

飞秒脉冲激光烧蚀金膜的相变传热研究

赵士强 李 凌

上海理工大学能源与动力工程学院, 上海 200093

摘要 采用双温度模型,对飞秒单脉冲激光照射下金膜的烧蚀过程进行了研究,通过界面能量平衡方程成核动力学方程和气体动力学定律对烧蚀过程中的固-液以及气-液界面进行了追踪。对考虑非傅里叶效应的双重双曲线两步(DHTS)模型和抛物线两步(PTS)模型的模拟结果进行了对比研究,并分析了激光和金属薄膜参数对烧蚀过程的影响。结果表明:对于飞秒激光烧蚀过程,DHTS模型的模拟结果比PTS模型的模拟结果更接近于实验数据,相同条件下DHTS模型得到的熔化以及烧蚀深度会明显高于PTS模型得到的结果;激光能量密度越大,激光脉冲宽度越小激光烧蚀的深度越深,而薄膜越厚烧蚀越弱。

关键词 激光光学;飞秒激光;抛物线两步模型;双重双曲线两步模型;气-液界面;烧蚀过程

中图分类号 TN249 **文献标识码** A

doi: 10.3788/AOS201535.1214001

Numerical Investigation of Phase Change during Thermal Ablation of Gold Films Induced by Femtosecond Laser

Zhao Shiqiang Li Ling

School of Energy and Power Engineering, University of Shanghai for Science and Technology, Shanghai 200093, China

Abstract Thermal ablation process of gold film irradiated by a single femtosecond pulse laser is investigated using the two-temperature model. The phase change interface is obtained by considering the interface energy balance equation and gas kinetics law. Comparisons between numerical results with the dual-hyperbolic two-step (DHTS) model and the parabolic two-step (PTS) model are presented, the effects of laser parameters and film thickness on thermal ablation process are also investigated. Results show that compared with PTS model, the DHTS model is more close to the experimental results, the melting and ablation depth of the DHTS model are much higher than the results of the PTS model in the same conditions, and with increasing laser fluence or decreasing pulse width, the ablation depth is gradually increased, the film thickness has a slightly effect on the thermal ablation process.

Key words laser optics; femtosecond laser; parabolic two-step model; dual-hyperbolic two-step model; liquid-vapor interface; ablation process

OCIS codes 140.3390;140.6810;310.6870;320.2250

1 引 言

自从超短脉冲激光开始用于材料加工以来,由于其独特的加工优势很快得到人们广泛的关注^[1-3],目前激光技术已经广泛的应用于工业加工以及医疗领域^[4-5]。随着对激光领域的深入研究,激光脉宽变得越来越短,飞秒激光的出现不仅可以提高加工精度,还能加工长脉冲激光不能加工的透明材料^[6-7],因此被认为是未来制造工业的关键技术之一。

在激光和材料的相互作用过程中,当激光脉宽接近于电子碰撞的平均自由时间时,电子和晶格之间的不平衡传热将变得尤为重要^[8-9]。为了描述这种不平衡的传热过程,前苏联学者 Anisimov 等^[10]首先提出了著名的建立在傅里叶导热定律基础上的双温度模型,也称为抛物线两步(PTS)模型,该模型被广泛的应用在对激光材

收稿日期: 2015-05-28; 收到修改稿日期: 2015-07-21

基金项目: 国家自然科学基金(51476102)

作者简介: 赵士强(1991—),男,硕士研究生,主要从事激光与物质相互作用方面的研究。E-mail: zhaoshiqiang91@163.com

导师简介: 李 凌(1976—),女,博士,副教授,主要从事微尺度传热方面的研究。E-mail: lilong@usst.edu.cn (通信联系人)

料加工的模拟中^[11-12]。然而傅里叶导热定律是基于热传播速度无限大的条件下提出的,因此为了考虑电子弛豫效应的影响,Qiu等^[9]基于玻尔兹曼方程严格推导出了一个更通用的双曲线两步(HTS)模型。在低能量密度下,Qiu等^[13-14]证明了PTS模型和HTS模型模拟的结果均能和实验所得电子温度吻合的良好。Chen等^[15]认为HTS模型并不能很好地描述晶格的温度,因为它并没有考虑热传递在晶格之中的影响,因此他们提出了双重双曲线两步(DHTS)模型,并将它和其他模型进行对比,认为DHTS模型可以提供更精确的热响应。

