

激光与光电子学进展

飞秒激光加工机理及仿真研究进展

吴雪峰*, 梅三林

哈尔滨理工大学机械动力工程学院, 黑龙江 哈尔滨 150080

摘要 目前,微加工和精加工技术的迅速发展对微型化加工技术提出了更高的要求:将加工尺度提高到微米甚至纳米级,并且能够在材料内部实现三维立体微加工。飞秒激光可以突破衍射极限的限制,打破了加工极限,是当前先进制造技术的热点。本文综述了飞秒激光加工的发展历程和机理,并从库仑爆炸模型、微爆炸模型、色心模型以及双光子电离模型等方面对激光加工机理进行了阐述。对于飞秒激光的超快作用过程,仿真是分析加工机理、研究激光与材料作用过程的主要手段。分析了飞秒激光仿真所采用的双温模型、分子动力学模型及复合模型的特点及其适用范围,为飞秒激光加工的理论研究提供依据。最后指出了目前飞秒激光加工技术存在的问题,并对该技术的发展进行了展望。

关键词 激光技术; 飞秒激光; 加工机理; 双温模型; 分子动力学模型

中图分类号 TN249

文献标志码 A

doi: 10.3788/LOP202158.1900005

Research Progress in Femtosecond Laser Machining Mechanism and Simulation Analysis

Wu Xuefeng*, Mei Sanlin

*School of Mechanical Power Engineering, Harbin University of Science and Technology,
Harbin, Heilongjiang 150080, China*

Abstract At present, the rapid development of micro-machining and finishing technology has put forward higher requirements for miniaturization processing technology: the processing scale needs to be improved to the micron or even nanometer scale, and three-dimensional micro-machining can be achieved inside the material. Femtosecond laser can break through the limit of diffraction limit and machining limit, and is the hot spot of advanced manufacturing technology. In this paper, the development and mechanism of femtosecond laser machining are reviewed, and the mechanism of laser machining is described from the Coulomb explosion model, microexplosion model, color center model and two-photon ionization model. For femtosecond laser ultrafast action process, simulation is the main means to analyze the machining mechanism and study the laser and material action process. The characteristics and application range of the two-temperature model, molecular dynamics model and composite model used in femtosecond laser simulation are analyzed in order to provide a basis for the theoretical research of femtosecond laser machining. Finally, the existing problems of femtosecond laser machining technology are pointed out, and the development of this technology is prospected.

Key words laser technique; femtosecond laser; machining mechanism; two-temperature model; molecular dynamics model

OCIS codes 140.3390; 220.4610

收稿日期: 2020-10-14; 修回日期: 2020-11-21; 录用日期: 2020-12-27

基金项目: 国家重点研发计划(2018YFB1107600)、“理工英才”计划基础研究项目(LGYC2018JC042)

通信作者: *wuxuefeng@hrbust.edu.cn

1 引言

飞秒激光具有极高的峰值强度和极短的脉冲持续时间,当其物质相互作用时,能够以极快的速度将其全部能量注入到很小的作用区域,瞬间产生高密度能量沉积,使电子的吸收和运动方式发生改变,从而使得飞秒激光加工成为具有超高精度和超高空间分辨率的非热熔加工技术。飞秒激光器自 20 世纪 80 年代问世以来便得到了迅猛发展。飞秒激光脉冲的发展经历了调 Q 技术、啁啾脉冲放大技术和锁模技术三个主要过程。在激光诞生之时,其振荡脉冲宽度为微秒量级,峰值功率也只有几十千瓦,之后人们利用调 Q 技术将脉冲宽度降低到了 10^{-8} ps 量级。调 Q 技术由于受到 Q 开关的限制只能得到毫微秒量级的脉冲^[1]。1965 年,人们基于红宝石激光器利用被动锁模技术得到了皮秒级脉冲宽度的激光,这一脉冲宽度与激光诞生时微秒级的振荡脉冲宽度相比,可谓是一次迅猛的飞跃。激光的脉冲宽度从长脉冲发展到超短脉冲与自锁模技术是密不可分的,它利用增益介质的自聚焦效应和光阑的损耗调制来压缩脉冲宽度。20 世纪 80 年代中期,Fork 课题组^[2]获得了 27 fs 的短脉冲,后来他们经过不断研究和改进得到了短至 6 fs 的飞秒脉冲。到了 90 年代初期,研究人员采用碰撞脉冲锁模、被动锁模、线性外腔锁模等锁模形式实现了飞秒量级输出的脉冲激光器。麻省理工学院(MIT)的 Haus 等^[3]提出了克尔透镜锁模(KLM)理论,向人们展示了掺钛蓝宝石激光器中的自锁模机制。正是由于克尔透镜锁模机制的发现,钛宝石飞秒激光器的脉冲宽度在短时间内迅速减到 3.4 fs。目前,飞秒激光器可以产生带宽小于 3 fs 的激光脉冲^[4]。1991 年,Spence 等^[5]研发出了锁模钛宝石激光器,自此,钛宝石飞秒激光器取代了染料激光器,使飞秒激光逐渐进入加工领域。

由于飞秒激光器产生的能量较低(通常为焦耳量级),因此在飞秒激光脉冲输入放大器之前,先利用光纤、光栅等展宽器将其脉冲在时域上展宽,以降低峰值功率和能量密度,然后再用放大器将产生的啁啾脉冲进行放大,最后用压缩器(如光栅或棱镜)将较高能量的啁啾脉冲的脉冲宽度压缩至飞秒量级^[6]。密歇根州立大学的 Strickland 和 Mourou^[7]提出了啁啾脉冲放大(CPA)技术,即:先采用脉冲展宽器将能量较低的超短激光脉冲进行放大展宽,

之后再利用脉冲压缩器对激光进行压缩。这种方法既有效避免了直接放大飞秒激光对光学元件造成的破坏,又充分利用了晶体中的翻转粒子来抽取能量,有效提高了整个放大系统的效率。借助啁啾技术放大后的激光能量可以从纳焦耳量级放大到毫焦耳甚至焦耳量级^[8],峰值功率可以达到 10^{12} W 甚至 10^{15} W^[9],经过聚焦后的能量密度可以达到 10^{18} W/cm² 甚至 10^{21} W/cm²^[10-11]。

飞秒激光高功率短作用时间在物体表面,瞬间产生的高能量可以改变电子的吸收和运动方式,与纳秒、毫秒等常规激光通过升高工件局部温度使材料熔化、气化的机理有很大区别。然而,在如此短的时间内无法采用监测的手段探索加工机理,因此人们通常将试验结果分析与仿真结合起来获得加工机理,进而解释加工过程中的现象。鉴于此,本文从加工机理与仿真分析两方面对飞秒激光与材料作用的研究成果进行综述,分析飞秒激光与材料相互作用的机理,综述其在仿真方面的常用模型;此外,本文还阐述了库仑爆炸、微爆炸、色心模型及双光子电离等模型,用以描述飞秒激光与材料作用的加工机理,并从特点及适用范围两方面对仿真所采用的双温模型、分子动力学模型及复合模型进行了论述。

2 加工机理

在长脉冲激光与材料作用过程中,热动力学占据主导作用,其中的热扩散对加工的影响较为显著。热扩散导致加工区域的激光能量不断地向周围扩散,因此,加工区域的温度无法高于材料的熔点、沸点,导致材料只能以熔化或气化的方式进行去除。当熔融物落到加工区域周围时,就会在短时间内牢牢地附着在工件表面,且其冷却后的硬度要高于材料的硬度,去除较为困难,且会对材料表面造成污染。飞秒激光以极高的峰值功率在极短的时间内可以将所有的激光能量注入极小的加工区域,实现对材料的非热熔性加工,进而有效地避免了重铸层、热影响区和熔渣对加工区域的不利影响^[12-13]。长脉冲激光加工和短脉冲激光加工的区别如图 1 所示^[14]。

飞秒激光技术作为一种非接触式加工方法,具有较高的峰值功率、极短的作用时间以及非线性加工等特点,在瞬间产生的高能量可以改变电子的吸收方式和运动方式,进而从根本上改变激光与材料

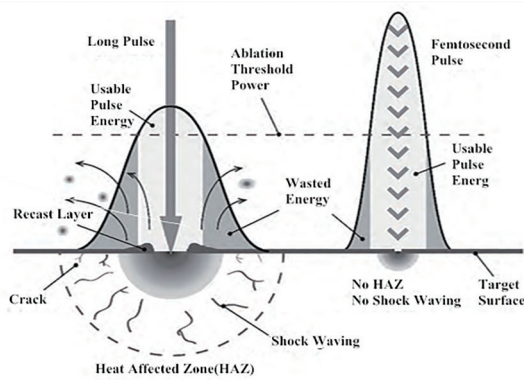


图 1 长脉冲激光加工和短脉冲激光加工的区别^[14]

Fig. 1 Difference between long pulse laser processing and short pulse laser processing^[14]

作用的机理,实现高质量、高精度、高效率的微纳加工,成为目前具有较大潜力的一种表面微纳结构加工技术^[15-16]。在飞秒激光微加工过程中,为了对材料造成烧蚀,激光的能流密度必须超过某一特定的值。这一临界能流密度就是激光的烧蚀阈值^[17-24]。研究发现:随着表面粗糙度增加,材料对激光能量的吸收率增大,且对于单脉冲而言,随着表面粗糙度增加,烧蚀阈值也会变大;吸收速率对残余热的影响大于对材料烧蚀的影响^[25]。飞秒激光技术通过自锁模技术将脉冲宽度压缩到飞秒量级来实现材料的加工,可以突破光学微加工方法中衍射极限^[26]带来的加工精度的限制,将加工精度延伸到亚微米甚至纳米量级。Pronko等^[27]采用飞秒激光与纳秒激光分别加工出了直径为 300 nm 的孔,由于飞秒激光热扩散的影响小于纳秒激光,因此,采用飞秒激光加工的孔径仅为光斑焦点直径的 10%,而使用纳秒激光加工的最小直径大约是光斑尺寸的 60%。

飞秒激光具有很高的峰值功率和功率密度,与各种材料相互作用时往往会诱发多光子电离、自聚焦、雪崩电离等各种非线性现象。飞秒激光与各种材料的作用机理各不相同,且目前尚处于探索阶段,

