

纳秒激光辐照下铝靶的光学与热物理性质研究

常 浩¹ 金 星² 陈朝阳^{3*}

¹ 装备学院研究生院, 北京 101416
² 装备学院激光推进及其应用国家重点实验室, 北京 101416
³ 北京化工大学物理与电子科学系, 北京 100029

摘要 在激光烧蚀过程中, 靶材的吸收系数、热导率、电导率、密度和反射率参数随着温度变化而变化。当靶材表面温度接近热力学临界温度 T_c 时, 靶材高温部分由金属向非金属转变。将靶材划分两个温度区域 ($0.8T_c$ 以下和 $0.8T_c$ 以上), 对以上参数进行了建模计算。结合一维热传导方程, 计算得到了铝靶温度、吸收系数、热导率、电导率、密度和反射率的时间和空间分布特性, 并给出了烧蚀深度随激光能量的变化情况。数值计算结果与实验结果符合较好, 验证了模型的正确性。

关键词 激光技术; 激光烧蚀; 光学性质; 热物理性质; 临界温度; 铝

中图分类号 O532.25; TN249 文献标识码 A doi: 10.3788/AOS201333.1114002

Study on Optical and Thermophysical Properties of Aluminum under Nanosecond Laser Irradiation

Chang Hao¹ Jin Xing² Chen Zhaoyang³

¹ Postgraduate School, Academy of Equipment, Beijing 101416, China
² State Key Laboratory of Laser Propulsion and Application, Beijing 101416, China
³ Department of Physics and Electronics Science, Beijing University of Chemical Technology, Beijing 100029, China

Abstract In the process of laser ablation, the target's absorption coefficient, thermal conductivity, density and surface reflectivity are dependent on its temperature. When the target surface temperature approaches the thermodynamic critical temperature T_c , the high-temperature part of the target transits from metal to nonmetal. The target is divided into two temperature regions (below and above $0.8T_c$) and a model is built up to calculate the above physical parameters. The temporal and spatial distribution of temperature, absorption coefficient and thermal conductivity of Al target are obtained by a one-dimensional heat conduction equation. Ablation depth is calculated as a function of laser pulse energies. Numerical results are in good agreement with the experimental results, which validate the presented model.

Key words laser technique; laser ablation; optical property; thermophysical property; critical temperature; aluminum

OCIS codes 140.3380; 160.3380; 160.3900; 140.6810; 260.3910; 260.2160

1 引 言

激光辐照金属靶材(如铝)过程中, 靶材吸收激

光能量并转变为热, 热量通过热传导在靶材内部扩散。对于纳秒脉冲激光烧蚀, 激光脉冲宽度远大于

收稿日期: 2013-05-13; 收到修改稿日期: 2013-06-24

基金项目: 国家自然科学基金(11102234)

作者简介: 常 浩(1987—), 男, 博士研究生, 主要从事脉冲激光烧蚀机理方面的研究。

E-mail: changhao5976911@163.com

导师简介: 金 星(1962—), 男, 研究员, 博士生导师, 主要从事激光与物质相互作用等方面的研究。

E-mail: jinxing_beijing@sina.com

* 通信联系人。E-mail: chenzy@mail.buct.edu.cn

能量弛豫时间,经历电子-电子、电子-晶格声子等多种热传递和扩散过程达到新的平衡,以热能形式对靶材实现熔化、汽化,因此,单温热传导方程即可描述纳秒激光对靶材的辐照效应^[1-2]。激光辐照过程中,当温度达到靶材熔点时,熔化发生,此时已变为液态的表面层出现正常的液相蒸发、继续加热,当靶材表面吸收的能量达到气化潜热时,由于纳秒激光作用时间短,无法有足够时间形成普通沸腾所需气泡核,且激光功率密度很高,靶材表面的饱和蒸汽压由于气化而急剧增大,故部分熔化的液态靶材将成为超热液体,一般温度达到 $0.8T_c$ (T_c 是靶的热力学临界温度)^[3-5]。此时,由于电子的扩散,金属失去了其原有的性质,电导率急剧下降,液态金属变为液态绝缘体,这个过程称为“金属-非金属转变”。这种状态下,烧蚀层对入射激光的吸收变得很弱。随着进一步吸收能量,靶温度达到 $0.9T_c$,相爆炸发生^[6-8],相爆炸是因为大量激光能量的过快沉积,形成超热液体,超热液体内部形成大量的气化核,气化核增大到一定程度时,大量液体和气态的混合物飞溅出去,靶材中温度达到 $0.9T_c$ 的单元将因此移除。

