

三束飞秒激光辐照下铜膜内电子非平衡热输运

许孝芳¹, 李晓良¹, 王庆伟¹, 杨逢逢¹, 高永锋¹, 李晓天²

(1. 江苏大学 机械工程学院, 江苏 镇江 212013;

2. 中国科学院长春光学精密机械与物理研究所, 吉林 长春 130000)

摘要: 首先采用有限元法数值计算了铜膜内的电子温度和晶格温度分布变化, 揭示了铜膜内电子非平衡热输运时间随飞秒激光光束参量的变化情况。仿真结果表明, 铜膜内的电子非平衡热输运时间会随着泵浦光束数量及脉冲能量密度的增加而增加, 并且使用三束飞秒泵浦激光作用时, 电子非平衡热输运时间比单脉冲作用时的电子非平衡热输运时间增加了 3 倍。其次使用三束飞秒激光泵浦的泵浦-探测实验系统进行验证。实验结果表明: 通过用具有一定延时的三束飞秒泵浦激光作用铜膜时, 铜膜表面的瞬态反射率出现三次突变, 使电子非平衡热输运时间得到极大延长, 从而大幅度消除激光加工热障, 并提高加工的质量、精度和效率。

关键词: 非平衡热输运; 飞秒激光; 电子温度; 瞬态反射率

中图分类号: O510.20 **文献标志码:** A **DOI:** 10.3788/IRLA201948.0206001

Non-equilibrium heat transport of electron in Cu films irradiated by three femtosecond laser beams

Xu Xiaofang¹, Li Xiaoliang¹, Wang Qingwei¹, Yang Fengfeng¹, Gao Yongfeng¹, Li Xiaotian²

(1. School of Mechanical Engineering, Jiangsu University, Zhenjiang 212013, China;

2. Changchun Institute of Optics, Fine Mechanics and Physics, Chinese Academy of Sciences, Changchun 130000, China)

Abstract: To observe the changes of electron non-equilibrium heat transport time with the femtosecond laser beam parameters in the Cu films, the electron and the lattice temperature curves were studied based on the finite element method and the experimental testing. The simulation results show that the time of electron non-equilibrium heat transport in Cu films will rise with the increasing of both the pump beams number and the energy density of the pulses. The time of electron non-equilibrium heat transport by three pump beams heating was three times higher than that by the single pump beam heating. These results were verified by three femtosecond laser beams pump-probe experimental system. The experimental results show that the transient reflectivity of the Cu films appear three peaks when the Cu films are irradiated by three pump beams with a certain delay, and the time of electron non-equilibrium heat transport has been prolonged greatly. Consequently, the thermal barrier of the device processing is eliminated and the quality, accuracy and efficiency of the femtosecond laser processing are improved.

Key words: non-equilibrium heat transport; femtosecond laser; electronic temperature; transient reflectivity

收稿日期: 2018-09-05; 修订日期: 2018-10-15

基金项目: 国家 973 计划; 国家重点基础研究发展计划(2011CB013004); 江苏省自然科学基金青年基金(BK20150529); 中国博士后科学基金(2015M571678)

