

脉冲激光 - 铜靶等离子体产生及其演化过程的瞬态光谱研究*

刘院省 刘世炳[†] 宋海英 何润

(北京工业大学激光工程研究院, 北京 100124)

(2010 年 12 月 23 日收到; 2011 年 4 月 7 日收到修改稿)

应用时间分辨光谱技术, 研究了高能量纳秒脉冲激光作用下铜靶表面等离子体产生及演化的物理过程. 实验中相互作用区固 - 气 - 液三相对激光能量的吸收明显地反映于激光反射强度随时间的演化中, 使得靶表面物质形态的改变导致激光反射强度随时间呈双峰分布. 同时, 随着激光峰值功率密度的增加, 靶面等离子体 (气) - 固 - 液相变发生的时间相应提前. 因此, 这些瞬态性质是诊断激光 - 固体靶相互作用中靶面物质相变时间的有效方法.

关键词: 激光 - 铜靶, 时间分辨光谱, 等离子体辐射, 激光反射强度

PACS: 42.70.Hj, 42.60.Jf, 78.47.jc, 94.20.Fg

1 引言

脉冲激光与固体靶相互作用诱导等离子体产生及演化过程的动力学研究, 已成为众多应用技术和基础研究的重要课题^[1-7]. 如激光加工中热影响区的大小^[8]、PLD 制备薄膜的质量^[9]、等离子体中电子加速机理^[10,11]等诸多问题, 都与等离子体的产生及演化过程有着直接或间接联系. 近几十年来, 人们通过各种技术手段对脉冲激光与固体靶相互作用过程中等离子体的产生及演化机理进行了诸多研究^[12-19]. 如 Huang 等人利用发射光谱法研究了纳秒脉冲激光与固体靶的相互作用过程, 结果表明靶面经历了温度升高、融化、蒸发等一系列复杂的相变^[14,15]; Hatem 等人则通过闭环反馈控制技术研究了超短激光脉冲作用下 Si 靶表面的刻蚀阈值问题^[18]; Wu 等人的研究发现高能量纳秒脉冲激光与 Al 靶相互作用过程中靶表面的物质直接由液态进入等离子体态^[25]. Ji 等人通过研究靶面电信号随时间的变化, 发现脉冲激光与固体靶相互作用时电势信号呈双峰结构^[16]; Zhang 等人则采用数值方法模拟研究了纳秒脉冲激光与固体靶相互作用过程, 结果表明在激光峰值功率密度足够高时固体靶面会经历相爆破等复杂物理过程^[12,17].

鉴于脉冲激光与固体靶相互作用过程的复杂性, 深入研究等离子体的产生及其演化过程仍具有重要的学术意义和应用价值.

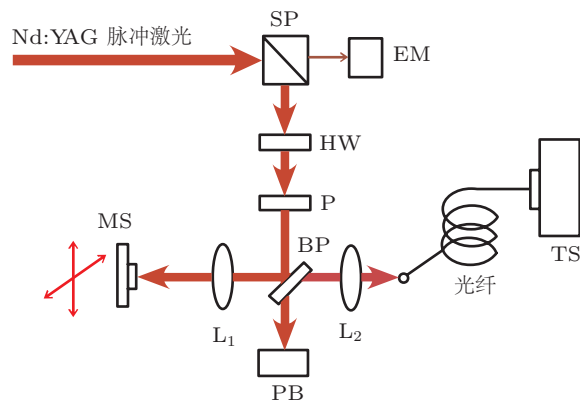


图 1 脉冲激光靶面反射光谱瞬态测量实验装置 (SP 为分束器, EM 为能量计, HW 为四分之一波片, P 为偏振片, BP 为分束镜, PB 为激光陷阱, L₁ 和 L₂ 为会聚透镜, MS 为二维电动移动台, TS 为瞬态光谱仪)

本文采用时间分辨光谱技术, 通过高能量纳秒激光与 Cu 靶的相互作用, 研究激光反射强度与靶表面不同物质形态的演化规律; 结合等离子体辐射谱的时间分辨及靶面温度场的数值模拟, 探索相互作用过程中等离子体产生与靶面物质固 - 液相变之间的依赖关系.

