

文章编号: 1001-3806(2013)05-0636-06

脉冲 CO₂ 激光诱导空气等离子体的光谱诊断

唐 建, 左都罗*, 杨晨光, 程祖海

(华中科技大学 武汉光电国家实验室, 武汉 430074)

摘要: 为了了解激光诱导等离子体的演化过程, 得到等离子体的相关参量, 采用横向激励大气压 CO₂ 激光器在抛物反射面中聚焦击穿空气形成等离子体, 利用成像光谱仪和增强型 CCD 探测器对激光诱导等离子体进行了时间和空间分辨的实验分析, 取得了激光诱导空气等离子体的时间演化和空间分辨光谱。分别利用氧原子的线状谱和连续谱的比值及谱线半峰全宽计算得到电子温度达到了 4×10^4 K, 电子密度在 10^{18} cm^{-3} 量级。结果表明, 相比于低能量的激光诱导等离子体的辐射光谱, 高能量激光诱导的等离子体则向外辐射出很强的连续光谱, 同时, 等离子体以激光支持爆轰波的形式快速向外膨胀, 由于外围等离子体对激光能量的屏蔽作用, 等离子体出现了空间分离的现象。该研究结果对理解等离子体和高能量脉冲激光的相互作用过程是有帮助的。

关键词: 激光技术; 光谱学; 激光诱导等离子体; 时间和空间分辨光谱; 电子温度和电子密度

中图分类号: O539; O433

文献标识码: A

doi:10.7510/jgjs.issn.1001-3806.2013.05.016

Spectroscopic diagnosis of air plasma induced by pulsed CO₂ laser

TANG Jian, ZUO Du-luo, YANG Chen-guang, CHENG Zu-hai

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

Abstract: In order to study the evolution of laser-induced plasma and obtain the properties of plasma, transversely excited atmospheric CO₂ laser was focused by a parabolic reflector to generate air breakdown plasma. Based on the imaging spectrometer system and intensified CCD detector, time-space resolution of laser-induced air plasma were investigated and the time evolution spectra and the space resolution spectra of plasma were obtained. Electron temperature of about 4×10^4 K and electron density of 10^{18} cm^{-3} were calculated respectively by using the ratio of oxygen line spectrum and continuous spectrum and full width at half maximum of spectral line. The results show high-energy laser-induced plasma spectra radiate the intense continuous spectra outward, comparing with low-energy laser-induced plasma spectra. At the same time, laser-induced air plasma expands outward rapidly with the way of the laser-supported detonation wave. Due to the shielding effect of laser power, laser-induced air plasma shows the behavior of spatial separation. The results are useful for understanding the interaction between plasma and high-energy laser.

Key words: laser technique; spectroscopy; laser-induced plasma; spatio-temporal evolution spectroscopy; electron temperature and electron density

引 言

当高功率的激光作用在各种物质上时, 会使物质发生快速离化产生高温高压的等离子体, 并同时向外发出光辐射。利用激光诱导等离子体产生的冲击波可以推动飞行器进入近地轨道, 相比于传统的化学运载火箭, 激光推进由于不需要携带燃料, 具有

低成本、高比冲、发射便捷等优点, 使得激光推进在近 10 年来得到了研究者的广泛关注和深入研究^[1]。利用激光诱导等离子体也可以减小高超声速飞行器的气动阻力, 尽可能地提高燃料的利用效率^[2]。而激光诱导等离子体产生的光谱则可以用来检测物质成分, 并成为了当今物质检测的一个重要手段^[3]。

在利用激光诱导等离子体进行激光推进方面, 美国、俄罗斯、德国和日本已经做了大量的实验研究工作^[4-7]。在国内, 中国科学院电子学研究所^[8]利用能量为 13J、重复频率为 50Hz 的横向激励大气压 (transversely excited atmospheric, TEA) CO₂ 激光器

