

超快脉冲激光辐照金属薄膜热-力效应的模拟研究

王德飞, 齐文宗, 郭春风
(四川大学 电子信息学院, 成都 610064)

摘要:基于双曲双温两步热传导和热电子崩力模型, 考虑到超快脉冲激光辐照金属薄膜材料过程中的热-力耦合效应, 得到了完全耦合的、非线性的超快热弹性模型. 运用具有人工粘性和自适应步长的有限差分算法, 以脉宽为 100 fs 的脉冲激光辐照 200 nm 厚金膜为例, 对薄膜体内的电子-晶格温度及温度梯度、热应力和电子热流进行了数值模拟研究. 结果表明: 脉冲辐照早期为明显的非平衡加热阶段, 同时形成较大的热电子崩力; 电子热流出现双峰现象; 超快加热引起的热应力是导致薄膜力学损伤的主要原因.

关键词:超快脉冲激光; 金属薄膜; 超快热弹; 热应力; 非热平衡

中图分类号: O437; TN249

文献标识码: A

文章编号: 1004-4213(2008)11-2172-5

0 引言

超快脉冲激光的脉冲宽度在亚皮秒(ps)到飞秒(fs)量级, 由于其脉宽很窄, 对相对较低的脉冲能量采用多级啁啾脉冲放大(CPA)技术可以获得拍瓦(10^{15} W)量级的峰值功率^[1-2]. 超快脉冲激光的独特优势表现为: 1)超高的精确度; 2)最低的附带热损伤; 3)较大的材料烧蚀速率; 4)对几乎所有材料的实际处理能力. 基于超快脉冲激光以上优势和加工的非接触性特点, 在物理、化学、生物学、医学、超精细微加工、数字光学技术等方面都有着很好的应用前景^[3-7].

超快脉冲激光与固体材料的相互作用过程是非常复杂的. 为了描述该过程的非平衡热行为, Anisimov 首先提出及由 Fujimoto 进一步发展的抛物两步热传导模型^[8-9]; Qiu 和 Tien 基于量子理论和统计力学提出了更为严密的双曲两步热传导模型^[10-11]; Tzou 提出了宏观的双相迟滞理论, 在适当保留不同量级的热迟滞效应影响下, 它可以描述微观的双曲两步热传导模型^[12]. 另外描述超快脉冲激光与固体材料相互作用的还有分子动力学模型^[13]等. 本文基于 Qiu 和 Tien 的双曲两步热传导理论模型和 Tzou 等提出的热电子崩力模型^[14], 考虑到超快脉冲激光辐照金属薄膜材料时应变速率与晶格温度之间的耦合效应, 对超快激光辐照金属薄膜材料的热-力效应进行了数值模拟和理论分析.

1 理论模型

超快脉冲激光辐照金属薄膜材料时, 首先是入射脉冲激光对吸收深度内自由电子的热激发, 使电子温度迅速升高; 接着是热电子的大部分能量通过电子与

晶格之间的强耦合作用传递给附近的晶格; 同时另一部分能量将通过电子传递给较深区域的电子; 并且在这个阶段, 热流被限制在热扩散深度区域内.

用于描述超快脉冲激光辐照金属薄膜材料的超快热弹性模型主要包括以下几个方面: 1)热传导时的两步加热过程; 2)晶格温度与应变速率之间的耦合; 3)动量传递过程中的热电子崩力; 4)热-力耦合效应. 对均匀的、各向同性的弹性材料而言, 描述其超快形变的一维热弹性耦合方程为^[10-11, 14-16]

$$C_e(T_e) \frac{\partial T_e}{\partial t} = -\frac{\partial q_e}{\partial z} - G(T_e - T_L) + S(z, t) \quad (1)$$

$$q_e = -\tau_e(T_e, T_L) \frac{\partial q_e}{\partial t} - K_e \frac{\partial T_e}{\partial z} \quad (2)$$

$$C_L(T_L) \frac{\partial T_L}{\partial z} = -\frac{\partial q_L}{\partial z} + G(T_e - T_L) - (3\lambda + 2\mu)\alpha T_L \frac{\partial \epsilon_{zz}}{\partial t} \quad (3)$$

$$q_L = -\tau_L \frac{\partial q_L}{\partial t} - K_L \frac{\partial T_L}{\partial z} \quad (4)$$

$$\rho \frac{\partial^2 u_z}{\partial t^2} = \frac{\partial \sigma_{zz}}{\partial z} + 2\Lambda T_e \frac{\partial T_e}{\partial z} \quad (5)$$

