

文章编号: 1001-3806(2007)01-0004-04

飞秒 纳秒脉冲激光烧蚀金属热效应分析

邓素辉,陶向阳*,刘明萍,周彩玉

(江西师范大学 物理与通信电子学院,南昌 330022)

摘要: 为了描述不同脉冲激光烧蚀金属表面作用过程,从双温模型出发,用有限元差分法对飞秒、皮秒和纳秒脉冲烧蚀金属表面的温度场进行了数值求解,将结果与不同的激光脉冲宽度内约化双温方程得到的解析解和简化方程进行了比较,并讨论了这些简化方程的适用范围和简化的合理性,还讨论了电子热流表达式与辐照激光光强的关系。计算结果表明,在不同脉冲宽度内的约化方程所得结果与双温模型数值求解符合得很好,证明了在飞秒领域,晶格温度可认为是常数,双温模型被简化为自由电子的温度变化方程;在皮秒激光领域,要用完整的双温方程描述;纳秒脉冲期间认为电子晶格温度相等,双温模型被简化为热传导方程。

关键词: 超快光学;热效应分析;有限差分;双温方程

中图分类号: TG156.99 **文献标识码:** A

Thermal analysis of metal ablation by means of femtosecond-to-nanosecond laser pulses

DENG Su-hui, TAO Xiang-yang, LIU Ming-ping, ZHOU Cai-yu

(College of Physics & Communication Electronics, Jiangxi Normal University, Nanchang 330022, China)

Abstract: Based on double-temperature equation, the temperature field of metal ablation by means of femtosecond, picosecond and nanosecond laser pulses is numerically calculated with finite-difference method to describe different laser pulses ablation on metal surface. The derived results are compared with those obtained with the approximate analytical expressions and simplified equations. Then the application range scope of the different simplified equations and the reasonability of simplification are discussed. The relationship between the electron heat flux expression and the laser intensity is also analyzed. The calculation shows that the results of the simplified equations are consistent with the numerical calculation results obtained with the double-temperature equation. It is proved that the temperature of the lattice can be treated as a constant and the double-temperature equation reduces to the electron temperature equation for femtosecond scale laser pulses, the system should be described by a complete double-temperature equation for picosecond laser pulses, and that the electron and lattice temperature are equal and the model is reduced to a heat conduction equation during for nanosecond laser pulses.

Key words: ultrafast optics; thermal analysis; finite-difference method; double-temperature equation

引 言

随着上世纪 80 年代后期超短脉冲的产生及放大技术迅速发展和上世纪 90 年代以后钛宝石全固态超短脉冲激光器的研制成功,皮秒、飞秒等超短脉冲激光相继出现,由于具有很高的峰值功率及脉冲宽度极短的特性,而被广泛应用于物理学、光谱学、工业、医学及环境监测等领域^[1~3],并得到飞速发展。同时,国内外学者关于超短脉冲激光与物质的相互作用理论分析也进行了一定的研究。

作者简介:邓素辉(1980-),女,硕士研究生,主要从事激光光学、激光与物质相互作用的热效应研究。

* 通讯联系人。E-mail: x. y. tao@163.com

收稿日期:2005-12-10;收到修改稿日期:2006-01-02

早在 1974 年,苏联学者 AN ISMOV 等^[4]就提出了超短脉冲烧蚀金属的双温模型,它是电子和晶格在脉冲持续期间温度变化的微分方程。后来,许多学者以此模型为基础开展了大量的研究。例如,1986 年,EE-SLEY^[5]通过测量皮秒以下激光对铜作用时反射率的变化,研究了铜材料中的电子和晶格温度的非平衡现象,并用双温模型给出了很好的解释。1988 年,COR-KUM 等^[6]在一定条件下对双温模型进行了解析求解,推导出一个脉宽值表达式,揭示出当脉宽小于这个表达式值时,能流阈值不满足正比于 $\tau^{1/2}$ 的规律。1996 年,CHICKOV 等^[7]研究了脉冲激光对不同靶材的烧蚀,揭示了超短脉冲烧蚀的优越性;并在不同脉冲时间内,对双温方程进行约化得到不同的解析模型。