纳秒激光烧蚀金属数值模拟中,文献[9-11]认为吸收系数、热导率、反射率和密度参数是常数值。实际上,随着温度的升高,这些参数也发生相应变化,并且影响激光对靶材的烧蚀过程。因此,靶材光学与热物理参数的变化与靶材温度相互耦合。一些研究小组从理论和实验^[8,12-13]两个方面开展了铝在激光烧蚀中的光学参数和热物理参数变化研究。Wu等^[8]计算了铝在接近临界温度时的吸收系数,得到铝的吸收系数在 $0.8T_c$ 以上与 $0.8T_c$ 以下相比,数值上小了不到3个数量级。Brandt等^[12]测量了铝在熔化温度和熔化温度以上的电阻率和热导率,实验得到这两个参数在熔化温度时有突变,电阻率和热导率存在不连续性。Benavides等^[14]对纳秒激光辐照下金属表面反射率进行了实验研究,得到随着激光能量的增加,金属表面反射率逐渐降低,当激光能量约为 10 J/cm^2 时,金属表面反射率数值在 $0.1\sim 0.3$ 之间。基于一维热传导方程研究纳秒激光烧蚀铝靶过程,考虑了靶材吸收系数、热导率、密度和反射率等光学和热物理参数的变化。随着靶材在激光烧蚀过程中烧蚀层温度达到临界温度,属性会由金属向非金属转变^[15-16],所以划分两个温度区域($0.8T_c$ 以下和 $0.8T_c$ 以上)来计算以上参数,并给出这些参数在靶材内部的时间和空间分布以及烧蚀深度随激光能量的变化情况。

2 热传导模型

由于金属铝吸收深度(约为 10 nm)远小于光束直径,因此,可近似地按一维热传导问题处理。激光垂直入射(沿 z 轴)靶材表面,根据能量守恒定律,靶内部的温度分布 $T(z,t)$ 为^[9,17]

$$c_p \rho \left[\frac{\partial T(t,z)}{\partial t} - u(t) \frac{\partial T(t,z)}{\partial z} \right] = \frac{\partial}{\partial z} \lambda \frac{\partial T(t,z)}{\partial z} + \dot{q}, \quad (1)$$

式中 T 、 c_p 、 ρ 和 λ 分别为温度、比热、密度和热导率。 \dot{q} 为激光束深层吸收的体热源项

$$\dot{q} = \alpha(1-R)I_0(t)\exp(-\alpha z), \quad (2)$$

式中 α 为靶材对激光的吸收系数, R 为靶材表面对激光的反射率, $I_0(t)$ 为激光的功率密度。 $u(t)$ 为靶面由于蒸发引起的后退速度

$$u(t) = \left. \frac{\partial z}{\partial t} \right|_{z=0} = \beta p_B (2\pi m k_B T_s)^{-1/2} \times \exp \left[\frac{L_{ev}}{k_B} \left(\frac{1}{T_B} - \frac{1}{T_s} \right) \right], \quad (3)$$

式中 β 为蒸发系数, $p_B = 101.325\text{ kPa}$, m 为原子质量, k_B 为玻尔兹曼常数, T_s 为靶表面蒸气温度, L_{ev} 为蒸发潜热, T_B 为靶的沸点温度。

