

doi: 10.11823/j.issn.1674-5795.2026.03.02

高压放电增强飞秒激光诱导等离子体光谱研究

朱志峰¹, 李晓峰¹, 武腾飞^{1,2*}, 高强³, 李博³

(1. 中国航空工业集团公司北京长城计量测试技术研究所, 北京 100095;

2. 北京理工大学光电学院, 北京 100081; 3. 天津大学先进内燃动力全国重点实验室, 天津 300350)

摘要: 针对传统飞秒激光诱导等离子体光谱信号强度低、检测灵敏度有限的问题, 提出一种高压放电增强飞秒激光诱导等离子体光谱方法。采用放电辅助增强飞秒激光诱导等离子体光谱, 以铜元素为研究对象, 对比分析不同放电条件下的光谱响应以及整个过程的时间分辨光谱特征。实验结果表明: 放电可显著提升光谱信号强度, 在 7 kV 条件下, Cu II 521 nm、Cu I 578 nm 和 Cu I 793 nm 三条谱线的强度相较无放电条件分别增强约 22 倍、31 倍和 36 倍, 不同谱线对电压的响应存在差异。时间分辨光谱表明放电增强信号主要源于等离子体荧光寿命延长。研究成果为发展高灵敏度、高稳定性等离子体光谱分析技术提供重要参考, 对推动激光诱导等离子体光谱在材料分析、痕量检测等相关领域的应用具有积极意义。

关键词: 等离子体光谱; 飞秒激光; 高压放电; 等离子体; 荧光寿命; 信号强度; 高灵敏度; 高稳定性

中图分类号: TB9; O43

文献标志码: A

文章编号: 1674-5795 (2026) 03-0008-07

High-voltage discharge-enhanced femtosecond laser-induced plasma spectroscopy

ZHU Zhifeng¹, LI Xiaofeng¹, WU Tengfei^{1,2*}, GAO Qiang³, LI Bo³

(1. AVIC Changcheng Institute of Metrology & Measurement, Beijing 100095, China; 2. School of Optics and Photonics, Beijing Institute of Technology, Beijing 100081, China; 3. State Key Laboratory of Engines, Tianjin University, Tianjin 300350, China)

Abstract: To address the low signal intensity and limited detection sensitivity of traditional femtosecond laser-induced plasma spectroscopy, the high-voltage discharge-enhanced femtosecond laser-induced plasma spectroscopy method has been proposed. Using discharge-assisted femtosecond laser-induced plasma spectroscopy, taking copper element as the research object, this study comparatively analyzed spectral responses under different discharge conditions and the time-resolved spectral characteristics of the entire process. Experimental results indicate that the discharge can enhance the spectral signal intensities significantly. At 7 kV, the intensities of the three spectral lines (Cu II 521 nm, Cu I 578 nm, and Cu I 793 nm) are enhanced by factors of 22, 31, and 36, respectively, compared to those without discharge. Different spectral lines exhibit distinct responses to the applied voltage. Time-resolved spectral analysis indicates that the discharge-enhanced signal primarily originates from the prolonged plasma fluorescence lifetime. This study provides a reference for the development of highly sensitive and stable plasma spectroscopic analysis techniques. This method plays a positive role in advancing the application of laser-induced plasma spectroscopy in related fields such as materials analysis and trace detection.

Key words: plasma spectroscopy; femtosecond laser; high-voltage discharge; plasma; fluorescence lifetime; signal intensity; high sensitivity; high stability

收稿日期: 2025-11-11; 修回日期: 2026-02-26; 录用日期: 2026-03-02; 发表日期: 2026-06-28

基金项目: 国家“十四五”计量技术基础科研计划项目(JSJL2022205XXXX)

引用格式: 朱志峰, 李晓峰, 武腾飞, 等. 高压放电增强飞秒激光诱导等离子体光谱研究[J]. 计测技术, 2026, 46(3): 8-14.

Citation: ZHU Z F, LI X F, WU T F, et al. High-voltage discharge-enhanced femtosecond laser-induced plasma spectroscopy[J]. Metrology & Measurement Technology, 2026, 46(3): 8-14.



