

文章编号: 0258-7025(2008)10-1485-06

# 激光诱导 Co 等离子体电子密度的 时间空间演化特性

张保华<sup>1,2</sup> 刘文清<sup>1</sup> 崔执凤<sup>1</sup>

(<sup>1</sup> 中国科学院安徽光学精密机械研究所大气光学中心, 安徽 合肥 230026)  
<sup>2</sup> 安徽大学电子科学与技术学院, 安徽 合肥 230039)

**摘要** 测定了激光烧蚀 Co 等离子体中 Co 原子 389.408 nm 发射谱线的时间空间分辨发射光谱。由发射光谱线的强度和斯塔克(Stark)展宽计算了等离子体电子密度,并由实验结果讨论了激光等离子体中电子密度的时间空间演化特性。实验结果表明,当延时在 100~1000 ns 变化时,等离子体中的电子密度变化范围为  $0.02 \times 10^{17} \sim 0.73 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ ,在沿激光束方向上,当距离靶表面 0~1.8 mm 范围内变化时,相应的电子密度  $n_e$  范围为  $0.3 \times 10^{17} \sim 0.8 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ ,等离子体电子密度在激光束方向上具有很好的对称性。

**关键词** 光电子学;激光诱导 Co 等离子体;时间空间分辨发射光谱;电子密度

**中图分类号** TN 249;O 53 **文献标识码** A **doi**: 10.3788/CJL20083510.1485

## Time and Spatial Evolution of the Electron Density in Laser-Induced Co Plasmas

Zhang Baohua<sup>1,2</sup> Liu Wenqing<sup>1</sup> Cui Zhifeng<sup>1</sup>

(<sup>1</sup>Centre of Atmospheric Optics, Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics,  
Chinese Academy of Science, Hefei, Anhui 230026, China)  
<sup>2</sup>College of Electronic Science and Technology, Anhui University, Hefei, Anhui 230039, China)

**Abstract** The time and spatial-resolved emission spectrum of Co atom 389.408 nm spectra line in laser induced Co plasma was measured. The electron density of plasmas was calculated from the measured intensity and Stark broadening of emission spectral line. The time and spatial evolution properties of the electron density were finally discussed. The measured results show that the plasma electron density is varied from  $0.02 \times 10^{17}$  to  $0.73 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$  when the time delay is in the range from 100 to 1000 ns. It is also concluded that the plasma electron density is varied from  $0.3 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$  to  $0.8 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$  along the direction of the laser beam when the distance from target surface is in the range from 0 to 1.8 mm. The distribution of the plasma electron density along the laser beam has well symmetry.

**Key words** optoelectronics; laser-induced Co plasma; time and spatial resolved emission spectra; electron density

## 1 引言

利用脉冲激光沉积技术可以获得理想化学配比的薄膜,且具有实验装置简单、适用性强、沉积效率高优点,被广泛应用于高温超导体、半导体、铁磁体、类金刚石等薄膜的制备<sup>[1]</sup>。激光等离子体动力学是脉冲激光沉积技术的基础,电子密度是描述等

离子体特性的重要参数,而脉冲激光诱导的等离子体是与时间空间相关的非稳态等离子体。因此对激光等离子体电子密度的时间和空间演化特性进行深入研究,对提高薄膜质量、控制实验条件以及理解激光烧蚀沉积的物理机制,具有实际意义。

研究等离子体中电子密度特性的方法有各种微

收稿日期:2007-10-22;收到修改稿日期:2008-02-01

基金项目:国家自然科学基金(10674002)资助项目。

作者简介:张保华(1962—),女,安徽人,博士研究生,主要从事分子光谱和环境光学领域的理论和实验研究。

导师简介:崔执凤(1963—),男,安徽人,教授,主要从事多原子分子、自由基光谱、激光等离子体及其应用领域研究。

E-mail: zfcui@mail.ahnu.edu.cn (通信作者)