对于一维热传导模型,初始条件为

$$T(t,z) \Big|_{t=0} = T_a, \quad (4)$$

边界条件为

$$T(t,z) \Big|_{z \rightarrow \infty} = T_a, \quad (5)$$

在 $z=0$ 处,满足

$$\lambda \frac{\partial T(t,z)}{\partial z} = L_{ev} \rho u(t), \quad (6)$$

式中 T_a 为室温(300 K)。

3 光学与热物理参数计算

由热传导方程可知,在激光烧蚀过程中,吸收系数、热导率、反射率和密度参数影响靶材的温度分布。

3.1 热导率

当靶温度低于 $0.8T_c$ 时,电导率 $\sigma(T)$ 可以利用电阻率 $\rho_r(T)$ 计算^[12]

$$\sigma(T) = 1/\rho_r(T). \quad (7)$$

温度大于 $0.8T_c$,接近临界温度时,烧蚀层失去了其金属特性,简单的自由电子模型不再适用。此时,热物理参数发生不连续的剧烈变化。在这个温度区域,利用文献[16]提出的三单元等离子体模型计算电导率,即

$$\sigma = e\chi n_e = e\chi \rho \epsilon, \quad (8)$$

式中 χ, ρ 和 ϵ 分别为电子迁移率, 密度和中性原子离化比, n_e 为电子数密度。

根据 Wiedemann-Franz 定理^[12], 热导率与电导率的比值与温度 T 成正比, 即

$$\frac{\kappa(T)}{\sigma(T)} = \frac{\pi^2}{3} \left(\frac{k_B}{e} \right)^2 T = 2.44 \times 10^{-8} T, \quad (9)$$

模型中, 靶温度范围跨度从室温到几千开尔文, 这种情况下, 载流子主导热能的传递, 并且由于 $k_B T$ (小于 1.0 eV) 远小于铝的费米能 (11.7 eV), 因此, Wiedemann-Franz 定理能够适用。

3.2 反射率与吸收系数

靶材的宏观光学性质可由折射率 n_R 和消光系数 n_I 来概括, 它们分别为复数折射率 n 的实部和虚部。文献[17-19]给出了基于 Drude 模型的金屬复折射率实部与虚部的计算公式

$$\begin{cases} n_R^2 - n_I^2 = 1 + \frac{4\pi N e^2}{\epsilon_0 m_e} \frac{-\omega^2}{\omega^4 + \gamma^2 \omega^2} \\ 2n_R n_I = \frac{4\pi N e^2}{\epsilon_0 m_e} \frac{\gamma \omega}{\omega^4 + \gamma^2 \omega^2} \end{cases}, \quad (10)$$

式中 N 为单位体积介质中电荷数, ϵ_0 为真空中的介电常数, m_e 为电子质量, ω 为激光频率, γ 为自由电子的碰撞频率。从而导出复介电常数为

$$\epsilon = n^2 = 1 - \omega_{pe}^2 / \epsilon_0 (-\omega^2 + i\gamma\omega), \quad (11)$$

式中 $\omega_{pe} = (4\pi N e^2 / m_e)^{1/2}$, 是电子在晶格间作静电振荡的固有频率, 称为等离子体频率。

金属铝吸收激光能量主要由于靶中自由电子能带内跃迁的贡献, 因此, Drude 模型适用, 碰撞频率^[17]表达式为

$$\gamma(T) = \frac{n_e e^2}{m_e \sigma(T)}, \quad (12)$$

式中 n_e 为电子数密度。

吸收系数可由复折射率^[20]的虚部 $n_I(T)$ 得到, 即

$$\alpha(T) = 2 \frac{\omega}{c} n_I(T). \quad (13)$$

反射率是另外一个随着烧蚀过程不断变化的参数^[21], 根据铝的复数折射率实部和虚部求解反射率, 即

$$R(T) = \frac{[n_R(T) - 1]^2 + n_I^2(T)}{[n_R(T) + 1]^2 + n_I^2(T)}. \quad (14)$$

