

文章编号: 1001-3806(2013)04-0478-05

超短激光脉冲序列烧蚀镍薄膜的研究

韩 飞, 闫 寒, 周海波, 王琼娥

(北京航星机器制造公司, 北京 100013)

摘要: 超短(飞秒)激光脉冲序列技术能有效地提高激光加工金属的加工精度,它在微/纳制造中具有重要的理论意义和生产价值。为了研究脉冲间隔对激光烧蚀金属加工精度的影响,以过渡金属镍为研究对象,采用双温模型和分子动力学模拟相结合的方法,对飞秒激光脉冲序列(脉冲间隔不同)烧蚀金属镍的过程、现象进行了研究,取得了脉冲序列烧蚀镍薄膜的动态表层电子温度和晶格温度随时间演化的数据和烧蚀区域在不同时刻的快照。结果表明,一定范围内,随着脉冲间隔的增加,脉冲序列烧蚀镍薄膜所产生的纳米粒子更加均匀,烧蚀平面更加平整,初始熔化速度、烧蚀率呈降低趋势,有利于提高加工的精度。

关键词: 激光技术;脉冲序列;飞秒激光;双温模型;分子动力学;脉冲间隔

中图分类号: TB43 **文献标识码:** A **doi:** 10.7510/jgjs.issn.1001-3806.2013.04.014

Study on ablation of Ni film by ultrashort laser pulse-train

HAN Fei, YAN Han, ZHOU Hai-bo, WANG Qiong-e

(Beijing Hangxing Technology Development Co., LTD, Beijing 100013, China)

Abstract: Micromaching by ultrashort laser pulse-train can effectively improve femtosecond laser ablation of metal, which are important both theoretically and practically in micro/nano-laser fabrication applications. In order to study the effect of separation of pulse on the accuracy of laser ablation, the phenomena and process of laser ablation with different separation of pulse train were studied in detail by combining the molecular dynamic simulation and two-temperature model, the electron and lattice temperatures of the layers next to dynamic film surfaces and the snapshots of nickel thin films irradiated by the femtosecond laser pulse trains were obtained. The result is that, within a certain range, as the increase of the separation of pulse, femtosecond pulse train laser ablation of Ni films can apparently cause more flat ablation plane, slower initial melting speed, smaller and more uniform nanoparticles, smaller ablation ratio, which can effectively improve femtosecond laser ablation of metal.

Key words: laser technique; pulse train; femtosecond laser; two-temperature model; molecular dynamics; separation of pulse

引 言

脉冲序列是由时间间隔为飞秒到皮秒的多个激光脉冲组成。研究表明,调制脉冲序列可控制电离过程^[1-2]、选择性地电离原子^[1,3],能够显著提高被加工材料的表面质量、减少沟槽底部的尖峰和凹坑,从而获得更光滑的表面,并能有效地提高激光微/纳制造的加工精度^[4]。超短激光脉冲序列微加工技术已经成为激光精密微加工领域中非常重要和前沿

的研究方向之一,加紧对超短激光脉冲序列进行研究,意义尤为重大。

然而,飞秒激光脉冲序列与物质的相互作用是一个非线性、非平衡的过程,涉及到等离子体形成、多光子吸收、相爆炸、临界点相分离等,传统的试验方法或者理论模型很难达到要求。本文中以典型过度态金属镍为研究对象,通过分子动力学模拟和双温模型结合的方法^[5],建立比较完善的理论模型,同时考虑了激光能量吸收、电子热传导和电子-晶格能量交换,对飞秒激光脉冲序列烧蚀金属的现象和过程进行了详细研究,揭示飞秒激光脉冲序列的重要参量脉冲间隔对提高加工精度的影响,达到优化脉冲序列的目的。

