

04;07;12

## **Определение временной зависимости концентрации электронов в лазерной эрозионной плазме**

© М.П. Чучман, А.К. Шуаибов

Ужгородский национальный университет, Украина

E-mail: ishev@univ.uzhgorod.ua

Поступило в Редакцию 17 июля 2007 г.

Описывается альтернативный метод для определения временной зависимости величины концентрации электронов в лазерной эрозионной плазме сурьмы. Рассматриваемая методика менее требовательна к характеристикам оборудования, которое применяется в эксперименте, и обходится без употребления спектроскопических констант, которые не всегда имеются уже для однозарядных ионов. Полученные данные сравниваются с аналогичными результатами, полученными исходя из соотношения интенсивностей атомарной и ионной спектральных линий согласно уравнению Саха. Приводится анализ применяемых методик исследования и полученных с их помощью результатов.

PACS: 41.75.Jv, 52.38.-r

Диагностика плазмы при использовании лазерных технологических процессов синтеза и обработки материалов, а также при лазерном спектральном анализе дает возможность определить параметры лазерного эрозионного факела, его состав и особенности физики процессов в нем. На сегодняшний день все больше работ в этом направлении касаются исследования пространственно-временной эволюции плазмы лазерного факела и влияния различных внешних факторов на его параметры. Основой для понимания процессов в плазме служит знание ее фундаментальных характеристик, таких как температура и концентрация электронов. Они дают возможность изучения процессов в плазме, а также возможность поиска методов усовершенствования и контроля различных лазерных технологий. Наиболее подходящими для диагностики плазмы являются оптические методики, которые отличаются высокой скоростью и не требуют непосредственного контакта с исследуемой средой. Среди таких методик для определения временной

зависимости концентрации электронов в лазерной эрозионной плазме широко применяются измерение контура спектральной линии, интерферометрия, метод отражения, соотношение интенсивностей атомарной и ионной спектральных линий и др. [1]. Все эти методики требуют наличия высокоточной и дорогостоящей измерительной аппаратуры и вместе с тем знания или расчета некоторых констант, которые входят в рабочую формулу для определения величины концентрации электронов. Поэтому нами в данной статье проводится апробация методики, предложенной в [2], для определения временной зависимости концентрации электронов в лазерном факеле на основе сурьмы. Полученные данные сравниваются с аналогичными результатами, полученными из соотношения интенсивностей атомарной и ионной спектральных линий.

Лазерная плазма формировалась при действии сфокусированного лазерного излучения в пятно размером 0.4–0.5 mm. Параметры излучения используемого неодимового лазера LTP Ch5 были следующими: удельная мощность на поверхности мишени  $W = 5 \cdot 10^8 \text{ W/cm}^2$ ; длина волны излучения  $\lambda = 1.06 \mu\text{m}$ ; длительность импульса генерации  $\tau = 20 \text{ ns}$ ; частота повторения  $f = 12 \text{ Hz}$ . Мишень из особо чистой сурьмы находилась в вакуумной камере с остаточным давлением воздуха 3–12 Pa. Излучение лазерного факела направлялось линзой на входную щель монохроматора MDR-2 (решетка 1200 line/mm). Зависимость от времени для интенсивности излучения спектральных линий из параллельного к поверхности мишени участка плазмы лазерного факела, удаленного на 7 mm от мишени, исследовалась при помощи импульсного фотоумножителя FOTON и осциллографа SI-99. Временное разрешение составляло  $\sim 30 \text{ ns}$ . Точность измерения интенсивности была не хуже 10%. Расшифровка спектров проводилась по данным справочников [3,4]. Полученные временные зависимости относительных интенсивностей спектральных линий нормировались на спектральную чувствительность фотоумножителя. Таким образом, возможно сравнивать интенсивности излучения между собой и рассчитать некоторые параметры плазмы лазерного факела, такие как время рекомбинации ионов, температура и концентрация электронов. Более детально экспериментальная установка описана в работе [5].