作者简介: 唐 建 (1985-), 男, 博士研究生, 主要从事激光等离子体及其应用方面的研究。

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

收稿日期: 2012-11-19; 收到修改稿日期: 2012-12-27

将飞行器推进上升到了 2.6m 的高度。在对激光诱导等离子体的诊断方面, JONES 等人^[9]利用三重态朗缪尔探针探测了激光推进等离子体, 但只能得到定性的测量结果。在对激光诱导等离子体的理论模拟方面, 美国 NASA 的 WANG 等人^[10]采用了计算等离子体气动模型, 研究了空气呼吸模式的激光推进的冲量耦合系数、光船内的流场分布以及产生的等离子体的电子温度和电子密度。俄罗斯的 GOLOVACHOV 等人^[11]比较了各种气动模型对激光推进中的流场模拟, 其中包括理想气体模型、平衡等离子体模型、非平衡多温等离子体模型和两相流模型。在国内, 装备指挥学院的 HONG 等人^[12]建立了 2 维轴对称的激光支持爆轰波流体模型, 对激光推进中等离子体进行了数值模拟。

然而, 过去对激光诱导等离子体的研究主要是针对如何提高激光耦合效率以及对等离子体的流场模拟。如果能够对激光诱导等离子体中电子温度和电子密度的演化过程有所了解, 就能帮助更好地理解激光参量在时间和空间上对激光诱导等离子体的影响。AGUILERA 等人^[13]研究了 Nd:YAG 激光诱导产生的金属等离子体在激光脉冲后的电子温度和电子密度的时间和空间演化过程, 结果表明, 径向的电子温度和密度从等离子体中心向外快速下降。在国内, LI 等人^[14]研究了 Nd:YAG 激光击穿气体的时间演化过程; ZHANG 等人^[15]计算得到了 Co 等离子体的轴向电子密度在距离靶面一定距离时达到最大值。

作者通过对百焦耳脉冲 CO₂ 激光诱导产生的等离子体辐射光谱的诊断, 分析了高能量 CO₂ 激光在激光脉冲内的光谱演化过程, 得到了激光诱导等离子体的电子密度和电子温度的演化规律, 并同时利用成像光谱的方法得到了高能量 CO₂ 激光诱导空气等离子体的空间分布, 进而了解等离子体的时空演化规律和激光与等离子体相互作用的物理机制, 这些等离子体参量同时也影响着激光诱导等离子体相关应用的效果。

1 实验系统

本文中研究的实验系统如图 1a 所示, TEA CO₂ 激光器的能量为 100J, 输出波长为 10.6 μ m, 采用的重复频率为 1Hz, 脉冲的 10% 全峰宽度为 3.5 μ s, 时间波形如图 1b 所示。产生的高能量的激光经过抛物面光船聚焦之后击穿空气形成等离子体, 实

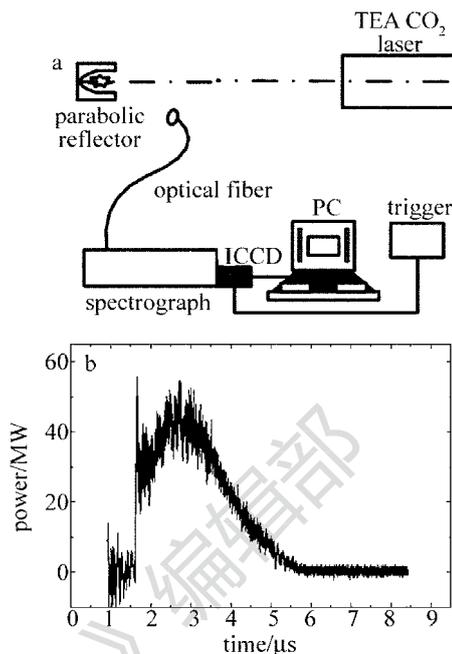


Fig. 1 a—schematic of experimental setups b—typical temporal structure of CO₂ laser pulse

验中采用的光船的底面直径为 100mm, 焦距为 10mm。等离子体发出的辐射谱由光纤接收, 采用 Princeton Instruments 公司的增强型 CCD 系统 (intensified CCD, ICCD) (PI-MAX-1300, 1340pixel \times 1300pixel) 来检测光纤接收到的辐射光, 其中, 光谱仪为 Princeton Instruments 公司的 SP275, 其焦距为 275mm。实验中的同步系统是采用 Tektronix 公司的 TDS7154B 数字示波器探测 TEA CO₂ 激光器放电产生的电磁干扰来触发 ICCD 系统, 同步系统的抖动小于 20ns。

实验中采用 Ocean Optics 公司的 DH-2000-CAL 标准光源来校准整个光谱诊断系统的光谱强度响应。另外, 采用了几个标准原子灯 (Ar, Kr, Ne, Xe 和 Hg) 来校准光谱系统的波长。