目前对飞秒激光和金属材料的相互作用机理已有大量的研究,但很多都是采用PTS模型^[16-17]。而在处理飞秒激光加工材料的过程中,由于激光脉宽接近或者小于电子和晶格的弛豫时间,需要考虑非傅里叶效应的影响,尤其是发生快速的熔化、气化或是凝固等相变过程时。本文主要研究飞秒单脉冲激光烧蚀金薄膜过程中发生的各种相变传热现象,在模拟过程中将分别采用PTS模型和DHTS模型,并将结果进行对比分析,在此基础上,探讨激光参数和薄膜厚度对烧蚀过程的影响。

2 物理模型

图1给出了物理模型,一束高斯激光从右侧对金薄膜进行照射,薄膜的厚度为 L ,初始温度为 T_i ,激光的脉冲宽度和激光能量密度分别为 t_p 和 J 。由于金薄膜的厚度相对于激光束的半径来说很小,因此近似为一维问题。

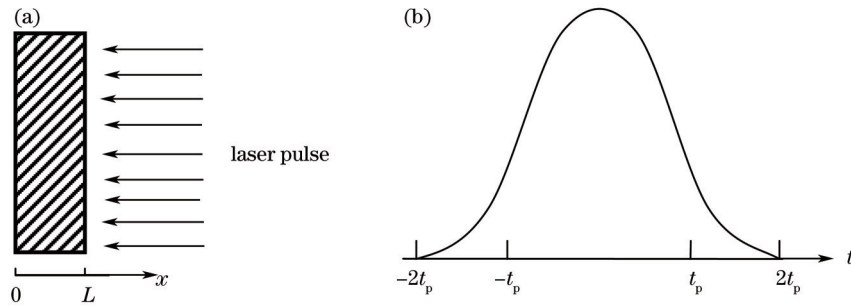


图1 物理模型。(a)激光照射金薄膜表面;(b)激光脉冲

Fig.1 Physical model. (a) Laser irradiation on gold thin film; (b) laser pulse

自由电子和晶格的PTS模型为^[10]:

$$C_e \frac{\partial T_e}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left(k_c \frac{\partial T_e}{\partial x} \right) - G(T_e - T_l) + S, \quad (1)$$

$$C_l \frac{\partial T_l}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left(k_l \frac{\partial T_l}{\partial x} \right) + G(T_e - T_l). \quad (2)$$

考虑到电子和晶格弛豫效应的影响,由Chen等^[15]发展的DHTS模型表示如下:

$$C_e \frac{\partial T_e}{\partial t} + C_e \tau_e \frac{\partial^2 T_e}{\partial t^2} = \frac{\partial}{\partial x} \left(k_c \frac{\partial T_e}{\partial x} \right) - G(T_e - T_l) + S - G\tau_e \left(\frac{\partial T_e}{\partial t} - \frac{\partial T_l}{\partial t} \right) + \tau_e \frac{\partial S}{\partial t}, \quad (3)$$

$$C_l \frac{\partial T_l}{\partial t} + C_l \tau_l \frac{\partial^2 T_l}{\partial t^2} = \frac{\partial}{\partial x} \left(k_l \frac{\partial T_l}{\partial x} \right) + G(T_e - T_l) + G\tau_l \left(\frac{\partial T_e}{\partial t} - \frac{\partial T_l}{\partial t} \right), \quad (4)$$

式中 T 为温度; t 为时间; x 为深度; C 为单位体积热容; K 为热传导率; τ 为弛豫时间;下标 e 和 l 分别表示电子和晶格; G 为电子和晶格的耦合系数; S 为热源。上述模型中的参数可以从参考文献[12]中获得。