0 引言

激光诱导等离子体光谱技术(Laser-Induced Plasma Spectroscopy, LIPS)也称激光诱导击穿光谱技术(Laser-Induced Breakdown Spectroscopy, LIBS),是一种通过激光激发样品使其产生等离子体,利用等离子体辐射中的原子或离子光谱信息来分析被测区域成分的测量方法。该技术具备光学结构简单、适用样品范围广、可实现实时在线检测等优势,因此被广泛应用于气体、液体、固体等多种物质的分析^[1-4],在工业检测、医疗诊断、环境监测、地质勘探乃至行星探测等诸多领域都具有重要的应用价值^[5-7]。从适用性角度而言,目前激光诱导等离子体光谱技术是通用性极高的光学元素成分分析技术之一。

激光诱导等离子体光谱技术最常见的形式为纳秒激光诱导等离子体光谱技术。该技术利用高强度纳秒激光诱导样品发生雪崩电离,形成局部热平衡等离子体,通过测量处于局域热平衡状态、高度解离的等离子体发射光谱进行元素成分测量^[8]。然而,该过程本身具有较强的随机性,导致纳秒激光诱导等离子体光谱技术在实际测量中仍面临一系列挑战,如易受连续辐射背景影响、基体效应显著、定量分析结果稳定性不足、部分元素的检测限较高^[9]等。

相比之下,飞秒(Femtosecond, FS)激光诱导等离子体光谱技术单脉冲能量较低,产生的连续辐射背景远弱于纳秒激光,使得光谱采集可提前至等离子体形成初期,有效降低了连续辐射背景对信号的外部干扰^[10-11]。然而,飞秒激光诱导的等离子体信号强度通常较弱,限制了其检测灵敏度。为此,本研究引入高压放电增强方法^[12-14],通过外部电场耦合进一步提升等离子体发射谱线的强度,从而增强信号,提高元素成分的探测能力。

目前,利用放电增强激光诱导等离子体光谱的研究更多聚焦于放电对纳秒激光诱导等离子体光谱的增强作用。VIEIRA A L等人^[15]将火花放电系统与激光诱导击穿光谱相结合,提高了肥料中磷的测定灵敏度。SOBRAL H等人^[16]利用方形电压脉冲增强激光诱导击穿光谱信号,信噪比能够提

高一个数量级。HE X Y等人^[17]利用火花放电来重新激发由重复频率为1 kHz的飞秒激光诱导的等离子体,对铝合金中的铬、锰、镁和铜等元素进行测量,提高了这些元素的检出极限。

上述研究为分析放电对纳秒激光诱导等离子体光谱强度、测量信号信噪比、测量极限等方面的影响提供了借鉴,但目前仍缺乏分析高压放电如何影响飞秒激光诱导等离子体光谱演化的研究。基于此,本文采用飞秒激光诱导等离子体光谱技术,结合高压脉冲放电增强手段,系统探究放电过程对等离子体演化与解离行为的影响,重点分析电压变化对光谱信号强度的影响,以及等离子体信号寿命的演化规律,以期后续实现高灵敏度元素成分检测提供实验依据与理论参考。

1 实验装置

实验装置如图1所示。飞秒脉冲激光器(型号为Spitfire Ace, Spectra-Physics)发出的激光波长为800 nm,频率为1 000 Hz,脉宽为70 fs,激光能量为2.8 mJ/pulse。使用焦距为100 mm的透镜将激光垂直聚焦于样品表面,产生激光诱导等离子体。实验样品为紫铜金属板(Cu含量在99.9%以上)。等离子体发射光谱由焦距为100 mm的聚焦透镜收集并耦合到成像光谱仪(型号为Acton SP-2300i)的狭缝中进行采集,光谱仪的积分时间可调。高压直流脉冲电源(型号为HVP20)可以产生频率和强度可调的脉冲方波电压。电源正极接圆锥形电极(材料为钨),负极接铜样品,正极距离样品3 mm,样品置于旋转平台并以一定角速度旋转。实验周围环境为空气,压力为0.1 MPa,温度为300 K。使用

