



## مطالعه دینامیک پلاسمای ضخیم اپتیکی با رویکردی نوین، بر مبنای روابط مناسب تئوری و استفاده از چیدمان‌های تجربی در تکنیک اسپکتروسکوپی فروشکست القاییده لیزری

فاطمه رضائی و سید حسن توسلی

تهران، اوین، دانشگاه شهید بهشتی، پژوهشکده لیزر و پلاسما

چکیده - این مقاله، روش جدیدی جهت مطالعه پلاسمای ضخیم آلومینیوم در شرایط  $LTE^1$  معرفی می‌نماید. روش ارائه شده بطور بسیار ساده و دقیقی پارامترهای پلاسما اعم از دمای پلاسما، چگالی ذرات آن، انتشار موج شوک و نیز تابع ابزاری سیستم آزمایشگاهی را از داده‌های خطوط طیفی خودجذب شده محاسبه می‌نماید. آزمایش  $LIBS^2$  بر روی نمونه آلومینیومی در هوای اتمسفریک با ترکیب دو تکنیک اسپکتروسکوپی و سایه‌نگاری<sup>۳</sup> انجام شده است. بایستی خاطرنشان کرد که در محاسبات این تحقیق، پارامترهای پلاسما زمانی بطور دقیق برآورد می‌شوند که چگالی الکترون، طول پلاسما و شدت سه خط طیفی از یک عنصر از آزمایش بدست آمده باشند.

کلید واژه - سایه‌نگاری، پلاسمای القاییده لیزری و خودجذب.

## Studying the dynamic of optical thick plasma based on suitable theoretical equations and using experimental set ups in laser induced breakdown spectroscopy technique

Fatemeh Rezaei, Seyyed Hassan Tavassoli

Tehran, Evin, Shahid Beheshti University, Laser and Plasma Research Institute

Abstract- In this paper, a new method for studying of aluminum thick plasma in LTE condition is introduced. The presented method calculates very simple and accurate the plasma parameters such as temperature, particle densities, shock wave expansion and instrumental function of system from the data of the spectral self absorbed lines. The LIBS experiment is done on aluminum sample at atmospheric air by combination of two techniques of spectroscopy and shadowgraphy. It should be mentioned that in this calculation, the plasma parameters can be evaluated exactly when electron density, plasma length and three intensities of spectral lines from specific element were obtained from experiment.

Keywords: Shadowgraphy, Laser induced breakdown spectroscopy, Self absorption.

<sup>1</sup> Local thermodynamic equilibrium

<sup>2</sup> Laser Induced Breakdown Spectroscopy

<sup>3</sup> Shadowgraphy

## ۱- مقدمه

$$SA = \frac{(1 - e^{-kl})}{kl} \quad (۳)$$

در معادله بالا،  $k$  ضریب جذب در سیستم دو تراز مد نظر می-باشد که دربرگیرنده سهم‌های جذب توسط اتم‌های تراز پایینی و گسیل القایی اتم‌های تراز بالایی تحت اثر تابش می‌باشد [۳]:

$$k = \frac{g_u A_{ul} N_{Al} \lambda_0^2}{8\pi Z} e^{-\frac{E_l}{k_B T}} (1 - e^{-\frac{h\nu_0}{k_B T}}) L(\nu, \nu_0) \quad (۴)$$

در معادله فوق  $l$  طول پلاسما می‌باشد. با جاگذاری معادلات (۲)، (۳) و (۴) در معادله (۱) شدت خطوط طیفی در پلاسما ضمیم از رابطه زیر تخمین زده می‌شود:

$$I_{thick} = \frac{(1 - e^{-kl})}{(1 - e^{-\frac{hc}{\lambda_0 k_B T}})} \frac{C 8\pi}{\lambda_0^2} e^{-\frac{(E_u - E_l)}{k_B T}} \quad (۵)$$

کمیت  $Z$  تابع پارش ذرات پلاسما می‌باشد که طبق مراجع [۴، ۵] از مدل دو و سه تراز محاسبه می‌گردد. بمنظور محاسبه پارامترهای چگالی ذرات و دمای پلاسما و نیز تابع ابزاری سیستم، شدت خطوط طیفی آلومینیوم در پلاسما ضمیم اپتیکی برای سه خط دلخواه از یک عنصر بصورت زیر درنظر گرفته می‌شود. در واقع از جفت‌شدگی سه معادله مشابه با معادله (۶) برای سه خط متفاوت طیفی، پارامترها محاسبه می‌گردند.

