

激光烧蚀硅所生成的等离子体发射 光谱特性*

王公堂 王象泰 张悻慈

(山东师范大学物理系, 济南 250014)

许炳章 梅良模

(山东大学物理系, 济南 250100)

提要 报道由 Q-开关 Nd:YAG 激光器产生的 $1.06\ \mu\text{m}$ 、 $10\ \text{ns}$ 的脉冲激光辐射大气中的硅靶所产生的等离子体发射光谱的研究结果。当作用在硅靶表面的功率密度为 $9.3 \times 10^9\ \text{W}/\text{cm}^2$ 时, 测定了等离子体在 $200 \sim 880\ \text{nm}$ 波长范围内的时间分辨发射光谱。估计了等离子体点燃的时间, 测定了等离子体中硅原子的推进速度, 讨论了等离子体中 N^+ 离子产生的原因。通过测量等离子体辐射谱线的半高宽随延迟时间的变化, 得到等离子体中电子密度随时间的延迟近似地以 $\exp(-t^{1/2})$ 的关系衰减。

关键词 激光烧蚀, 等离子体辐射, 时间分辨光谱, 电子密度

1 引言

当强脉冲激光作用于固体表面上时, 被激光辐照的区域会高速溶化、蒸发^[1]。在大气环境下, 如果激光功率密度超过一定阈值时, 蒸气会离化, 在大气的参与下, 产生等离子体爆炸波 (LSD Wave)^[2]。用已提出的物理模型去描述这一快速物理现象仍面临一些困难。测量出等离子体的各种物理参量随时间的变化, 例如蒸气的成份、温度、电子密度、LSD 波膨胀的速度等, 将有助于建立可靠的物理模型。从这一目的出发, 我们设计了一个实验装置来测量等离子体物理参量随时间的变化。本实验采用光学多道分析仪 (OMA) 结合快速脉冲延时器的方法, 测量了硅靶在 $1.06\ \mu\text{m}$ 、 $10\ \text{ns}$ 的 Nd:YAG 脉冲激光烧蚀下所产生的瞬态发光等离子体的时间分辨光谱, 得到一些有意义的结果。

2 实验装置

实验装置方框图见图 1。由 Nd:YAG 激光器发出的 $1.06\ \mu\text{m}$ 、 $10\ \text{ns}$ 的脉冲激光经 M_1 、 M_2 、 M_3 组成的延迟光路之后, 由石英透镜会聚在硅靶表面。由激光器给出的 Q-Switch 同步脉冲电信号通过快速脉冲延时器延时后, 触发脉宽 $5\ \text{ns}$ 的快速脉冲发生器, 快速脉冲发生器发出的 $-200\ \text{V}$ 高压脉冲使 OMA 的光电探头选通 $5\ \text{ns}$ 的曝光时间, 从而获得瞬间多达 700 个光谱信

* 国家自然科学基金资助项目。

收稿日期: 1995 年 3 月 7 日; 收到修改稿日期: 1995 年 6 月 13 日。

号。调节快速脉冲延时器的时间延迟,可摄取不同时刻的时间分辨光谱。 L_2 和 L_3 柱面透镜组仅把离靶表面一定距离的线平面上的光子成像在光谱仪的狭缝上,经谱仪色散后被探头接收。平面硅靶和焦距为 15 cm 的石英会聚透镜分别固定在两个二维可调的平台上。在垂直于靶平面的方向同步调节会聚透镜和硅靶的位置,可使谱仪摄取离靶表面不同距离位置处的光谱。

光学多道分析器型号为美国 PARC OMA

III,光电列阵探头型号为 1420G,系统的光谱分辨率为 0.05 nm。激光器型号为 Quanta-Ray DCR-3 Nd:YAG。激光能量用 OPHIR DGX-30A 能量计测量。硅靶样品的纯度为 99.99%,表面经抛光后使用。

3 实验结果和分析

本次实验辐照在硅靶上的激光功率密度为 $9.3 \times 10^9 \text{ W/cm}^2$ 。图 2 和图 3 分别是在离硅靶表面 1 mm 处,波长 390 nm 附近、延迟时间小于 2800 ns 和波长 504 nm 附近、延迟时间小于 300 ns 时的等离子体发射光谱。由图 2 和图 3 可看出,在脉冲激光辐射到硅靶表面 5 ns 时,已有强烈的连续辐射产生,该辐射在持续约 300 ns 后消失。因为连续辐射源于自由电子与离子、原子之间的弹性碰撞(自由-自由辐射,称为韧致辐射)以及自由电子与离子的复合(自由-束缚辐射)^[3]。上述测量结果意味着,在靠近激光烧蚀的靶表面附近喷出的蒸气中,存在着大量的电子、激发态原子和离子;存在着自由电子与激发态的原子和离子的碰撞以及自由电子和离子的复合,而且这个过程发生在激光辐照靶后的 300 ns 的时间以内;在激光辐照硅靶 5 ns 时,靶蒸气中已含有大量的自由电子和离子,等离子体已生成,其存在时间小于 300 ns。

