

文章编号: 0253-2239(2005)05-678-5

脉冲激光烧蚀碲镉汞材料的等离子体发射谱*

张运海¹ 王宝泉² 吕国华¹ 孙刚¹ 刘玫¹ 张志广¹ 满宝元^{1**}

(¹ 山东师范大学物理与电子科学学院, 济南 250014)
(² 德州学院物理系, 德州 253023)

摘要: 脉冲激光辐照处于不同背景气压下的 $\text{Hg}_{0.8}\text{Cd}_{0.2}\text{Te}$ 材料表面, 用时间和空间分辨诊断技术探测了激光照射后产生的等离子体发射谱, 根据所获得的飞行时间谱测量了等离子体中粒子的出射速度, 结果表明粒子速度随着出射距离的增加迅速减小, 且背景气压对出射速度有很大的影响, 而激光能量对粒子速度的影响不大。另外根据谱线的展宽计算了等离子体中的电子密度, 结果表明, 电子密度在激光辐照样品后的短时间内迅速减小, 且电子密度最大的位置不是出现在靶的表面而是在距表面一定距离处。

关键词: 光谱学; 激光等离子体发射谱; 飞行时间谱; 粒子速度; 电子密度

中图分类号: O433.4 文献标识码: A

The Emission Spectrum of Plasma Induced by Pulsed Laser Ablation of HgCdTe

Zhang Yunhai¹ Wang Baoquan² Lu Guohua¹ Sun Gang¹ Liu Mei¹

Zhang Zhiguang¹ Man Baoyuan¹

(¹ College of Physics and Electronics, Shandong Normal University, Jinan 250014)
(² Department of Physics, Dezhou University, Dezhou 253023)

Abstracts: At different pressure, a pulsed laser was used to irradiate the surface of $\text{Hg}_{0.8}\text{Cd}_{0.2}\text{Te}$. The emission spectrum from the plasma was detected by a time and space-resolved diagnostic technique. The velocity of the ejected particle was measured on the basis of obtained time of flight spectrum. The experimental results indicate that the velocity of the ejected particle decreases quickly with increasing the distance from target surface. Moreover, the velocity is influenced greatly by the ambient pressure and the laser energy has almost no impact on velocity. In addition, the electron density was estimated by using full width at half maximum and the results show that the electron density decreases quickly during a short period after the laser arrives the surface. Moreover, the maximal electron density emerges at a position which is some distance away from the target surface but not on the surface.

Key words: spectroscopy; laser plasma emission; time of flight spectrum; particle velocity; electron density

1 引 言

脉冲激光与固体材料的相互作用在材料加工、医学、军事及激光镀膜等许多方面都有着极其广泛的应用。近年来, 由于高功率超短脉冲激光的使用, 激光与物质相互作用的领域又获得了许多新的物理现象和规律。目前, 国内外许多作者已经对激光与固体材料的相互作用进行了研究, 从激光对固体表面的加热、蒸发和损伤以及等离子体的形成和飞溅等过程^[1,2]到激光等离子体的辐射、谱线展宽和频

移以及等离子体的传输特性等^[3,4]都有不少的研究报道, 理论上也给出了一些等离子体膨胀动力学描述^[5,6], 但由于激光与物质的相互作用过程非常复杂, 其作用机制除了与激光的参量(波长、脉宽和能量)密切相关外, 还与固体材料本身的性质以及背景气压有很大的关系, 因而目前已有的研究还不能完整地描述激光和物质的相互作用过程。另外, HgCdTe 是一种重要的红外探测器材料, 它在红外技术中的地位犹如 Si 在微电子技术中的地位, 目前