2 实验结果与讨论

2.1 激光诱导等离子体的发射光谱

图 2 为激光诱导空气等离子体的空间积分光谱随时间演化的过程, 采用入射激光能量为 100J 的 TEA CO₂ 激光在 10mm 焦距的光船中聚焦击穿空气, 对中心波长 400nm, 502nm, 660nm 和 760nm 处的光谱采用 1200grooves/mm 的光栅进行了测量。通过与国家标准局 (national institute of standards and technology, NIST) 数据库^[16]比较可认证得到各条谱线的跃迁形式, 其中主要为连续谱和 N, O 的 1 价离子的叠加^[17]。聚焦的高功率激光使得在焦点处的电场强度非常强, 大气环境中自然存在的初始自由

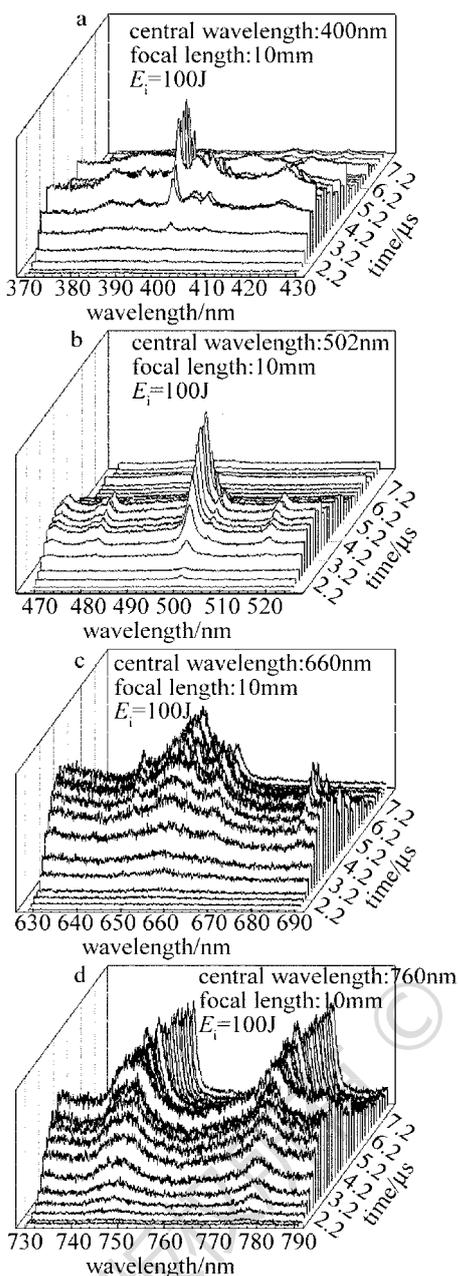


Fig. 2 Time resolution spectrum of laser-induced air plasma by 1200 grooves/mm grating

电子(一般为 10^3 cm^{-3})在激光聚焦区域内通过逆韧致辐射机制吸收激光能量,使得焦点处的自由电子呈指数增长,从而形成雪崩电离,在自由电子达到一定的比例之后,使空气发生击穿并产生等离子体,向外辐射出光谱。相比于 2J 的低能量 CO_2 激光诱导击穿空气等离子体光谱^[17],百焦耳的 CO_2 激光诱导空气等离子体光谱则呈现出很强的连续背景光谱,等离子体早期的连续谱的强度已经可以比拟线状光谱的强度。

2.2 激光诱导等离子体的线状谱和连续谱辐射演化

图 3 为空气等离子体光谱强度随时间变化的曲线。首先,由于等离子体对激光能量的连续吸收,空气被快速的离化,产生了大量的氮氧离子和自由电子。随着氮氧离子密度的快速增加,氮氧离子的线状光谱光强相对于氮氧原子经历了一个光强快速增长的过程。随后,随着氮氧离子与电子的复合过程形成原子,离子密度快速减少,使氮氧原子的密度维持在一个稳定的阶段,从而引起氮氧离子的光强快速衰减,而氮氧原子的辐射光强则可以稳定维持很长一段时间,如图 3a 所示,而实验中测得氮氧原子的辐射在激光熄灭之后还可以持续二十几个微秒。可以看到,在等离子体早期,由于等离子体的快速离化过程使得等离子体中各类离子密度和电子密度快速增长,从而引起连续谱光强的快速增长;在 $4 \mu\text{s}$ 之后,由于离子和电子的复合过程,各类离子和电子密度大大的减少,从而引起等离子体连续谱光强的快速衰减,如图 3b 所示。