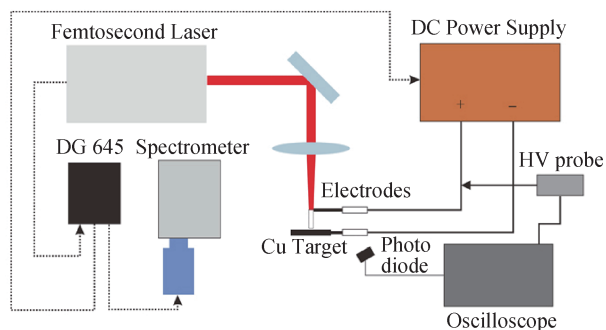


图1 实验装置图

Fig.1 Experimental setup

数字延迟脉冲发生器(型号为DG645)同步激光器、电源以及光谱仪的时序。在电源正负极分别放置高压探头(型号为P6015A)和电流探头(型号为TCP2020),并连接示波器(型号为WaveRunner 606zi)监测放电电压和电流,同时使用光电二极管(型号为DET10A/M)连接示波器监测等离子体发光信号。

2 实验原理

利用放电增强飞秒激光诱导等离子体光谱中,“时序”是其中的重要参数。时序特指高压放电脉冲与飞秒激光脉冲之间的相对时间关系。图2展示了放电增强飞秒激光诱导等离子体的电压、电流以及激光脉冲信号。在 $t = 0$ ns时刻,电场开始建立,电压逐渐上升,在 $t = 100$ ns时,飞秒激光脉冲到达电场之中,定义此时的时间间隔为100 ns。飞秒激光首先和样品相互作用产生等离子体,之后等离子体诱导电极放电,此时电极电压开始下降,电流开始上升。放电过程中,激光诱导的等离子体会逐渐向外膨胀,放电路径上的粒子会被再次激发,增强等离子体发射光谱的谱线强度。图3展示了放电电压为3 kV和没有放电采集的等离子体发射光谱图,可以发现:显示的主要是Cu原子和离子的谱线,相对于单纯飞秒激光诱导产生的等离子体光谱,放电会大大增强等离子体光谱的谱线强度。

3 实验结果分析

3.1 电压-信号分析

电压会影响放电的强度,因此电压是影响光谱信号强度的重要参数之一。在采集延迟时间为

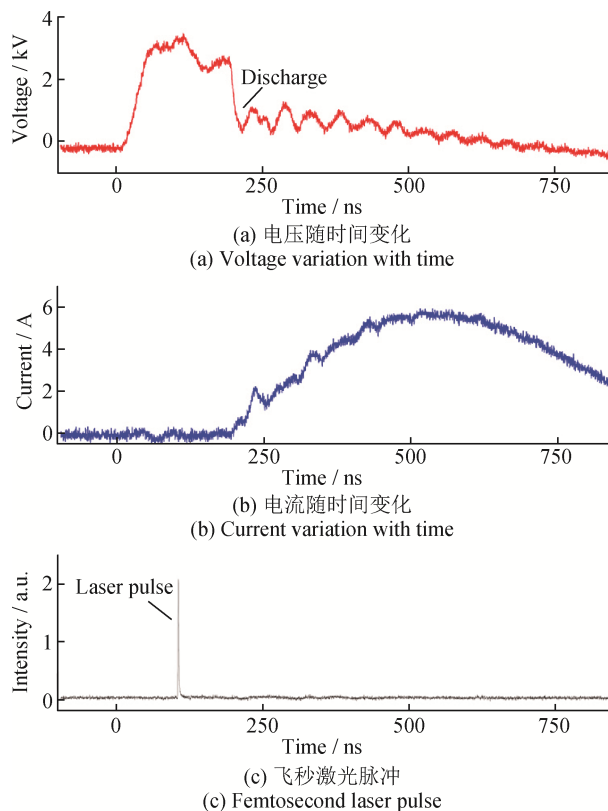


图2 放电增强飞秒激光诱导等离子体的电压、电流以及激光脉冲信号

Fig.2 Voltage, current, and laser pulse signal of the discharge-enhanced femtosecond laser-induced plasma