* 国家自然科学基金(10474059)、山东省自然科学基金(Y2003A01)和教育部留学回国人员科研启动基金资助课题。

作者简介: 张运海(1977~), 男, 硕士研究生, 主要从事激光、离子束与物质相互作用研究。

** 通信联系人。E-mail: byman@sdu.edu.cn

收稿日期: 2004-06-10; 收到修改稿日期: 2004-09-20

已经有了关于脉冲激光沉积(PLD)制备碲镉汞薄膜材料的报道^[7],因此选用该材料对于制备高性能的红外探测材料具有实际意义。目前关于激光与HgCdTe材料相互作用的报道不多,已有的工作主要集中在激光的热效应和损伤方面^[8],并没有涉及到等离子体的特性和传输过程等问题。本文采用YAG脉冲激光辐照处于不同背景气压下的 $\text{Hg}_{0.8}\text{Cd}_{0.2}\text{Te}$ 材料表面,用时间和空间分辨诊断技术探测了等离子体发射谱,给出了等离子体中粒子的出射速度及其演化规律,并对影响粒子飞行速度的因素进行了讨论。同时通过测量和分析谱线展宽计算了早期等离子体中的电子密度,并根据谱线展宽给出了电子密度的演化规律。

2 实验装置描述

详细的实验装置已在过去的报道^[9,10]中给出。 $\text{Hg}_{0.8}\text{Cd}_{0.2}\text{Te}$ 样品置于被抽成真空的杜瓦瓶中,背景气体为空气,实验在不同的气压下进行。由Q开关Nd:YAG激光器(Spectra quanta ray DCR-3)发出的 $1.06\ \mu\text{m}$,10 ns的脉冲激光束经过棱镜M后,由透镜 L_1 会聚在样品的表面,由激光器输出的Q开关同步脉冲信号通过快速脉冲延迟器后,同时触发脉宽为

5 ns的快速脉冲发生器和光学多道分析仪(PARC OMAIII)的数据采集系统,快速脉冲发生器发出一200 V的高压使光学多道分析仪的光电探头选通5 ns的曝光时间,从而可获得高分辨率的光谱信息,通过调节快速脉冲延迟器的时间延迟,可摄取不同时刻的时间分辨光谱。在垂直激光束的方向上,放置由 L_2 和 L_3 组成的透镜组,将距靶表面一定距离处的等离子体发射谱按1:1的比例成像在光谱仪(HR-320)的狭缝处,经谱仪的光栅色散后被光学多道分析仪的探头接收。杜瓦瓶(连同 $\text{Hg}_{0.8}\text{Cd}_{0.2}\text{Te}$ 样品)和透镜分别固定在两个二维可调的平台上,在垂直于靶表面的方向上同步调节杜瓦瓶(即调节 $\text{Hg}_{0.8}\text{Cd}_{0.2}\text{Te}$ 表面)和透镜 L_1 ,即可摄取距靶表面不同距离处的空间分辨谱。

3 结果和讨论

3.1 等离子体随时间演化谱的观察

实验对光谱仪的整个波长响应范围(200~800 nm)内的等离子体发射谱进行了研究。图1为在两种不同背景气压下激光烧蚀 $\text{Hg}_{0.8}\text{Cd}_{0.2}\text{Te}$ 表面产生的等离子体在距靶表面为1.0 mm处在波长范围为300~500 nm的时间演化谱。对应的激光功率密度为 $1.7\times 10^9\ \text{W}/\text{cm}^2$ 。

