

TARTU ÜLIKOOL  
LOODUS- JA TÄPPISTEADUSTE VALDKOND  
Füüsika Instituut

Lauri Hämarik

**LAETUD OSAKESTE DÜNAAMIKA VOLFRAMI  
LASERINDUTSEERITUD PLASMAS**

Magistritöö füüsika erialal (30 EAP)

Juhendaja: Kaarel Piip, MSc

Tartu 2016

# Laetud osakeste dünaamika volframi laserindutseeritud plasmas

Magistritöö

Lauri Hämarik

**Lühikokkuvõte.** Volframi laserindutseeritud plasma dünaamikat uuriti eksperimentaalselt madalal rõhul ( $10^{-3}$  mbar) erinevatel laservälke parameetritel. Ioonide ja elektronide ruumiline jaotus registreeriti võredega kollektoriga, lisaks uuriti ioonide ja neutraalsete aatomite kiirguse jaotust. Ioonide kiirusjaotus leiti lennuaja meetodiga. Ioonide kiirused on kirjeldatavad nihutatud Maxwell-Boltzmanni jaotusega, mille tõenäolisem kiirus on 9 – 17 km/s sõltuvalt laservälke parameetritest.

**Märksõnad:** Volfram, laserablatsioon, LIBS.

**CERCS:** P240 Gaasid, vedelike dünaamika, plasma.

# Tungsten laser-induced plasma charged particles' dynamics

Master's thesis

Lauri Hämarik

**Abstract.** In order to investigate tungsten laser-induced plasma's dynamics, experiments were carried out at low pressure ( $10^{-3}$  mbar) with various laser pulse parameters. Gridded ion probe and optical spectroscopy were used to find ions' spatial distribution. Using time-of-flight method ions' velocity distribution was calculated. Ion velocity distributions are shifted Maxwell-Boltzmann distributions, having maxima at 9 – 17 km/s depending on a laser fluence and wavelength.

**Keywords:** Tungsten, laser ablation, LIBS.

**CERCS:** P240 Gases, fluid dynamics, plasmas.

## Sisukord

Sissejuhatus.....	4
1. Valdkonna ülevaade.....	5
1.1. Laserindutseeritud plasma spektroskoopia.....	5
1.2. LIBSi perspektiiv ITERi seinte diagnostikas .....	6
1.3. Plasma areng .....	6
1.4. Rekombinatsioon.....	8
2. Osakeste jaotuse uurimismeetodid.....	11
2.1. Laetud osakeste kollektor.....	11
2.2. Optiline lennuaja meetod .....	12
2.3. Kiirguse radiaalne jaotus.....	13
3. Eksperiment .....	15
3.1 Elektronide ja ioonide vooluimpulsid .....	15
3.1.1 Katseskeem .....	15
3.1.2 Karakterised vooluimpulsid .....	17
3.1.3 Kiirusjaotus .....	18
3.1.4 Ioonide kogulaeng.....	20
3.2 Optilised mõõtmised .....	22
3.2.1 Katseskeemi kirjeldus .....	22
3.2.2 Ajaline käik.....	23
3.2.3 Kiirusjaotus .....	24
3.2.4 Kiirguse radiaalne jaotus.....	25
3.2.5 Ionisatsiooniate.....	27
Kokkuvõte.....	29
Summary .....	30
Kasutatud kirjandus .....	31
Lisad.....	33

## Sissejuhatus

Tuumasünteesiga energiatootmise võimalikkuse uurimiseks ehitatakse eksperimentaalne tuumasünteesireaktor ITER (inglise keeles *International Thermonuclear Experimental Reactor*). Reaktori seintel toimuvad erosiooni- ja sadestusprotsessid muudavad materjalide omadusi ja lõpptulemusena määravad reaktori eluea. Reaktori seinte kaugseireks sobib laserindutseeritud plasma spektroskoopia (LIBS, inglise keeles *Laser-Induced Breakdown Spectroscopy*), millega saab leida seintele sadenenud kihi koostise ja paksuse.

Objekti koostise leidmiseks võrreldakse tavaliselt uuritava aine kiirgust teadaoleva elemendilise koosseisuga testobjektide kiirgusega. Reaktoris aset leidvate pinnaprotsesside komplitseerituse tõttu on aga kaliibrimiseks vajalike testobjektide valmistamine keeruline. Lahenduseks oleks kalibratsioonivaba LIBSi rakendamine, kuid see meetod eeldab laserindutseeritud plasmas vähemalt osalist termodünaamilist tasakaalu. Tasakaalutingimuste väljaselgitamiseks peab aga tundma laserindutseeritud plasma dünaamikat. Töö eesmärgiks on leida volframi laserindutseeritud plasma laetud osakeste kiirusjaotus ja selle sõltuvus plasmat tekitava laservälke parameetritest. Mõõtmised viidi läbi madalal rõhul ( $10^{-3}$  mbar), et saadud tulemused oleks rakendatavad ka ITERi tingimustes.

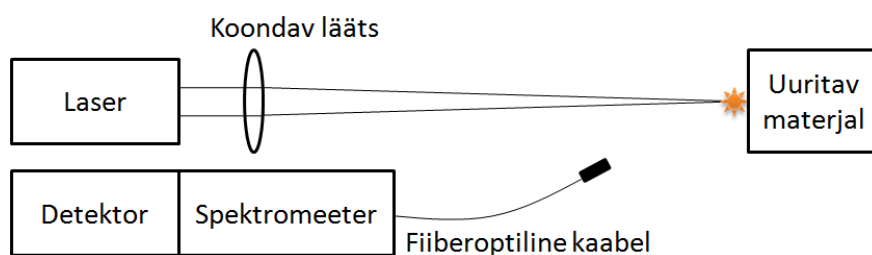
Töö on jagatud kolmeks osaks. Esimeses peatükis antakse lühike ülevaade laserindutseeritud plasma spektroskoopiast ja selle potentsiaalset tuumasünteesi reaktorite uurimiseks. Lisaks kirjeldatakse laserindutseeritud plasma arengut ja parameetreid, mis mõjutavad plasma dünaamikat. Teises peatükis tutvustatakse meetodeid, millega saab leida plasma paisumise kiiruse ja laetud osakeste jaotuse plasmas. Kolmas osa sisaldab eksperimendi korralduse kirjeldust ja katsetulemuste analüüsi. Kahel erineval meetodil leitakse osakeste kiirusjaotused, võrreldakse saadud jaotuseid ja uuritakse sõltuvust laservälke parameetritest. Lõpuks on töö põhitulemused kokku võetud.

# 1. Valdkonna ülevaade

## 1.1. Laserindutseeritud plasma spektroskoopia

Keemias ja füüsikas on sageli esinevaks ülesandeks uuritava materjali aatomkoostise määramine. Üheks võimalikuks meetodiks on aatomemissioonspektroskoopia (AES). Sellel meetodil ergastatakse uuritava aine aatomid ja registreeritakse nende kiiratud spekter. Keemilised elemendid kiirgavad valgust erinevatel lainepikkustel, mis võimaldab kiirgusspektri joonte lainepikkuste järgi kindlaks teha materjali koostise ning spektrijoonte intensiivsuste suhete kaudu leida elementide suhtelisi kontsentratsioone.

Juba pärast laseri leiutamist 1960-ndatel avastati, et laserikiire fokuseerimisel võib tekkida valgust kiirgav plasma. Algsete laserite võimekus oli aga piiratud ja plasma tekitamiseks eelistati kasutada elektrikaart ja -sädet. Koos laserite arenguga on kasvanud ka LIBSi potentsiaal ja viimastel aastakümnetel on LIBSile leitud mitmeid uusi rakendusvaldkondi. Teiste analoogsete meetodite ees on LIBSi eelisteks distantsilt mõõtmise võimalus ja proovi ettevalmistamise vajaduse puudumine. LIBSis kasutatakse impulss-laserit, mille fokuseeritud valgusimpulsid aurustavad väikese osa uuritavast materjalist. Laserindutseeritud plasma paisub mikrosekundite jooksul sõltuvalt keskkonna omadustest paari millimeetri kuni mõne sentimeetri suuruseks. Osa plasma paisumisel kiiratud valgusest kogutakse, lahutatakse spektraalselt ja tekkinud spekter salvestatakse (Joonis 1). [1]



Joonis 1. LIBSi katseseadmete üldine skeem.

LIBS meetodit on põhjalikult uuritud alumiiniumi sulamite koostise ja terase lisandite määramiseks [2]. Tänu reaajas mõõtmise võimalusele on LIBS meetod leidnud rakendust ka söe koostise määramisel ja jäätmekäitluses prügi sorteerimisel [1, 2]. LIBS meetodiga saab lisaks tahketele kehadele uurida vedelikke ja gaase, keskkonnakaitstes on LIBSi abil võimalik reaajas jälgida atmosfääris olevate aerosoolide hulka [2, 3]. Viimasel ajal on uuritud LIBSi potentsiaali tuumaenergeetikas, kus LIBS võimaldab läbi viia *in situ* mõõtmisi radioaktiivsetest materjalidest ohutus kauguses [1].

## **1.2. LIBSi perspektiiv ITERi seinte diagnostikas**

Inimkonna kasvava elektrivajaduse rahuldamiseks otsitakse uusi energialiike. Üheks lootustandvaks protsessiks on tuumasüntees, kus kergete tuumade ühinemisel vabaneb energia. Energiatootmise võimalikkuse uurimiseks ehitatakse Prantsusmaal rahvusvahelise projektina eksperimentaalne tuumasünteesi reaktor ITER. Reaktoris tekitatakse sadadesse miljonitesse kraadidesse ulatuva temperatuuriga plasma, kus vesiniku isotoopide deuteeriumi ja tritiumi kineetiline energia on piisav, et ületada Coulombi potentsiaal ja tuumade ühinemisel moodustada heeliumi tuum. Kuna ükski materjal ei talu nii kõrget temperatuuri, hoitakse plasmat reaktori seintest eemal magnetväljaga. Plasma sulustamine ei ole kunagi ideaalne, lisaks plasma ioonidele jõuavad reaktori seintele ka suure energiaga neutronid ja elektromagnetiline kiirgus. Seetõttu peab reaktori sisepindade kahjustuste ja plasma saastumise minimeerimiseks hoolikalt valima plasmaga kokkupuutuvate komponentide materjale. Reaktori seintes kasutatakse pealmise materjalina berülliumi. Volframist valmistatakse reaktori alaosas paiknev divertor, mille kaudu eemaldatakse plasmast tuumasünteesi produktid. Volframi eelisteks on kõrge sulamistemperatuur (3695 K), suur soojusjuhtivus (173 W/(m·K)) ja erosioonikindlus. [4]

Plasma ja seinte vastastikmõjus toimunud muutusi on vaja jälgida. Kaugseire võimalus teeb LIBSist tugeva kandidaadi seinte olukorra ning neisse sadenenud deuteeriumi, tritiumi ja heeliumi koguse määramiseks [5]. LIBS meetodiga elemendilise koostise leidmiseks kasutatakse sageli teadaoleva koostisega objekte, millest saadud spektrite võrdlemisel valitakse parim vaste. Tuumasünteesi reaktori tingimuste kordamine on keeruline, mis raskendab kalibreerimiseks vajalike proovide valmistamist. Võimalikuks lahenduseks on kalibratsioonivaba LIBS, kuid selle rakendamiseks on tarvis teada laserindutseeritud plasma dünaamikat [6]. Laserindutseeritud plasma arengut ITERiga võrreldavates tingimustes on varasemalt juba vaadeldud [7, 8], kuid mitmete plasmat kirjeldavate parameetrite ajaline ja ruumile jaotus vajab veel uurimist.

