

文章编号: 0258-7025(2010)03-0877-05

# 激光烧蚀铁靶的等离子体特性

高 勋<sup>1</sup> 郭凯敏<sup>1,2</sup> 宋晓伟<sup>1</sup> 谭 勇<sup>1</sup> 厉宝增<sup>1</sup> 李海军<sup>1</sup> 林景全<sup>1</sup>

(<sup>1</sup> 长春理工大学理学院, 吉林 长春 130022  
<sup>2</sup> 包头师范学院物理科学与技术学院, 内蒙古 包头 014030)

**摘要** 利用 YAG 脉冲激光烧蚀(PLA)空气环境中的 Fe 靶,观测激光诱导等离子体发射光谱。采用不同脉冲能量,对 380.0~420.0 nm 的等离子体发射光谱进行了时间、空间分辨研究。在局部热力学平衡条件下,根据所测谱线的相对强度,利用 Saha 方程得到等离子体电子温度约为  $10^4$  K。根据测得谱线的半峰全宽(FWHM),推得等离子体电子密度约为  $10^{17}$  cm<sup>-3</sup>。给出了靶面附近等离子体电子温度、电子密度的时间及空间演化规律。

**关键词** 激光技术;激光烧蚀;等离子体发射光谱;电子温度;电子密度

中图分类号 O433.4 文献标识码 A doi: 10.3788/CJL20103703.0877

## Plasma Characteristics of Metal Fe Ablated by Pulsed Laser

Gao Xun<sup>1</sup> Guo Kaimin<sup>1,2</sup> Song Xiaowei<sup>1</sup> Tan Yong<sup>1</sup> Li Baozeng<sup>1</sup>

Li Haijun<sup>1</sup> Lin Jingquan<sup>1</sup>

(<sup>1</sup> School of Science, Changchun University of Science and Technology, Changchun, Jilin 130022, China  
<sup>2</sup> School of Physical Science and Technology, Baotou Teachers College, Baotou, Inner Mongolia 014030, China)

**Abstract** Laser-induced plasma spectroscopy of Fe target in air is investigated. Time and space-resolved spectra in the wavelength range of 380.0~420.0 nm are measured at different laser pulse energies. Under the model of local thermodynamic equilibrium, electronic temperature of Fe plasma is deduced to be around  $10^4$  K with assistance of Saha equation. Electron density of Fe plasma is obtained to be about  $10^{17}$  cm<sup>-3</sup> by use of the full-width at half maximum (FWHM) of Fe spectral lines. Spatio-temporal evolution, electron temperature as well as electron density near the target are presented.

**Key words** laser technique; laser ablation; plasma emission spectroscopy; electron temperature; electron density

## 1 引 言

脉冲激光烧蚀(PLA)技术是一种最近发展起来制备纳米粒子、纳米粉和纳米薄膜的高端技术。由于脉冲激光烧蚀技术的重要性和诱人的应用前景,使其成为当今世界上的研究热点之一<sup>[1~6]</sup>。通过对等离子体时间和空间分辨发射光谱的测量,可获得等离子体中不同组分及其状态的演化特征,有助于人们了解等离子体羽的形成和膨胀规律。测量等离子体的发射光谱,对了解烧蚀过程中的有关物理化学过程特别重要。由于激光烧蚀产生的等离子体谱的特征与烧蚀的条件如烧蚀激光的能量和波长、烧蚀时的背景状态、测量的手段等密切相关,致使对等

离子体羽辐射机理还不是十分的清楚<sup>[7~10]</sup>。

激光烧蚀金属铝、铜的等离子体发射光谱研究较多,金属铁的等离子体发射光谱研究甚少。本文利用 Nd<sup>3+</sup>:YAG 激光器的三倍频输出光(355 nm)烧蚀空气环境中的铁平板,观测距铁靶面不同位置、不同探测延时条件下的等离子体羽发射光谱,研究等离子体羽内电子温度、电子密度的时间和空间演化规律。