作者简介:韩 飞(1985-),男,硕士,工程师,现主要从事激光微纳制造的研究。

E-mail: hanfei0604@yahoo.com.cn

收稿日期:2012-08-21;收到修改稿日期:2012-10-29

1 模拟系统的建立

本文中选择图 1 所示的脉冲序列重点研究脉冲间隔对脉冲序列加工精度的影响。选择 3 组脉冲序列, 它们的脉冲数目都为 3, 每个单脉冲的能量都为 $(0.3115/3)\text{J}/\text{cm}^2$, 脉宽为 120fs。飞秒激光脉冲序列在时间上按高斯分布, 空间上是均匀分布。

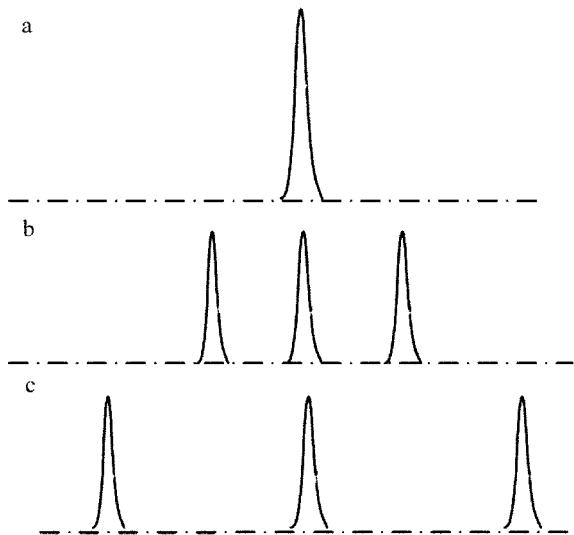


Fig. 1 Pulse-train

a—the separation of pulse is 0ps, the total fluence is $0.3115\text{J}/\text{cm}^2$ b—the separation of pulse is 4ps, the total fluence is $0.3115\text{J}/\text{cm}^2$ c—the separation of pulse is 8ps, the total fluence is $0.3115\text{J}/\text{cm}^2$

当飞秒激光加工金属镍薄膜时, 被加工材料从概念上可分为 3 个子系统: 电子系统、原子系统和材料系统, 如图 2 所示。电子系统将通过双温模型来描述, 原子系统将通过分子动力学模拟和双温模型来描述。

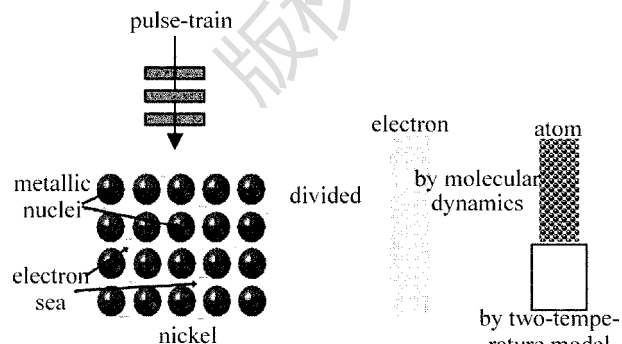


Fig. 2 Combined methods of molecular dynamic simulation and two-temperature model

1.1 双温模型

与长脉冲激光相比, 飞秒激光脉宽窄、强度高, 从根本上改变了激光与物质的作用机制^[6]。就飞秒激光烧蚀金属靶材而言, 飞秒激光与物质相互作用包括 3 个阶段^[7]: (1) 飞秒激光强度高, 金属中的

电子吸收光子顺势偏离 Fermi-Dirac 分布达到很高的温度, 此时晶格仍处于冷状态, 该过程持续时间为飞秒量级; (2) 飞秒激光脉冲持续时间很短, 电子和晶格之间能量交换发生在激光脉冲之后, 通过电子热传导, 激光能量迅速传到材料内部, 同时通过电子声子之间的散射实现电子和晶格的热平衡, 该过程持续时间为皮秒量级; (3) 电子和晶格平衡后由表层向材料内部热扩散, 最终达到整个材料的热平衡。众多学者对飞秒激光烧蚀材料的物理过程进行了描述。其中得到大家一直认同的是最早由 ANISIMOV 等人^[8]提出的双温模型, 该模型将电子和晶格看成两个系统, 其中电子温度和晶格温度随时间的演化过程表示为:

