

# ОБРАТНЫЙ ПОТОК ЧАСТИЦ В ЭРОЗИОННОЙ ПЛАЗМЕ ПОД ВОЗДЕЙСТВИЕМ ЛАЗЕРНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ

**К.Ф. Ермалицкая**

Белорусский государственный университет,  
пр. Независимости, 4, Минск, 220030,  
e-mail: ermalitskaya@biz.by

Исследован обратный поток частиц меди и цинка в эрозионной плазме, образовавшейся при лазерной абляции металлической мишени с помощью сдвоенных наносекундных лазерных импульсов. Предложена качественная модель явления обратного осаждения вещества, обусловленного взаимодействием излучения лазерного импульса с разлетающейся неоднородной плазмой.

## Вступление

Лазерная атомно-эмиссионная спектрометрия – это метод спектрального анализа, основанный на регистрации спектров излучения вещества, испаренного и возбужденного излучением лазера. В процессе лазерной абляции с поверхности мишени испаряются атомы и ионы вещества, формируя плотную эрозионную плазму. При плотностях мощности оптического излучения  $q \leq 10^7$  Вт/см<sup>2</sup> плазму можно рассматривать как парогазовое облако и для описания процессов разлета использовать тепловую модель лазерной абляции [1]. Увеличение плотности мощности приводит к тому, что с поверхности мишени вырываются жидкие капли и твердые частицы, что не может не сказываться на характеристиках эрозионного факела. Одной из таких характеристик является обратный перенос испаренного вещества на поверхность мишени, вызванный столкновениями в плазме [2].

Одним из наиболее перспективных направлений развития лазерной спектрометрии является использование в качестве источника возбуждения спектра сдвоенных лазерных импульсов с микросекундными интервалами [3]. Второй лазерный импульс, приходящий с задержкой относительно первого, взаимодейст-

вует не только с поверхностью вещества, но и с плазмой, испаря находящиеся там жидкие капли и частицы и дополнительно возбуждая атомы и ионы. Чем выше энергия первого импульса, тем больше плотность плазмы, и соответственно, степень экранировки излучения второго импульса. Варьируя параметры лазера можно добиться того, чтобы все излучение второго импульса поглощалось в эрозионном факеле и не достигало мишени. Преимущества использования двухимпульсной спектрометрии по сравнению с одноимпульсной в аналитических целях очевидны: при одинаковой степени деструкции поверхности регистрируемая интенсивность спектральных линий элементов в первом случае значительно выше. Это приводит к снижению пределов обнаружения элементов и уменьшению погрешности количественного анализа. Однако необходимо принимать во внимание тот факт, что мощное оптическое излучение второго импульса, взаимодействуя с плазмой, способно значительно увеличить обратный поток частиц. Это обстоятельство, несущественное при количественном анализе массивных образцов, способно значительно повлиять на результаты послойного анализа тонких микронных покрытий. Кроме того, обратное осаждение вещества из плазмы необхо-

димо учитывать при разработке методик лазерной обработки поверхности (сверлении микроотверстий, резке металлов, термораскалывании и др.)

Целью данной работы было исследование влияния параметров излучения сдвоенных лазерных импульсов на величину обратного потока вещества из латунной многокомпонентной плазмы.

### Методика эксперимента

Для исследования явления обратного осаждения вещества использовался лазерный многоканальный спектрометр LSS-1; источник возбуждения плазмы – двухимпульсный неодимовый лазер с частотой повторения импульсов 10 Гц и длиной волны 1064 нм. Длительность импульсов составляет 15 нс. Межимпульсный интервал  $\Delta t$  изменяется от 0 до 100 мкс с шагом 1 мкс; энергия импульса  $E_{имп}$  – от 10 до 100 мДж. Нулевой межимпульсный интервал соответствует одновременному воздействию на поверхность двух лазерных импульсов, что можно рассматривать как одиночный импульс, мощность которого равна суммарной мощности сдвоенных импульсов. Все эксперименты проводились в атмосфере воздуха при нормальном давлении.

