴位置附近。随着时间的增长, 中性团簇在被击穿液滴四周迅速扩散开, 大约在 2.4μs 后消失。图 8 也展示出激光作用液滴后对其两侧液滴存在挤压, 且挤压效果持续时间很长, 在 6μs 仍可观察到两侧液滴的形变, 那么如果后期进行高频激光作用液滴, 需要避开变形的靶材。VINOKHODOV 等人^[24] 为了实现激光诱导锡液滴的高频作用, 获得高效、稳定的软 X 射线光源, 得出需要每 4 个液滴作用一次的结论。

水对 Nd:YAG 激光的吸收系数为 2.75cm⁻¹, 故对波长为 1064nm 的激光而言水滴相当于透明。尽管水滴对于 1064nm 激光的吸收很小, 但仍有大量实验表明, 水滴对激光有明显的聚焦效果^[25]。当脉冲激光功率达到击穿液滴的阈值时, 液滴表面被加热, 液滴吸收激光能量快速蒸发电离形成高温高密度的等离子体。在等离子体形成期间会产生很强的等离子体羽辉, 羽辉膨胀同时与剩余的水滴靶材料相互作用, 产生等离子体团簇和冲击波, 通过阴影法即可观察。图 9 为冲击波半径随时间的变化。由图可见, 冲击波半径随时间逐渐增大, 冲击波的膨胀距离随时间成线性变化, 速度

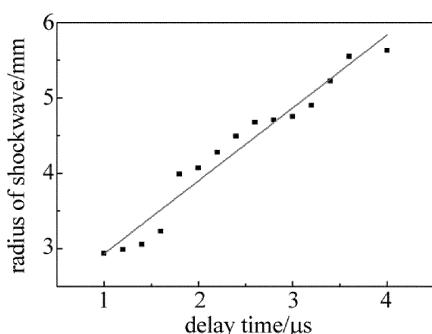


Fig. 9 Shockwave radius at different delay time

约为 90m/s,与空气中的等离子体膨胀速度有相同数量级^[26]。

3 结 论

基于激光二极管、光电探测器、前置放大器等装置建立了一套完整的激光-液滴同步系统,通过利用直接成像法和阴影法研究了激光诱导水滴等离子体的特性。

首先利用 ICCD 直接拍摄水滴等离子体时间分辨的羽辉膨胀图,观察到等离子体呈椭圆形态,且其辐射强度分布是不对称的,沿激光入射方向的一侧辐射强度较高。随着观察时间的增加,膨胀距离逐渐增大,等离子体辐射强度大幅度减小。100ns 内等离子体的膨胀变化近似为线性膨胀,100ns 后膨胀趋于稳定。利用阴影法观察了激光作用水滴产生的冲击波及液滴的变化。实验中发现,冲击波形状近似为圆形,冲击波半径随时间增加不断扩张。液滴蒸发会形成团簇,但很快就会消散,同时发现激光作用液滴会对其两侧液滴挤压,故如果后期利用高频激光作用液滴时,需要避开变形的靶材。通过对冲击波的计算获得了冲击波随时间的膨胀距离变化及膨胀速度。这两种方法分别在不同时间尺度上对激光诱导液滴等离子体的演化过程进行了分析,为激光诱导液滴靶的实验研究打下坚实的基础。