* 国家自然科学基金 (批准号: 10974010) 和北京市科技创新平台 (批准号: 1010005466903) 资助的课题.

[†] E-mail: sbliu@bjut.edu.cn

2 实验装置及方法

实验装置 (图 1) 中光学器件的参数及作用在文献 [20] 中做过详细说明, 不再赘述. 需要指出的是全反镜 BP 更换为半透半反分束镜 ($R = 45\% @ 1064 \text{ nm}$), 保证固体靶面反射的激光能够被有效地收集进入光纤. 实验中, 激光中心波长 1064 nm 、脉冲宽度 27 ns 、重复频率 10 Hz 、最大单脉冲能量 200 mJ 、聚焦后作用于靶面的光斑直径约 $200 \mu\text{m}$; 光谱仪 (Acton Model: 2500i) 焦距 500 mm , 光栅刻线 1200 g/mm , 分辨率 0.1 nm ; 采集处理光信号的 ICCD (Princeton Instruments Model: 7397-0005) 曝光门宽 2 ns ; 样品 Cu (纯度 $> 99.99\%$) 用砂纸磨平后由颗粒直径 $2 \mu\text{m}$ 的抛光液抛光, Cu 靶表面粗糙度 $< 5 \mu\text{m}$.

3 实验结果及讨论

图 2(a) 示出了激光峰值功率密度 $4.72 \times 10^7 \text{ W/cm}^2$ 时, 其反射强度随时间的演化过程. 文中取激光峰值达到 Cu 靶表面的时刻为时间零点. 激

光与靶面的整个相互作用期间没有连续谱线出现, 表明没有产生等离子体, 图 2(b) 显示此时激光靶面反射光谱随时间的演化呈双高斯曲线分布. 靶面对激光的反射光谱强度由入射激光强度和靶面反射率共同决定. 激光峰值功率密度较低时, 电子比热容表达式如下 [21]:

$$C_e = \frac{\pi^2 n_e T}{2T_F}, \quad (1)$$

其中电子密度 n_e 、电子费米温度 T_F 均由 Cu 靶自身性质决定, 因此靶面对激光的吸收/反射情况直接决定于靶面晶格温度 T . 图 2(c) 给出了激光峰值功率密度 $4.72 \times 10^7 \text{ W/cm}^2$ 时, 固体靶晶格温度场的模拟结果 (具体的模拟方法及结果的详细讨论将另文发表), 容易看出, 激光作用期间靶面晶格的最大温度仅为 621 K , 远远低于 Cu 的熔点 1358 K . 图 2(d) 给出了靶面晶格温度随时间的演化过程, 激光峰值过后约 7.16 ns 晶格温度最高, 这同图 2(b) 中第二条拟合曲线的中心位置 7.2 ns 十分符合, 表明当激光峰值功率密度较低时, 激光反射强度随时间的变化反映了入射激光强度和靶面晶格温度两个物理量的演化过程.

