

文章编号: 1001—4322(2001)03—0317—04

脉冲高能准分子激光烧蚀块靶产生等离子体的动力学过程的差分模拟

钟志成, 李智华, 张端明, 关 丽

(华中科技大学 物理系, 湖北 武汉 430074)

摘 要: 利用质量连续性、动量守恒和能量守恒这三个基本方程, 研究高能脉冲激光照射块状靶材产生等离子体的物理特性。采用差分法和 Picard 迭代法, 求解带特定边界条件的流体力学三方程, 得出已喷射等离子体的温度、密度和速度的分布的迭代方程, 并用计算机进行了数值模拟。

关键词: 块状靶材; 脉冲激光; 等离子体; 烧蚀面; 流体动力学

中图分类号: O53 **文献标识码:** A

近年来, 高能脉冲激光已被广泛地应用到各个领域。脉冲激光烧蚀块状靶材, 在实验上已经取得了一定的进展^[1,2]。但对脉冲激光烧蚀靶材的机理研究, 国内尚未见有这方面的文献, 国外仅有 K. Singh 和 De Groot 等篇文献而已^[3~5], 而且大部分都是研究平板靶材, 对块状靶材烧蚀的整个模型的研究几乎还没有。深入研究脉冲激光与块状靶材相互作用产生等离子体的动力学过程, 不仅有助于弄清楚脉冲激光的作用机理, 扩大脉冲激光加工技术, 使之在电子、脉冲激光制膜(PLD 技术)及航空航天等领域得到广泛的应用, 而且能开辟新的脉冲激光应用领域。

1 理论模型

高能脉冲激光照射块状靶材时, 靶材吸收激光的能量产生高温高压等离子体且靶材部分被融化, 因此高能脉冲激光与块状靶材相互作用后, 可以粗略地将对象分为三个区, 如图 1 所示: (1) 为脉冲激光照射靶材, 在靶材表面形成高温高密等离子体区; (2) 为脉冲激光融化靶材产生的液相区; (3) 为没有被脉冲激光融化但仍然吸收激光能量的固相区。另外, 脉冲激光的加热及融化效应, 原本构成了一个三维热流问题, 但在脉冲激光作用的 τ 时间内 (ns), 热宏观扩散距离很小, 融化温度与激光照射面积相比相当小, 因此垂直于靶材表面方向上的温度梯度比平行于靶表面方向上的温度梯度大几个数量级, 因此可以将该过程简化成一个一维热流问题。

高能脉冲激光(功率密度大于 $10^8 \text{W} \cdot \text{cm}^{-2}$)照射靶材, 在其表面产生显著的原子激发和离化, 蒸气中除了包含大量的中性粒子外, 还包括电子和多种离子^[6], 从而形成等离子体云。在脉冲激光作用初期, 由实验可以观察到^[7], 等离子体的横向尺寸为 mm 数量级, 而其纵向尺寸小于 $1 \mu\text{m}$, 因此等离子体的纵向压力梯度比其横向压力梯度大得多。而等离子体的膨胀速度是受压力梯度控制的, 故等离子体膨胀的横向速度比纵向速度大得多。经过一段时间后, 等离子体云在空间形成一拉长的等离子体羽辉。等离子体云根据其密度的大小可以分为两个区: 电晕区 A 和导热区 B^[4]。无论是对于电晕区还是导热区, 因等离子体可近似看作为理想气体, 故单流体、理想流体的动力学方程可以被采用。

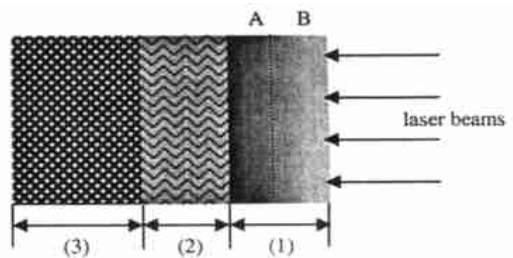


Fig 1 Schematic diagram of the bulk target affected by pulsed laser
图 1 脉冲激光作用下块靶状态示意图

