

不同样品温度下聚焦透镜到样品表面距离对激光诱导铜击穿光谱的影响

杨雪 李苏宇 姜远飞 陈安民 金明星

Influence of distance between focusing lens and sample surface on laser-induced breakdown spectroscopy of brass at different sample temperatures

Yang Xue Li Su-Yu Jiang Yuan-Fei Chen An-Min Jin Ming-Xing

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 68, 065201 (2019) DOI: 10.7498/aps.68.20182198

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.68.20182198>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

---

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

[飞秒激光成丝诱导Cu等离子体的温度和电子密度](#)

Temperature and electron density in femtosecond filament-induced Cu plasma

物理学报. 2017, 74(11): 115201 <https://doi.org/10.7498/aps.66.115201>

[激光诱导氮气等离子体时间分辨光谱研究及温度和电子密度测量](#)

Time-resolved spectra and measurements of temperature and electron density of laser induced nitrogen plasma

物理学报. 2017, 74(9): 095201 <https://doi.org/10.7498/aps.66.095201>

[激光诱导击穿火焰等离子体光谱研究](#)

Spectroscopic study on the laser-induced breakdown flame plasma

物理学报. 2015, 72(4): 045202 <https://doi.org/10.7498/aps.64.045202>

[气雾化辅助激光诱导击穿光谱检测水中的痕量金属元素](#)

Detection of metal element in water using laser-induced breakdown spectroscopy assisted by nebulizer

物理学报. 2015, 72(2): 024212 <https://doi.org/10.7498/aps.64.024212>

[基于自吸收量化的激光诱导等离子体表征方法](#)

Laser-induced plasma characterization using self-absorption quantification method

物理学报. 2018, 75(16): 165201 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180374>

# 不同样品温度下聚焦透镜到样品表面距离对激光诱导铜击穿光谱的影响\*

杨雪<sup>1)</sup> 李苏宇<sup>2)3)</sup> 姜远飞<sup>2)3)</sup> 陈安民<sup>2)3)†</sup> 金明星<sup>2)3)‡</sup>

1) (吉林化工学院理学院, 吉林 132022)

2) (吉林大学原子与分子物理研究所, 长春 130012)

3) (吉林省应用原子分子光谱重点实验室, 长春 130012)

(2018年12月14日收到; 2019年1月6日收到修改稿)

研究了不同温度下聚焦透镜到样品表面距离对激光诱导击穿光谱 (laser-induced breakdown spectroscopy, LIBS) 强度的影响, 使用 Nd:YAG 脉冲激光激发样品并产生等离子体, 探测的等离子体发射的光谱线为 Cu (I) 510.55 nm, Cu (I) 515.32 nm 和 Cu (I) 521.82 nm. 使用透镜的焦距为 200 mm, 测量的聚焦透镜到样品表面距离的范围为 170—200 mm, 样品温度从 25 °C 升高到 270 °C, 激光能量为 26 mJ. 总体上, 升高样品温度能有效地提高 LIBS 光谱的辐射强度. 在 25 °C 和 100 °C 时, 光谱强度随着聚焦透镜到样品表面距离的增加而单调增加; 在样品温度更高 (150, 200, 250 和 270 °C) 时, 光谱强度随着距离的增加出现先升高而后又降低的变化. 同时, 在样品接近焦点附近, 随着样品温度的升高, LIBS 光谱强度的变化不明显, 还可能出光谱强度随着样品温度升高而降低的情况, 这在通过升高样品温度来提高 LIBS 光谱强度中特别值得我们注意. 为了更进一步了解这两个条件对 LIBS 的影响, 计算了等离子体温度和电子密度, 发现等离子体温度和电子密度的变化与光谱强度的变化几乎一致, 更高样品温度下产生的等离子体温度和电子密度更高.

**关键词:** 激光诱导击穿光谱, 样品温度, 聚焦透镜到样品表面距离, 等离子体温度和电子密度

**PACS:** 52.50.Lp, 52.38.Mf, 32.30.Jc, 42.62.Fi

**DOI:** 10.7498/aps.68.20182198

## 1 引言

激光诱导击穿光谱 (laser-induced breakdown spectroscopy, LIBS) 是一种元素分析技术, LIBS 利用聚焦透镜将一束高能量的激光脉冲照射到样品表面, 在相应的位置激发样品并产生等离子体, 激光诱导的等离子体在衰减的过程中辐射出一些特征谱线, 然后通过探测器探测这些谱线并鉴别相应的元素组分<sup>[1-3]</sup>. 原理上, LIBS 能分析任何物质, 而不用考虑它的状态 (固体、液体或者气体)<sup>[4-7]</sup>. 因为任何处于高温状态的元素能辐射出特定频率

的光, 这些光都能通过特定的设备进行探测, 限制因素仅仅为激光的功率、光谱仪和探测器的灵敏度和波长范围. LIBS 可以在大气压、真空、海洋深处或空间探索中进行, 能够用来分析金属、液体、粉末、生物材料、沙子、岩石、玻璃、牙齿、骨头、武器、危险品、植物、聚合物等, 使用过程中的关键问题就是增加等离子体的辐射强度<sup>[8]</sup>.

随着各种激光及其技术的发展, 许多方法已经被用来加强 LIBS 的光谱强度, 例如: 采用短波长的激光<sup>[9,10]</sup>、双脉冲激光进行激发<sup>[11]</sup>、磁场约束<sup>[12,13]</sup>、空间约束<sup>[14,15]</sup>、火花放电再加热<sup>[16]</sup>、火焰

\* 国家自然科学基金 (批准号: 11674128, 11674124) 和吉林省科技发展计划 (批准号: 20170101063JC) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: amchen@jlu.edu.cn