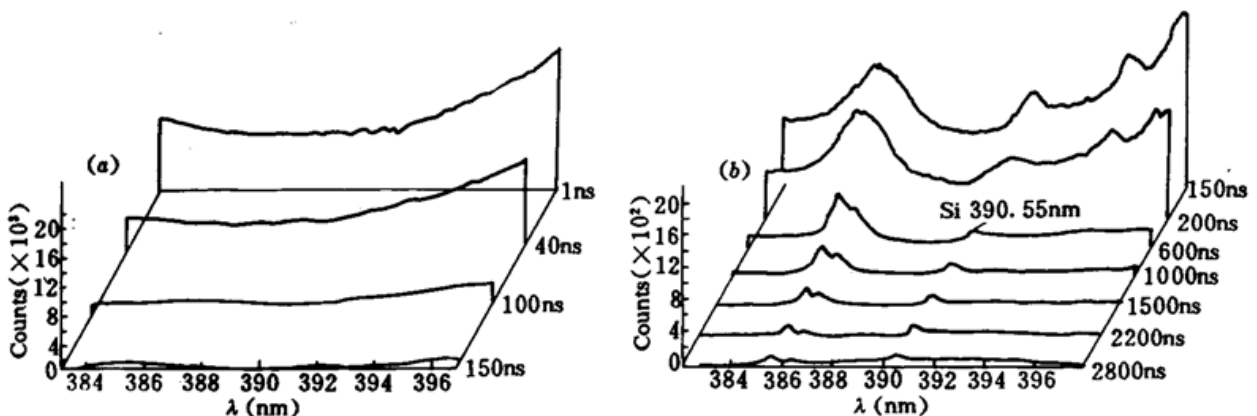


Fig. 2 The temporal evolution of the plasma's emission features recorded 1 mm from the silicon target surface in the spectral region centered at $\lambda = 390 \text{ nm}$, (a) $1 \text{ ns} \leq t_d \leq 150 \text{ ns}$; (b) $150 \text{ ns} \leq t_d \leq 2800 \text{ ns}$

图 2 显示 Si 原子的 390.55 nm 谱线信号最初是在激光辐照靶后 120 ns 时才可辨认出来,随着时间的推移达到最强,持续时间长达 2800 ns。由图 3 可看到,在波长 500.52 nm 处,有一个被增宽了的 N^+ 离子的分离谱线叠加在连续辐射光谱之上。这条谱线在激光作用靶后大约 30 ns 时开始出现,强度随着延迟时间而变化,并在持续大约 300 ns 后消失。在等离子体

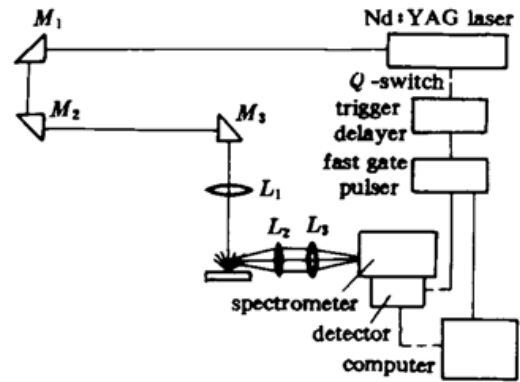


Fig. 1 Schematic diagram of the experimental apparatus for plasma monitoring

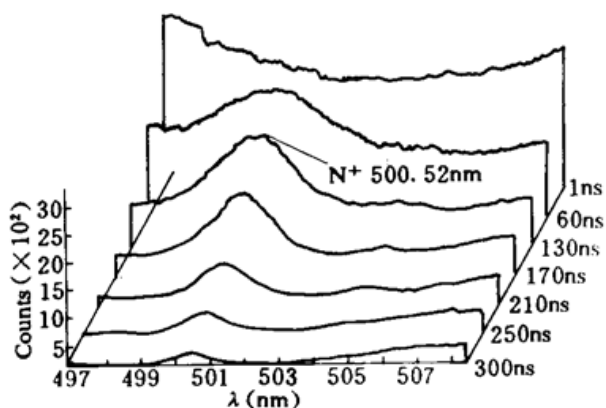


Fig. 3 The temporal evolution of the plasma's emission features recorded 1 mm from the silicon target surface in the spectral region centered at $\lambda = 504$ nm