$$c_e(T_e) \frac{\partial T_e}{\partial t} = \nabla [k_e(T_e) \nabla T_e] - G(T_e - T_1) + S(z, t) \quad (1)$$

$$c_1(T_1) \frac{\partial T_1}{\partial t} = G(T_e - T_1) \quad (2)$$

式中, T_e 为电子温度, c_e 为电子容积比热容, k_e 为电子热导率, T_1 为晶格温度, c_1 为晶格容积比热容, k_1 为晶格热导率, S 为激光源, G 为电子和晶格耦合常数。对于金属镍, 假设 $c_e = \gamma T_e$, 镍的比热容常量 $\gamma = 1065\text{J}/(\text{m}^3 \cdot \text{K}^2)$, $k_e = k_0 \frac{T_e}{T_1}$, $k_0 = 91\text{W}/(\text{m} \cdot \text{K})$, $c_1 = 4.1\text{J}/\text{cm}^2$, $G = 3.6 \times 10^{17}\text{W}/(\text{m}^3 \cdot \text{K})$ 。激光脉冲沿 z 向辐射到 200nm 镍薄膜, 激光源为:

$$S(z, t) = \sum_{n=1}^k \frac{0.94J_n}{t_p \delta} \times \exp\left[-2.77\left(\frac{t-t_n}{t_p}\right)^2\right] \exp\left(-\frac{z-z_0}{\delta}\right) \quad (3)$$

式中, J_n 为第 n 个脉冲的有效激光通量, δ 为光穿透深度, t_p 为激光脉宽, t_n 为第 n 个高斯脉冲中心时刻, z_0 为激光辐照的镍薄膜表面, 它是时间 t 的函数, z 为位置 (薄膜初始表面 $z=0$)。本文中取 $\delta = 13.5\text{nm}$ ^[7], 脉冲宽度 $t_p = 120\text{fs}$ 。双温模型采用有限差分方法描述, 如下式所示:

$$T_e(t+dt) = T_e(t) + [\nabla(k_e(t) \nabla T_e(t)) - G(T_e(t) - T_1(t)) + S(z, t)] \times dt \div c_e \quad (4)$$

$$\nabla(k_e(t) \nabla T_e(t)) = k_e(t) \times [T_e(t-dt) - 2 \times T_e(t) + T_e(t+dt)] \div dt^2 \quad (5)$$

有限差分方法迭代的步长 dt 选择为 1.25fs, 给定晶格和电子的初始温度都为 300K。双温模型能很好地描述低通量下激光加工金属的过程, 然而由

于无法引入被加工材料相变过程,本文中引入分子动力学模拟很好地解决了这个问题。

1.2 分子动力学模拟

从统计物理学中衍生出来的分子动力学模拟方法(molecular dynamics, MD)是用来计算经典体系的平衡和传递性质的确定性方法,其优点是跟踪每个原子的运动轨迹,从而准确地描述系统的动态行为。

模拟基于以下两个基本假设:(1)所有粒子的运动都遵循经典牛顿力学规律;(2)粒子之间的相互作用满足叠加原理。

模拟时选取 200nm 厚度的镍薄膜作为研究对象,总共有 240000 个原子,取前 70nm 用分子动力学模拟,给每个原子赋予一个初始位置和速度,根据统计学知识,可以计算其温度、压强等物理量;对势函数微分,可以计算每个原子受到的其它原子对它的作用力,根据牛顿第二定律,可以确定每个原子一定时间步长后的新的位置和速度。系统平衡后,加入激光能量,薄膜温度上升,反映为原子平均动能增加,这是通过给每个原子乘以相同的系数实现的。一定时间后,原子达到新的平衡,这个过程中可以计算各个时刻,位置的温度、压强、原子密度等物理量。这就是分子动力学模拟的基本原理。