但根据现有的试验现象与结果,人们针对不同的材料提出了不同的解释模型。模型主要有以下几种:

1) 库仑爆炸模型。超短脉冲与介质作用时峰值功率极大,导致激光作用区表层电子逃逸,离子保持相对较低的温度,并产生极高的净电荷密度和静电场。如果材料的静电力大于晶格间作用力,化学键就会断裂,并造成晶格的破坏,这一作用机制称为库仑爆炸^[28]。库仑爆炸模型最初提出时针对的是表面损伤。2000年,德国的 Henyk 等^[29]通过飞秒激光烧蚀蓝宝石,分析了放射出的阳离子强度与激光能流、激光脉冲数目的依赖关系,以及离子的动能分布;分析结果表明,基本的烧蚀过程是由库仑爆炸引起的。此外, Henyk 等^[30]还对飞秒激光爆炸烧蚀 NaCl 及 BaF₂ 等宽带隙晶体材料进行了研究,研究结果同样证实了库仑爆炸的合理性。

库仑爆炸模型可以解释飞秒激光加工金属材料产生的现象。Tao 等^[31]基于物理模型发现,在飞秒激光与金属相互作用过程中,激光所激发的电子会在材料加工区域产生一个向外指向的电场,而且该电场可以超过库仑爆炸阈值。这一发现对金属在飞秒激光辐照下产生的库仑爆炸现象给出了一种定向性的解释。在此基础上, Li 等^[32]将库仑爆炸引入到飞秒激光烧蚀金属过程中,研究了热烧蚀和库仑爆炸对烧蚀深度的影响;研究结果表明:当激光能量较低时,库仑爆炸烧蚀与试验结果吻合得较好;当激光能量较高时,热烧蚀可以更好地解释飞秒激光辐照金属的烧蚀机理。2018年, Zheng 等^[33]采用脉冲宽度为 10 ps 的皮秒激光进行了模拟仿真,仿真结果证实了在皮秒激光脉冲下不仅存在已知的库仑爆炸,还伴随着热效应的产生。由图 2 可以看出,当激光频率从 50 kHz 增大到 350 kHz 时,槽的宽度从 11.8 μm 增加到 54.7 μm。槽的宽度主要取决于热效应的影响。在烧蚀过程中,材料对热效应的要求较低,需要不断吸收热量才能达到熔、沸点。而

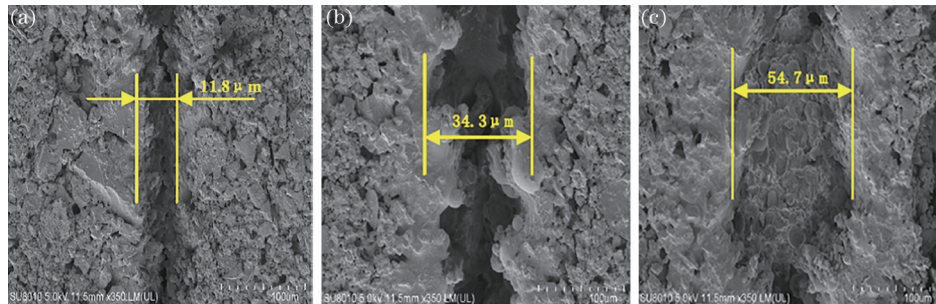


图 2 不同激光频率下槽的宽度^[33]。(a) 50 kHz; (b) 150 kHz; (c) 350 kHz

Fig. 2 Width of the slot obtained at different laser frequency values^[33]. (a) 50 kHz; (b) 150 kHz; (c) 350 kHz

且,热效应具有传导作用,使激光能量不断地向周围扩散,从而较快地实现材料的去除。

2) 微爆破模型。导带电子理论认为激光聚焦光斑中心内导带电子的数密度和平均动能极高,并会在瞬间向周围扩散。当激光脉冲作用停止后,净电荷密度增大,离子间巨大的排斥力将会导致微爆破^[34]。Falkovsky 和 Mishchenko^[35]在基于非平衡电子配分函数的玻尔兹曼方程的基础上提出了热电子爆炸模型,用以描述金属在超短脉冲作用下的瞬态非平衡现象。Glezer 小组^[36]采用脉冲宽度为 100 fs 的飞秒激光脉冲在熔融石英、蓝宝石等透明材料内部进行微爆破研究,结果发现材料内部在微爆破过程中形成了一个直径为 200~250 nm 的型腔;他们认为该型腔的形成是由激光自聚焦现象引起的。

3) 色心模型。该模型主要用于解释激光诱导光学玻璃折射率的改变。飞秒激光与材料相互作用过程中的非线性效应导致了色心的形成,从而使加工区域发生光学着色。由于在色心形成过程中,飞秒激光的加工能量低于材料的烧蚀阈值,因此不会引起材料的永久性损伤。这种光学着色通常在热处理之后便可恢复原状。早在 1990 年,Hand 等^[37]就发现掺 Nd 的玻璃在紫外光辐照下会产生新的色心。最近的研究发现,近红外飞秒激光照射掺杂的透明介质时也能产生色心^[38-39]。Hand 等^[37]根据 K-K (Kramers-Kronig) 因果关系,在假定光敏效应产生于缺陷处局域电子激发的前提下,提出了色心模型。Bryukvina 等^[40]使用飞秒激光脉冲对氟化钠晶体进行改性,首次在氟化钠晶体中发现了聚集色心和光散纳米颗粒的形成,这一发现揭示了外部聚焦对色心形成的影响;此外,他们还对所观察到的现象作出了合理的解释。图 3(a)所示为聚集色心,图中的黑色区域为聚集的大量色心。可见,色心非常密集地聚集在晶体表面。色心的形成主要是由初始缺陷造成的。图 3(b)为单个飞秒脉冲辐照下,氟化钠光谱中观察到的光散纳米颗粒。人们针对色心的形成对晶体能量透射率的影响进行了研究,如:Marcinkevičiūtė 等^[41]对中红外飞秒激光在 NaCl 和 KBr 晶体中产生的超连续谱现象进行了研究,结果发现,中红外飞秒激光在晶体中能快速地形成永久色心,并且色心的形成可以使晶体能量透射率显著降低;此外,他们还在将色心视为杂质的前提下运用唯象模型模拟了色心对 SC(supercontinuum)光谱的影响。

4) 双光子电离模型。当光子密度较高时,在飞

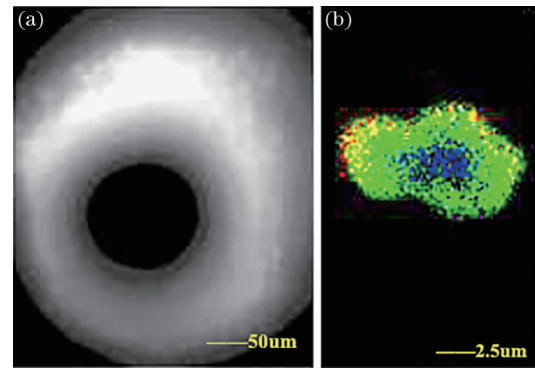


图 3 在氟化钠晶体中发现的聚集色心和光散纳米颗粒^[40]。

(a) 聚集色心; (b) 光散纳米颗粒

Fig. 3 Aggregate color center and astigmatic nanoparticles found in sodium fluoride crystal^[40]. (a) Aggregate color center; (b) astigmatic nanoparticles

秒激光辐照下,基态电子可以同时吸收两个光子跃迁至激发态,然后又以光子的形式释放能量弛豫到基态,这一过程被称为双光子激发过程^[42]。在双光子电离过程中,材料吸收双光子的效率与激光强度的平方成正比,为非线性吸收。材料发生双光子激发过程的区域与激光能量密度有关,因此,可以通过控制激光强度的大小,使双光子聚合区域突破光学衍射极限的限制,实现飞秒激光在纳米尺度上的加工。基于双光子或多光子聚合原理,运用增材或减材的方式制备微纳结构是飞秒激光微纳加工针对光敏聚合物的一种先进的加工手段。

Yuan 等^[43]利用飞秒激光直写技术在熔融石英中制作了多层二维衍射体光栅,并在光刻胶中写入了具有相位调制功能的三维光子晶体模板。此外,崔云等^[44]采用波长为 1040 nm、脉冲宽度为 388 fs、重复频率为 100 kHz 的飞秒激光在石英玻璃表面刻蚀微槽,研究了激光单脉冲能量、扫描速度和扫描次数对石英玻璃微槽深宽比的影响;研究发现,单脉冲能量是影响微槽深宽比的主要因素,扫描速度与扫描次数通过影响激光脉冲在石英玻璃加工区域的重叠与积累来改变样品加工区域对激光脉冲能量的吸收,进而影响微槽的深宽比。Wu 等^[45-46]利用光子聚合原理通过飞秒激光增材和减材的混合微加工方法将三维聚合物微纳结构集成到三维玻璃微流体中,制成了新型的微芯片,如图 4 所示。Chen 等^[47]通过改进的飞秒激光湿刻技术结合金属微固化技术,在石英玻璃内部加工出植于芯片之上的三维金属结构。飞秒激光双光子聚合加工技术在某些特殊功能的微结构加工中也得到了成功应

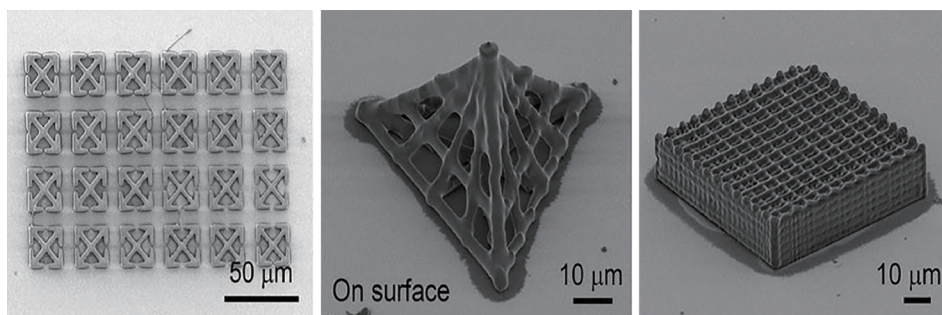


图 4 微芯片中的三维微结构及功能元件^[45]