3.3 密度

在熔点以下, 认为固体密度是常数, 在熔点以上, 密度可以通过修正的 Guggenheim 公式^[16]得到

$$\rho = \rho_c \left[1 + \frac{3}{4} \left(1 + \frac{T}{T_c} \right) + \frac{26}{4} \left(1 + \frac{T}{T_c} \right)^{1/3} \right], \quad (15)$$

式中 ρ_c 为临界密度。表 1 给出了上述计算模型需要的相关参数。

表 1 模型中金属铝计算参数

Table 1 Parameters of Al used in model

Parameter	Symbols	Values
Melting point /K	T_m	933
Boling point /K	T_b	2793
Latent heat of fusion /(J/kg)	L_{sl}	3.96×10^5
Latent heat of vaporization /(J/kg)	L_{lv}	1.05×10^7
Specific heat /(J/kg·k)	C_p	940
Critical temperature /K	T_c	8860
Critical density /(kg/m ³)	ρ_c	280

4 计算模型验证

图 1 给出了烧蚀深度随激光能量的变化情况, 数值模拟条件与文献[22]中一致, 方框代表吸收系数、反射率、热导率和密度为固定值时, 烧蚀深度随激光能量的变化情况; 圆圈代表以上参数随温度变化得到的烧蚀深度随激光能量的变化情况; 三角形代表实验得到的测量值。可以看出, 随着激光能量的增加, 烧蚀深度逐渐增加。当计算参数为固定值时, 数值模拟结果比实验测量结果偏大; 利用本文模型计算得到的烧蚀深度与实验测量值相差较小。这是由于靶材温度升高, 吸收系数和热导率等参数逐渐减小, 靶材中的温度场分布小于参数为固定值时的温度分布, 导致烧蚀深度降低。同时, 计算结果与实验结果两者之间的偏离呈现规律性, 即随着激光能量通量的增大, 烧蚀深度偏差也随之增大, 这是由于在实际纳秒激光烧蚀中, 随着激光能量的增大, 靶表面烧蚀产生的靶蒸气会吸收激光能量并电离形成高温高压的等离子体, 等离子体对入射激光能量会

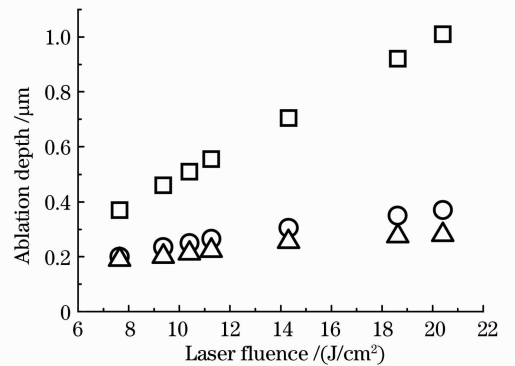


图 1 单脉冲激光作用下烧蚀深度随激光能量通量变化情况

Fig. 1 Ablation depth per pulse for aluminum as a function of laser fluence

有吸收(主要的吸收机制有电子-原子和离子的逆韧致吸收以及光电离吸收),因此到达靶材表面的激光能量,即实际与靶材耦合的激光能量会有所减少(也称为等离子体屏蔽效应)^[23]。在激光能量较弱的情况下,等离子体屏蔽效应较弱,但是随着激光能量的增大,等离子体屏蔽效应越来越明显。在本文中,并没有考虑这一因素的影响,所以造成了理论计算结果与实际偏差逐渐偏大。

5 讨论与分析

图 2 给出了某一高斯脉冲激光作用下,靶表面温度随时间的变化关系,灰色虚线表示激光功率密度随时间变化情况。脉冲激光的峰值功率密度为 1.3 GW/cm^2 , 波长为 1064 nm 。在大约 16 ns 左右,靶表面温度达到 $0.9T_c$,直至大约 20 ns ,靶表面温度始终维持在接近临界温度附近,随后由于激光