‡ 通信作者. E-mail: mxjin@jlu.edu.cn

加强的 LIBS<sup>[17]</sup>、纳米粒子加强的 LIBS<sup>[18]</sup>、共振增强的 LIBS<sup>[19]</sup>。另外, 升高样品温度是另一个影响 LIBS 光谱辐射强度的物理条件, 以前的一些研究发现升高样品温度能有效地加强激光与物质的相互作用<sup>[20–29]</sup>。Tavassoli 和 Gragossian<sup>[20]</sup>研究了靶材初始温度对激光诱导铝合金等离子体光谱强度的影响, 样品温度的升高导致光谱线强度的增强, 升高样品温度能够改善探测极限。Sanginés 等<sup>[21]</sup>研究了加热靶材对激光诱导等离子体的影响, 结果表明通过升高靶材温度能够增加 LIBS 的辐射强度, 且相应的信噪比提高了一个数量级。另外, 他们也研究了在垂直结构双脉冲 LIBS 中, 升高靶材温度增加辐射强度的加强机制<sup>[22]</sup>。Darbani 等<sup>[23]</sup>调查了加热样品对激光诱导合金光谱的影响, 当样品被加热到 200 °C 时, LIBS 信号强度和光谱的宽度增加了。Hanson 等<sup>[24]</sup>观察了盐温和相态对 LIBS 光谱的影响, 发现 Ce 和 Mn 的谱线强度随盐样温度的变化而变化, 其中相态转变温度下的信号强度最高, 其次是固体样品。Wang 等<sup>[25]</sup>研究了不同样品温度下飞秒激光诱导玻璃等离子体的影响, 结果显示随着温度的上升, 等离子体光谱强度得到了明显提高。Eschlböck-Fuchs 等<sup>[26]</sup>测量了不同样品温度下激光诱导铝合金、硅片和冶金渣等离子体的羽流膨胀动力学和光发射光谱, 高温样品能导致等离子体羽尺寸增大和更强的光谱辐射。Liu 等<sup>[27]</sup>测量了不同温度下激光诱导半导体的等离子体光谱, 发现升高靶温度能提高光谱线的强度。他们也测量了靶温度对等离子体羽的影响<sup>[28]</sup>, 结果显示随着温度的上升, 等离子体羽的尺寸明显变大。这些研究结果表明, 升高样品温度能加强激光与靶材的耦合, 改变激光诱导等离子体羽的膨胀动力学过程。

众所周知, 许多实验参数能影响激光诱导等离子体的光谱特点。一些已经公布的结果表明 LIBS 的光谱辐射与激光参数有关(激光波长、脉冲宽度和强度), 同时, LIBS 也依赖于激光聚焦的光斑大小和样品表面与聚焦透镜的距离。不同距离下的等离子羽和激光空间能量分布之间的相互作用不同, 这个距离对等离子体羽的膨胀动力学和光辐射有重要的影响<sup>[30–37]</sup>。因此, 许多学者研究了透镜与样品之间距离对 LIBS 的影响。早在 1996 年, Multari 等<sup>[30]</sup>利用球面和柱面透镜研究了大气环境中透镜到样品表面距离对激光诱导等离子体的影响, 他们发现原子辐射光谱、电子温度和烧蚀质量高度依赖

于透镜到样品表面的距离。Aguilera 和 Aragón<sup>[31]</sup>用一个红外纳秒激光在不同的聚焦距离下烧蚀 Fe-Ni 样品, 不同距离下产生的等离子体温度和电子密度是不同的。Chen 等<sup>[32]</sup>实验研究了纳秒激光对 Zn 靶的损伤以及透镜到样品的距离的影响, 随着到焦点距离(从 103—111 mm)的减小, 损伤面积明显减小而烧蚀深度逐渐增大。Kasperczuk 等<sup>[33]</sup>探索了等离子体喷射的形成机制, 结果显示聚焦位置对等离子体喷射的形成条件有重要的影响。Guo 等<sup>[34]</sup>通过光发射光谱研究了空间约束下靶表面到焦点距离对激光诱导等离子体的影响。Zhang 等<sup>[35]</sup>报道了聚焦透镜到样品表面距离对等离子体膨胀动力学过程的影响。刘月华等<sup>[36]</sup>采用高功率抽运调 Q 激光器分别在真空和空气中烧蚀 Ti-Al 合金靶材激发等离子体, 研究了在不同气体压强下透镜到靶材的距离对等离子体参数的影响机理。Li 等<sup>[37]</sup>利用快速摄影技术研究了空气中不同光斑尺寸对激光诱导等离子体羽的影响, 在样品表面距离焦点较近时观察到了等离子体羽的流状结构, 在距离较远时观察到了半球形结构。

根据以上讨论, 改变样品到聚焦透镜的距离和升高样品温度都能改变激光与样品之间的能量耦合, 然而, 直接研究升高样品温度下不同样品到聚焦透镜的距离对 LIBS 光谱强度影响的工作很少。本文研究了不同样品温度下聚焦透镜到样品表面距离对 LIBS 的影响, 选择黄铜靶作为测试样品。探测的光谱线为 Cu (I) 510.55 nm [ $3d^{10}4p^1(^2P_{3/2})-3d^94s^2(^2D_{5/2})$ ], Cu (I) 515.32 nm [ $3d^{10}4p^1(^2D_{3/2})-3d^{10}4p^1(^2P_{1/2})$ ], Cu (I) 521.82 nm [ $3d^{10}4p^1(^2D_{3/2})-3d^{10}4p^1(^2P_{3/2})$ ]。同时, 在局域热平衡近似下, 计算了不同样品温度下的等离子体温度和电子密度随着聚焦透镜到样品表面之间距离的变化。

## 2 实验装置

不同样品温度下聚焦透镜到样品表面距离对 LIBS 影响的实验装置如图 1(a) 所示。用于激发等离子体的激光光源是一个 Nd:YAG 激光器 (Continuum, Surelite III), 激光波长为 1064 nm, 重复频率为 10 Hz, 脉冲宽度为 10 ns。通过一个焦距 200 mm 的平凸透镜聚焦激光脉冲到样品表面, 样品为黄铜, 激光脉冲垂直于样品表面。聚焦透镜被安装在一个电动位移台 (Zolix) 来改变聚焦透镜

到样品表面的距离,如图 1(b) 所示. 我们对入射靶面的激光进行了准直, 反复地移动安装聚焦透镜电动位移台, 调节聚焦透镜前面的两个反射镜, 确保入射脉冲在靶面的位置不变. 当这个距离为 200 mm 时, 表面激光焦点离样品表面的距离为 0 mm. 另外, 样品通过导热硅脂被紧紧地粘贴在一个加热台上, 这个加热台主要由热电偶和加热电阻组成. 为了避免过度烧蚀样品, 样品和加热台被安装在一个由计算机控制的三维电动位移台 (Thorlabs, PT3/ZSM) 上, 用来提供未烧蚀的靶. 激光诱导产生的等离子体辐射通过一个直径 50 mm、焦距 75 mm 的平凸透镜进行收集, 并聚焦到一根光纤束里. 这条光纤被耦合到一台光谱仪 (Spectra Pro 500, PI Acton) 上, 实验过程中使用的光栅为 1200 line/mm. 光谱仪离散的光通过一个增强型电荷耦合相机 (ICCD, PI-MAX4, Princeton Instruments, 1024 × 1024 像素) 进行探测. ICCD 通过一个光电二极管进行触发, 为了降低连续谱并提高信号强度, ICCD 的门延迟设置为 1 μs、门宽设置为 20 μs, ICCD 获得的数据被记录到一台计算机. 每个光谱数据是 50 个激光脉冲的平均值, 整个实验在大气环境中进行.