300 ns、门宽为20 μ s、时间间隔为0 ns的条件下,采集不同电压下的光谱信号,结果如图4所示,其中,0 kV处数据代表无外加电压时仅由飞秒激光直接激发产生的等离子体光谱信号。根据图4可知:随着电压升高,光谱信号整体强度呈现逐渐增强的趋势。

图5展示了谱线强度比值随电压的变化,纵坐标是放电情况下的谱线强度和没有放电情况下谱

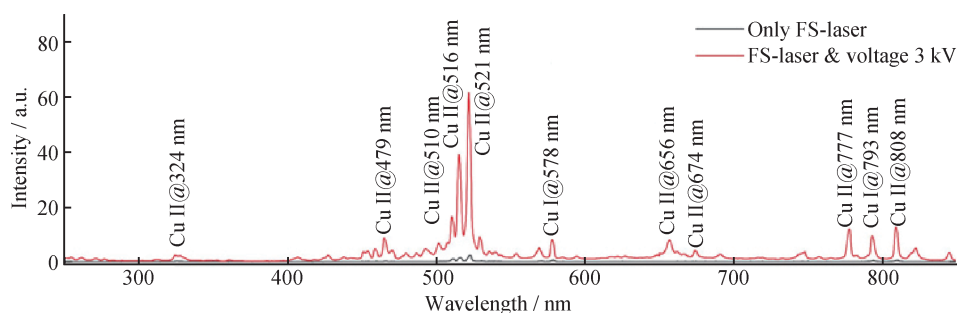


图3 激光诱导等离子体激光谱和放电增强的等离子体光谱

Fig.3 Laser-induced plasma spectra and discharge-enhanced femtosecond laser-induced plasma spectra