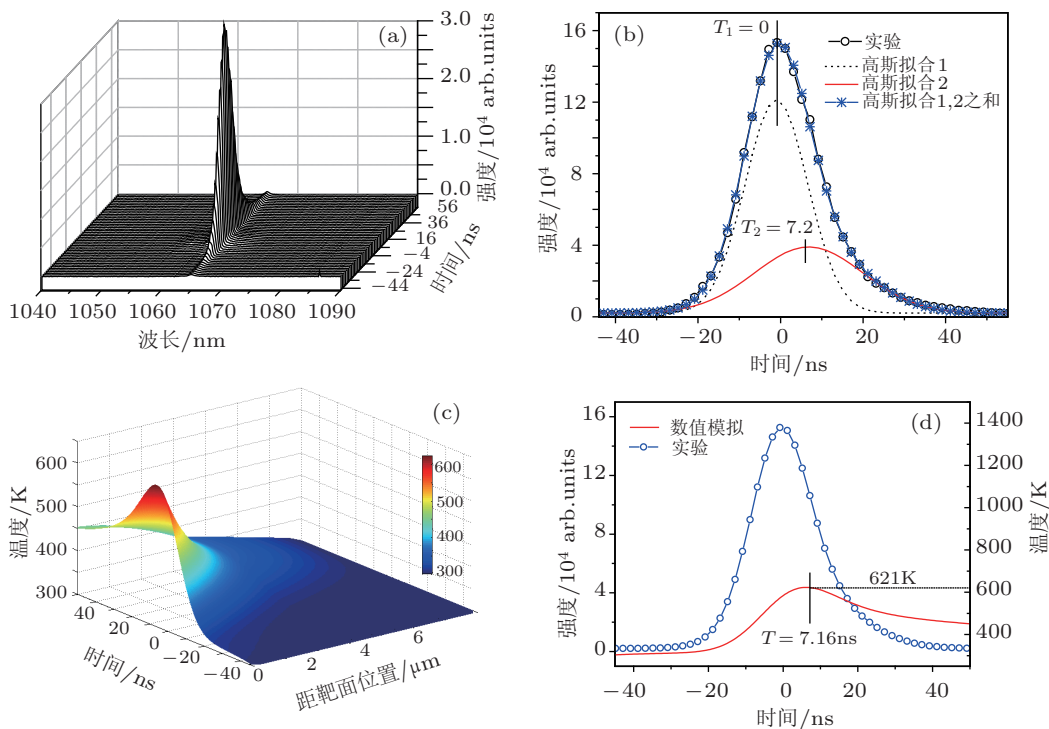


图 2 激光峰值功率密度 $4.72 \times 10^7 \text{ W/cm}^2$ 时, (a) 靶面反射激光的瞬态时间分辨光谱; (b) 靶面反射光谱随时间的演化及拟合过程; (c) 靶内晶格温度场分布; (d) 靶面晶格温度及其对激光反射率随时间的演化

