

文章编号: 0258-7025(2008)10-1579-06

超短脉冲激光烧蚀金属薄膜材料的热效应分析

王德飞 于继平 郭春风 齐文宗

(四川大学电子信息学院, 四川 成都 610064)

摘要 基于双曲双温两步热传导模型, 利用具有人工粘性和自适应步长的有限差分算法, 对超短脉冲激光辐照金膜时的温度场进行了一维数值模拟计算。讨论了不同能量密度和脉冲宽度条件下金膜表面温度场的分布情况; 分析了电子-晶格耦合系数对薄膜体内温度场的变化规律及电子-晶格耦合至热平衡所需时间的影响。结果表明, 激光脉冲的能量密度和脉冲宽度对电子温度的峰值有重大影响; 电子-晶格的耦合系数决定了二者的温升速率和耦合时间; 电子温度及电子温度的梯度在接近表面区域迅速达到最大值, 与之相应的热电子崩力是造成金属薄膜早期力学损伤的主要原因。

关键词 激光技术; 超短脉冲激光; 金属薄膜; 热效应分析; 双曲双温模型

中图分类号 TN 249; O437; TG 156.99

文献标识码 A

doi: 10.3788/CJL20083510.1579

Thermal Effect Analysis of Metal Film Ablation by Ultra-Short Laser Pulses

Wang Defei Yu Jiping Guo Chunfeng Qi Wenzong

(College of Electronics and Information Engineering, Sichuan University, Chengdu, Sichuan 610064, China)

Abstract Based on the dual-hyperbolic two-temperature and double-step heat conduction model, numerical simulation for the electron and lattice temperatures field of gold film is performed by ultra-short laser pulses, using the finite-difference method with viscosities and adaptive time steps. The temperature distributions of the electron and lattice at the front surface with different laser intensities and pulse widths were discussed. Simultaneously, it is also analyzed that the effect of the electron-lattice coupling coefficient on the change of electron-lattice temperature and the time of electron-lattice coupling to thermal equilibrium. Numerical results show that the laser intensity and pulse width impact significantly on the peak of the electron temperature, and electron lattice temperature rising rate and coupling time are determined by the coupling factor. Electron temperature and its gradient quickly reach the maximum in a small region near the irradiated surface, corresponding with high hot-electron blast force, which could be a dominating mechanism for mechanical damage at the early stage of ultra-short laser ablation.

Key words laser technique; ultra-short laser pulse; metal film; thermal effect analysis; dual - hyperbolic two-temperature model

1 引 言

超短脉冲激光^[1~8]加工金属材料就是将激光能量在飞秒量级的时间内注入, 被激光辐照区域的温度急剧升高, 超过材料的熔化与气化温度, 实现精度较高的烧蚀加工; 超短脉冲独特的加工特性使其在微精细加工方面有着重要的应用^[6~8]。因此, 研究超短脉冲激光与金属材料相互作用时材料表面以及

不同深度温度场的变化规律, 对进一步了解超短脉冲激光与金属材料之间的相互作用机制是十分必要的。

随着相关实验技术的逐渐发展, 人们对超短脉冲激光与物质相互作用机制的理论研究也在不断深入。如 S. I. Anisimov 等^[9]提出了描述超短脉冲激光与金属相互作用的双温模型; D. Y. Tzou 等^[10]提出了双相迟滞模型来描述非傅里叶传热现象的规

收稿日期: 2007-09-28 收到修改稿日期: 2008-01-15

作者简介: 王德飞(1982—), 男, 河南人, 硕士研究生, 主要从事超短脉冲激光与物质相互作用及激光技术方面的研究。

E-mail: defeiwangscu@163.com

导师简介: 齐文宗(1967—), 男, 吉林人, 副研究员, 主要从事激光薄膜光热及损伤特性方面的研究。

E-mail: qiwenzong@sohu.com

律; T. Q. Qiu 等^[11]用双温两步热传导模型描述超短脉冲激光对金属薄膜的非平衡加热过程。近年来,对于超短脉冲激光与物质相互作用的研究逐渐受到人们的重视^[12~16]。本文在已有理论研究的基础上,基于双曲双温两步热传导模型,利用具有人工粘性和自适应步长的有限差分算法,分析了激光的能量密度、脉冲宽度及材料自身的耦合系数等参量对材料表面及不同深度温度场变化规律的影响;讨论了不同阶段金属薄膜损伤的物理机制。