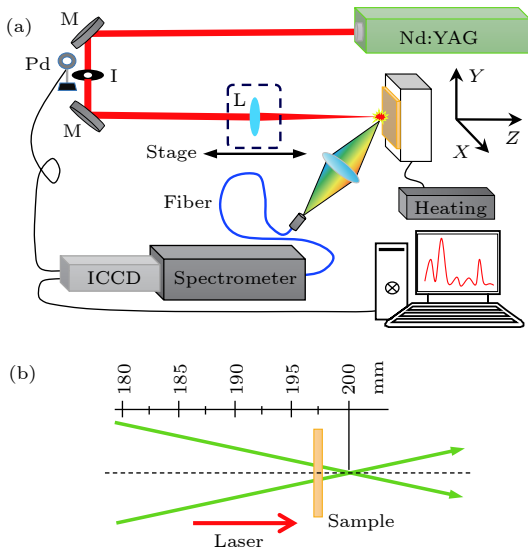


图 1 不同样品温度下聚焦透镜到样品表面距离对 LIBS 影响的实验装置示意图  
 Fig. 1. Experimental setup for the influence of the distance between focusing lens and sample surface on LIBS under different sample temperatures.

### 3 结果与讨论

首先了解升高样品温度对 LIBS 光谱强度的

影响. 如图 2 所示, 激光的能量为 26 mJ, 聚焦透镜到样品表面的距离为 190 mm, 样品温度范围为 25 °C 到 270 °C. 从图 2 可以观察到三条 Cu (I) 线, 波长分别为 510.55, 515.23 和 521.82 nm. 随着样品温度的升高, 光谱强度逐渐增强, 这表明升高样品温度能有效地改善 LIBS 光谱的辐射强度. 在 200 °C 时, 光谱强度达到了最大值. 继续升高样品温度, 光谱强度减弱. 光谱随温度的变化类似于增加激光能量, 随着激光能量的增加, 光谱出现饱和现象, 该现象归因于等离子体屏蔽效应 [38–41]. 当一束激光脉冲照射靶材表面, 激光脉冲前沿将激发靶材产生高温、高密度的等离子体, 随后等离子体迅速膨胀. 在膨胀的过程中, 等离子体将继续吸收激光脉冲的能量. 最终, 快速膨胀的等离子体将阻止脉冲后沿的激光到达样品表面, 形成等离子体屏蔽效应. 例如, Haq 等 [42] 研究了激光诱导镁等离子体光谱强度随着激光能量的变化, 结果表明, 随着激光能量的增加, 信号强度出现饱和, 并归因于等离

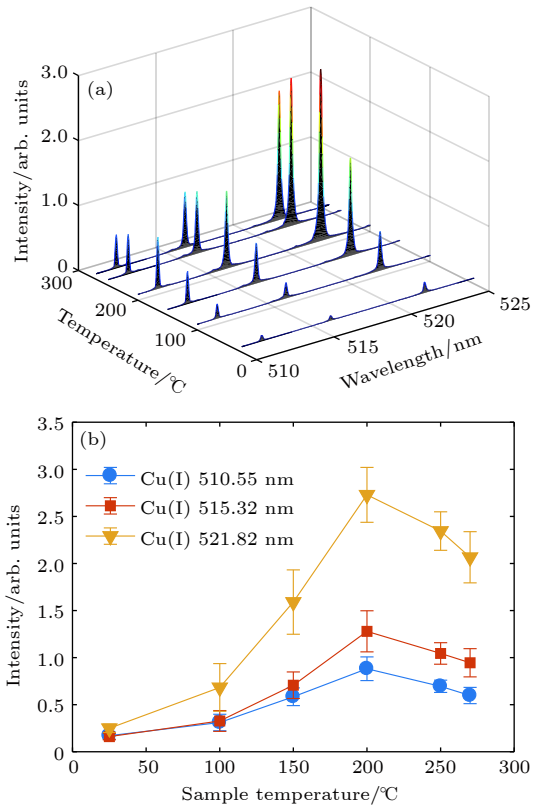


图 2 不同温度下 LIBS 辐射强度的比较, 其中图 (b) 来自于图 (a), 聚焦透镜到样品表面的距离为 190 mm、激光能量为 26 mJ

Fig. 2. Comparison of spectral lines of LIBS under different sample temperatures. Panel (b) is from panel (a). The distance between focusing lens and sample surface is 190 mm. Laser energy is 26 mJ.

子体屏蔽效应. 另外, 升高样品温度能增强激光与样品之间的能量耦合 [20,22,26,43,44], 相对于较低温度, 高温下的样品将吸收更多的激光能量. 因为随着样品温度的升高, 相当于增加激光能量. 所以, 当样品温度升高到 200 °C 时, 出现强的等离子体屏蔽, 同时光谱强度达到了最大值.

显然, 等离子体辐射的光谱对初始的样品温度是非常敏感的. 同时, 聚焦透镜到样品表面的距离也能有效地影响光谱强度的变化. 通过移动聚焦透镜探测了不同样品温度下光谱强度的变化. 图 3 给出了 100 和 200 °C 时等离子体光谱随着波长和聚焦透镜到样品表面距离的分布, 激光能量为 26 mJ. 可以看出在 510—525 nm 波长范围内有较强的发射光谱, 能够明显观察到光谱的距离范围大约为 30 mm. 高温样品的光谱强度明显高于低温样品的光谱强度, 同时, 对于不同的样品温度, 光谱强度随着距离的变化也是不同的. 在 100 °C 时, 光谱强度随着距离的增加而增加; 而对于 200 °C 的样品温度, 随着距离的增加, 光谱强度先增加而后降低.