Для определения параметров плазмы строились временные зависимости интенсивности излучения спектральной линии, которая отвечает

переходам с высоковозбужденных состояний атомов, в логарифмическом масштабе. Наклон такой зависимости дает значение времени рекомбинации однозарядных ионов [2]:

$$t_r = \frac{\Delta t}{\Delta \ln(I)}. \quad (1)$$

Здесь  $t_r$  — время рекомбинации,  $\Delta \ln(I)$  — изменение логарифма интенсивности на отрезке времени  $\Delta t$ . На значительных расстояниях от мишени, когда температура плазмы лазерного факела становится порядка нескольких десятых электронвольта, образование высоковозбужденных состояний атомов и ионов начинает осуществляться преимущественно посредством трехчастичной рекомбинации. Поэтому по временной зависимости интенсивности излучения при переходах из высоковозбужденных состояний можно рассматривать эффективность рекомбинационных процессов со временем. При этом, имея зависимость от времени для температуры электронов ( $T_e$ ) и времени рекомбинации ионов, можно определить зависимость от времени для концентрации электронов в лазерном факеле

$$n_e = (8.75 \cdot 10^{-27} z^3 t_r T_e^{-9/2})^{-1/2}, \quad (2)$$

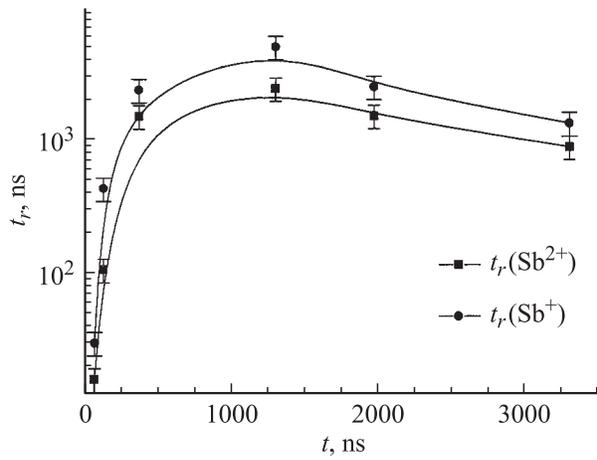
где  $z$  — заряд рекомбинирующего иона. Как видно из рабочей формулы, основным преимуществом данного подхода является наличие осциллограмм интенсивности излучения при вычислении времени рекомбинации ионов и спектроскопических констант для атомов, при определении температуры электронов.

Определение некоторого среднего значения концентрации электронов таким же способом проиллюстрировано в работе [2] на примере лазерной плазмы алюминия. Так, на расстоянии 5 mm от мишени и при давлении 133 Pa время рекомбинации для ионов алюминия составляет 350 ns ( $Al^{3+}$ ), 500 ns ( $Al^{2+}$ ), 1000 ns ( $Al^{1+}$ ). Полученные данные по концентрации электронов исходя из времени рекомбинации трехзарядных ионов ( $1.4 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ ) соответствуют физической картине лазерной плазмы, хотя и дают несколько завышенные результаты относительно равновесного значения концентрации электронов ( $3.2 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ ). В этой же работе отмечено, что оптические методы определения концентрации электронов также дают завышенные примерно в 4 раза значения величины концентрации электронов относительно равновесного значения электронной концентрации.

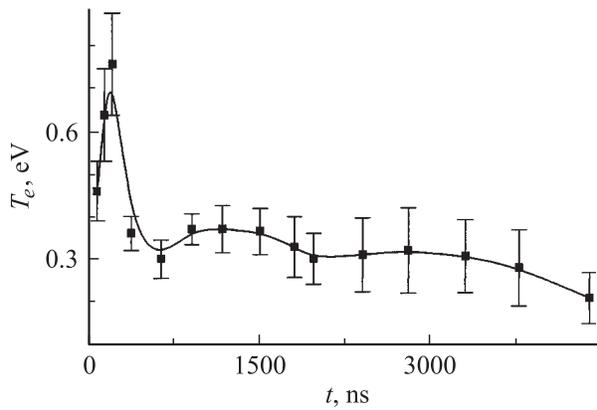
Базируясь на осциллограммах интенсивности излучения спектральных линий, нами были рассчитаны временные зависимости заселенностей возбужденных состояний атомов и ионов. Определение временной зависимости температуры электронов осуществлялось посредством анализа распределения по энергиям для заселенностей возбужденных состояний атомов сурьмы в определенные моменты времени. Концентрация электронов, для сравнения с описанной выше методикой, была также рассчитана по соотношению заселенностей возбужденных состояний атома и иона сурьмы согласно уравнению Саха, используя известную временную зависимость температуры электронов в лазерном факеле. Недостатком такого подхода является наличие в рабочей формуле вероятности перехода для излучения иона, а такие данные не всегда имеются в справочниках, особенно для не очень интенсивных спектральных линий. Значения вероятностей переходов для атомов и ионов были взяты из работ [3,4,6]. Более детальную информацию относительно определения временных зависимостей температуры и концентрации электронов по соотношению заселенностей возбужденных состояний атомов и ионов в лазерной плазме сурьмы можно найти в наших работах [5,7].

