

文章编号: 0253-2239(2001)04-404-06

激光诱导 Al 等离子体连续辐射的时间分布*

宋一中 李亮

(山东临沂师范学院物理系, 临沂 276005)

摘要: 用 Ar 作环境气体, 压强固定在 10 kPa, 每个激光脉冲能量为 115 mJ, 利用时空分辨技术, 采集激光烧蚀 Al 靶产生的等离子体辐射的时间分辨谱。分析了 Al 等离子体连续辐射特征。简要讨论了激光诱导等离子体连续辐射的产生机理。提出了原子对激光诱导等离子体连续辐射共振吸收理论。激光诱导等离子体的连续辐射的主要机制是韧致辐射和复合辐射。在激光脉冲作用到靶面瞬间, 韧致辐射占主导地位; 等离子体演化初期, 复合辐射和韧致辐射共同产生等离子体连续辐射; 等离子体演化后期, 连续辐射主要是复合辐射产生的。Al 原子对连续辐射的共振吸收是选择性的, 这是改变连续辐射按波长“平滑”分布的主要机制。

关键词: 激光烧蚀; 激光诱导; 等离子体; 时间分辨谱; 韧致辐射; 复合辐射

中图分类号: O53 文献标识码: A

1 引言

随着激光在军事应用上的发展^[1], 越来越多的人从事脉冲激光与物质的相互作用研究^[2-8]。Iida^[2]报道激光诱导等离子体的辐射时间、空间、强度都与环境气体、缓冲气压强密切相关, 对等离子体的适当约束可提高原子特征辐射^[2]。Kuzuya^[3]报道激光脉冲能量、环境气体压强、缓冲气体种类对激光诱导等离子体辐射都有影响。Kagawa^[4]认为低气压辐射谱更有利于光谱化学分析。Grant^[5]认为在激光作用后, 等离子体开始辐射连续谱, 接着是离子线与原子线的辐射。黄庆举^[9]认为激光烧蚀 Cu 靶产生的等离子体连续辐射的主要机制是电子的韧致辐射。虽然人们对激光诱导等离子体辐射特征和演化过程有一定认识, 但因辐射产生的过程很复杂, 目前人们对所观察到的现象还不能给予圆满解释。本文利用时空分辨技术采集激光诱导等离子体时间分辨辐射谱, 根据 Al 等离子体连续辐射强度时间分布规律, 对连续辐射产生的机理进行了简单的讨论。

2 实验装置

实验所用的装置如图 1 所示。由 Nd: YAG 激光器发出的 1.06 μm 、10 ns(半高全宽)的脉冲激光束经直角棱镜 M 改变光路后, 由石英透镜 L₁(焦距

$f = 6.3 \text{ cm}$) 会聚在 Al 靶表面上, 光斑的大小 $\phi = 0.54 \text{ mm}$, 平均能通量为 $6.3 \times 10^9 \text{ W/cm}^2$ 。Al 样品固定在杜瓦瓶中的样品架上, 用机械泵将杜瓦瓶中的气压抽至机械泵的极限值(1 Pa)时, 通过杜瓦瓶上的真空针阀放入适当的背景气体。由激光器输出的 Q 开关同步脉冲信号去触发快速脉冲延迟器, 经延迟后的信号同时触发脉宽为 5 ns 的快速脉冲发生器(1302 型)和光学多道分析仪(OMA III 型)的控制系统(Model 1460 型)。快速脉冲发生器发出 -200 V 的高压脉冲使光学多道分析仪 III 的光电探头选通 5 ns 的曝光时间。通过调节延迟器(精度 1 ns)的延迟时间, 可获得高分辨率的时间分辨光谱信息。在激光束的垂直方向上, 放置一个由两柱面透镜 L₂ 和 L₃ 组成的透镜组(焦距为 20 cm), 把激光诱导的等离子体按 1:1 成像在摄谱仪(HR-320)的狭缝上, 经摄谱仪的光栅色散后被探头接收, 然后送到光学多道分析仪的 1460 型控制器进行信号放大和数据处理。本实验用一个光电管校准零延迟, 用光电管接收激光束射到靶面后的散射光, 经光电转换后送到一台数字示波器; 同时将延迟后的 Q 开关脉冲信号也送到该示波器, 比较两个信号的相差, 通过调节延迟器的延迟时间使两信号同步, 从而可获得纳秒级零延迟。整个杜瓦瓶(连同 Al 样品)和透镜分别固定在两个二维可调的平台上, 在垂直于靶面的方向上同步调节杜瓦瓶(即调节 Al 表面)和会聚透镜 L₁ 的位置, 可摄取离靶面不同距离的空间分辨谱。在平行于靶平面的方向上调节 Al 靶的位置,