## 2 实验装置及方法

实验装置如图 1 所示, Nd<sup>3+</sup>:YAG 激光器输出的激光脉冲(波长 355 nm,脉宽 8 ns,重复频率

收稿日期:2009-04-29;收到修改稿日期:2009-06-18

基金项目:国家自然科学基金(60978014),吉林省科技厅基金(20090523)和吉林省教育厅项目([2008]297)资助课题。

作者简介:高 勋(1978—),男,讲师,主要从事超短脉冲激光烧蚀机理、激光等离子体发射光谱方面的研究。

E-mail:lasercust@yahoo.com.cn

10 Hz)经  $f=100\text{ mm}$  的石英透镜正入射聚焦到 Fe 靶材上,靶面上辐照的激光光斑直径为  $0.2\text{ mm}$ ,激光能量的改变由半波片和偏振器组成的能量衰减系统实现。厚度为  $2\text{ mm}$  的 Fe 样品固定在绕轴匀速转动的步进电机上,其目的是保证每一个激光脉冲烧蚀样品的不同位置,排除烧蚀环境对等离子体发射光谱的影响。实验之前样品表面机械抛光,然后用丙酮对样品表面进行处理。实验在  $1.013\times 10^5\text{ Pa}$  的空气环境中进行。

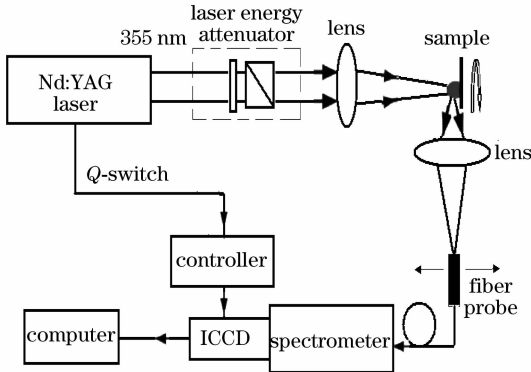


图 1 激光烧蚀 Fe 靶实验装置图

Fig. 1 Experimental setup of laser ablating Fe

激光烧蚀产生的铁等离子体羽由石英平凸透镜放大  $1.5$  倍成像,等离子体像处的光信号由光纤探头探测并经光纤适配器进入光栅光谱仪(型号: Spectra Pro 2500i, Princeton Instruments Co.),光信号由光栅( $1200\text{ line/mm}$ ,分辨率  $0.05\text{ nm}$ )分光后由 ICCD (Intensified Charge Couple Devices,  $1024\text{ pixel}\times 256\text{ pixel}$ , Princeton Instruments Co.)探测输出,ICCD 门取样时间为  $20\text{ ns}$ ,可探测到  $380.0\sim 420.0\text{ nm}$  范围内的 Fe 等离子体发射光谱,如图 2 所示。Nd<sup>3+</sup>:YAG 激光的 Q 开关信号同步触发 ICCD 控制器进而控制 ICCD 探测器的开门时间和取样时间,改变开门时间和激光脉冲到达样品