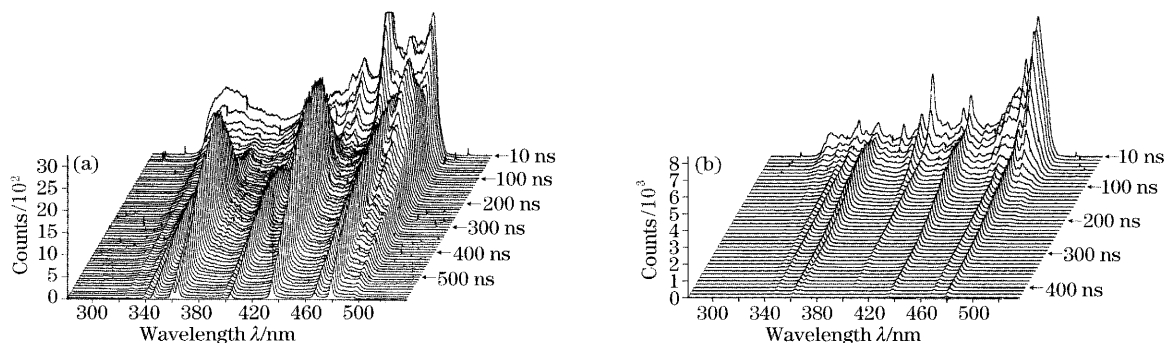


图1 激光烧蚀 $\text{Hg}_{0.8}\text{Cd}_{0.2}\text{Te}$ 表面产生的等离子体在距靶表面为1.0 mm处在波长范围为300~500 nm内的瞬态演化谱,激光功率密度为 $1.7\times 10^9\ \text{W}/\text{cm}^2$,对应的背景气压为(a) $1.01\times 10^5\ \text{Pa}$, (b) $1\times 10^3\ \text{Pa}$

Fig. 1 The temporal evolution of the spectra in wavelength range of $\lambda=300\ \text{nm}$ to $500\ \text{nm}$, recorded at 1.0 mm position from the target surface, the ambient pressures are (a) $1.01\times 10^5\ \text{Pa}$, (b) $1\times 10^3\ \text{Pa}$, respectively

不难看出,在激光辐照到材料表面的早期,产生的谱线以连续光谱为主,由于连续谱主要产生于自由电子与原子、离子碰撞以及自由电子与离子的复合,因此烧蚀物中存在大量的自由电子、原子和离子,这表明等离子体已经产生。随着时间的延迟,连续谱的强度变得越来越弱,开始观察到一些分离的谱线叠加在连续谱上。这些分离的谱线,隐含着非常重要的信息,早期叠加在连续谱上的分离谱主要是 N^+ 离子(463 nm)和 Hg^+ 离子(398.4 nm)谱线。 N^+ 离子的

产生说明空气参与了激光与 $\text{Hg}_{0.8}\text{Cd}_{0.2}\text{Te}$ 的相互作用过程。离子谱线由于电子与离子的复合随着时间很快消失。Hg和Cd原子的分离谱大约在50 ns以后逐渐产生并在两种气压下大约分别在延迟为250 ns和130 ns达到最大,随后随着时间逐渐减弱。比较这两幅图我们还可以发现两种压强下的发射光谱有以下几点区别:

1) 在大气中光谱的持续时间明显比 $1\times 10^3\ \text{Pa}$ 时长,原因是空气对等离子体有束缚作用,压强越

高,束缚越强,因此就能使等离子体较长时间处于高温高密的状态;

2) 在相同的延迟时间下,图 1(b)中谱线的最大强度要高于图 1(a)的情况。尽管在气压较高时等离子体能够较长时间地保持在高温高密的状态,但是如果压强过大,空气对等离子体的约束太强又会促使在空气与等离子体的交界处形成激光自持爆轰波(LSD),从而造成等离子体对激光能量的强烈吸收,使到达样品表面的激光能量减少,从表面喷射出来的激发态原子数目也相应减少,结果辐射的强度就会减弱。实验证明在 1×10^3 Pa 时测得的发射谱最强;

3) 在激光辐照后的初期阶段,两种情况下都可以观察到谱线展宽的现象,但在大气条件下要比 1×10^3 Pa 时展宽更为明显。我们对谱线展宽的机制也进行过专门的分析和研究^[11],并认为谱线的主要展

宽机制为斯塔克展宽。气压越高,斯塔克展宽越明显,从而使高背景气压等离子体的谱线展宽更明显。

3.2 粒子速度的测量与讨论

尽管等离子体中谱线强度取决于多方面的因素,如电离、复合、激发、碰撞去激发等,但对原子发射谱线强度来说起主要作用的是原子密度和温度。这里忽略温度与密度分布的不一致性,由于发射谱的强度与激发态原子的密度成正比,因而谱线强度最大的地方即为激发态原子密度最大的位置。通过分析谱线的飞行时间谱,得到某一波长谱线的最大强度到达两个不同位置的时间之差,用这个时间差去除两个位置间的距离,就得到产生该谱线的激发态原子在这两个位置间传播的平均速度,我们近似看成是这两个位置中间的速度。表 1 是对 HgI 546.1 nm 和 CdI 479.99 nm 两条谱线的飞行时间谱(TOF)谱进行分析得到的结果。