## **1.3. Plasma areng**

Laserindutseeritud plasma tekitamiseks kasutatakse lühikesi võimsaid laserimpulsse, levinud on Nd:YAG (põhiharmoonik 1064 nm) impulss-laserite kasutamine, samas leiavad kasutust ka mitmesugustel teistel lainepikkustel kiirgavad laserid [2]. Laservälke kestus on tüüpiliselt suurusjärgus kümnekond nanosekundit, aga viimasel ajal pakub huvi ka ülilühikeste, femtosekundilise kestusega impulsside kasutamine. Kasutatavate laserite võimsused algavad

megavattidest, lühemate impulssidega laserite võimsused on suuremad. Laservälke lühikese kestuse tõttu on impulsi koguenergia üpris väike, tüüpiliselt 1 – 100 mJ. Märklaua kriitilise kiiritustiheduse ( $\sim 10^{11} \text{ W}\cdot\text{cm}^{-2}$ ) ületamisel aurustub materjali paarikümne nanomeetri paksune pindmine kiht ja moodustub plasma. [3]

Laservälke esimese osa energia antakse materjalis algselt elektronidele, mis hakkavad ainest väljuma juba enne välke lõppu. Materjalis kiirendatud elektronid annavad põrgetega kineetilise energia edasi aatomitele, tõstes nii märklaua temperatuuri. Tahke materjal läbib faasisiirded vedelasse, gaasilisse ja jääb lõpuks plasma olekusse. [9]

Nanosekundilise kestusega laservälkeid kasutades tekib plasma juba enne laservälke lõppu. Tihe plasma ei ole enam laserikiire jaoks läbipaistev ja osa laservälke energiat neeldub plasmas, tõstes nii plasma temperatuuri [2]. Laservälke energia neeldub plasmas peamiselt pöördpärsskiirgusega (inglise keeles *inverse bremsstrahlung*), neeldumistegur

$$\alpha_{IB} = N_e \left[ Q N_0 + \frac{4 e^6 \lambda^3 Z^2 N_i}{3 h c^4 m_e} \times \sqrt{\frac{2 \pi}{3 m_e k T_e}} \right] \times \left[ 1 - \exp\left(-\frac{h c}{\lambda k T_e}\right) \right] \quad (1)$$

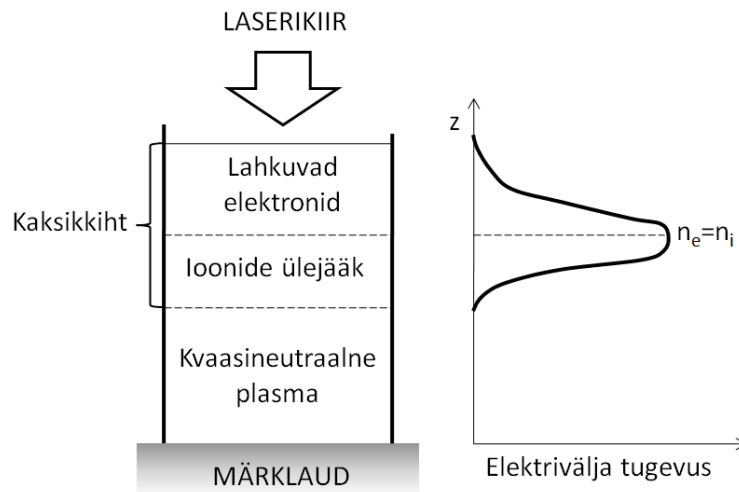
sõltub laseri lainepikkusest  $\lambda$ , ionide laengust  $Z$ , elektrontemperatuurist  $T_e$  ning elektronide ( $N_e$ ), aatomite ( $N_0$ ) ja ionide ( $N_i$ ) tihedustest [3, 10]. Valem sisaldab veel Plancki ja Boltzmanni konstante vastavalt  $h$  ja  $k$ , footoni neeldumise ristlõiget elektroni-aatomi põrkeprotsessis  $Q$  ja konstante, kus  $e$  tähistab elementaarlaengut,  $c$  valguskiirust ja  $m_e$  elektroni massi. Pärsskiirgus on nähtus, kus kiirgus tekib elektronide pidurdumisel elektriväljas. Pöördpärsskiirgus on vastupidine protsess, kus elektron neelab laserikiire energiatiooni või aatomiga põrkumisel. Võimsamate laservälgetega aurustub materjalist rohkem ainet ja tihedas plasmas neeldub suurem osa laservälke energiast. Kriitilisel tihedusel muutub plasma laserikiire jaoks läbipaistmatuks. Märklauale jõuab ainult laservälke esimene osa ja järgnev energia kulub plasma kuumutamiseks. [3, 11]

Vaakumis tekitatud plasma paisumine on kirjeldatav Euleri hüdrodünaamika võrranditega. Plasma paisub adiabaatilisel põhiliselt märklaua tasandiga ristsuunas kiirusega

$$v_p = \sqrt{\frac{4 \gamma + 10}{3} \frac{E}{M_v}}, \quad (2)$$

kus  $v_p$  on adiabaatilise paisumise kiirus,  $\gamma$  erisoojuste suhe,  $E$  paisumist põhjustav energia ja  $M_v$  plasmapiilve mass [3, 12]. Elektronide dünaamika võib erineda ionide omast plasma äärealadel, kus kvaasineutraalsuse tingimus ei ole alati täidetud. Kaksikkihi mudeli järgi

võivad elektronid saada kolme keha rekombinatsiooni ja pöördpärsskiirgusega lisaenergiat ning levida ülejäänud plasmast kaugemale (Joonis 2). Plasma äärde tekib ambipolaarne elektriväli, mis tõmbab elektronide kihi poole ioone ning moodustubiooniderikkam kiht. [13]



Joonis 2. Plasmas esinev kaksikkiht. Elektriväli on tugevaim kihtide piiril, kus elektronide ja ionide kontsentratsioonid (vastavalt  $n_e$  ja  $n_i$ ) on võrdsed. [13]

Plasma eluiga lõppeb aine kondenseerumise ja nanoosakeste tekkega. Kuna plasma jahtumisel tekkinud osakesed ei kiirga enam valgust, keskendutakse LIBSi rakendustes peamiselt plasma paisumise faasile, millega kaasneb aatomite põhiolekusse üleminekul tekkiv joonspekter. Paisumise protsessi käik sõltub aine massist, laserkiirguse laigu suurusel märklaual, laservälke energiast, kestusest ja lainepikkusest. Lisaks mõjutavad plasma arengut ümbritseva keskkonna omadused: rõhk, koostis ja olek [14]. Käesolevas töös on plasma arengut vaadeldud tingimustel, mis pakuvad huvi LIBSi rakendamisel ITERis.

#### 1.4. Rekombinatsioon

Elektronide ja ionide jaotus plasmas muutub lisaks osakeste liikumisele ka ionisatsiooni ja rekombinatsiooniga. Plasma paisumise faasis on põhiliseks laengukandjaid tekitavaks protsessiks pörkeionisatsioon



kus elektron  $e$  lööb aatomi  $A$  elektronkattest välja teise elektroni ja tekib ioon  $A^+$ . Taoline protsess saab toimuda ka vastupidi, kus kolme keha rekombinatsioonil tekib elektroni jaiooni ühinemisel neutraalne aatom. Protsessis osaleb lisaks neutraalse aatomi tekkeks vajalikule elektronile ja ioonile veel kolmas keha, millele kantakse üle rekombinatsioonil eraldunud energia. Mittekiirguslikus protsessis peab osalema kolmas keha, sest impulsi ja energia

jäävuse samaaegse kehtivuse tõttu ei saa rekombinatsioonil vabanenud energia muunduda sama aatomi kineetiliseks energiaks. Lisaks väheneb elektronide arv kiirgusliku rekombinatsiooniga



kus elektroni ja iooni rekombinatsioonil tekitatakse valguskvant  $h\nu$ . Elektronide tiheduse  $n_e$  muutust homogeenses plasmas kirjeldab võrrand

$$\frac{dn_e}{dt} = Sn_e n_0 - Rn_e n_i - Qn_e^2 n_i, \quad (5)$$

kus  $S$ ,  $R$  ja  $Q$  on vastavalt pörkeionisatsiooni, kiirgusliku rekombinatsiooni ja kolme keha rekombinatsiooni kiiruskoefitsient. [15]

LIBS meetodiga registreeritakse spekter enamasti 100 – 1000 ns pärast plasma teket, mil domineerib kiirguslik rekombinatsioon. Sellistel viiteaegadel on valem 5 küllalt hästi lähendatav võrrandiga

$$\frac{dn_e}{dt} = -Rn_e^2, \quad (6)$$

kus on veel lisaks arvestatud plasma kvaasineutraalsust ( $n_e = n_i$ ). Analüütilise lahendi

$$n_e = \frac{n_{e0}}{1 + R n_{e0} t} \quad (7)$$

rakenduspiirkond on küll kitsendatud, sest lisaks puhtalt kiirgusliku rekombinatsiooni eeldusele peab elektronide difusioonist tulenev kadu olema tühine. Rekombinatsiooni koefitsient sõltub elektronide kiirusest, mistõttu ei ole see muutuva temperatuuriga plasmas konstantne.