Fig. 4 Three dimensional microstructure and functional components in microchip^[45]

用,例如:Wu等^[48]利用锁模染料激光器在光刻胶层上进行三维扫描微加工,首次将飞秒激光双光子加工技术应用于微细加工领域;Kawata等^[49]利用飞秒激光双光子微加工技术制作出长10 μm、高7 μm的纳米公牛模型,如图5(a)所示,该模型成为激光三

维微加工的标志性符号;周明等^[50]利用飞秒激光双光子聚合加工技术加工出了齿宽为5 μm、加工精度为0.7 μm的微齿轮结构,如图5(b)所示。

综上所述,目前解释飞秒激光加工现象所使用的理论及其应用范围如表1所示。

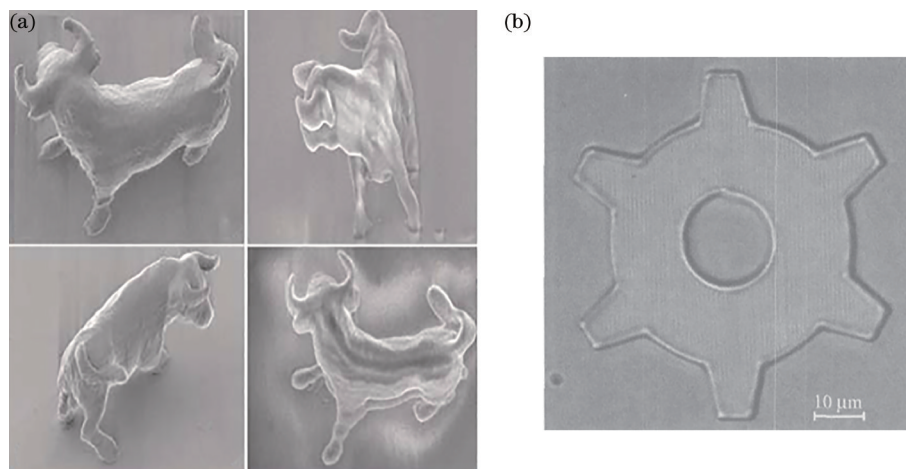


图 5 利用双光子微加工技术加工出的微型结构。(a)纳米牛^[49];(b)微型齿轮^[50]

Fig. 5 Microstructures fabricated by two-photon micromachining technology. (a) Nano cattle^[49]; (b) micro gear^[50]

表 1 飞秒激光加工机理及其应用范围

Table 1 Mechanism and application range of femtosecond laser processing

Processing mechanism	Characteristic	Brief introduction of mechanism	Application range /material
Coulomb explosion	The Coulomb explosion of molecular ions in solid membrane can be used to study the interaction between fast molecular ions, atomic ions, and solid	The high power density of femtosecond laser can cause electrons escaping from the surface layer of the processing area, while the ions keep relatively low temperature and produce extremely high net charge density and electrostatic field. When the electrostatic force in the material is greater than the inter lattice force, the chemical bond will break and cause lattice damage. This mechanism is called Coulomb explosion	It is suitable for the interaction between ultrashort pulse and medium, which is not observed in semiconductors

表1 (续)

Processing mechanism	Characteristic	Brief introduction of mechanism	Application range / material
Micro blasting model	The results show that the micro explosion process takes place in a constant volume, the thermal diffusion of metal is significantly reduced, and no molten material is produced, which provides conditions for precision micro machining	The electron number density and average kinetic energy of the conduction band in the center of the laser focusing spot are very high, and they will diffuse to the surrounding in an instant. When the laser pulse is stopped, the net charge density is large, and the huge repulsion force between ions will lead to micro explosion	It is used to describe ultrafast deformation in metals and micromachining inside transparent materials
Color center model	In the process of color center formation, the processing energy of femtosecond laser is lower than the ablation threshold of material, so it will not cause permanent damage to the material. This kind of optical coloring will return to its original state after heat treatment	The nonlinear effect in the interaction between femtosecond laser and material causes the formation of color center, which results in the optical coloring of the processing area	It is mainly suitable for glass and other transparent nonmetallic materials
Two-photon ionization	The laser intensity must be larger than the ablation threshold of the material, and the multiphoton ionization rate is proportional to the K power of the laser intensity. The free electrons produced by two-photon ionization can provide seed electrons for avalanche ionization	Under the irradiation of femtosecond laser, when the photon density is high, the ground state electron can absorb two photons at the same time, and then release energy in the form of photons. The process of relaxation to the ground state is called two-photon excitation process	It is suitable for femtosecond laser pulse processing, optical storage, and photonic crystal preparation in transparent materials, such as quartz, glass, optical fiber, and so on

超短激光脉冲与物质相互作用时所发生的各种现象与材料的性质、激光脉冲宽度和强度等因素有着密切的关系^[51]。以上仅阐释了超短激光脉冲与物质相互作用时的光和热效应,在实际加工过程中还会伴随着冲击波造成的力学应变作用^[52-53]。

3 飞秒激光仿真模型

飞秒激光与材料相互作用的基本研究方法包括理论研究、模拟仿真和试验测定。试验测定是前两者的检验与论证,但试验条件与成本均要求较高;模拟仿真可以根据设定的试验条件与环境在虚拟空间内进行,获得的相关数据可为试验研究提供理论依据,而且其成本较低,操作简单,实用性强,能较准确地处理复杂的问题,对于提高加工效率与加工质量、全面系统优化加工工艺具有重要意义。飞秒激光与材料相互作用时,由于时间极短,现有的方法无法进行直接检测,而模拟手段有助于理解加工机理,了解加工过程。

3.1 双温模型

由于飞秒激光的脉冲宽度为飞秒量级,在飞秒激光与物质作用的一个脉冲宽度时间内,电子温度与晶格温度并未达到平衡,因此,传统的傅里叶热传导定律不再适用于描述飞秒激光与材料的作用过程。Chichkov 等^[54]用脉冲激光对金属材料进行烧蚀研究,在不同的激光脉冲宽度下对一维双温模型进行约化,并求得解析解。双温模型以玻尔兹曼输运方程为基础,并考虑了光子与电子以及电子与晶格两种不同的相互作用过程。双温模型能较好地描述超短脉冲激光与金属相互作用过程中电子系统与晶格系统温度的演变过程,因而成为此类研究选用的主要模型。通常情况下,双温模型被直接用于飞秒激光辐照下金属电子-晶格温度演变的分析。

飞秒激光的光源呈高斯型分布,在加工区域沿光轴径向的温度梯度变化较大,而沿光斑轴向的温度梯度变化几乎可以忽略,因此简化的一维双温模型可以反映飞秒激光与材料作用过程中的温度变

化。一维双温模型的具体表达式为

$$C_e \frac{\partial T_e}{\partial t} = -\frac{\partial}{\partial x} \left(k_e \frac{\partial T_e}{\partial x} \right) - g(T_e - T_l) + s(x, t), \quad (1)$$

$$C_l \frac{\partial T_l}{\partial t} = g(T_e - T_l), s(x, t) = I(t)(1-R)\alpha \exp(-\alpha x), \quad (2)$$

式中： $s(x, t)$ 为能量热源项； C_e 为电子热容， $C_e = \gamma T_e$ ； C_l 为晶格热容； T_e 、 T_l 分别为电子温度与晶格温度； k_e 为电子热导率， $k_e = \frac{1}{3} v_F^2 \tau_e c_e$ ， v_F 为费米速率， τ_e 为电子-电子散射时间； g 为电子-晶格耦合系数； R 为反射率； α 为吸收系数； $I(t)$ 为激光强度。对双温模型按空间域和时域进行网格划分，并通过有限差分法进行求解，利用隐式迭代法对(1)式和(2)式进行解析。

通过研究飞秒激光在不同脉冲宽度下对金属材料的烧蚀行为，可以得到与脉冲宽度相关的烧蚀特性。Nolte 等^[55]研究了脉冲宽度为 150 fs~30 ps、激光功率为 0.1~10 J/cm² 的钛宝石激光脉冲对金属材料的烧蚀特征，结果发现，当激光脉冲宽度远远小于晶格的受热时间时，烧蚀时间不依赖于激光脉冲宽度；他们在试验中得到的金属铜的烧蚀速率与双温模型的仿真结果基本一致。在飞秒激光脉冲作用下，金属的热扩散作用显著减轻，并且无熔融材料产生，为精密微加工的实现提供了一条路径。图 6 所示为脉冲宽度为 120 fs 的激光在铜上加工的孔的扫描电镜照片。Zhu^[56]通过研究脉冲宽度对金属表面的影响，得到了烧蚀喷射颗粒的分布与脉冲宽度的相关性，并解释了双温模型中临界脉冲宽度的概念。

此外，研究人员还采用对双温模型进行优化或者与其他理论模型相结合的方法对飞秒激光与金

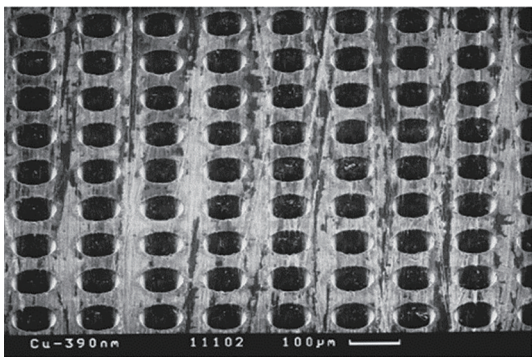


图 6 脉冲宽度为 120 fs 的激光在铜上加工的孔的扫描电镜照片^[55]

Fig. 6 SEM photos of holes drilled in copper by laser with pulse width of 120 fs^[55]