2 基本理论

当超短脉冲激光烧蚀金属薄膜材料时,由于作用时间极短、峰值功率极高,主要是通过电子、原子及晶格之间的相互作用来传递能量从而去除材料。因此用经典的傅里叶热传导定律去描述超急速加热过程将有很大的局限性,必须考虑非傅里叶效应。为了描述金属薄膜中电子与晶格温度在超急速加热过程中的非平衡性,引入了双曲双温两步热传导模型。首先考虑的是入射超短脉冲激光对趋肤层电子的热激发;其次是电子-晶格之间的热耦合作用,再就是电子-电子和晶格-晶格内部的热传导等过程。

2.1 理论模型^[11,13,17,18]

理论模型参见文献^[11,13,17,18]

$$C_e(T_e) \frac{\partial T_e}{\partial t} = -\frac{\partial q_e}{\partial z} - G(T_e - T_L) + S(z, t), \quad (1)$$

$$\tau_e \frac{\partial q_e}{\partial t} + q_e = -K_e \frac{\partial T_e}{\partial z}, \quad (2)$$

$$C_L(T_L) \frac{\partial T_L}{\partial t} = -\frac{\partial q_L}{\partial z} + G(T_e - T_L), \quad (3)$$

$$\tau_L \frac{\partial q_L}{\partial t} + q_L = -K_L \frac{\partial T_L}{\partial z}, \quad (4)$$

式中 C, T, G, τ, K, q 分别表示电子-晶格体系的比热容、温度、耦合系数、弛豫时间、热导率以及热流,下标 e, L 分别代表电子和晶格。 $S(z, t)$ 为与激光脉冲相对应的热源项。

当金属材料在高斯激光脉冲辐照下,与脉冲相应的热源项 $S(z, t)$ 的一维表达式为

$$S(z, t) =$$

$$\frac{0.94(1-R)J_F}{t_p \delta} \exp\left[-\frac{z}{\delta} - 2.77\left(\frac{t-2t_p}{t_p}\right)^2\right], \quad (5)$$

式中 J_F, R, t_p, δ 分别表示激光的峰值能量密度、金属表面的反射率、激光脉冲最大能量一半的半峰全宽(FWHM),金属薄膜材料的光学吸收深度, z 为方向坐标。

金属薄膜材料电子-晶格耦合系数的表达式为^[11,17]

$$G = \frac{\pi^2 m_e n_e C_s^2}{6\tau_e(T_e)T_e}, \quad (6)$$

$$C_s = \sqrt{\frac{B}{\rho_m}}, \quad (7)$$

其中 m_e, n_e 分别代表自由电子的质量和密度, ρ_m, B 分别表示材料的质量密度和体积弹性模量。

由于金属材料中自由电子的热特性参量对温度有很强的依赖性,所以自由电子的热容、弛豫时间、热导率的表达式分别为

$$C_e = C_{e0} T_e \quad (8)$$

$$\tau_e = \frac{1}{A_e T_e^2 + B_L T_L} \quad (9)$$

$$K_e = \chi \frac{(\alpha^2 + 0.16)^{\frac{5}{4}} (\alpha^2 + 0.44)\alpha}{(\alpha^2 + 0.092)^{\frac{1}{2}} (\alpha^2 + \eta\beta)}, \quad (10)$$