Termodünaamilises tasakaalus olevas plasmas on osakeste energeetiline jaotus ja ionisatsiooni protsessid kirjeldatavad plasma temperatuuriga. LIBS plasma ei ole kunagi täielikult tasakaalus, sest kiirgusliku tasakaalu saavutamiseks peaks plasma olema optiliselt läbipaistmatu kõikide sageduste jaoks. Tüüpilist LIBS plasmat, milles põhiline energiavahetus toimub elektronide põrgetega, saab kirjeldada lokaalse termodünaamilise tasakaaluga (LTE). Sellises seisundis vastab igale ruumiosale oma temperatuur ja elektrontihedus, mis kirjeldavad sealse plasma omadusi. Plasma ionide suhteline kontsentratsioon on kirjeldatav Saha valemiga

$$\frac{n_i}{n_0} = \frac{1}{n_e} \frac{(2\pi m_e k T)^{3/2}}{h^3} \frac{2U_i(T)}{U_0(T)} e^{-\frac{E_{i0n}}{kT}}, \quad (8)$$

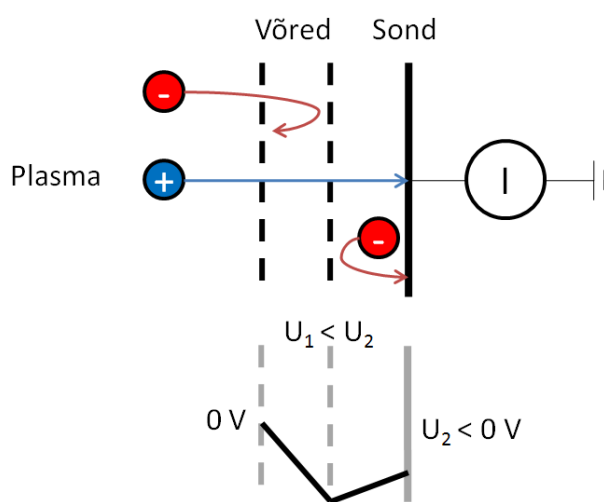
kus ionisatsiooni potentsiaal  $E_{ion}$  ning statistilised summad ionide ( $U_i$ ) ja neutraalsete aatomite ( $U_0$ ) jaoks on leitavad NISTi andmebaasist. [16, 17]

## 2. Osakeste jaotuse uurimismeetodid

Plasma dünaamikat uuritakse sageli lennuaja meetodiga (inglise keeles *time-of-flight*, TOF), kus mõõdetakse aega, mis kulub osakestel uuritava piirkonnani jõudmiseks. Osakeste tekitatud signaali ajalise käigu registreerimine annab ülevaate osakeste levikust. Mõõdetavaks signaaliks võib olla laetud osakeste tekitatud vooluimpulss või aatomite optiline kiirgus.

### 2.1. Laetud osakeste kollektor

Vooluimpulsside registreerimiseks asetakse plasma levikuteele metallist sond, milleni jõudvad plasma laetud osakesed tekitavad sondi elektri ahelas voolu (Joonis 3). Elektronide ja ioonide eristamiseks rakendatakse sondile tugipinge. Negatiivse tugipingega tõrjutakse elektrone, piisava pinge rakendamisel jõuavad sondini ainult positiivselt laetud ioonid. Sondi ette asetatakse maandatud võre, et sondist kaugemal asuvad laetud osakesed ei indutseeriks liikumisel sondis signaali ja pingestatud sond ei mõjutaks plasma levikut mõõtesüsteemist väljaspool. Piisava energiaga ioonid võivad sondi tabades sealt elektrone välja lüüa. Sondi ja varjestuse vahele võib paigutada sondist negatiivsemalt pingestatud lisavõre, et sekundaarelektronid naaseks sondini ja ei mõjutaks mõõteahelas registreeritud voolutugevusi. Sondiga saab registreerida ka plasma elektronide jaotust, kui sondile rakendatakse positiivne tugipinge ja vahevõre maandatakse. [13, 18]



Joonis 3. Võredega ioonide kollektori skeem koos rakendatud tugipingetega [18].

Ruumlaengu puudumisel tekitavad ühemärgiliselt laetud osakesed sondi elektri ahelas voolutugevuse

$$I(t) = e v(t) \overline{n(t)} S, \quad (9)$$

kus ajahetkel  $t$  on  $v$  laengukandjate sondile lähenemise keskmine kiirus,  $\bar{n}$  laetud osakeste keskmine kontsentratsioon üle sondi pinna ja  $S$  sondi pindala. Registreeritud voolu ajalise sõltuvuse asemel on sageli ülevaatlikum esitada osakeste kiiruste normeeritud jaotus, mis avaldub märklauast kaugusel  $d$  paikneva sondi korral valemiga

$$\rho(v) = A \frac{d}{v^2} I\left(\frac{d}{v}\right), \quad (10)$$

kus  $A$  on normeerimistegur. Suurus  $\rho(v) \cdot dv$  on tõenäosus, et laengukandja sondile lähenemise keskmine kiirus on vahemikus  $v \dots v+dv$ . Saadud jaotust annab sageli lähendada nihutatud Maxwell-Boltzmanni jaotusega

$$f(v) = B v^3 \exp\left(-\frac{m_i(v-u)^2}{2kT}\right), \quad (11)$$

kus  $u$  tähistab laengukandjate suunatud liikumise kiirust [19]. Valemis 11 on  $T$  jaotuse laiust kirjeldav parameeter, mis võib oluliselt erineda elektronide ja ionide temperatuurist.

## 2.2. Optiline lennuaja meetod

Kuumas plasmas on paljud aatomid ergastatud seisundis, üleminekul madalamatele energianivooale kiiratakse valgust kindlatel lainepikkustel. Lokaalse termodünaamilise tasakaalu tingimustes kirjeldab energiatasemete hõivet Boltzmanni jaotus kujul:

$$N_i = N \frac{g_i}{U(T)} \exp\left(-\frac{E_i}{kT}\right), \quad (12)$$

kus  $N_i$  on energianivool  $E_i$  olevate osakeste arv,  $N$  osakeste koguarv,  $g_i$  ülemise energiataseme kõdumise kordsus ja  $U$  statistiline summa. Kui valguse neeldumine plasmas on tühine, avaldub spektrijoone intensiivsus valemiga

$$I_\lambda = N \Phi \frac{h c g_i A_{ik}}{4 \pi \lambda Z} \exp\left(-\frac{E_i}{kT}\right), \quad (13)$$

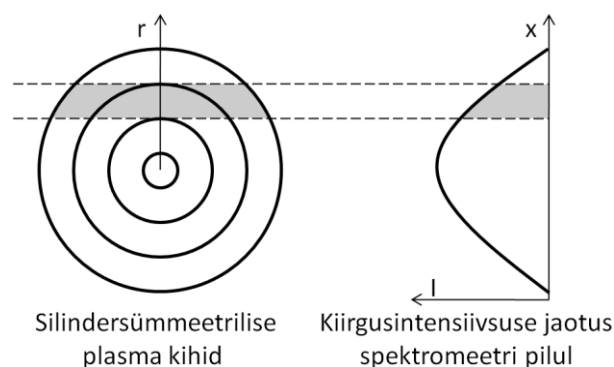
kus  $E_i$  on ülemise nivoo energia,  $A_{ik}$  ülemineku tõenäosus,  $\lambda$  kiiratud valguse lainepikkus ja  $\Phi$  kiirguse isotroopsust arvestav konstant [20]. Kiirguse ruumiliselt lahutatud mõõtmiste kaudu saab uurida osakeste ruumilist jaotust, kui kiirguse intensiivsus on määratud osakeste kontsentratsiooniga. Vaadeldavas ruumiosas võib kiirguse intensiivsuse vähenemine tuleneda ka spektrijoonele vastava ülemise energeetilise seisundi hõive langusest. Plasma jahtumisega kaasneb kogu plasma kiirguse intensiivsuse vähenemine. Lisaks väheneb ionide kontsentratsioon rekombinatsiooni tõttu. Seepärast ei pea kiirguse ruumilise jaotuse muutused tulenema tingimata reaalse osakeste liikumisest. Lennuaja meetodi kasutamisel

võrdsustatakse kiirguse maksimumi levik osakeste levikuga [21]. Saadud tulemused on usaldusväärsemad plasma paisumise hilisemas faasis, kus rekombinatsiooni kiirused ja temperatuuri suhtelised muutused on väiksemad.

Spektrijoone intensiivsuse leidmiseks peab kiirguse spektraalselt lahutama ja spektrist eemaldama pidevkiirguse komponendi. Spektromeetri kasutamisega kaob võimalus fotografeerida plasma kiirgust kahemõõtmeliselt: spektromeetri pilu eraldab plasma kujutisest ühemõõtmelise lõigu, fikseerides nii ühe ruumilise koordinaadi. Laserindutseeritud plasma uurimisel eraldatakse sageli plasma kujutisest märklaua tasandiga paralleelne lõik. Spektrijoone intensiivsuse ajalise käigu saab teisendada kiirusjaotuseks sarnaselt eelmises alapeatükis kirjeldatud algoritmile (Valem 10), kui voolutugevuse asemel kasutada kiirguse intensiivsuse käiku.

### 2.3. Kiirguse radiaalne jaotus

Lisaks märklauast kaugenemisele paisub plasma märklaua tasandis. Kui plasmas on fluktuatsioonid väikesed, siis võib laserindutseeritud plasmat lugeda silindersümmeetriliseks. Plasma sümmeetriatelg paikneb märklaua tasandiga risti. Spektromeetri piluga eraldatud lõik sisaldab plasma kiirgust erinevatel kaugustel sümmeetriateljest, võimaldades nii uurida plasma radiaalset jaotust. Plasma kujutise projitseerimisel spektromeetri pilule satub samasse kohta  $x$  erinevatelt radiaalkaugustelt  $r$  pärinev kiirgus (Joonis 4).



Joonis 4. Plasma sümmeetriateljega ristsuunalisel vaatlemisel nähakse kiirgusjaotust, mis iseloomustab kiirguse radiaalprofiili. Tumedamalt tähistatud ala kiirgus pärineb erinevatest kihtidest.

Kiirguse radiaalkaugusest sõltuvuse  $I(r)$  leidmiseks peab registreeritud jaotuses  $I(x)$  lahutama maha teistest radiaalkaugustelt pärineva kiirguse panuse Abeli pöördteisendusega. Ühikulise raadiusega lõigu kiirgus avaldub valemiga

$$I(r) = -\frac{1}{\pi} \int_r^\infty \frac{dI(x)}{dx} \frac{dx}{\sqrt{x^2 - r^2}}. \quad (14)$$

Valem sisaldab intensiivsuse tuletist, mis teeb meetodi tundlikuks sisendandmete mürale. Parema tulemuse saamiseks on sobilik katseandmed kõigepealt siluda või lähendada analüütilise funktsiooniga. Singulaarsuse vältimiseks kohal  $x=r$  saab kasutada Hankel-Fourier meetodit, kus  $j$ -ndas raadiuse lõigus avaldub kiirgustihedus valemiga

$$I(r_j) = \frac{1}{2\pi [(2N+1)\Delta x]^2} \sum_{i=-N}^N I(x_i) \sum_{k=0}^N \cos\left[\frac{ik}{2N+1}\right] k J_0\left(\frac{jk}{2N+1}\right). \quad (15)$$

Valemis tähistab  $J_0$  nullindat järku Besseli funktsiooni,  $\Delta x$  katsepunktide kaugust ja  $2N+1$  katsepunktide hulka. [22]

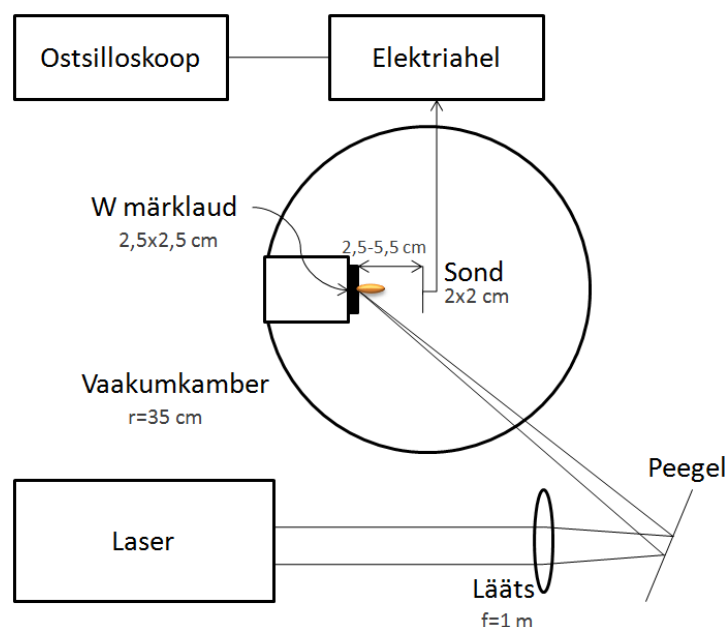
### 3. Eksperiment

Volframi laserindutseeritud plasma ionide jaotust uuriti eksperimentaalselt ionide kollektori ja optilise lennuaja meetodiga sarnastel katsetingimustel. Mõõtesondis ionide tekitatud vooluimpulsi ja volframi 334,3 nm spektrijoone intensiivsuse ajalise käigu kaudu arvutati ionide märklauast kaugenemise kiirusjaotus.