中有大量的 N^+ 离子出现是值得注意的一个问题。因为实验用的激光功率密度为 $9.3 \times 10^9 \text{ W/cm}^2$, 远小于空气的击穿阈值 $7 \times 10^{10} \text{ W/cm}^2$ ^[4], 所以由脉冲激光引起空气中的氮分子发生击穿电离的可能性是不存在的。因此靶表面等离子体中的 N^+ 离子的出现肯定与靶的存在有关。连续辐射光谱和 N^+ 离子的谱线存在于同一时间内的测量结果可能暗示, 等离子体中的 N^+ 离子是由通过反韧致辐射吸收了激光能量的电子与空气碰撞, 使氮原子发生级联电离过程产生的^[3,5~7]。至于发生级联电离过程所需的最初的电子我们认为来源于靶表面蒸气中的热电离电子。考虑到在等离子体生成的初期, 由靶表面喷出蒸气中的靶

材料原子和离子具有相当高的动能(大于 100 eV)^[8~11], 这些原子和离子在与空气碰撞时, 使氮分子发生碰撞电离可能是产生 N^+ 离子的另一个原因。

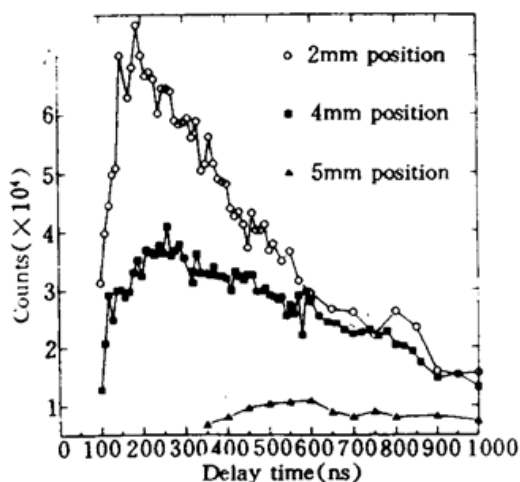


Fig. 4 The relative intensities of the 390.55 nm Si atom emission line as a function of time at three locations, 2 mm, 4 mm and 5 mm from the target surface

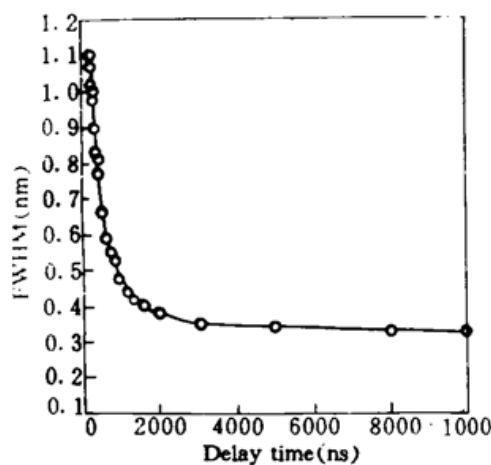


Fig. 5 The FWHM of the 390.55 nm Si atom emission line as a function of time at a location of 1 mm from the target surface

从图 2 和图 3 可看出, Si 原子的 390.55 nm 和 N^+ 离子的 500.52 nm 辐射谱线强度都是时间的函数。因为原子或离子的激发态电子的密度与其相应的辐射谱线的强度(辐射谱线下的面积)成正比, 由图 2 和图 3 可得到在离靶表面 1mm 处, 等离子体中处于相应激发态的原子或离子的密度随时间的变化特征。图 4 是测得的在离靶表面距离不同的几个位置处, 等离子体中 Si 原子的 390.55 nm 辐射谱线随时间的变化图。在离靶表面 2 mm 处, Si 原子的分布峰出现在 190 ns 处, 而在离靶 4 mm 处峰出现在 260 ns 处, 由此可估算出 Si 原子的平均速度为 $2.9 \times 10^6 \text{ cm/s}$, 该速度相应的动能是 120 eV。等离子体中发出辐射的粒子因受到周围电子和

离子产生的局域电场的微扰,其分立的谱线会出现 Stark 加宽。通过测量分立谱线的 Stark 加宽,可计算出等离子体中的电子密度。图 5 是测出的在离靶表面 1mm 处,由 Stark 加宽引起的 Si 原子 390.55 nm 辐射谱线的半高宽(FWHM)随时间的变化曲线。对该曲线拟合,发现其很好地符合 $\exp(-t^{1/2})$ 关系。而且我们测量发现原子的其它辐射光谱线的 FWHM 也满足这个关系。对等离子体中的中性原子,由 Stark 效应引起的辐射谱线的半高全宽度 $\Delta\lambda_{1/2}$ 与电子密度 N 的关系^[3]为:

$$\Delta\lambda_{1/2} = 2W\left(\frac{N}{10^{16}}\right) + 3.5A\left(\frac{N}{10^{16}}\right)^{1/4}\left[1 - \frac{3}{4}N_D^{-1/3}\right]W\left(\frac{N}{10^{16}}\right) \quad (1)$$