2 方程与边界条件

根据上面的分析,我们可用流体动力学的三个方程来描述已喷射出的等离子体随时间的演化。为了方便讨论,将坐标原点置于烧蚀面上,于是有

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \frac{\partial \rho v}{\partial x} = 0 \quad (1)$$

$$\frac{\partial T}{\partial t} + v \frac{\partial T}{\partial x} = - \frac{Z}{M} \frac{\partial (\rho T)}{\partial x} \quad (2)$$

$$\frac{3Z}{2M} \rho \frac{\partial T}{\partial t} + \frac{3Z}{2M} \rho v \frac{\partial T}{\partial x} + \frac{\rho Z}{M} \frac{\partial T}{\partial x} = - K \frac{\partial^2 T}{\partial x^2} + \frac{\partial I}{\partial x} \quad (3)$$

其中, x 为垂直于厚靶面指向衬底测量的空间坐标; ρ 为等离子体质量密度; v 代表流体速度; T 为等离子体的温度; I 为入射激光能量密度; M 和 Z 分别为等离子体的平均原子量和平均电荷。因脉冲激光使得靶材不仅熔化,还有部分汽化电离而变成等离子体,因此我们可以假定在烧蚀面(为等离子体与液相的分界面 $x=0$)处温度始终保持在靶材的气化温度 T_e , 即有 $T(0) = T_e$, 这与文献[4]中对平板靶模型中所假的边界条件 $T(0) = 0$ 假设更能合理地反映真实物理条件。且近似给定等离子体的初始速度与到烧蚀面的距离成正比关系。若入射脉冲激光波长和脉冲宽度分别为 λ 和 τ , ρ 和 l_0 为靶材的密度和初始厚度,且坐标原点选在靶材的后表面,则烧蚀面的位置可以表示为^[8]

$$x_a(t) = l_0 - \frac{\lambda}{2\pi r \tau} \left(1 - \frac{\rho E_s \lambda}{4\pi r I_0}\right) t \quad (4)$$

当 $t = \tau$ 时有

$$x_a(\tau) = l_0 - \frac{\lambda}{2\pi r} \left(1 - \frac{\rho E_s \lambda}{4\pi r I_0}\right) \quad (5)$$

其中, E_s 和 r 分别代表靶材的折射率与升华能; I_0 为入射到靶材表面的激光功率密度。可见,在脉冲激光作用时间内,烧蚀面是匀速向前推进的,推进速度取决于激光和靶材的相关参数,对于一定的脉冲激光和靶材,脉冲激光对靶材的烧蚀率为常数。因脉冲激光溅射产生的等离子体是随机自由发射的,故其初始的密度分布我们可以采用准 Gaussian 分布^[9], 于是对于 x 方向上密度 $\rho(x, 0) = \exp(-x)$ 。另外,考虑到脉冲激光作用产生等离子体溅射先后以及溅射出的等离子体因压力梯度作真空加速自由膨胀,近似认为等离子体的初始速度大小与到烧蚀面的距离成正比关系。下面,我们采用差分法来对等离子体的物理状态进行数值模拟。

3 求解方程组

由于该方程组属于非线性和非稳态的情况,因此直接求解相当困难或者根本不可能,我们采用差分法来求解:令 $x = f \Delta x$, $i = 1, 2, \dots, F$; $t = n \Delta t$, $n = 1, 2, \dots, N$ 。由差分法于是可以得到相应于方程(1)~(3)的差分方程组

$$\rho_i^{n+1} = \rho_i^n + \frac{\Delta t (2v_i^n \rho_i^n - \rho_i^n v_{i+1}^n - v_i^n \rho_{i+1}^n)}{\Delta x} \quad (6)$$