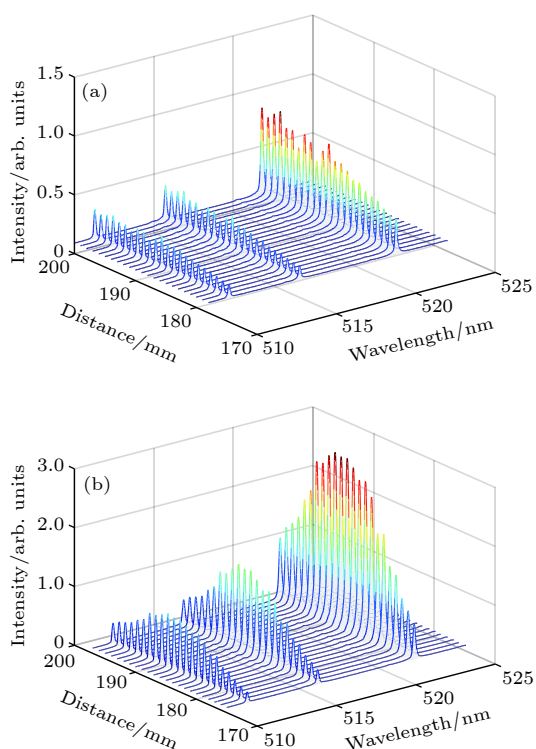


图 3 不同温度下等离子体光谱随着波长和聚焦透镜到样品表面距离的分布 (激光能量为 26 mJ) (a) 样品温度为 100 °C; (b) 样品温度为 200 °C

Fig. 3. Distribution of optical emission with the wavelength and the distance between focusing lens and sample surface under 100 °C (a) and 200 °C (b) sample temperatures. Laser energy is 26 mJ.

实际上, 实验过程中的激光能量是不变的, 聚焦透镜与焦点之间距离的改变等价于激光能量密度的改变. 换句话说, 当移动聚焦透镜时, 相当于改变激光照射到样品表面光斑的尺寸. 在本实验中, 当透镜到样品表面距离增加时, 光斑直径变小; 当距离减小时, 光斑直径增大. 另外, 在焦点附近 (大约 200 mm 的距离) 200 °C 的样品温度时, 光谱辐射并不是最强的. 因此, 不同样品温度下的激光诱导等离子体强烈地依赖于聚焦透镜到样品表面的距离.

为了详细了解不同样品温度下聚焦透镜到样品表面距离对光谱强度的影响, 图 4 给出了 Cu (I) 510.55 nm 和 Cu (I) 521.82 nm 光谱峰强度的变化. 总体上来看, 升高样品温度能明显地提高 LIBS 的光谱强度. 这是由于样品温度增加, 样品的反射率降低 [26], 样品吸收更多的激光能量, 将产生更强辐射的等离子体. 对于较低温度的样品 (25 和 100 °C), 随着聚焦距离的增加, 样品表面逐渐接近焦点位置, 等离子体光谱的辐射强度逐渐增加. 这是由于在该过程中, 光斑尺寸逐渐变小, 激光的能量密度增加, 产生更强的等离子体. 当样品温度增加到 150 °C 时, 随着聚焦透镜到样品表面距离的增加, 光谱强度出现先增加而后降低的变化. 如前所述, 在距离增加的过程中, 光斑尺寸变得越来越小, 激光能量密度逐渐变大, 这个过程伴随等离子体屏蔽效应的加强. 在等离子体最初形成的过程中, 靶吸收激光能量而不会被等离子体羽的膨胀限制. 当光谱强度达到最大值时, 意味着出现更强的等离子体屏蔽效应, 随着距离的继续增加, 等离子体屏蔽效应变得更加明显, 并导致烧蚀质量的降低. 最终, 激光能量与靶材之间的能量耦合也变弱, 产生等离子体的辐射强度也降低了. 因此, 随着距离增加而光谱强度减弱归因于等离子体屏蔽效应的加强. 在样品为 200, 250 和 270 °C 时, 也观察到了类似的变化趋势. 另一个值得注意的现象是当温度增加 200 °C 时, 改变透镜到样品表面的距离获得的光谱辐射的最优化值达到了最大, 继续升高样品温度 (250 和 270 °C), 改变透镜到样品表面的距离获得的光谱辐射的最优化值与样品温度为 200 °C 时的光谱辐射的最优化值几乎相等, 同时, 三个样品温度下的光谱随着距离的变化, 相当于升高样品温度后整体向左移动. 对于 200, 250 和 270 °C, 光谱强度最大值的位置分别为 181, 183 和 187 mm. 因为

样品温度的升高将吸收更多激光能量, 所以随着距离的增加, 较高温度 (270 °C) 下在 181 mm 处的激光能量密度几乎等于较低样品温度 (200 °C) 在 187 mm 处样品吸收激光能量的密度. 这种情况下, 在样品温度较高时, 随着聚焦透镜到样品表面距离的增加, 更早地出现等离子体屏蔽的情况. 当出现等离子体屏蔽效应后, 光谱的辐射强度开始下降. 从上述分析可以看出, 在接近焦点位置附近 (图 4 中 195 mm 到 200 mm 的距离), 随着样品温度的升高, 由于等离子体的屏蔽效应, 可能使得 LIBS 光谱的强度增加不明显, 还可能出现如图 2 中所示的温度升高光谱强度降低的情况发生, 这个现象非常值得注意.

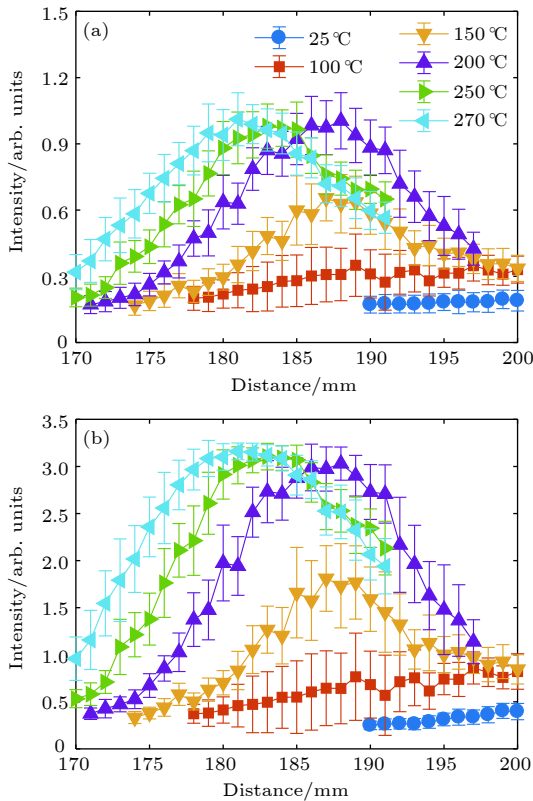


图 4 不同样品温度下 Cu (I) 510.55 nm (a) 和 Cu (I) 521.82 nm (b) 光谱峰强度随着聚焦透镜到样品表面距离的变化 (激光能量为 26 mJ)  
 Fig. 4. Evolution of spectral peak intensities at Cu (I) 510.55 nm (a) and Cu (I) 521.82 nm (b) with the distance between focusing lens and sample surface under different sample temperatures. Laser energy is 26 mJ.