属的作用过程进行仿真。Jiang 等^[57]将改进的双温模型应用于超短激光与金属相互作用的研究中，并对材料的光、热等物理参数进行了量子化修正，获得了与试验结果相符的仿真结果。Fang 等^[58]以金属金为研究对象，采用改进的双温模型研究了飞秒激光辐照下金的电子-声子耦合因子和基态电子的电子热容对电子温度的依赖性，并进行了试验验证，结果发现：当电子温度高于 104 K 时，由于电子的态密度效应，电子的热物理参数变化较为明显，电子热容偏差较大，电子-声子弛豫时间较短；模拟方法得到的结果与试验结果相符。比较几位学者的研究可以发现：由于电子-光子的耦合时间较短，材料的反射率和吸收系数会发生明显变化，进而使激光能量沉积过程发生改变；随着激光能量密度和激光脉冲持续时间的增加，材料快速升温将导致其自身反射率和吸收系数发生显著变化，据此可以预测得到更小的电子温度和晶格温度的变化^[59]。针对飞秒激光脉冲与金属薄膜相互作用过程中，脉冲间隔与能量密度对烧蚀速率的影响，研究人员也进行了大量工作。如：Ren 等^[60]综合运用双温方程和液相爆炸模型对飞秒激光烧蚀金属薄膜进行了分析，结果发现在能量密度相同的情况下，激光的脉冲间隔为 50 ps 或者更长时间可以显著提高烧蚀速率。陈亮等^[61]以双温模型为理论基础，研究了金膜在近激光损伤阈值的飞秒激光辐照下的物相结构和表面形貌，结果发现：近损伤阈值的激光可使辐照区金膜中的晶粒较大（会导致表面粗糙度增大），并可使组织由单一取向变为多晶结构。梁建国等^[62]针对脉冲宽度为 150 fs、波长为 800 nm、重复频率为 1 kHz、最大单脉冲能量为 1 mJ 的超短激光脉冲烧蚀铜材料的过程进行了数值模拟，并基于超短激光脉冲烧蚀过程中电子与晶格的温度不平衡性计算得到了单脉冲烧蚀深度；他们发现，随着激光能量的增加，相变爆炸引起的等离子体向外喷射深度越深，同时材料的烧蚀深度越大，理论计算与试验结果相吻合。

此外，飞秒激光还可以用于研究金属表面的改性问题。Kotsedi 等^[63]采用双温模型研究了飞秒激光作用下钨薄膜中热电子和晶格的热演化过程，他们用模拟得到的样品温度来解释飞秒激光处理过程中氧化钨的形成，并利用扫描电子显微镜对氧化膜的形貌和拓扑结构进行了研究。图 7 为采用扫描电子显微镜(SEM)观察到的钨薄膜表面的氧化钨纳米棒。Saghebfar 等^[64]利用双温模型，在考虑热边

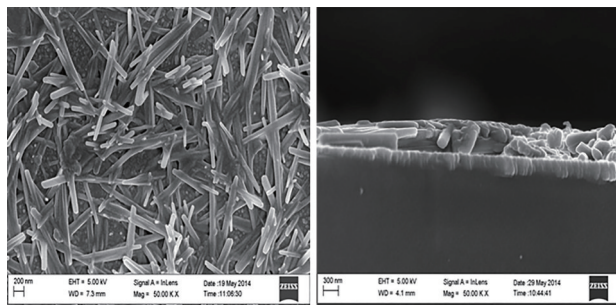


图 7 采用扫描电子显微镜(SEM)观察到的钼薄膜表面的氧化钼纳米棒^[63]

Fig. 7 Molybdenum oxide nanorods were observed on the surface of molybdenum films by scanning electron microscopy (SEM)^[63]

界电阻对界面过热的影响下,采用脉冲宽度为 30 fs、波长为 800 nm 和功率密度为 0.2 J/cm^2 的超短脉冲激光辐照金/铬薄膜,研究了其非平衡能量转移过程;他们在模型模拟中考虑了热电子弹道运动,忽略了热电子弹道运动影响下的反射率和吸收系数随温度的变化。同时,他们通过引入界面的热边界电阻,研究了飞秒激光脉冲辐照金/铬双层薄膜的热响应,比较了理想界面的电子和晶格温度分布以及铬侧的晶格过热;结果发现,在电阻存在的情况下,铬侧晶格在界面处的过热现象低于界面电阻为零的情况。人们不仅研究了飞秒激光除对金属的作用,还研究了其对复合材料的作用。2014 年, Giordano 等^[65]利用双温热传导模型描述了复合材料的均匀化问题,证明了均匀和复合温度球的两个等价定理,并详细讨论了两个温度分量组成的非均匀体系的尺度效应;此外,他们还基于粒子的分散效应,研究了以混合和不完全输出现象为特征的界面对模拟颗粒-基质接触界面的影响,这有助于材料的设计与改进,同时为研究材料组分的热行为提供了参考数据。

通常采用有限差分法(FDM)求解双温模型。有限差分法是数值计算模拟中常用的一种方法。利用有限差分法进行求解时必须将方程离散化,即:将偏微分方程转化为差分方程。梁建国等^[62]对双温模型进行了简化,并通过有限差分法模拟了飞秒激光烧蚀铜材料的过程;结果表明,飞秒激光的持续作用时间很短,只有十几皮秒。胡德志^[66]通过时域有限差分法,基于经典的双温方程,获得了电子和离子温度与时间、位置的关系,并由此估算出了电子-声子耦合的时间值;同时,他还研究了耦合时间与激光脉冲宽度、能量密度的关系。

值得注意的是,双温模型还存在一些难以避免

的固有局限性,例如,用连续模型很难描述超短脉冲激光与金属相互作用过程中的不平衡相变过程。另外,由于超短脉冲激光与金属相互作用过程中的一些物理现象并没有得到很好的解释,因此在双温模型中引入一系列动力约束方程的做法也并不令人信服;而且在强过热状态下描述金属熔化和沸腾的基本动力学和微观机理还存在着争议^[67-69],特别是经典成核理论的宏观动力学方法应用在强过热状态下还存在一些问题^[70]。此外,双温模型适用于描述超短脉冲在金属材料上的相互作用,而对于非金属材料,此模型涉及的内容相对较少。上述问题都反映了双温模型模拟超短脉冲激光与材料相互作用的局限性。尽管双温模型有其物理局限性,但它成功地解释了超短激光脉冲与多种金属材料相互作用的机理,并得到了大量试验的证实^[71-73]。

3.2 分子动力学模型

分子动力学模型适用于快速非平衡过程的模拟,可以对超短脉冲激光与金属相互作用的微观过程进行描述。这种模型的显著优点在于只需要给出原子间相互作用的模型假设,不需要其他任何前提假设。同时,利用双温模型不能解释的微观机理,可以用分子动力学模型进行分析。近年来,分子动力学模型已成为研究超短脉冲激光与材料作用过程的重要工具之一。

原子间的势函数是对原子间相互作用的描述,可以反映经典体系中原子势能对周围匹配原子的依赖性。原子之间的相互作用势通常采用对势或多体势进行描述。对于飞秒激光加工来说,一般采用对势中的 Morse 势进行描述。Atanasov 等^[74]针对脉冲宽度为 300 fs、波长为 527 nm 和功率密度为 0.12 J/cm^2 的飞秒激光蚀除单晶镍的过程进行了分子动力学模拟;他们采用传统的 Morse 势函数与库仑势函数相结合的方法计算离子-离子、电子-电子之间的作用力(考虑了离子对蚀除过程的贡献),分析了蚀除的主要机制以及蚀除等离子体中离子的速度分布。Nedialkov 等^[75]利用分子动力学模拟了金属的超短激光烧蚀过程(采用计算量相对较小的 Morse 势能),研究了金属镍、铁、铝等材料在不同脉冲宽度(0.1、0.5、5 ps)、波长(248、800 nm)、能量密度(0.2 、 0.5 J/cm^2)下的烧蚀机制,解释了超短脉冲激光烧蚀金属的物理过程。此后,他们还分别对镍和铝材料进行了理论与试验研究^[76],结果显示,数值模拟与试验结果吻合较好。

Daw 和 Baskes^[77] 在 1984 年首次提出了嵌入原子法。该方法将原子的总势能分成两部分,其中一部分是位于晶体点阵上的原子核之间的相互作用对势,另一部分是原子核镶在电子云中的嵌入能,代表多体势之间的相互作用。Hakkinen 和 Landman^[78] 采用包含电子-晶格能量耦合项的嵌入势对激光辐射下铜表面的过热、熔化及退火现象进行了分子动力学模拟。Zhang 等^[79] 采用嵌入原子式的分子动力学模拟方法研究了铜纳米材料在 200~1600 K 加热过程中的熔融行为,结果表明:铜纳米棒加热后在临界温度下表现出了热不稳定性,并经历了结构和状态上的转变。此外,他们发现具有空间缺陷的纳米棒加热后也经历了同样的结构转变。他们的该项研究有

助于人们对铜纳米棒热力学演化的理解。

共邻分析法(CNA)是原子模拟中最常用的一种结构识别方法,它以共邻域的化学种类为附加判断依据,利用高维特征通过连接邻近原子键的拓扑结构来识别选定的一对邻近原子的三维局部特征序列^[80-84]。图 8 为采用共邻分析法获得的直径为 3.62 nm 的铜纳米棒在不同温度下的原子排列,以及其在加热过程中面心立方(FCC)原子、紧密堆积(HCP)原子、表面原子和其他原子的占比与温度的关系。可以清楚地看到:随着温度升高,FCC 原子逐渐减少,并在 1200 K 左右时趋于零;当温度低于 800 K 时,HCP 原子的占比几乎为零,而 FCC 原子的占比由于非晶态层的生长而增加,导致其他原子随之降低。

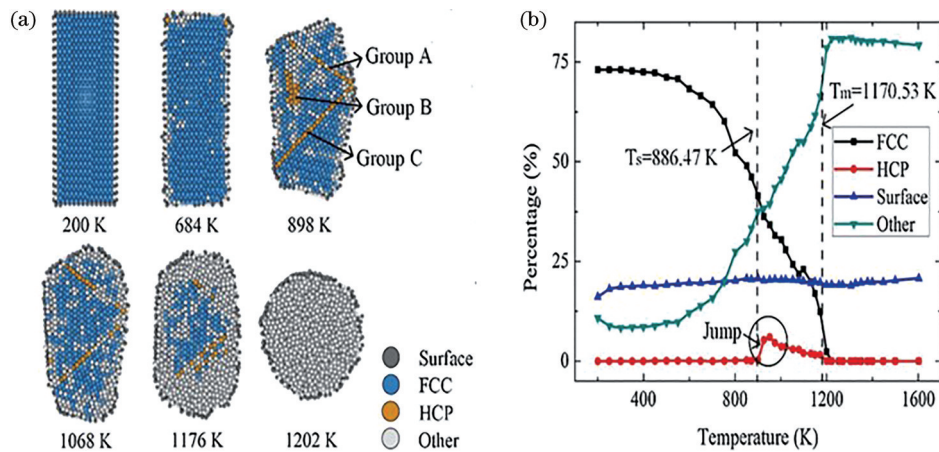


图 8 FCC 原子、HCP 原子、表面原子和其他原子的排列图以及原子占比与温度之间的关系^[79]。(a)原子排列图;(b)原子占比与温度之间的关系

Fig. 8 Arrangement diagram of FCC atoms, HCP atoms, surface atoms, and other atoms as well as relation between atom percentage and temperature^[79]. (a) Atoms arrangement; (b) relation between atom percentage and temperature