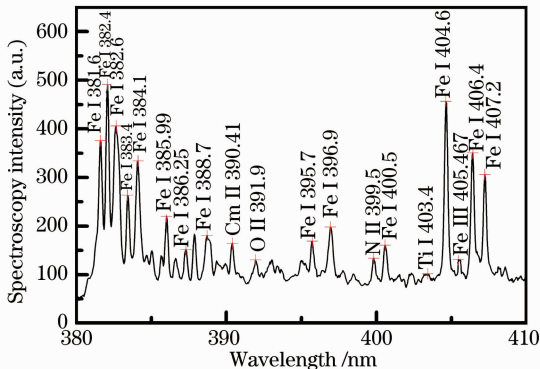


图 2 Fe 等离子体发射光谱

Fig. 2 Plasma emission spectroscopy of Fe

表面时间的间隔(即时间延时,时间延时以数字示波器检测为准),可进行等离子体发射光谱的时间分辨研究。实验可探测到的第一幅等离子体发射光谱出现时间为激光脉冲结束  $7.2\text{ ns}$  之后,后续测得的时间分辨光谱由 ICCD 门取样时间和设定时间延迟决定。光纤探头固定在一维电动平移台上,其移动方向沿着靶面垂线方向(即等离子体羽膨胀轴线方向),探测靶面垂直方向不同位置处等离子体发射光谱,从而进行等离子体发射光谱的空间分辨研究。

电子温度和电子密度是等离子体的重要参数,根据观测到的 Fe 等离子体发射光谱,比较谱线的相对强度,利用 Saha-Boltzmann 图<sup>[1]</sup>,可得到等离子体的电子温度;利用等离子体发射光谱线的谱线宽度,可推出等离子体的电子密度。由改变入射激光能量大小、靶面垂线方向上的测量点以及探测延时等条件下得到的等离子体发射光谱,可推得电子温度及电子密度随激光能量、空间位置以及不同时刻的变化特性。

对于激光烧蚀形成的等离子体,可以近似认为在每一小体积元中满足局部热力学平衡(LTE)条件<sup>[11]</sup>。在 LTE 近似下,等离子体中各粒子在其束缚能级上的分布按 Boltzmann 分布,同一电离级两条光谱线的强度关系可由对数 Saha 方程表示为<sup>[10~12]</sup>

$$\ln \left[ \frac{\lambda_2 I_{m_2}(2) / I_{m_2}^0(1)}{g_{m_2}(2) A_{m_2}(2)} \right] = c_1 + c_2 \cdot \left[ -\frac{E_{m_2}(2)}{KT} \right], \quad (1)$$

式中 1, 2 代表不同的谱线,  $A_{m_2}$  为谱线跃迁几率,  $g_{m_2}$  为上能级的统计权重,  $E_{m_2}$  为上能级能量,  $\lambda$  为波长。用 Fe I  $388.6282\text{ nm}$  谱线作基准,作 Fe I  $385.9911\text{ nm}$  和 Fe I  $404.5813\text{ nm}$  谱线的相对强度的对数值与相应的 Fe I 谱线的上能级  $E_{m_2}$  的 Saha-Boltzmann 图,对应为一条直线,数值计算出直线斜率  $-1/KT$ ,便可确定等离子体电子温度  $T$ , Fe 等离子体发射光谱的参数如表 1 所示<sup>[13]</sup>。

表 1 Fe 等离子体发射光谱参数

Table 1 Fe parameters of plasma emission spectroscopy

| Species | Wavelength /nm | $g$ | $A_{ki}/10^6$ | Up level energy /eV |
|---------|----------------|-----|---------------|---------------------|
| Fe I    | 385.9911       | 9   | 9.70          | 3.211               |
| Fe I    | 388.6282       | 7   | 5.30          | 3.2407856           |
| Fe I    | 404.5813       | 9   | 86.30         | 4.548247            |

等离子体发射光谱谱线具有一定的宽度,谱线加宽机制主要为 Stark 加宽<sup>[11]</sup>,对于非类氢离子 Stark 展宽主要产生于电子碰撞,离子产生的干扰

相对于电子可以忽略,谱线的 Stark 展宽线型的半峰全宽 (FWHM)  $\Delta\lambda_{1/2}$  与电子密度  $n_e$  的关系式为<sup>[10~12]</sup>

$$\Delta\lambda_{1/2} = 2W \left( \frac{n_e}{10^{17}} \right), \quad (2)$$

式中  $W$  为电子碰撞参数<sup>[13]</sup>,它能与不同温度结合。

### 3 实验结果与讨论

首先,光纤位置固定于 1.47 mm 处,探测延时取为 407.2 ns,测量不同激光能量下 (10~40 mJ) 的 Fe 等离子体发射光谱,如图 3 所示,所用的激光能量分别为 13, 18, 26, 33 和 39 mJ。当激光能量为每脉冲 39 mJ 时,探测不同位置 (0~4 mm) 处 Fe 等离子体的发射光谱,如图 4 所示,探测位置分别为 0.2, 0.69, 1.18, 1.47, 2.28, 2.89 和 3.92 mm。