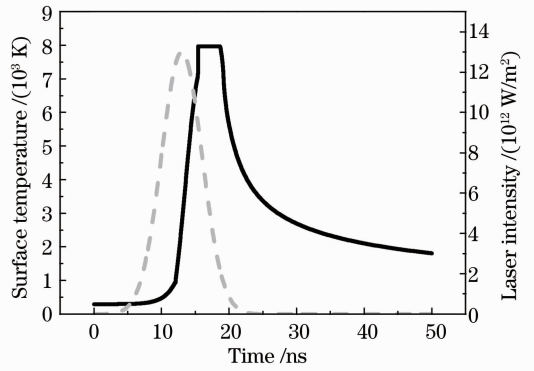


图 2 铝表面温度随时间的变化

Fig. 2 Al surface temperature as a function of time
沉积能量降低直至消失,靶表面温度开始降低。

50 ns 时间内,铝靶表面反射率、吸收系数、热导率、电导率以及密度随时间的变化如图 3 所示。可以看出,当表面温度达到 $0.8T_c$ 以上时,反射率、吸收系数、热导率、电导率以及密度均下降到相应的最小值。

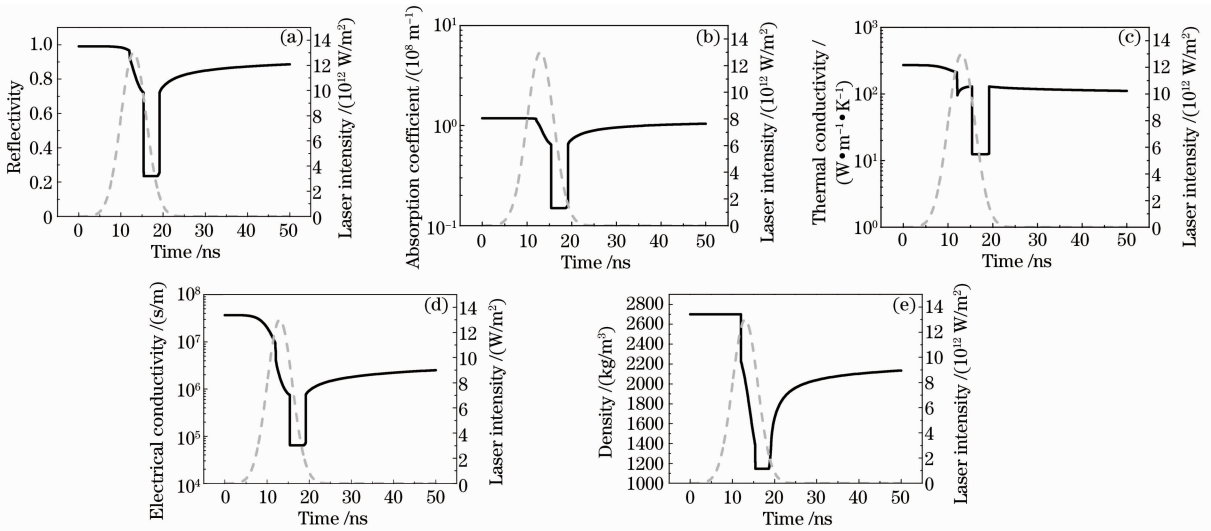


图 3 靶表面的(a)反射率、(b)吸收系数、(c)热导率、(d)电导率和(e)密度随时间变化情况

Fig. 3 Variations of target surface's (a) reflectivity, (b) absorption coefficient, (c) thermal conductivity, (d) electrical conductivity and (e) density with time