对于电子晶格的耦合系数 G ,在金属被高能量的激光加热后,电子和晶格温度会发生剧烈变化,因此 G 用温度的相关函数表示^[18]:

$$G = G_{RT} \left[\frac{A_e}{B_l} (T_e + T_l) + 1 \right], \quad (5)$$

式中 G_{RT} 表示室温时电子和晶格的耦合系数, A_e 和 B_l 为材料相关的常数。

从 $t=-2t_p$ 开始计算,初始条件为:

$$T_e(x, -2t_p) = T_l(x, -2t_p) = T_i, \quad (6)$$

$$\frac{\partial T_e}{\partial t} = \frac{\partial T_l}{\partial t} = 0. \quad (7)$$

激光照射的薄膜右侧考虑辐射热损失的影响,左侧视为绝热边界条件:

$$\left. \frac{\partial T_c}{\partial x} \right|_{x=0} = \left. \frac{\partial T_l}{\partial x} \right|_{x=0} = \left. \frac{\partial T_c}{\partial x} \right|_{x=L} = 0, \quad (8)$$

$$q''|_{x=L} = \sigma \varepsilon (T_{\text{sur}}^4 - T_{\infty}^4), \quad (9)$$

式中在气化过程发生之前 T_{sur} 表示在 $x=L$ 处即薄膜表面的晶格温度,而气化过程发生后 T_{sur} 则表示气-液界面的温度; σ 是斯忒藩-玻尔兹曼常数; q'' 是热流密度; ε 是金属的总发射率; T_{∞} 表示周围环境温度。

对于烧蚀过程中发生的相变特性,采用基于界面能量平衡方程、成核动力学方程和气体动力学的界面追踪方法进行研究^[19-20]。

3 结果与讨论

3.1 验证和模型比较

采用隐式有限体积法模拟单脉冲激光和金属的相互作用过程,取均匀的 2502 个网格,步长为 1 fs。模拟从 $t=-2t_p$ 开始,金膜初始温度为 300 K,电子和晶格的弛豫时间分别为 40 fs 和 800 fs^[15]。为了对算法进行验证,首先分别采用 PTS 模型和 DHTS 模型对金膜的烧蚀过程进行了模拟,损伤阈值为刚好能使金膜右表面发生熔化时的激光能量密度,可通过调试程序获得,并将结果同实验数据^[21-22]进行了对比,如图 2 所示。从图中可以看出当激光脉宽为 600 fs 时,PTS 模型和 DHTS 模型之间的差异较小,且都和实验数据吻合良好;但是当脉冲宽度减小到 28 fs 时,可以看到两者之间差异明显变大,DHTS 模型和实验结果基本吻合,但是 PTS 模型已经偏离了实验值。因此说明当激光脉宽较小时,DHTS 模型能够得到和实验数据更接近的结果。

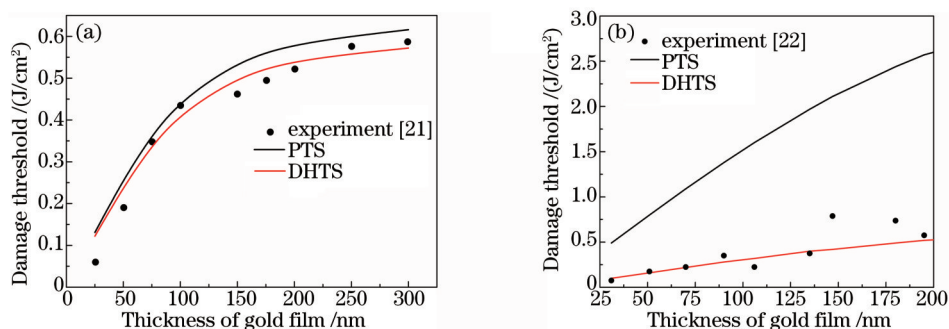


图 2 两个不同模型的损伤阈值和实验数据的比较。(a) $T_p=600$ fs 和 $R=0.94$; (b) $T_p=28$ fs 和 $R=0.98$
Fig.2 Comparison between present results with different models and experimental data of damage threshold.