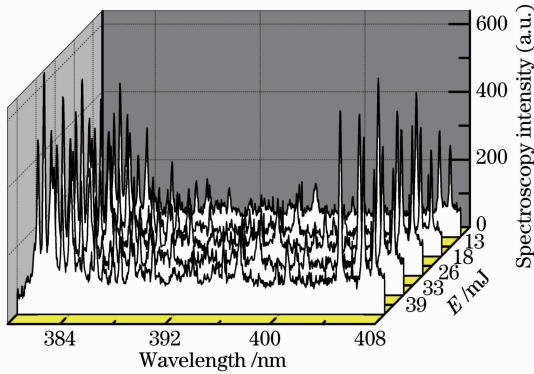


图 3 不同激光能量下 Fe 等离子体谱线强度随激光能量的变化

Fig. 3 Spectroscopy intensity variation with different laser pulse energies

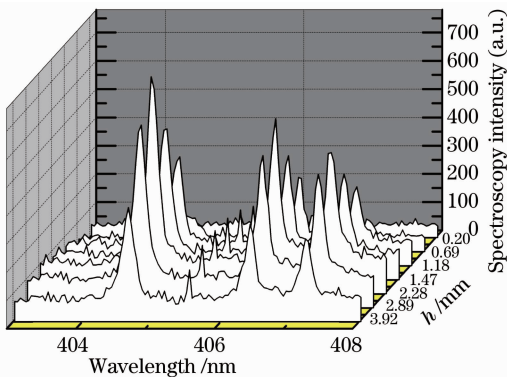


图 4 不同距离测得的等离子体空间分辨发射光谱

Fig. 4 Spatial resolved plasma emission spectroscopy at different distances of target surface

由图 3 可知,随着激光能量的增加,等离子体谱线相对强度逐渐增强。从图 4 可以看出,靶面附近等离子体辐射主要是连续谱,同时也出现较弱的分

立谱线。在 3.92 mm 的范围内,等离子体的辐射光谱一直由连续谱和叠加在其上的分立光谱构成,并且连续谱的强度随着探测位置的增加经历了增强减弱的过程,这种变化趋势是等离子体中复合辐射和韧致辐射共同作用的结果<sup>[9]</sup>。另外,分立谱线的强度随距离的变化与连续谱线具有类似的变化规律,这是由激光等离子体中激发态原子的动力学特性决定的。由图 2 及图 3 均可看出,Fe 等离子体发射光谱中出现 O II 391.9 nm 和 N II 399.5 nm 等两条离子谱线,这说明在 Fe 烧蚀过程中发生了空气击穿<sup>[14]</sup>。

根据(1)和(2)式,距离靶面 1.47 mm 位置处,探测延时为 407.2 ns 条件下,计算出不同激光能量下产生的激光等离子体羽内的电子温度、电子密度结果如图 5,6 所示。