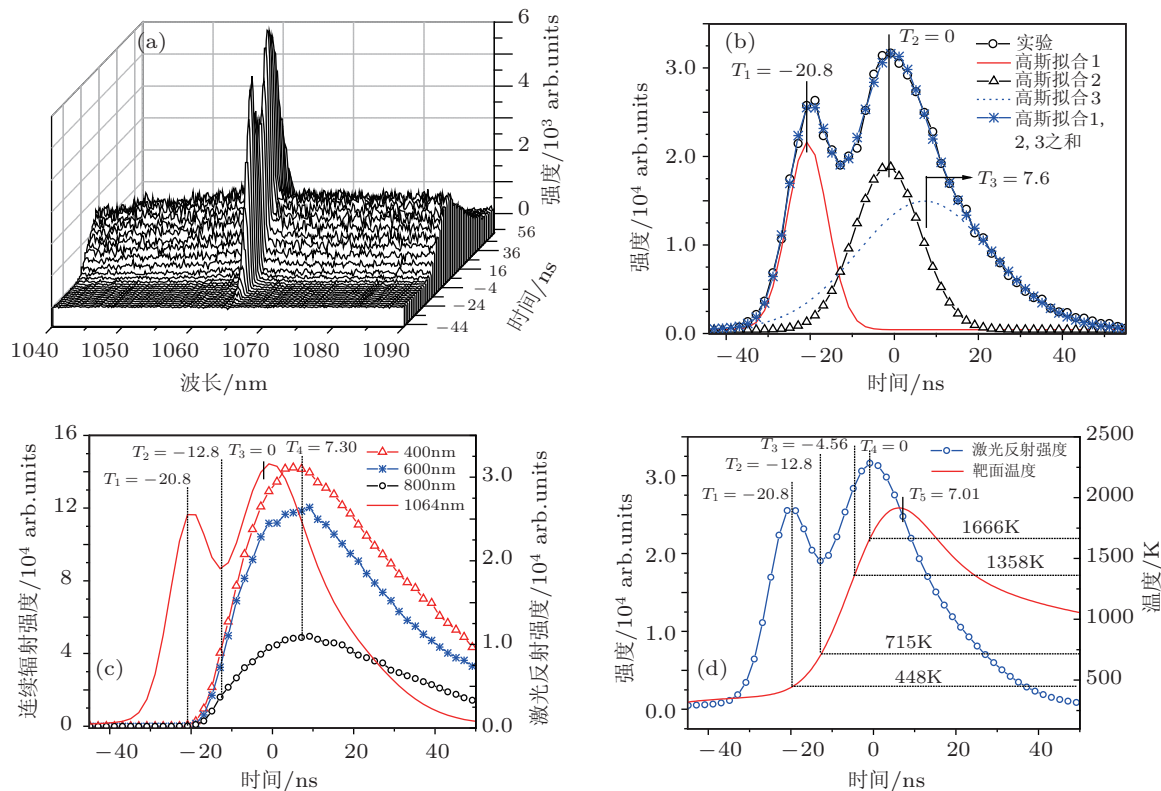


图3 激光峰值功率密度 $2.36 \times 10^8 \text{ W/cm}^2$ 时, (a) 靶面反射激光的瞬态时间分辨光谱; (b) 靶面反射光谱随时间的演化及拟合过程; (c) 等离子体连续谱辐射强度随时间演化; (d) 靶面晶格温度及其对激光反射率随时间的演化

激光峰值功率密度增大到 $2.36 \times 10^8 \text{ W/cm}^2$ 时, 图 3(a) 表明脉冲激光与靶面相互作用期间, 出现等离子体的连续辐射, 图 3(b) 显示此时激光反射强度随时间呈现双峰结构. 第一个激光反射峰位于 -20.8 ns 处, 通过图 3(c) 知道, 此时正是等离子态形成的时刻, 结合图 3(d), 在 -20.8 ns 处, 靶面温度仅有 448 K , 远小于 Cu 靶熔化温度. 因此, 靶面在融化前直接由固态形成等离子态. 等离子体的生成使得激光反射光谱强度急剧降低, 导致第一个激光反射峰出现. 等离子体吸收的激光能量, 一部分用于离化自己内部的原子及团簇等粒子, 另一部分则通过反向运动粒子与靶面碰撞交给固体晶格, 使其温度升高. 在等离子体产生后约 8 ns , 即 -12.8 ns , 靶面开始熔化, 发生固—液相变. 需要指出的是此时靶面模拟温度仅为 715 K , 即 Cu 熔点的一半, 考虑到实验中靶面并非理想状况, 靶面缺陷会导致激光在局部区域集中, 使其温度达到熔点发生融化, 而模拟计算中考虑的靶面是均匀、各向同性的理想情况, 因此靶面模拟温度虽未到熔点, 但实际中靶面已经融化. 在激光峰值功率密度为 $2.36 \times 10^8 \text{ W/cm}^2$ 时, 模拟的最高温度达到 1900 K , 远远高于 Cu 靶熔点, 模拟

中熔点对应的时刻为 -4.56 ns , 比实际情况推迟了 8 ns . 靶面发生固—液相变后, 靶面反射光谱强度开始增强, 图 3(b) 的 -12.8 ns 处出现激光反射波谷. 随着激光峰值到达, 出现第二个激光反射峰. 图 3(c) 表明, 激光峰值过后约 7.3 ns , 等离子体的连续辐射强度极大, 表明此时等离子体密度最大. 此后, 由于激光入射能量的降低 (激光脉冲下降沿), 等