等离子体温度和电子密度是等离子体中两个重要的参数, 知道这两个参数更有助于理解等离子体的变化过程. 接下来计算等离子体温度和电子密度在不同样品温度下随着聚焦透镜到样品表面距

离的变化. 在局域热平衡近似下<sup>[45]</sup>, 等离子体温度能通过 Boltzmann 图获得, 方程如下<sup>[46-48]</sup>:

$$\ln \left( \frac{\lambda I_{ki}}{g_k A_{ki}} \right) = -\frac{E_k}{k_B T} + C, \quad (1)$$

这里,  $I_{ki}$  为光谱的积分强度,  $\lambda$  为谱线的中心波长,  $g_k$  为谱线上能级的简并,  $A_{ki}$  为跃迁概率,  $E_k$  为谱线上能级能量,  $k_B$  为玻尔兹曼常数,  $T$  为等离子体温度,  $C$  是常数. 利用方程 (1) 左边  $\ln(\lambda I_{ki}/g_k A_{ki})$  和谱线上能级能量  $E_k$  进行线性拟合, 获得直线的斜率  $-1/k_B T$ , 从而求得等离子体温度  $T$ . 本文实验中选取用于计算等离子体温度的谱线分别为 Cu (I) 510.55 nm, Cu (I) 515.32 nm 和 Cu (I) 521.82 nm, 对应的这些谱线的物理参数如表 1 所列, 参数信息来源于 NIST<sup>[49]</sup>.

表 1 用于计算等离子体温度的光谱线参数表  
 Table 1. Spectral parameters of Cu (I) for calculating plasma temperature.

波长/nm	$E_k/\text{eV}$	$g$	$A/10^8 \text{ s}^{-1}$
510.55	3.817	6	0.020(5)
515.32	6.191	2	0.60(15)
521.82	6.192	4	0.75(9)

图 5 为典型的 Boltzmann 图, 样品的温度为 200 °C, 聚焦透镜到样品表面的距离分别为 175, 180, 185 和 195 mm. 可以看出, 不同实验条件下 Boltzmann 图的斜率和截距都不同, 斜率对应  $-1/k_B T$ , 截距对应  $C$ . 因此, 仅仅根据斜率就可以计算出等离子体温度.

图 6 显示了不同样品温度下等离子体温度随着聚焦透镜到样品表面距离的变化, 样品温度分别为 25, 100, 150, 200, 250 和 270 °C, 激光能量为 26 mJ. 整体上, 对于不同的聚焦透镜到样品表面的距离, 随着样品温度的升高, 等离子体温度将变得更高. 对比不同温度的样品, 在 25 和 100 °C 时, 随着距离的增加, 激光能量密度变大, 等离子体的温度逐渐升高, 这与光谱强度的变化一致. 温度升高到 150 °C, 等离子体温度均出现先升高而后降低的变化, 更高的温度 200, 250 和 270 °C 也出现了同样的变化趋势. 在该变化趋势过程中, 只改变聚焦透镜到样品表面的距离, 其他的实验条件不变. 当距离较短时, 通过透镜会聚到样品表面的入射激光束的光斑尺寸较大, 以至于作用于样品表面的激光能量密度较低. 当样品越来越接近焦点时, 聚焦

透镜对激光的会聚作用逐渐加强, 光斑尺寸缩减, 激光能量密度增加, 对靶的烧蚀效率和电离效率也逐渐加强. 另外, 等离子体屏蔽效应也在缓慢地加强, 这使得在靶上方形成的等离子体吸收激光能量的增加. 因此, 等离子体温度增加. 对于等离子体温度降低的过程, 例如 200 °C 时, 当样品表面从 187 mm 移动到 197 mm 时, 等离子体温度从  $1.07 \times 10^4$  K 下降到  $0.95 \times 10^4$  K. 温度明显降低可归因于先前提到的等离子体屏蔽效应. 随着距离的增

加, 等离子体羽从半球形结构变成流状结构 [35,37], 这使得等离子体屏蔽效应变得越来越强, 并将消耗更多的入射激光的能量, 以至于到达样品表面的激光能量急剧减小, 同时靶的烧蚀效率也大大降低. 因此, 等离子体温度迅速降低 [50].

等离子体的电子密度通过谱线的半高宽  $\Delta\lambda_{1/2}$  来计算, 公式如下 [46–48]:

$$\Delta\lambda_{1/2} = 2\omega \frac{N_e}{10^{16}}, \quad (2)$$

这里,  $\omega$  为电子碰撞参数 [51],  $N_e$  为电子密度. 另外, 测量的谱线的半高全宽  $\Delta\lambda_{\text{measured}}$  还包括自然展宽  $\Delta\lambda_N$ 、多普勒展宽  $\Delta\lambda_D$  和仪器展宽  $\Delta\lambda_{\text{instrument}}$ , 即  $\Delta\lambda_{1/2} = \Delta\lambda_{\text{measured}} - \Delta\lambda_N - \Delta\lambda_D - \Delta\lambda_{\text{instrument}}$ . 选用三条谱线中最强的 Cu (I) 521.82 nm 来计算电子密度, 对应的  $\omega$  值为 0.22 nm [51].

图 7 给出了典型的光谱半高全宽 ( $\Delta\lambda_{\text{measured}}$ ) 拟合图, 样品的温度为 200 °C, 聚焦透镜到样品表面的距离分别为 175, 180, 185 和 195 mm. 可以看出实验数据与拟合数据符合得比较好. 为了更清楚地知道不同样品温度下电子密度随聚焦透镜到样品表面距离的变化关系, 绘制了相应的电子密度变化图, 如图 8 所示. 样品温度升高, 激光与靶材之间的能量耦合加强, 产生更高电子密度的等离子体.