探针、质谱和发射光谱等,前两种方法是有接触的测量方法,最后一种方法是真正的无接触测量,因而得到广泛应用。Perez-Tijerina 等<sup>[2]</sup>研究了在缓冲气体环境下激光诱导等离子体中电子密度和温度随空间的变化关系,没有得到演化特性的规律。Zhao 等<sup>[3]</sup>通过测量缓冲气体环境下 YAG 激光诱导等离子体中 Mg 原子和离子谱线的斯塔克(Stark)展宽,计算得到了电子密度的空间分布,其测量的空间分辨率不高,约为1 mm。唐晓闯等<sup>[4,5]</sup>在激光等离子体发射光谱动力学方面进行了实验研究。杨柏谦等<sup>[6]</sup>测定了强激光等离子体中 Al 原子 K 壳层的发射光谱,利用 Al 的  $L_{\gamma-\alpha}$  谱线翼部的 Stark 展宽,得到了电子密度空间分布的轮廓。本文测定了激光烧蚀 Co 等离子体中 Co 原子时间和空间分辨的 389.408 nm 发射光谱线,通过测定 Co 原子谱线的相对强度和 Stark 展宽,计算得到了电子密度,并由发射光谱线 Stark 展宽的时间空间演化特性,研究了电子密度的时间和空间演化特性。

## 2 实验装置

实验装置原理如图 1 所示,烧蚀光源为 YAG 激光 (India II-20) 的 532 nm 输出,重复频率为 20 Hz,脉宽为 7 ns,光束直径为 6 mm,单脉冲激光能量在 2~100 mJ 范围内可调。脉冲激光束经焦距为 100 mm 石英透镜聚焦垂直入射在 Co 靶表面上,焦点在样品内距离样品表面约 2 mm,可以得到最佳的等离子体发射光谱信号。为了保证每个激光脉冲入射到不同的靶点,用慢速旋转电机控制样品作低速转动(1 r/min),样品处于大气环境中。在与激光束垂直且与样品表面平行的方向上,激光等离子体的发射光谱信号经焦距为 70 mm 的成像透镜两倍放大成像于单色仪 (ACTON, SP-2750) 的入射狭缝处,成像透镜置于可沿与激光束平行方向调节的一

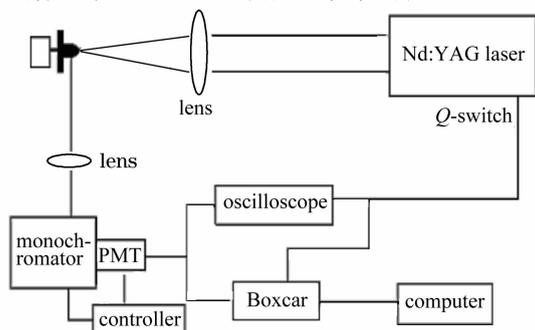


图 1 实验装置简图

Fig. 1 Schematic diagram of the experimental setup

维精密调整架上,成像透镜的空间分辨率为 0.1 mm,在与烧蚀激光束平行方向上的位置调节精度可达 10  $\mu$ m。固定靶和单色仪入射狭缝的位置,调节成像透镜的位置,即可测定激光诱导等离子体沿径向(与激光束平行的方向)不同位置所发射的光谱信号。单色仪的分辨率为 0.023 nm,经过单色仪后的光谱信号由光电倍增管 (PMT) (R376), Boxcar 平均器和计算机完成探测、采集和处理。光电倍增管输出信号同时由数字存储示波器 (TEK460A) 监测。Boxcar 和示波器由 YAG 激光 Q 开关同步输出脉冲触发,通过调节 Boxcar 取样门相对于激光的延时,可以测定激光等离子体演化过程中不同时刻的发射光谱信号。实验中使用的样品为 Alfa Aesar 公司提供的标准钴样品,其中 Co 元素的质量分数为 99.95%。

## 3 实验结果与讨论

### 3.1 发射光谱线 Stark 展宽的测定及其时间演化特性

在等离子体中,原子发射光谱线的线型与其所处的环境有非常复杂的关系,与电子密度、温度也有关系。谱线的主要展宽机制有多普勒(Doppler)和 Stark 展宽,理论计算表明激光等离子体中原子谱线的 Doppler 展宽一般为  $10^{-3}$  nm 量级,而本实验测量谱线的半峰全宽一般为  $10^{-1}$  nm 量级,因此可以忽略 Doppler 展宽。考虑到原子处于电子及离子的包围之中,因此电子、离子和激发态原子之间的长程库仑相互作用导致谱线的 Stark 展宽,其线型为洛伦兹(Lorentz)线型,属于平方 Stark 展宽。Stark 展宽包括相对于孤立原子发射谱线线宽的增大和波长的移动。电子与原子之间的相互作用是影响谱线 Stark 展宽的主要因素,离子仅影响谱线的两翼<sup>[7,8]</sup>。