#### 3.1 Elektronide ja ionide vooluimpulsid

##### 3.1.1 Katseskeem

Eksperimendi katseskeem on kujutatud joonisel 5. 2,5x2,5 cm<sup>2</sup> suurune volframtükk asetati roostevabast terasest vaakumkambrisse, mis pumbati rõhule 10<sup>-3</sup> mbar. Q-lukustusega Nd:YAG laser Quantel YG981C tekitas ~7 ns kestusega laservälke, mis fokuseeriti 1-meetrise fookuskaugusega läätsuga volframmärklauale. Katsed viidi läbi laseri põhiharmoonikul lainepikkusel 1064 nm ja sisseehitatud kordistava kristalli abil lisaks lainepikkustel 532 nm ja 266 nm. Laservälke energiat varieeriti vahemikus 20 – 120 mJ. Laseri kiirgus neeldus volframalusel umbes 0,2 mm<sup>2</sup> suurusel alal, kust volfram aurustus ja tekitas plasma. Eksperimendis kasutatud laservälke energia pindtihedused 10 – 60 J/cm<sup>2</sup> on võrreldavad varasemate laserindutseeritud plasma uuringute tingimustega [23].

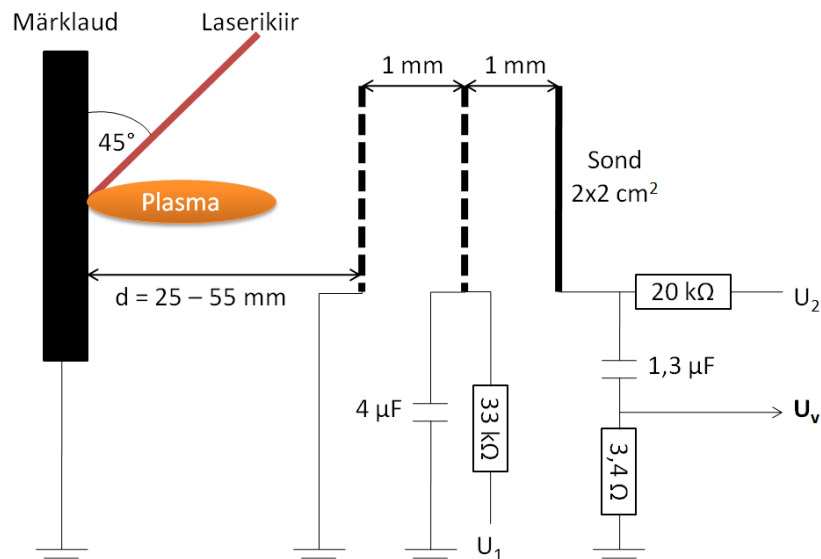


Joonis 5. Vooluimpulsside mõõtmise katseskeem pealtvaates.

Laetud osakeste voo mõõtmiseks kasutati alapeatükis 2.1 kirjeldatud mõõtesüsteemi. Märklauda ette asetati 2x2 cm<sup>2</sup> suurune vaskplaat (sond), mis oli maandatud läbi kondensaatori ja 3,4-oomise takisti (Joonis 6). Laserikiir tabas märklauda 45-kraadise nurga

all, et kiire tee ei lõikuks sondiga. Olenemata kiire suunast paisub plasma anisotroopselt eelissuunaga märklauast kaugemale, osa plasmast jõuab sondini. Vahetult pärast laservälget registreeriti ostsilloskoobiga Tektronix TDS2024B (diskretiseerimissagedus kuni 200 MHz) takistil pingelangu ajaline käik. Plasma juhuslike fluktuatsioonide mõju vähendamiseks ja signaal-müra suhte parandamiseks keskmistati 16 vooluimpulsi ostsillogrammid.

Sondi kaugust  $d$  volframmärklauast varieeriti vahemikus 25 – 55 mm. Ioonide uurimisel rakendati sondile tugipinge  $U_2 = -30$  V, sekundaarelektronide emissiooni vältimiseks pingestati sondist 1 mm eespool olev võre negatiivsemalt ( $U_1 = -50$  V). Elektronide dünaamika uurimisel olid mõlemad võred maandatud ja sondile rakendati positiivne tugipinge  $U_2 = 50$  V. Võred on valmistatud  $\sim 20$   $\mu\text{m}$  läbimõõduga traadist, võre silma suurus on 0,2 mm.

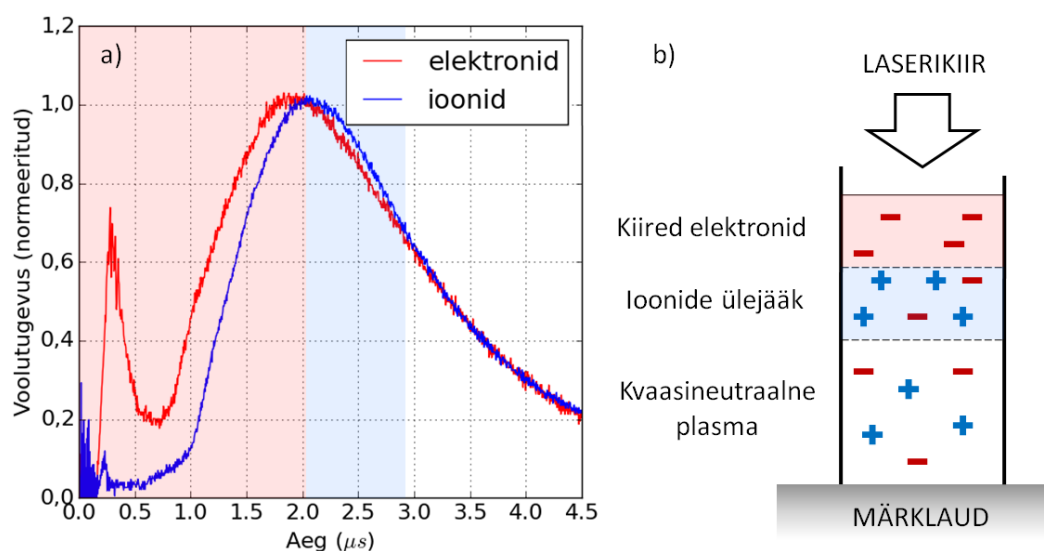


Joonis 6. Vooluimpulsside mõõtmise elektriline skeem. Mõõtmiste käigus registreeriti takisti pingelangu  $U_v$  ajaline käik.

Mitmekordselt ioniseeritud aatomid tekitavad elektri ahelas osakese kohta suurema laengu ja raskendavad voolutugevuse tõlgendamist ioonide voona. Selliste ioonide osakaalu saab hinnata Saha valemiga (Valem 8), kui elektrontihedus ja temperatuur on teada. Võttes mikrosekundi ajaskaalas LIBS plasma karakterseks elektrontiheduseks  $10^{16}$   $\text{cm}^{-3}$  ja temperatuuriks 6000 K, koosneb plasma 95,3% ulatuses neutraalsetest aatomitest, 4,7% on ühekordselt ioniseeritud.  $\text{W}^{2+}$  ja suurema laenguga ioonide osatähtsus on tühine, seega võib nende tekitatud signaali jätta arvestamata.

### 3.1.2 Karakteersed vooluimpulsid

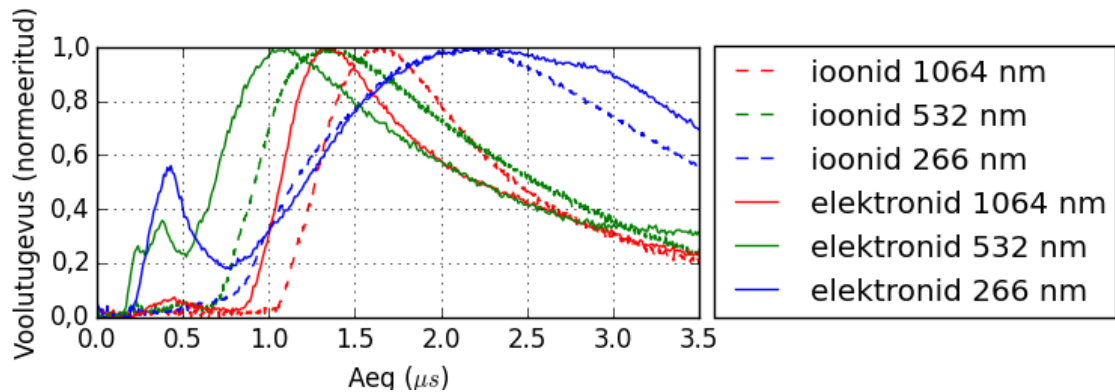
Elektronide ja ionide vooluimpulsi maksimumi esineb samaaegselt, vastav osakeste keskmine liikumiskiirus on suurusjärgus 10 km/s (Joonis 7a). Ioonide vooluimpulss omab ühte maksimumi, samas elektronide vooluimpulss koosneb kahest selgelt eraldatud komponendist. Elektronide hiljem esineva signaali kuju on sarnane ionide signaaliga. Klassikalises käsitluses loetakse plasmat kvaasineutraalseks. Neutraalsus võib olla rikutud ainult plasma äärealadel Debye pikkuse ulatuses. Registreeritud vooluimpulssidest ilmneb, et elektronid jõuavad mõttesondini enne ioone. Võimalik on eristada kolme regiooni: puhtalt elektronide-dominantne (Joonisel 7a esimesed kaks mikrosekundit), nõrgalt ionide ülekaaluga (teine mikrosekund) ja neutraalne (hilisem aeg). Kaksikkihi mudeli järgi võivad plasma äärmistes piirkondades esineda elektronide- ja ioniderikkad kihid (Joonis 7b) [13]. Kihtide olemasolu on märgata ka registreeritud vooluimpulssides, kus sondini jõuab kõigepealt elektronide front, millele järgnevas osas on ionide signaal tugevam.