$$I_{thick-i} - \frac{(1 - e^{-k_i l})}{(1 - e^{-\frac{hc}{\lambda_{0i} k_B T}})} \frac{C 8\pi}{\lambda_{0i}^2} e^{-\frac{(E_{ui} - E_{li})}{k_B T}} = 0 \quad (۶)$$

با تقسیم نمودن شدت دو به دوی سه خط فوق و نیز انجام محاسبات عددی، پارامترهای مزبور بطور کمی برآورد می‌گردند. سایر پارامترهای ورودی معادله فوق نظیر طول پلاسما  $l$ ، از تکنیک سایه‌نگاری در هر لحظه بدست می‌آمده است. همچنین چگالی الکترونی از پهنای خط نیتروژن هوا در طول موج ۷۴۲.۳۶ nm، محاسبه گردیده است [۶]:

$$\Delta \lambda_{stark} = \frac{2\omega n_e}{10^{16}} \quad (۷)$$

$\omega$  پارامتر استارک مربوط به این خط از مرجع [۷] اتخاذ گردیده است. در این آزمایش، در انرژی لیزر ۵۰ mJ و در زمان تاخیری ۱  $\mu$ s، چگالی الکترون از مرتبه ۱۰<sup>۲۳</sup> m<sup>-3</sup> برآورد شده است.

## ۳- چیدمان تجربی

در این تحقیق، چیدمان تجربی‌ای که از دو تکنیک سایه‌نگاری و اسپکتروسکوپی LIBS جهت آنالیز پارامترهای پلاسما استفاده می‌کند، در شکل ۱ ارائه شده است. جهت تولید پلاسما از یک

بطور کلی اغلب روش‌های متداول در تکنیک LIBS، جهت محاسبه پارامترهای پلاسما، بر مبنای ارزیابی میزان گسیل از پلاسما نازک اپتیکی می‌باشد. به‌عنوان مثال تعیین چگالی الکترونی از پهنای استارک و همچنین اندازه‌گیری دما از نمودار بولتزمن و یا از نسبت دو خط بر اساس استفاده از خطوط نازک اپتیکی فرمول‌نویسی شده‌اند، در حالی‌که برای اغلب خطوط قوی طیف LIBS، پلاسما ضخیم محسوب می‌گردد. در این شرایط، بعلاوه پدیده خودجذبی و بدلیل برآورد غلطی از پهنای خطوط و شدت طیف‌ها، چگالی الکترونی و دمای پلاسما با مقادیر نادرستی محاسبه می‌گردند. در این تحقیق پارامترهای پلاسما و تابع ابزاری سیستم طی روش جدیدی با ترکیب چیدمان‌های اسپکتروسکوپی و سایه‌نگاری محاسبه گردیده‌اند.

## ۲- تئوری و معادلات ریاضی

بطور کلی شدت تابش طیفی در امتداد پروفایل خط در گذار بین دو تراز  $u$  و  $l$  از حاصلضرب شدت خط نازک خودجذب نشده در ضریب خودجذبی بدست می‌آید:

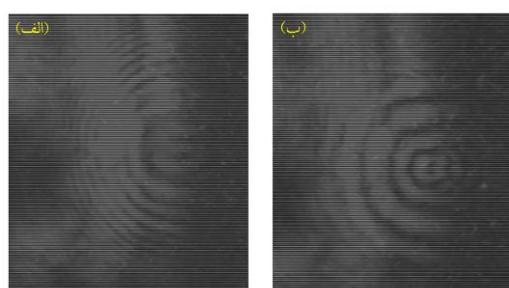
$$I_{thick} = SA \times I_{thin} \quad (۱)$$

در رابطه فوق،  $SA$  و  $I_{thin}$  به ترتیب ضریب خودجذبی و شدت تابش مربوط به خط نازک طیفی می‌باشند که شدت خط نازک بدون اثرات خودجذبی از معادله زیر محاسبه می‌گردد [۱]:

$$I_{thin}(\nu) = C \frac{g_u N_{Al} A_{ul} h\nu_0}{Z} e^{-\frac{E_u}{k_B T}} L(\nu, \nu_0) \quad (۲)$$