方程(1)~(4)为能量方程, (5)为动力学方程, 其右边第二项表示电子崩力; 其中 C 、 T 、 G 、 τ 、 K 、 q 分别为电子-晶格体系的比热容、温度、耦合系数、弛豫时间、热导率和热流, 下标 e 、 L 分别代表电子与晶格; $S(z, t)$ 为与激光脉冲相对应的热源项. ρ 、 Λ 、 α 分别表示材料的质量密度、电子崩力系数和热膨胀系数; u_z 、 σ_{zz} 、 ϵ_{zz} 为晶格在 z 方向的位移、应力和应变.

在单轴应变条件下

$$\epsilon_{zz}(z, t) \neq 0 \quad \epsilon_{xx} = \epsilon_{yy} = \epsilon_{xy} = \epsilon_{yz} = \epsilon_{zx} = 0 \quad (6)$$

基于上述条件, 晶格的热膨胀速率和应变速率是相等的, 其中 $\epsilon_{zz} = \partial u_z / \partial z$.

对各向同性的弹性材料而言, 轴向应力与应变

的关系为

$$\sigma_{zz} = (\lambda + 2\mu)\epsilon_{zz} - (3\lambda + 2\mu)\alpha(T_L - T_0) \quad (7)$$

$$\sigma_{xx} = \sigma_{yy} = \lambda\epsilon_{zz} - (3\lambda + 2\mu)\alpha(T_L - T_0) \quad (8)$$

式中 λ, μ 为 Lamé 参量。

当金属薄膜材料在高斯激光脉冲辐照下,与脉冲激光相对应的热源项 $S(z, t)$ 的一维表达式为^[16]

$$S(z, t) = \frac{0.94(1-R)J_F}{t_p\delta[1 - \exp(-L/\delta)]} \cdot \exp\left[-\frac{z}{\delta} - 2.77\left(\frac{t-2t_p}{t_p}\right)^2\right] \quad (9)$$

式中 J_F, t_p 分别表示激光的峰值能量密度和脉冲半宽度; R, δ, L 分别为薄膜材料的表面反射率、光学吸收深度和厚度; z 为方向坐标。

由于金属材料中自由电子的热特性参量对温度有很强的依赖性,故自由电子的热容、弛豫时间和热导率的表达式分别为

$$C_e = C_{e0} T_e \quad (10)$$

$$\tau_e = \frac{1}{A_e T_e^2 + B_L T_L} \quad (11)$$

$$K_e = \chi \frac{(\alpha^2 + 0.16)^{5/4} (\alpha^2 + 0.44)\alpha}{(\alpha^2 + 0.092)^{1/2} (\alpha^2 + \eta\beta)} \quad (12)$$