(a) $T_p=600$ fs 和 $R=0.94$; (b) $T_p=28$ fs 和 $R=0.98$

进而对激光能量密度为 0.5 J/cm^2 、脉冲宽度为 120 fs 以及金膜厚度为 $1 \mu\text{m}$ 时的烧蚀过程进行了模拟研究。图 3 为不同模型下熔化发生时固-液界面特性随时间的变化情况。可以看出 DHTS 模型的曲线都明显高于 PTS 模型的曲线,计算得到的 DHTS 模型的熔化界面温度最大值为 4265 K,PTS 模型的温度最大值为 2886 K,两者之间的差距为 1379 K,但两者到达最大值的时间几乎相等,都在 24 ps 左右。DHTS 模型和 PTS 模型的最大速度分别为 701 m/s 和 591 m/s,最终导致的熔化深度分别为 258 nm 和 134 nm。图 4 对比了不同模型下气-液界面的特性。从图中可以发现 DHTS 模拟的结果明显大于 PTS 模拟的结果,DHTS 模型的气-液界面最大温度为 4784 K,PTS 模型的最大温度为 3285 K,两者之间差距为 1499 K。由 DHTS 模型和 PTS 模型得到的最大界面速度分别为 0.2 m/s 和 0.0095 m/s,烧蚀深度分别为 0.012 nm 和 0.0003 nm。可以看出和熔化相比,气-液界面的速度以及深度都要小得多。上述 DHTS 模型和 PTS 模型模拟结果之间的巨大差异主要是由(3)式中最后一项引起的,把 $-G(T_c - T_l) + S$ 看作 S' ,当模拟开始时 $S > G(T_c - T_l)$,因此 $S' > 0$ 而且它是逐渐增加的;对于 $\tau_c \frac{\partial S'}{\partial t}$ 近似的可以写为 $\tau_c \frac{\Delta S'}{\Delta t}$,对于飞秒激光来说 $\frac{\tau_c}{\Delta t} > 1$,这就表示 $\frac{\tau_c}{\Delta t} \cdot S' \Delta t$ 要比金膜在 Δt 时间内吸收的能量 ($S' \Delta t$) 高。实际上,在激光照射金属时 DHTS 模型就是把最后一项处理成了一个额外的源项,因此传热被加强了。DHTS 模型的界面温度比 PTS 模型的高就说明了 DHTS 模型将会在比较低的能量密度下就达到临界温度。

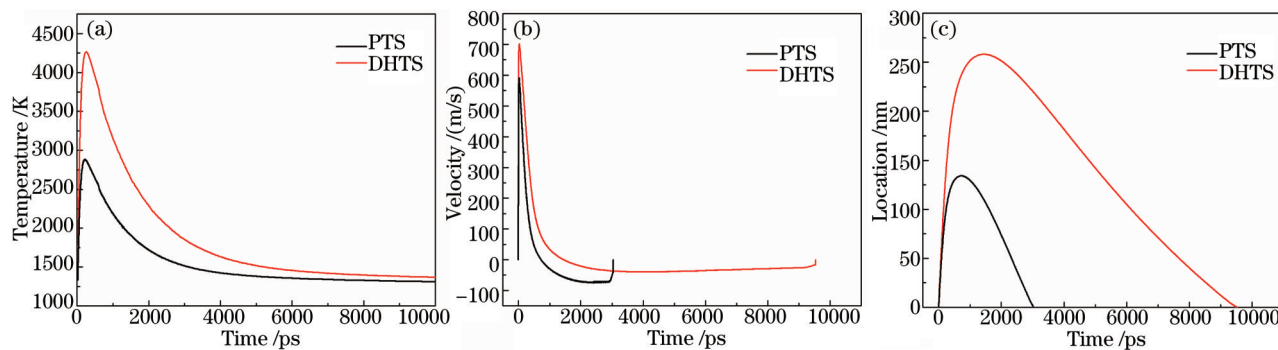


图3 不同模型下固-液界面(a)温度、(b)速度以及(c)位置随时间的变化($L=1 \mu\text{m}$, $J=0.5 \text{ J/cm}^2$, $t_p=120 \text{ fs}$)