Joonis 7. a) Elektronide ja ionide tekitatud normeeritud vooluimpulss 25 mm kaugusel paikneva sondi mõõteahelas. Laservälke energia on 20 mJ ja lainepikkus 266 nm. Elektronide signaal on parema võrdluse jaoks inverteeritud. b) Plasma välimises piirkonnas tekib kaksikkiht [13].

Elektroniderikas kiht on tugevamalt esindatud laservälke lainepikkustel 266 nm ja 532 nm (Joonis 8), mis viitab kiiremate elektronide tekkemehhanismi tugevale sõltuvusele footonite energiast. Laservälke footonid võivad välisel fotoefektil tekitada märklaua ette suure hulga elektrone, mis saavad lisaenergiat pöördpärsskiirgusega. Energeetilisemad elektronid kaugenevad märklauast kiiremini kui ülejäänud plasma, mille osakeste kiirused on määratud

temperatuuriga [13]. 266 nm footoni energia 4,7 eV ületab volframi väljumistööd 4,5 eV ja väline fotoefekt on võimalik. 532 nanomeetrile vastav energia 2,3 eV on küll väiksem väljumistööst, kuid laseri tugeva kiiritusintensiivsuse korral võib leida aset multifotoonne neeldumine. Ka laseri lainepikkusel 1064 nm eksisteerib kiiremate elektronide signaal, kuid tunduvalt nõrgemana.

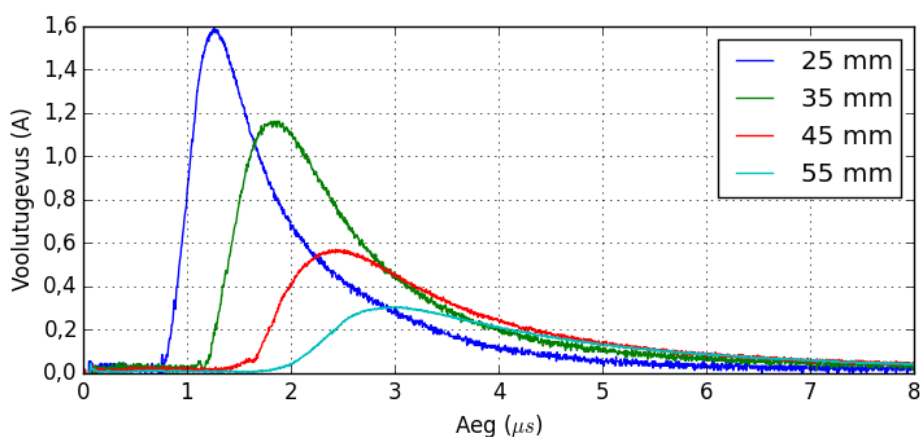


Joonis 8. Elektronide ja ionide vooluimpulsside võrdlus. Vooluimpulsid on registreeritud märklauast 35 mm kaugusel laservälke energial 80 mJ.

Hilisemas osas on elektronide ja ionide tekitatud signaalide kuju võrreldav, omades väikest ajalist nihet. Täpset kõrvalekallet kvaasineutraalsusest on keeruline hinnata, sest mõõtetulemuste amplituudid on tundlikud sondi ja võrede tugipingetele.

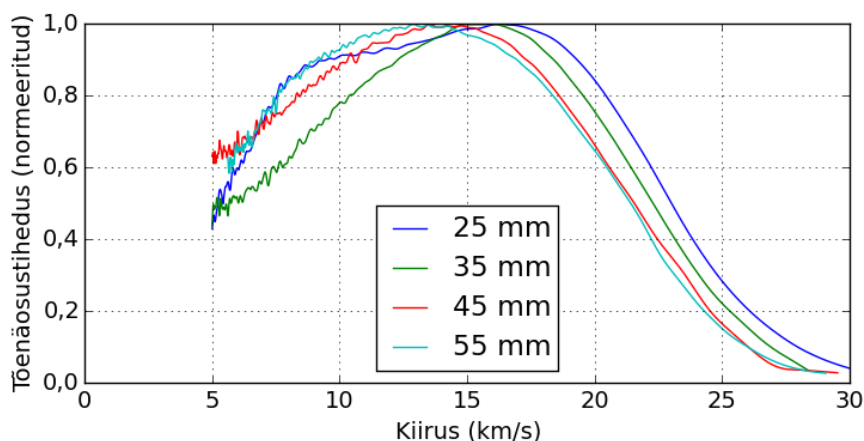
### 3.1.3 Kiirusjaotus

Volframmärklauast kaugemal paikneva sondi mõõteahelas tekitasid ionid elektrivoolu hilisematel ajahetkedel, kuna ionidel kulub rohkem aega märklaua ja sondi vahemaa läbimiseks (Joonis 9).



Joonis 9. Vooluimpulsid erinevatel kaugustel märklauast. Vooluimpulsid on registreeritud laseri lainepikkusel 1064 nm, laservälke energia on 40 mJ.

Erinevatel kaugustel tehtud mõõtmiste võrdlemiseks teisendatakse voolutugevuse ajaline käik kiirusjaotuseks valemi 10 järgi (Joonis 10).



Joonis 10. Erinevatel kaugustel mõõdetud kiiruse jaotused. Jaotused on leitud lainepikkusel 1064 nm ja laservälke energial 40 mJ.

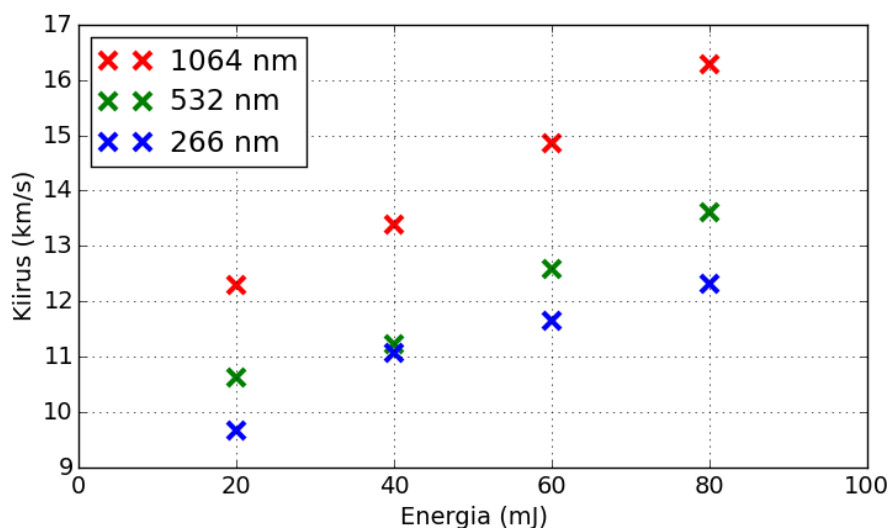
Erinevatel sondi kaugustel arvatud kiirusjaotused erinevad vähe, plasma paisub ühtlase kiirusega (Tabel 1). Tõenäoliseim kiirus 13 – 16 km/s on samas suurusjärgus varem madalal rõhul läbi viidud volframi laserindutseeritud plasma uuringutes saadud kiirustega [19, 24, 25]. Tulemus on kooskõlas ka teoreetiliste mudelitega. Valemi 2 järgi tekitab 40 mJ energiaga laservälge kiirusega 16 km/s paisuva plasma, kui veerand laservälke energiast neeldub otse plasmas, laseri laiuga pindala märklaual on  $0,2 \text{ mm}^2$  ja ühe impulsiiga aurustub volframmärklauast 50 nm paksune kiht.

Suurematel sondi kaugustel (45 mm, 55 mm) on osakeste keskmine kiirus paarikümne protsendi võrra väiksem, seega plasma paisumine aeglustub.

Tabel 1. Laservälke lainepikkusel 1064 nm ja energial 40 mJ tekkinud plasma kiirused ja nihutatud Maxwell-Boltzmanni jaotuse sobitusparameetrid.

Kaugus (mm)	25	35	45	55
Tõenäolisem kiirus (km/s)	16,23	16,03	13,52	12,90
Temperatuur (eV)	136	131	120	116

Ioonide kiiruste sõltuvus laservälke energiast ja lainepikkusest on toodud joonisel 11. Laservälke energia ja ioonide kiiruse vahel on positiivne korrelatsioon. Erinevatel lainepikkustel läbi viidud katsete tulemuste võrdlemise teeb keeruliseks suur energia pindtiheduse määramatus. Laseri laigu kuju ja volframi peegeldustegur sõltuvad laservälke lainepikkusest, seepärast on ioonide kiiruste muutused võrreldavad eelkõige sama lainepikkusega tehtud seerias.

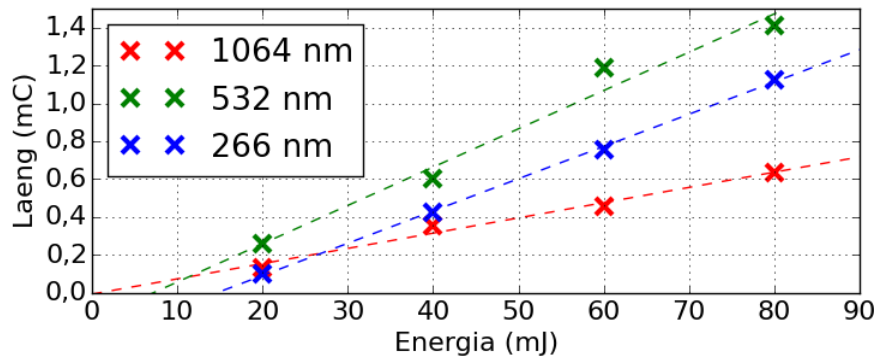


Joonis 11. Tõenäolisema kiiruse sõltuvus laservälke energiast ja lainepikkusest. Sondi kaugus märklauast on 45 mm.

### 3.1.4 Ioonide kogulaeng

Plasma eluea jooksul sondile jõudnud ioonide laengu ja laservälke energia vahel on lineaarne seos (Joonis 12). Regressioonisirgete vabaliige on nullist erinev, sest plasma tekitamiseks peab laservälge ületama ablatsiooniläve. Ioonide koguhulk on suurim laseri lainepikkusel 532 nm ja väiksem lainepikkusel 1064 nm. Kogulaengu suuruse järgi ei saa tingimata hinnata

ühe laservälkega märklaualt lahkunud materjali kogust, sest mikrosekundite vanune plasma koosneb peamiselt neutraalsetest aatomitest, mis ei tekita sondis elektrilist signaali. Ablatsiooni kiiruse kvalitatiivseks uuringuks peab lisaks kogulaengule olema määratud ka plasma ionisatsiooniaste, mis näitab ionide ja aatomite kontsentratsioonide suhet.



