# 紫外激光烧蚀 Cu 诱导 发光羽外观特征动力学研究

黄庆举1,李富全1,王洪华2

(1. 茂名学院 物理系,广东 茂名 525000;2. 茂名学院 图书馆,广东 茂名 525000)

摘要:通过测定脉冲紫外激光在氦气中烧蚀金属 Cu 诱导发光羽的发射光谱及其强度随时间的分布,拍 摄了发光羽的照片。实验结果表明:在低压下,发光羽的中心区与中间层均为混合色,外围层为黄绿色; 中压下,发光羽的中心区和中间层均为白色,外围层为淡绿色;高压下,发光羽的中心区和中间层均为白 色,外围层为微绿色。发光羽区域随着环境气压的增大而减小,其颜色随环境气压的增大而变淡。结合 实验结果,对发光羽的发光机理进行了探讨。中压及低压下以电子与原子、离子的碰撞传能激发以及原 子与原子、离子的碰撞传能激发为主要机理;高压下以电子韧致辐射及电子与离子的复合激发为主要机 理。并用此机理定性地解释了所观察到的实验现象。

关键词:脉冲激光;烧蚀;发光羽;颜色;金属 Cu 中图分类号:O536;TN241 文献标志码:A

文章编号:1000-6931(2008)04-0338-05

# Appearance Property and Mechanism of Plume Produced by Pulsed Ultraviolet Laser Ablating Copper

HUANG Qing-ju<sup>1</sup>, LI Fu-quan<sup>1</sup>, WANG Hong-hua<sup>2</sup>

Department of Physics, Maoming College, Maoming 525000, China;
 Library, Maoming College, Maoming 525000, China)

**Abstract:** Time-resolved measurements of plume emission spectra by pulsed ultraviolet laser ablating copper in neon were analyzed, and the photographs of plume from laser ablating copper were taken. The experimental results show that plume has different colours in different ranges. At low pressure the centre layer and middle layer colours of plume are mixed colour, and the outer layer colours of plume are yellow and green. At middle pressure the centre layer and middle layer colours of plume are white, and the outer layer colour of plume is pea green. At high pressure the centre layer and middle layer colours of plume are white, and the outer layer colour of plume is faintness green. The plume range is pressed with the rising of ambient gas pressure, and the range colour gets thin with the rising of ambient gas pressure. The plume excitation radiation

收稿日期:2007-06-12;修回日期:2007-12-18

基金项目:国家自然科学基金资助项目(29273130);广东省科技计划资助项目(73065);茂名学院科学研究基金资助项目 (203396)

作者简介:黄庆举(1965一),男,山东临沂人,副教授,应用物理专业

mechanism in pulsed ultraviolet laser ablating copper was discussed. The primary excitation radiation mechanism in plume is electron collision energy transfer and atom collision energy transfer at low pressure and middle pressure, and it is electrons bremsstrahlung and recombination excitation radiation of electron and ion at high pressure. The model can be used to explain the experimental result qualitatively.

Key words: pulsed laser; ablation; plume; colour; copper

自从脉冲激光器诞生以来,脉冲激光与固 体的作用一直被许多学者所研究。激光烧蚀溅 射技术在薄膜沉积、材料微区分析、表面刻蚀和 改性等方面具有广泛的应用前景[1-4]。强激光 辐照固体材料将引起材料烧蚀,从靶面溅射出 大量的电子、原子、分子、原子分子簇及它们的 正负离子<sup>[5-7]</sup>。Itina 等<sup>[8]</sup>认为,烧蚀诱导发光 过程在激光脉冲内,脉冲激光对溅射碎片再解 离激发。Timmer<sup>[9]</sup>认为,在气相等离子体中, 电子与离子的复合是原子和离子激发的主要过 程。激光烧蚀诱导发光的机理非常复杂,激光 等离子体的羽光发射包括特征原子线、离子线、 连续背景光,它能够反映发光羽的整体特征,揭 示激光烧蚀金属的机理。本工作采用308 nm 脉冲紫外激光烧蚀金属 Cu 的方式,拍摄发光 羽的照片,采用时间分辨光谱测试技术,测量等 离子体中的发射光谱,研究不同环境气压下发 光羽的外观特征,并对激光发光羽的辐射机理 进行探讨。