* 国家自然科学基金(69978011)资助项目。

收稿日期: 1999-11-12; 收到修改稿日期: 2000-01-24

改变激光辐射在 Al 表面的位置, 使激光束作用到 Al 靶的新面上, 以保持等离子体的稳定。实验中,

数据采集方式用 Keystroke Programming 编程, 每组数据扣除背景累加 4 次。使用 1200 g/mm 光栅。

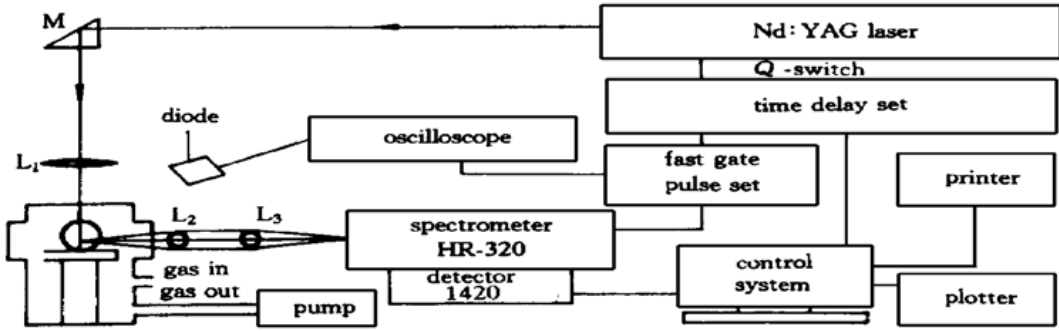


Fig. 1 Schematic diagram of the experimental setup

本实验用纯 Al(99.99%) 作样品。实验前用金刚砂把样品表面磨平, 抛光, 去离子水清洗, 烘干。

数据采集区是一个微小圆柱体, 柱面透镜纵向成像, 而摄谱仪的光电管横向排列, 决定了采集区是一个“点”区, “点”区截面由感光管的面积决定, 调节光路使“点”区落在靶前 0.1 mm 的激光束轴线上。通过调节狭缝的宽度可改变点区的轴向长度。本实验保持狭缝宽度不变, 从而使采集区保持不变, 采集的数据准确反映等离子体辐射的强弱变化。

杜瓦瓶中分别通入 Ar 气、空气、N₂ 气三种环境气体, 压力分别为 8 Pa、100 Pa、1 kPa、10 kPa、

100 kPa。调节激光脉冲能量改变激光入射能流密度, 采集了每个脉冲能量分别为 52 mJ、92 mJ、114 mJ、145 mJ 的上述各种气体、各种气压下的时-空分辨谱。实验数据分析发现连续辐射具有相似的时间演化规律, 本文用 Ar、10 kPa、每个脉冲能量为 115 mJ、靶前 0.1 mm 条件下的时间分辨谱分析“激光诱导 Al 等离子体连续辐射时间分布”规律。