Xiong 等^[85] 利用分子动力学模拟方法研究了飞秒激光脉冲诱导铜单晶薄膜的非热纳米化,揭示了铜纳米晶化的内在机理,并利用改进的 Born 稳定性判据和局部最小能量判据对应力结果进行了分析。在此基础上,他们通过分析固定位错与移动位错的相互作用研究了可移动位错的形核、增殖和反应。图 9 清楚地显示了与位错相对应的相变演化。在体心立方(BCC)相区内无位错发生,而 HCP 相出现的区域与位错形成区一致,说明 BCC 相是正应变引起的,而滑移(即剪切应变)会导致 HCP 相出现。另外,在 BCC 和 FCC 相界面处形成的位错会导致界面两侧的压缩变形存在显著差异。

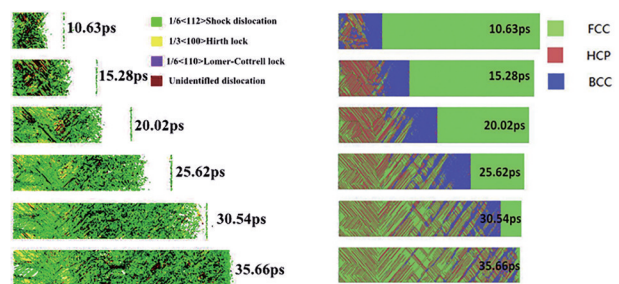


图 9 不同激光脉冲下单晶铜内铬原子结构的演变过程^[85]
Fig. 9 Evolution of chromium atom structure in single crystal copper under different laser pulses^[85]

研究人员还利用分子动力学模型模拟了飞秒激光辐照下金属腐蚀过程中出现的微观现象。Ohmura 等^[86] 采用一种考虑了自由电子热传导的校

正分子动力学方法对激光蚀除铝的熔化和蒸发过程进行了再现,深入研究了激光脉冲与金属铝作用过程中的蚀除现象及温度特征,同时模拟了激光蚀除 FCC 金属过程中的热冲击现象,分析了蚀除过程中熔池及再沉积现象的成因。Karim 等^[87] 采用分子

动力学方法和电子-声子耦合的混合计算模型模拟了飞秒激光熔化、散裂和烧蚀铬靶的机理,并对金属铬进行了仿真,仿真结果揭示了飞秒激光辐照金属铬表面时所发生的材料熔化与再结晶、相变、爆炸破碎及喷射等一系列微观变化。辛建婷等^[88]对飞秒激光辐照铝材料过程进行了分子动力学模拟,分析了材料表面发生熔化、飞溅后冷凝形成的一层很薄的多孔介质的物理图像,以及该过程中产生的应力波传播过程。

分子动力学模型除了可以对金属材料进行研究外,也可以对非金属固体材料进行研究。Feng 等^[89]采用分子动力学模型模拟了高功率紫外激光照射含有铁和铈杂质的熔融石英的过程,结果表明:纯石英与掺杂杂质的熔融石英在键长和键角分布上存在明显差异;经激光辐照后,掺杂杂质的熔融石英的介电光谱中出现了新的吸收峰。这说明含杂质的熔融石英比纯石英对激光能量的吸收更为显著,金属掺杂会降低石英的抗熔融能力。Meng 等^[90]应用分子动力学方法在纳米尺度上研究了飞秒激光辅助加工过程中 SiC 改性层的可加工性和去除机理,结果表明:改性层中的微纳结构对材料去除过程有明显影响,飞秒激光扫描改性能有效改善 SiC 的可加工性能和表面去除效率;模拟获得的瞬时结构因子及径向分布函数进一步加深了人们对表面过热和熔化现象的认识。退火现象的发现促进了表面加工技术的发展进程。

3.3 复合模型

3.3.1 双温模型-分子动力学

经典的分子动力学方法仅考虑晶格间的相互作用而忽略了电子系统的影响,因此并不能直接反映激光与金属材料作用过程中导带电子对激光能量的吸收过程和电子-声子的能量耦合过程。针对这一问题,研究人员通常将分子动力学方法与双温模型结合,用双温模型描述激光能量在电子系统中的沉积、电子与声子的能量交换以及快速的电子热

传导,用分子动力学方法描述晶格过热、熔化和烧蚀等非平衡过程。

Hakkinen 和 Landman^[78]提出了一种双温模型与经典分子动力学相结合的方法,并采用该方法研究了铜材料在超短激光作用下的过热、熔化和退火过程;同时,他们从原子量级的角度模拟了超短激光脉冲与金属材料相互作用的现象与机理,揭示了超短激光作用下金属原子热动力学变化的机理。2015 年, Povarnitsyn 等^[91]利用基于双温方程的流体动力学方法和分子动力学方法模拟了铝靶在飞秒激光(脉冲宽度为 20、40、80 ps, 波长为 800 nm, 能量密度为 0.1~20 J/cm²)下的烧蚀过程,结果发现,从相爆炸和散裂动力学角度分析,这两种方法具有良好的一致性,而且分子动力学模型精确地再现了非平衡相变,并考虑了纳米尺度上的表面效应。王新林课题组^[92]利用双温方程,结合分子动力学模拟研究了中心波长为 800 nm, 能量密度为 29.3 mJ/cm², 脉冲宽度分别为 50、200、500、1000 fs 的飞秒激光烧蚀镍钛合金的过程,确定了该合金在特定脉冲宽度下的烧蚀阈值,讨论了与烧蚀阈值有关的蚀除机制;他们通过模拟发现,脉冲宽度是影响靶材内部温度和热影响区的主要因素,而压力波是烧蚀过程中材料发生相变的主要因素。王扬课题组^[93]采用一维双温模型-分子动力学方法,从原子级角度详细描述了飞秒激光与面心立方金属铜的相互作用过程,并对靶材内部温度、压力的分布特征及应力约束条件下的烧蚀机制进行了分析,探讨了激光诱导压力波的成因及其传播规律。

Zarkadoula 等^[94]通过双温模型与分子动力学模型相结合的方法,对电子能量传输、晶格的重新分布,以及电子的热导率和比热容等材料的电子特性进行了模拟;该研究有助于对更多材料中的电子效应进行进一步研究以及对模型参数进行进一步开发,更真实地获得辐射效应并更好地理解极端条件下的材料性能。图 10 为激光辐照下快速重离子(SHI)的能量沉

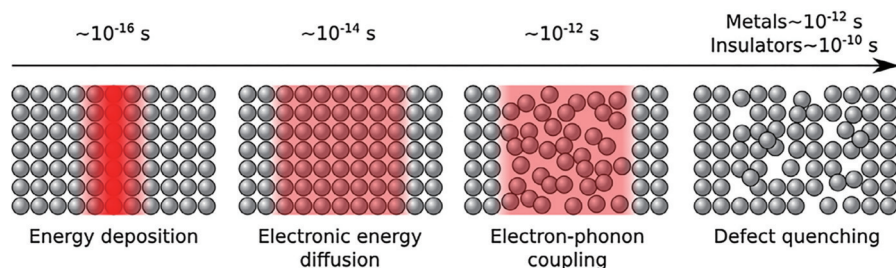


图 10 激光辐照下 SHI 的能量沉积和扩散随时间演化的示意图^[95]

Fig. 10 Time evolution of energy deposition and diffusion for an SHI laser irradiation^[95]

积和扩散示意图,并给出了时间尺度^[95]。2018年,Darkins等^[95]综述了双温模型与分子动力学相结合的应用方法以及实施应用过程中需要考虑的因素,介绍了电子激励的多种辐照场景的应用示例,并描述了由电子激发引起的原子间相互作用在模拟过程中发生改变的影响以及解决途径。

3.3.2 分子动力学-材料点法

2020年,Yong^[96]提出了一种将分子动力学(MD)与材料点法(MPM)相结合的混合数值方法,用于模拟超快激光与金属的相互作用。MPM方法是一种将连续性的物质离散为材料点(携带所描述物体的所有信息),将空间离散为规则的网格(以求解运动方程),使物体的状态信息在两种离散系统中相互映射并保持一致的数值方法。图11所示为MPM方法示意图^[97]。在这种耦合的MD-MPM方法中,MPM方法用于求解描述金属电子子系统中

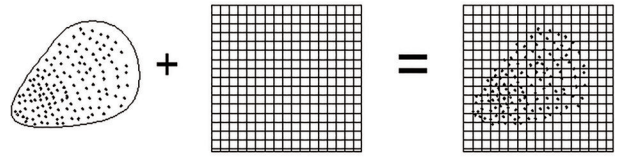


图 11 MPM方法示意图^[97]

Fig. 11 Schematic of MPM method^[97]

非傅里叶热传递的双温模型电子能量方程,MD方法用于描述金属晶格系统的动力学,其中包含了考虑电子与晶格之间能量转移的附加阻尼力。Yong等根据MD原子与MPM背景网格的拓扑关系对MD原子进行了划分,并针对分组原子建立了电子系统的MPM模型。Yong通过飞秒/皮秒激光加热金属薄膜的典型实例,验证了其所提MD-MPM方案的有效性和鲁棒性。MD-MPM方案能更好地处理金属加热过程中的大变形,并能用于更宽范围的超快激光脉冲加热金属的模拟。图12所示为不同