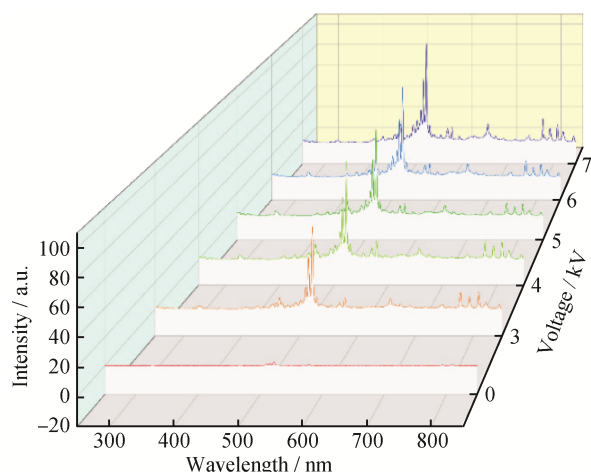


图4 不同电压下光谱谱线

Fig.4 The spectra at different voltages

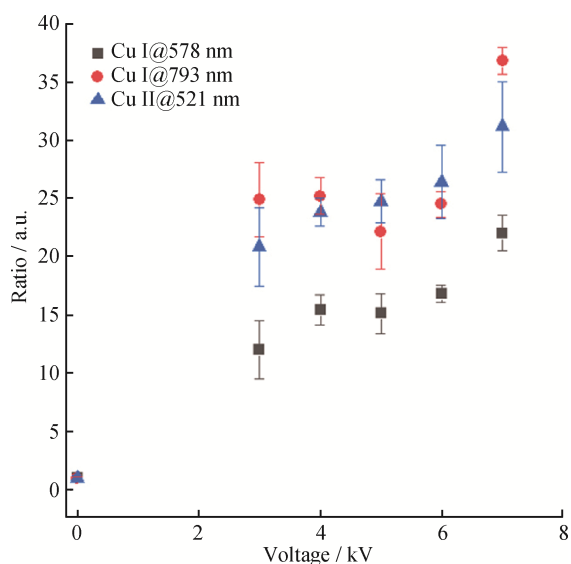


图5 谱线强度比值随电压变化

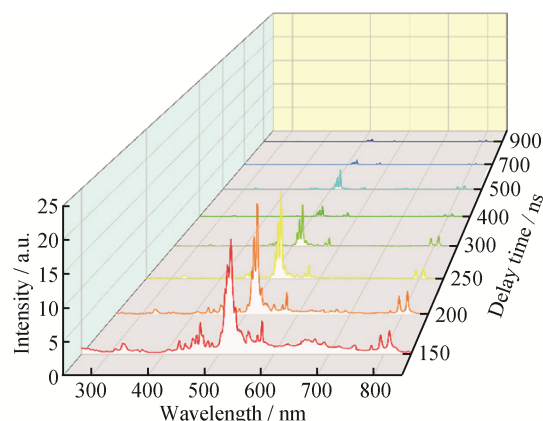
Fig.5 Variation of spectral intensity ratio with the voltage

线强度的比值。在本研究中,电极与样品间距为3 mm。当施加电压低于3 kV时,即使在飞秒激光预先诱导产生初始等离子体的辅助作用下,电极间的电场强度仍无法达到空气击穿的临界阈值,不能触发稳定、可观测的电极放电过程;当施加电压大于7 kV时,电极间电场强度已远超空气自击穿的临界条件,会直接发生无诱导条件下的空气自由放电,此时放电行为由高压电场主导,难以有效区分激光诱导产生的初始等离子体对放电过程的贡献,无法精准表征电压对等离子体光谱的独立影响。因此,本文主要研究电压在3 ~ 7 kV条件下放电对飞秒激光诱导等离子体光谱的影响。

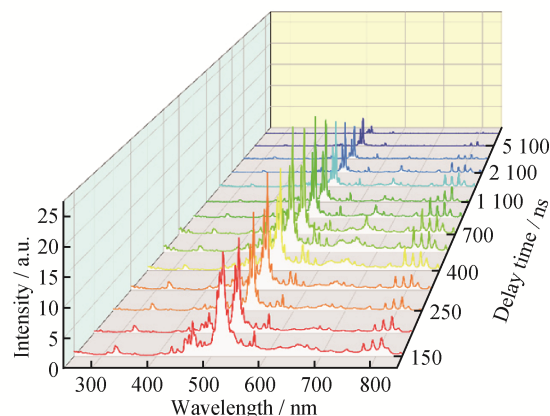
图5中展示的Cu II 521 nm、Cu I 578 nm和Cu I 793 nm三条特征谱线的强度比值随电压的变化进一步验证了上述规律。在7 kV条件下,相较于0 kV时的信号,这三条谱线的强度分别增强了约22倍、31倍和36倍。这一差异表明:不同原子与离子谱线对电压的响应特性并不完全相同,可能与整个过程中放电等离子体温度以及电子密度的变化有关,也可能与能级结构、激发机制等因素有关。因此,在实际应用中需针对具体谱线进行系统标定,并深入探究其增强机制,以优化光谱检测的灵敏度与准确性。

3.2 荧光寿命分析

对飞秒激光诱导等离子体与放电增强条件下等离子体的光谱信号强度随时间演化规律进行对比分析,结果如图6所示。其中,图6(a)为单纯飞



(a) 飞秒激光诱导等离子体随时间演化光谱
(a) Spectral evolution of femtosecond laser-induced plasma over time



(b) 放电增强飞秒激光诱导等离子体随时间演化光谱
(b) Spectral evolution of discharge-enhanced femtosecond laser-induced plasma over time

图6 等离子体随时间演化光谱

Fig.6 Evolution of plasma spectra with time

秒激光诱导等离子体的信号强度随时间变化曲线,图6(b)为电压在3 kV条件下获得的等离子体信号强度随时间的演化曲线。每条光谱数据的采集门宽均为50 ns。

通过对飞秒激光诱导等离子体与放电增强等离子体的对比分析,可以观察到以下现象:在等离子体初始形成阶段,两种条件下的信号强度较为接近,表明放电并未显著改变等离子体的初始辐射特性。然而,随着时间演化,二者呈现出明显不同的衰减行为——放电增强条件下的信号衰减速率远低于单纯飞秒激光诱导的等离子体的信号衰减速率。这一结果说明:放电增强的作用机制不仅在于对信号幅值的瞬时提升,更重要的是通过电场能量的持续注入,有效延缓了等离子体的复合与冷却过程^[18-19],从而显著延长了等离子体的持续时间。换言之,放电增强对光谱信号的主要贡献来自电场作用下等离子体寿命的延长,其次才是峰值强度的直接提升。