作者简介: 许孝芳(1980-), 女, 副教授, 博士, 主要从事飞秒激光泵浦探测技术方面的研究。Email: xuxf07@ujs.edu.cn

0 引言

当飞秒激光辐照金属薄膜表面时,激光光子能量将被吸收转换成材料的内能,在此过程中会产生很多热现象,例如熔融、烧蚀以及热脉冲传播等。通过这些热现象,飞秒激光技术可用于材料微加工、薄膜诊断等,常见的有飞秒激光切割^[1]和飞秒激光打孔^[2]以及太阳能陷光结构制作等。飞秒激光加工^[3]的突出优点是,加工质量好,加工时几乎无热影响区^[4]。原因是:飞秒激光对金属加热过程属于非平衡热输运过程,在此期间加热区域能量来不及扩散,材料就因为温度的急剧升高而气化。材料气化的同时将带走绝大部分热量,使周围温度变化较小,热影响区很小^[5]。然而飞秒激光也有较难以克服的缺点,其中最显著的是:飞秒激光的加工效率较低,难以实现大面积快速加工^[6]。这是因为飞秒激光的脉冲能量低,电子非平衡热输运时间短,单束飞秒激光加工^[7]时往往需要飞秒脉冲重复作用材料,因此加工效率较低。而使用多束飞秒脉冲激光^[8]的目的是延长飞秒激光作用时的电子非平衡热输运时间,这不仅可以保持飞秒脉冲冷加工的优势,而且能够提高在飞秒激光加工时的光子吸收效率,减少对飞秒激光脉冲需求,缩短加热时间,提高飞秒激光加工效率。韩泽华,周常河等^[9]研究了采用偏振光飞秒双脉冲加工铬膜所形成的烧蚀形貌与其产生的等离子体变化,其结果与单脉冲作用显著不同。邵俊峰,郭劲等^[10]建立模型分析了飞秒双脉冲作用于金薄膜时,金薄膜内部热物理参数产生的变化,相同能量密度下,双脉冲烧蚀金属薄膜比单脉冲更深。尽管有很多理论分析与实验对飞秒激光作用于金属材料展开研究,但是多束飞秒激光烧蚀金属薄膜材料^[11]的热物理学机制仍是一个特别具有挑战性的研究课题,文中研究多束飞秒激光辐照下超短时间分辨内铜薄膜内的瞬态热输运特性,通过有限元模拟分析和实验测量得出铜膜内电子热输运时间与泵浦光束数量、脉冲能量密度、脉冲宽度、薄膜厚度等参数之间的关系,以得到延长铜膜内电子非平衡热输运时间方法和手段,为飞秒激光能够更广泛地用于激光加工^[12]领域提供重要的理论依据。

1 理论分析与计算

当飞秒激光作用于金属薄膜时,薄膜内电子与

晶格之间将会出现明显的非平衡热输运现象。首先,飞秒激光辐照金属薄膜,膜内自由电子吸收激光光子能量,使得电子温度迅速升高;之后通过自由电子热扩散将热量传到金属薄膜内部,另外通过电子与晶格耦合的过程将热量传递给周围晶格^[13]。飞秒激光与金属薄膜相互作用的过程可用一维双温模型的非线性方程^[14-15]来描述:

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

$$C_l \frac{\partial T_l}{\partial t} = G(T_e - T_l) \quad (2)$$

式中: C 表示热容; T 表示温度; G 表示电子-晶格耦合系数; k 表示电子热传导系数,下标 e 和 l 分别代表电子和晶格。方程(1)、(2)的初始条件为:

$$T_e(x, t = -\infty) = T_l(x, t = -\infty) = T_0 = 300 \quad (3)$$

T_0 为初始温度,边界条件

$$\frac{\partial T_e}{\partial x} \Big|_{x=0} = \frac{\partial T_l}{\partial x} \Big|_{x=d} = 0 \quad (4)$$

式中: d 为薄膜厚度。

当费米温度高于电子温度时,电子热容可以表示成 $C_e = \gamma T_e$, $\gamma = \pi^2 n_e k_B / 2 T_F$, n_e 为电子密度, k_B 表示玻尔兹曼常数, T_F 为费米温度。 $k_e = k_0 B T_e / (A T_e^2 + B T_l)$ 表示电子热传导率, A 为电子-电子碰撞率, B 为电子-原子碰撞率;当模型处于低温状态时,电子-电子碰撞可以忽略,因此,电子热传导率可以变为 $k_e = k_0 T_e / T_l$ 。

方程中热源项 $S(x, t)$ 的脉冲激光脉冲表达式为:

$$S(x, t) = \frac{(1-R)J}{t_p \alpha} e^{-\beta \left(\frac{t-t_p}{t_p} \right)^2} e^{-\frac{x}{\alpha}} \quad (5)$$

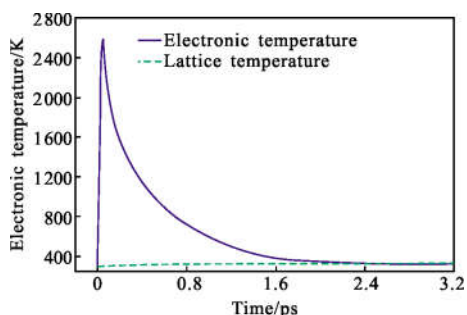
式中:激光源 $S(x, t)$ 可看作是在时域上呈高斯分布,空间上呈均匀分布的基模高斯光源; R 为表面对激光的反射率; J 表示单位面积的激光能量; t_p 表示激光脉冲的持续时间; α 表示金属对激光的吸收系数; $\beta = 4 \ln(2)$ 为系数常量。