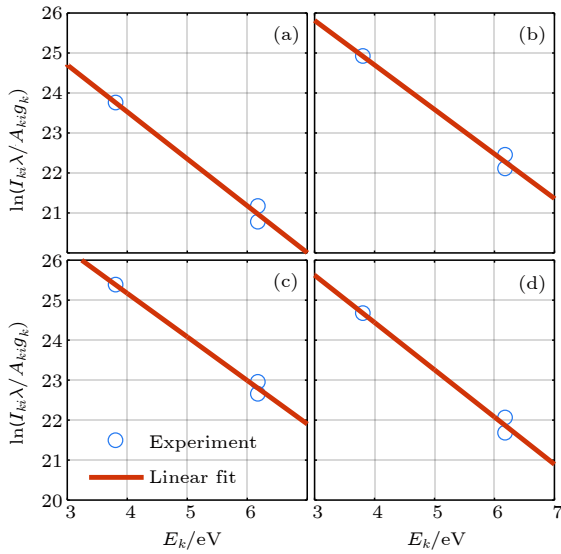


图 5 典型的 Boltzmann 图, 其中聚焦透镜到样品表面的距离分别为 (a) 175, (b) 180, (c) 185 和 (d) 195 mm; 样品温度为 200 °C

Fig. 5. Typical Boltzmann plots. The distances between focusing lens and sample surface are (a) 175, (b) 180, (c) 185 and (d) 195 mm. Sample temperature is 200 °C.

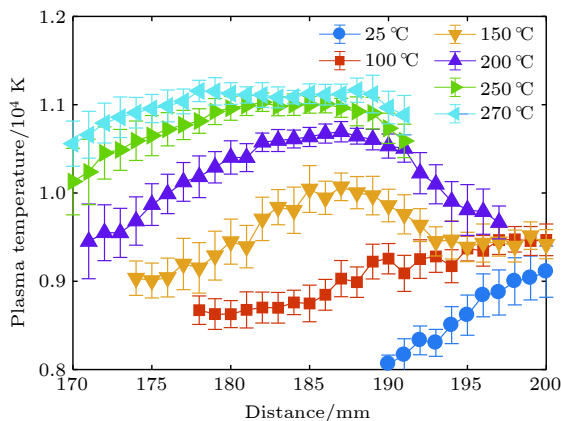


图 6 不同样品温度下等离子体温度随着聚焦透镜到样品表面距离的变化 (激光能量为 26 mJ)

Fig. 6. Evolution of plasma temperature with the distance between focusing lens and sample surface under different sample temperatures. Laser energy is 26 mJ.

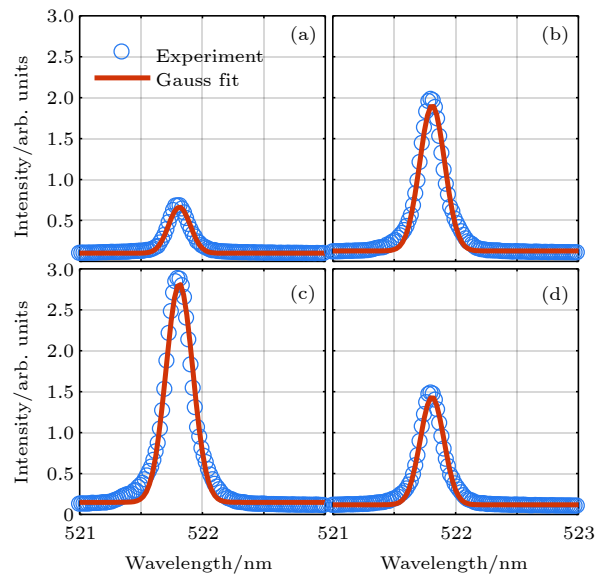


图 7 典型的谱线半高宽 ( $\Delta\lambda_{\text{measured}}$ ) 拟合图, 其中聚焦透镜到样品表面的距离分别为 (a) 175, (b) 180, (c) 185 和 (d) 195 mm; 样品温度为 200 °C

Fig. 7. Typical Gauss fitting ( $\Delta\lambda_{\text{measured}}$ ) for selected distances between focusing lens and sample surface under 200 °C sample temperature. The distances are (a) 175, (b) 180, (c) 185 and 195 mm (d).

对于较高样品温度的情况 (150, 200, 250 和 270 °C), 电子密度的变化趋势与等离子体温度的变化趋势几乎一致. 然而, 在 25 和 100 °C 时, 随着聚焦透镜到样品表面距离的增加, 电子密度的变化不同于等离子体温度的变化, 出现了先增加而后又降低的变化. 如前所述, 随着距离的增加, 伴随等离子体屏蔽效应的加强. 在电子密度达到最大值时, 脉冲前沿产生的等离子体将吸收后沿脉冲的激光能量, 等离子体在激光反方向上迅速膨胀, 等离子体羽形成流状结构<sup>[35,37]</sup>, 等离子体羽的迅速膨胀使得电子密度迅速降低, 因此, 在接近焦点附近时, 电子密度开始降低. 等离子体温度和电子密度的讨论, 使得我们更清楚地了解到不同样品温度下聚焦透镜到样品表面的距离对 LIBS 光谱强度的影响以及强度变化的物理机制.

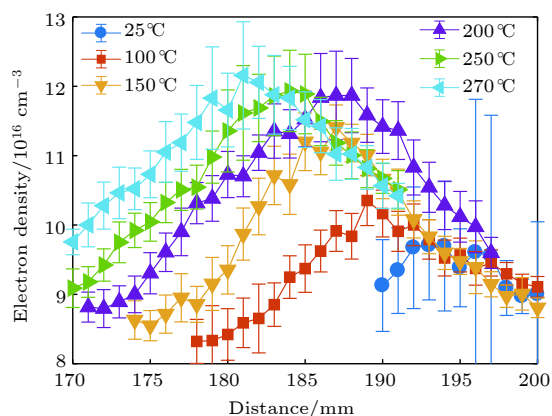


图 8 不同样品温度下电子密度随着聚焦透镜到样品表面距离的变化 (激光能量为 26 mJ)

Fig. 8. Evolution of electron density with the distance between focusing lens and sample surface under different sample temperatures. Laser energy is 26 mJ.