实验中 Boxcar 取样门宽为 60 ns,探测区域位于距样品表面 0.9 mm 处,激光功率密度为  $2.4 \times 10^9$  W/cm<sup>2</sup>,调节 Boxcar 取样门使得探测相对激光脉冲延时在 100~1000 ns 范围内,实验测定了不同延时下 Co 原子 389.408 nm 光谱线,如图 2 所示。由图可见,随着延时的增加连续背景信号逐渐减弱,谱线宽度先增大后减小,谱线的峰值波长也是先增大后减小。

当延时大于 1100 ns 时,谱线的 Stark 展宽(谱线的半峰全宽和线移)很小,可以认为此时不存在展宽,因此某延时下谱线的 Stark 展宽和线移的大小,

可以由该延时下谱线的宽度和峰值波长分别扣除延时为 1100 ns 时的谱线宽度和峰值波长得到。由此得到的不同延时下 Co 原子 389.408 nm 发射谱线 ( $y^2G_{7/2}^0 \rightarrow a^2F_{5/2}$ ) 的 Stark 展宽和线移, 如图 3 所示。在测定谱线的 Stark 展宽时, 先对测定的谱线进行 Lorentz 拟合, 由拟合参数直接得到谱线宽度

和谱线峰值位置。实验结果表明, 在相同的环境和位置不变的条件下, 随着相对激光脉冲延时的增加, 谱线的 Stark 展宽先增大然后持续减小, 在 250 ns 以前 Stark 展宽快速增加, 以后则缓慢地减小。谱线的 Stark 线移随延时的变化与之相似, 但变化速率要慢一些, 而且也在 250 ns 处达到最大。

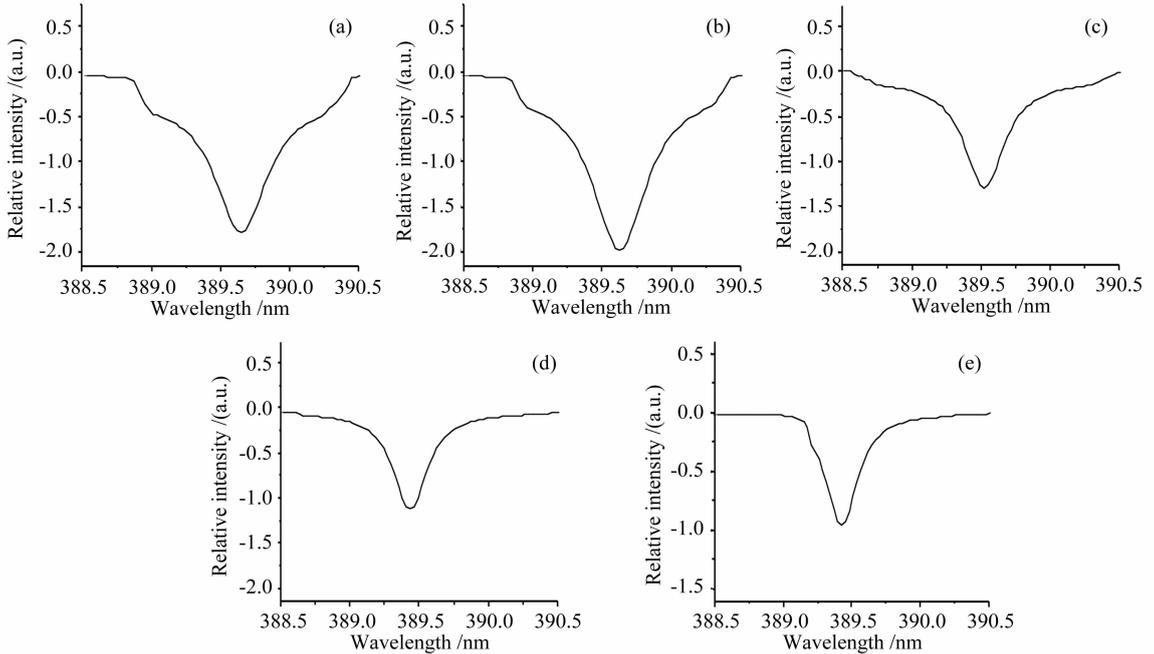


图 2 不同延时下 Co 原子的发射谱

Fig. 2 Emission spectra of Co atom at different time delays. (a) 200 ns; (b) 300 ns; (c) 400 ns; (d) 600 ns; (e) 1100 ns