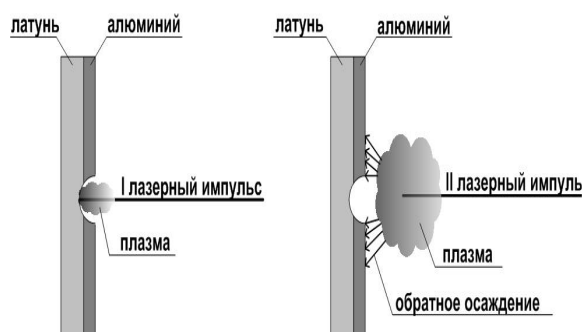


Рис. 1. Схема обратного осаждения вещества из эрозионной плазмы на поверхность алюминия, окружающего облучаемую лазером латунь

В ходе эксперимента исследовалось обратное осаждение компонентов латуни (медь, цинк, свинец, железо и кремний) на поверхность алюминия. Схема экспери-

мента приведена на рис.1. Толщина алюминиевой пластины составляла 1 мм; в ней были просверлены отверстия диаметром 1 мм на расстоянии 10 мм друг от друга. Поверхности алюминиевой и латунной пластин были очищены с помощью растворителя марки 646, соединены двухсторонним скотчем под давлением 200 кг/см<sup>2</sup>. На латунь воздействовали серии из 100 сдвоенных лазерных импульсов с различными межимпульсными интервалами, энергия импульса составляла 32 и 45 мДж. При меньших значениях энергии накачки эрозионная плазма практически не экранирует лазерное излучение, и второй импульс не воздействует на частицы вещества в парогазовом облаке.

Измеряя относительную интенсивность спектральных линий элементов в плазме при различных межимпульсных интервалах можно судить о динамике процессов в плазме спустя время  $\Delta t$  после ее образования под действием первого импульса.

### Результаты и обсуждение

При построении моделей обратного осаждения частиц необходимо учитывать, что обратное осаждение частиц из плазмы, образовавшейся под воздействием одиночного импульса ( $\Delta t=0$  мкс), определяется такими величинами как частота столкновений, вероятность получения частицей скорости по направлению к поверхности и вероятностью после столкновения пролететь через парогазовое облако. Таким образом, на величину обратного потока, и как следствие на толщину и диаметр напыленного латунного слоя, влияют такие факторы как количество испаренного вещества, температура, плотность и скорость разлета плазмы. Причем эксперименты показывают, что частицы вещества продолжают возвращаться к поверхности в течении длительного времени после окончания импульса. В литературе, посвященной теоретическому и экспериментальному изучению лазерной абляции, величина обратного потока задается рав-

ной ~20 % от числа всех испаренных частиц [4].

Обратный поток частиц, вызванный столкновениями в плазме, будет приблизительно одинаков при любых значениях  $\Delta t$  и определяется энергией импульса. Число столкновений в эрозионной плазме

может быть оценено исходя из сравнения значений тепловых скоростей частиц  $u$ :

$$u = \sqrt{2kTm}, \quad (1)$$

где  $k$  – постоянная Больцмана,  $m$  – масса частицы,  $T$  – температура плазмы.