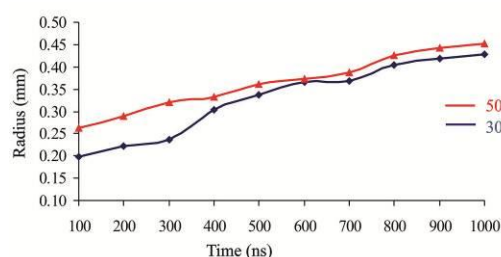
در این رابطه  $h$ ،  $A_{ul}$ ،  $N_{Al}$ ،  $\nu_0$ ،  $g_u$  و  $E_u$  به ترتیب ثابت پلانک، احتمال گذار بین تراز بالایی  $u$  و تراز پایینی  $l$ ، چگالی تعداد کل اتم‌ها، تبهگنی تراز بالا، فرکانس مرکزی گذار، انرژی تراز  $l$ ام و تابع پارش می‌باشند. در این معادله،  $L(\nu, \nu_0)$  پروفایل لورنتس بعلاوه اثر استارک می‌باشد که بدلیل حضور فراوان یون‌ها در پلاسما LIBS این پروفایل درنظر گرفته شده است. فاکتور تجربی  $C$  که تابع ابزاری سیستم آزمایشگاه می‌باشد، بازده اپتیکی سیستم جمع‌کننده نور اعم از اسپکترومتر، آشکارساز و نیز هندسه چیدمان را دربرمی‌گیرد. بعلاوه ضریب خودجذبی  $SA$  در معادله (۱) از نسبت شدت خط ضخیم اپتیکی به تابش خط نازک مربوط به خط مزبور، بدین صورت محاسبه می‌گردد [۲]:

در روش سایه‌نگاری، پرتو موازی پهنی از یک ناحیه اختلالی (در اینجا پلاسما) می‌گذرد. اگر اختلال مزبور، دارای ضریب شکست متغیری باشد، اشعه‌های نور عبوری از این ناحیه اختلالی به‌طور مجزایی شکست می‌یابند و از مسیرهای اصلی‌شان منحرف می‌شوند. این موضوع سبب می‌گردد که توزیع شدت بر روی پرده، به‌صورت سایه‌ای از تغییرات میدان ضریب شکست پلاسما نمایان شود. شکل ۲ تصاویری از امواج شوک ثبت شده در پلاسما را طی چیدمان سایه‌نگاری، توسط یک CCD معمولی، پس از کندگی هدف آلومینیومی در زمان‌های  $200\text{ ns}$  و  $1\text{ }\mu\text{s}$  نشان می‌دهد که به‌دنبال آن طول پلاسما محاسبه می‌گردد.



شکل ۲: تصاویری از پلاسمای اسکن شده در زمان‌های (الف)  $200\text{ ns}$  و (ب)  $1\text{ }\mu\text{s}$ .

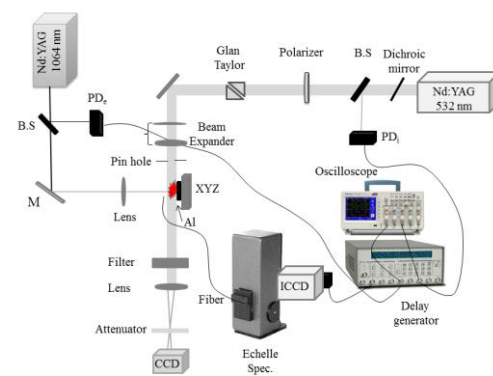
با در نظر گرفتن طول پلاسما از تصاویر مربوط به امواج شوک در هر لحظه زمانی، می‌توان تحولات زمانی ابعاد پلاسما را در راستای موازی با لیزر پمپ در انرژی‌های  $30\text{ mJ}$  و  $50\text{ mJ}$  از بخش سایه‌نگاری این چیدمان، در شکل ۳ ترسیم نمود.



شکل ۳: رفتار فضایی جبهه موج شوک بر حسب تاخیر زمانی بین پالس‌های پمپ و گمانه در انرژی‌های لیزر  $30\text{ mJ}$  و  $50\text{ mJ}$ .