其中 $\alpha = T_e/T_F, \beta = T_L/T_F, T_F$ 为费米温度。

假定激光辐照前金属薄膜的温度等于环境温度并且不考虑整个过程中的热量损失,控制方程在适当的初始和边界条件下可以进行数值求解。初始和边界条件可以被假定为

$$T_e(z, 0) = T_L(z, 0) = T_0, \quad (11)$$

$$q_e(0, t) = q_e(l, t) = 0, \quad (12)$$

$$q_L(0, t) = q_L(l, t) = 0, \quad (13)$$

其中 l, T_0 分别为金属薄膜的厚度和参考温度。

2.2 方程中的参量

方程中采用的参量如表 1 所示。

表 1 方程中的计算参量

Table 1 Calculation parameters of equations

Properties	Value	Properties	Value
$C_{e0} / \text{J}/(\text{m}^3 \cdot \text{K}^2)$	70	$C_L / \text{J}/(\text{m}^3 \cdot \text{K})$	2.48×10^6
$\chi / \text{W}/(\text{m} \cdot \text{K})$	353	τ_L / ps	38.7
T_F / K	6.42×10^4	R	0.93
$K_L / \text{W}/(\text{m} \cdot \text{K})$	315	η	0.16
$A_e / \text{K}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$	1.2×10^7	T_0 / K	300
$B_L / \text{K}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$	1.23×10^{11}	$\rho / \text{kg}/\text{m}^3$	1.93×10^4
δ / nm	15.3		

3 结果与分析

运用具有人工粘性和自适应步长的有限差分算法,分析了脉宽为 0.1 ps 的超短脉冲激光烧蚀 50 nm 厚金膜时温度场的变化规律。

图 1 给出了脉冲宽度不变($t_p = 0.1$ ps),激光

脉冲峰值能量密度对金膜前后表面电子、晶格温度的影响。可以看出,在超短脉冲激光辐照早期,由于自由电子的比热容与晶格相比要小二到三个数量级,所以趋肤层内的电子温度迅速升高,而晶格的温度几乎没有明显的变化;图 1(a)在 $t = 0.28$ ps(已经滞后于脉冲激光达到峰值功率的时间 $t = 0.2$ ps)时表层电子温度达到 1.906×10^4 K,此时晶格温度仅为 3.206×10^2 K,该阶段处于明显的非平衡加热过程;随后,由于金膜吸收的激光能量小于电子通过电子与晶格耦合作用传递给晶格的能量及传递给更深处电子的能量之和,所以电子的温度呈现明显的下降趋势。从图中还可以看出,当脉冲宽度一定时,

表层电子温度随着激光峰值能量密度的增加明显升高,同时电子与晶格耦合至热平衡的时间也在增加。采用图 1(a)的计算参量,后表面的电子温度在 $t = 1.541$ ps 时与前表面的电子温度达到平衡,此时电子的温度为 1.169×10^4 K,晶格温度为 4.306×10^2 K。薄膜体系达到热平衡的时间大约为 60 ps,与文献[16,19]的结果基本吻合。图 1(b)在 $t = 0.268$ ps 时表层电子温度达到 2.516×10^4 K,此时晶格的温度仅达到 3.272×10^2 K。薄膜总体达到平衡温度的时间大约为 70 ps。与图 1(a)相比,电子温度的最大值、电子-晶格的耦合时间及热平衡温度均有明显增加。

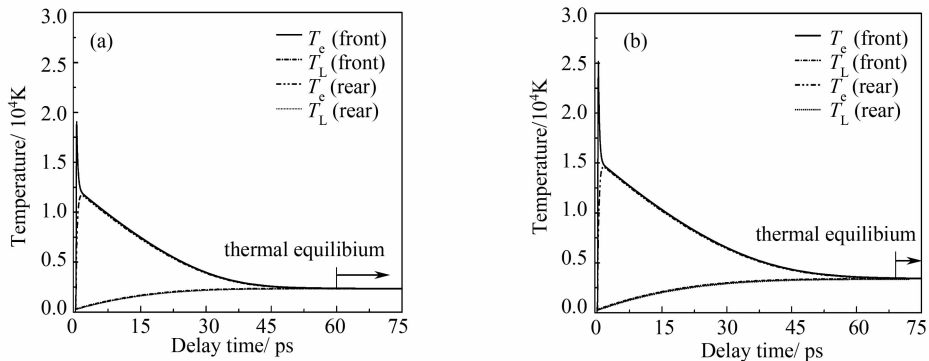


图 1 厚度为 50 nm 金膜前后表面非平衡的电子-晶格温度与时间的关系 ($t_p = 0.1$ ps)