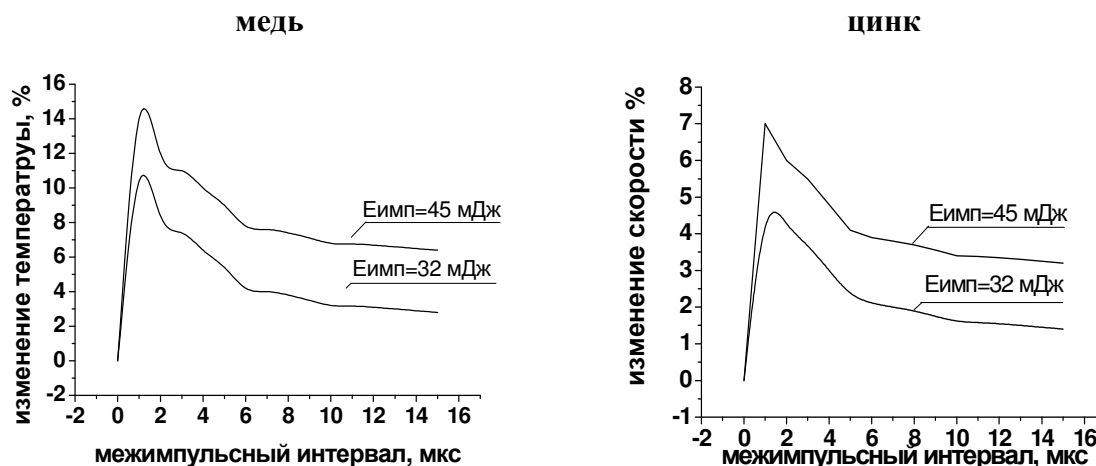


Рис. 2. Изменение температуры плазмы и тепловой скорости частиц при увеличении межимпульсного интервала при энергии импульса 32 и 45 мДж

Метод определения температуры плазмы основан на предположении, что при атмосферном давлении имеет место локальное термодинамическое равновесие (ЛТР). Это позволяет использовать для описания процессов возбуждения и ионизации формулы Больцмана и Саха. При этом для распределения атомов и молекул по энергетическим уровням и для интенсивности излучения будем иметь соотношения [2]:

$$N_e = N_0 \frac{g_e}{g_0} e^{-\frac{E_e}{kT}}, \quad (2)$$

$$I = N_e A_{ei} h\nu_{ei}, \quad (3)$$

где  $N_0$  – число нейтральных атомов в  $1\text{см}^3$ ,  $N_e$  – число атомов, находящихся в возбужденном состоянии;  $g_e$  и  $g_0$  – статистические веса возбужденного и нормального состояний;  $E_e$  – энергия возбужденного верхнего состояния;  $T$  – температура плазмы;  $k$  – постоянная Больцмана;  $I$  – интенсивность излучения;  $A_{ei}$  – вероятность спонтанного излучения,  $h$  – по-

стоянная Планка,  $\nu_{ei}$  – частота излученного светового кванта. Таким образом, очевидно, что интенсивность спектральной линии в плазме однозначно связана с температурой разряда:

$$I = A_{ei} h\nu_{ei} N_0 \frac{g_e}{g_0} e^{-\frac{E_e}{kT}}. \quad (4)$$

Подставляя значения энергии, статистических весов и вероятностей переходов для спектральных линий  $\text{Cu } \lambda=510,554 \text{ нм}$  и  $\text{Cu } \lambda=515,324 \text{ нм}$ , получаем следующую формулу для определения температуры плазмы:

$$T = \frac{11945}{1,826 + \lg(I_{510} / I_{515})} \quad (5)$$

Расчеты показывают, что увеличение энергии импульса в 1,5 раза приводит к увеличению температуры лишь на 1-2 %, в то время как переход от одиночных импульсов к двоянным импульсам, сдвинутым во времени на 1 мкс, приведет к росту  $T$  на 10-15 %. Скорость же теплового

движения частиц в плазме изменяется на 6-7 % (рис. 2). Увеличение межимпульсного интервала приводит к снижению разницы в температуре плазмы и скорости частиц при абляции одиночными и двойными импульсами. Таким образом, увеличение температуры плазмы при использовании двойных лазерных импульсов приводит к росту скорости теплового движения частиц, а, следовательно, и числа столкновений. Однако, при проведении количественных оценок вклад энергии второго импульса в увеличение обратного потока вследствие столкновения частиц необходимо учитывать только при  $\Delta t \leq 3$  мкс.