$$v_i^{n+1} = v_i^n + \frac{\Delta t Z}{\Delta x M} (T_i^n - T_{i+1}^n) + \frac{\Delta t}{\Delta x} v_i^n (v_i^n - v_{i+1}^n) + \frac{T_i^n \Delta t}{\rho_i^n \Delta x} (\rho_i^n - \rho_{i+1}^n) \quad (7)$$

$$\begin{aligned} T_i^{n+1} = & T_i^n + \frac{\Delta t}{\Delta x} v_i^n (T_i^n - T_{i+1}^n) + \frac{2\Delta t}{3\Delta x} T_i^n (v_i^n - v_{i+1}^n) \\ & + \frac{3k\Delta t}{2\rho_i^n \Delta x^2} (T_{i+1}^n - 2T_i^n - T_{i-1}^n) + \frac{3\Delta M}{2\rho_i^n \Delta x Z} (I_{i+1}^n - I_i^n) \end{aligned} \quad (8)$$

因此共有 $3 \times F \times N = 3FN$ 个方程来构成非线性差分方程组。只要采用适当的方法解该方程组,就可以得到不同功率密度和脉冲宽度脉冲激光作用块状靶材产生等离子体的温度分布、速度分布和密度分布。

4 等离子体羽辉的数值模拟计算

由上述线性差分方程组可知,若只将时间和坐标分为两段,就要进行 12 维的矩阵运算,网格点越

多, 计算量越大, 计算越复杂。我们下面将计算 $F = N = 15$ 的情况, 结果可以给出烧面处的密度、速度和温度随时间的演化, 尤其是温度分布相当有用, 为进一步研究脉冲激光烧蚀块状靶材的固液相部分提供了理论基础。另外, 由于强逆韧致辐射吸收效应, 使得激光能量的 98% 以上沉积在等离子体的电晕区^[2], 因此在研究近烧蚀面的性质时, 可以忽略方程 (6) 中的源项。此外, 由于所得的方程组的非线性, 普通的适用于计算线性方程组的 Gauss 迭代法不在适用, 我们选用 Picard 迭代法, 只要适当选择零级迭代的初始值, 我们就可以编程计算出烧蚀面处的温度、密度和速度的分布及随时间的演化。

用计算机进行模拟计算, 需要输入迭代次数, 以及进行循环判断的精度。此外, 根据计算的材料和脉冲激光能量的不同分别输入平均原子量、平均电荷等。输出的是等离子体的速度、密度和温度在不同格点不同时间时的值, 下面将数值计算的结果与已有的实验和理论工作进行比较。

5 结果分析与讨论

文献[4, 5]从理论计算和实验对平板靶材的激光烧蚀进行了研究, 但并没有涉及到固相和液相的问题, 在烧蚀面处作了绝热假设。文献[1]研究的对象虽然是块状靶材, 但激光烧蚀的结果不产生等离子体, 激光源直接作用在烧蚀面上。本文研究的对象为块状靶材, 烧蚀面处温度保持在材料的汽化温度, 且其温度与液相部分的温度分布是连续的。

为将本文的模拟计算得结果与已有理论结果进行分析和比较, 采用 Lambda, EM G20IM SC 准分子激光器, 输出脉冲激光功率密度为 $10^9 \text{W} \cdot \text{cm}^{-2}$, 脉冲宽度为 15 ns, 利用实验已制备好的直径 30 mm、厚度约为 8 mm 的 $\text{KTa}_{0.65}\text{Nb}_{0.35}\text{O}_3$ 作为靶材料, 所用的网格为: $F = N = 15$ 。图 2 给出了等离子体的速度的分布, 图 3 给出了烧蚀面附近 $x = 1 \text{mm}$ 处等离子体的密度和温度随时间的演化关系。