图7展示了Cu II 521 nm、Cu I 578 nm和Cu I 793 nm三条谱线强度随时间的演化情况,可以发现:三条谱线的强度随时间逐渐降低,约200 ns后,由于放电影响,等离子体光谱信号的强度重新抬升,达到最高值后逐步下降。飞秒激光诱导产生等离子体后,会在电场中产生大量的电子,为后续高压放电提供了充足的初始电子,能够促进放电的起始与发展。另外,激光诱导产生的等离子体在生成后会向外膨胀,导致电极间局部气体密度下降^[18],进而降低了空气的放电击穿阈值。在放电击穿之后,放电路径上的激光诱导等离子体粒子会被二次激发^[19],因此等离子体光谱谱线会被再次激发加强。约200 ns放电击穿之后,电压会逐渐下降,电流会逐渐上升,而单纯激光诱导等离子体光谱的谱线强度在此时间后已经大幅衰减,因此,在约200 ns之后等离子体光谱的演化主要由电极间放电等离子体所主导。

根据图7分析可知:放电可以增强FS-LIBS的信号强度,同时FS-LIBS与Discharge-FS-LIBS的信号波动幅度相当,这表明放电在显著增强飞秒激光诱导等离子体光谱信号强度、提升检测灵敏度的同时,未放大体系测量信号波动,有效保持了

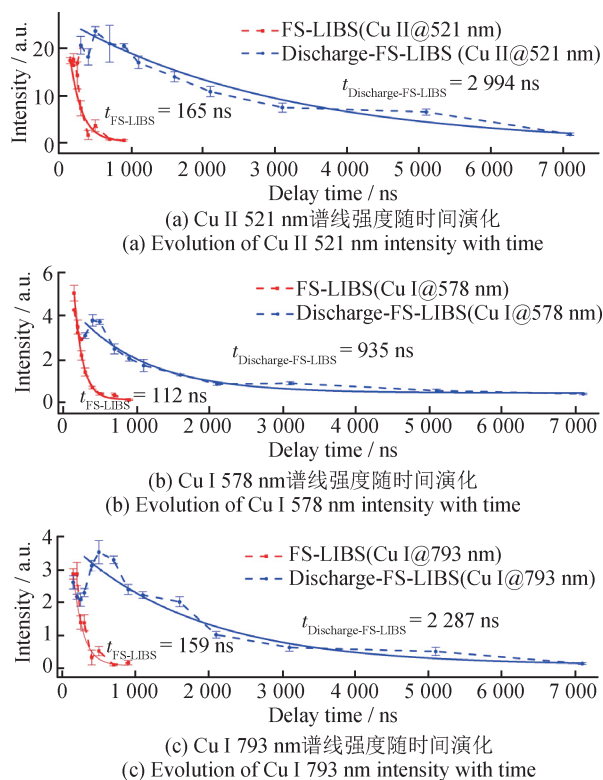


图7 Cu II 521 nm、Cu I 578 nm和Cu I 793 nm谱线强度随时间演化

Fig.7 Evolution of Cu II 521 nm, Cu I 578 nm, and Cu I 793 nm intensities with time

原有的信号稳定水平,为后续发展高灵敏度、高稳定性等离子体光谱分析技术提供了具体的实验参考。另外Cu的这三条特征谱线的寿命变化进一步验证了“放电增强的作用机制不仅在于对信号幅值的瞬时提升,更重要的是通过电场能量的持续注入,有效延缓了等离子体的复合与冷却过程”这一结论,延长了信号的寿命(本工作将寿命定义为信号强度衰减至初始值 $1/e$ 的时间)^[20]。获得具体数据如下:Cu II 521 nm谱线,增强前寿命为165 ns,增强后寿命延长至2994 ns;Cu I 578 nm谱线,增强前寿命为112 ns,增强后寿命为935 ns;Cu I 793 nm谱线,增强前寿命为159 ns,增强后寿命达到2287 ns。这些数据表明:放电使不同谱线的荧光寿命普遍提高了约一个数量级,进一步支持了“放电增强主要来源于等离子体寿命延长”的结论。然而,三条谱线对放电的响应程度存在明显差异,Cu II 521 nm寿命延长约17倍,Cu I 578 nm寿命延长约7倍,Cu I 793 nm寿命延长约