作者从双温方程出发,用差分法直接对双温方程

进行数值求解,计算了脉冲激光烧蚀金属表面的温度场,总结分析了国内外飞秒、皮秒超短脉冲和纳秒脉冲激光烧蚀金属的理论模型和简化方程,并在这些模型之间做了比较,讨论了它们的适用范围和合理性。

1 理论模型

超短脉冲与金属相互作用时,金属中由于存在的大量自由电子,可通过逆韧致吸收(焦耳加热)过程而吸收激光能量。趋肤层厚度内的自由电子吸收激光能量后,电子温度迅速升高,然后通过自由电子热扩散将热流传入到金属靶材内部,以及通过电子与晶格耦合过程传递给周围晶格^[6,7]。超短脉冲与金属相互作用过程可用一维双温模型来描述^[4]:

$$C_e \frac{\partial T_e}{\partial t} = - \frac{\partial Q_e}{\partial z} - g(T_e - T_i) + S \quad (1)$$

$$C_i \frac{\partial T_i}{\partial t} = g(T_e - T_i) \quad (2)$$

式中, z 是垂直于靶材表面方向, T_e 、 T_i 分别为电子和晶格温度, $C_e = C_e' T_e$, C_e 和 C_i 分别代表电子和晶格的热容, C_e' 为与电子温度无关的常数, g 是电子与晶格的耦合系数, $Q_e = - \kappa_e \partial T_e / \partial z$ 为电子热传导项, $\kappa_e = \kappa_0 T_e / T_i$ 为电子热导率, κ_0 为热平衡时金属的热导率, S 是激光热源项, $S = I_0 (1 - R) \alpha \exp(-\alpha z)$, I_0 为入射激光光强, R 为表面反射率, α 是吸收系数。

双温耦合方程(1)式和(2)式数值计算复杂,但对不同的时域脉冲时,可对其进行适当的约化,为方便计算,下面就分别对飞秒、皮秒和纳秒脉冲予以讨论。

1.1 飞秒脉冲

由于电子与晶格耦合时间约为 $1\text{ps} \sim 4\text{ps}$ ^[8],因此,飞秒脉冲持续时间小于电子晶格耦合时间,在如此短的时间内电子来不及将热量传给晶格,电子温度瞬间升高,而晶格温度可认为是常数,双温方程可以简化为自由电子的温度变化方程,下面就分别对不同飞秒时域宽度及激光强度情况进行讨论。

(1)当飞秒脉冲宽度 τ_1 小于 $\tau_e = C_e' T_e / g$,在(1)式中自由电子热传导项比较重要,电子与晶格能量耦合过程可以忽略^[6,7], (1)式就可以写为:

$$C_e \frac{\partial T_e}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \kappa_e \frac{\partial T_e}{\partial z} + S \quad (3)$$

或者写为求解简化后的扩散方程(3)式得到电子温度的解析解^[6]:

$$T_e^2 = (A_0/2) (C_e' T_i / \kappa_0 \pi t)^{1/2} \exp(-C_e T_i z^2 / 4\kappa_0 t) \quad (4)$$

式中, $A_0 = 4E_{\text{abs}} / C_e'$, E_{abs} 是金属表面吸收的能量密度。

(2)当飞秒脉冲宽度 τ_1 更小,满足 $D_e \tau_1 < \alpha^{-2}$ 时,其中 $D_e = \kappa_e / C_e$ 为电子热扩散系数,此时,电子扩散引

起的热传导流也可以忽略不计^[7],所以(1)式被简化为:

$$C_e \frac{\partial T_e}{\partial t} = I_0 (1 - R) \alpha \exp(-\alpha z) \quad (5)$$

求解(5)式可得解析解:

$$T_e(t) = [T_0^2 + 2I_0 (1 - R) \alpha t \exp(-\alpha z) / C_e']^{1/2} \quad (6)$$