Fig.3 (a) Temperature, (b) velocity and (c) location vary with time of solid-liquid interface in different models ($L=1 \mu\text{m}$, $J=0.5 \text{ J/cm}^2$, $t_p=120 \text{ fs}$)

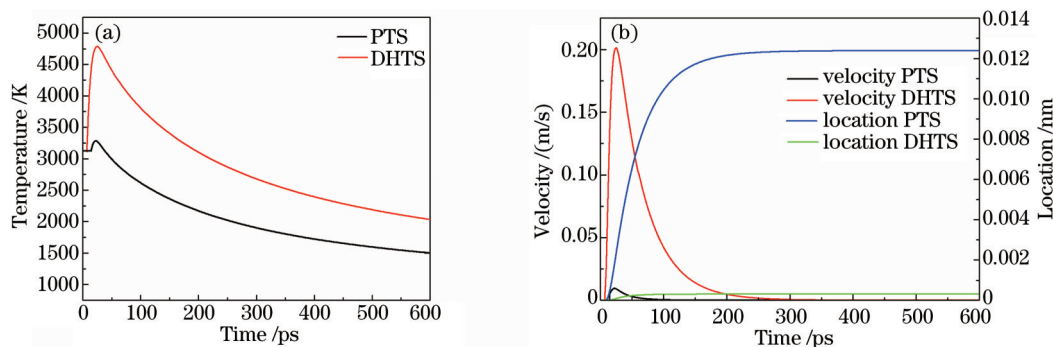


图4 不同模型下气-液界面(a)温度、(b)速度以及位置随时间的变化($L=1 \mu\text{m}$, $J=0.5 \text{ J/cm}^2$, $t_p=120 \text{ fs}$)

Fig.4 (a) Temperature, (b) velocity and location vary with time of liquid-vapor interface in different models ($L=1 \mu\text{m}$, $J=0.5 \text{ J/cm}^2$, $t_p=120 \text{ fs}$)

图5给出了烧蚀深度在不同模型下随激光脉宽的变化曲线。可以看到DHTS模型造成的烧蚀深明显比PTS模型深,当激光脉宽小于200 fs时两者之间的差距很大同时DHTS模型的曲线在快速的下降,当 $t_p=120 \text{ fs}$ 时DHTS模型的烧蚀深度为0.01 nm而PTS模型只有0.0003 nm。当脉冲宽度大于200 fs时,DHTS模型的曲线下降的速度逐渐趋于平缓,同时两者之间的差距逐渐减小,在 $t_p=1000 \text{ fs}$ 时DHTS模型和PTS模型的烧蚀深度分别为0.00047 nm和0.00026 nm,也就是说当达到皮秒量级后两种模型得到的烧蚀深度将保持在一个量级并基本可以忽略。

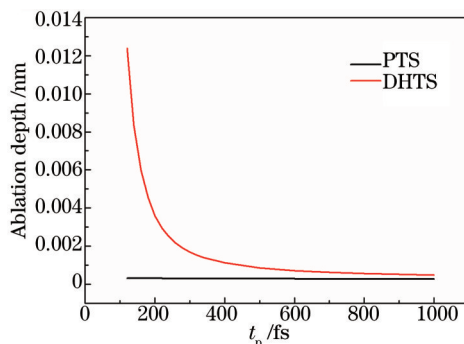


图5 不同模型下烧蚀深度随脉冲宽度的变化($L=1 \mu\text{m}$, $J=0.5 \text{ J/cm}^2$)

Fig.5 Ablation depth with different t_p in different models ($L=1 \mu\text{m}$, $J=0.5 \text{ J/cm}^2$)

3.2 DHTS 模型下的相变传热研究

进一步研究了在DHTS模型下激光参数对烧蚀过程的影响。图6显示了在金膜厚度为 $1 \mu\text{m}$ 以及激光脉宽保持在120 fs的情况下气-液界面的温度、速度和位置随激光能量密度的变化情况。可以很明显的看到气-液界面的温度会先增大到一个峰值后再逐渐减小,激光能量密度越低能达到的峰值温度越小,但是到达峰值的时间几乎都在24 ps左右。和界面温度相同,较低的激光能量密度将导致较小的界面移动速度,最终导致烧蚀深度越