式中 $\alpha = T_e/T_F, \beta = T_L/T_F, T_F$ 为材料的费米温度。

假定激光辐照前金属薄膜的温度等于环境温度并忽略整个过程中的热量损失,控制方程在适当的初始和边界条件下可以进行数值求解. 初始及边界条件为

$$u_z(z, 0) = 0 \quad (13)$$

$$\partial u_z(z, 0)/\partial t = 0 \quad (14)$$

$$\sigma_{xx}(z, 0) = \sigma_{yy}(z, 0) = \sigma_{zz}(z, 0) = 0 \quad (15)$$

$$\sigma_{zz}(0, t) = \sigma_{zz}(L, t) = 0 \quad (16)$$

$$T_e(z, 0) = T_L(z, 0) = T_0 \quad (17)$$

$$q_e(0, t) = q_e(L, t) = 0 \quad (18)$$

$$q_L(0, t) = q_L(L, t) = 0 \quad (19)$$

以上方程中 T_0 为初始参考温度。

本文选用的金属薄膜材料为金膜,与其对应的计算参量如表 1。

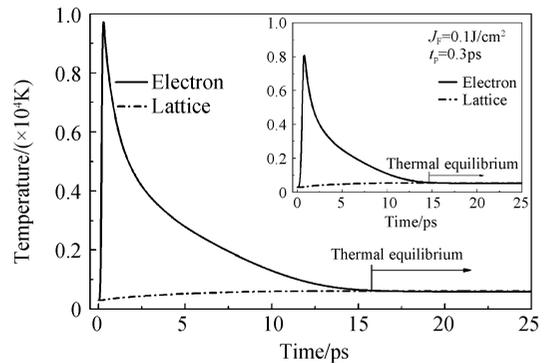
表 1 方程中的计算参量

| 参量 | 数值 | 单位 | 参量 | 数值 | 单位 |
|------------|-----------------------|-------------------------------|------------|-----------------------|-------------------------------|
| Properties | Value | Unit | Properties | Value | Unit |
| C_{e0} | 70 | $\text{Jm}^{-3}\text{K}^{-2}$ | C_L | 2.48×10^6 | $\text{Jm}^{-3}\text{K}^{-1}$ |
| χ | 353 | $\text{Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ | τ_L | 38.7 | ps |
| T_F | 6.42×10^4 | K | R | 0.93 | |
| K_L | 315 | $\text{Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ | η | 0.16 | |
| A_e | 1.2×10^7 | $\text{K}^{-2}\text{s}^{-1}$ | T_0 | 300 | K |
| B_L | 1.23×10^{11} | $\text{K}^{-1}\text{s}^{-1}$ | Λ | 70 | $\text{Jm}^{-3}\text{K}^{-2}$ |
| δ | 15.3 | nm | α | 14.2×10^{-6} | K^{-1} |
| ρ | 1.93×10^4 | kgm^{-3} | ν | 0.42 | |
| G | 2.6×10^{16} | $\text{Wm}^{-3}\text{K}^{-1}$ | E | 74.9 | GPa |

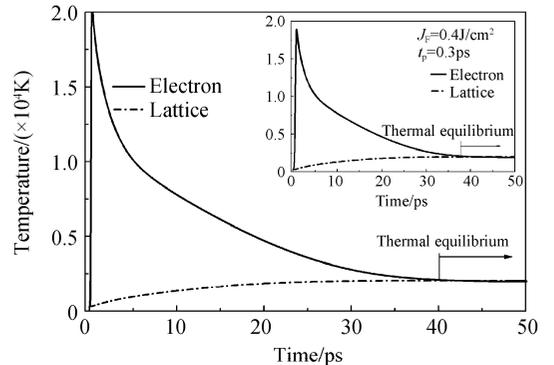
2 数值计算及结果分析

采用上述理论模型,在单轴应变条件下,运用具有人工粘性^[17]和自适应步长的有限差分算法^[18],对超快脉冲激光辐照 200 nm 厚金膜时的热-力效应进行了数值模拟和理论分析。

图 1 给出了不同能量密度和脉冲宽度时薄膜前表面电子与晶格温度随时间的变化关系. 由图可知,在超快脉冲激光辐照早期,由于自由电子的比热容与晶格相比要小二到三个数量级,所以吸收深度内的电子在十几分之一皮秒内将被加热到很高的温度,而晶格的温度却变化较小;以(b)图为例,电子温度在 $t = 0.288$ ps(稍微滞后于激光脉冲达到峰值功率的时刻 $t = 0.2$ ps)时达到峰值 2.073×10^4 K,而此时晶格的温度仅为 325K;由此可以看出,激光辐照早期为明显的非平衡加热阶段,与文献^[15]的结论基本一致. 电子温度达到峰值后,由于电子通过热传导及电子与晶格之间耦合(通过耦合系数 G)形成的电子热流向晶格传递能量,导致电子温度急剧下降;同时晶格温度升高并最终与电子达到热平衡. 比较(a)(b)两图及内插图可知,脉冲宽度一定时,前表面电子温度的峰值随着脉冲能量密度的