由图 3(a)可以看出靶表面的反射率从最初的 0.97 下降到大约 0.2 ,随着靶表面温度从 $0.9T_c$ 开始下降,靶表面反射率又开始回升。文献[24]给出激光功率密度在 10^9 W/cm^2 条件下,实验测得铝靶表面反射率在开始阶段为 0.93 ,靶面反射率最小值为 0.2 ,在激光强度减弱的脉冲后期,反射率逐渐增大,实验得到的结论与计算结果较为一致。文献[25]给出了铝温度在 $7000 \text{ K} \sim 10000 \text{ K}$ 时,电导率的实验值,温度范围覆盖了 $0.8T_c \sim 1T_c$,得到电导率值在接近临界温度时变化不大,并且与正常密度、室温下的电导率($3 \times 10^7 \text{ } \Omega^{-1} \cdot \text{m}^{-1}$)^[15]相比,小了大

约 3 个数量级,这与本文得到的结论是一致的。

图 4 给出了分别在 $5, 10, 15, 20 \text{ ns}$ 4 个时刻,靶材内部温度、吸收系数、热导率、密度和电导率的变化情况。由图 4 可以看出,随着时间的推移,由于靶材内部温度的逐渐升高,吸收系数等参数在靶材内部也发生变化。在 20 ns 时,靶面温度达到 $0.9T_c$,因此,吸收系数等参数在靶面处最小。靶材内部热物理参数和光学参数曲线有不连续点,这是因为基于文献[12]的实验数据,铝的电导率、热导率在熔化温度时会有突变,因此本计算模型中,在熔化温度下,与电导率相关的反射率、吸收系数等参数也会发

生突变;此外,认为在靶材温度达到 $0.8T_c$ 以上,由于自由电子的大量减少,靶材会失去其金属属性,烧

蚀层对于入射激光而言变得透明,对于激光吸收减弱,靶材物理参数均会发生突变。

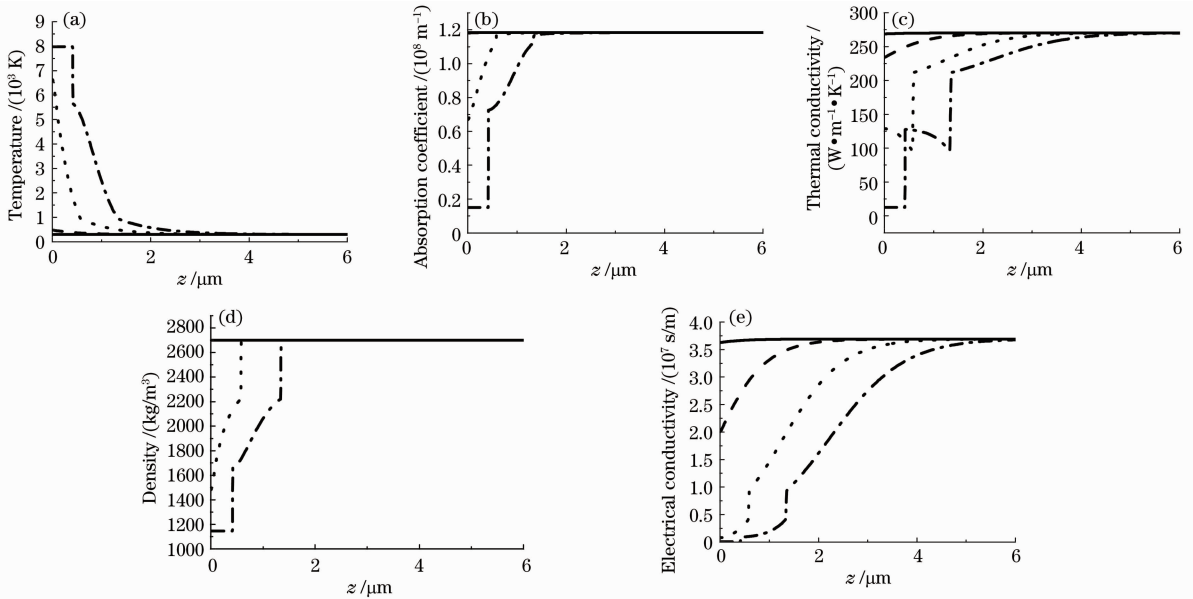


图4 (a)温度,(b)吸收系数,(c)热导率,(d)密度和(e)电导率在铝靶内部的分布情况(实线代表 5 ns, 虚线代表 10 ns, 点线代表 15 ns, 点划线代表 20 ns)