(3)前面讨论的电子热传导项是根据 Spitzer-Ham 经典理论写的表达式 $Q_e = - \kappa_e \partial T_e / \partial z$,它适用于较低的激光光强范围,当 $I_0 \lambda^2 > 10^{14} (\text{W}/\text{cm}^2) \cdot \mu\text{m}^2$ 时,实际电子热流要远远小于 Spitzer-Ham 理论值,应写为一个更普遍的表达式^[9]:

$$Q_e = f(k_B T_e / m_e)^{1/2} n_e k_B T_e \quad (7)$$

式中, f 为限流因子,计算中取 $f = 0.05$ ^[10], k_B 为玻耳兹曼常数, n_e 是表面自由电子密度, m_e 为电子质量。

LU^[10]等人推导出了飞秒脉冲激光加热靶材过程中自由电子温度的自相似解,在计算中,假设趋肤层厚度内的自由电子的温度和密度都是均匀的,即与材料内部坐标 z 无关,自由电子温度仅为时间 t 的函数,忽略晶格温度后,将(7)式代入,(1)式可写为:

$$C_e' T_e \frac{\partial T_e}{\partial t} = I_0 (1 - R) \alpha -$$

$$f(k_B T_e / m_e)^{1/2} n_e k_B T_e \times \frac{1}{l_s} - g T_e \quad (8)$$

式中, l_s 为趋肤深度,它等于吸收系数的倒数。

1.2 皮秒脉冲

当脉冲宽度处于区间 $\tau_e \ll \tau_1 \ll \tau_i$ 时, $\tau_i = C_i / g$,则认为是皮秒量级脉冲,它与电子晶格耦合时间相当,因此要考虑双温方程中的热传导项和电子晶格耦合过程^[7,11],要用完整的双温方程描述。

1.3 纳秒脉冲

当 $\tau_1 \gg \tau_i$ 时,这种情况下就认为是纳秒量级脉冲,电子与晶格碰撞弛豫时间远小于纳秒脉冲的脉宽,电子与晶格达到热平衡, $T_e = T_i = T$, $C_e \ll C_i$ 可忽略,双温方程可简化为^[5,7]:

$$C_i \partial T / \partial t = \partial / \partial z (\kappa_0 \partial T / \partial z) + I_0 (1 - R) \alpha \exp(-\alpha z) \quad (9)$$

这时的热扩散距离由表达式 $l_d = (D\tau_1)^{1/2}$ 给出, $D = \kappa_0 / C_i$ 为扩散系数。

2 计算方法

用有限差分法结合初始条件和边界条件对双温方程数值求解,双温方程的差分格式如下:

$$C_e' T_{k,j} \frac{T_{k,j+1}^e - T_{k,j}^e}{\Delta t} = \kappa_0 \frac{T_{k,j}^e T_{k+1,j+1}^e - 2T_{k,j+1}^e + T_{k-1,j+1}^e}{h^2} -$$

$$g(T_{k,j+1}^e - T_{k,j+1}^i) + I(1 - R) \alpha \exp(-\alpha kh) \quad (10)$$

$$C_i \frac{T_{k,j+1}^i - T_{k,j}^i}{\Delta t} = g(T_{k,j+1}^e - T_{k,j+1}^i) \quad (11)$$

式中, $h, \Delta t$ 分别为空间和时间步长, 令 $r = \frac{\kappa_0 \Delta t}{C_e h^2 T_{k,j}^i}$,

$\beta = \frac{g \Delta t}{C_e T_{k,j}^e}, I' = \frac{I_0 \alpha \Delta t}{C_e T_{k,j}^e}$, 将上式整理后得:

$$-iT_{_{k-1,j+1}}^e + (1+2r+\beta)T_{_{k,j+1}}^e - iT_{_{k+1,j+1}}^e = T_{_{k,j}}^e + \beta T_{_{k,j+1}}^i + I' \exp(-\alpha kh), \quad (k=0, 1, \dots, (L/h)-1) \quad (12)$$

$$(j=0, 1, \dots, (t/\Delta t)-1)$$

$$T_{_{k,j+1}}^i = \frac{C_i}{C_i + g \Delta t} T_{_{k,j}}^i + \frac{g \Delta t}{C_i} T_{_{k,j+1}}^e, \quad (k=0, 1, \dots, (L/h)-1) \quad (13)$$

$$(j=0, 1, \dots, (t/\Delta t)-1)$$

式中, k 和 j 分别表示第 k 层和第 j 个时间, (12) 式左边系数构成一个三对角矩阵, 可用追赶法求解。

3 数值模拟与分析

以单脉冲激光作用于金属铜为例, 照射激光能量密度为: $E = 0.05 \text{ J/cm}^2$, 波长 $\lambda = 800 \text{ nm}$, 铜表面的自