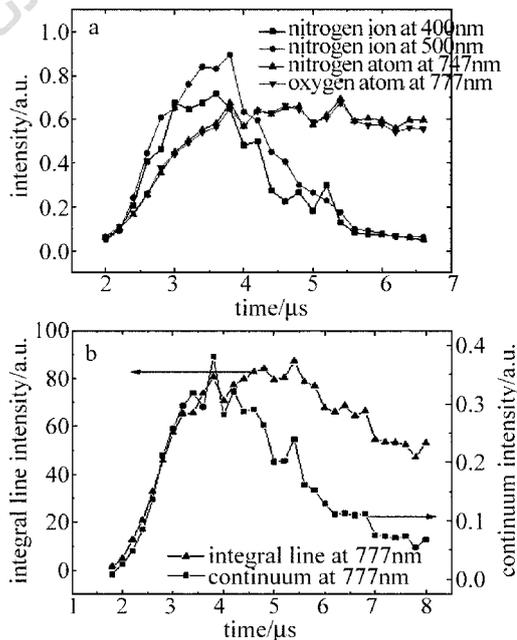


Fig. 3 Temporal evolution of laser-induced air plasma spectral intensity

2.3 激光诱导等离子体的电子温度和电子密度的时间演化

等离子体中的连续谱辐射是由电子和粒子间的韧致辐射和复合辐射组成,连续光谱可以描述成下式:

$$\mathcal{E}_c = \mathcal{E}_{ff,ea} + \mathcal{E}_{ff,ei} + \mathcal{E}_{fb,ei} \quad (1)$$

式中, $\varepsilon_{ff,ea}$ 为电子和原子碰撞引起的韧致辐射, $\varepsilon_{ff,ei}$ 为电子和离子碰撞引起的韧致辐射, $\varepsilon_{fb,ei}$ 为电子和离子碰撞引起的复合辐射。

等离子体中的自由电子在和离子碰撞之后, 并没有被正离子所俘获, 只是自由电子的速度发生了变化, 在这个过程中减少的那部分能量则以连续光的形式辐射出来, 称为自由电子的韧致辐射。理论上, 电子和离子的韧致辐射为^[18]:

$$\varepsilon_{ff,ei} = C_e \frac{n_e n_z (z-1)^2}{\lambda^2 \sqrt{T}} \exp\left(-\frac{hc}{\lambda kT}\right) g_{ff,z} \quad (2)$$

另外有一部分电子在与正离子的碰撞过程中被正离子所俘获而变成束缚电子, 在这个过程中, 多余的能量则以连续光的形式辐射出来, 自由电子在这个相互作用过程中是自由态到束缚态的跃迁, 称为自由电子的复合辐射。理论上, 电子和离子的复合辐射为^[18]:

$$\varepsilon_{fb,ei} = C_e \frac{g_{z,1}}{U_z} \frac{n_e n_z (z-1)^2}{\lambda^2 \sqrt{T}} \left[1 - \exp\left(-\frac{hc}{\lambda kT}\right)\right] \xi_{fb,z} \quad (3)$$

(2) 式和 (3) 式中的常数项 C_e 为:

$$C_e = (4\pi\epsilon_0)^{-3} \frac{16\pi e^6}{3c^2 \sqrt{6\pi m_e^3 k}} \quad (4)$$

式中, ϵ_0 为真空介电常数, e 为电子电量, n_e 为电子密度, n_z 为离子密度, z 为带电量 (1 价离子为 $z=2$), m_e 为电子质量, $g_{z,1}$ 为基态统计权重, λ 为波长, T 为电子温度, h 为普朗克常数, c 为真空光速, k 为玻尔兹曼常数, U_z 为离子配分函数, $g_{ff,z}$ 为自由-自由 Gaunt 因子, $\xi_{fb,z}$ 为自由-束缚 Biberman 因子。在高温高密度的等离子体中, 可以忽略电子和原子碰撞产生的韧致辐射 $\varepsilon_{ff,ea}$ 。