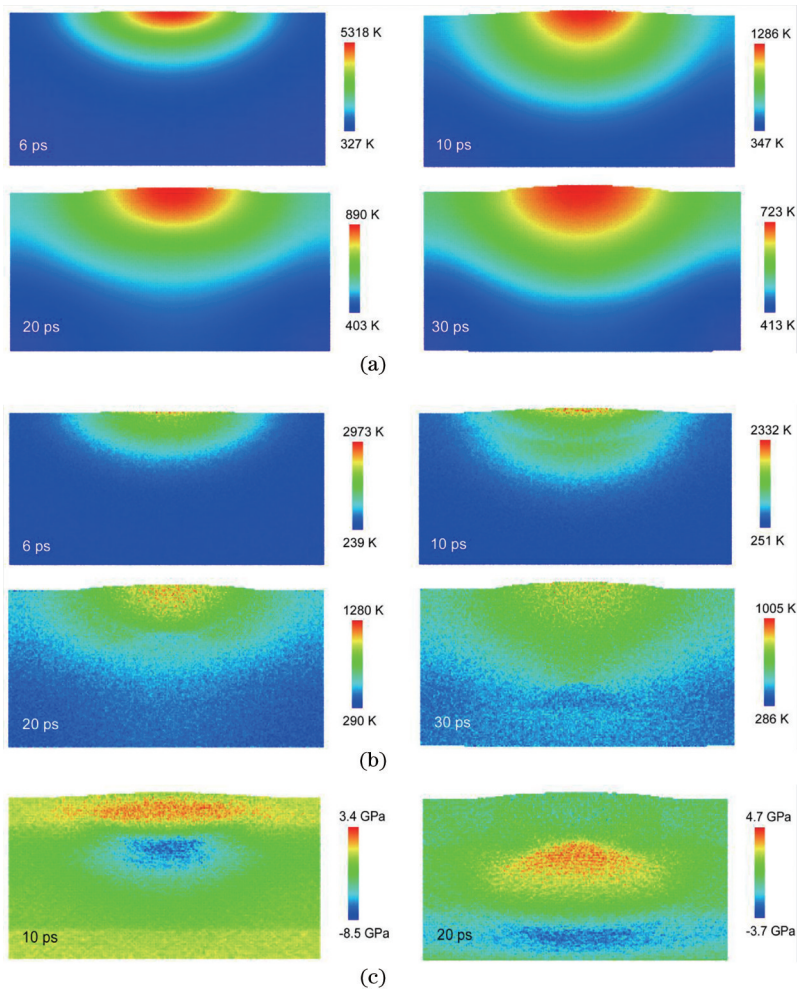


图 12 不同脉冲宽度下铝薄膜的电子温度、晶格温度分布及应力分布^[96]。(a)电子温度;(b)晶格温度;(c)应力分布
Fig.12 Electron and lattice temperature distributions and stress distribution of aluminum film under different pulse widths^[96].
(a) Electron temperature; (b) lattice temperature; (c) stress distribution

脉冲宽度下铝薄膜的电子温度、晶格温度分布及应力分布^[96],从图中可以观察到,在靠近薄膜中部位位置的材料具有较高的温度和较强的应力值,这可能是由拉伸应力使熔融和热软化材料在中间区域运动

造成的。

由此,可以对上述三种不同类型的飞秒激光仿真方法进行简单的概括。表 2 所示为本文所述仿真方法的归纳总结。

表 2 飞秒激光在仿真方面的研究进展

Table 2 Research progress of femtosecond laser in simulation

Model	A brief introduction to the model	Characteristic	Application
Two-temperature model	Based on the Boltzmann transport equation, the model is used to describe the mathematical model of femtosecond laser interaction with metal materials, and two different interaction processes of photon and electron, electron and lattice are considered. It can describe the temperature evolution process of electron system and lattice system	In the two-temperature model, electrons and lattices are considered as two independent systems. The interaction processes of photons and electrons, electrons and electrons, and electrons and lattices are analyzed, and the differential equations of temperature changes between electrons and lattices are given	This model is often used to predict the damage and melting threshold of materials, and it is the main model to describe the temporal and spatial evolution of electron and lattice temperature in metal materials irradiated by short pulse laser
Molecular dynamics model	Molecular dynamics simulation regards continuous medium as a particle system composed of many atoms or molecules. The force between particles can be obtained by deriving the potential energy function. The mathematical model of particle motion in the system is established by using classical Newtonian mechanics. Under the given boundary conditions and initial conditions, the trajectories of particles in phase space are obtained by numerical solution, and then the corresponding macroscopic dynamic and static characteristics of the system are obtained by the principle of statistical physics	This method only needs to give the model hypothesis of the interaction between atoms, and does not need any other assumptions. Moreover, it can combine macro phenomena with micro molecular dynamics, which has the advantages of communicating macro characteristics and micro structure, emphasizing the details of micro interaction, and not making any assumptions about the process under study	Molecular dynamics method is suitable for the simulation of fast non-equilibrium process, and can describe the micro process of the interaction between ultrashort pulse laser and metal
Two-temperature model (TTM)-molecular dynamics (MD)	In the process of femtosecond laser ablation of materials, not only the evolution of temperature field is involved, but also the movement of atoms, the change of stress and pressure in materials. The combination of TTM and MD can effectively predict the melting, gasification and ablation threshold of materials, and obtain the understanding of ablation mechanism and the optimization of parameters	The two-temperature model can describe the deposition of light energy, the heat transfer between electrons, the energy transfer between electrons and lattices, and the heat transfer between electrons. Molecular dynamics can directly describe the non-uniform processes such as overheating, ablation, and melting of materials	The combination of two-temperature model and molecular dynamics model is usually used to analyze the external and internal properties of metal or nonmetal materials from macroscopic and microscopic perspectives

表2 (续)

Molecular dynamics (TTM)-material point method (MPM)	The combination of molecular dynamics method and material point method can not only describe the dynamic process of material such as pressure and transmission, but also simulate the discrete and continuous behavior of material, maintain the conservation of mechanical energy in the contact process, and reduce the amount of calculation in the simulation process	In the MD-MPM coupling method, the MPM method is used to solve the two-temperature model (TTM) electron energy equation describing the non Fourier heat transfer in the metal electronic subsystem. The MD method describes the dynamics of the metal lattice system, including the additional damping force considering the energy transfer between the electron and the lattice	It is used to simulate the interaction between ultra fast laser and metal. It can also be used to simulate the numerical simulation of bulk materials, and simulate the extrusion, sliding, separation, and other contact behaviors between particles
--	---	---	---

4 结束语

随着先进制造业的不断发展,人们对加工制造精度提出了更高要求,并不断向微米甚至纳米级方向发展。因此,高精度、高集成化是制造业发展的必然趋势。飞秒激光加工是一种典型的非热熔性加工方法,能有效避免热扩散造成的重铸层、热影响区和熔渣等不良影响,可以实现以往加工方法无法达到的高质量、高精度的加工效果,并且可以突破衍射极限给加工精度带来的限制,实现真正意义上的三维立体微加工。

飞秒激光微细加工以其独特的优越性能突破了以往加工技术的局限性,对微加工、精加工领域的发展具有较大推动作用。然而,现阶段的飞秒激光应用仍面临很大挑战。首先,对于飞秒激光加工技术,尚无一套完整的理论体系来解释飞秒激光与物质作用的机理,人们对飞秒激光的研究仍处于初级阶段,尚未建立起较为完善的飞秒激光加工过程的仿真模型。飞秒激光在加工不同的材料时,对材料的电离和蚀除机理等也存在较大差异。其次,飞秒激光微加工是一种微尺度加工过程,其时间尺度可以从毫秒到飞秒量级,空间尺度可以从微米到纳米量级。已有的飞秒激光微加工仿真模型只局限于极小的变化区域,经过多方面简化后可以用于描述飞秒激光微加工过程。如何构建多尺度仿真模型,将多种模型有机结合起来,使之更加准确地描述飞秒激光微加工过程是一个很大的挑战。

因此,今后的研究热点和重点是改进飞秒激光光束的性质,如扩大飞秒激光的波长变化范围以及对脉冲整形进行控制等,以实现多功能、高性能化加工,进而拓展飞秒激光在加工领域的应用范围。进一步探索飞秒激光加工的各种机理,探讨工作环

境对超精细加工的影响,探索飞秒激光加工的物理本质和加工极限尺寸。在仿真研究方面,应进一步对现有模型进行改进优化,并探索新的仿真模型,或将多种现有模型的优点进行有机结合,即综合多种仿真模型的优点,弥补单一模型的不足,使仿真方法更加灵活多样,仿真结果更为精确有效。

参 考 文 献

- [1] Chen Y Q, Wang J H. Laser principle[M]. Hangzhou: Zhejiang University Press, 1992: 24-36. 陈钰清,王静环. 激光原理[M]. 杭州: 浙江大学出版社, 1992: 24-36.
- [2] Valdmanis J A, Fork R L, Gordon J P. Generation of optical pulses as short as 27 femtoseconds directly from a laser balancing self-phase modulation, group-velocity dispersion, saturable absorption, and saturable gain[J]. Optics Letters, 1985, 10(3): 131-133.
- [3] Haus H A, Fujimoto J G, Ippen E P. Structures for additive pulse mode locking[J]. Journal of the Optical Society of America B, 1991, 8(10): 2068-2076.
- [4] Pervak V, Tikhonravov A V, Trubetskov M K, et al. 1.5-octave chirped mirror for pulse compression down to sub-3 fs[J]. Applied Physics B, 2007, 87(1): 5-12.
- [5] Spence D E, Kean P N, Sibbett W. 60-fsec pulse generation from a self-mode-locked Ti:sapphire laser [J]. Optics Letters, 1991, 16(1):42-44.
- [6] He F, Cheng Y. Femtosecond laser micromachining: frontier in laser precision micromachining[J]. Chinese Journal of Lasers, 2007, 34(5): 595-622. 何飞,程亚. 飞秒激光微加工: 激光精密加工领域的新前沿[J]. 中国激光, 2007, 34(5): 595-622.
- [7] Strickland D, Mourou G. Compression of amplified chirped optical pulses[J]. Optics Communications, 1985, 56(3): 219-221.