Fig. 4 Spatial profile of Al target's (a) temperature, (b) absorption coefficient, (c) thermal conductivity, (d) density and (e) electrical conductivity at different time of 5 ns (solid line), 10 ns (dashed line), 15 ns (dotted line), and 20 ns (dash-dotted line)

6 结 论

纳秒激光烧蚀过程中,靶材的光学和热物理性质并不是固定不变时,而是随着温度变化而改变。当温度接近临界温度时,烧蚀层属性将发生改变由金属向非金属转变,通过两个温度区域的划分,建立了吸收系数、热导率、反射率、电导率和密度的计算模型,并结合一维热传导方程,计算了以上参数的时空分布特性,计算结果与已有实验测量结果符合较好。同时,为了验证模型的正确性,计算了烧蚀深度随激光能量的变化情况,结果表明,当以上参数为固定值时,烧蚀深度比实验结果偏大,计算结果与实验结果符合较好。这说明,在激光烧蚀过程中,必须考虑热物理和光学参数随温度变化的特点。最后,应指出的是所建立的模型考虑的是纯铝材料,具体物理参数随温度改变而变化,目前所建立的模型还不能处理合金材料。

参 考 文 献

1 D Marla, U V Bhandarkar, S S Joshi. Critical assessment of the issues in the modeling of ablation and plasma expansion processes in the pulsed deposition of metals [J]. *J Appl Phys*, 2011, 109 (2): 021101.
2 A V Gusarov, I Smurov. Thermal model of nanosecond pulsed

laser ablation: analysis of energy and mass transfer [J]. *J Appl Phys*, 2005, 97(1): 014307.
3 N M Bulgakova, A V Bulgakov. Pulsed laser ablation of solids: transition from normal vaporization to phase explosion [J]. *Appl Phys A: Mater Sci Process*, 2001, 73(2): 199–208.
4 L V Zhigilei, B J Garrison. Microscopic mechanisms of laser ablation of organic solids in the thermal and stress confinement irradiation regimes [J]. *J Appl Phys*, 2000, 88(3): 1281–1299.
5 D Kim, C P Grigoropoulos. Phase-change phenomena and acoustic transient generation in the pulsed laser induced ablation of absorbing liquids [J]. *Applied Surface Science*, 1998, 127: 53–58.
6 Han Jinghua, Feng Guoying, Yang Liming, *et al.*. Influence of the high-repetition-pulsed laser beam size on the damage characteristics of absorbing glass [J]. *Acta Physica Sinica*, 2011, 60(2): 028106.
韩敬华, 冯国英, 杨李茗, 等. 高重复频率激光脉冲光束大小对吸收玻璃损伤特征的研究[J]. *物理学报*, 2011, 60(2): 028106.
7 K H Song, X Xu. Explosive phase transformation in excimer laser ablation [J]. *Appl Surf Sci*, 1998, 127: 111–116.
8 Benxin Wu, Y C Shin. Absorption coefficient of aluminum near the critical point and the consequences on high-power nanosecond laser ablation [J]. *Appl Phys Lett*, 2006, 89(11): 111902.
9 Z Chen, A Bogaerts. Laser ablation of Cu and plume expansion into 1 atm ambient gas [J]. *J Appl Phys*, 2005, 97(6): 063305.
10 S H Tavassoli, M Khalaji. Laser ablation of preheated copper samples [J]. *J Appl Phys*, 2008, 103(8): 083118.
11 M Aghaei, S Mehrabian, S H Tavassoli. Simulation of nanosecond pulsed laser ablation of copper samples: a focus on laser induced plasma radiation [J]. *J Appl Phys*, 2008, 104(5): 053303.
12 R Brandt, G Neuer. Electrical resistivity and thermal