由电子密度为: $2.54 \times 10^{23} \text{ cm}^{-3}$, 其余参数^[5]列于表 1 中。由计算可得, 常温下 $\tau_e \approx 280 \text{ fs}$ 。图 1 所示为相同脉冲能量密度下, 不同飞秒量级脉冲作用时电子温度随时间的变化。当脉冲宽度 $\tau_1 = 300 \text{ fs}$ 稍大于 τ_e 、在脉冲结束时, 忽略耦合过程的 (3) 式计算的结果要比双温方程 (1) 式、(2) 式的值高约 288.9 K, 见图 1a, 而脉冲宽度为 $150 \text{ fs} < \tau_e$ 时, 两条曲线吻合得很好, 见图 1b, 并与解析表达式 (4) 式的结果 3202.47 K 相近。计算表明, 在这两个脉冲下, 忽略电子热传导过程的解析解 (6) 式的结果都达到了 7673.93 K, 偏差很大, 所以 τ_e 量级的脉冲宽度不能忽略电子热传导^[6], 但不考虑电子晶格耦合过程。常温下, 满足 $D_e \tau_1 < \alpha^{-2}$ 的最大脉冲为 14 fs, 以 $\tau_1 = 5 \text{ fs}$ 为例, 见图 1c, 双温方程就和 (6) 式解析解越来越接近, 计算表明, 脉冲越短时, 双温方程和 (6) 式的结果一致, 此时, 也能忽略电子热传导项, 用解析解 (6) 式描述极短飞秒激光与靶材的相互作用过程。

Table 1 The parameters for copper

$C_e / (\text{J} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{K}^{-2})$	$C_i / (\text{J} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{K}^{-1})$	$g / (\text{W} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{K}^{-1})$	$\kappa_0 / (\text{W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1})$	R	α / m^{-1}
96.6	3.43×10^6	1.02×10^{17}	401	0.92	7.1×10^7

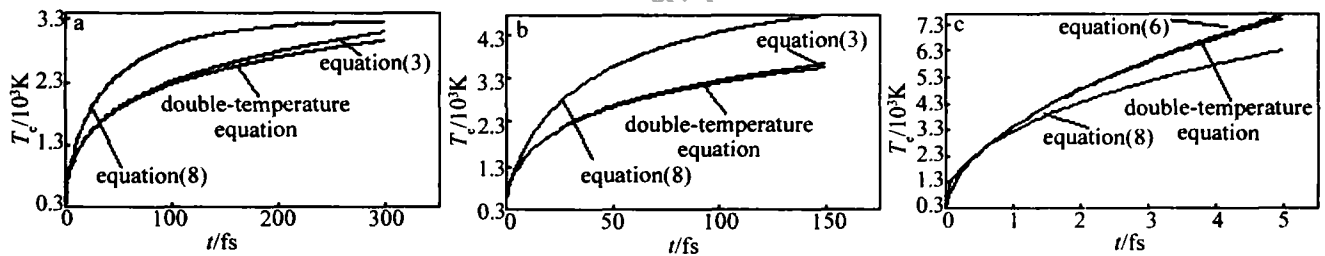


Fig 1 Surface electron temperature change vs time when pulse duration is a—300fs b—150fs c—5fs

同时, 激光强度不是很大时, (8) 式和双温方程两者结果相差不大, 见图 1a。而当激光强度 $I_0 = E/\tau_1$ 越大, 越接近 $I_0 \lambda^2 > 10^{14} (\text{W/cm}^2) \cdot \mu\text{m}^2$ 的条件时, 图 1c 中 (8) 式和 (6) 式的结果接近, 双温方程计算的温度偏低, 是由于 (7) 式热流表达式的值低于 Spitzer-Ham 理论^[9]所引起的, 此时, 电子热流要由 (7) 式描述, 飞秒脉冲与金属作用过程由 (8) 式描述。