Fig. 1 Relation of non-equilibrium electron and lattice temperatures at the front (irradiated) and rear surface of a 50nm gold film with ($t_p = 0.1$ ps). (a) $J_F = 0.4$ J/cm²; (b) $J_F = 0.7$ J/cm²

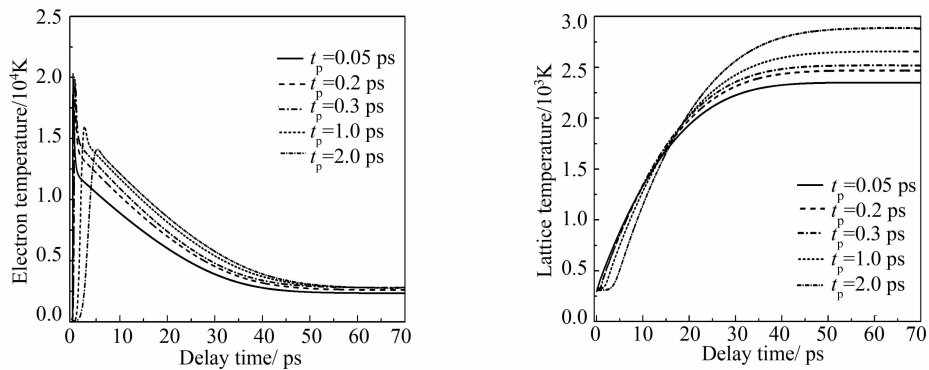


图 2 不同脉冲宽度下金膜前表面电子温度和晶格温度与时间的关系 ($J_F = 0.4$ J/cm²)

Fig. 2 Relation of electron and lattice temperatures at the front (irradiated) surface of a gold film with time at different laser pulse width ($J_F = 0.4$ J/cm²)

图 2 描述了激光脉冲能量密度不变时,金膜前表面电子温度和晶格温度随脉冲宽度的变化关系。可以看出,薄膜表层电子的温度在脉冲辐照时间内迅速升高;同时电子温度的峰值随着脉宽的增加明显降低,电子-晶格的热平衡时间却在增加,导致热平衡温度随脉宽的增加而升高。当能量密度一定时,脉冲宽度直接影响材料的烧蚀阈值;同种材料,

激光脉冲的宽度越窄,材料烧蚀阈值越低,达到烧蚀阈值时所需要的脉冲的能量就越小。模拟计算中采用的激光脉冲宽度为飞秒量级,得到的电子-晶格耦合时间在皮秒量级,小于热扩散时间。所以在该量级的超短脉冲激光加工为非热熔过程。脉冲宽度的增加导致电子-晶格的热平衡温度升高,产生相应的附带热损伤会对材料的加工精度造成一定的影响。

图 3 示出了不同能量密度时前表面电子温度和晶格温度随时间的变化规律。随着脉冲能量密度的增加,脉冲过后电子温度的峰值明显升高,与能量密度对应的电子温度峰值分别为 1.91×10^4 K, 2.13×10^4 K, 2.50×10^4 K, 电子与晶格的热平衡温度及耦合时间均增加。如果激光脉冲的能量密度超过材料的烧蚀阈值,电子-晶格耦合时间超过热平衡时

间,热扩散对材料加工区域的周围产生影响,加工过程会是“热”作用。对于不同的脉冲宽度,能量密度有一个临界值^[20]。当脉冲能量密度小于临界值时为非热烧蚀,超过临界值就会产生一定的热烧蚀作用,从而影响加工的精度,与文献[19]的实验结论基本一致。