- conductivity of pure aluminum and aluminum alloys up to and above the melting temperature [J]. *Int J Thermophys*, 2007, 28(5): 1429–1446.
- 13 N Pierron, P Sallamand, S Mattei. Study of magnesium and aluminum alloys absorption coefficient during Nd:YAG laser interaction [J]. *Appl Surf Sci*, 2007, 253(6): 3208–3214.
- 14 O Benavides, O Lebedeva, V Golikov. Reflection of nanosecond Nd:YAG laser pulses in ablation of metals [J]. *Opt Express*, 2011, 19(22): 21842–21848.
- 15 C Porneala, D A Willis. Effect of the dielectric transition on laser-induced phase explosion in metals [J]. *Int J Heat Mass Transfer*, 2006, 49(11-12): 1928–1936.
- 16 H Z Zhuang, X W Zou, Z Z Jinn, *et al.*. Metal-nonmetal transition of fluid Cs along the liquid-vapor coexistence curve [J]. *Physica B*, 1998, 253(1-2): 68–72.
- 17 A Gragossian, S H Tavassoli, B Shokri. Laser ablation of aluminum from normal evaporation to phase explosion [J]. *J Appl Phys*, 2009, 105(10): 103304.
- 18 Germain Chartier. *Introduction to Optics* [M]. London: Hermes Science Publications, 2005. 351–364.
- 19 E G Gamaly, A V Rode, B Luther-Davies, *et al.*. Ablation of solids by femtosecond lasers: ablation mechanism and ablation thresholds for metals and dielectrics [J]. *Physics of Plasmas*, 2002, 9(3): 949–957.
- 20 Yang Hongyan, Xiao Gongli. Effect of refractive index on extraordinary transmission properties for metal-dielectric-metal photonic crystal [J]. *Acta Optica Sinica*, 2012, 32(7): 0716002.
- 杨宏艳, 肖功利. 折射率对金属-电介质-金属光子晶体强透射特性的影响[J]. *光学学报*, 2012, 32(7): 0716002.
- 21 Wu Lixiong, Ye Xisheng, Wang Lijun, *et al.*. Reflectance of epoxy/organsilicone composite coating at 1.3 μm under laser irradiation [J]. *Acta Optica Sinica*, 2011, 31(8): 0814002.
- 吴丽雄, 叶锡生, 王立君, 等. 激光作用下环氧/硅树脂复合涂层的 1.3 μm 反射特性研究[J]. *光学学报*, 2011, 31(8): 0814002.
- 22 Ionut Vladoiu, Mihai Stafe, Ion M Popescu. The influence of spot diameter, fluence and wavelength of the nanosecond laser pulse on the ablation rate of aluminum [J]. *U P B Sci Bull, Series A*, 2007, 69(3): 81–88.
- 23 Gao Xun, Song Xiaowei, Guo Kaimin, *et al.*. Optical emission spectral characteristics of glass plasma induced by nanosecond laser pulse [J]. *Chinese J Lasers*, 2011, 38(3): 0315002.
- 高 勋, 宋晓伟, 郭凯敏, 等. 纳秒激光烧蚀光学玻璃的等离子体发射光谱特性[J]. *中国激光*, 2011, 38(3): 0315002.
- 24 Yang Libing, Liu Xufa, Zhang Kexing, *et al.*. Dynamic studies of laser reflectivity of aluminum target [J]. *High Power Laser and Partical Beams*, 1994, 6(1): 99–106.
- 杨礼兵, 刘绪发, 张可星, 等. 铝靶激光反射率的动态研究[J]. *强激光与粒子束*, 1994, 6(1): 99–106.
- 25 V N Korobenko, A D Rakhel, A I Savvatimski, *et al.*. Erratum: measurement of the electrical resistivity of hot aluminum passing from the liquid to gaseous state at supercritical pressure [J]. *Phys Rev B*, 2005, 71(9): 099902.

栏目编辑: 宋梅梅