2 仿真结果分析

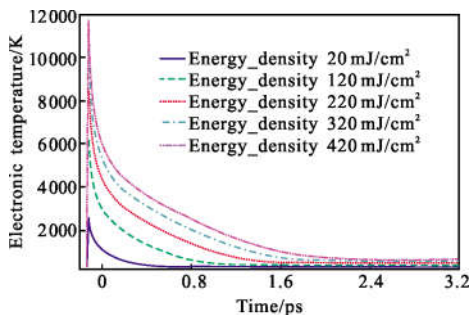
图 1 为采用 30 nm 厚的铜膜在脉冲宽度为 30 fs, 能量密度为 20 mJ/cm² 的飞秒激光辐照下的电子温度和晶格温度变化曲线图。从图 1(a)中可以看出,飞秒激光辐照铜膜后,铜膜内自由电子温度受热急速升高达到 2 600 K,其中绝大部分热量在受热区铜膜气化时消散,极少部分能量传递给晶格,晶格温度有

微小的上升,维持在 400 K 以下,之后电子-晶格产生耦合,恢复平衡。此时金属铜膜内的电-声子非平衡弛豫时间约为 2 ps,即在 2 ps 附近电子与晶格完成非平衡演化过程。

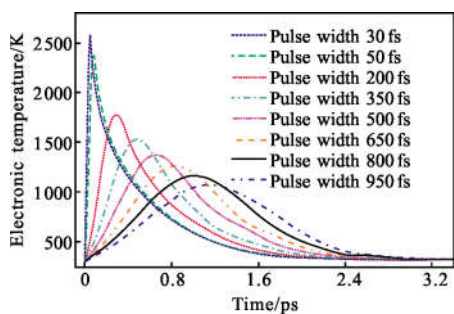
如图 1(b)所示,在激光脉宽均为 30 fs 下、不同的激光能量密度下铜薄膜内电子非平衡热输运时间与电子温度的关系曲线。笔者发现,当激光能量密度从 20 mJ/cm² 增加到 420 mJ/cm² 时,材料内在光吸收范围内的电子能量增大,所达到的峰值电子温度也从 2 600 K 增加到 11 800 K,电子非平衡热输运时间从 2 ps 增加到 6.5 ps,即电子温度和电子非平衡热输运时间于激光能量密度成正比。



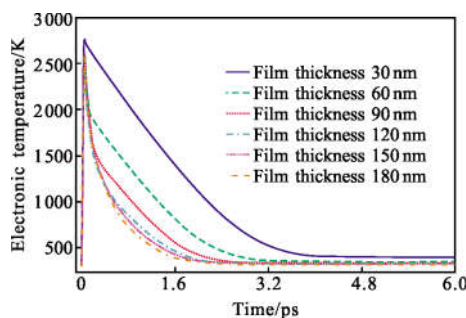
(a) 单脉冲
(a) Single pulse



(b) 不同能量密度
(b) Different energy densities



(c) 不同飞秒激光脉宽
(c) Different femtosecond laser pulse widths



(d) 不同薄膜厚度

(d) Different film thickness

图 1 飞秒激光作用下铜膜内电子温度和晶格温度随时间的变化曲线

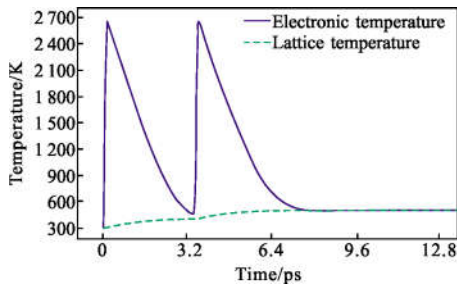
Fig.1 Variation of electronic temperature and lattice temperature in Cu film with time under femtosecond laser

图 1(c)研究激光脉冲宽度对非平衡热输运时间的影响。铜薄膜厚度 30 nm,激光能量密度 20 mJ/cm²,脉冲宽度从 30 fs 增加到 950 fs。从模拟结果看出,随脉冲宽度增加,电子峰值温度减小,其电子温度的空间分布梯度变缓,但是随脉冲宽度增加,电子非平衡热输运时间增长不明显,也就是说激光脉宽对电子非平衡热输运时间影响不显著。这是因为在相同激光能量密度的条件下,脉冲宽度越窄,单位时间内金属吸收的激光能量越多,即激光出射峰值强度越高,所以达到的峰值电子温度也越高,与样品材料作用产生的瞬间效应越明显。