3 结果和讨论

等离子体初期的辐射谱线在图 2 中示出, 演化过程辐射谱线在图 3 中示出。

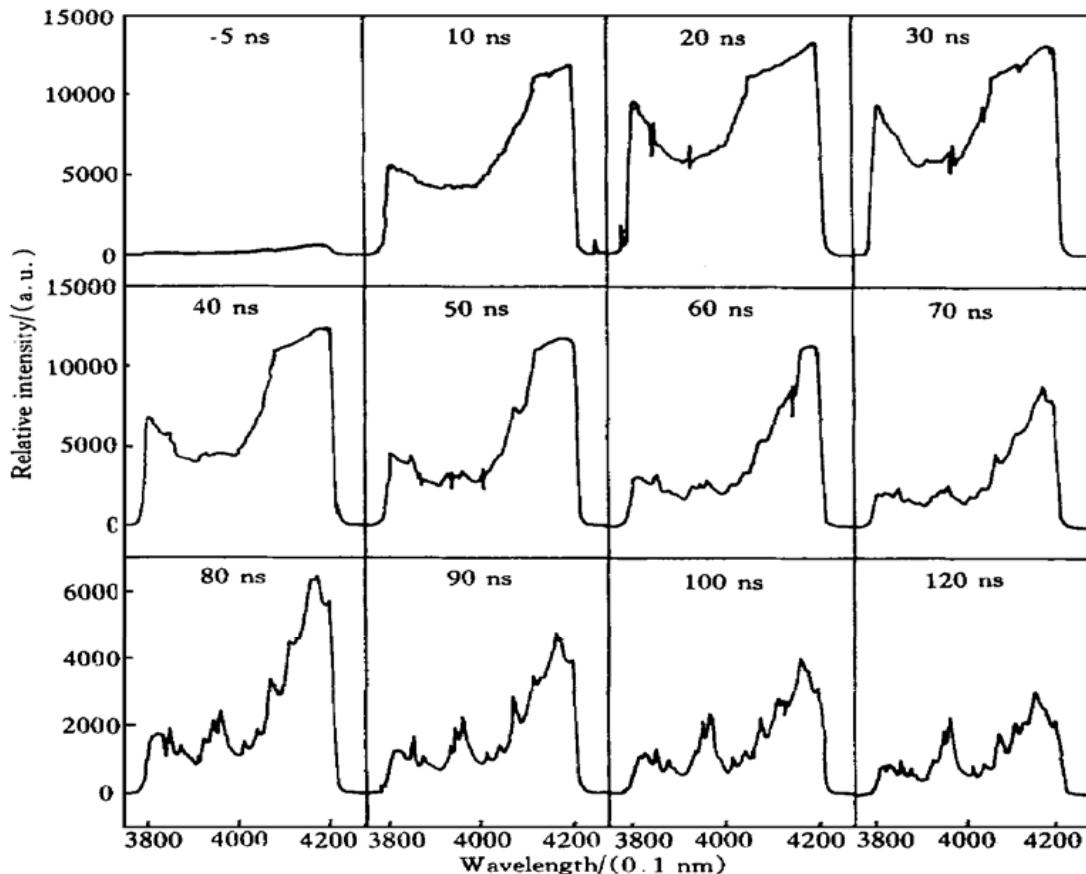


Fig. 2 Time-resolved emission spectra of the plasmas obtained at $z = 0.1$ mm in front of the surface, under pressure 10 kPa, laser pulse energy 115 mJ/pulse in Ar, the delay time to each spectrum displayed in fig had been marked in it, respectively