表 1 在不同位置和气压下测得的激发态 Hg 和 Cd 原子的出射速度 (m/s)

Table 1 The traveling velocities (m/s) of the excited Hg and Cd atoms at different positions and ambient pressures

Spectral lines	pressures /Pa	0.75 mm	1.25 mm	1.75 mm	2.25 mm
HgI 546.1 nm	1.01×10^5	3.333×10^3	1.613×10^3	7.692×10^2	
	1×10^3	8.333×10^3	5.556×10^3	3.333×10^3	2.632×10^3
	5	1.667×10^4	5.556×10^3	3.125×10^3	
CdI 479.99 nm	1.01×10^5	3.571×10^3	2.273×10^3	8.475×10^2	
	1×10^3	1.000×10^4	6.250×10^3	3.333×10^3	2.632×10^3
	5	1.667×10^4	7.143×10^3	4.167×10^3	

通过对表 1 的结果进行分析,不难发现等离子体中粒子速度变化的一些规律:

1) 粒子的飞行速度随距靶表面距离的增加而很快地下降。在大气环境下,粒子运动到距靶面 2 mm 时,速度已减小到声速的量级,这说明等离子体的传播过程是一个速度快速衰减的过程;

2) 在标准大气压下比在 1×10^3 Pa 和 5 Pa 下离子飞行速度减小得更快,这是因为随着背景气压的增加,空气中的粒子与激发态 Hg 原子碰撞更为剧烈,从而使 Hg 原子的飞行速度下降更快;

3) 比较 Hg 原子和 Cd 原子的速度可知,两种原子的速度相差不大,但在某些位置求得的 Cd 原

子速度略大于 Hg 原子,这是因为两种原子所获得的能量基本相同,而 Cd 原子的质量略小于 Hg 原子,由 $E = \frac{1}{2}mv^2$ 知 Cd 原子速度应该比 Hg 原子略大,但二者差别并不是十分明显。

此外,我们还研究了激光能量对粒子速度的影响,表 2 给出了在两种气压下测得的不同位置处 Hg 原子飞行速度随激光能量的变化。这些数据表明,激光能量对粒子速度影响不大,当激光能量增加时,粒子速度在某些测量点上略有增加,在 5 Pa 气压下激光能量对粒子速度的影响要比在标准大气压下稍微明显一些。

表 2 在两种背景气压下测得的 Hg 原子速度(m/s)随着激光功率密度的变化关系

Table 2 The traveling velocities (m/s) of the excited Hg atoms at different laser energy and two different kinds of ambient pressure

Pressure /Pa	Position /mm	26 mJ	39 mJ	58 mJ
1.01×10^5	0.75	2.941×10^3	3.125×10^3	3.125×10^3
	1.25	1.563×10^3	1.613×10^3	1.613×10^3
	1.75	7.692×10^2	7.692×10^2	7.692×10^2
5	0.75	1.000×10^4	1.250×10^4	1.667×10^4
	1.25	5.556×10^3	6.250×10^3	6.250×10^3
	1.75	3.571×10^3	3.571×10^3	3.846×10^3

3.3 电子密度的测量

由于光谱线的展宽机制归因于等离子体中的电子、离子与其他粒子间的相互碰撞。由带电粒子引起的强电场促使原子能级发生分裂,原子在这些能级之间跃迁而造成谱线的展宽,这种由微电场引起的展宽实际上是斯塔克展宽,对谱线展宽的测量一定包含着电子密度的信息。在等离子体随时间演化的早期阶段,满足局域热力学平衡的假设,在此条件下,分离谱线的半峰全宽(FWHM)与电子密度的关系为^[12]