2 结果分析

图 3 中给出脉冲间隔分别为 0ps, 4ps 和 8ps、脉冲数目为 3、脉冲宽度为 120fs、总激光通量为 $0.3115\text{J}/\text{cm}^2$ 的激光脉冲序列烧蚀镍薄膜的动态表面电子温度和晶格温度随时间的演化。从图 3 中可以看出,脉冲间隔为 0ps 的脉冲序列(单脉冲)烧蚀镍薄膜时,电子温度变化是单峰值,上升速度较快,表层电子温度较高,在加入激光后 0.15ps 达到峰值温度 17073K,此时表层晶格温度为 624.4K;脉冲间隔为 4ps 和 8ps 的脉冲序列烧蚀镍薄膜时,表层电子温度随时间的变化是多峰值,电子温度变化比单脉冲的缓和,电子温度分别在加入激光后 8.5ps 和 13ps 时达到最高值 14180K 和 13553K,此时表层晶格温度分别为 5105K 和 6805K。在一定范围内随着脉冲间隔的增加,晶格温度上升的速度明显减低,但是晶格加热的时间延长,有利于表层电子能量沉积。图 4 为对应的热导率随时间的演化。从图 4 看出,脉冲间隔为 4ps 和 8ps 的脉冲序列电子热导明显小于单脉冲,这导致脉冲序列表层电子沉积的能量向薄膜内部传导速度明显降低。

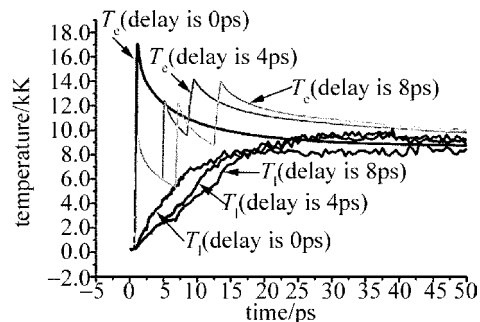


Fig. 3 Electron and lattice temperatures of the layers next to dynamic film surfaces

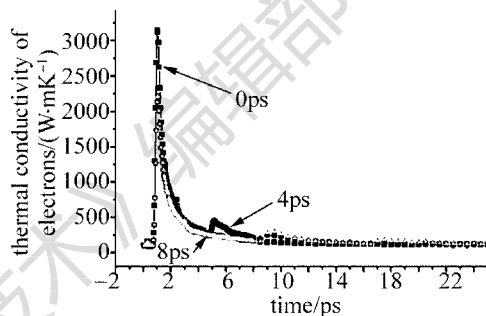


Fig. 4 Thermal conductivity of the layers next to dynamic film surfaces

总之,随着脉冲间隔的增加,表层电子温度变化速度降低,峰值温度减小,表层晶格温度明显升高,热导率减小,这说明脉冲间隔的增大有利于能量在表层的沉积,沉积在底层的能量明显较少,有利于表层材料的去除和热影响区的减少。

图 5 为激光通量为 $0.3115\text{J}/\text{cm}^2$ 、脉冲宽度为 120fs 的单脉冲飞秒激光烧蚀镍薄膜时烧蚀区域分别在 0ps, 15ps, 32ps, 92ps, 150ps, 200ps 的快照。其中 z 轴表示激光脉冲序列照射的方向, x 轴平行于镍薄膜表面方向。脉冲间隔为 0ps 即单脉冲烧蚀镍薄膜时,薄膜在 7.5ps 时开始融化,此时薄膜向外膨

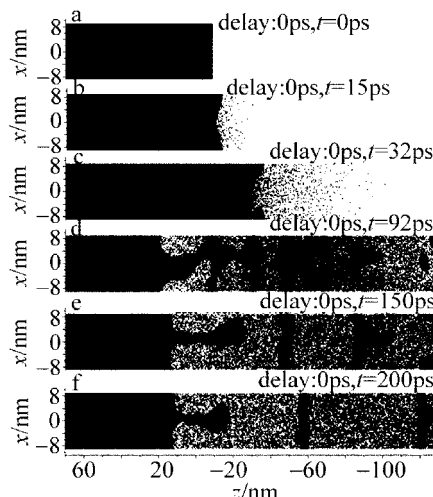


Fig. 5 Snapshots of nickel thin films irradiated by the single femtosecond laser pulse with total fluence of $0.3115\text{J}/\text{cm}^2$ and delay of 0ps