由图 2 可以看出, 由脉冲激光作用产生的等离子体的速度近似呈线性关系上升。这一数值模拟的结果与文献[3]中预测的结果符合得较好, 定量地验证了文献[3]所作的定性预测。图 3(a) 显示烧蚀面附近 $x = 1 \text{mm}$ 处等离子体密度随时间的演化过程, 可以看出在脉冲激光作用初期, 等离子体的密度迅速上升, 然后是缓慢增加。这是因为从烧蚀面喷射出的等离子体沿垂直于烧蚀面的初始速度很小, 故在烧蚀面附近形成高密高压等离子体, 高的压力梯度使得等离子体具有很大的加速度, 随着时间的推移, 等离子体的速度也迅速增加而沿垂直于靶材表面方向喷射出去。而且, 从实验中我们确实已经观察到, 从烧蚀面喷射出的等离子体在烧蚀面附近形成了一拉长

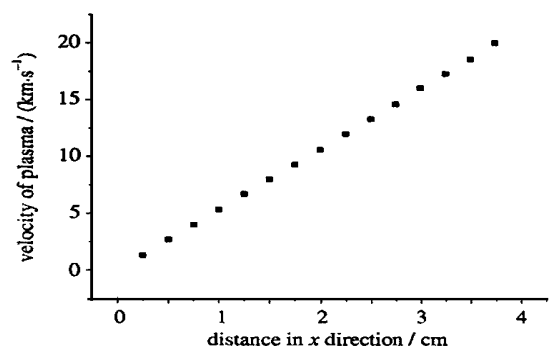


Fig 2 The profile of plasma velocity as a function of the distance x

图 2 等离子体速度随坐标 x 变化曲线

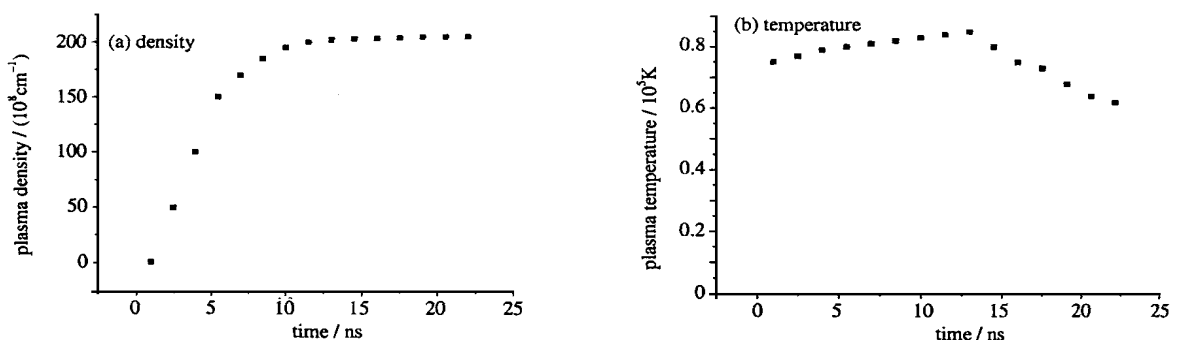


Fig 3 The profile of the plasma density and temperature near the ablation surface as a function of time

图 3 近烧蚀面等离子体的密度和温度随时间的变化规律

的等离子体羽辉。图 3(b) 给出了烧蚀面附近的温度随时间的演化关系其中, T_v 是 KTN 陶瓷靶材的气化温度, 约为 3600K。从图中可以看出, 温度的变化有一个转折点, 且前段时间温度上升极其缓慢, 即温度变化范围很小, 后段时间温度则是迅速下降, 这一点与文献[4]的分析结果符合较好, 即等离子体的膨胀过程可近似分为等温和绝热两阶段。这是因为, 在脉冲激光作用过程中, 喷射出的等离子体一边迅速膨胀使得等离子体的温度要下降, 但同时等离子体还继续吸收激光的后续能量, 两个效果相互补偿趋于平衡, 从而等离子体在该过程中是等温膨胀。而脉冲激光作用完毕后, 等离子体则是真空自由绝热膨胀。另外, 因图 3b 给出烧蚀面附近等离子体温度随时间的演化, 这对继续研究固液相的各个动态界面的物理性质和整个非平衡态的热输运过程是很有意义的。