سپس با در نظر گرفتن ابعاد پلاسما از چیدمان سایه‌نگاری و نیز ملاحظه نمودن رفتار زمانی شکل ۳، سرعت موج شوک در هر لحظه برآورد می‌گردد. از اینرو تحولات زمانی مربوط به سرعت پلاسما برای انرژی‌های لیزر  $30\text{ mJ}$  و  $50\text{ mJ}$  در شکل ۴ نشان داده شده است.

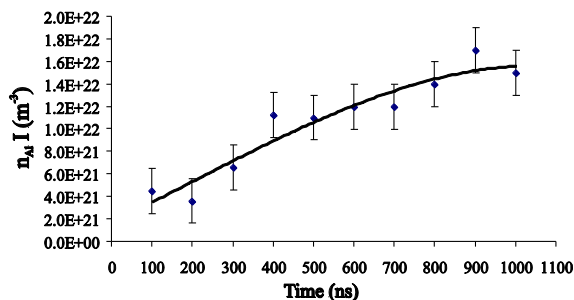
لیزر سوئیچ Q، Nd:YAG با طول موج  $1064\text{ nm}$ ، پهنای پالس  $10\text{ ns}$  و نرخ تکرار  $2\text{ Hz}$  به‌عنوان لیزر پمپ استفاده شده است. این لیزر بر روی نمونه استاندارد آلومینیوم  $1100$  واقع در هوای اتمسفر، توسط لنزی با فاصله کانونی  $18\text{ cm}$  متمرکز می‌گردد. انرژی لیزر بر روی نمونه دارای مقادیر  $30\text{ mJ}$ ،  $44\text{ mJ}$  و  $50\text{ mJ}$  می‌باشد که این انرژی توسط ژول‌متر در هر مرحله قبل از انجام آزمایش اندازه‌گیری می‌شود. با در نظر گرفتن قطر لکه لیزر در محل تابش نمونه، فلوئنس لیزر دارای مقادیری بین  $6.5 \times 10^4$  تا  $1.2 \times 10^5$  می‌باشد. لیزر گمانه که بمنظور درخشانی پلاسما استفاده می‌گردد، هارمونیک دوم Nd:YAG با طول موج  $532\text{ nm}$ ، طول پالس  $10\text{ ns}$  و آهنگ تکرار  $2\text{ Hz}$  می‌باشد. مطابق شکل، دو شکافنده پرتو، لیزرهای پمپ و گمانه را به‌ترتیب به سمت فوتودیودهای  $PD_e$  و  $PD_i$  هدایت می‌کنند. فوتودیودهای مذکور به یک اسیلوسکوپ دیجیتال متصل شده‌اند تا رفتار زمانی دو پالس پمپ و گمانه را در حین آزمایش نمایش دهند. یک تاخیرانداز دیجیتال با مدل Stanford DSG 535، زمان نورگیری دوربین ICCD و تاخیر بین دو لیزر را تنظیم می‌نماید. آنالیز زمانی طیف-های ثبت شده، با کنترل زمان تاخیری و پهنای نورگیری دوربین ICCD صورت می‌پذیرد.



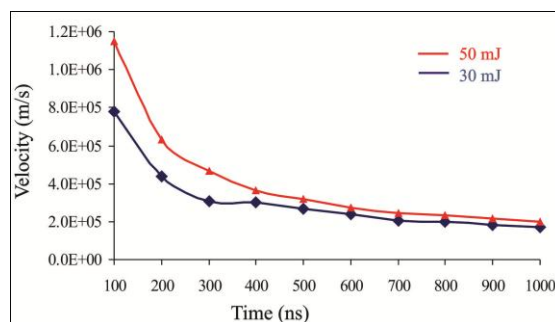
شکل ۴: چیدمان آزمایشگاهی آنالیز تابش‌های پلاسمای ضخیم اپتیکی با ترکیب روش‌های سایه‌نگاری و طیف‌سنجی.

#### ۴- نتایج و بحث

از مزایای محاسبات فوق این است که حتی اگر خط مدنظر دچار خودجذبی نشده باشد، کمیت SA بطور اتوماتیک محاسبه می‌گردد و همچنان روابط فوق صادق می‌باشند. از اینرو تئوری ارائه شده، در هر دو شرایط پلاسمای نازک و ضخیم و نیز برای هر دو مورد خطوط خودجذب شده و نشده قابل کاربرد می‌باشد.