## 1 实验

实验装置如图 1 所示。XeCl 308 nm 激光器(脉冲宽度为 10 ns,脉冲能量为 90 mJ)发出的激光通过 1 个透镜(f=100 mm),经石英窗







进入烧蚀室,垂直聚焦到1个可旋转的 Cu 靶 上。实验中所用的 Cu 靶纯度为 99.99%, 靶的 转速为240 r/min。激光与 Cu 靶作用的光斑直 径约为0.7 mm,烧蚀室内的氖气压强在5 Pa~ 101.3 kPa内可调。激光辐照靶表面时,形成1 个绿色为主的等离子体羽状发光体。在垂直于 靶面的法线方向上,通过1对透镜( $f_1$  = 120 mm,  $f_2 = 300$  mm)将等离子体羽状发光体 放大3倍后,成像在AM350型单色仪的狭缝 上,单色仪的分辨率为 0.01 nm,经单色仪分光 后由光电倍增管接收。在进行发射光谱测定 时,单色仪固定在1个适当位置进行波长扫描, 经光电倍增管转换为电信号后,输入 Boxcar162/166型平均器,输出由计算机数据采 集板记录,单色仪扫描速度为10 nm/min,激光 脉冲频率为10 Hz。用 F900 eV 型数据采集板 记录,它能够直接储存与多次平均所采集的信 号,平均次数为15。若将单色仪、光电倍增管、 计算机数据采集板等仪器去掉,换成照相机,即 可进行等离子体羽照片的拍摄实验。

#### 2 结果与讨论

图 2 示出在 1.7 kPa 氖气压强下、距靶 1.37 mm处所测定的激光烧蚀金属 Cu 诱导发 光羽的发射光谱。从图 2 可看出,发光羽的发 射特征光谱线主要由 Cu 原子激发谱线构成, 其次为离子激发谱线。从发射总强度来看,铜 的原子谱线与离子谱线相比,前者不仅数目比 后者多,而且强度也比后者大。这些原子和离 子辐射谱线均叠加在较强的连续发射谱的背景 光上。在可见光范围内,视见函数较小的 Cu I 437.82 nm紫光最强,其次是绿色波段视见函 数较大的 Cu I 510.55 nm、Cu I 529.25 nm的 原子线与 Cu I 578.21 nm 的黄光。

本工作认为,在脉冲激光作用期间,金属局 部快速加热升温,引起材料强烈蒸发、气化和电



离,形成激光等离子体。激光等离子体包含大 量的颗粒、团簇、原子、离子和电子。用公式表 示如下:

$$\mathbf{e} + h_{\mathbf{y}} \rightarrow \mathbf{e}' \tag{1}$$

$$Cu + Nh\nu \rightarrow Cu^{n+} + ne \quad (n = 1, 2) \quad (2)$$
$$Ne + Nh\nu \rightarrow Ne^{+} + e \quad (3)$$

式(1)表示电子的逆韧致辐射,式(2)、 (3) 表示靶原子与环境气体 Ne 的多光子电 离,N取自然数。因激光的脉冲宽度为10 ns, Cu 靶的多光子电离过程是短暂的, Strupp 等[10]认为,在低激光能量辐射固体时,光致电 子发射为主要机理,其中包括多光子电离发 射的过程。在高激光能量辐射固体时,热电 子发射为主要过程。Cook<sup>[11]</sup>基于热电子发 射,考虑电子出射后的空间电荷效应,在激光 烧蚀靶的半径  $r_{\rm f}$ 上,温度为 T 时,电子发射流 *j*。的表达式为:

$$j_{\rm e} = 2\pi n e r_{\rm f}^2 (kT/2\pi m_{\rm e})^{1/2} \cdot \exp[-(W+U_{\rm s})/kT]$$
(4)

式中:n 为电子密度;e 为单位电荷量;m。为电 子质量; k 为玻耳兹曼常数; W 为激光作用区的 表面功函数:U。为由于空间电荷效应而形成的 空间电势。

所谓的空间电荷效应是指由于电子的分布 导致空间存在1个电势的分布。在激光脉冲 内,这些出射电子通过逆韧致辐射在激光场中 得到能量,一方面与气体作用形成气相等离子 体,另一方面又形成空间电荷效应。这种空间 电荷效应影响金属等离子体的扩散与传播<sup>[12]</sup>。 在激光烧蚀靶的半径 r<sub>i</sub>上,温度为 T<sub>i</sub>时,离子 发射流;可用下式表达:

(

$$j_{
m i}=2\pi n_{
m i} er_{
m f}^2 (kT_{
m i}/2\pi m_{
m i})^{1/2}$$
 .