在等离子体演化过程中, 各个粒子的束缚态电子会在各个激发态之间跃迁, 向外辐射出分立的线状光谱, 自由电子在这个相互作用过程中是束缚态到束缚态的跃迁。假设等离子体处于局部热力学平衡状态, 粒子在各个能级上的布居数满足 Boltzmann 统计规律, 则原子的线状谱辐射为:

$$I_{mn} = \frac{1}{4\pi} h\nu_{mn} A_{mn} n_a \frac{g_m}{U_a} \exp\left(-\frac{E_m}{kT}\right) \quad (5)$$

式中, ν_{mn} 为辐射频率, A_{mn} 为 m 能级到 n 能级的跃迁概率, g_m 为上能级的跃迁权重, E_m 为上能级能量, n_a 为辐射原子密度, U_a 为辐射原子配分函数。

根据离子的 Saha 电离平衡方程, 可以转换得到原子的线状谱辐射关于电子温度、电子密度和离子

密度的函数:

$$I_{mn} = \frac{h\nu_{mn} A_{mn} n_e n_z}{4\pi} \frac{g_m}{2U_z} \left(\frac{h^2}{2\pi m_e kT}\right)^{3/2} \exp\left(\frac{E_i - E_m}{kT}\right) \quad (6)$$

式中, E_i 为原子的电离能。

在等离子体早期, 由于等离子体持续吸收激光能量, 等离子体中粒子之间的相互作用产生了很强的连续谱辐射, 此时, 可以利用同一波长处的线状谱-连续谱的强度比值求得电子密度, 得到的比值函数为仅随着温度升高的减函数:

$$\frac{I_{mn}}{I_{fb,ei} + I_{ff,ei}} = \frac{3^{3/2} h^4 c^3 \epsilon_0^3}{2^{14} k e^6} \times \frac{A_{mn} g_m}{U_z T} \times \frac{\lambda_c^2}{\lambda_l \Delta\lambda} \times \frac{\exp\left(\frac{E_i - E_m}{kT}\right)}{\exp\left(\frac{hc}{\lambda_c kT}\right) g_{ff,z} + \left[1 - \exp\left(-\frac{hc}{\lambda_c kT}\right)\right] \xi_{fb,z}} \quad (7)$$

式中, λ_c 为连续光谱的波长, λ_l 为线状光谱的波长。实验中的连续谱强度是连续光谱发射率在有限带宽 $\Delta\lambda$ 上的表征, 也就是 $I_c = \varepsilon_c \Delta\lambda$ 。

利用图 2 中 777nm 处的氧原子辐射谱线和连续谱, 可以计算得到空气等离子体的电子温度和电子密度的时间演化过程, 如图 4 所示。777nm 处氧原子的线状谱-连续谱的比值在等离子体初期是一个相对平缓的过程, 等离子体的电子温度也维持着一个相对平缓的过程; 在 5 μ s 之后, 线状谱-连续谱的比值经历了一个快速增长的过程, 等离子体在这

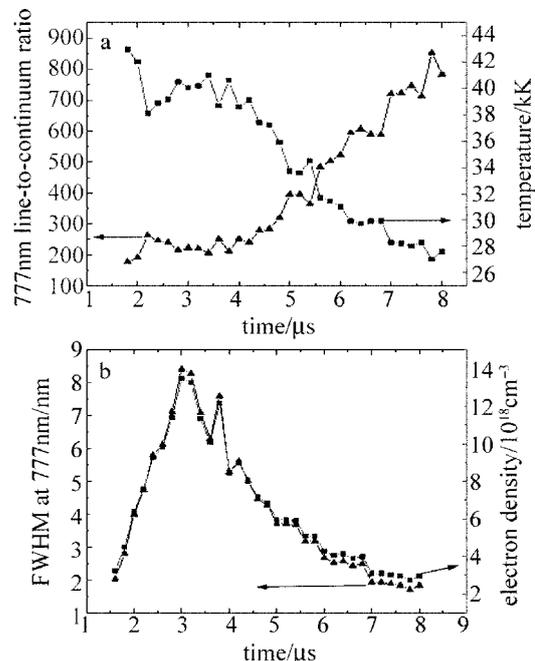


Fig. 4 Temporal evolution of electron temperature and electron density

段时间里也经历了一个快速降温的过程,电子温度在这段时间里快速下降。

在等离子体中,由于辐射粒子与周围的粒子之间有着复杂的相互作用,以致粒子向外辐射的线状谱是一个具有一定宽度的线型。谱线的主要展宽机制有 Doppler 展宽和 Stark 展宽,理论计算表明,在高温高密度的等离子体中,由电子碰撞引起的 Stark 展宽是主要的展宽机制。氧原子的谱线半峰全宽 (full width at half maximum, FWHM) 为随着等离子体中的电子密度升高的增函数^[19]:

$$\Delta\lambda_{FWHM} = 2 \times 10^{-16} \omega n_e \quad (8)$$

式中, ω 为电子碰撞展宽参量。

实验中,777nm 处的谱线半峰全宽和计算得到的电子密度随着时间变化的曲线如图 4b 所示。结果表明,在激光作用 1 μ s 的时期,等离子体的密度经历了一个快速增长的过程,当激光能量开始下降时,等离子体的电子密度则快速下降。

2.4 激光诱导等离子体的空间分布

利用 Princeton Instruments 公司的成像光谱仪 SP750i 可以测量得到等离子体的空间分布光谱,如图 5 所示。空气在激光器的放电干扰 1.6 μ s 之后发生击穿,可以看到,在空间分辨的光谱图上,在焦点位置并没有等离子体光谱辐射,这是由于聚焦的激

光能量在未达到焦点时就已经达到了空气的击穿阈值,使得激光能量在还未到达焦点就被大量吸收。等离子体周围的冷空气被等离子体的紫外辐射加热,随后,被加热的空气吸收激光能量被快速电离,向外迎着激光形成新的等离子体,等离子体则以激光支持爆轰波的形式不断向外膨胀,直至等离子体湮灭。由于外围等离子体对激光能量的大量吸收,形成了对等离子体中心的屏蔽作用,从而引起强辐射的等离子体在空间上的分离。与 AGUILERA 和 LIN 等人的实验结果不同,高能量激光诱导等离子体从一开始就在空间上分离并向外围发展,这是由于高能量激光产生的等离子体的大小远远大于 Nd:YAG 激光诱导的等离子体,大体积的等离子体对激光能量有强烈的屏蔽作用,使得等离子体中心不能被激光加热。

3 结 论

利用时间和空间分辨的 ICCD 和成像光谱仪系统对百焦耳的 TEA CO₂ 激光诱导空气等离子体进行了光谱诊断,实验中测得的等离子体表现出了很强的连续辐射光谱,等离子体的线状光谱和连续光谱都经历了一个快速增长然后减弱的过程,而原子光谱辐射则可以稳定维持很长一段时间,达到二十几个微秒。通过空间分辨的成像光谱了解到,激光在还未到达焦点处就已经发生了击穿,同时等离子体以激光支持爆轰波的形式快速向外膨胀,由于外围等离子体对激光能量的屏蔽,使强辐射的等离子体出现了空间分离的现象。另外,本文中分别利用 777nm 处的氧原子线状谱-连续谱的强度比值和谱线半峰全宽,得到了激光诱导空气等离子体的电子温度和电子密度随着时间变化的曲线。结果表明,等离子体的电子温度和电子密度都经历了一个先增长后减少的过程,直至等离子体湮灭。

参 考 文 献

- [1] KANTROWITZ A. Propulsion to orbit by ground-based lasers[J]. Astronaut Aeronaut, 1972, 9(3): 34-35.
- [2] HONG Y J, LI Q, FANG J, et al. Advances in study of laser plasma drag reduction technology[J]. Acta Aeronautica et Astronautica Sinica, 2010, 31(1): 93-101 (in Chinese).
- [3] XIE C L, LU J D, YAO S C, et al. Quantitative analysis and material identification by laser induced breakdown spectroscopy[J]. Laser & Optoelectronics Progress, 2009(11): 65-72 (in Chinese).
- [4] PIRRI A N, MONSLER M J, NEBOLSINE P E. Propulsion by absorption of laser radiation[J]. AIAA Journal, 1974, 12(9): 1254-