## 4 结 论

研究了不同温度下聚焦透镜到样品表面的距离对 LIBS 光谱强度的影响. 总体上, 升高样品温度能提高 LIBS 光谱的辐射强度. 随着聚焦透镜到样品表面距离的增加, 在 25 和 100 °C 时, 光谱强度逐渐增加; 而在更高温度 (150, 200, 250 和 270 °C) 时, 光谱强度出现先升高而后又降低的变化, 这种变化归因于等离子体屏蔽效应. 在等离子体屏蔽效应的作用下, 在样品接近焦点附近时, 随着样品温度的升高, 使得 LIBS 光谱强度的增加不明显, 还可能出现样品温度升高而光谱强度降低的情况, 这

些现象在升高样品温度来提高 LIBS 光谱强度中是非常值得注意的问题. 另外, 还计算了等离子体温度和电子密度, 发现等离子体温度和电子密度的变化与光谱强度的变化几乎一致, 更高样品温度下产生的等离子体温度和电子密度更高.

## 参考文献

- [1] Wang Z, Dong F, Zhou W 2015 *Plasma Sci. Technol.* **17** 617
- [2] Wang Z, Ting B, Yuan, Z Y, Zhou W D, Lu J D, Ding H B, Zeng X Y 2014 *Front. Phys.* **9** 419
- [3] Wang Z Z, Deguchi Y, Zhang Z Z, Wang Z, Zeng X Y, Yan J J 2016 *Front. Phys.* **11** 114213
- [4] Zhu G Z, Guo L B, Hao Z Q, Li C M, Shen M, Li K H, Li X Y, Liu J G, Zeng X Y, Lu Y F 2015 *Acta Phys. Sin.* **64** 024212 (in Chinese) [朱光正, 郭连波, 郝中骥, 李常茂, 沈萌, 李阔湖, 李祥友, 刘建国, 曾晓雁, 陆永枫 2015 *物理学报* **64** 024212]
- [5] Wang Q Q, Liu K, Zhao H, Ge C H, Huang Z W 2012 *Front. Phys.* **7** 701
- [6] Hu L, Zhao N, Liu W, Meng D, Fang L, Wang Y, Yu Y, Ma M 2015 *Plasma Sci. Technol.* **17** 699
- [7] Wang Y, Chen A, Li S, Sui L, Liu D, Tian D, Jiang Y, Jin M 2016 *J. Anal. Atom. Spectrom.* **31** 497
- [8] Li Y, Tian D, Ding Y, Yang G, Liu K, Wang C, Han X 2018 *Appl. Spectrosc. Rev.* **53** 1
- [9] Li X, Wang Z, Fu Y, Li Z, Ni W 2015 *Plasma Sci. Technol.* **17** 621
- [10] Wang X, Chen A, Sui L, Wang Y, Zhang D, Li S, Jiang Y, Jin M 2018 *J. Anal. Atom. Spectrom.* **33** 168
- [11] Wu Y Q, Liu J, Mo X X, Sun T, Liu M H 2017 *Acta Phys. Sin.* **66** 054206 (in Chinese) [吴宜青, 刘津, 莫欣欣, 孙通, 刘木华 2017 *物理学报* **66** 054206]
- [12] Lu Y, Zhou Y S, Qiu W, Huang X, Liu L, Jiang L, Silvain J F, Lu Y F 2015 *J. Anal. Atom. Spectrom.* **30** 2303
- [13] Li B H, Gao X, Song C, Lin J Q 2016 *Acta Phys. Sin.* **65** 235201 (in Chinese) [李百慧, 高勋, 宋超, 林景全 2016 *物理学报* **65** 235201]
- [14] Li C M, Guo L B, He X N, Hao Z Q, Li X Y, Shen M, Zeng X Y, Lu Y F 2014 *J. Anal. Atom. Spectrom.* **29** 638
- [15] Wang Q, Chen A, Zhang D, Wang Y, Sui L, Li S, Jiang Y, Jin M 2018 *Phys. Plasmas* **25** 073301
- [16] Zhou W, Su X, Qian H, Li K, Li X, Yu Y, Ren Z 2013 *J. Anal. Atom. Spectrom.* **28** 702
- [17] Liu L, Huang X, Li S, Lu Y, Chen K, Jiang L, Silvain J F, Lu Y F 2015 *Opt. Express* **23** 15047
- [18] de Giacomo A, Gaudiuso R, Koral C, Dell'Aglio M, de Pascale O 2013 *Anal. Chem.* **85** 10180
- [19] Li C, Hao Z, Zou Z, Zhou R, Li J, Guo L, Li X, Lu Y, Zeng X 2016 *Opt. Express* **24** 7850
- [20] Tavassoli S H, Gragossian A 2009 *Opt. Laser Technol.* **41** 481
- [21] Sanginés R, Sobral H, Alvarez-Zauco E 2012 *Appl. Phys. B* **108** 867
- [22] Sanginés R, Sobral H, Alvarez-Zauco E 2012 *Spectrochim. Acta B* **68** 40
- [23] Darbani S M R, Ghezelbash M, Majd A E, Soltanolkotabi M, Saghafifar H 2014 *J. Eur. Opt. Soc.-Rapid* **9** 14058
- [24] Hanson C, Phongikaroon S, Scott J R 2014 *Spectrochim. Acta B* **97** 79
- [25] Wang Y, Chen A, Jiang Y, Sui L, Wang X, Zhang D, Tian D,