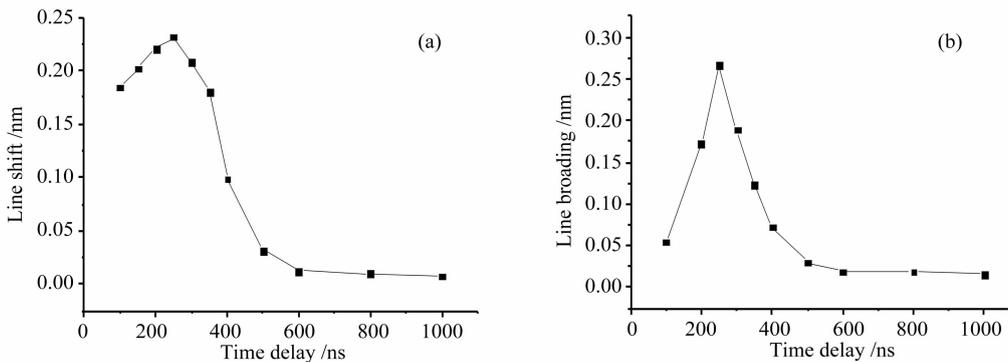


图 3 Co I 389.408 nm 谱线的 Stark 线移(a)和展宽(b)的时间演化特性

Fig. 3 Time evolution of the Stark shift (a) and broadening (b) of I 389.408 nm spectral line for Co atom

### 3.2 电子密度的时间演化特性

谱线产生 Stark 展宽的大小与电子密度有关, 对于平方 Stark 展宽, 可以通过经验公式<sup>[9]</sup> 计算得到电子密度

$$\Delta\lambda_{\text{width}} = [1 + 1.75 \times 10^{-4} n_e^{1/4} \alpha (1 - 0.068 n_e^{1/6} T_e^{-1/2})] \times 10^{-16} \omega n_e, \quad (1)$$

$$\Delta\lambda_{\text{shift}} = [(d/\omega) + 2.0 \times 10^{-4} n_e^{1/4} \alpha (1 - 0.068 n_e^{1/6} T_e^{-1/2})] \times 10^{-16} \omega n_e, \quad (2)$$

式中  $T_e$  为等离子体中的电子温度,  $\omega$  为电子碰撞半峰全宽,  $d/\omega$  为相对电子碰撞线移,  $\alpha$  为离子展宽参

数<sup>[9]</sup>。利用实验测定 Co(I) 389.408 nm 发射谱线的 Stark 展宽和线移, 由(1)和(2)式计算不同延时

下的电子密度。由于(1)和(2)式对电子温度变化不敏感,测定温度的误差不会给电子密度的计算结果带来很大影响<sup>[9,10]</sup>。根据对电子温度测量的实验结果,取  $T_e \approx 25000$  K,计算得到不同延时下等离子体的电子密度值,如图4所示。

从图4可以看出,等离子体中的电子密度数量级为  $10^{17}$   $\text{cm}^{-3}$ ,当延时在  $100 \sim 1000$  ns变化时,电子密度的变化范围为  $0.02 \times 10^{17} \sim 0.73 \times 10^{17}$   $\text{cm}^{-3}$ ,随延时的增加电子密度先增加后