6 结 论

初步建立了脉冲激光烧蚀块状靶材的理论模型, 并根据流体力学理论, 利用质量守恒、动量守恒以及能量守恒方程和适当的边界条件, 采用差分法和 Picard 迭代法, 推导出了脉冲激光烧蚀块状靶材产生等离子体的温度、密度和速度分布的迭代方程; 用计算机对脉冲激光产生等离子体的一些性质进行了数值模拟计算, 得出等离子体的任意时刻的速度分布以及烧蚀面附近等离子体的温度和密度随时间的演化, 并将模拟的结果与实验现象及前人的结果进行了分析和比较, 得出一些有意义的结论; 模拟计算的结果为后续研究固液相的各个动态界面的物理性质和整个非平衡态的热输运过程提供了理论基础, 为将来开辟新的脉冲激光应用领域提供了理论指导。

参考文献:

- [1] Venkatesan T. Observation of two distinct components during pulsed laser deposition of high Tc superconducting films[J]. *Appl Phys Lett*, 1988, **52**(14): 1193
- [2] Foltyn S R, Tiwari P, Dye R C, et al. Pulsed laser deposition of thick YBa₂Cu₃O_{7-x} films with $J_c > 1 \text{ MA/cm}^2$ [J]. *Appl Phys Lett*, 1993, **63**: 1848
- [3] Singh R K, Narayan J. Pulsed-laser evaporation technique for deposition of thin films: physics and theoretical model[J]. *Phys Rev B*, 1990, **41**(13): 8843-8859
- [4] De Groot J S, Cameron S M, Mizuno K. Density and temperature profiles in strongly absorbing plasma with distributed absorption[J]. *Phys Fluids B*, 1991, **3**(5): 1241-1244
- [5] Singh K, Narayan J. A novel method for simulating laser-solid interactions in semiconductors and layered structures[J]. *Materials Science and Engineer*, 1989, **B3**: 217-230
- [6] 郑启光, 章建辉. 激光与物质的相互作用[M]. 武汉: 华中科技大学出版社, 1991.
[Zheng Q G, Gu J H. Interaction of laser and matter. Wuhan: Huazhong University of Science and Technology Press, 1991](in Chinese)
- [7] Chen X Y, Wu Z C, Yang B, et al. Four regions of the propagation of the plume formed in pulsed laser deposition by optical-wave length-sensitive CCD photography[J]. *Thin Solid Film*, 2000, **375**: 233-237
- [8] 张端明, 李智华, 黄明涛, 等. 脉冲激光烧蚀块状靶材的双动态界面研究[J]. 物理学报, 2001, **50**: 914-920
[Zhang D M, Li Z H, Huang M T, et al. Study on the twin motive interfaces of bulk target generated by pulsed laser. *Chinese Physics*, 2001, **50**: 914-920](in Chinese)
- [9] 陈中军, 张端明, 李智华, 等. 脉冲激光沉积 KTN 薄膜的动力学过程模拟[J]. 华中科技大学学报, 2000, **28**(5): 92-94
[Cheng Z J, Zhuang D M, Li Z H, et al. Simulation of the dynamic deposition process of KTN thin film by pulsed laser. *Journal of Huazhong University of Science and Technology*, 2000, **28**(5): 92-94](in Chinese)

Modify the dynamic process of the bulk target's plasma plume generated by pulsed laser

ZHONG Zhicheng, LI Zhihua, ZHANG Duanming, GUAN Li

(The Physical Department, Huazhong University of Science and Technology, Wuhan 430074, China)

Abstract The plasma characteristics of the bulk target irradiated by pulse laser is studied in detail, and the theoretical model of pulsed-laser-driven ablation is set up accordingly. In addition, the velocity distribution of the plasma is discussed. Moreover, the plasma density and temperature near the ablating surface as the function of time are discussed respectively by using hydrodynamic theory and the heat conduction equation. At the same time, our theoretical results are compared with our experiments and other authors' conclusions.

Key words: bulk target; pulsed laser; plasma; ablation surface; hydrodynamic theory