(a) $J_F=0.1\text{J}/\text{cm}^2, t_p=0.3\text{ps}$



(b) $J_F=0.4\text{J}/\text{cm}^2, t_p=0.1\text{ps}$

图 1 不同脉冲宽度和能量密度时薄膜前表面电子-晶格温度随时间的变化

Fig. 1 Time histories of the electron and lattice temperature at the front (irradiated) surface with different pulse width and laser fluences

增加明显升高,同时电子与晶格耦合至热平衡的时间及平衡温度均在增加;当脉冲能量密度不变时,脉冲宽度的增加将导致前表面电子温度的峰值减小并缩短热平衡时间,与文献[10]的实验结论基本吻合.

图 2 描述了脉冲激光能量密度不同时,薄膜体内不同深度处的电子热流随时间的变化规律.由热流耦合方程(2)可知,电子热流是由热流迟滞项(右边第一项)和热传导项(右边第二项)共同决定的,二者时间上的不同步性导致热流出现双峰现象.第一个峰值出现之前,两者的共同作用导致电子热流随着时间和薄膜厚度的增加而升高,同时第一个峰的出现随着脉冲能量密度的增大而提前.当薄膜的厚度大于光学吸收深度($Au; \delta = 15.3 \text{ nm}$)时,第二个峰将明显的低于第一个峰,并且随着深度的继续增加第二个峰将会消失,这说明热流传递能量主要发生在吸收深度内的区域.比较(a)(b)图可知,随着能量密度的增加,热流出现等值双峰深度也在增加.对应 $J_F = 0.1 \text{ J/cm}^2$ 和 $J_F = 0.4 \text{ J/cm}^2$ 时热流出现等值双峰深度分别为 1 nm 和 20 nm .

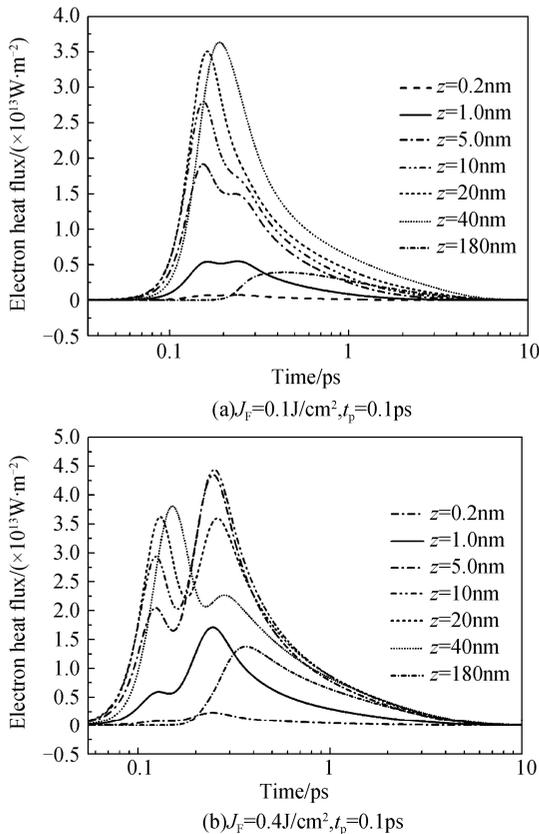


图 2 金属薄膜内不同深度的电子热流随时间的变化
Fig. 2 Time history of the electron heat flux in the metal film with different depth

图 3 给出了电子与晶格的温度梯度随时间的变化.由图(a)可知,金属薄膜光学吸收深度内的电子温度梯度明显大于吸收深度外的电子温度梯度.在深度为 1.0 nm 和 15 nm 处,电子温度的梯度分别在 $t =$