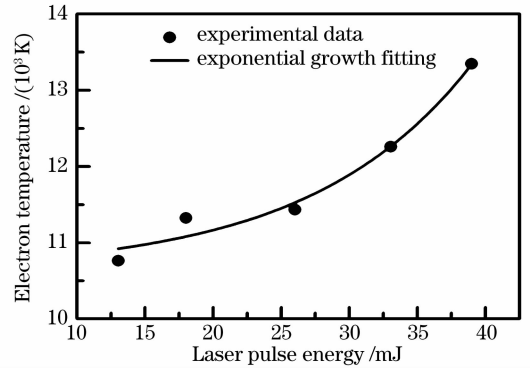


图 5 等离子体电子温度随激光能量的变化

Fig. 5 Electron temperature variation with laser pulse energy

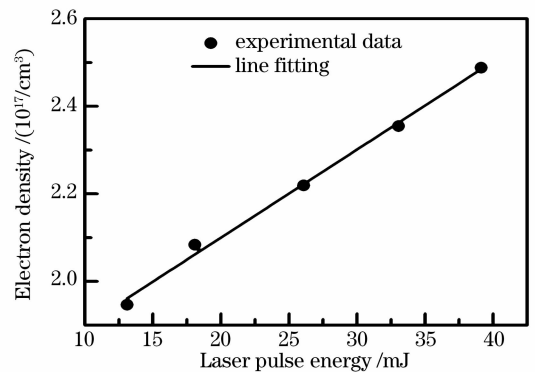


图 6 等离子体电子密度随激光能量的变化

Fig. 6 Electron density variation with laser pulse energy

从图 5,6 可以看出,在实验条件下,随着激光能量的增加,等离子体电子温度近似呈指数增长,当激光能量大于 25 mJ 时,电子温度增长较快。等离子体的电子密度随激光能量的增加近似呈线性增长,电子密度大约在  $10^{17} \text{ cm}^{-3}$  量级。

光纤位置固定在 1.47 mm 处,激光能量调节到每脉冲 39 mJ 时,测量不同探测延时下(100 ~ 850 ns)的 Fe 等离子体发射光谱。根据测得的光谱可计算出不同时刻等离子体羽的电子温度、电子密度,如图 7,8 所示,等离子体的电子温度和电子密度都随时间呈二次指数衰减,电子密度在 300 ns 后衰减变缓。

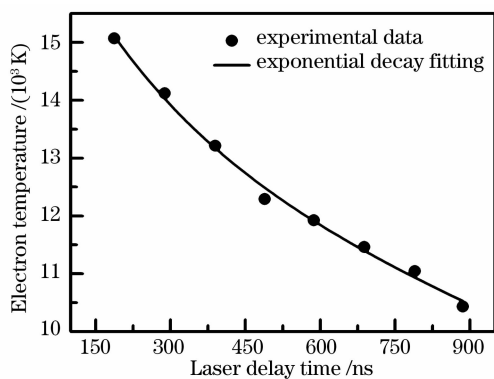


图 7 不同延迟时间的电子温度曲线

Fig. 7 Electron temperature variation with delay time

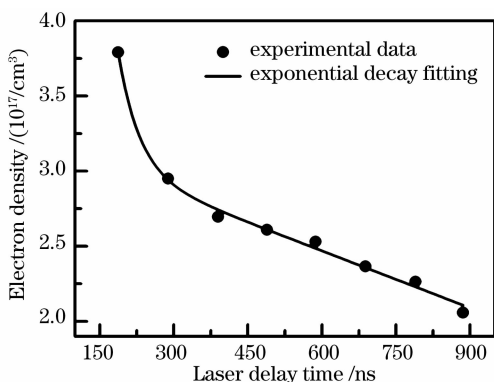


图 8 不同延迟时间的电子密度曲线

Fig. 8 Electron density variation with delay time

在激光脉冲能量为每脉冲 39 mJ,延迟时间为 407.2 ns 条件下,调节光纤探头位置,收集距靶面不同位置(0~4 mm 内)处 Fe 等离子体发射光谱。由测得的 Fe 等离子体发射光谱计算得到距离靶面不同位置处的电子温度、电子密度如图 9,10 所示。对于等离子体羽膨胀径向线方向上的电子温度和电子密度利用等离子体发射光谱探测非常困难,通过朗缪尔探针技术可以实现参数测量<sup>[15]</sup>,下一步拟开展这部分实验工作。