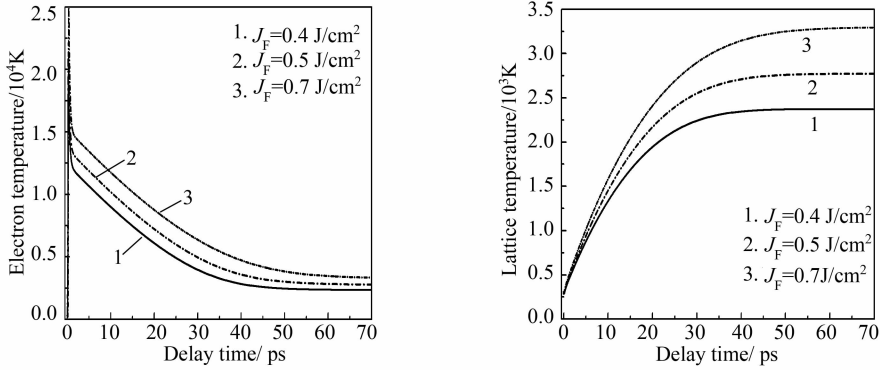


图 3 脉冲能量密度不同时金膜前表面电子温度和晶格温度随时间的变化规律 ($t_p = 0.1$ ps)

Fig. 3 Relation of electron and lattice temperature at the front surface of a gold film with time at different laser intensities ($t_p = 0.1$ ps)

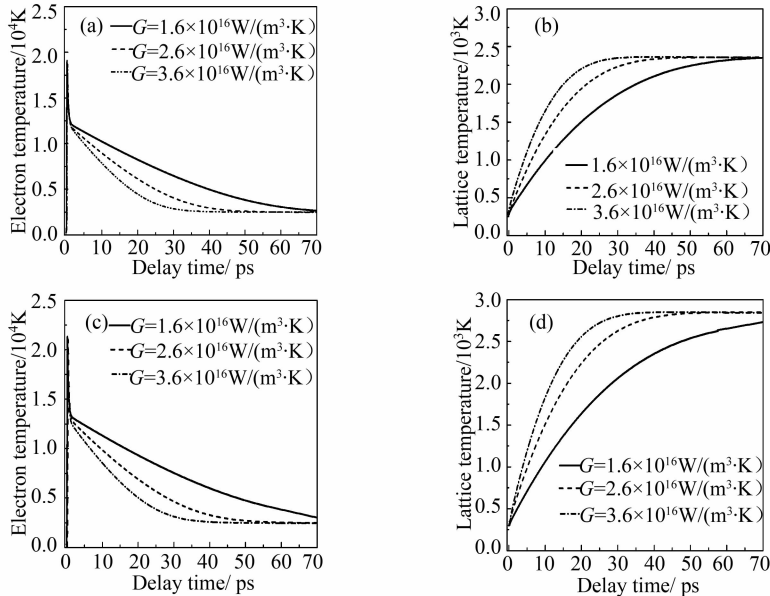


图 4 不同激光能量密度和耦合系数时金膜表层电子温度和晶格温度随时间的变化关系
Fig. 4 Relation of electron and lattice temperature at the surface of a gold film with time at different laser intensities and electron-lattice coupling factors

(a), (b) $J_F = 0.4$ J/cm², (c), (d) $J_F = 0.5$ J/cm²

图 4 给出了在激光脉宽不变时,耦合系数对表层电子、晶格温度的影响。耦合系数直接决定电子-晶格耦合至热平衡的时间,并且耦合时间随着耦合系数的增加而减小。由于电子晶格的耦合时间远远大于脉冲宽度,所以耦合系数对电子温度的峰值以

及达到峰值的时间几乎没有影响。对于金属金来说^[19],耦合系数的范围为 $2 \times 10^{16} \sim 4 \times 10^{16}$ W/(m³ · K)。若 G 取参考值 2.6×10^{16} W/(m³ · K)^[18],金膜的电子-晶格耦合时间大约为 60 ps。当 G 大于参考值时,电子-晶格的耦合时间明显减小;当 G 小于参考值时,电子-晶格的耦合时间显著增加。比较

图 4(a)~(d)可以发现,脉冲能量增加对电子-晶格的耦合时间影响不大,脉冲结束后电子-晶格的热平衡温度有所升高。总之,耦合系数决定了电子-晶格的温升速率及耦合时间;耦合系数越大,电子与晶格