计算表明, 飞秒持续时间内, 晶格温度增加很小, 远远小于电子温度, 可认为是常数。例如, $\tau_1 = 300 \text{ fs}$ 时, 脉冲结束时, 晶格温度为 319 K, 而电子温度为 3109 K。

对于铜材料, $\tau_i \approx 33 \text{ ps}$, 皮秒量级激光脉冲与物质作用由完整的双温方程描述, 由图 2 可知, 电子与晶格耦合时间约为 2 ps, 与文献 [8]、文献 [11] 中的结果相符, 同时脉冲越短, 电子的温度越高, 也就越容易将照射区温度迅速升高到汽化温度, 实现精密加工。

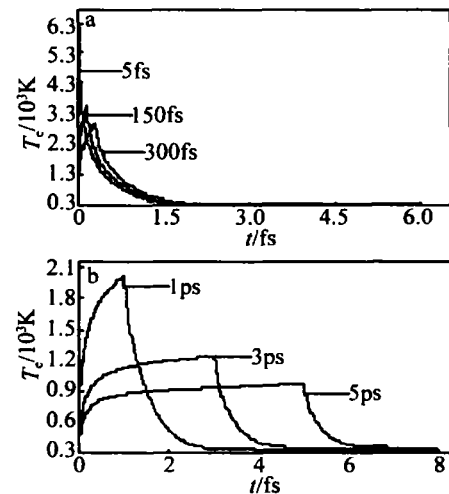


Fig 2 Surface electron temperature change vs time based on double-temperature equation in different a—femtosecond scale b—picosecond scale

图 3a 中给出了激光脉冲持续时间为 3 ns 时用简化 (9) 式计算得到的材料温度, 图 3b、图 3d 和图 3c、图 3e

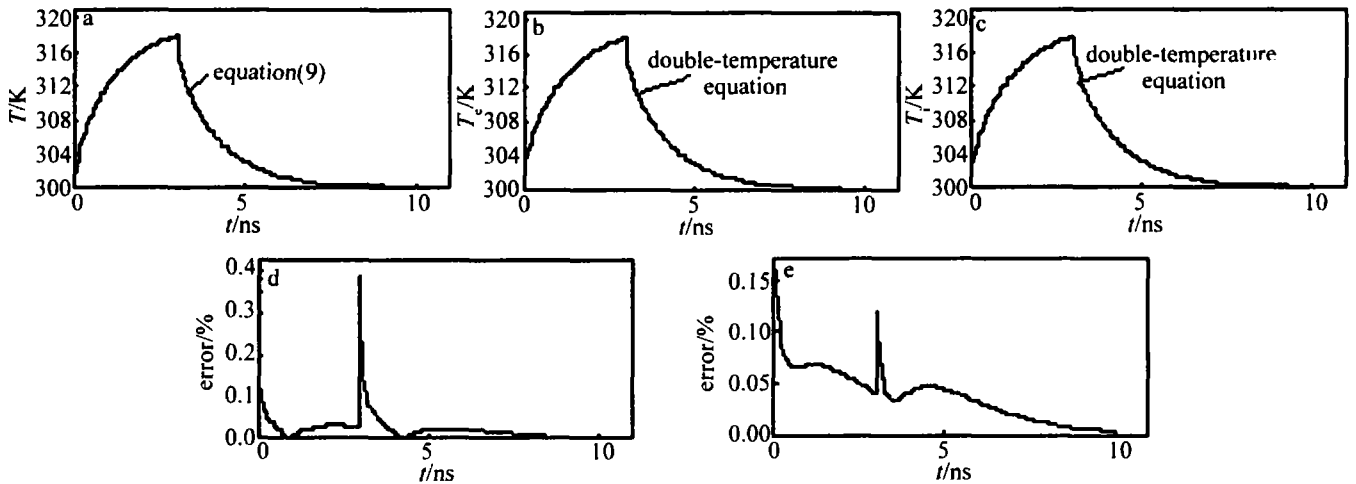


Fig 3 Surface electron temperature and lattice temperature change vs time for nanosecond scale pulses