由图 9 可知,在 Fe 靶表面随着距离的增加,电子温度开始快速上升,距靶面 1.47 mm 的位置出现峰值,峰值点的电子温度可达 13000 K,然后开始下降。在 0~4 mm 范围内,电子温度的变化幅度大约为 20%。由图 10 可知,等离子体羽内电子密度随

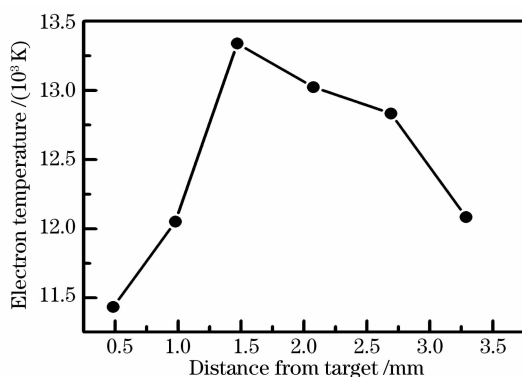


图 9 电子温度在靶表面附近的变化

Fig. 9 Electron temperature variation with distance to target surface

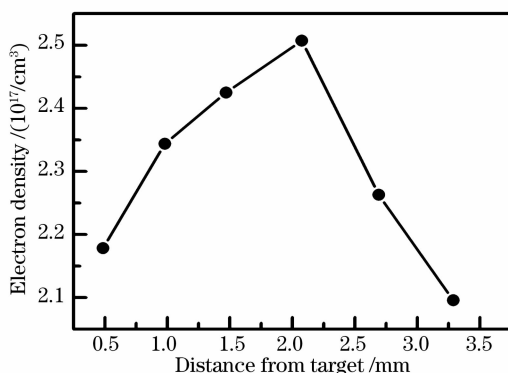


图 10 电子密度在靶表面附近的变化

Fig. 10 Electron density variation with distance to target surface

着距离的增加上升较缓慢,距离靶面 2 mm 附近达到峰值,最高电子密度为  $2.51 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ 。其后,随着距离的进一步增加,电子密度急剧减小。从实验结果可知:等离子体羽体内电子温度和电子密度的峰值所对应的空间位置并不重合,其物理原因有待进一步研究。

## 4 结 论

对激光烧蚀 Fe 靶的等离子体发射光谱进行了测量。在 380 ~ 420 nm 的波长范围内,观测了  $\text{Nd}^{3+}:\text{YAG}$  激光脉冲烧蚀 Fe 靶的等离子体时间、空间分辨发射光谱。实验结果表明距靶面约 4 mm 的范围内,Fe 等离子体的发射光谱主要由连续谱和叠加于其上的分立光谱组成。实验测定了不同激光能量、靶面表面位置及测量延时条件下的 Fe 等离子体发射谱,利用谱线峰值积分强度和谱线半宽推得 Fe 等离子体的电子温度和电子密度分别约为  $10^4 \text{ K}$  和  $10^{17} \text{ cm}^{-3}$ 。