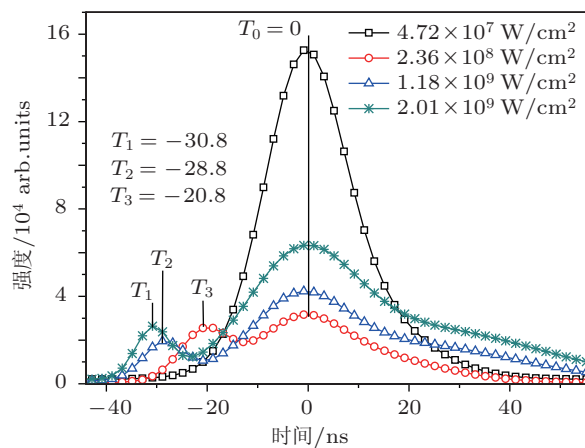


图4 不同峰值功率密度靶面反射光谱随时间的演化过程

离子体无法从激光场中获得足够的能量来维持其高速膨胀及离化原子及团簇的能量消耗, 等离子体密度逐渐降低. 等离子体密度极大值相应的时刻 7.3 ns 与图 3(b) 中高斯拟合的 7.6 ns 基本一致, 同时也同图 3(d) 中靶面最高温度相应时刻 7.01 ns 相符合.

图 4 比较了不同激光峰值功率密度时, 靶面反射光谱强度随时间的变化, 当激光峰值功率密度增加到 $1.18 \times 10^9 \text{ W/cm}^2$ 和 $2.01 \times 10^9 \text{ W/cm}^2$ 时, 第一个激光反射峰出现的时刻提前至 -27.73 ns 和 -30.03 ns , 与激光峰值功率密度为 $2.36 \times 10^8 \text{ W/cm}^2$ 时相比, 等离子体产生的时间分别提前 8 ns 和 10 ns. 同时靶面融化的时间也相应前移, 即波谷出现的时刻提前. 由于第二个激光反射峰是由入射激光峰值达到的时刻决定, 与激光峰值功率密度无关, 其出现的位置几乎都在时间零点.

4 结 论

纳秒脉冲激光与固体 Cu 靶相互作用过程中, 激光峰值功率密度较高时, 靶面反射光谱强度随时间演化呈双峰结构. 固体靶面在融化前, 直接形成等离子态, 使得激光反射率骤然降低, 导致第一个激光反射峰产生. 随后等离子体内部粒子不断加热靶面, 等离子体产生后约 8 ns, 靶面发生固—液态相变, 其对激光反射增强, 使得激光反射强度出现波谷. 此后随着入射激光强度的增加, 反射激光强度逐渐变大, 并在激光峰值到达时, 产生第二个激光反射峰. 激光峰值过后约 7 ns, 等离子体密度达到极大值. 增加激光峰值功率密度, 靶面产生等离子态和固—液态相变的时间都相应提前, 但第二个激光反射峰出现时间与入射激光峰值功率密度无关.