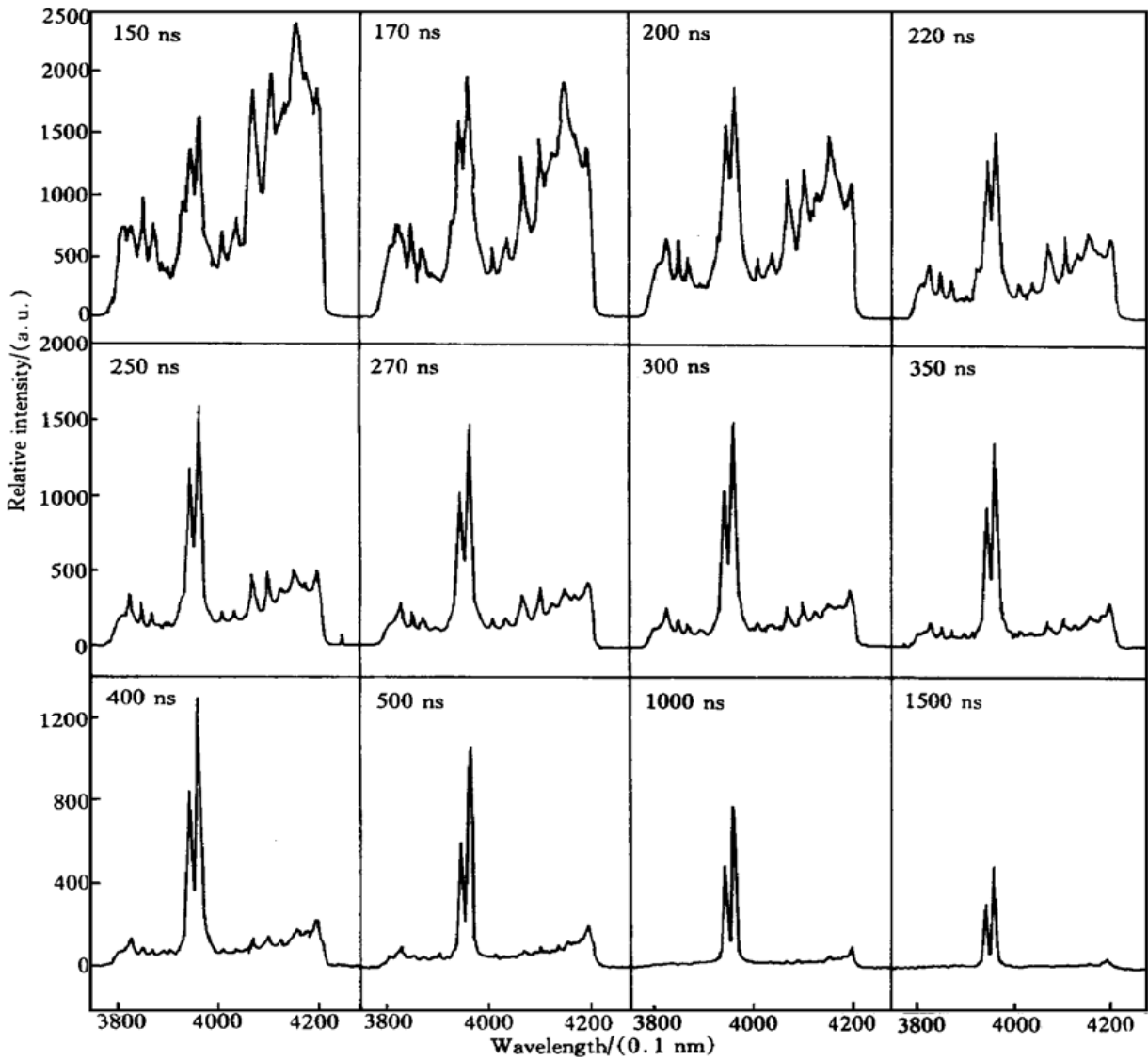


Fig. 3 Time resolved emission spectra of the plasmas obtained at $z = 0.1$ mm in front of the surface, under pressure 10 kPa, laser pulse energy 115 mJ/pulse in Ar, the delay time to each spectrum displayed in fig had been marked in it, respectively

由图 2 可见在激光脉冲作用到靶面后的 40 ns 内, 等离子体辐射主要是连续辐射; 50 ns 后出现 Al 原子、Ar 原子和 Ar 离子辐射, 谱线定标详见图 4, 这些特征辐射谱叠加在连续谱上。

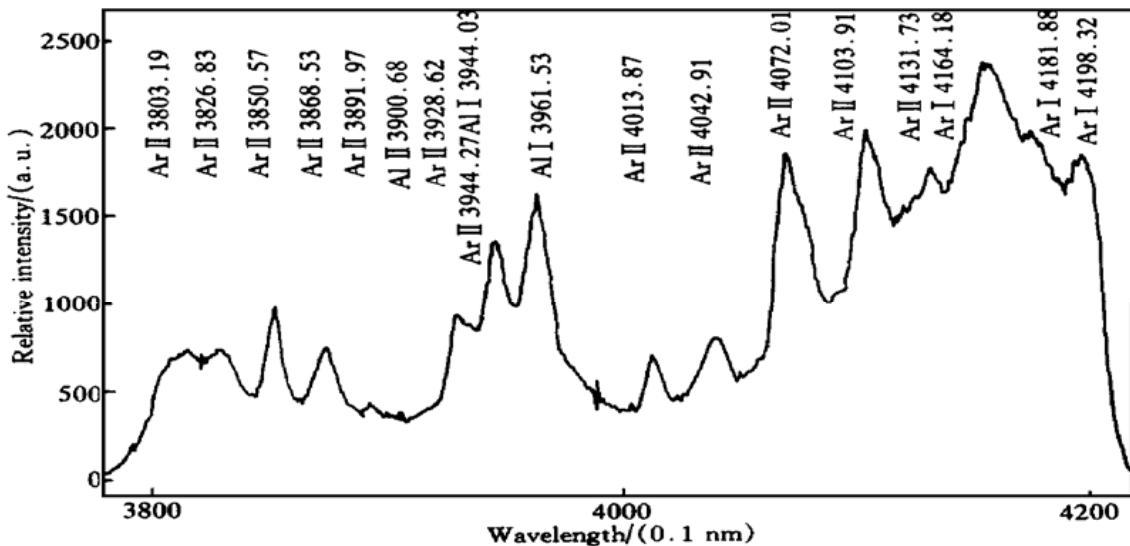


Fig. 4 To demarcate the special line on time-resolved emission spectra of the plasmas obtained at $z = 0.1$ mm in front of the surface, under pressure 10 kPa, laser pulse energy 115 mJ/pulse in Ar, with delay time 150 ns