分别给出了双温模型计算得到的电子温度及它与 (9) 式结果的误差和晶格的温度及它与 (9) 式结果的误差,由图 3 可知,三者的温度几乎相等,且电子温度误差小于 0.4%,晶格温度误差不超过 0.16%,也就证明了简化方程 (9) 式的合理性。

4 小 结

研究了飞秒、皮秒和纳秒脉冲激光作用下铜材料的温度变化,皮秒、飞秒等超短脉冲期间,电子温度远高于晶格温度,它们之间是非平衡的^[12],要用双温方程描述其与物质的相互作用。激光强度较低时,用 Spitzer-Ham 理论值可表示电子热流;一般情况下,特别是当激光强度满足 $I_0 \lambda^2 > 10^{14} (\text{W}/\text{cm}^2) \cdot \mu\text{m}^2$ 条件时,电子热流由 (7) 式表达。在相同能量密度下,脉冲越短,电子的温度升高越大。对于飞秒脉冲,根据脉宽的不同,可以对双温方程作一些简化,当脉宽小于 $\tau_e = C_e T_e / g$,远小于电子晶格耦合时间,可不用考虑电子与晶格的耦合,但应包含电子热传导项;当脉宽继续减小到满足条件 $D_e \tau_1 < \alpha^{-2}$ 时,电子热扩散引起的电子热流也可以忽略,描述电子温度的方程被简化为解析表达式 (6) 式。皮秒脉冲与电子晶格耦合时间相当,要考虑电子热扩散和电子晶格的耦合,用完整的双温方程来描述。纳秒级脉冲时,它属于长脉冲,能量的主要损失是将热流传导给靶材内部;电子和晶格达到热平衡,温度相等,用 (9) 式描述其与靶材作用过程。

参 考 文 献

- [1] CHE H Sh. The femtosecond and the appliance [J]. Laser & Optoelectronics Progress, 2003, 40(8): 5~9 (in Chinese).
- [2] BA I G. The appliance of the femtosecond [J]. Laser & Optoelectronics Progress, 2002, 39(3): 41~44 (in Chinese).
- [3] CHEN Ch Zh, BAO Q H, YAO Sh Sh *et al* Pulsed laser deposition and its application [J]. Laser Technology, 2003, 27(5): 443~446 (in Chinese).
- [4] AN ISMOV S I, KAPEL DV ICH B L, PERELMAN TL *et al* Electron emission from metal surfaces exposed to ultra-short laser pulses [J]. Sov Phys-JETP, 1974, 39: 375~378.
- [5] EESLEY G L. Generation of nonequilibrium electron and lattice temperatures in copper by picosecond laser pulses [J]. Phys Rev, 1986, B33(4): 2144~2150.
- [6] CORKUM P B, BRUNEL F, SHERMAN N K Thermal response of metals to ultrashort-pulse laser excitation [J]. Phys Rev Lett, 1988, 61(25): 2886~2889.
- [7] CHICKKOV B N, MOMMA C, NOLTE S *et al* Femtosecond, picosecond and nanosecond laser ablation of solids [J]. Appl Phys, 1996, A63(2): 109~115.
- [8] ELSAYED-AL I H E, NORR IS T B, PESSOTM A *et al* Time-resolved observation of electron-phonon relaxation in copper [J]. Phys Rev Lett, 1987, 58(12): 1212~1215.
- [9] PENG H M, WANG Sh J, QIU Y B *et al* The X-ray laser [M]. Beijing: National Defence Industry Press, 1997. 166~168 (in Chinese).
- [10] LIU Zh, LI R X, YU W *et al* Heating of planar metal targets by ultrashort laser pulses [J]. Acta Optica Sinica, 2000, 20(10): 1297~1304 (in Chinese).
- [11] NIX Ch, WANG Q Y. Finite difference method for thermal analysis of femtosecond-picosecond pulse laser ablation on metal surface [J]. Chinese Journal of Lasers, 2004, 31(3): 277~280 (in Chinese).
- [12] EESLEY G L. Observation of nonequilibrium electron heating in copper [J]. Phys Rev Lett, 1983, 51(23): 2140~2143.