Из зависимости продолжительности рекомбинации ионов от времени (см. рис. 1) видно, что за несколько сотен наносекунд время рекомбинации изменяется на два порядка, от 10 до  $10^3$  ns, после чего изменяется значительно медленнее. Время рекомбинации двухзарядных ионов всегда значительно меньше времени рекомбинации однозарядных ионов. Вид зависимостей  $t_r(t)$  несколько сглажен из-за небольшого количества точек на них, хотя при расчетах концентрации электронов использовалось большее количество точек. Вместе с тем отсутствие мелких экстремумов на зависимости лучше обращает внимание на основные черты зависимости и указывает на специфику изменения интенсивности излучения спектральных линий из лазерной плазмы. Сначала наблюдается резкое увеличение интенсивности, а затем достаточно монотонное уменьшение. В отличие от динамики изменения времени рекомбинации на зависимости температуры электронов от времени (см. рис. 2) в течение нескольких сотен наносекунд наблюдается максимум, достигающий 0.8 eV, в то время как на остальном участке времени зависимость, так же как и на рис. 1, довольно монотонна, а значение температуры электронов составляет около 0.3 eV.

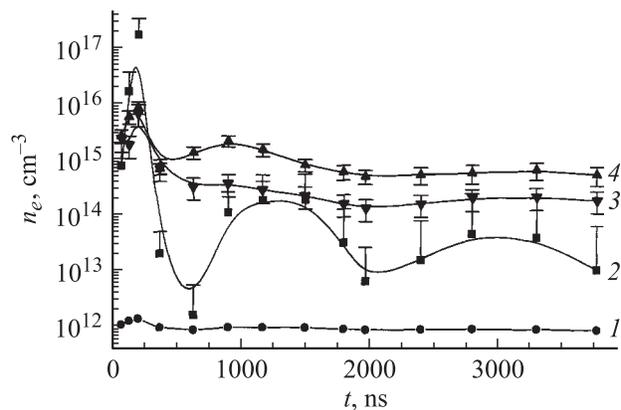
Из рис. 3 следует, что на лазерную эрозионную плазму сурьмы слабо влияют неравновесные условия. Минимальное значение концентрации



**Рис. 1.** Изменение длительности рекомбинации одно- и двухзарядных ионов со временем в лазерной эрозионной плазме сурьмы на расстоянии 7 mm от мишени. Представленные зависимости определялись по осциллограммам интенсивности спектральных линий 323.3 nm Sb I и 461.3 nm Sb II.



**Рис. 2.** Зависимость температуры электронов от времени в лазерной эрозионной плазме сурьмы на расстоянии 7 mm от мишени.



**Рис. 3.** Зависимость концентрации электронов от времени в лазерной эрозионной плазме сурьмы на расстоянии 7 мм от мишени. 1 — минимальное значение концентрации электронов при данной температуре, когда еще возможно наличие локального термодинамического равновесия в плазме. 2, 3 и 4 — зависимость концентрации электронов от времени, определенная по соотношению интенсивностей излучения атомарной (277 nm Sb I) и ионной (461.3 nm Sb II) спектральных линий по времени рекомбинации двухзарядных и однозарядных ионов соответственно.

электронов, для которого при заданной температуре и разнице энергий возбужденных уровней 1 eV возможно рассматривать приближение локального термодинамического равновесия, равняется величине порядка  $10^{12} \text{ cm}^{-3}$ .

Качественный вид зависимости концентрации электронов от времени, полученный с помощью двух методик, хорошо согласуется. Единственным качественным отличием выступает менее резкое проявление экстремумов на зависимости концентрации электронов от времени, полученной на основе времени рекомбинации ионов.

Количественно значение концентрации электронов, полученное по времени рекомбинации ионов, тем лучше совпадает со значением соответственной величины, полученной по соотношению интенсивностей атомарной и ионной линий, чем выше заряд иона, рекомбинацию которого мы изучаем. Уже в случае двухзарядных ионов мы имеем почти полное совпадение (в рамках погрешности) значений  $n_e$ , определенных различными методами.