随着延迟的增加,特征辐射逐渐增强,而连续辐射逐渐减弱,在 100 ns 内,特征辐射相对于连续辐射很弱;结合图 3 可看出,120 ns 后,Al 原子、Ar 原子和 Ar 离子辐射已相当强,连续辐射继续衰减,而特征辐射比较稳定,在 300 ns 内特征辐射相对于连续辐射逐渐增强,并成为主要辐射;200 ns 后,Al 原子、Ar 原子和 Ar 离子辐射开始衰减,连续辐射进一步衰减,但 Al 原子辐射衰减慢,Ar 离子辐射衰减快,500 ns 后,离子辐射几乎消失,只有 Al 原子辐射和连续辐射,但连续辐射已很弱,Al 原子辐射衰减较慢,到延迟 1500 ns 时 Al 原子信号还相当强,而连续谱已衰减到噪声级。

由图 2 和图 3 很容易看出几乎在每一幅时间分辨谱图片上,连续谱都叠加着一个宽带“凹谷”,特别是 70 ns 前的几幅上。这种“凹谷”十分清晰。谷底大约在 395 nm 附近,随着延时的增加,凹谷展宽,并向连续谱扩展,但谷底始终保持在 395 nm 附近。

3.1 连续辐射的产生机理

基于前面的分析,我们认为,连续辐射的产生是电子与粒子相互作用的结果,作用机制可用下列式子表示:

$$e + h\nu \rightarrow e, \quad (1)$$

$$A^n + e \rightarrow A^n + e + kh\nu, \quad (2)$$

$$A^{n+1} + e \rightarrow A^n + kh\nu, \quad (3)$$

$$A^{n+1} + e + e \rightarrow A^n + e + kh\nu, \quad (4)$$

$$E_{ke}^0 + h\nu \rightarrow E_{ke}, \quad (5)$$

$$E_{A^n} + E_{ke} \rightarrow E_{A^n}' + E_{ke}' + kh\nu, \quad (6)$$

$$E_{A^{n+1}} + E_{ke} \rightarrow E_{A^{n+1}}' + kh\nu, \quad (7)$$

$$E_{A^{n+1}} + E_{ke1} + E_{ke2} \rightarrow E_{A^{n+1}}' + E_{ke}' + kh\nu. \quad (8)$$

这里, $n = 0, +1, +2$; A^0, A^{+1}, A^{+2} 分别为原子 +1 价离子、+2 价离子。(1) 式为逆韧致辐射,电子在激光场中吸收能量,对应的能量表达式为(5)式;(2)式为韧致辐射,电子在碰撞中将能量传给粒子或以光子形式辐射, $k = 0$ 时,电子能量被粒子吸收; $k = 1, 2, 3, \dots$ 时,多光子辐射,对应的能量表达式为(6)式;(3)式和(4)式为复合辐射,电子与离子复合将能量传给离子或以光子的形式辐射,相应的能量表达式为(7)式和(8)式。

激光脉冲作用到靶面上的瞬间,激光能量与靶面耦合,蒸发、气化样品表面,加热从靶面飞出的粒子。其中包括电子、原子、原子团簇、样品微粒,使它们汽化、离化、激发^[10]。所以这个时期的离子密度很小,复合辐射相当微弱,连续辐射主要由韧致辐射产

生,即电子的热运动使电子与等离子体中各种微粒进行十分频繁的碰撞,通过碰撞进行能量传递和转换,产生韧致辐射,由于电子的动能是不确定的,碰撞过程既频繁又复杂,也是不确定的,由(2)式可知韧致辐射产生的光子也是不确定的,于是产生连续辐射,出现前 50 ns 的连续辐射情况。