图 1(d)为飞秒激光辐照铜薄膜时,薄膜内电子温度演化规律以及薄膜厚度对于材料内部电子温度变化的影响。飞秒激光脉宽为 30 fs,能量密度 20 mJ/cm²。结果显示,对于铜薄膜厚度分别为 30、60、90、120、150、180 nm 时,电子非平衡热输运时间分别约为 4、3.2、2.4、2.1、1.9、1.8 ps。由此可见,随着金属膜层厚度的增加,电子和晶格之间能量的非平衡热输运时间越短。

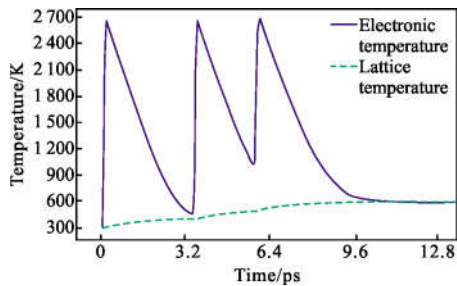
接下来着重研究能量密度 20 mJ/cm² 时,多束飞秒激光脉冲对 30 nm 厚的铜薄膜内电子非平衡热输运时间的影响。

如图 2(a)和(b)所示:当激光脉宽为 80 fs,当泵浦激光束增加从两束增加到三束时,电子温度对应的瞬态反射率峰也从两个增加到三个,薄膜内电子非平衡热输运时间从 3.8 ps 增加到 11.04 ps,即内电子非平衡热输运时间时间得到延长。如图 2(b)和(c)



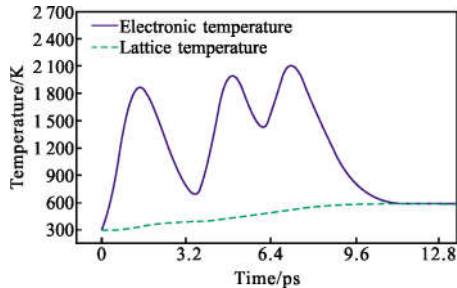
(a) 80 fs 脉宽的双束飞秒激光作用

(a) Double femtosecond laser beams with 80 fs pulse width



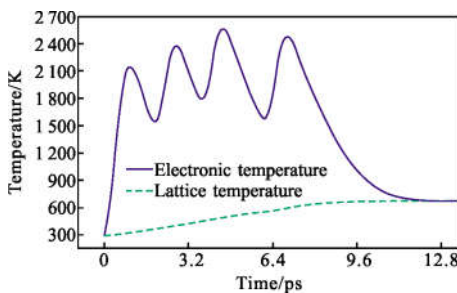
(b) 80 fs 脉宽的三束飞秒激光作用

(b) Three femtosecond laser beams with 80 fs pulse width



(c) 1 000 fs 脉宽的三束飞秒激光作用

(c) Three femtosecond laser beams with 1 000 fs pulse width



(d) 600 fs 脉宽的四束飞秒激光作用

(d) Four femtosecond laser beams with 600 fs pulse width

图 2 多束飞秒激光脉冲作用于铜薄膜的电子晶格温度变化关系

Fig.2 Relationship between electronic temperature and lattice temperature inside Cu films by multi-beam femtosecond laser pulses

所示,在脉冲个数不变的情况下,随着飞秒脉冲宽度的增大,峰值电子温度会减小,但是对电子非平衡热输运时间的影响不大。从图 2(c)、(d)对比看出,当激光脉宽为 600 fs,泵浦激光束增加从三束增加到四束时,电子非平衡热输运时间维持在 11.4 ps 左右,因此当泵浦激光束超过三束时,电子非平衡热输运时间达到饱和,几乎不再增加,这为我们在后续实验光路的搭建提供了理论依据。