- [8] Backus S, Durfee C G, Murnane M M, et al. High power ultrafast lasers[J]. *Review of Scientific Instruments*, 1998, 69(3): 1207-1223.
- [9] Lozhkarev V V, Freidman G I, Ginzburg V N, et al. 200 TW 45 fs laser based on optical parametric chirped pulse amplification[J]. *Optics Express*, 2006, 14(1): 446-454.
- [10] Keller U. Recent developments in compact ultrafast lasers[J]. *Nature*, 2003, 424(6950): 831-838.
- [11] Tajima T, Mourou G. Zettawatt-exawatt lasers and their applications in ultrastrong-field physics[J]. *Physical Review Special Topics-Accelerators and Beams*, 2002, 5(3): 031301.
- [12] Xia B, Jiang L, Wang S M, et al. Femtosecond laser drilling of micro-holes[J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2013, 40(2): 0201001.
夏博, 姜澜, 王素梅, 等. 飞秒激光微孔加工[J]. *中国激光*, 2013, 40(2): 0201001.
- [13] Gao J, Cao G Q. The application technology of special machining micro-hole[J]. *Machinery Design & Manufacture*, 2005(7): 169-171.
高雾, 曹国强. 特种加工微小孔技术及其发展现状[J]. *机械设计与制造*, 2005(7): 169-171.
- [14] Konov V I. Laser in micro and nanoprocessing of diamond materials[J]. *Laser & Photonics Reviews*, 2012, 6(6): 739-766.
- [15] Wu X F, Yin H L, Li Q. Femtosecond laser processing of carbon nanotubes film[J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2019, 46(9): 0902002.
吴雪峰, 尹海亮, 李强. 飞秒激光加工碳纳米管薄膜试验研究[J]. *中国激光*, 2019, 46(9): 0902002.
- [16] Wang Z H, Wang B X, Kamano M, et al. Fabrication of silicon micro/nanostructures based on laser interference ablation[J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2019, 56(16): 163201.
王子涵, 王宝续, 釜野胜, 等. 基于激光干涉烧蚀的硅表面微纳结构制备研究[J]. *激光与光电子学进展*, 2019, 56(16): 163201.
- [17] Matthias E, Reichling M, Siegel J, et al. The influence of thermal diffusion on laser ablation of metal films[J]. *Applied Physics A*, 1994, 58(2): 129-136.
- [18] Stuart B C, Feit M D, Herman S, et al. Optical ablation by high-power short-pulse lasers[J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 1996, 13(2): 459-468.
- [19] Lenzner M, Krausz F, Krüger J, et al. Photoablation with sub-10 fs laser pulses[J]. *Applied Surface Science*, 2000, 154/155: 11-16.
- [20] Gómez D, Goenaga I. On the incubation effect on two thermoplastics when irradiated with ultrashort laser pulses: broadening effects when machining microchannels[J]. *Applied Surface Science*, 2006, 253(4): 2230-2236.
- [21] Baudach S, Bonse J, Krüger J, et al. Ultrashort pulse laser ablation of polycarbonate and polymethylmethacrylate[J]. *Applied Surface Science*, 2000, 154/155: 555-560.
- [22] Watanabe M, Sun H B, Juodkakis S, et al. Three-dimensional optical data storage in vitreous silica[J]. *Japanese Journal of Applied Physics*, 1998, 37(12B): L1527-L1530.
- [23] Liu J M. Simple technique for measurements of pulsed Gaussian-beam spot sizes[J]. *Optics Letters*, 1982, 7(5): 196-198.
- [24] Stuart B C, Feit M D, Herman S, et al. Nanosecond-to-femtosecond laser-induced breakdown in dielectrics[J]. *Physical Review B*, 1996, 53(4): 1749-1761.
- [25] Mustafa H, Mezera M, Matthews D T A, et al. Effect of surface roughness on the ultrashort pulsed laser ablation fluence threshold of zinc and steel[J]. *Applied Surface Science*, 2019, 488: 10-21.
- [26] Crouch C H, Carey J E, Warrender J M, et al. Comparison of structure and properties of femtosecond and nanosecond laser-structured silicon [J]. *Applied Physics Letters*, 2004, 84(11): 1850-1852.
- [27] Pronko P P, Dutta S K, Squier J, et al. Machining of sub-micron holes using a femtosecond laser at 800 nm[J]. *Optics Communications*, 1995, 114(1/2): 106-110.
- [28] Ditmire T, Tisch J W G, Springate E, et al. High-energy ions produced in explosions of superheated atomic clusters[J]. *Nature*, 1997, 386(6620): 54-56.
- [29] Henyk M, Mitzner R, Wolframm D, et al. Laser-induced ion emission from dielectrics[J]. *Applied Surface Science*, 2000, 154/155: 249-255.
- [30] Henyk M, Wolframm D, Reif J. Ultra short laser pulse induced charged particle emission from wide bandgap crystals[J]. *Applied Surface Science*, 2000, 168(1/2/3/4): 263-266.
- [31] Tao S, Wu B X. The effect of emitted electrons during femtosecond laser-metal interactions: a physical explanation for Coulomb explosion in metals [J]. *Applied Surface Science*, 2014, 298: 90-94.

- [32] Li S C, Li S Y, Zhang F J, et al. Possible evidence of Coulomb explosion in the femtosecond laser ablation of metal at low laser fluence[J]. *Applied Surface Science*, 2015, 355: 681-685.
- [33] Zheng Z J, Wu C J, Liu S Y, et al. Analysis of energy occupying ratio of Coulomb explosion and thermal effect in picosecond pulse laser processing[J]. *Optics Communications*, 2018, 424: 190-197.
- [34] Jia T Q, Xu Z Z, Li X X, et al. Microscopic mechanisms of ablation and micromachining of dielectrics by using femtosecond lasers[J]. *Applied Physics Letters*, 2003, 82(24): 4382-4384.
- [35] Falkovsky L A, Mishchenko E G. Electron-lattice kinetics of metals heated by ultrashort laser pulses[J]. *Journal of Experimental and Theoretical Physics*, 1999, 88(1): 84-88.
- [36] Glezer E N, Huang L, Finlay R J, et al. Ultrafast laser-induced microexplosions in transparent materials [J]. *Proceedings of SPIE*, 1997, 2966: 392-403.
- [37] Hand D P, Russell P St J. Photoinduced refractive-index changes in germanosilicate fibers[J]. *Optics Letters*, 1990, 15(2): 102-104.
- [38] Dickinson J T, Orlando S, Avanesyan S M, et al. Color center formation in soda lime glass and NaCl single crystals with femtosecond laser pulses[J]. *Applied Physics A*, 2004, 79(4/5/6): 859-864.
- [39] Du D, Liu X, Korn G, et al. Laser-induced breakdown by impact ionization in SiO₂ with pulse widths from 7 ns to 150 fs[J]. *Applied Physics Letters*, 1994, 64(23): 3071-3073.
- [40] Bryukvina L I, Pestryakov E V, Kirpichnikov A V, et al. Formation of color centers and light scattering structures by femtosecond laser pulses in sodium fluoride[J]. *Optics Communications*, 2014, 330: 56-60.
- [41] Marcinkevičiūtė A, Jukna V, Šuminas R, et al. Supercontinuum generation in the absence and in the presence of color centers in NaCl and KBr[J]. *Results in Physics*, 2019, 14: 102396.
- [42] Göppert-Mayer M. Über elementarakte mit zwei quantensprüngen[J]. *Annalen Der Physik*, 1931, 401 (3): 273-294.
- [43] Yuan L, Ng M L, Herman P R. Femtosecond laser writing of phase-tuned volume gratings for symmetry control in 3D photonic crystal holographic lithography [J]. *Optical Materials Express*, 2015, 5(3): 515-529.
- [44] Cui Y, Zhang H Y, Zhao Y A, et al. Microstructure changes of gold film under femtosecond laser irradiation[J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2019, 46 (2): 0203001.
- 崔云, 张晗宇, 赵元安, 等. 飞秒激光作用下金膜的微观特性变化[J]. *中国激光*, 2019, 46(2): 0203001.
- [45] Wu D, Wu S Z, Xu J, et al. Hybrid femtosecond laser microfabrication to achieve true 3D glass/polymer composite biochips with multiscale features and high performance: the concept of ship-in-a-bottle biochip[J]. *Laser & Photonics Reviews*, 2014, 8(3): 458-467.
- [46] Wu D, Xu J, Niu L G, et al. In-channel integration of designable microoptical devices using flat scaffold-supported femtosecond-laser microfabrication for coupling-free optofluidic cell counting[J]. *Light: Science & Applications*, 2015, 4(1): e228.
- [47] Chen F, Yang Q, Shan C, et al. Fabrication of complex three-dimensional metallic microstructures based on femtosecond laser micromachining[C]// *CLEO: Science and Innovations 2015*, May 10-15, 2015, San Jose, California. Washington, D. C.: OSA, 2015: SW1K.
- [48] Wu E S, Strickler J H, Harrell W R, et al. Two-photon lithography for microelectronic application[J]. *Proceedings of SPIE*, 1992, 1674: 776-782.
- [49] Kawata S, Sun H B, Tanaka T, et al. Finer features for functional microdevices[J]. *Nature*, 2001, 412 (6848): 697-698.
- [50] Zhou M, Liu L P, Dai Q X, et al. Fabrication of micro-structures with two-photon absorption induced by femtosecond laser[J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2005, 32(10): 1342-1346.
- 周明, 刘立鹏, 戴起勋, 等. 飞秒激光双光子微细结构的制备[J]. *中国激光*, 2005, 32(10): 1342-1346.
- [51] Rethfeld B, Sokolowski-Tinten K, von der Linde D, et al. Timescales in the response of materials to femtosecond laser excitation[J]. *Applied Physics A*, 2004, 79(4/5/6): 767-769.
- [52] Bulgakova N M, Bourakov I M, Bulgakova N A. Rarefaction shock wave: formation under short pulse laser ablation of solids[J]. *Physical Review E, Statistical, Nonlinear, and Soft Matter Physics*, 2001, 63(2): 046311.
- [53] Borowiec A, Bruce D M, Cassidy D T, et al. Imaging the strain fields resulting from laser micromachining of semiconductors[J]. *Applied Physics Letters*, 2003, 83(2): 225-227.
- [54] Chichkov B N, Momma C, Nolte S, et al. Femtosecond, picosecond and nanosecond laser