随延迟时间增加,激光能量的吸收、电子碰撞、能量的传递和转换,离化进一步加强,等离子体中电子密度增大,离子的复合逐渐增强,导致复合辐射逐渐增强。由于复合前电子的动能是不确定的,由(3)式和(4)式可知,复合产生的光子也是不确定的,即产生连续辐射。

韧致辐射和复合辐射都产生连续谱,在复合辐射过程中,韧致辐射同时进行。

3.2 复合辐射不能使连续辐射增强

前面(1)式~(8)式表达了连续辐射的产生机制,但不能表示连续辐射强度。连续辐射强度主要由(1)式~(4)式表示的相互作用进行的剧烈程度,即采集区全部电子与其他粒子的总碰撞频率决定的。

一个电子与其他粒子的平均碰撞频率可用下式描述:

$$Z = n\delta\bar{v}_e.$$

采集区内全部电子与其他粒子的总碰撞频率与电子密度成正比、与一个电子的平均碰撞频率成正比,可用下式近似描述:

$$P = k_1 n_e Z = k_1 n_e n \delta \bar{v}_e, \quad (9)$$

式中 Z 表示平均碰撞频率, n_e 为电子密度, n 为粒子密度, δ 为粒子最大截面,取决于 A^n 的半径, \bar{v}_e 为电子平均速率, k_1 为比例系数。根据局域热平衡理论可知:

$$\bar{v}_e = \sqrt{\frac{8KT}{\pi m}}, \quad (10)$$

式中 K 为玻尔兹曼常数, T 为等离子体温度, m 为电子的质量。

在实验条件不变的情况下, δ 是不变量。(9)式可简化为

$$P = k_2 n_e n \bar{v}_e. \quad (11)$$

电子的平均自由程与粒子密度成反比,与粒子最大截面成反比,可表示为

$$\bar{\lambda} = k_3 / n\delta. \quad (12)$$

复合辐射有使连续辐射增强的趋势,但等离子体的扩张运动使粒子密度减小,则使电子的平均自由程增大,总碰撞频率下降;等离子体辐射导致等离

子体内能骤减,电子温度陡降,则使电子平均速率减小,总碰撞频率下降;离子的复合使电子密度减小^[11,12],则导致总碰撞频率下降。总碰撞频率下降引起韧致辐射减弱。于是复合辐射引起的连续辐射增强趋势远小于韧致辐射减弱引起连续辐射减弱趋势,结果使连续辐射继续衰减,出现如图2、图3中60 ns后的连续辐射谱。

3.3 复合辐射使连续辐射长期存在

随着等离子体的扩张和辐射,等离子体内能骤减,温度陡降,电子的平均平动动能减小^[13],电子的碰撞频率下降,韧致辐射急剧衰减。复合辐射继续进行,所以等离子体演化后期的连续辐射主要是复合辐射产生的,出现300 ns后的连续辐射情况。由于粒子密度和电子密度的减小引起了复合运动减弱,所以复合辐射可长期存在,出现500 ns后连续辐射情况。直到1000 ns才衰减到噪声级强度。

3.4 连续辐射吸收机制

基于前面分析,可认为“凹谷”是吸收谱,是Al原子对连续辐射共振吸收的结果。作用机制可用下式描述:

$$dN_{21} = B_{12} \rho_{\nu} N_1 dt, \quad (13)$$

式中 dN_{21} 为 dt 时间内由状态1跃迁到状态2的粒子数, B_{12} 为吸收系数, ρ_{ν} 为场辐射频率为 ν 的光子密度。 N_1 为处于状态1的粒子数。根据爱因斯坦量子吸收原理,Al原子吸收了波长约395.0 nm的光子,从基态3P跃迁到激发态4S,然后再从4S向3P自发跃迁和光致跃迁形成Al原子共振双线^[14]辐射。

我们认为“凹谷”是Al原子对连续辐射共振吸收产生的。共振吸收的中频是395.0 nm。由于吸收是绕中频的带吸收,再加上其他粒子吸收的影响,使共振吸收呈宽带谱。

结论 在使用Ar气作环境气体时,激光烧蚀Al靶产生了等离子体辐射很强的连续谱,该情况下的等离子体连续辐射是由韧致辐射和复合辐射共同产生的,在激光脉冲作用到靶面的瞬间主要是韧致辐射;复合辐射在几十个纳秒后发生,复合辐射削弱了韧致辐射,复合辐射不能使连续辐射加强;随等离子体