小。在图6(c)中可以看出,0.5 J/cm²的激光能量密度可以导致0.012 nm的烧蚀深度,相比于金膜厚度要小的多。图7为最大界面温度和速度同激光能量密度之间的关系。从图7(a)可以看到随着激光能量密度的增大最大界面温度会逐渐升高,同时最大界面温度和激光能量密度之间有明显的线性关系,这意味着在烧蚀过程中最大的气-液界面的温度是可以通过激光的参数被推算出来,当 $J=0.52 \text{ J/cm}^2$ 时,最大的界面温度可以达到4968 K。图7(b)显示了随着激光能量密度的增加最大界面速度也会逐渐增加,当 $J=0.52 \text{ J/cm}^2$ 时界面速度可以达到0.24 m/s。

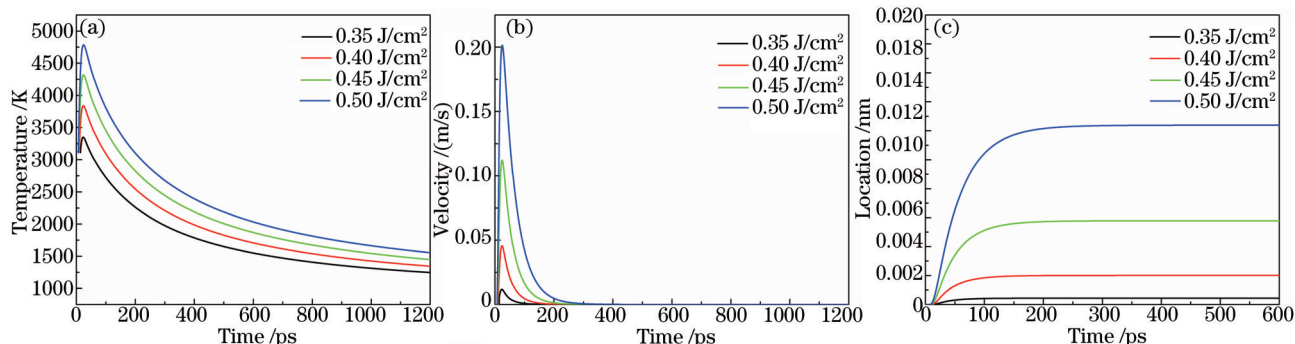


图6 激光能量密度对烧蚀过程的影响($L=1 \mu\text{m}$, $t_p=120 \text{ fs}$)

Fig.6 Influence of laser fluence on liquid-vapor interface ($L=1 \mu\text{m}$, $t_p=120 \text{ fs}$)

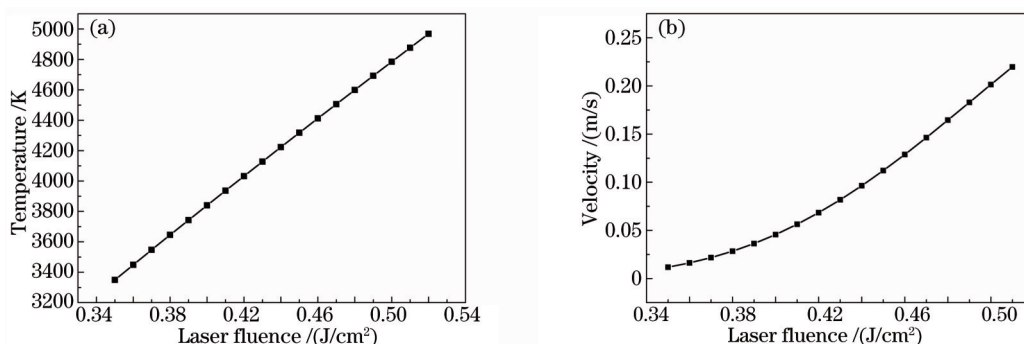


图7 (a)最大界面温度和(b)界面速度随激光能量密度的变化($L=1 \mu\text{m}$, $t_p=120 \text{ fs}$)