0.23 ps 和 0.25 ps 时达到 $1.68 \times 10^{11} \text{ K/m}$ 和 $1.51 \times 10^{11} \text{ K/m}$.由方程(5)右边第二项可知,热电子崩力正比于电子温度与电子温度梯度的乘积,因此在脉冲辐照早期将会形成较大的热电子崩力.随着薄膜深度的增加电子温度梯度迅速减小,大约在 7 ps 后整个薄膜的电子温度梯度减小到零,与之相应的热电子崩力将会消失.由图(b)可以看出,光学吸收深度内晶格的温度梯度在 10 ps 以内基本重合,在大约 5 ps 时达到峰值 $6.6 \times 10^9 \text{ K/m}$,随着时间的增加以不同的速率减小;而在光学吸收深度外晶格的温度梯度随着深度的增加明显减小,最终将趋近于常量.所以,在脉冲辐照早期,相对较大的电子与晶格温度梯度是造成薄膜力学破坏的原因之一.

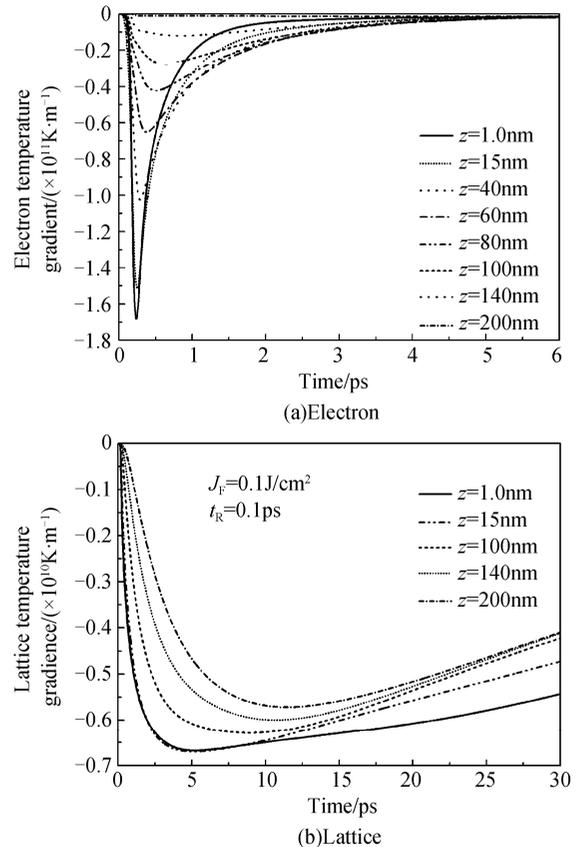


图 3 金属薄膜内不同深度电子与晶格温度梯度随时间的变化关系

Fig. 3 Time histories of electron and lattice temperature gradient at different locations inside the metal film

图 4 给出了不同时刻的热应力波在薄膜体内的传输规律.由图(a)可知,在脉冲辐照早期,薄膜前表面附近的热应力表现为压应力,在 1.5 ps 至 3.5 ps 的时间段内迅速加强,大约在 $t = 3.5 \text{ ps}$ 时压应力在 $z = 105 \text{ nm}$ (基本在薄膜的中心位置)处达到峰值 0.4 GPa ;当薄膜的厚度 $z > 105 \text{ nm}$,压应力随着薄膜厚度的增加迅速减小.事实上,当 $z < 105 \text{ nm}$ 时,热应力是由热电子崩力(正比于电子温度及其梯度的乘积)和非均匀的晶格温度场共同引起的;而当

$z > 105$ nm 时,热应力主要是由晶格温度场导致的. 随着时间的推迟,热应力波逐渐向后表面传递($t = 7.0$ ps 和 8.7 ps 可以看出);同时还可以看出压应力波在后表面由于被反射而转变为张应力. 另外,比较图 4(a)(b)及图 3(a)还可以看出,电子崩力对热应力的影响主要体现在激光辐照早期.