的扩张和辐射,复合辐射和韧致辐射都减弱,由于复合运动的减弱,使韧致辐射持续很长时间,在本实验条件下达1500 ns。Al原子对连续辐射的共振吸收是破坏连续辐射按波长“平滑”分布的主要机制。

参 考 文 献

- [1] 王戎瑞. 美国机载激光武器发展现状. 激光与红外, 1999, **29**(4): 195~ 198
- [2] Iida Y. Atomic emission characteristics of laser induced plasmas in an argon atmosphere at reduced pressure. *Appl. Spectrosc.*, 1989, **43**(2): 229~ 234
- [3] Kuzuya M, Matsumoto H, Takechi H *et al.*. Effect of laser energy and atmosphere on the emission characteristics of laser induced plasmas. *Appl. Spectrosc.*, 1993, **47**(10): 1659~ 1664
- [4] Kagawa K, Yokoi S. Application of the N₂ laser to laser microprobe spectrochemical analysis, *Spectrochimica Acta*, 1982, **37B**(9): 789~ 795
- [5] Grant K J, Paul G L. Electron temperature and density profiles of excimer laser induced plasmas. *Appl. Spectrosc.*, 1990, **44**(8): 1349~ 1354
- [6] Owens M, Mahidi V. Effects of high-pressure buffer gases on emission from laser induced plasmas. *Appl. Spectrosc.*, 1991, **45**(9): 1463~ 1467
- [7] Xu Ning, Majidi V. Wavelength and time resolved investigation of laser induced plasmas as a continuum source. *Appl. Spectrosc.*, 1993, **47**(8): 1134~ 1139
- [8] Thiem T L, Salter R H, Gardner J A *et al.*. Quantitative simultaneous elemental determinations in alloys using laser induced breakdown spectroscopy (LIBS) in an ultra-high vacuum. *Appl. Spectrosc.*, 1994, **48**(1): 58~ 64
- [9] 黄庆举,方尔梯. 激光烧蚀Cu产生等离子体的连续辐射研究. 激光与红外. 1999, **29**(4): 205~ 208
- [10] Wang X T, Man B Y, Wang G T *et al.*. Optical spectroscopy of plasma produced by laser ablation of Ti alloy in air. *J. Appl. Phys.*, 1996, **80**(3): 1783~ 1786
- [11] Sabsabi M, Cielo P. Quantitative analysis of aluminum alloys by laser induced breakdown spectroscopy and plasma characterization. *Appl. Spectrosc.*, 1995, **49**(4): 499~ 507
- [12] Zhao X Z, Shen L J, Lu T X *et al.*. Spatial distributions of electron density in microplasmas produced by laser ablation of solids. *Appl. Phys. (B)*, 1992, **55**(3): 327 ~ 330
- [13] 张延惠,宋一中. 气压对激光诱导等离子体辐射特征的影响. 量子电子光报, 1999, **16**(3): 237~ 242
- [14] 张延惠,宋一中,王象泰. 激光诱导等离子体中Al原子共振双线时空演化的实验研究. 光学学报, 1999, **19**(1): 28~ 34

Time Distribution of the Continuum Radiation in the Plasma Induced by Laser Ablating Al

Song Yizhong Li Liang

(*Department of Physics, Shandong Linyi Teachers College, Linyi 276005*)

(Received 12 November 1999; revised 24 January 2000)

Abstract: With time- and space- resolved technique, the time-resolved spectra of the plasma induced by Nd: YAG laser ablating metal aluminum in Ar were recorded, in which, laser pulse energy was set up to 115 mJ and the buffer pressure 10 kPa. The continuum radiation of aluminum plasma was studied. The mechanism of the continuum radiation of the plasma induced by laser ablating aluminum is discussed. Resonantly absorbing continuum radiation was suggested. Bremsstrahlung and compound radiation of electron were considered as main mechanism of continuum radiation. Short after the laser beam getting to the surface of the target, Bremsstrahlung is the primary mechanism of the continuum, during early stage of the plasma involution the continuum radiation derives from Bremsstrahlung and compound radiation of electron; but during late stage the continuum emission only comes from compound radiation of electron. Atom Al selectively absorbs continuum radiation, it leads to the change of the smooth distribution of continuum emission with wavelength under normal condition.

Key words: laser ablation; laser induction; plasma; time-resolved spectrum; Bremsstrahlung; compound radiation