的能量交换速率就越快,导致电子温度的下降速率及晶格温度的上升速率明显增加,电子与晶格的耦合时间也就相应缩短了。

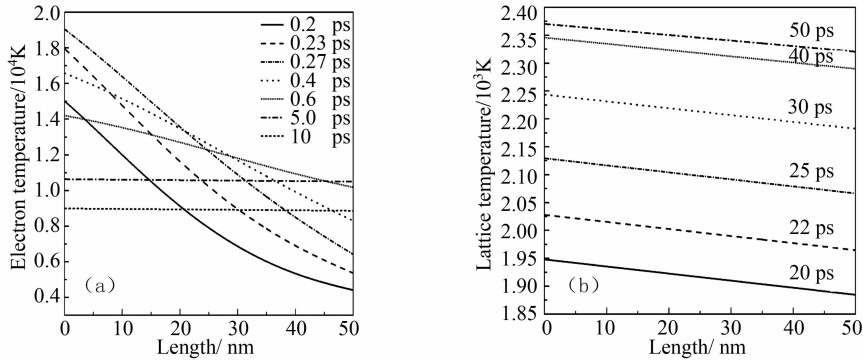


图 5 不同时刻电子温度和晶格温度在薄膜厚度方向的分布规律

Fig. 5 Electron and lattice temperature distribution in the film depth direction at different times

($t_p = 0.1$ ps, $J_F = 0.4$ J/cm²)

图 5 显示了不同时刻电子温度和晶格温度在薄膜厚度方向的分布规律。从图 5(a)可以看出,在电子温度达到峰值之前,电子温度以及电子温度的梯度急剧地增加,然后随着时间的增加以相对较慢的速率下降。比较图 5(a),(b)可以看出,晶格温度的上升速率相对较小并且明显滞后。电子温度的梯度大约在 0.27 ps 达到最大值(-2.54×10^{11} K/m),由于热电子崩力正比于电子温度平方的梯度^[12],所以在激光脉冲辐照早期会形成较大的热电子崩力;随着时间的增加,虽然薄膜前后表面晶格的温度差别不是很大,但由于薄膜较薄,在厚度方向晶格的温度梯度也是相当可观的。可以推断超短脉冲激光烧蚀金属薄膜材料时,热电子崩力是造成材料早期破坏的首要原因,相对较大的晶格温度梯度可能也是脉冲结束后导致晶格热应力损伤的重要因素。

参 考 文 献

4 结 论

运用具有人工粘性和自适应步长的有限差分法求解了非线性的双曲双温两步热传导方程,分析了超短脉冲激光与金膜相互作用时温度场的变化规律。结果发现,薄膜前表面的电子温度在激光脉冲峰值过后达到峰值,具有明显的滞后效应。耦合系数 G 决定整个烧蚀过程中电子-晶格的温升速率及耦合时间。激光的脉冲宽度直接决定材料的烧蚀损伤阈值。激光脉冲能量密度的高低是区分热烧蚀和非热烧蚀的主要依据。