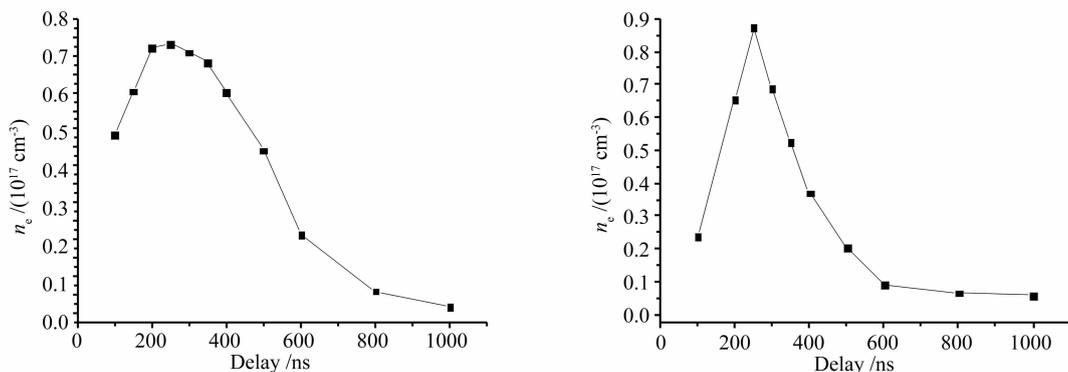


图4 不同延时下的电子密度。(a) Stark线移;(b) Stark展宽

Fig. 4 Electron density at different time delays. (a) Stark line shift; (b) Stark line broadening

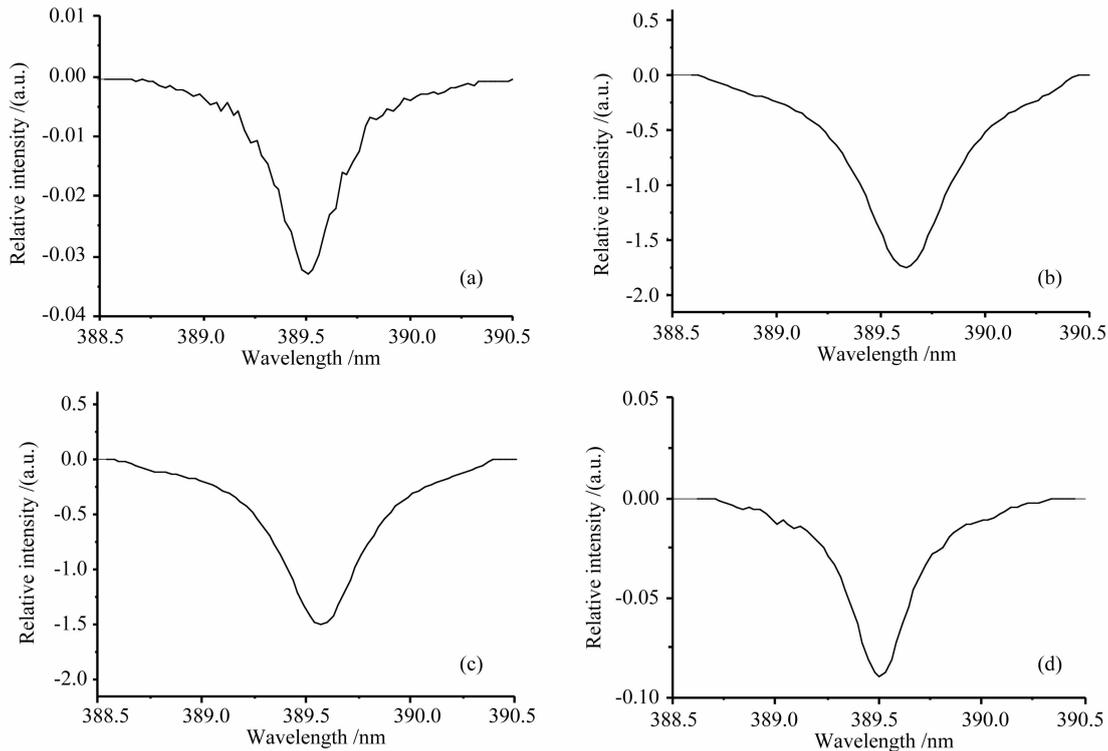


图5 不同径向位置处 Co I 389.408 nm 光谱线

Fig. 5 Co atom I 389.408 nm spectral line at different positions. (a) 0; (b) 0.9 mm; (c) 1.2 mm; (d) 1.8 mm

### 3.3 发射光谱线 Stark 展宽的空间演化特性

图5为实验测定的延时为250 ns时,等离子体中不同径向位置 Co 原子389.408 nm发射谱线,此

下降,在延时为250 ns附近达到最大,随后逐渐减小,但在500 ns时仍然具有较高的电子密度,一直到500 ns以后电子密度才减小到较低的水平。利用 Stark 线移计算得到电子密度与由 Stark 展宽计算得到电子密度随时间变化的趋势基本相同,但由谱线 Stark 展宽和 Stark 线移计算得到的电子密度数值不相等,由 Stark 线移计算得到的电子密度数值比由谱线 Stark 展宽得到的电子密度精确。