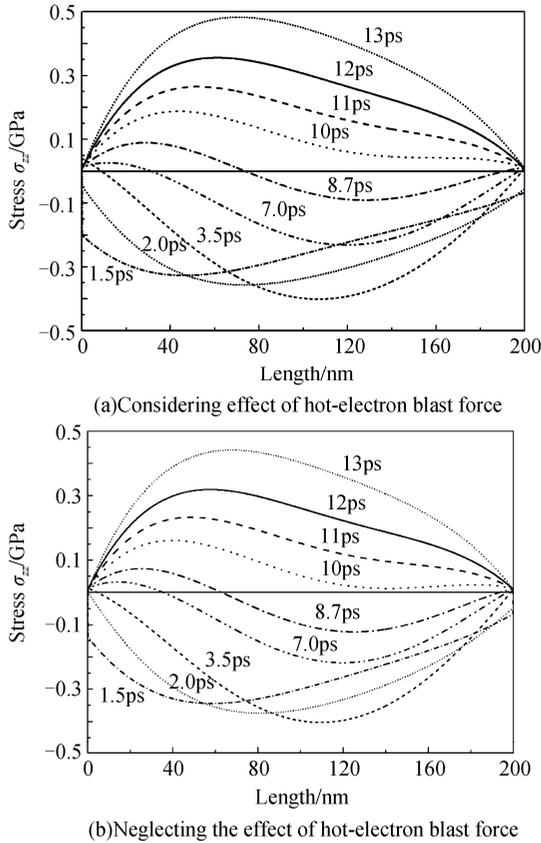


图 4 考虑与忽略热电子崩力效应时不同时刻金属薄膜内轴向应力的分布

Fig. 4 Axial stress distribution at various times in the metal film considering and neglecting the effect of hot-electron blast force

3 结论

运用具有人工粘性和自适应步长的有限差分算法,对超快脉冲激光辐照金属薄膜的超快热弹性过程进行了数值模拟和理论分析. 讨论了脉冲激光不同能量密度、脉冲宽度时电子-晶格体系温度场的变化规律,对比分析了热电子崩力对应力的影响. 结果表明:

1) 超快激光的脉冲宽度和能量密度对电子温度的峰值及电子与晶格耦合到热平衡的时间均有较大的影响. 脉冲宽度一定时,电子温度的峰值及耦合至热平衡的时间均随着能量密度的增加而增加;而能量密度一定时,电子温度的峰值及耦合至热平衡的时间均随着脉冲宽度的增加而减小.

2) 热流迟滞项与热传导项在时间上的不同步性导致电子热流出现双峰现象,电子热流出现等值双

峰的深度随着能量密度的增加而增大;

3) 激光辐照早期,热应力表现为压应力,同时受热电子崩力的影响比较明显; $z < 105$ nm 区域的热应力主要是由热电子崩力和非均匀的晶格温度场共同引起的,而 $z > 105$ nm 区域的热应力主要是由晶格温度场导致的.