Joonis 12. 45 mm kaugusel paikneva sondi voolutugevuse ajalise integraali sõltuvus laservälke parameetritest.

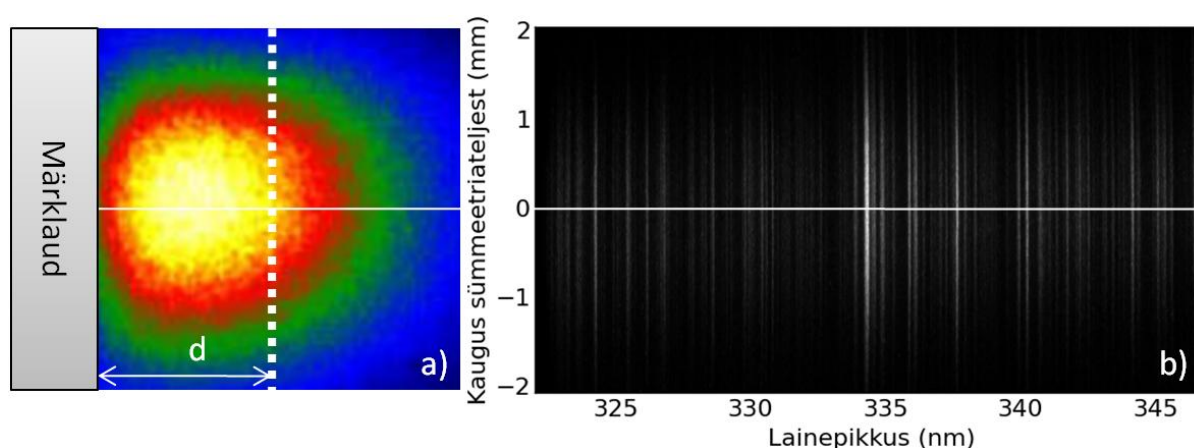
## 3.2 Optilised mõõtmised

Lisaks elektrilistele mõõtmistele registreeriti sarnastel katsetingimustel plasma optiline kiirgus. Mõõtmised viidi läbi kontrollimaks elektriliste mõõtmiste tulemuste õigsust, lisaks võimaldab plasma kiirgusspektri registreerimine uurida volframi neutraalsete aatomite dünaamikat ja plasma paisumist märklaua tasandis. Optiliste mõõtmistega uuriti plasma dünaamikat võrreldes elektriliste mõõtmistega 10 korda väiksematel kaugustel ja viiteaegadel, mil plasma kiirgus on veel registreeritav.

### 3.2.1 Katseskeemi kirjeldus

Optilistel mõõtmistel kasutati volframi plasma tekitamiseks sama katseskeemi ja laservälke parameetreid kui elektrilistel mõõtmistel. Katseparameetreid on detailsemalt kirjeldatud eelmises alapeatükis. Võrreldes eelnevate katsetega tabas laserikiir märklaua selle pinnaga risti, kuid kiire langemisnurk ei mõjuta oluliselt plasma tekkeprotsessi ega edasist arengut.

Plasmat jälgiti vaakumkambri külgaknast märklaua tasandiga paralleelsest suunast. Plasmatombu kujutis projitseeriti metallkatetega peeglite ja 17 cm fookuskaugusega lääts abil spektromeetri MDR-23 40  $\mu\text{m}$  laiusele sisendpilule, mis eraldab plasma kujutisest märklaua tasandiga paralleelse lõigu (Joonis 13a). Plasma kujutist saab pilul nihutada peeglite kallutamisega. Nii määratakse uuritava plasma lõigu kaugus märklauast. Plasma spekter mõõdeti lõikudes, mis asuvad märklauast 1 kuni 5 mm kaugusel. Elektriliste mõõtmistega võrreldes uuriti plasmat oluliselt väiksematel kaugustel, sest paari sentimeetri kaugusele jõudmisel on plasma kaotanud palju energiat ja kiirgus on allpool registreerivate seadmete mürapiiri.



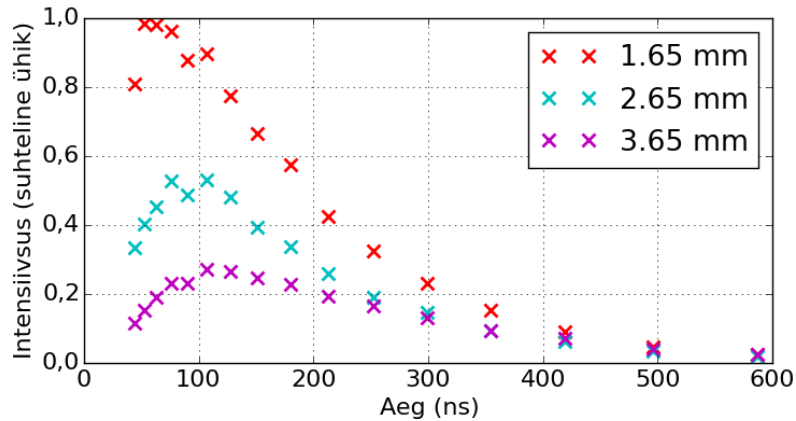
Joonis 13. a) Plasma kiirgust uuriti punktiirjoonega tähistatud lõigus, mille kaugust märklauast  $d$  varieeriti. Pideva joonega on märgitud plasma sümmeetriatelj. b) Spektraalselt lahutatud plasma kiirgus 40 ns pärast plasma tekkimist 1,6 mm kaugusel märklauast.

Plasma kiirgust uuriti lainepikkuste vahemikus 322 – 347 nm. Peamiselt uuriti volframi ühekordselt ioniseeritud iooni spektrijoont W II lainepikkusega 334,3 nm. See on kõige tugevam spektrijoon vaadeldavas lainepikkuste vahemikus (Joonis 13b). Paarisaja nanosekundiliste viiteaegadega salvestatud spektrites on tugevamalt esindatud neutraalsete aatomite spektrijooned, neist on lühidalt uuritud ka W I 330,0 nm spektrijoone intensiivsuse ajalist käitumist.

Spektrid salvestati Andor ICCD kaameraga, mille pildi maatriksi suurus on 2048x512 pikslit. Ühe katseseeria käigus registreeriti spekter 16 erineval viiteajal. Esimesed spektrid on kogutud 40 ns pärast laserikiire märklaua tabamist säriaajaga 8 ns. Järgneva 15 spektri kogumisel suurenesid viite- ja säriajad eksponentsiaalselt kuni viiteajani 600 ns, säriaega hoiti viiendik viiteajast (Lisa 1). Pildi signaal-müra suhte parandamiseks ja plasma juhuslike fluktuatsioonide mõju vähendamiseks koguti samadel viiteaegadel 30 kaadrit ja summeeriti tulemused.

### **3.2.2 Ajaline käik**

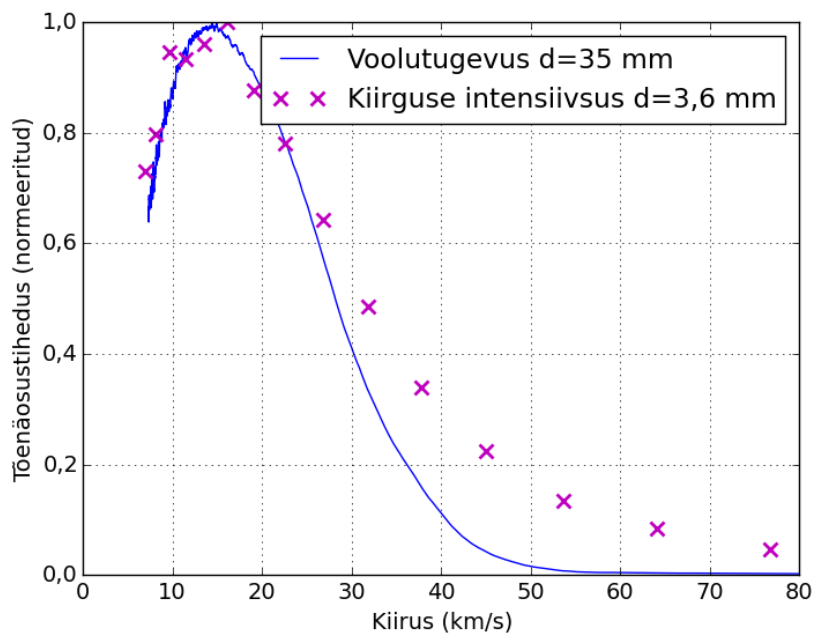
Volframi iooni 334,3 nm spektrijoone intensiivsuse ajaline käik erinevatel kaugustel märklauast on toodud joonisel 14. Kui spektrijoone intensiivsus lugeda proportsionaalseks ionide kontsentratsiooniga (Valem 13), saab spektrijoonte intensiivsuste järgi teha kvantitatiivseid järeldusi ionide dünaamika kohta. Vahetult pärast plasma teket paikneb plasmatomp märklaua lähedal. Järgnevas paisumisprotsessis jõuavad volframi ioonid ka märklauast kaugemal asuvasse piirkondadesse, spektrijoone intensiivsuse maksimum esineb kaugemates piirkondades hiljem. Edasine ionide kontsentratsiooni kahanemine on põhjustatud plasma paisumisest ning elektronide ja ionide rekombinatsioonist. Vaadeldavatel kaugustel oli ionide kontsentratsioon suurem märklaua lähedal kogu paisumisprotsessi kestel.



Joonis 14. 334,3 nm spektrijoone intensiivsuse muutumine erinevatel kaugustel. Eksperiment on läbi viidud lainepikkusel 532 nm ja laservälke energial 80 mJ.