Отличие в величине концентрации электронов, определенной по времени рекомбинации однозарядных и двухзарядных ионов, может наблюдаться из-за ряда причин. Несколько таких причин мы рассмотрим более подробно. Во-первых, быстрое расширение плазмы также влияет на величину концентрации электронов и соответственно на значение времени рекомбинации ионов. Во-вторых, для лазерного факела характерно расслоение заряженных и нейтральных частиц, атомов и молекул [1], что может внести дополнительную погрешность в полученное значение температуры электронов. И в-третьих, преимущественно тепловое образование возбужденных состояний атомов, а также преимущественно рекомбинационное образование ионов в лазерной плазме (как следует из усредненных по времени данных работы [8]), также должны влиять на вид распределения заселенностей возбужденных состояний, его изменение со временем. Специфика образования возбужденных состояний влияет на обе методики одновременно: посредством наличия в зависимости интенсивности от времени нерекомбинационного вклада, а также посредством усложнения вида распределения заселенностей для атомов и ионов. На данное время подробных экспериментальных работ, посвященных этому вопросу, нами в литературе не обнаружено, поэтому мы не беремся назвать величину дополнительно вносимой, уже методической погрешности. Но так как в нашем случае расслоение как основной фактор неточности не учтено лишь по одной из трех пространственных координат и при этом имеется зависимость интенсивности излучения спектральных линий от времени, то и соответствующая погрешность должна быть невелика. Это подтверждается хорошим совпадением второй и третьей кривых на рис. 3. Что же касается несовпадения третьей и четвертой кривых, то здесь, по нашему мнению, основной причиной неточности выступает как раз первая из вышеперечисленных причин.

Таким способом вносится дополнительная методическая погрешность, оценить которую можно по изменению условий в плазме за время рекомбинации. Принимая во внимание средние значения скорости движения плазмы  $5 \text{ km/s}$ , времени рекомбинации однозарядных —  $1200 \text{ ns}$  и двухзарядных ионов —  $800 \text{ ns}$ , максимальное изменение размера плазмы будет составлять  $6$  и  $4 \text{ mm}$  за соответствующее время рекомбинации. Это дает дополнительно максимальную величину погрешности  $85$  и  $57\%$  для величины концентрации электронов, определенной по времени рекомбинации однозарядных и двухзарядных ионов соответственно, в то время как для рабочей формулы имеем погрешность

30%. Минимальная погрешность определения концентрации электронов по соотношению интенсивностей атомарной и ионной спектральных линий составляет 65%, а максимальная может составлять несколько сотен процентов и зависит в основном от точности определения температуры [7]. В наших условиях довольно значительный энергетический промежуток между уровнями атома и иона (около 5 eV) требует для термализации атомарного и ионного уровней величины концентрации электронов порядка  $10^{14} \text{ cm}^{-3}$ . Это, по-видимому, выступает дополнительной причиной увеличения различий между кривыми 2 и 3 на рис. 3 в области минимумов.

Таким образом, возможность применения методики определения временной зависимости концентрации электронов по времени рекомбинации ионов и температуре проиллюстрирована на примере лазерной плазмы сурьмы, когда изменение времени рекомбинации находится в диапазоне  $10-10^3 \text{ ns}$ , температуры электронов —  $0.2-0.8 \text{ eV}$ , концентрации электронов —  $10^{12}-10^{17} \text{ cm}^{-3}$ .

## Список литературы

- [1] Делоне Н.Б. Взаимодействие лазерного излучения с веществом. М.: Наука, 1982. 304 с.
- [2] Сухов Л.Т. Лазерный спектральный анализ. Новосибирск: Наука, 1990. 143 с.
- [3] Зайдель А.Н., Прокофьев В.К., Райский С.М., Славный В.А., Шрейдер Е.Я. Таблицы спектральных линий. М.: Наука, 1969. 782 с.
- [4] Smith P.L., Heise C., Esmond J.R., Kurucz R.L. Atomic spectral line database from CD-ROM 23 of R.L. Kurucz. Cambridge: Smithsonian astrophysical observatory, 1995. <http://cfa-www.harvard.edu/amp>.
- [5] Шуаибов А.К., Чучман М.П., Шимон Л.Л. // ЖТФ. 2003. Т. 73. В. 4. С. 77–81.
- [6] Ошерович А.Л., Тезиков В.В. // Опт. и спектр. 1978. Т. 44. В. 1. С. 1212–1217.
- [7] Шуаибов А.К., Чучман М.П., Шимон Л.Л. // Теплофизика высоких температур. 2004. Т. 42. № 3. С. 353–359.
- [8] Шуаибов А.К., Чучман М.П. // ЖТФ. 2006. Т. 76. В. 11. С. 61–65.