- 1 R. Fork, C. Cruz, P. C. Becker *et al.*. Compression of optical pulses to six femtoseconds by using cubic phase compensation[J]. *Opt. Lett.*, 1987, **12**(7): 483~485
- 2 C. Momma, S. Note, B. N. Chichkov *et al.*. Precise laser ablation with ultrashort pulses[J]. *Appl. Surf. Sci.*, 1997, **109**:15~19
- 3 M. D. Shirk, P. A. Molian. A review of ultrashort pulsed laser ablation of materials[J]. *J. Laser. Appl.*, 1998, **10**(1): 18~28
- 4 C. Momma, B. N. Chichkov, S. Nolte *et al.*. Short pulse ablation of solid targets [J]. *Opt. Commun.*, 1996, **129**:134~142
- 5 A. Vofel, J. Noack, G. Hüttman *et al.*. Mechanisms of femtosecond laser nano-surgery of cells and tissues [J]. *Appl. Phys. B*, 2005, **81**: 1015~1047
- 6 He Fei, Cheng Ya. Femtosecond laser micromachining: frontier in laser precision micromachining[J]. *Chinese J. Lasers*, 2007, **34**(5):595~622
何飞,程亚.飞秒激光加工:激光精密加工领域的新前沿[J].*中国激光*, 2007, **34**(5): 595~622
- 7 P. P. Pronk, S. K. Dutta, J. Squier. Machining of sub-micron holes using a femtosecond laser at 800 nm[J]. *Opt. Commun.*, 1995, **114**:106~110
- 8 Meng Xiangeng, Zhao Chongjun, Qiu Jianrong. Applications of femtosecond laser in preparation of metal nanoparticles and material micro-processing [J]. *Laser&Optoelectronics Progress*, 2004, **41**(4): 48~52
孟宪庚,赵崇军,邱建荣.飞秒激光在金属纳米材料制备和材料微结构加工中的应用[J].*激光与光电子学进展*, 2004, **41**(4): 48~52
- 9 S. I. Anisimov, B. L. Kapaliovich, T. L. Perelman *et al.*. Electron emission from metal surface exposed to ultra-short pulse[J]. *Sov. Phys. JETP*, 1974, **39**(2): 375~378
- 10 D. Y. Tzou, K. S. Chiu. Temperature-dependent thermal lagging in ultrafast laser heating[J]. *Int. J. Heat and Mass Transfer*, 2001, **44**: 1725~1734
- 11 T. Q. Qiu, C. L. Tien. Heat transfer mechanisms during short-pulse laser heating of metals[J]. *J. Heat Transfer*, 1993, **115**:835~841

- 12 D. Y. Tzou, J. K. Chen, J. E. Beraun. Hot-electron blast induced by ultrashort-pulsed lasers in layered media[J]. *Int. J. Heat Mass. Transfer*, 2002, **45**:3369~3382
- 13 J. K. Chen, J. E. Beraun, D. Y. Tzou. Thermomechanical response of metal films heated by ultrashort-pulsed lasers[J]. *J. Thermal Stresses*, 2002, **25**:539~558
- 14 Li Yuhua, Ma Fajun, Dai Nengli *et al.*. Ultra-short pulsed laser-induced damage in inorganic silicon materials[J]. *Chinese J. Lasers*, 2007, **34**(7):1009~1013
李玉华, 马法君, 戴能利等. 超短脉冲激光对无机硅材料的损伤[J]. *中国激光*, 2007, **34**(7):1009~1013
- 15 Ni Xiaochang, Wang Qingyue. Finite difference method for thermal analysis of femtosecond-picosecond pulse laser ablation on metal surface[J]. *Chinese J. Lasers*, 2004, **31**(3):277~280
倪晓昌, 王清月. 飞秒、皮秒激光烧蚀金属表面的有限差分热分析[J]. *中国激光*, 2004, **31**(3):277~280
- 16 Hao Qiulong, Qi Wenzong, Liu Quanxi *et al.*. Simulation study on thermal effect on metal films irradiated by ultra-short pulse laser[J]. *High Power Laser and Particle Beams*, 2006, **18**(6):908~912
郝秋龙, 齐文宗, 刘全喜等. 超短脉冲激光辐照金属薄膜温升效应的模拟研究[J]. *强激光与粒子束*, 2006, **18**(6):908~912
- 17 Lan Jiang, Hai-Lung Tsai. Modeling of ultra-short laser pulse-train processing of metal thin films[J]. *Int. J. Heat and Mass Transfer*, 2007, **50**:3461~3470
- 18 J. K. Chen, J. E. Beraun, C. L. Than. Ultrafast thermoelasticity for short-pulse laser heating [J]. *Int. J. Engineering Science*, 2004, **42**:793~807
- 19 S. S. Wellershoff, J. Hohfeld, J. Gudde *et al.*. The role of electron-phonon coupling in femtosecond laser damage of metals [J]. *Appl. Phys. A*, 1999, **69**:S99~S107
- 20 J. Yang, Y. Zhao, X. Zhu. Transition between non-thermal and thermal ablation of metallic targets under the strike of high-fluence ultra-short laser pulses[J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2006, **88**(9):094101