-
- [1] Ecija P, Sanchez M. N, Martinez R, Sierra B, Redondo C 2008 *Phys. Rev. A* **77** 032904
 - [2] Chen M, Liu X D, Zhao M W, Chen C S, Man B Y 2009 *Phys. Rev. E* **80** 016405
 - [3] Yang Y N, Yang B, Zhu J R, Shen Z H, Lu J, Ni X W 2008 *Chin. Phys. B* **17** 1318
 - [4] Zhang Y Z, Wang G A, Zhu J R, Shen Z H, Ni X W, Lu J 2007 *Chin. Phys.* **16** 2752
 - [5] Sun F, Sturgeon R E 1999 *Spectrochim. Acta B* **54** 2121
 - [6] Wagatsuma K 2001 *Spectrochim. Acta B* **56** 465
 - [7] Beilis I I 2006 *Appl. Phys. Lett.* **89** 91503
 - [8] Mommaa C, Chichkova B N, Noltea S, Alvensleben F, Tünnermanna A, Wellinga H, Wellegehausen B 1996 *Opt. Comm.* **129** 134
 - [9] Zhou Y H, Lu P X, Long H, Yang G, Zheng Q G 2006 *Chin. J. Lasers* **33** 1277 (in Chinese)[周幼华, 陆培祥, 龙华, 杨光, 郑启光 2006 中国激光 **33** 1277]
 - [10] Faure J, Glinec Y, Pukhov A, Kiselev S, Gordienko S, Lefebvre E, Rousseau J P, Burgy F, Malka V 2004 *Nature* **431** 541
 - [11] Faure J, Glinec Y 2006 *Phys. Plasma* **13** 056706
 - [12] Tan X Y, Zhang D M, Li Z H, Guan L, Li L 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 3915 (in Chinese) [谭新玉, 张端明, 李智华, 关丽, 李莉 2005 物理学报 **54** 3915]
 - [13] Wang X T, Man B Y, Wang G T, Zhao Z, Liao Y, Xu B Z, Xia Y Y, Mei L M, Hu X Y 1996 *J. Appl. Phys.* **80** 1783
 - [14] Huang Q J 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 2314 (in Chinese) [黄庆举 2008 物理学报 **57** 2314]
 - [15] Huang Q J, Fang E T 2009 *Spectroscopy and Spectral Analysis* **29** 585 (in Chinese) [黄庆举, 方尔梯 2009 光谱学与光谱分析 **29** 585]
 - [16] Ji Y J, Tong Z X, Bian B M, Zhang P, Lu J 2007 *Acta Photon. Sin.* **36** 2187(in Chinese) [纪运景, 童朝霞, 卞保民, 张平, 陆建 2007 光子学报 **36** 2187]
 - [17] Zhang D M, Li L, Li Z H, Guan L, Hou S P, Tan X Y 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 1283 (in Chinese) [张端明, 李莉, 李智华, 关丽, 侯思普, 谭新玉 2005 物理学报 **54** 1283]
 - [18] Hatem D, Wolfgang H 2006 *Phys. Rev. Lett.* **97** 107601
 - [19] Wu B, Shin Y C, Pakhal H, Laurendeau N M, Lucht R P 2007 *Phys. Rev. E* **76** 026405
 - [20] Liu S B, Liu Y X, He R, Chen T 2010 *Acta Phys. Sin.* **59** 5382 (in Chinese) [刘世炳, 刘院省, 何润, 陈涛 2010 物理学报 **59** 5382]
 - [21] Fisher D, Fraenkel M, Henis Z, Moshe E, Eliezer S 2001 *Phys. Rev. E* **65** 016409

Time-resolved spectrum characteristics of instantaneous plasma generation and evolution processes in nanosecond laser-Cu-target*

Liu Yuan-Xing Liu Shi-Bing[†] Song Hai-Ying He Run

(*Institute of Laser Engineering, Beijing University of Technology, Beijing 100124, China*)

(Received 23 December 2010; revised manuscript received 7 April 2011)

Abstract

The physical processes in the generation and the evolution of copper plasma induced by a high power nanosecond laser pulse are investigated with time-resolved spectrum. In the solid-gas-liquid phase transition, the intensity of reflected beam evolving with time markedly reveals the absorption of laser energy in the laser-copper interacting zone. So the phase transitions on the surface of copper target result in the fact that intensity of reflected beam evolving with time obviously presents a double-peak structure. Meanwhile, the appearance times of the plasma-gas-liquid phase transition on the target surface is advanced with the increase of peak-power of laser pulse. Therefore, these transient properties can be an efficient approach to diagnosing the phase transitions of copper target when the laser irradiates the target surface.

Keywords: laser-copper target, time-resolved spectrum, plasma radiation, the intensity of reflected beam

PACS: 42.70.Hj, 42.60.Jf, 78.47.jc, 94.20.Fg

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 10974010), and the Beijing Technological Innovation Plan (Grant No. 1010005466903).

[†] E-mail: sbliu@bjut.edu.cn