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

式中第一项表示等离子体中的自由电子对展宽的贡献,第二项为离子展宽引起的修正,即加入了准静态的离子电场作用。其中 W 是电子碰撞参量, A 为离子碰撞参量,它们都是温度的慢变函数。 N_D 为德拜球中的粒子数目,由下式给出^[12]:

$$N_D = 1.72 \times 10^9 \frac{T_e^{3/2}}{N_e^{1/2}}, \quad (2)$$

其中 T_e 代表电子温度。由于只能找到 NII 谱线的碰撞参量 W 和 A 的数据,因此我们选取该谱线来估测等离子体中的电子密度。我们以前的实验^[13] 已经得到早期的电子温度大概在 10^4 K 的量级,由于温度对 W 和 A 的影响很小,因此在计算电子密度时选用 $T_e = 1 \times 10^4$ K 时的 W 、 A 值,即 $W = 4.04 \times 10^{-3}$, $A = 0.023$ 。根据(1)式、(2)式,就可以计算出等离子体中的电子密度,结果如图 2 所示。实验数据都是在距离靶表面 1.0 mm 的位置测量的。因为 N^+ 的寿命非常短,它发出的谱线只能在等离子体演化的早期观察到,因此只测到了延迟时间在 300 ns 之

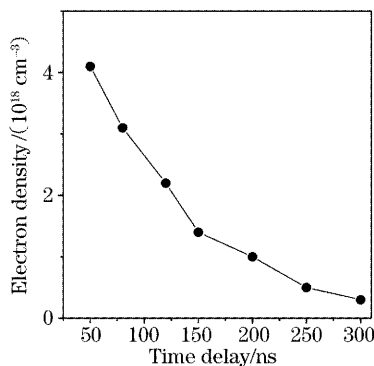


图 2 在距离靶表面 1.0 mm 处测得的早期等离子体电子密度的时间演化规律

Fig. 2 The temporal evolution of electron density of early plasma obtained at 1.0 mm from the target surface

内的数据。从图 2 中可以看出,在等离子体膨胀的初期,电子密度随着延迟时间增加而迅速减小,并且在低气压时减小得更快。事实上,由离子引起的准静态电场对谱线展宽的贡献要远小于电子的作用^[14],因此(2)式中第二项可以忽略,因此有

$$\Delta\lambda_{1/2} \approx 2W(N_e/10^{16}), \quad (4)$$

即电子密度近似与谱线的半峰全宽成正比,因此通过测量谱线的半峰全宽就可以得到电子密度随时间和位置的变化规律。图 3 是在距离靶表面 1.0 mm 处测量 HgI 435.8 nm 谱线得到的结果。可以看出在前 1500 ns 的时间内电子密度减小得较快,之后减小幅度才开始变慢。图 3 右上角嵌入的小图是在同一延迟时刻测出的谱线的半峰全宽与观察位置之间的关系,可看到在等离子体向激光源方向运动的过程中,电子密度先增加后减小,在距离表 1.0 mm 附近,电子密度达到最大值。实际上,当激光打到靶表面后,靶吸收激光的能量首先汽化,大多数靶蒸汽还没有来得及离化就迅速飞离靶面,之后在飞行的过程中通过成分之间的剧烈碰撞及对激光能量的继续吸收开始迅速离化,使电子密度增加。因而电子密度最大的地方并不是出现在材料表面,而是在距表面一定距离处。

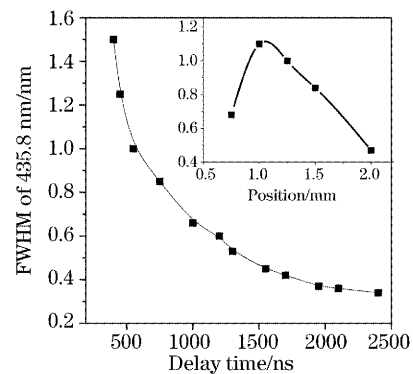


图 3 在距离靶表面 1.0 mm 处测得的 HgI 435.8 nm 谱线半峰全宽在 400 ns 后随时间的变化规律

Fig. 3 The temporal evolution of FWHM of HgI 435.8 nm line after 400 ns at 1.0 mm from the target surface. The inset give the relation of evolution of FWHM with the observation distance from the target surface at 500 ns

4 结 论

在不同的背景气压下,用功率密度为 1.7×10^9 W/cm² 的脉冲激光照射 Hg_{0.8}Cd_{0.2}Te 材料的表面,用时间和空间分辨技术探测了产生的等离子体