شکل ۶: تغییرات زمانی چگالی آلومینیوم در انرژی ۵۰ mJ.



شکل ۴: تغییرات سرعت موج شوک بر حسب زمان برای انرژی‌های لیزر ۵۰ و ۳۰ mJ.

در پایان نیز با جاگذاری مقادیر مربوط به چگالی آلومینیوم و دمای پلاسما، تابع ابزاری سیستم آزمایشگاه حدوداً  $1.5 \times 10^{-8}$  برآورد گردیده است.

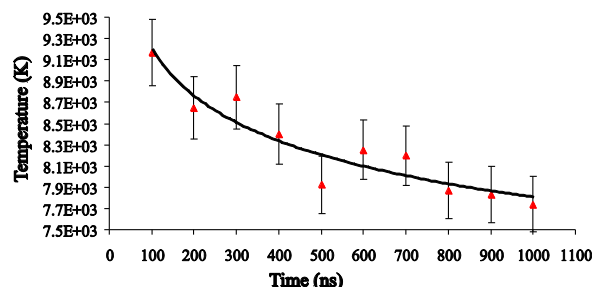
## ۵- نتیجه‌گیری

در این تحقیق، تئوری جدیدی بر مبنای استفاده از سه خط خودجذب شده جهت محاسبه پارامترهای پلاسما بطور دقیقی ارائه گردیده است. این مقاله پیشنهاد می‌کند که جهت برآورد دقیقی از پارامترهای پلاسما، بایستی اثر ضخامت اپتیکی که اغلب منجر به خودجذبی طیفی می‌گردد، در محاسبات لحاظ گردد.

## مراجع

- [۱] A.W. Miziolek, V. Palleschi, I. Schechter, *Laser induced breakdown spectroscopy*, Cambridge University Press, (2006).
- [۲] H. Y. Moon, K. K. Herrera, N. Omenetto, B.W. Smith, J. D. Winefordner, *On the usefulness of a duplicating mirror to evaluate self-absorption effects in laser induced breakdown spectroscopy*, *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, 64 702-713, (2009).
- [۳] W. Lochte-Holtgreven, *Plasma Diagnostics*, (1968).
- [۴] G. Colonna, M. Capitelli, *A few level approach for the electronic partition function of atomic systems*, *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, 64 863-873, (2009).
- [۵] F. Rezaei, S. Tavassoli, *Developing the model of laser ablation by considering the interplay between emission and expansion of aluminum plasma*, *Physics of Plasmas*, 20 013301, (2013).
- [۶] I. B. Gornushkin, L. A. King, B.W. Smith, N. Omenetto, J. D. Winefordner, *Line broadening mechanisms in the low pressure laser-induced plasma*, *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, 54 1207-1217, (1999).
- [۷] N. Konjević, *Plasma broadening and shifting of non-hydrogenic spectral lines: present status and applications*, *Physics Reports*, 316 339-401, (1999).

با جاگذاری چگالی الکترونی از پهنای خط نیتروژن، درج طول پلاسما در هر لحظه زمانی از چیدمان سایه‌نگاری و نیز لحاظ نمودن ثابت‌های مربوط به خطوط طیفی از جدول داده‌های NIST در معادله (۶)، شدت پلاسمای ضخیم بصورت تابعی از دما، چگالی و تابع ابزاری برآورد می‌گردد. با جفت نمودن سه معادله برای سه خط، در هر لحظه خاص زمانی پارامترهای مذکور محاسبه می‌شوند. از اینرو، شکل ۵ تغییرات زمانی دمای پلاسما را برای انرژی لیزر ۵۰ mJ با رویکردی نوین تشریح می‌کند. همانطور که ملاحظه می‌گردد با گذر زمان پلاسما تدریجاً سرد گردیده و از دمای آن کاسته می‌گردد.



شکل ۵: تحولات زمانی دمای پلاسما برای انرژی لیزر ۵۰ mJ.

با در نظر گرفتن ملاحظات فوق، شکل ۶ تحول زمانی چگالی آلومینیوم خنثی را در انرژی لیزر ۵۰ mJ برای بازه زمانی ۱۰۰ ns تا ۱  $\mu$ s نمایش می‌دهد. رفتار زمانی چگالی گویای این مطلب است که با گذشت زمان، پلاسما سرد شده و بر میزان ذرات خنثی افزوده می‌گردد.