3 实验装置

实验装置如图 3 所示。实验使用 Verdi CW 激光器作为飞秒激光器泵浦源,峰值输出功率为 5 W,中心波长为 532 nm。泵浦源的光进入掺钛蓝宝石激光

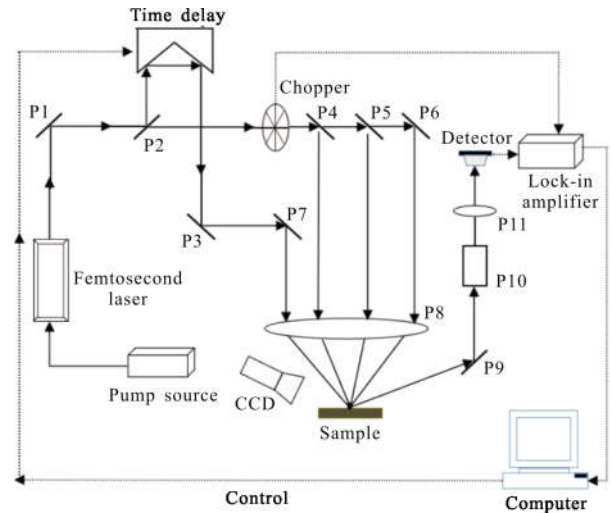


图 3 三束飞秒激光泵浦探测实验装置

Fig.3 Equipment of three femtosecond laser beams pump probe experiment

器,经过自锁模后,输出的单个激光脉冲宽度为 30 fs,中心波长为 800 nm,重复频率为 82 MHz。掺钛蓝宝石激光器输出的飞秒脉冲经过反射镜 P1 反射到分束镜 P2 上,将光束分成能量比为 10:1 的泵浦光和探测光。探测光通过时间延迟器,经反射镜 P3、P7 反射,再通过聚焦透镜 P8 聚焦到样品的表面。泵浦光经过分束镜 P4,以 1:2 的比例分为两束泵浦光。其中能量较弱的泵浦光经由聚焦透镜 P8 聚焦到样品表面。能量较强的泵浦光则经分束镜 P5 等分为两束光,一束经聚焦透镜 P8 聚焦到样品表面,另一束经过反射镜 P6 反射,通过聚焦透镜 P8 聚焦到样品表

面。其中三束泵浦光均用于激发样品。这四束光在到达聚焦透镜 P8 前需尽可能平行,这样才能使四束光汇聚后的光斑重合在一起,最后用 CCD 观察四个光斑是否重合。时间延迟器是通过计算机控制步进电机运动的装置。步进电机每移动一步,时间延迟器变化 $10\ \mu\text{m}$,即探测光光程改变 $10\ \mu\text{m}$,经计算,泵浦光和探测光之间的延迟时间就为 $66.7\ \text{fs}$ 。因此,实验是通过改变探测光光程来实现泵浦光与探测光之间时间延迟。

此外由于探测光的信号十分微弱,很容易淹没在环境背景光和泵浦光的噪声中,探测光信号的信噪比很小。为了提高信噪比,使用斩波器对泵浦光以 $2\ 000\ \text{Hz}$ 的频率进行调制,并用锁相放大器进行噪声的消除和信号的放大。经过锁相放大器处理后的信号输入计算机进行数据处理,最终得到金属薄膜表面的瞬态反射率的曲线。

4 实验结果及分析

使用磁控溅射法在玻璃衬底上分别镀了 $30\ \text{nm}$ 与 $60\ \text{nm}$ 厚的铜膜,使用 $40\ \text{mW}$ 的三束飞秒激光进行泵浦激发。按照实验光路图搭建实验光路,对铜膜进行实验,得到如图 4 所示的实验结果。

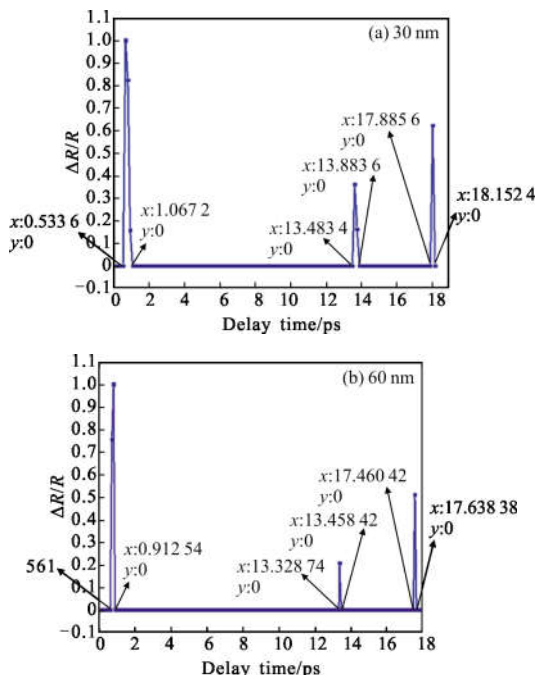


图 4 铜膜经三束飞秒激光辐照的实验结果
Fig.4 Experiment results of Cu films irradiated separately by three femtosecond laser beams