$$\exp\left[-\left(W_{\rm i}+U_{\rm s}\right)/kT_{\rm i}\right] \tag{5}$$

式中:m;为离子质量;n;、W;分别为离子密度、 出射所需的功函数。

而电子又将通过逆韧致辐射作用吸收激光 能量从而达到很高的速度[13]。高能电子在密 集的离子环境中快速运动,产生较强的韧致辐 射,形成等离子体羽光中的连续辐射。电子的 碰撞传能激发、原子与原子和离子的碰撞传能 激发以及电子与离子的复合激发使原子和离子 **处于激发态。**电子和离子复合除产生激发态的 离子和原子外,另一主要特征是复合过程中伴 随着连续辐射。用公式表示为:

$$\mathbf{e} + M^{n+} \rightarrow M^{n+} + \mathbf{e}' + kh \,\mathbf{v} \tag{6}$$

$$\mathbf{e} + \mathbf{C}\mathbf{u}^{(n+1)+*} \to \mathbf{C}\mathbf{u}^{(n-1)+*} + kh\nu$$

$$\mathbf{C}\mathbf{u}^{(n-1)+*} \to \mathbf{C}\mathbf{u}^{(n-1)+*} + k'$$
(7)

$$u \longrightarrow Cu \longrightarrow n'$$
  
$$e + Cu^{n+} \rightarrow Cu^{n+*} + e'$$

$$Cu^{n+*} \to Cu^{n+} + h\nu$$

$$Cu^{*} + Cu \rightarrow Cu^{*} + Cu^{*}$$

$$Cu^{*} \rightarrow Cu + h\nu$$
(9)

$$Cu + Ne \rightarrow Cu^* + Ne$$

$$Cu^* \rightarrow Cu + h\nu$$
(10)

式中:M为Cu、Ne:n=0,1,2分别表示原子、 一价离子、二价离子;k 取自然数。

式(6)为电子的韧致辐射;式(7)为电子与 离子的复合激发辐射,产生原子和离子特征辐 射线;式(8)为电子与原子、离子的碰撞传能激 发,产生原子和离子的特征辐射线;式(9)、(10) 表示原子与原子、离子的碰撞传能激发,产生原 子和离子的特征辐射线。

在不同氖气压强下,拍摄了激光烧蚀金属 Cu产生发光羽的照片(图 3)。从图 3 可看出, 在低压下,发光羽的中心区与中间层均为混合 色,外围层为黄绿色。在中压下,发光羽的中心 与中间层均为白色,外围层为淡绿色。在高压 下,发光羽的中心区与中间层均为白色,外围层 为微绿色。发光羽随环境气压的增大而逐渐减 小,其颜色随环境气压的增大而逐渐变淡。对 于中压及低压下的区域,电子运动速度较大,因 此,电子与原子、离子的碰撞传能激发及原子与 原子、离子的碰撞传能激发为主要发光机理;高 压下的区域,因电子密度高,电子的消碰撞传能



图 3 不同氛气压强下 激光烧蚀金属 Cu产生发光羽的照片 Fig. 3 Photograph of plume from ultraviolet laser taken in different neon pressures a---5 Pa;b----1.7 kPa;c----97.6 kPa

激发较大,因此,电子韧致辐射与电子、离子的 复合激发为主要发光机理。在同一气压下的发 光羽,在不同区域内有1个压强梯度,低压下发 光羽外围层的压强为低压,以电子与原子、离子 的碰撞传能激发及原子与原子、离子的碰撞传 能激发为主要发光机理,所以,其颜色最浓,呈 黄绿色;发光羽的中心区与中间层的压强为中 压,以电子与原子、离子的碰撞传能激发及电子 与离子的复合激发为主要发光机理,所以,其颜 色呈混合色;中压下的发光羽外围层与中间层 为中压,以电子与原子、离子的碰撞传能激发及 原子与原子、离子的碰撞传能激发为主要发光 机理,所以,其外围层颜色呈淡绿色,中间层呈 白色。发光羽的中心区的压强为高压,以电子 韧致辐射及电子与离子的复合激发为主要发光 机理,所以,颜色呈白色;高压下的发光羽外围 层、中间层、中心区的压强均为高压,电子韧致 辐射与电子与离子的复合激发为主要发光机 理,所以,中心区与中间层呈白色,外围层的颜 色最淡,呈微绿色。