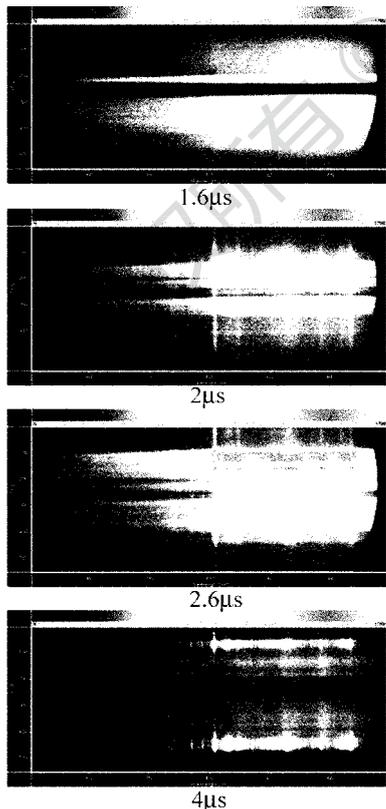


Fig. 5 Spatial distribution of laser-induced air plasma

- 1261.
- [5] SCHALL W O, BOHN W L, ECKEL H A, *et al.* Lightcraft experiments in Germany [J]. Proceedings of SPIE, 2000, 4065: 472-481.
- [6] MEAD F B, MYRABO L N, MESSITT D G. Flight and ground tests of a laser-boosted vehicle [C]//Proceedings 34th AIAA/ASME/SAE/ASEE Joint Propulsion Conference. Cleveland, USA: AIAA, 1998: 98-3735.
- [7] MYRABO L N. World record flights of beam-riding rocket lightcraft: demonstration of “disruptive” propulsion technology [C]//Proceedings 37th AIAA/ASME/SAE/ASEE Joint Propulsion Conference. Salt Lake City, USA: AIAA, 2001: 01-3798.
- [8] ZHEN Y J, TAN R Q, ZHANG K H, *et al.* Experiment of laser-propulsion free-flight [J]. Chinese Journal of Lasers, 2006, 33 (2): 171-174 (in Chinese).
- [9] JONES J E, WANG T S. Time dependent measurements of electron temperature and density in a laser lightcraft [C]//Proceedings 37th AIAA/ASME/SAE/ASEE Joint Propulsion Conference. Salt Lake City, USA: AIAA, 2001: 01-3796.
- [10] WANG T S, CHEN Y S, LIU J, *et al.* Advanced performance modeling of experimental laser lightcraft [J]. Journal of Propulsion and Power, 2002, 18 (6): 1129-1138.
- [11] GOLOVACHOV Y P, KURAKIN Y A, REZUNKOV Y A, *et al.* Numerical analysis of gasdynamic aspects of laser propulsion [J]. AIP Conference Proceedings, 2003, 664 (1): 149-159.
- [12] HONG Y J, SONG J L, CUI C Y, *et al.* Numerical study of energy conversion process in air-breathing laser propulsion [J]. Applied Physics, 2011, A105 (1): 189-196.
- [13] AGUILERA J A, ARAGON C. Multi-element Saha-Boltzmann and Boltzmann plots in laser-induced plasmas [J]. Spectrochimica Acta, 2007, B62 (4): 378-385.
- [14] LI X Y, LIN Zh X, LIU Y Y, *et al.* Spectroscopic study on the behaviors of the laser-induced air plasma [J]. Acta Optica Sinica, 2004, 24 (8): 1051-1056 (in Chinese).
- [15] ZHANG B H, LIU W Q, CUI Zh F. Time and spatial evolution of the electron density in laser-induced Co plasmas [J]. Chinese Journal of Lasers, 2008, 35 (10): 1485-1490 (in Chinese).
- [16] KRAMIDA A, RALCHENKO Y, READER J, *et al.* NIST atomic spectra database [DB/OL]. [2012-09-08]. <http://www.nist.gov/pml/data/asd.cfm>.
- [17] TANG J, ZUO D L, JIU Z X, *et al.* Spectral properties investigation of air plasma generated by pulsed CO₂ laser [J]. IEEE Transactions on Plasma Science, 2011, 39 (4): 1114-1119.
- [18] MENART J, HEBERLEIN J, PFENDER E. Line by line method of calculating emission coefficients for thermal plasmas consisting of monatomic species [J]. Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer, 1996, 56 (3): 377-398.
- [19] GRIEM H R. Plasma spectroscopy [M]. New York, USA: McGraw-Hill Book Company, 1964: 88-91.