延时下该谱线的 Stark 展宽与等离子体不同径向位置的关系如图6所示。由图可见,在延时不变条件下,随着径向距离的增加,谱线的 Stark 展宽和线移

都先增加,在0.9 mm处达到最大,随后径向距离的进一步增大 Stark 展宽和线移开始减小,但线宽变化比线移变化要快一些。谱线 Stark 展宽沿激光束

方向的分布具有很好的对称性,对称中心位于距靶表面0.9 mm处。

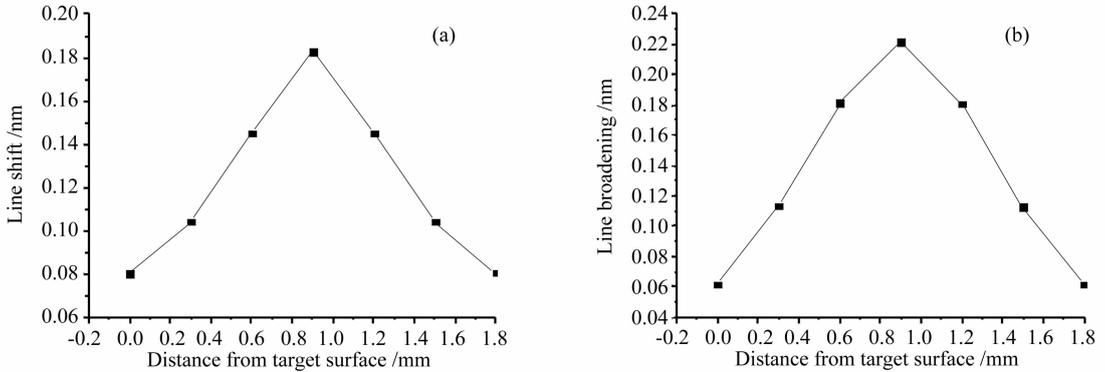


图6 不同径向位置处Co I 389.408 nm谱线的Stark线移(a)和展宽(b)

Fig. 6 Stark shift (a) and broadening (b) of I 389.408 nm spectral line for Co atom at different radial positions

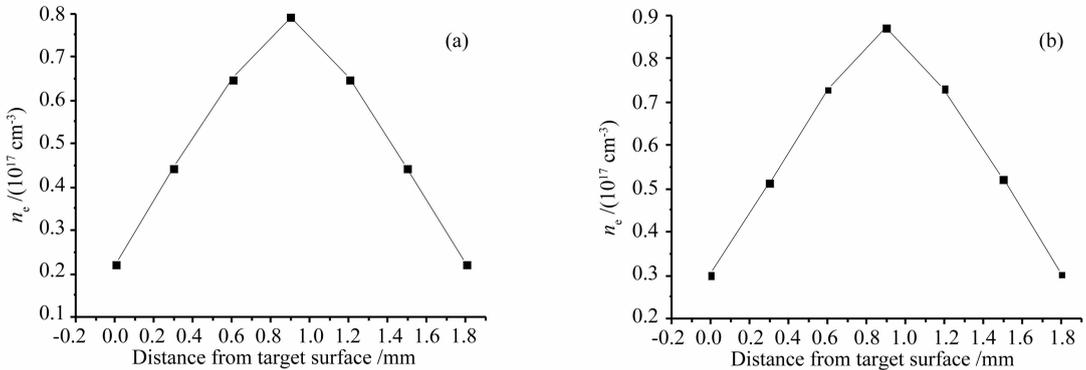


图7 不同径向位置处的电子密度。(a) Stark展宽;(b) Stark线移

Fig. 7 Electron density at different radial positions. (a) Stark line broadening; (b) Stark line shift