### 3.2.3 Kiirusjaotus

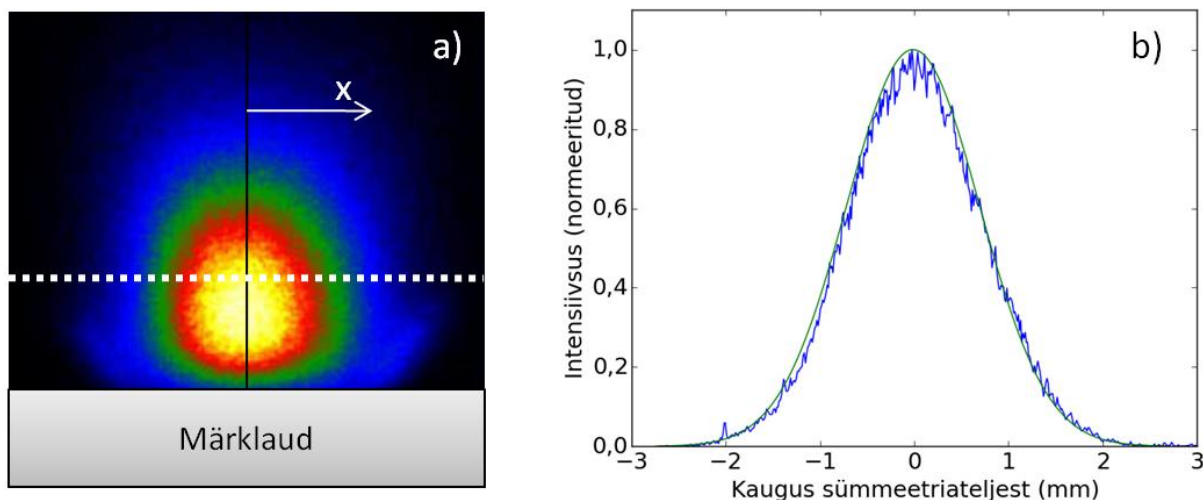
Optiliste mõõtmiste võrdlemiseks elektrilistega on spektrijoone intensiivsuse ajaline käik taandatud kiirusjaotuseks (Joonis 15). Kahel erineval meetodil saadud jaotused on võrreldavad. Optilise kiirguse mõõtmistel saadud jaotusel on kiiremate ionide osakaal suurem. Taoline nähtus võib olla põhjustatud ionide kontsentratsiooni vähenemisest rekombinatsiooni käigus. Suurtele kiirustele joonisel 15 vastavad lühikesed viiteajad, mil ionide kontsentratsioon ja seega ka mõõdetud kiirgusintensiivsus on suurem. Hiljem ionide kontsentratsioon rekombinatsiooni käigus väheneb ja kiirgus nõrgeneb. Sellele protsessile ei vasta aga reaalse osakeste liikumine, mistõttu jaotus võib olla suuritel kiirustel moonutatud. Samuti väheneb ajas plasma temperatuur ja sellega koos ka mõõdetud spektrijoonele vastavate energiaseisundite hõive. Kiirusjaotused kattuvad paremini väiksematel kiirustel, millele vastavad pikemad viiteajad. Sellistel viiteaegadel muutub plasma temperatuur aeglasemalt ja kiirusjaotuse moonutused on väiksemad.



Joonis 15. Spektraalsete mõõtmistega saadud kiirusjaotuse võrdlus vooluimpulsi kaudu arvatud kiirusjaotusega. Kasutatud laservälke energia on 40 mJ, lainepikkus 532 nm.

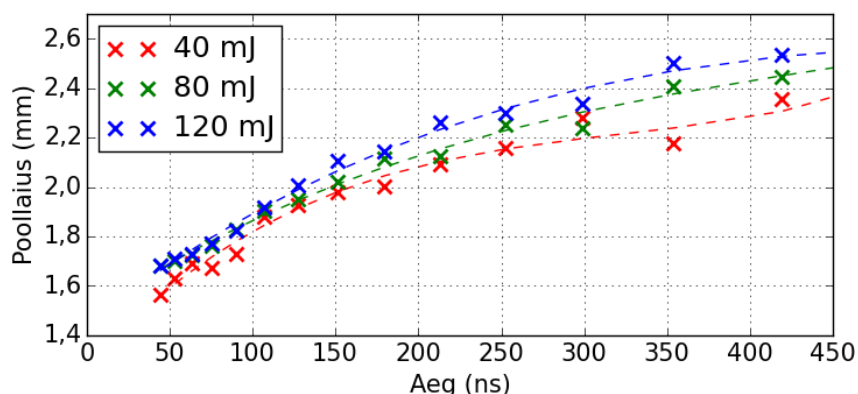
### 3.2.4 Kiirguse radiaalne jaotus

Plasma kiirguse mõõtmisel eraldati spektromeetri piluga plasma kujutisest märklaua tasandiga paralleelne lõik (Joonis 16a). Kaameraga salvestatud piltide vertikaalteljel on kiirguse intensiivsuse sõltuvus plasma sümmeetriateljega ristuvast koordinaadist (Joonis 13). Ioonide kiirguse jaotuse saamiseks märklaua tasandis eraldati pildist 9 piksli laiune veerg, mis sisaldas 334,3 nm kiirgusjoone signaali, ja summeeriti erinevate piksliveergude väärtused. Igale pikslile langev kiirgus on integreeritud piki vaatejoont (Joonis 4), sellest radiaalse jaotuse saamiseks tuleb teha Abeli pöördteisendus (Valem 15). Kuna pöördteisenduse operatsioon on tundlik sisendandmete mürale, lähendati kaameraga salvestatud andmed eelnevalt Gaussi funktsiooniga. Lähendus on füüsikaliselt õigustatud, sest esialgse ja lähendatud jaotuse erinevused on enamikel juhtudel väikesed (Joonis 16b).



Joonis 16. a) Spektromeetri pilule langeb punktiirjoonega tähistatud lõik, kaameraga registreeritakse intensiivsuse sõltuvus kaugusest  $x$  sümmeatriateljst. b) Kiirguse jaotus koos seda lähendava Gaussi profiiliga.

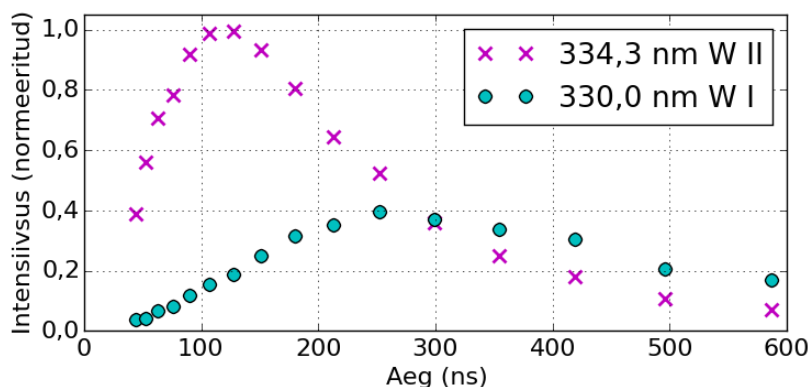
Gaussi jaotusele Abeli pöördteisenduse rakendamisel saadakse sama laieuga Gaussi jaotus, mistõttu võib Gaussi profiiliga jaotuste korral jätta pöördteisenduse operatsiooni tegemata. Saadud jaotuste poollaius (FWHM) suureneb ajas (Joonis 17). Suurematel laservälke energiatel on plasma kiirgusjaotus märklaua tasandis paari protsendi võrra laiem. Katsepunkte lähendati järku polünoomiga. Polünoomi tõus kirjeldab plasmapiilve laienemise kiirust märklaua tasandis. Vaadeldavas ajavahemikus on see 1 – 4 km/s, poollaiuse kasv aeglustub ajas. Plasma laieneb märklaua tasandis oluliselt aeglasemalt kui sellega ristuvast sihis, saadud tulemus on kooskõlas varasemate uuringutega [12]. Tuleb märkida, et arvutatud kiirused näitavad kiirguse poollaiuse ajalisi muutusi, osakeste jaotus võib erineda kiirguse ruumilisest jaotusest. Plasma lineaarmõõtmete teistsugusel defineerimisel (näiteks jaotuse 4-kordne standardhälve, maksimumist  $1/e^2$ -ni kahanemise kaugus) on ka laienemise kiirused teistsugused, kuid jäävad samasse suurusjärku.



Joonis 17. Kiirguse radiaalse jaotuse poollaiuse ajaline käik märklauast 2,6 mm kaugusel paiknevas plasma lõigus. Plasma on tekitatud laservälke lainepikkusel 532 nm.

### 3.2.5 Ionisatsiooniaste

Laserindutseeritud plasma parameetrite arvutamiseks saab kasutada erinevaid spektrijooni. Plasma kiirgusspektris esineb palju iooni ja neutraalsete aatomite spektrijooni, mille suhted muutuvad ajas. Esimese saja nanosekundi jooksul registreeritud kiirgusspektrites kuuluvad tugevamad jooned volframi ioonidele, paarisaja nanosekundi pärast hakkab spektris domineerima neutraalsete aatomite kiirgus. Eksperimendis registreeritud spektris kõige tugevama iooni ja neutraalse aatomi spektrijoonete intensiivsuste ajaline käik on kujutatud joonisel 18. Neutraalse aatomi 330,0 nm kiirgusjoone intensiivsuse maksimum esineb kaks korda pikematel viiteaegadel, mis ei tähenda aga tingimata, et neutraalsed aatomid liiguksid ioonidest kaks korda aeglasemalt.



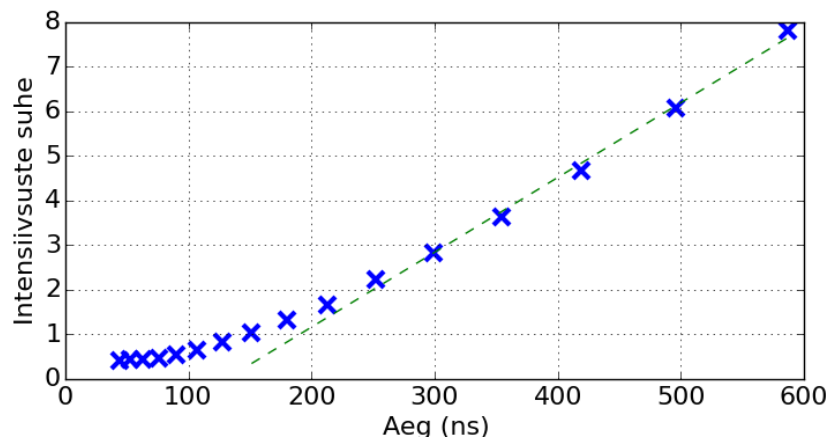
Joonis 18. Volframi iooni spektrijoonete 334,3 nm ja neutraalsete aatomite spektrijoonete 330,0 nm intensiivsuse käik 3,6 mm kaugusel märklauast. Laservälke energia on 40 mJ, lainepikkus 532 nm.

Laserindutseeritud plasma on mittestatsionaarne nähtus, kus ioonide tekke- ja kaomehhanismide kiirused ei ole tasakaalus. Pärast plasma tekkimist hakkavad elektronid ja

ioonid rekombineeruma, moodustades neutraalseid aatomeid. Elektronide ja ühtlasi ka ionide kontsentratsiooni ajalist käiku kirjeldab valem 7, mida on graafiliselt lihtsam esitada kujul

$$n_e^{-1} = n_{e0}^{-1} + Rt. \quad (16)$$

Kuna ionide kontsentratsiooni vähendab lisaks rekombinatsioonile ka plasma paisumine, on sobilik ionide kontsentratsiooni asemel uurida ionisatsiooniastme  $y = n_i/(n_i + n_0) \approx n_i/n_0$  muutusi, mille arvutamiseks saab kasutada iooni ja neutraalse aatomi spektrijoonte intensiivsuste suhet. Kasutatud lihtsustus kehtib ainult pikematel viiteaegadel, kui ionide kontsentratsioon on neutraalsete aatomite omast oluliselt väiksem ( $n_i \ll n_0$ ). Sellisel juhul moodustavad spektrijoonte suhted graafikul sirge. Reaalsete katseandmete kasutamisel on graafik sublineaarne, sest algselt kuumas plasmas on ionide osakaal veel suur ja lihtsustus  $n_i + n_0 \approx n_0$  ei kehti (Joonis 19). Alates 300 nanosekundist on katsepunktid lähendatavad sirgega, mis viitab ionisatsiooni puudumisele.