图 4 中的纵坐标为归一化的反射率,横坐标为延迟时间。以第一次瞬态反射率出现峰值的起点作为零时刻。在图 4(a)三束飞秒泵浦光辐照 $30\ \text{nm}$ 铜薄膜,其中第一个瞬态反射率峰在步进电机运动八个步长后消失,而步进电机运动精度为 $66.7\ \text{fs}/\text{步}$,即第一束泵浦光激发电子非平衡弛豫时间持续约为 $533.6\ \text{fs}$,随后铜膜表面的电子非平衡热输运过程结束。同样的可以计算出图 4(a)第二、第三个瞬态反射率峰的非平衡热输运时间分别为 $400.2\ \text{fs}$ 和 $266.8\ \text{fs}$ 。因此在图 4(a)中三次电子非平衡热输运时间共约 $1\ 200.6\ \text{fs}$,为实现铜薄膜内电子非平衡弛豫时间的延长提供了可能。在图 4(b)中观察到三个瞬态反射率峰对应的电子非平衡热输运时间分别为 $26.693\ 34$ 、 $17.800\ 22$ 、 $17.795\ 56\ \text{fs}$,因此三束泵浦光激发电子非平衡热输运时间总长约为 $62.28912\ \text{fs}$ 。对比图 4(a)和(b),由于薄膜表面瞬态反射率的变化反映了铜薄膜内电子温度的变化,因此在三束泵浦光激发 $30\ \text{nm}$ 和 $60\ \text{nm}$ 铜膜后,铜膜表面都出现了三个瞬态反射率峰。表明铜膜内的电子温度也出现三次突变,表现为三个峰,这与仿真结果一致。另外,在相同的激光参数条件下,相比于 $30\ \text{nm}$ 的铜薄膜, $60\ \text{nm}$ 铜薄膜内的电子非平衡热输运时间减少了,即随铜薄膜的厚度增加,电子和晶格之间能量的非平衡热输运时间变短,与上面理论仿真数据结果吻合。

通过改变三束泵浦光的光程差,得到如图 5 中 $30\ \text{nm}$ 铜薄膜的瞬态反射率与延迟时间的变化曲线。从图 5 可以看出,三个瞬态反射率峰分布的不均匀,两个泵浦光靠的较近,一个离得较远,且由于两个泵浦光之间的延迟时间短,得到的实验结果是两个瞬

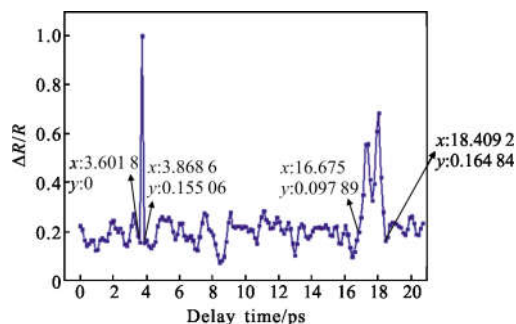


图 5 三束飞秒激光辐照 $30\ \text{nm}$ 铜膜的实验结果
Fig.5 Experimental results of $30\ \text{nm}$ Cu film irradiated by three femtosecond laser beams

态反射率峰连在了一起,这与仿真的结果图 2(b)非常相似,电子温度峰连在了一起,非平衡热输运时间也因此而延长了。通过计算图 5 中两个连在一起的瞬态反射率峰所对应的电子非平衡热输运时间约为 1 734.2 fs, 相比于图 5 中第一个瞬态反射率峰对应的 266.8 fs 的非平衡热输运时间,有了很大的提高。

5 结 论

文中以利用实验和理论相结合的方式研究飞秒激光泵浦激发下铜薄膜内电子非平衡热输运情况。

(1) 通过有限元法模拟得出,三束飞秒泵浦光照射铜膜时,铜膜内出现三次电子非平衡热输运现象;其次,采用具有一定延时的三束飞秒激光对铜膜进行泵浦-探测实验,从瞬态反射率变化曲线上观察到三个瞬态反射率突变峰,即铜膜内出现三次非平衡热输过程,验证了理论模拟结论。