## 参 考 文 献

- 1 M. Carsten, B. N. Chichkov, S. Nolte *et al.*. Short pulse laser ablation of solid targets [J]. *Opt. Commun.*, 1996, **129**(1-2):134~142
- 2 Frederik Claeysens, Simon J. Henley, Michael N. R. Ashfold *et al.*. Comparison of the ablation plumes arising from ArF laser ablation of graphite, silicon, copper and aluminum in vacuum [J]. *J. Appl. Phys.*, 2003, **94**(4):2203~2211
- 3 M. A. Hafez, M. A. Khedr, F. F. Elaksher *et al.*. Characteristics of Cu plasma produced by a laser interaction with a solid target [J]. *Plasma Sources Sci. Technol.*, 2003, **12**(12):185~198
- 4 Liu Huixia, Yang Shengjun, Wang Xiao *et al.*. Experiment study and numerical simulation of pulsed laser ablation crater [J]. *Chinese J. Lasers*, 2009, **36**(1):219~223  
刘会霞, 杨胜军, 王 霄等. 脉冲激光烧蚀凹腔的实验分析及数值模拟[J]. *中国激光*, 2009, **36**(1):219~223
- 5 I. Umez, M. Takata, A. Sugimura *et al.*. Surface hydrogenation of silicon nanocrystallites during pulsed laser ablation of silicon target in hydrogen background gas [J]. *J. Appl. Phys.*, 2008, **103**(11):114309
- 6 Sun Fengjiu, Yu Hanjiang, Zhang Jun. Laser and plasma nitriding of titanium using continuous wave-CO<sub>2</sub> laser in atmosphere environment [J]. *Chinese J. Lasers*, 2008, **35**(1):125~130  
孙凤久, 于撼江, 张 军. 在大气气氛下应用激光和等离子体混合方法制备氮化钛[J]. *中国激光*, 2008, **35**(1):125~130
- 7 Huang Yongguang, Liu Shibing, Long Lianchun *et al.*. Observation on the process of continuous-wave Nd:YAG laser ablation on carbon fiber composite material [J]. *Chinese J. Lasers*, 2008, **35**(12):2042~2046  
黄永光, 刘世炳, 龙连春等. Nd:YAG 连续激光烧蚀碳纤维复合材料的过程观测[J]. *中国激光*, 2008, **35**(12):2042~2046
- 8 Chen Hongxin, Jia Tianqing, Huang Min *et al.*. Visible-infrared femtosecond laser-induced optical breakdown of 6H SiC [J]. *Acta Optica Sinica*, 2006, **26**(3):467~470  
陈洪新, 贾天卿, 黄 敏等. 飞秒激光的波长对 SiC 材料烧蚀的影响[J]. *光学学报*, 2006, **26**(3):467~470
- 9 Huang Qingju. Colour properties of plasma plume produced by pulsed laser ablating metal Cu [J]. *Optics and Precision Engineering*, 2007, **15**(11):1686~1691  
黄庆举. 激光诱导铜产生等离子体羽辉的颜色特性[J]. *光学精密工程*, 2007, **15**(11):1686~1691
- 10 Zhaoyang Chen, Annemie Bogaerts. Laser ablation of Cu and plume expansion into 1 atm ambient gas [J]. *J. Appl. Phys.*, 2005, **97**(6):063305
- 11 B. Y. Man, Q. L. Dong, A. H. Liu *et al.*. Line-broadening analysis of plasma emission produced by laser ablation of metal Cu [J]. *J. Opt. A: Pure Appl. Opt.*, 2004, **6**(1):17~21
- 12 Wu Rong, Li Yan, Zhu Shunguan *et al.*. Emission spectroscopy diagnostics of plasma electron temperature [J]. *Spectroscopy and Spectral Analysis*, 2008, **28**(4):731~735  
吴 荣, 李 燕, 朱顺官等. 等离子体电子温度的发射光谱诊断[J]. *光谱学与光谱分析*, 2008, **28**(4):731~735
- 13 C. S. Chen, X. L. Zhou, B. Y. Man *et al.*. Investigation of the mechanism of spectral emission and redshifts of atomic line in laser-induced plasmas [J]. *Optik*, 2009, **120**(10):473~478
- 14 Wang Gongtang, Wang Xiangtai, Man Baoyuan *et al.*. The mechanism for the ignition of air plasma induced by laser ablating aluminum target in air [J]. *Chinese J. Atomic and Molecular Physics*, 1996, **12**(2):163~169  
王公堂, 王象泰, 满宝元等. 激光烧蚀铝靶生成空气等离子体的机理[J]. *原子与分子物理学报*, 1996, **12**(2):163~169
- 15 B. Toftmann, J. Schou, T. N. Hansen *et al.*. Angular distribution of electron temperature and density in a laser-ablation plume [J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2000, **84**(17):3998~4001