胀了 3.5nm, 平均膨胀速率为 0.538nm/ps。10ps 时薄膜向外膨胀了 5.5nm, 此时固液接触面位于 4nm 处, 10ps 时的平均膨胀速率为 0.55nm/ps, 7.5ps 到 10ps 时的平均融化速率为 1.6nm/ps, 而此处温度为 6032K, 镍的熔点为 1453℃, 存在明显的过热现象。15ps 时, 气相出现在薄膜的动态表面上方, 固液接触面出现在 20nm 处, 此时气泡开始在薄膜表面和靠近表面的内部形成。32ps 时, 镍薄膜固液接触面出现在 40nm 处, 气泡继续在薄膜表面和靠近表面的内部形成和增大。92ps 时, 镍薄膜固液接触面出现在 62nm 处, 气泡迅速增大, 在薄膜内部形成很明显的空洞, 材料基本完成去除过程; 从 92ps 到 150ps, 气泡扩张导致薄膜从内部发生断裂。在 150ps 到 200ps, 薄膜没有发生很明显的变化, 只是液相和气相继续膨胀, 材料形成新的平衡。

图 6 和图 7 为脉冲间隔分别为 4ps 和 8ps 的脉冲序列烧蚀镍薄膜时烧蚀区域在不同时刻的快照。其中 z 轴表示激光脉冲序列照射的方向, x 轴平行于镍薄膜表面方向。脉冲间隔为 4ps 的脉冲序列烧蚀的镍薄膜在 10ps 时开始融化, 此时薄膜向外膨胀了 4.0nm, 平均膨胀速率为 0.444nm/ps, 脉冲间隔为 8ps 的脉冲序列烧蚀的镍薄膜在 15ps 时表面刚开始融化, 此时薄膜向外膨胀了 3.0nm, 平均膨胀速率为 0.2nm/ps。可以看出, 随着脉冲间隔的增加, 薄膜的初始熔化速度和膨胀速度明显减小, 这是因为脉冲间隔的增加, 延长了电子和晶格热化时间, 从而减小了薄膜材料电子和晶格温度上升的速度和薄膜材料膨胀的速度。32ps 时, 脉冲间隔为 4ps 的脉冲序列的固液接触面出现在 32nm 处, 此时材料去除比较均匀, 材料内部无明显的气泡; 脉冲间隔为 8ps 的脉冲序列固液接触面出现在 30nm 处, 此时材料去除更加均匀, 材料内部无气泡。92ps 时, 脉冲间隔为 4ps 的脉冲序列烧蚀的薄膜材料内部气泡增大, 使材料内部出现空隙, 但是形成的纳米粒子比单脉冲烧蚀时均匀, 材料基本完成去除过程; 此时, 脉冲间隔为 8ps 的脉冲序列烧蚀的薄膜, 材料膨胀, 原子间距离增大, 使材料内部出现空隙, 但是形成的纳米粒子比单脉冲和脉冲间隔为 4ps 的脉冲序列烧蚀时均匀, 材料基本完成去除过程。在 150ps 到 200ps, 薄膜没有发生很明显的变化, 只是液相和气相继续膨胀, 材料形成新的平衡, 此时脉冲间隔为 0ps, 4ps, 8ps 的脉冲序列烧蚀的镍薄膜的烧蚀率分别为 21.5nm, 16nm, 13nm。