13倍。这种差异可能受到等离子体温度和电子密度的影响,也可能与不同能级粒子在电场中的激发机制、碰撞截面以及能量转移效率等因素有关,值得在后续研究中进一步探讨其物理机制与定量关系。

4 结论

本文对放电增强飞秒激光诱导等离子体光谱特性进行系统研究,围绕电压调控及寿命分析展开深入探讨,主要结论如下:

1) 电压升高对信号强度提升有促进作用,电压是调控光谱信号强度的关键参数。实验表明:在3~7 kV条件下,随着电压升高,Cu II 521 nm、Cu I 578 nm与Cu I 793 nm等谱线强度均呈现显著增强,最高增强倍数分别达22倍、31倍与36倍。不同谱线对电压的响应程度存在差异,反映了激发机制与能态环境的特异性,在实际应用中需结合具体谱线进行标定与优化。

2) 通过对比飞秒激光单独激发与放电增强条件下等离子体信号的时间演化行为可知:放电增强的主要机制源于放电诱发等离子体寿命的延长,而非单纯的瞬时幅值提升。三条典型谱线的寿命在放电后普遍提升约一个数量级,其中,Cu II 521 nm谱线的寿命自165 ns延长至2 994 ns,Cu I 578 nm谱线的寿命自112 ns延长至935 ns,Cu I 793 nm谱线的寿命自159 ns延长至2 287 ns。

3) 谱线响应差异表明各谱线在增强趋势上具有一致性,但其对电压及寿命延长的响应程度存在明显差异,如Cu II 521 nm寿命提升约17倍,而Cu I 578 nm寿命提升约7倍。这一现象暗示不同能级结构与跃迁机制在电场耦合过程中可能具有不同行为,后续需结合等离子体温度变化、电子密度变化、激发态布局以及碰撞能量转移等过程进一步阐释其物理机制。

综上所述,本工作通过研究电压参数,并结合寿命分析,揭示了放电增强飞秒激光诱导等离子体光谱的核心机制,为发展高灵敏度、高稳定性的激光光谱成分分析技术提供了实验依据与理论参考。

参考文献

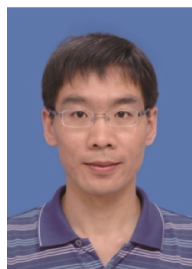
- [1] DUMITRACHE C, YALIN A P. Gas dynamics and vorticity generation in laser-induced breakdown of air[J]. Optics Express, 2020, 28(4): 5835.
- [2] BEDDOWS D C S. Application of laser-induced breakdown spectroscopy to in situ analysis of liquid samples[J]. Optical Engineering, 2000, 39(8): 2248.
- [3] BLOEMBERGEN N. Laser-induced electric breakdown in solids[J]. IEEE Journal of Quantum Electronics, 1974, 10(3): 375-386.
- [4] 李雅楠,胡梦云,许书鹏,等. 等离子体光栅与光丝非线性耦合诱导击穿光谱[J]. 计测技术, 2022, 42(5): 74-85.
LI Y N, HU M Y, XU S P, et al. Breakdown spectroscopy induced by nonlinear coupling of filaments and plasma gratings [J]. Metrology & Measurement Technology, 2022, 42(5): 74-85. (in Chinese)
- [5] CHU Y W, ZHANG Z J, HE Q Y, et al. Half-life determination of inorganic-organic hybrid nanomaterials in mice using laser-induced breakdown spectroscopy [J]. Journal of Advanced Research, 2020, 24: 353-361.
- [6] ALDAKHEEL R K, GONDAL M A, NASR M M, et al. Quantitative elemental analysis of nutritional, hazardous and pharmacologically active elements in medicinal rhatany root using laser induced breakdown spectroscopy [J]. Arabian Journal of Chemistry, 2021, 14 (2): 102919.
- [7] 蔡婷妮,李春来,任鑫,等. 火星车载激光诱导击穿光谱仪(MarsCoDe)在轨道标样品选取研究[J]. 光谱学与光谱分析, 2019, 39(5): 1623-1629.
CAI T N, LI C L, REN X, et al. Research on the selection of mars onboard laser induced breakdown spectrometer (MarsCoDe) calibration samples [J]. Spectroscopy and Spectral Analysis, 2019, 39(5): 1623-1629. (in Chinese)
- [8] FORTES F J, MOROS J, LUCENA P, et al. Laser-induced breakdown spectroscopy[J]. Analytical Chemistry, 2013, 85(2): 640-669.
- [9] ANABITARTE F, COBO A, LOPEZ-HIGUERA J M. Laser-induced breakdown spectroscopy: fundamentals, applications, and challenges [J]. ISRN Spectroscopy, 2012, 2012: 285240.
- [10] LABUTIN T A, LEDNEV V N, ILYIN A A, et al. Femto-second laser-induced breakdown spectroscopy [J]. Jour-