### 3.4 激光诱导Co等离子体电子密度的空间演化特性

实验测定Co(I) 389.408 nm发射谱线的Stark展宽和线移,由(1)和(2)式计算出不同径向位置处的电子密度。由于(1)和(2)式对电子温度变化不敏感,测定温度的误差不会给电子密度的计算结果带来很大影响<sup>[7,8]</sup>。电子温度测量的实验结果,取 $T_e \approx 25000 \text{ K}$ ,计算得到激光等离子体中电子密度沿径向位置的分布如图7所示。随着径向距离的增大,电子密度先增大,大约在0.9 mm时达到最大,随后逐渐减小,当距离靶表面0~1.8 mm范围内变化时,相应的电子密度 $n_e$ 范围为 $0.3 \times 10^{17} \sim 0.8 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ ,说明本实验中激光诱导等离子体的线径在1.8 mm左右。利用Stark线移计算得到电子密度与由Stark展宽计算得到电子密度随径向距离变化的趋势基本相同,但由谱线Stark展宽和Stark线移计算得到的电子密度数值稍有区别,由Stark线移计算得到的电子密度数值比由谱线

Stark展宽得到的精确。同时可以看出,等离子体中电子密度在径向位置为0.9 mm的两侧具有很好的对称性,也就是说在等离子体的形成过程中其形状具有很好的径向对称性。

## 4 结论

激光诱导Co等离子体中Co原子389.408 nm时间空间分辨发射光谱线的强度和Stark展宽的实验表明,当延时在100~1000 ns变化时,等离子体中的电子密度变化范围为 $0.02 \times 10^{17} \sim 0.73 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ ,在沿激光束方向上,当距离靶表面0~1.8 mm范围内变化时,相应的电子密度 $n_e$ 范围为 $0.3 \times 10^{17} \sim 0.8 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ ,等离子体电子密度在激光束方向上的分布具有很好的对称性。

## 参考文献

- Bai Ting, Ye Jingfeng, Liu Jingru *et al.*. Pulsed excimer laser deposited diamond like carbon film on ZnS with wide-spectral

- transmission [J]. *Chinese J. Lasers*, 2007, **34**(7):992~997
- 白 婷, 叶景峰, 刘晶儒 等. 利用脉冲准分子激光在 ZnS 上沉积类金刚石薄膜[J]. *中国激光*, 2007, **34**(7):992~997
- 2 E. Perez-Tijerina, J. Bohigas, R. Machorro. Density and temperature maps of an aluminium plasma produced by laser ablation [J]. *Revistamexicana De Fisica*, 2005, **51**(2):153~156
- 3 X. Z. Zhao, L. J. Shen, T. X. Lu. Spatial distribution of electron density in microplasma produced by laser ablation of solids [J]. *Appl. Phys. B*, 1992, **55**(4):327~330
- 4 Tang Xiaoshuan, Li Chunyan, Zhu Guanglai *et al.*. Experimental investigation on the electron density and electron temperature of laser-induced Al plasmas [J]. *Chinese J. Lasers*, 2004, **31**(6):687~692
- 唐晓闫, 李春燕, 朱光来 等. 激光诱导 Al 等离子体中电子密度和温度的实验研究[J]. *中国激光*, 2004, **31**(6):687~692
- 5 Xu Hongguang, Guan Shicheng, Fu Yuanxia *et al.*. Laser induced breakdown spectroscopy of the trace metal element Pb in soil [J]. *Chinese J. Lasers*, 2007, **34**(4):577~581
- 许洪光, 管士成, 傅院霞 等. 土壤中微量重金属元素 Pb 的激光诱导击穿谱[J]. *中国激光*, 2007, **34**(4):577~581
- 6 Yang Beiqian, Zhang Jiyan, Han Shensheng *et al.*. Space-resolved diagnosis for the electron density of laser-produced aluminum plasma [J]. *High Power Laser and Particle Beams*, 2005, **17**(5):703~706
- 杨柏谦, 张继彦, 韩申生 等. Al 激光等离子体电子密度的空间分辨诊断[J]. *强激光与粒子束*, 2005, **17**(5):703~706
- 7 K. Dittrich, R. Wennrich. Laser vaporization in atomic spectroscopy-review [J]. *Prog. Analyt. Atom. Spectrosc.*, 1984, **7**(2):139
- 8 Z. Andreic. Dynamics of aluminum plasma produced by a nitrogen laser [J]. *Physica Scripta*, 1993, **48**(3):331
- 9 H. R. Griem. *Plasma Spectroscopy* [M]. New York: McGraw Hill, 1964. 139~140
- 10 W. Lochte-Holtgreven. *Evaluation of Plasma Parameter in Plasma Diagnostics* [M]. North Holland, Amsterdam, 1968. 156~157