Fig.7 (a) Maximum interface temperature and (b) maximum interface velocity with different J ($L=1 \mu\text{m}$, $t_p=120 \text{ fs}$)

激光脉宽也是影响烧蚀过程的一个重要因素,因此保持金膜厚度为 $1 \mu\text{m}$ 和激光能量密度为 0.4 J/cm^2 不变,图8(a)给出了气-液界面位置随激光脉宽的变化关系。可以看出和激光能量密度相反,随着激光脉宽的增大烧蚀深度会逐渐的减小。图8(b)显示了在激光能量密度为 0.4 J/cm^2 和激光脉宽为 100 fs 情况下,界面位置随靶材厚度的变化关系,和激光脉宽相同,薄膜厚度越厚烧蚀深度也越小,但是同时可以看出相比于激光参数,薄膜的厚度对烧蚀过程影响较小。

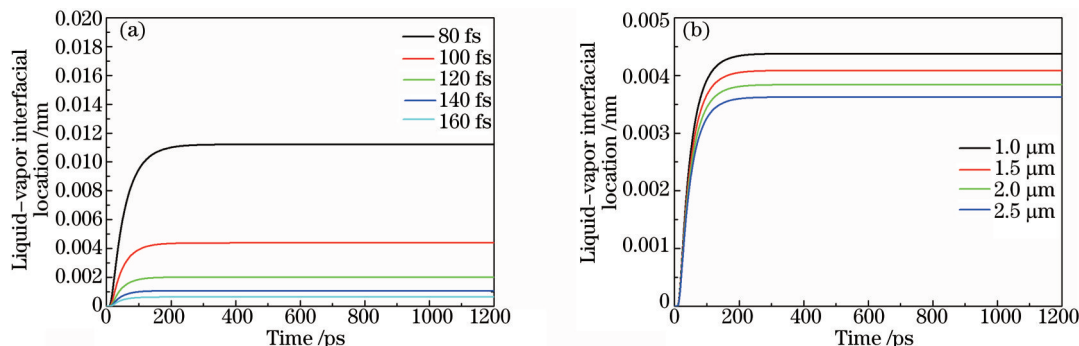


图8 烧蚀深度随(a)脉冲宽度和(b)薄膜厚度的变化

Fig.8 Influence of (a)laser pulse width and (b)film thickness on ablation depth

4 结 论

分别采用PTS模型和DHTS模型对飞秒单脉冲激光烧蚀金膜的相变传热过程进行了模拟研究,将基于

界面能量平衡方程、成核动力学方程和气体动力学的界面追踪方法相耦合来追踪固-液界面以及气-液界面,并讨论了激光参数对烧蚀过程的影响。研究发现当激光脉宽较大时,两个模型的结果基本一致,而对于较短的激光脉冲,DHTS模型能够得到和实验值更接近的结果。进一步的计算结果表明当脉冲宽度大于200 fs时两个模型之间的差距逐渐减小,当脉冲宽度小于200 fs时DHTS模型的烧蚀深度要比PTS模型深的多,但是会快速的下降。同时较强的激光能量密度、较短的激光脉宽将导致较高的界面温度和速度,最终导致较大的烧蚀深度,并且激光能量密度和气-液界面最大温度基本呈线性关系。薄膜的厚度也会对烧蚀过程有影响,但是和激光参数相比,其影响较小。