- nal of Analytical Atomic Spectrometry, 2016, 31(1): 90–118.
- [11] GUREVICH E L, HERGENRÖDER R. Femtosecond laser-induced breakdown spectroscopy: physics, applications, and perspectives[J]. Applied Spectroscopy, 2007, 61(10): 233A–242A.
- [12] WANG Y R, JIANG Y H, HE X Y, et al. Triggered parallel discharge in laser-ablation spark-induced breakdown spectroscopy and studies on its analytical performance for aluminum and brass samples[J]. Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy, 2018, 150: 9–17.
- [13] NASSEF O A, ELSAYED-ALI H E. Spark discharge assisted laser induced breakdown spectroscopy[J]. Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy, 2005, 60(12): 1564–1572.
- [14] LI Y C, TIAN D, DING Y, et al. A review of laser-induced breakdown spectroscopy signal enhancement[J]. Applied Spectroscopy Reviews, 2018, 53(1): 1–35.
- [15] VIEIRA A L, SILVA T V, DE SOUSA F S I, et al. Determinations of phosphorus in fertilizers by spark discharge-assisted laser-induced breakdown spectroscopy[J]. Microchemical Journal, 2018, 139: 322–326.
- [16] SOBRAL H, ROBLEDO-MARTINEZ A. Signal enhancement in laser-induced breakdown spectroscopy using fast square-pulse discharges[J]. Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy, 2016, 124: 67–73.
- [17] HE X Y, CHEN B Q, CHEN Y Q, et al. Femtosecond laser-ablation spark-induced breakdown spectroscopy and its application to the elemental analysis of aluminum alloys[J]. Journal of Analytical Atomic Spectrometry, 2018, 33(12): 2203–2209.
- [18] TZORTZAKIS S, PRADE B, FRANCO M, et al. Femtosecond laser-guided electric discharge in air[J]. Physical Review E, 2001, 64(5): 057401.
- [19] ZHOU W D, LI K X, LI X F, et al. Development of a nanosecond discharge-enhanced laser plasma spectroscopy[J]. Optics Letters, 2011, 36(15): 2961–2963.
- [20] DEMTRÖDER W. Laser spectroscopy[M]. Heidelberg: Springer Berlin, 1973.

(本文编辑: 刘圣晨 李成成)



第一作者: 朱志峰(1994—), 男, 工程师, 博士研究生, 主要从事激光诊断技术、飞秒激光测试技术相关研究。



通信作者: 武腾飞(1983—), 男, 研究员, 博士生导师, 主要研究方向为超快精密测量技术。《航空标准化与质量》编委、南航空航天信息与材料物理工信部重点实验室学术委员会委员, 光学工程学会计量标准战略规划委员会委员。长期从事飞秒激光精密测量技术, 激光光子探测等技术研究。先后荣获国防科技进步二等奖2项, 三等奖1项; 发表学术论文30余篇, 其中Q1区5篇; 授权发明专利32项。负责国家自然科学基金青年、面上和重点项目课题、仪器专项等项目。