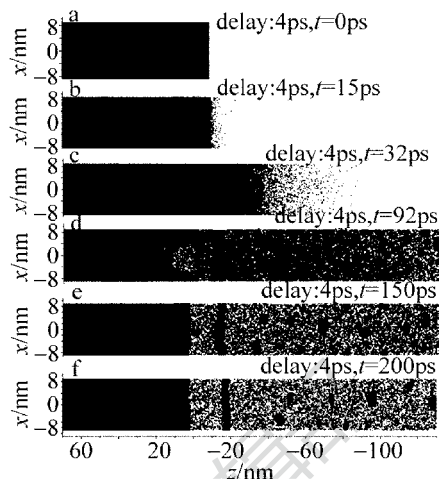


Fig. 6 Snapshots of nickel thin films irradiated by the femtosecond laser pulse trains with total fluence of 0.3115J/cm² and delay of 4ps

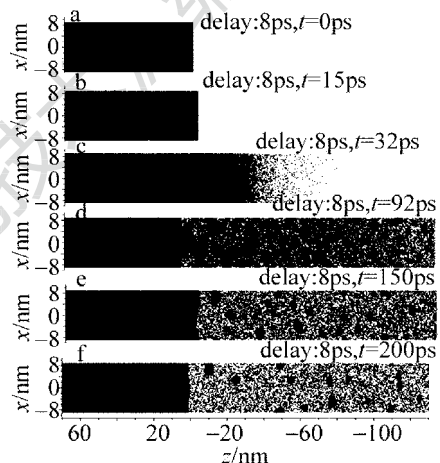


Fig. 7 Snapshots of nickel thin films irradiated by the femtosecond laser pulse trains with total fluence of 0.3115J/cm² and delay of 8ps

同单脉冲相比, 脉冲间隔为 4ps 和 8ps 的脉冲序列烧蚀镍薄膜产生的纳米粒子明显小而均匀、初始熔化速度慢、膨胀速度小、而且烧蚀率较低, 有利于提高加工的精度。

3 结 论

同单脉冲烧蚀相比较, 脉冲序列加工金属镍薄膜产生的纳米粒子明显小而均匀、烧蚀平面更加平整、初始熔化速度慢、热影响区小, 而且烧蚀率较低, 有利于提高加工的精度。在一定范围内, 随着脉冲间隔的增加, 所产生的纳米粒子更加均匀, 初始熔化速度、烧蚀率呈降低趋势, 热影响区明显减少, 有利于加工精度的提高。

参 考 文 献

[1] GONG J X, ZHAO X M, XING Q R, *et al.* Femtosecond laser-induced cell fusion [J]. Applied Physics Letters, 2008, 92 (9): 093901.

- [2] NAKATA Y, OKADA T, MAEDA M. Micromachining of a thin film by laser ablation using femtosecond laser with masks[J]. *Optics and Lasers in Engineering*, 2004, V42(4): 389-393.
- [3] JIANG L, TSAI H L. Repeatable nanostructures in dielectrics by femtosecond laser pulse trains [J]. *Applied Physics Letters*, 2005, 87(15): 151104.
- [4] VURTH L, STEPHAN O, VITRANT G. Two-photon induced fabrication of gold microstructures in polystyrene sulfonate thin films using a ruthenium(II) dye as photoinitiator[J]. *Applied Physics Letters*, 2008, 92(17): 171103.
- [5] IVANOV D S, ZHIGILEI L V. Combined atomistic-continuum modeling of short-pulse laser melting and disintegration of metal films[J]. *Physical Review*, 2003, B68(6): 064114.
- [6] SCHOENLEIN R W, LIN W Z, ESLEY G L. Femtosecond studies of nonequilibrium electronic processes in metals[J]. *Physical Review Letters*, 1987, 58(16): 1680-1683.
- [7] HOHLFELD J, WELLERSHOFF S S, GUDDE J, *et al.* Electron and lattice dynamics following optical excitation of metals [J]. *Chemical Physics*, 2000, 251(1/3): 237-258.
- [8] ANISIMOV S I, KAPELIOVICH B L, PERELMAN T L. Electron emission from metal surfaces exposed to ultrashort laser pulses[J]. *Soviet Physics*, 1974, 39(13): 375-377.

《激光技术》编辑部

版权所有 ©