- ablation of solids[J]. *Applied Physics A*, 1996, 63(2): 109-115.
- [55] Nolte S, Momma C, Jacobs H, et al. Ablation of metals by ultrashort laser pulses[J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 1997, 14(10): 2716-2722.
- [56] Zhu X. A new method for determining critical pulse width in laser material processing[J]. *Applied Surface Science*, 2000, 167(3/4): 230-242.
- [57] Jiang L, Tsai H L. Improved two-temperature model and its application in ultrashort laser heating of metal films[J]. *Journal of Heat Transfer*, 2005, 127(10): 1167-1173.
- [58] Fang R R, Wei H, Li Z H, et al. Improved two-temperature model including electron density of states effects for Au during femtosecond laser pulses [J]. *Solid State Communications*, 2012, 152(2): 108-111.
- [59] Ren Y P, Chen J K, Zhang Y W. Modeling of ultrafast phase changes in metal films induced by an ultrashort laser pulse using a semi-classical two-temperature model[J]. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 2012, 55(5/6): 1620-1627.
- [60] Ren Y P, Cheng C W, Chen J K, et al. Thermal ablation of metal films by femtosecond laser bursts [J]. *International Journal of Thermal Sciences*, 2013, 70: 32-40.
- [61] Chen L, Liu X D, Liu J, et al. Microgroove etching with femtosecond laser on quartz glass surfaces[J]. *Acta Optica Sinica*, 2020, 40(23): 2314001.
陈亮, 刘晓东, 刘静, 等. 飞秒激光在石英玻璃表面刻蚀微槽的研究 [J]. *光学学报*, 2020, 40(23): 2314001.
- [62] Liang J G, Ni X C, Yang L, et al. Numerical simulation of the ablation on copper with ultrashort laser pulses[J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2005, 32(9): 1291-1294.
梁建国, 倪晓昌, 杨丽, 等. 超短激光脉冲烧蚀铜材料的数值模拟 [J]. *中国激光*, 2005, 32(9): 1291-1294.
- [63] Kotsedi L, Kaviyarasu K, Fuku X G, et al. Two-temperature approach to femtosecond laser oxidation of molybdenum and morphological study[J]. *Applied Surface Science*, 2017, 421: 213-219.
- [64] Saghebfar M, Tehrani M K, Darbani S M R, et al. Femtosecond pulse laser irradiation of gold/chromium double-layer metal film: the role of interface boundary resistance in two-temperature model simulations[J]. *Thin Solid Films*, 2017, 636: 464-473.
- [65] Giordano S, Manca F. Analysis of heterogeneous structures described by the two-temperature model [J]. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 2014, 78: 189-202.
- [66] Hu D Z. Numerical calculation of the electron-phonon coupling relaxation time in pulse laser ablation[J]. *Acta Physica Sinica*, 2009, 58(2): 1077-1082.
胡德志. 脉冲激光烧蚀中电声弛豫时间的确定 [J]. *物理学报*, 2009, 58(2): 1077-1082.
- [67] Wu B X, Shin Y C. A simple model for high fluence ultra-short pulsed laser metal ablation[J]. *Applied Surface Science*, 2007, 253(8): 4079-4084.
- [68] Tsai H L, Jiang L. Fundamentals of energy cascade during ultrashort laser-material interactions[J]. *Proceedings of SPIE*, 2005, 5713: 343-357.
- [69] Wu B, Shin Y C. A simplified predictive model for high-fluence ultra-short pulsed laser ablation of semiconductors and dielectrics[J]. *Applied Surface Science*, 2009, 255(9): 4996-5002.
- [70] Nanev C N. Theory of nucleation[M]//Nanev C N. 2nd ed. *Handbook of crystal growth*. Amsterdam: Elsevier, 2015: 315-358.
- [71] Hertel T, Knoesel E, Wolf M, et al. Ultrafast electron dynamics at Cu(111): response of an electron gas to optical excitation[J]. *Physical Review Letters*, 1996, 76(3): 535-538.
- [72] Brorson S D, Kazeroonian A, Moodera J S, et al. Femtosecond room-temperature measurement of the electron-phonon coupling constant γ in metallic superconductors[J]. *Physical Review Letters*, 1990, 64(18): 2172-2175.
- [73] Qiu T Q, Juhasz T, Suarez C, et al. Femtosecond laser heating of multi-layer metals: experiments[J]. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 1994, 37(17): 2799-2808.
- [74] Atanasov P A, Nedialkov N N, Imamova S E, et al. Laser ablation of Ni by ultrashort pulses: molecular dynamics simulation[J]. *Applied Surface Science*, 2002, 186(1/2/3/4): 369-373.
- [75] Nedialkov N N, Imamova S E, Atanasov P A, et al. Mechanism of ultrashort laser ablation of metals: molecular dynamics simulation[J]. *Applied Surface Science*, 2005, 247(1/2/3/4): 243-248.
- [76] Nedialkov N N, Atanasov P A, Amoroso S, et al. Laser ablation of metals by femtosecond pulses: theoretical and experimental study[J]. *Applied Surface*

- Science, 2007, 253(19): 7761-7766.
- [77] Daw M S, Baskes M I. Embedded-atom method: derivation and application to impurities, surfaces, and other defects in metals[J]. Physical Review B, 1984, 29(12): 6443-6453.
- [78] Hakkinen H, Landman U. Superheating, melting, and annealing of copper surfaces[J]. Physical Review Letters, 1993, 71(7): 1023-1026.
- [79] Zhang J C, Wang X Y, Zhu Y Y, et al. Molecular dynamics simulation of the melting behavior of copper nanorod[J]. Computational Materials Science, 2018, 143: 248-254.
- [80] Blaisten-Barojas E, Andersen H C. Effects of three-body interactions on the structure of clusters[J]. Surface Science, 1985, 156: 548-555.
- [81] Honeycutt J D, Andersen H C. Molecular dynamics study of melting and freezing of small Lennard-Jones clusters[J]. The Journal of Physical Chemistry, 1987, 91(19): 4950-4963.
- [82] Jónsson H, Andersen H C. Icosahedral ordering in the Lennard-Jones liquid and glass[J]. Physical Review Letters, 1988, 60(22): 2295-2298.
- [83] Faken D, Jónsson H. Systematic analysis of local atomic structure combined with 3D computer graphics [J]. Computational Materials Science, 1994, 2(2): 279-286.
- [84] Barnett R N, Cleveland C L, Häkkinen H, et al. Structures and spectra of gold nanoclusters and quantum dot molecules[J]. The European Physical Journal, 1999, 9(1): 95-104.
- [85] Xiong Q L, Kitamura T, Li Z H. Transient phase transitions in single-crystal coppers under ultrafast lasers induced shock compression: a molecular dynamics study[J]. Journal of Applied Physics, 2019, 125(19): 194302.
- [86] Ohmura E, Fukumoto I, Miyamoto I. Modified molecular dynamics simulation on ultrafast laser ablation of metal[C]//ICALEO'99: Proceedings of the Laser Microfabrication Conference, November 15-17, 1999, San Diego, California, USA. Orlando: Laser Institute of America, 1999: 5059306.
- [87] Karim E T, Lin Z B, Zhigilei L V. Molecular dynamics study of femtosecond laser interactions with Cr targets[J]. AIP Conference Proceedings, 2012, 1464(1): 280-293.
- [88] Xin J T, Zhu W J, Liu C L. Molecular dynamics simulation of radiation effects in Al foil irradiated by femtosecond laser beams[J]. Explosion and Shock Waves, 2004, 24(3): 207-211.
- 辛建婷, 祝文军, 刘仓理. 飞秒激光辐照铝材料的分子动力学数值模拟[J]. 爆炸与冲击, 2004, 24(3): 207-211.
- [89] Feng Q Y, Li L, Zeng T Q, et al. *Ab initio* molecular dynamics simulation of the effect of impurities on laser-induced damage of fused silica[J]. Physica B: Condensed Matter, 2018, 545: 549-558.
- [90] Meng B B, Yuan D D, Zheng J, et al. Molecular dynamics study on femtosecond laser aided machining of monocrystalline silicon carbide[J]. Materials Science in Semiconductor Processing, 2019, 101: 1-9.
- [91] Povarnitsyn M E, Fokin V B, Levashov P R. Microscopic and macroscopic modeling of femtosecond laser ablation of metals[J]. Applied Surface Science, 2015, 357: 1150-1156.
- [92] Zhu S J, Wang X L, Zhu W H, et al. Numerical simulation for influence of pulse duration on femtosecond laser ablation of alloy[J]. Electro-Optic Technology Application, 2011, 26(6): 39-44.
- 朱诗佳, 王新林, 朱卫华, 等. 脉宽对飞秒激光烧蚀合金影响的数值模拟[J]. 光电技术应用, 2011, 26(6): 39-44.
- [93] Liu X, Wang Y, Zhao L J. Molecular dynamics simulation on femtosecond laser ablation of metal[J]. Microfabrication Technology, 2004(4): 56-63.
- 刘璇, 王扬, 赵丽杰. 飞秒激光蚀除金属的分子动力学模拟[J]. 微细加工技术, 2004(4): 56-63.
- [94] Zarkadoula E, Samolyuk G, Weber W J. Two-temperature model in molecular dynamics simulations of cascades in Ni-based alloys[J]. Journal of Alloys and Compounds, 2017, 700: 106-112.
- [95] Darkins R, Duffy D M. Modelling radiation effects in solids with two-temperature molecular dynamics[J]. Computational Materials Science, 2018, 147: 145-153.
- [96] Yong G. Coupling of material point method and molecular dynamics for modeling ultrafast laser interaction with metals[J]. Engineering Analysis with Boundary Elements, 2020, 110: 104-111.
- [97] Wang J L, Liu T Y, Zhang C H. Efficient local implicit contact algorithm for material point method [J]. Journal of Tsinghua University (Natural Science), 2008(3): 344-347.
- 王津龙, 刘天云, 张楚汉. 材料点法的高效局部隐式接触算法[J]. 清华大学学报(自然科学版), 2008(3): 344-347.