Исследование увеличения обратного потока частиц из плазмы на поверхность

мишени под воздействием излучения второго импульса проводилось путем количественного анализа напыленного покрытия на различных расстояниях от центра лазерного пятна на латуни. Изменение межимпульсного интервала приводит к тому, что излучение второго импульса взаимодействует с плазмой на различных этапах ее разлета, что в свою очередь выражается в изменении количества вещества, осаждающегося на поверхность. Количественный анализ напыления показал, что оно состоит только из меди и цинка, взаимное содержание которых значительно отличается от содержания в облучаемой латуни. Причем эта разница возрастает с удалением от центра лазерного пятна.

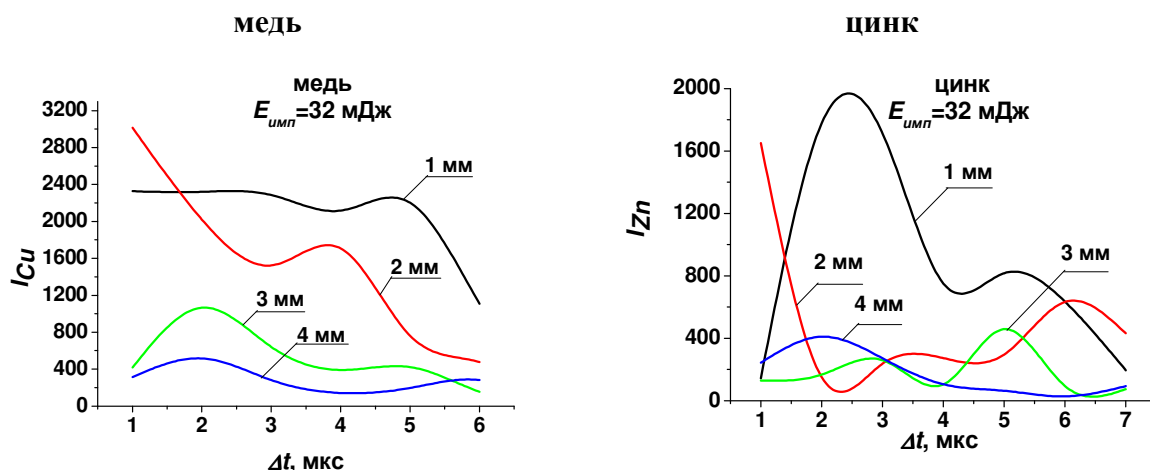


Рис. 3. Зависимость относительной интенсивности спектральных линий меди и цинка от межимпульсного интервала при различных расстояниях от центра лазерного пятна для энергии импульса 32 мДж

Свинец, кремний и железо не были обнаружены в напылении, что позволяет предположить, что данные элементы при лазерной абляции испаряются в виде отдельных атомов и ионов, которые в течении межимпульсного интервала успевают покинуть область воздействия лазерного луча. Обратным осаждением данных элементов в результате столкновений в плазме можно пренебречь из-за малой их концентрации в исходном сплаве.

Зависимость относительной интенсивности спектральных линий меди и цинка от межимпульсного интервала при различных расстояниях от центра лазерного пятна для энергии импульса 32 мДж приведена на рис. 3.

Эксперимент показал, что переход от одиночных лазерных импульсов к двойным приводит к росту обратного потока частиц меди в 5 раз, цинка – в 3,5 раза. Наибольшее обратное осаждение вещества из плазмы имеет место при  $\Delta t = 1$  мкс

для меди и  $\Delta t=2$  мкс для цинка. Скорость распространения переднего фронта ударной волны при лазерной абляции составляет несколько километров в секунду; второй импульс взаимодействует с веществом, пролетевшим 1 мм, за несколько микросекунд (скорость составляет несколько сотен метров в секунду). Чем больше масса частиц, тем меньше их скорость в плазме. Следовательно, увеличение обратного потока под воздействием лазерного излучения обусловлено осаждением на поверхность относительно крупных жидких капель и твердых частиц. Если бы обратно осаждались капли латуни, вырванные при абляции, то содержание элементов в напылении соответствовало бы их концентрации в исходном образце. Это доказывает, что тяжелые многоатомные кластеры образуются вблизи поверхности. Чем выше температура, тем больше вероятность образования таких ассоциативных комплексов, это и приводит к возрастанию обратного потока при увеличении энергии импульса. Центрами кластерообразования являются ионы, причем вероятность образования ассоциативных комплексов, состоящих из частиц одного вещества, значительно выше, чем из атомов и ионов разных типов [4]. Оценить количество ионов можно, предполагая, что при атмосферном давлении имеет место термодинамическое равновесие, это позволяет использовать для описания процессов ионизации формулу Саха - Больцмана:

$$N_e^2 \sim N_0 e^{-\frac{E_e}{kT}}, \quad (6)$$

где  $N_e$ ,  $N_0$  – число ионов и общее число частиц,  $k$  – коэффициент Больцмана,  $T$  – температура плазмы,  $E_e$  – энергия ионизации. Массы атома меди и цинка отличаются незначительно – 63,5 и 65,4 а.е.м., соответственно. Если бы в эрозионную плазму поступало вещество исключительно в виде атомов, то соотношение между частицами меди и цинка было бы  $\sim 2:1$ . Соотношение между ионами с  $Z=1$  (потенциал ионизации меди – 7,73 эВ,

цинка – 9,39 эВ) данных элементов дается формулой:

$$\left(\frac{N_{Zn^+}}{N_{Cu^+}}\right)^2 = \frac{1}{2} e^{-1.66/kT}. \quad (7)$$

Таким образом, в эрозионной лазерной плазме содержится значительно больше однократно заряженных ионов меди по сравнению с ионами цинка. В связи с этим в течении межимпульсного интервала в плазме образуется большое количество кластеров из меди, скорость разлета которых значительно ниже скорости одиночных атомов меди [5]. Под воздействием второго импульса происходит осаждение тяжелых ассоциативных комплексов на поверхность. Так как медных кластеров в плазме больше, то и содержание этого элемента в напылении выше, чем цинка.

### Выводы

При одновременном воздействии двух лазерных импульсов на латунь ( $\Delta t=0$  мкс) обратный поток частиц обусловлен процессами в плазме (столкновениями частиц), а не взаимодействием излучения с парогазовым облаком. В этом случае напыленное при обратном осаждении покрытие по содержанию элементов идентично исходному образцу. Переход от одиночных импульсов к сдвоенным приводит к значительному увеличению обратного потока частиц. Под воздействием второго импульса на поверхность осаждаются преимущественно многоатомные кластеры, образовавшиеся в плазме. Количество кластеров определяется числом ионов в плазме и зависит от потенциала ионизации конкретного элемента. Первый потенциал ионизации меди меньше на 1,66 эВ, чем у цинка, следовательно, вероятность образования тяжелых кластеров Cu значительно выше, чем Zn. Это приводит к тому, что под воздействием лазерного излучения формируется обратный поток, состоящий преимущественно из кластеров меди.

### Литература

1. N.M. Bulgakova, A.V. Bulgakov, Appl. Phys. A., V. 73. (2000), p. 199-208.
2. M. Keidar, J. Fan., I.D. Boyd. J. Appl. Phys. (2002), p. F.6.1-F.6.10.
3. К.Ф. Ермалицкая, Вестник БГУ, Сер. 1., №2 (2009), с. 18-22.
4. K. Watanabe., T. Iguchi. Appl. Phys. A., V. 69. (1999), p.S845-S848.
5. M. Han, S. Kiyama et al. Phys. Lett. A., V. 302. (2002), p.182-189.

## RETURN FLUX OF PARTICLES IN THE EROSION PLASMA UNDER LASER RADIATION

**К.Ф. Ermalitskaya**

Belarusian State University, pr. Nezavisimosti 4, Minsk, Belarus, 220030  
e-mail: ermalitskaya@biz.by

Return flux of copper and zinc particles in the erosion plasma being formed during the laser ablation of multicomponent alloys is investigated. Two mechanisms of the return flux are considered: collisions of atoms and ions and a return wave due to the effect of interaction between the plasma and powerful pulse laser radiation. The second mechanism provides an increased return flux compared to the first one.