- Li S, Jin M 2017 *Phys. Plasmas* **24** 013301
- [26] Eschlböck-Fuchs S, Haslinger M J, Hinterreiter A, Kolmhofer P, Huber N, Rössler R, Heitz J, Pedarnig J D 2013 *Spectrochim. Acta B* **87** 36
- [27] Liu Y, Tong Y, Li S, Wang Y, Chen A, Jin M 2016 *Chin. Opt. Lett.* **14** 123001
- [28] Liu Y, Tong Y, Wang Y, Zhang D, Li S, Jiang Y, Chen A, Jin M 2017 *Plasma Sci. Technol.* **19** 125501
- [29] Zhang D, Chen A, Wang Q, Wang Y, Qi H, Li S, Jiang Y, Jin M 2018 *Phys. Plasmas* **25** 083305
- [30] Multari R A, Foster L E, Cremers D A, Ferris M J 1996 *Appl. Spectrosc.* **50** 1483
- [31] Aguilera J A, Aragón C 2008 *Spectrochim. Acta B* **63** 793
- [32] Chen M, Liu Y H, Liu X D, Zhao M W 2012 *Laser Phys. Lett.* **9** 730
- [33] Kasperczuk A, Pisarczyk T, Kalal M, Ullschmied J, Krousky E, Masek K, Pfeifer M, Rohlena K, Skala J, Pisarczyk P 2009 *Appl. Phys. Lett.* **94** 081501
- [34] Guo J, Shao J, Wang T, Zheng C, Chen A, Jin M 2017 *J. Anal. Atom. Spectrom.* **32** 367
- [35] Zhang D, Chen A, Wang X, Wang Y, Sui L, Ke D, Li S, Jiang Y, Jin M 2018 *Spectrochim. Acta B* **143** 71
- [36] Liu Y H, Chen M, Liu X D, Cui Q Q, Zhao M W 2013 *Acta Phys. Sin.* **62** 025203 (in Chinese) [刘月华, 陈明, 刘向东, 崔清强, 赵明文 2013 物理学报 **62** 025203]
- [37] Li X, Wei W, Wu J, Jia S, Qiu A 2013 *J. Appl. Phys.* **113** 243304
- [38] Amin S, Bashir S, Anjum S, Akram M, Hayat A, Waheed S, Iftikhar H, Dawood A, Mahmood K 2017 *Phys. Plasmas* **24** 083112
- [39] Wang Y, Chen A, Wang Q, Sui L, Ke D, Cao S, Li S, Jiang Y, Jin M 2018 *Phys. Plasmas* **25** 033302
- [40] Tian Y, Xue B, Song J, Lu Y, Li Y, Zheng R 2017 *Appl. Phys. Express* **10** 072401
- [41] Wang Y, Chen A, Li S, Ke D, Wang X, Zhang D, Jiang Y, Jin M 2017 *AIP Adv.* **7** 095204
- [42] Haq S U, Ahmat L, Muntaz M, Shakeel H, Mahmood S, Nadeem A 2015 *Phys. Plasmas* **22** 083504
- [43] Guo J, Wang T, Shao J, Chen A, Jin M 2018 *J. Anal. Atom. Spectrom.* **33** 2116
- [44] Thorstensen J, Foss S E 2012 *J. Appl. Phys.* **112** 103514
- [45] Zhao F G, Zhang Y, Zhang L, Yin W B, Dong L, Ma W G, Xiao L T, Jia S T 2018 *Acta Phys. Sin.* **67** 165201 (in Chinese) [赵法刚, 张宇, 张雷, 尹王保, 董磊, 马维光, 肖连团, 贾锁堂 2018 物理学报 **67** 165201]
- [46] Yang D P, Li S Y, Jiang Y F, Chen A M, Jin M X 2017 *Acta Phys. Sin.* **66** 115201 (in Chinese) [杨大鹏, 李苏宇, 姜远飞, 陈安民, 金明星 2017 物理学报 **66** 115201]
- [47] Wang Q, Chen A, Wang Y, Sui L, Li S, Jin M 2018 *J. Anal. Atom. Spectrom.* **33** 1154
- [48] Chen A, Jiang Y, Wang T, Shao J, Jin M 2015 *Phys. Plasmas* **22** 033301
- [49] NIST Atomic Spectra Database [http://physics.nist.gov/PhysRefData/ASD/lines\\_form.html](http://physics.nist.gov/PhysRefData/ASD/lines_form.html)
- [50] Wang J, Fu H, Ni Z, Chen X, He W, Dong F 2015 *Plasma Sci. Technol.* **17** 649
- [51] Konjević N, Wiese W 1990 *J. Phys. Chem. Ref. Data* **19** 1307

# Influence of distance between focusing lens and sample surface on laser-induced breakdown spectroscopy of brass at different sample temperatures\*

Yang Xue<sup>1)</sup> Li Su-Yu<sup>2)3)</sup> Jiang Yuan-Fei<sup>2)3)</sup> Chen An-Min<sup>2)3)†</sup> Jin Ming-Xing<sup>2)3)‡</sup>

1) (*College of Science, Jilin Institute of Chemical Technology, Jilin 132022, China*)

2) (*Institute of Atomic and Molecular Physics, Jilin University, Changchun 130012, China*)

3) (*Jilin Provincial Key Laboratory of Applied Atomic and Molecular Spectroscopy (Jilin University), Changchun 130012, China*)

( Received 14 December 2018; revised manuscript received 6 January 2019 )

## Abstract

From previously published results of laser-induced breakdown spectroscopy, one can know that the change in the distance from the sample surface to the focusing lens has an important influence on the interaction between the sample and the laser, and increasing the sample temperature can enhance the coupling between the laser and the sample. However, almost no work has devoted to directly studying the influence of the distance between focusing lens and sample surface on the spectral intensity of laser-induced breakdown spectroscopy under different sample temperatures. In this paper, we investigate experimentally this subject. An Nd:YAG laser is used to excite the sample to produce the plasma. The detected spectral lines are Cu (I) 510.55 nm, Cu (I) 515.32 nm, and Cu (I) 521.82 nm. The focal length of focusing lens is 200 mm. The distance between focusing lens and sample surface ranges from 170 mm to 200 mm. The sample is heated from 25 °C to 270 °C, and the laser energy is 26 mJ. In general, the spectral intensity of laser-induced breakdown spectroscopy can be effectively enhanced by increasing the sample temperature. At the sample temperatures of 25 °C and 100 °C, the spectral intensity increases monotonically with the increase of the distance between focusing lens and sample surface; at higher sample temperatures (150, 200, 250, and 270 °C), the spectral intensity first increases and then decreases with the increase of the distance between focusing lens and sample surface. In addition, near the focal point, with the increase of sample temperature, the increase of the spectral intensity is not obvious, and the spectral intensity decreases with the increase of sample temperature, which is particularly noteworthy in improving the spectral intensity of laser-induced breakdown spectroscopy by increasing sample temperature. In order to further understand the influences of these two conditions on laser-induced breakdown spectroscopy, we also calculate the plasma temperature and electron density, and find that the variation of plasma temperature and electron density are almost the same as that of spectral intensity. The plasma temperature and electron density at higher sample temperature are higher.

**Keywords:** laser-induced breakdown spectroscopy, sample temperature, distance between focusing lens and sample surface, plasma temperature and electron density

**PACS:** 52.50.Lp, 52.38.Mf, 32.30.Jc, 42.62.Fi

**DOI:** 10.7498/aps.68.20182198

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11674128, 11674124) and the Jilin Province Scientific and Technological Development Program, China (Grant No. 20170101063JC).

† Corresponding author. E-mail: [amchen@jlu.edu.cn](mailto:amchen@jlu.edu.cn)

‡ Corresponding author. E-mail: [mxjin@jlu.edu.cn](mailto:mxjin@jlu.edu.cn)