的发射谱,由飞行时间谱测量到的粒子速度的数据表明,粒子速度随着出射距离的增加迅速减小,且在高压时减小得更快,在同一位置测量不同气压下的粒子速度,低气压时速度较大,在相同的条件下,质量大的原子所获得的速度小,激光能量对粒子速度影响较小,当激光能量增加时,粒子速度略有增加。另外根据谱线的展宽计算了等离子体中的电子密度,结果表明,电子密度在激光辐照样品后的短时间内迅速减小,且电子密度最大的位置不是出现在靶的表面而是在距表面一定距离处。

参 考 文 献

- 1 H. Dömer, O. Bostanjoglo. Relaxing melt and plasma bubbles in laser-pulsed metals[J]. *J. Appl. Phys.*, 2003, **94**(10): 6280~6284
- 2 Yuan Yonghua, Liu Songhao, Sun Chengwei *et al.*. Study of the characteristics of the surface ripple on Si material irradiated by pulsed laser[J]. *Acta Optica Sinica*, 2004, **24**(2): 239~242 (in Chinese)
袁永华,刘颂豪,孙承伟等. 脉冲激光辐照硅材料引起表面波纹的特性研究[J]. *光学学报*, 2004, **24**(2): 239~242
- 3 Xu Wei. Spectroscopic method for measurement of plasma ion temperature and rotation velocity[J]. *Acta Optica Sinica*, 2003, **23**(9): 1115~1118 (in Chinese)
徐 伟. 光谱法测量等离子体温度和旋转速度[J]. *光学学报*, 2003, **23**(9): 1115~1118
- 4 X. Z. Zeng, S. S. Mao, E. Russo *et al.*. Plasma diagnostics during laser ablation in a cavity[J]. *Spectrochimica Acta Part B*, 2003, **58**(5): 867~877
- 5 S. S. Harilal, C. V. Bindhu, M. S. Tillack *et al.*. Internal structure and expansion dynamics of laser ablation plumes into ambient gases[J]. *J. Appl. Phys.*, 2003, **93**(5): 2380~2388
- 6 T. E. Itina, J. Hermann, P. Delaporte *et al.*. Laser-generated plasma plume expansion: Combined continuous-microscopic modeling[J]. *Phys. Rev. (E)*, 2002, **66**(6): 66406~66417
- 7 M. Kuzma, P. Sagan, I. S. Virt *et al.*. Structural properties of HgCdTe thin films obtained by PLD[C]. *Thirteenth International Conference on Microscopy of Semiconducting Materials*, 2003, 31 March, 2~17
- 8 A. Garg, A. Kapoor, K. N. Tripathi *et al.*. Comparative study of evolution of laser damage in HgCdTe, CdTe, and CdZnTe with nanosecond 1.06- μm wavelength multiple pulses [C]. *Proc. SPIE*, 2003, **5273**: 52~74
- 9 Man Baoyuan, Wang Xiangtai, Hu Xierong Hu *et al.*. The Analysis of emission produced by laser ablation of metal surface [J]. *Acta Optica Sinica*, 1997, **17**(2): 161~165 (in Chinese)
满宝元,王象泰,胡 荣等. 激光烧蚀金属表面所产生的发射光谱分析[J]. *光学学报*, 1997, **17**(2): 161~165
- 10 B. Y. Man, X. T. Wang, A. H. Liu. Transport of plasmas produced by pulsed laser ablation of HgCdTe [J]. *J. Appl. Phys.*, 1998, **83**(7): 3509~3513
- 11 B. Y. Man. Particle velocity, electron temperature and density profiles of pulsed laser-induced plasmas in air at different ambient pressures[J]. *Appl. Phys. (B)*, 1998, **67**(2): 241~245
- 12 H. R. Griem. *Plasma Spectroscopy* [M]. New York: McGraw-Hill, 1964. 105~107
- 13 B. Y. Man, Q. L. Dong, A. H. Liu *et al.*. The 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
- 14 R. Tamby, R. Singh, R. K. Thareja. Studies on recombining Al-plasma using 1.06, 0.532, 0.355, and 0.266 μm laser radiation[J]. *J. Appl. Phys.*, 1992, **72**(3): 1197~1199