(2) 电子非平衡热输运时间会随着泵浦光束数量、脉冲能量密度的增加而增加,随薄膜厚度增加而减小,但激光脉宽对电子非平衡热输运时间影响不大,另外当泵浦光束增加到三束时,电子非平衡热输运时间几乎达到最大,此时再增加泵浦光束,电子非平衡热输运时间基本保持不变。

(3) 实验测得单束泵浦光激发的电子非平衡热输运时间最大约为 533.6 fs; 采用三束泵浦光激发时,通过调节其中两束泵浦光之间的延时时间,使得两次电子非平衡热输运接近连续地激发,总非平衡热输运时间能够达到 1 734.2 fs, 即采用三个脉冲间隔很近的飞秒激光脉冲激发可以实现铜膜内电子非平衡热输运时间大幅度延长。

参考文献:

- [1] Oosterbeek R N, Ward T, Corazza C, et al. Fast femtosecond laser ablation for efficient cutting of sintered alumina and quartz substrates [C]//Lasers and Electro-optics. IEEE, 2016: 105-110.
- [2] Hu M, Ge L, Zhang J, et al. Hole-drilling with high depth-diameter ratio using multi-pulse femtosecond laser [J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2016, 43(4): 0403006.
- [3] Andreev S V, Aseev S A, Bagratashvili V N, et al. Ultrafast transmission electron microscope for studying the dynamics of the processes induced by femtosecond laser beams [J]. *Quantum Electronics*, 2017, 47(2): 116-122.
- [4] Han Y, Fu Q, Hou Q, et al. Ultrafast dynamics of MnSi1.7 film studied by pump-probe technique [J]. *Modern Physics Letters B*, 2016, 30(23).
- [5] Sakagmi H, Tsukamoto M, Hashida M, et al. Ablation rate reduction of silicon interacted with double pulse beam of femtosecond lasers [C]//CLEO: Science and Innovations, 2017: STh3J.3.
- [6] Trtica M S, Gakovic B M, Radak B B, et al. Material surface modification by ns, ps and fs laser pulses [J]. *Optics and Precision Engineering*, 2011, 19(2): 221-227.
- [7] Bai Yan, Yang Chunmei, Wu Zhe, et al. Microtopography experiment of laser ablation on surface of special-shaped solid wood [J]. *Optics and Precision Engineering*, 2016, 24 (10s): 123-128.
- [8] Höhm S, Rosenfeld A, Krüger J, et al. Laser-induced periodic surface structures on zinc oxide crystals upon two-colour femtosecond double-pulse irradiation [J]. *Physica Scripta*, 2017, 92(3): 034003.
- [9] Han Zehua, Zhou Changhe, Dai Enwen, et al. Micromachining with polarized light femtosecond double pulses [J]. *Chinese Optics Letters*, 2008, 35(5): 768-771. (in Chinese)
- [10] Shao Junfeng, Guo Jin, Wang Tingfeng. Thermal behavior in metal films irradiated by femtosecond laser with double-pulse [J]. *High Power Laser and Particle Beams*, 2014, 26(9): 92-97. (in Chinese)
- [11] Yuan Wei, Xing Xin, Han Dongjia, et al. Ultrafast laser pre-damage dynamics process in Al₂O₃/SiO₂ high reflectors [J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2016, 45 (12): 1206013. (in Chinese)
- [12] Li Chen, Stian Razvan, Cheng Guanghua. Laser-induced periodic surface structures with ultrashort laser pulse [J]. *Chinese Optics*, 2016, 11(1): 0001. (in Chinese)
- [13] Xing Xin, Yuan Wei, Li Zehan, et al. Pre-damage dynamics of dielectric chirped mirror film layer excited by femtosecond laser [J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2017, 46(11): 1106005. (in Chinese)
- [14] Ren Sheng, Liu Liwei, Li Jinhua, Hu Siyi, et al. Advances in the local field enhancement at nanoscale [J]. *Chinese Optics*, 2017, 12(1): 0031. (in Chinese)
- [15] Yang Chengjuan, Mei Xuesong, Wan Wenjun, et al. Femtosecond laser ablation on gold chromium film [J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2011, 40 (1): 61-65. (in Chinese)