## 3 结论

通过测定紫外激光烧蚀金属 Cu 诱导发光 羽的发射光谱,拍摄获取了脉冲紫外激光烧蚀 金属 Cu 诱导发光羽的照片。实验结果表明, 发光羽区域随环境气压的增大而逐渐减小,其 颜色随环境气压的增大而逐渐变淡。在同一气 压下,发光羽不同区域内有 1 个压强梯度,低压 下发光羽外围层的压强为低压,发光羽的中心 区与中间层的压强为中压;中压下的发光羽外 围层与中间层均为中压,发光羽的中心区的压 强为高压;高压下的发光羽外围层、中间层、中 心区的压强均为高压。中压及低压下以电子与 原子、离子的碰撞传能激发及原子与原子、离子 的碰撞传能激发为主要发光机理;高压下以电 子韧致辐射与电子与离子的复合激发为主要发 光机理。诱导发光的机理是一多重激发模型, 它比单一模型更具有合理性,不仅能解释单一 模型所能解释的实验现象,而且还能够解释单 一模型所不能解释的实验现象。激光烧蚀金属 诱导发光的过程十分复杂,还有待于进行进一 步的研究。

#### 参考文献:

- [1] 江少恩,孙可煦,杨家敏,等.不同黑腔的 X 光辐射和散射光特性实验研究[J].原子能科学技术,2007,41(1):26-35.
  JIANG Shaoen, SUN Kexu, YANG Jiamin, et al. Experimental investigation on properties of X-ray radiation and scattering light from different hohlraums[J]. Atomic Energy Science and Tech-
- [2] 陶业争,单玉生,王乃彦,等. 单光子入射方法测量超快硬 X 射线能谱[J]. 原子能科学技术, 2002, 36(1):1-4.

nology, 2007, 41(1):26-35(in Chinese).

TAO Yezheng, SHAN Yusheng, WANG Naiyan, et al. Measuring ultrafast X-ray spectrum by single-photon incident method [J]. Atomic Energy Science and Technology, 2002, 36(1):1-4(in Chinese).

[3] 梁晶,单玉生,汤秀章,等. 烧蚀层厚度对飞片稳 定性的影响[J].原子能科学技术,2007,41(2): 153-157.

LIANG Jing, SHAN Yusheng, TANG Xiuzhang, et al. Effect on stability of flyers by altering thickness of ablators [J]. Atomic Energy Science and Technology, 2007, 41(2):153-157 (in Chinese).

[4] 张运海,王宝泉,吕国华,等.脉冲激光烧蚀碲镉
 汞材料的等离子体发射谱[J].光学学报,2005,25(5):678-682.

ZHANG Yunhai, WANG Baoquan, LU Guohua, et al. The emission spectrum of plasma induced by pulsed laser ablation of HgCdTe [J]. Acta Optica Sinica, 2005, 25(5):678-682(in Chinese).

[5] 李业军,单玉生,张骥,等. 电子磁谱仪法测量超 热电子温度[J]. 原子能科学技术,2005,39(2): 106-109. LI Yejun, SHAN Yusheng, ZHANG Ji, et al. Measurement of hot electron temperature by using electron magnetic spectrometer[J]. Atomic Energy Science and Technology, 2005, 39(2): 106-109(in Chinese).

[6] 陶业争,单玉生,李业军,等. 超短脉冲激光辐照 固体靶产生超热电子研究[J]. 原子能科学技术, 2002,36(6):481-485.

> TAO Yezheng, SHAN Yusheng, LI Yejun, et al. Study on hot electron generation from solid target irradiated by ultrashort laser[J]. Atomic Energy Science and Technology, 2002, 36(6): 481-485(in Chinese).

- [7] DOCCHIO F, REGONDI P, CAPON M R C, et al. Study of the temporal and spatial dynamics of plasma dynamics of plasmas induced in liquids by nanosecond Nd : YAG laser pulses: 1 Analysis of the plasma staring times; 2 Plasma luminescence and shielding[J]. Appl Opt, 1988, 27(17):3 661-3 674.
- [8] ITINA T E, HERMANN J, DELAPORTE P,

et al. Laser-generated plasma plume expansion: Combined continuous-microscopic modeling [J]. Phys Rev, 2002, E66(6):66 406-66 417.

- [9] TIMMER C. Quantitative analysis of aluminum impurities in zinc alloy by laser-induced breakdown spectroscopy [J]. J Appl Phys, 1991, 70 (3): 1 888-1 892.
- [10] STRUPP P G, ISENOR N R. The plasma properties of laser-ablated SiO<sub>2</sub>[J]. Appl Phys, 1991, 69(16):3 742-3 745.
- [11] COOK G. Energies and quantities of electron in laser-produced metal plamas[J]. Phys D Appl Phys, 1983, 16(5):889-993.
- [12] PEARLMAN J S. High-energy ions from pulsed laser ablaton of Al[J]. Appl Phys Lett, 1979, 31(3):414-417.
- [13] GIACOMO A D. Experimental characterization of metallic titanium-laser induced plasma by time and space resolved optical emission spectroscopy
  [J]. Spectrocnimical Acta: Part B, 2003, 53(1):71-83.