Joonis 19. Neutraalsete aatomite ja iooni spektrijoonte intensiivsuste suhte muutumine.

## Kokkuvõte

Töös uuriti volframi laserindutseeritud plasma dünaamikat. Eksperimentaalselt registreeriti ionide voog ja joonkiirguse intensiivsuse ajaline käik, mille kaudu arvutati ionide kiirusjaotus. Katsed viidi läbi erinevate plasmat tekitava laservälke parameetritega – varieeriti energiat ja lainepikkust.

Kiirusjaotus vastab nihutatud Maxwell-Boltzmanni jaotusele, mille maksimum on sõltuvalt laservälke parameetritest kiirusel 9 – 17 km/s. Optilise lennuaja meetodiga tehtud katsetel saadud kiirusjaotused on võrreldavad elektriliste mõõtmistega saadud tulemustega. Laservälke energia suurendamisel eraldub märklauast rohkem ainet ja registreeritud vooluimpulsid on suurema amplituudiga. Lisaks kasvavad laservälke energia suurendamisel osakeste kiirused. Elektronide jaotus on kahekomponendiline, lisaks ionide jaotusega kattuvale osale omab vooluimpulss maksimumi ka väiksematel viiteaegadel, mis on seletatav kaksikkihi mudeliga. Tuvastati, et kiiremate elektronide komponendi osatähtsus on suurem väiksematel laservälke lainepikkustel. Plasma kiirusjaotus laieneb märklaua tasandis paarisaja nanosekundi vältel kiirusega 1 – 4 km/s, plasma paisumine aeglustub.

Töö tulemusena leiti laserindutseeritud volframi plasmas ionide kiirusjaotus. Saadud tulemused võivad lihtsustada ITERis volframkatte *in-situ* LIBSi mõõtmistes optimaalsete parameetrite leidmist.

Edasist uurimist vajavad veel teiste plasmat iseloomustavate parameetrite jaotused. Kalibratsioonivaba LIBSi rakendamiseks on tarvis teada elektronpilve temperatuuri ja kontsentratsiooni ruumilist jaotust ning ajalist käiku.

# Tungsten laser-induced plasma charged particles' dynamics

Lauri Hämarik

## Summary

Tungsten divertor used in the International Thermonuclear Experimental Reactor (ITER) needs frequent monitoring to detect erosion, deposition and composition changes generated by the interaction with plasma. Laser-induced breakdown spectroscopy (LIBS) is a strong candidate for on-line monitoring of the conditions of plasma-facing materials. Calibration-free LIBS method requires good knowledge about plasma's dynamics. The aim of this thesis was to determine tungsten laser-induced plasma's ions' velocity distribution.

In this work the experiment was set up to produce laser-induced plasma and investigate its dynamics. Gridded ion probe and optical spectroscopy were used to find ions' spatial distribution. Using time-of-flight method ions' velocity distribution was calculated. Experiments were carried out at low pressure ( $10^{-3}$  mbar) with various laser pulse parameters.

Ion velocity distributions are shifted Maxwell-Boltzmann distributions, having maxima at 9 – 17 km/s depending on a laser fluence and wavelength. Expansion in a vacuum proceeds with nearly constant speed, distributions obtained from a few millimeters to several centimeters from the target are similar. Plasma's dynamics depend on a laser pulse parameters, fluence influences expansion speed. Plasma expands radially with velocities 1 – 4 km/s.

## Kasutatud kirjandus

1. D. A. Cremers ja L. J. Radziemski, Handbook of Laser-Induced Breakdown Spectroscopy (Wiley, 2006).
2. R. Noll, Laser-Induced Breakdown Spectroscopy (Springer, 2012).
3. J. P. Singh ja S. N. Thakur, Laser-induced breakdown spectroscopy (Elsevier Science, 2007).
4. M. Mohan, New Trends in Atomic and Molecular Physics (Springer, 2013).
5. S. Almaguer, L. Caneve, F. Colao, R. Fantoni ja G. Maddaluno, „Remote-LIBS characterization of ITER-like plasma facing materials”, Journal of Nuclear Materials v. 421 (1-3) p. 73-79 (2012).
6. E. Tognoni, G. Cristoforetti, S. Legnaioli ja V. Palleschi, „Calibration-Free Laser-Induced Breakdown Spectroscopy: State of the art”, Spectrochimica Acta Part B 65 1–14 (2010).
7. A. Lissovski, K. Piip, L. Hämarik, M. Aints, M. Laan, P. Paris, A. Hakola, J. Karhunen, „LIBS for tungsten diagnostics in vacuum: Selection of analytes”, Journal of Nuclear Materials Volume 463, August 2015, Pages 923–926 (2015).
8. K. Piip, H. J. Van der Meiden, L. Hämarik, J. Karhunen, A. Hakola, P. Paris, M. Aints, M. Laan, J. Likonen, K. Bystrov, J. Kozlova, R. Kanarbik, „In situ LIBS in the linear plasma device Pilot-PSI for Fusion Application”, 15th International Conference on Plasma Facing Materials & Components for Fusion Applications, Aix-en-Provence, 18-22 Mai, 2015.
9. R. Issac, G. Varier, P. Gopinath, S. Harilal, V. Nampoori ja C. Vallabhan, “Prompt electron emission and collisional ionization of ambient gas during pulsed laser ablation of silver”, Applied Physics A:Materials Science & Processing 67, 557–561 (1998).
10. S. Amoroso, R. Bruzzese, N. Spinelli ja R. Velotta, “Characterization of laser-ablation plasmas”, Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics 32, R131–R172 (1999).
11. V. Hohreiter, J.E. Carranza ja D.W. Hahn, „Temporal analysis of laser-induced plasma properties as related to laser-induced breakdown spectroscopy”, Spectrochimica Acta Part B 59 327–333 (2004).
12. X. Wang, S. Zhang, X. Cheng, E. Zhu, W. Hang ja B. Huang, „Ion kinetic energy distributions in laser-induced plasma”, Spectrochimica Acta Part B 99 101–114 (2014).

13. N. M. Bulgakova, A. V. Bulgakov ja O. F. Bobrenok, „Double layer effects in laser-ablation plasma plumes”, *Physical Review E* Volume 62 No 4 (2000).
14. F. Anabitarte, A. Cobo ja J. M. Lopez-Higuera, „Laser-Induced Breakdown Spectroscopy: Fundamentals, Applications, and Challenges”, *ISRN Spectroscopy Volume 2012* (2012).
15. S. Musazzi ja U. Perini, *Laser-Induced Breakdown Spectroscopy: Theory and Applications* (Springer, 2014)
16. A. W. Miziolek, V. Palleschi ja I. Schechter, *Laser-Induced Breakdown Spectroscopy: Fundamentals and Applications* (Cambridge University Press, 2006)
17. National Institute of Standards and Technology, NIST Atomic Spectra Database Levels Form, [http://physics.nist.gov/PhysRefData/ASD/levels\\_form.html](http://physics.nist.gov/PhysRefData/ASD/levels_form.html) (vaadatud 03.05.2016).
18. M. Satir, F. Sik, E. Turkoz, M. Celik, „Design of the Retarding Potential Analyzer to be used with BURFIT-80 Ion Thruster and Validation using PIC-DSMC Code”, Conference: 7th International Conference on Recent Advances in Space Technologies, Istanbul, Türgi, 16 – 19 juuni 2015.
19. X. Wang, S. Zhang, X. Cheng, E. Zhu, W. Hang ja B. Huang, „Ion kinetic energy distributions in laser-induced plasma”, *Spectrochimica Acta Part B* 99 101–114 (2014).
20. S. J. Hill, *Inductively coupled plasma spectrometry and its applications* (Wiley-Blackwell, 2007).
21. A. D. Giacomo, „Experimental characterization of metallic titanium-laser induced plasma by time and space resolved optical emission spectroscopy”, *Spectrochimica Acta Part B* 58 71–83 (2003).
22. R. Alvarez, A. Rodero ja M. C. Quintero, „An Abel inversion method for radially resolved measurements in the axial injection torch”, *Spectrochimica Acta Part B Atomic Spectroscopy* (2002).
23. K. Piip, G. De Temmerman, H.J. van der Meiden, A. Lissovski, J. Karhunen, M. Aints, A. Hakola, P. Paris, M. Laan, J. Likonen, I. Jõgi, J. Kozlova ja H. Mändar, „LIBS analysis of tungsten coatings exposed to Magnum PSI ELM-like plasma”, *Journal of Nuclear Materials* 463 919–922 (2015).
24. S. S. Harilal, N. Farid, A. Hassanein ja V. M. Kozhevnikov, „Dynamics of femtosecond laser produced tungsten nanoparticle plumes”, *Journal of Applied Physics* 114, 203302 (2013).
25. N. Gierse, *Assessment of Laser Induced Ablation Spectroscopy (LIAS) as a method for quantitative in situ surface diagnostic in plasma environments* (Forschungszentrum Jülich GmbH, 2014).

## Lisad

### Lisa 1. Kaamera viite- ja säriajad

Kaadri number	Viiteaeg (ns)	Säriaeg (ns)
1	40	8
2	48	10
3	57	11
4	69	14
5	82	16
6	97	19
7	116	23
8	138	28
9	163	33
10	194	39
11	229	46
12	272	54
13	322	64
14	381	76
15	451	90
16	533	107

## **Lihtlitsents lõputöö reprodutseerimiseks ja lõputöö üldsusele kättesaadavaks tegemiseks**

Mina, Lauri Hämarik,

1. annan Tartu Ülikoolile tasuta loa (lihtlitsentsi) enda loodud teose

„Laetud osakeste dünaamika volframi laserindutseeritud plasmas”,

mille juhendaja on Kaarel Piip,

1.1. reprodutseerimiseks säilitamise ja üldsusele kättesaadavaks tegemise eesmärgil, sealhulgas digitaalarhiivi DSpace-is lisamise eesmärgil kuni autoriõiguse kehtivuse tähtaja lõppemiseni;

1.2. üldsusele kättesaadavaks tegemiseks Tartu Ülikooli veebikeskkonna kaudu, sealhulgas digitaalarhiivi DSpace'i kaudu kuni autoriõiguse kehtivuse tähtaja lõppemiseni.

2. olen teadlik, et punktis 1 nimetatud õigused jäävad alles ka autorile.

3. kinnitan, et lihtlitsentsi andmisega ei rikuta teiste isikute intellektuaalomandi ega isikuandmete kaitse seadusest tulenevaid õigusi.

Tartus, **30.05.2016**