这里 W 和 A 分别是电子碰撞增宽参数和离子碰撞增宽参数,是电子温度的慢变化函数,与电子密度 N 无关。 N_D 是德拜球内的粒子数。由于等离子体内的中性原子和一次电离离子的孤立谱线的 Stark 增宽主要是由电子碰撞引起的,由准静态离子引起的加宽是较次要的^[3,5,8],仅需考虑(1)式中右边的第一项。对系数 W ,这里可近似地视为常数^[5]。由公式(1)得到,等离子体中电子密度随时间近似地以 $\exp(-t^{1/2})$ 指数关系衰减。

4 实验结论

在 1.06 μm 、10 ns 功率密度为 $9.3 \times 10^9 \text{ W/cm}^2$ 的脉冲激光辐照到空气中的硅靶表面后 5 ns 以内,硅靶蒸气已被大量电离,等离子体已形成,同时等离子体中的大量高动能的电子与原子和离子发生碰撞,辐射出强烈的韧致辐射。在等离子体形成的初期,大量的具有高动能的电子、硅原子、硅离子与空气碰撞使空气发生碰撞电离产生 N^+ 离子。等离子体中的 Si 原子的膨胀速度大约是 $2.9 \times 10^6 \text{ cm/s}$,等离子体生成后,其电子密度随时间延迟近似以 $\exp(-t^{1/2})$ 指数关系衰减。利用本实验装置可方便地监测短脉冲激光与物质相互作用的瞬态过程,测出各种物理量随时间的变化对建立描述脉冲激光与物质作用的物理模型有重要意义。

参 考 文 献

- 1 D. I. Rosen, D. E. Hastings, G. M. Wel. Coupling of pulsed 0.35 μm laser radiation to titanium alloys. *J. Appl. Phys.*, 1982, 53:5882~5890
- 2 Y. P. Raizer. Heating of a gas by a powerful light pulse. *Sov. Phys. JETP*, 1965, 21:1009~1011
- 3 G. Befeki. Principles of Laser plasmas, edited by G. Befeki. New York; Wiley Interscience, 1976. 550~627
- 4 A. F. Haught, R. F. Heyerand, D. C. Smith. Electrical Breakdown of Gases by Optical Frequency Radiation. *Physics of Quantum Electronics*, P. L. Kelley, B. Lax, P. E. Tannenwald (Eds.) New York; McGraw-Hill, 1966. 481
- 5 H. K. Griem. Plasma Spectroscopy. New York; McGraw-Hill, 1964. 60~190
- 6 R. W. McWhirter. Plasma Diagnostic Techniques, ed. R. H. Huddlestone and S. L. Leonard. New York; Academic, 1976. 110~202
- 7 A. F. Haught, D. H. Polk. High-temperature plasmas produced by laser beam irradiation of single solid particles. *Phys. Fluids*, 1966, 9:2047~2056
- 8 Paul J. Wolf. The plasma properties of laser-ablated SiO_2 . *J. Appl. Phys.*, 1992, 72(4):1280~1289
- 9 N. R. Isenor. High-energy ions from a Q-Switched laser. *Can. J. Phys.*, 1964, 42:1413~1416
- 10 B. E. Paton, N. R. Isenor. Energies and quantities of ions in laser-produced metal plasmas. *Can. J. Phys.*, 1968, 46:1237~1239
- 11 D. E. Lencioni. Laser-induced air breakdown for 1.06 μm radiation. *Appl. Phys. Lett.*, 1974, 25:15~17

The Plasma Emission Spectrum of Laser-ablated Silicon in Air

Wang Gongtang Wang Xiangtai Zhang Yici

(*Department of Physics, Shandong Normal University, Jinan 250014*)

Xu Bingzhang Mei Liangmo

(*Department of Physics, Shandong University, Jinan 250100*)

Abstract Time-resolved emission spectrum from laser-produced plasmas by 1.06 μm , 10 ns laser pulse's irradiation on silicon target surface in air at a flux of $9.3 \times 10^9 \text{ W/cm}^2$ is recorded and analyzed between 200 and 880 nm. The ignition time of the plasma is estimated. The expansion velocity of Si atoms in the plasma is measured. A mechanism of the N^+ ion formation in the plasma is proposed to explain the appearance of N^+ ions observed in the plasma. It was found by means of measuring the variation of the FWHM of plasma's the emission line at different delay time that the electron density in the plasma decreases approximatively as an exponential of $\exp(-t^{1/2})$.

Key words laser ablation, plasma emission, time-resolved spectrum, electron density