参 考 文 献

- [1] BELL C E, LANDT J A. Laser-induced high-pressure shock waves in water[J]. Applied Physics Letters, 1967, 10(2): 46-48.
- [2] BAGHDASSARIAN O, TABBERT B, WILLIAMS G A. Luminescence characteristics of laser-induced bubbles in water[J]. Physical Review Letters, 1999, 83(12): 2437-2440.
- [3] BERGLUND M, RYMELL L, HERTZ H M, et al. Cryogenic liquid-jet target for debris-free laser-plasma soft X-ray generation[J]. Review of Scientific Instruments, 1998, 69(6): 2361-2364.
- [4] YAROSHCHYK P, MORRISON R J S, BODY D, et al. Quantitative determination of wear metals in engine oils using laser-induced breakdown spectroscopy: A comparison between liquid jets and static liq-
- uids[J]. Spectrochimica Acta, 2005, B60(7/8): 986-992.
- [5] JIN F, RICHARDSON M C, SHIMKAVEG G M, et al. Characterization of a laser plasma water droplet EUV source[C]//International Society for Optics and Photonics, Applications of Laser Plasma Radiation II. San Diego, CA, USA: International Society for Optics and Photonics, 1995: 81-87.
- [6] NI Q L, CHEN B. Spectral of laser plasma source of CO₂, O₂, CF₄ liquid droplet ejectiontarget[J]. Spectroscopy and Spectral Analysis, 2008, 28(11): 2465-2468 (in Chinese).
- [7] SON J, CHO M, KIM D, et al. Prepulse effect on laser-induced water-window radiation from a liquid nitrogen jet[J]. Applied Physics Letters, 2007, 90(26): 261502.
- [8] RAI N K, RAI A K. LIBS—an efficient approach for the determination of Cr in industrial wastewater[J]. Journal of Hazardous Materials, 2008, 150(3): 835-838.
- [9] SAMU T J, SAARI S, KESKINEN J, et al. Detection of Ni, Pb and Zn in water using electrodynamic single-particle levitation and laser-induced breakdown spectroscopy[J]. Spectrochimica Acta, 2014, B99: 9-14.
- [10] WANG L, XU L, XU W Q, et al. Single and double pulse LIBS study of Al element in liquid phase jet[J]. Spectroscopy and Spectral Analysis, 2018, 38(1): 314-319.
- [11] NAMBA S, FUJIOKA S, NISHIMURA H, et al. Spectroscopic study of debris mitigation with minimum-mass Sn laser plasma for extreme ultraviolet lithography[J]. Applied Physics Letters, 2006, 88(17): 171503.
- [12] RICHARDSON M, KOAY C S, TAKENOSHITA K, et al. High conversion efficiency mass-limited Sn-based laser plasma source for extreme ultraviolet lithography[J]. Journal of Vacuum Science & Technology B: Microelectronics and Nanometer Structures Processing, Measurement, and Phenomena, 2004, 22(2): 785-790.
- [13] OKAZAKI K, NAKAMURA D, AKIYAMA T, et al. Dynamics of debris from laser-irradiated Sn droplet for EUV lithography light source[C]//International Society for Optics and Photonics, Laser Applications in Microelectronic and Optoelectronic Manufacturing VII. San Jose, California, USA: International Society for Optics and Photonics, 2009: 72010T.
- [14] HUDGINS D, GAMBINO N, ROLLINGER B, et al. Neutral cluster debris dynamics in droplet-based laser-produced plasma sources[J]. Journal of Physics, 2016, D49(18): 185205.
- [15] CHEN H, LAN H, CHEN Z Q, et al. Experimental study on extreme ultraviolet radiation of liquid Sn drop target plasma irradiated by pulsed laser[J]. Journal of Physics, 2015, 64(7): 255-260 (in Chinese).
- [16] CHEN Z Q, WANG X B, ZUO D L, et al. Study on detection of tin drop target with extreme ultraviolet light source[J]. High Power Laser and Particle Beams, 2014, 26(12): 45-49 (in Chinese).
- [17] YANG J, DING L, GE L L, et al. Study on heavy metals liquid jet by laser breakdown spectroscopy[J]. Chinese Journal of Lasers, 2012, 39(2): 0215001 (in Chinese).
- [18] RAYLEIGH L. On the instability of jets[J]. Proceedings of the London Mathematical Society, 1878, 1(1): 4-13.
- [19] YANG R Q, WANG X B, LAN H. Study on expansion characteristics of tin plasma plume produced by CO₂ and Nd:YAG pulsed laser [J]. Laser Technology, 2016, 40(2): 223-226 (in Chinese).
- [20] JANZEN C, FLEIGE R, NOLL R, et al. Analysis of small droplets

- with a new detector for liquid chromatography based on laser-induced breakdown spectroscopy [J]. *Spectrochimica Acta*, 2005, B60(7/8): 993-1001.
- [21] MIZOGUCHI H. High CE technology for HVM EUV source [C]// International Society for Optics and Photonics, International Symposium on Extreme Ultraviolet Lithography. Brussel, Belgium: International Society for Optics and Photonics, 2012: 1-4.
- [22] ZHANG Y W. Laser induced breakdown spectroscopy for the detection of heavy metals in environmental pollution [D]. Changchun: Changchun University of Science and Technology, 2016: 10-15 (in Chinese).
- [23] KRIVOKORYTOV M S, VINOKHODOV A Y, SIDELNIKOV Y V, *et al.* Cavitation and spallation in liquid metal droplets produced by subpicosecond pulsed laser radiation [J]. *Physical Review*, 2017, E95(3): 031101.
- [24] VINOKHODOV A Y, KRIVOKORYTOV M S, SIDELNIKOV Y V, *et al.* Droplet-based, high-brightness extreme ultraviolet laser plasma source for metrology [J]. *Journal of Applied Physics*, 2016, 120(16): 163304.
- [25] HSIEH W F, ZHENG J B, WOOD C F, *et al.* Propagation velocity of laser-induced plasma inside and out side a transparent droplet [J]. *Optics Letters*, 1987, 12(8): 576-578.
- [26] CHEN Z Q, WANG X B, ZUO D L. Experimental study on the plasma of droplet jet induced by CO₂ laser [J]. *Laser Technology*, 2016, 40(6): 888-891 (in Chinese).