参 考 文 献

- 1 Cheng J, Liu C S, Shang S, *et al.*. A review of ultrafast laser materials micromachining[J]. Optics & Laser Technology, 2013, 46: 88-102.
- 2 Chang Hao, Jin Xing, Chen Zhaoyang. Study on optical and thermophysical properties of aluminum under nanosecond laser irradiation [J]. Acta Optica Sinica, 2013, 33(11): 1114002.
常 浩, 金 星, 陈朝阳. 纳秒激光辐照下铝靶的光学与热物理性质研究[J]. 光学学报, 2013, 33(11): 1114002.
- 3 Xia Bo, Jiang Lan, Wang Sumei, *et al.*. Femtosecond laser drilling of micro-holes[J]. Chinese J 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.
- 4 Sugioka K, Meunier M, Piqué A. Laser Precision Microfabrication[M]. Dordrecht: Springer, 2010.
- 5 Wu Wenjuan, Li Dong, Xing Linzhuang, *et al.*. Dynamic characteristics of vascular morphology after 1064 nm laser exposure[J]. Chinese J Lasers, 2014, 41(3): 0304001.
吴文娟, 李 东, 邢林庄, 等. 1064 nm 激光照射下血管形态的动态变化[J]. 中国激光, 2014, 41(3): 0304001.
- 6 Tönshoff H K, Momma C, Ostendorf A, *et al.*. Microdrilling of metals with ultrashort laser pulses[J]. Journal of Laser Applications, 2000, 12(1): 23-27.
- 7 Perry M D, Stuart B C, Banks P S, *et al.*. Ultrashort-pulse laser machining of dielectric materials[J]. Journal of Applied Physics, 1999, 85(9): 6803-6810.
- 8 Corkum P B, Brunel F, Sherman N K, *et al.*. Thermal response of metals to ultrashort-pulse laser excitation[J]. Physical Review Letters, 1988, 61(25): 2886-2889.
- 9 Qiu T Q, Tien C L. Heat transfer mechanisms during short-pulse laser heating of metals[J]. Journal of Heat Transfer, 1993, 115: 835-841.
- 10 Anisimov S I, Kapeliovich B L, Perel' man T L. Electron emission from metal surfaces exposed to ultrashort laser pulses[J]. Sov Phys JETP, 1974, 39: 375-377.
- 11 Tzou D Y, Chen J K, Beraun J E. Hot-electron blast induced by ultrashort-pulsed lasers in layered media[J]. International Journal of Heat and Mass Transfer, 2002, 45: 3369-3382.
- 12 Shao Junfeng, Guo Jin, Wang Tingfeng. Thermal behavior of metal thin film irradiated by femtosecond double-pulse laser[J]. High Power Laser and Particle Beams, 2014, 26(09): 091017.
邵俊峰, 郭 劲, 王挺峰. 飞秒双脉冲激光照射金属薄膜的热行为[J]. 强激光与粒子束, 2014, 26(09): 091017.
- 13 Qiu T Q, Juhasz T, Suarez C, *et al.*. Femtosecond laser heating of multi-layer metals—II, experiments[J]. International Journal of Heat and Mass Transfer, 1994, 37: 2799-2808.
- 14 Brorson S D, Fujimoto J G, Ippen E P. Femtosecond electronic heat-transport dynamics in thin gold films[J]. Physical Review Letters, 1987, 59: 1962-1965.
- 15 Chen J K, Beraun J E. Numerical study of ultrashort laser pulse interactions with metal films[J]. Numerical Heat Transfer, Part A: Applications, 2001, 40: 1-20.
- 16 Preuss S, Demchuk A, Stuke M. Sub-picosecond UV laser ablation of metals[J]. Applied Physics A, 1995, 61: 33-37.
- 17 Momma C, Nolte S, Chichkov B N, *et al.*. Precise laser ablation with ultrashort pulses[J]. Applied Surface Science, 1997, 109: 15-19.
- 18 Chen J K, Latham W P, Beraun J E. The role of electron - phonon coupling in ultrafast laser heating[J]. Journal of Laser Applications, 2005, 17(1): 63-68.
- 19 Y W Zhang, J K Chen. An interfacial tracking method for ultrashort pulse laser melting and resolidification of a thin metal film[J]. Journal of Heat Transfer, 2008, 130: 062401-062410.
- 20 Jing Huang, Yuwen Zhang, J K Chen. Ultrafast solid - liquid - vapor phase change of a gold film induced by pico- to femtosecond lasers [J]. Applied Physics Section A: Materials Science and Processing, 2009, 95: 643-653.
- 21 Stuart B C, Feit M D, Herman S, *et al.*. Optical ablation by high-power short-pulse lasers[J]. JOSA B, 1996, 13(2): 459-468.
- 22 Krüger J, Dufft D, Koter R, *et al.*. Femtosecond laser-induced damage of gold films[J]. Applied Surface Science, 2007, 253(19): 7815-7819.