参考文献

- [1] PERRY M D, MOUROU G. Terawatt to petawatt subpicosecond lasers[J]. *Science*, 1994, **264**(5161):917-924.
- [2] MOMMA C, NOTE S, CHICHKOV B N, *et al.* Precise laser ablation with ultrashort pulses[J]. *Appl Sur Sci*, 1997, **109**: 15-19.
- [3] VOGEL A, NOACK J, HÜTTMAN G, *et al.* Mechanisms of femtosecond laser nano-surgery of cells and tissues[J]. *Appl Phys B*, 2005, **81**(8):1015-1047.
- [4] STUART B C, FEIT M D, HERMAN S, *et al.* Optical ablation by high-power short-pulse lasers [J]. *J Opt Soc Am B*, 1996, **13**(2):459-468.
- [5] ZHAO Gang, HAO Qiu-long, QI Wen-zong, *et al.* Thermal behavior of thin films irradiated by ultra-short pulse laser[J]. *Acta Photonica Sinica*, 2007, **36**(1):9-12.
赵刚,郝秋龙,齐文宗.超短脉冲激光辐照下金属薄膜的热行为[J]. *光子学报*, 2007, **36**(1):9-12.
- [6] MA Lin, SHI Shun-xiang, CHENG Guang-hua, *et al.* Micro-explosions threshold induced by a single focused femtosecond laser pulse in fused silica[J]. *Acta Photonica Sinica*, 2007, **36**(6):969-971.
马琳,石顺祥,程光华,等.单个飞秒激光作用下熔融石英的微爆阈值研究[J]. *光子学报*, 2007, **36**(6):969-971.
- [7] XU Shi-zhen, JIA Tian-qing, XU Zhi-zhan, *et al.* Femtosecond laser induced ablation and the ultrafast dynamics of MgO (111) surfaces[J]. *Acta Photonica Sinica*, 2006, **35**(8):1126-1129.
徐世珍,贾天卿,徐至展,等.飞秒激光脉冲作用下氧化镁的烧蚀及其超快动力学过程[J]. *光子学报*, 2006, **35**(8):1126-1129.
- [8] ANISIMOV S I, KAPALIOVICH B L, PERELMAN T L, *et al.* Electron emission from metal surface exposed to ultra-short pulse [J]. *Sov Phys JETP*, 1974, **39**:375-378.
- [9] FUJIMOTO J G, LIU J M, IPPEN E P. Femtosecond laser interaction with metallic tungsten and non-equilibrium electron and lattice temperatures[J]. *Phys Rev Lett*, 1984, **53**(19):1837-1840.
- [10] QIU T Q, JUHASZ T, SUAREZ C, *et al.* Femtosecond laser heating of multi-layer metals-II experiments[J]. *Int J Heat Mass Transfer*, 1994, **37**(17):2799-2808.
- [11] QIU T Q, TIEN C L. Heat transfer mechanisms during short-pulse laser heating of metals [J]. *ASME J Heat Transfer*, 1993, **115**(4):835-841.
- [12] TZOU D Y, CHIU K S. Temperature-dependent thermal lagging in ultra-fast laser heating[J] *Int J Heat and Mass Transfer*, 2001, **44**(9):1725-1734.
- [13] XU X, CHENG C, CHOWDHURY H. Molecular dynamics

- study of phase change mechanisms during femtosecond laser ablation[J]. *ASME J Heat Transfer*, 2004, **126**(15):727-734.
- [14] TZOU D Y, CHEN J K, BERUAN J E. Hot-electron blast induced by ultra-short pulsed lasers in layered media [J]. *ASME J Heat Transfer*, 2002, **45**(16):3369-3382.
- [15] CHEN J K, BERAUN J E, THAN C L. Ultrafast thermoelasticity for short-pulse laser heating [J]. *Int J Eng Sci*, 2004, **42**(8):793-807.
- [16] CHEN J K, BERAUN J E, THAM C L. Investigation of thermal response caused by pulse laser heating [J]. *Numer Heat Transfer, Part A*, 2003, **44**(7):705-722.
- [17] ZHOU Nan, QIAO Deng-jiang. Materials dynamics under pulse beam radiation [M]. Beijing: National Defense Industry Press, 2002:320-332.
周南, 乔登江. 脉冲束辐照材料动力学 [M]. 北京: 国防工业出版社, 2002:320-332.
- [18] WANG H J, DAI W, MELNIK R. A finite difference method for studying thermal deformation in a double-layered thin film exposed to ultrashort pulsed lasers [J]. *Int J Thermal Sci*, 2006, **45**(11):1179-1196.

Simulation Study of Thermal and Mechanical Effect on Metal Film Irradiated by Ultra-fast Laser Pulse

WANG De-fei, QI Wen-zong, GUO Chun-feng

(College of Electronics and Information Engineering, Sichuan University, Chengdu 610064, China)

Received date: 2007-12-20

Abstract: Based on the dual-temperature hyperbolic two-step heat conduction and hot-electron blast models, a new set of fully coupled and nonlinear ultra-fast thermo-elasticity model was derived to investigate the thermo-mechanical coupling effect of metal films caused by ultra-fast pulsed laser. Taking the 200nm gold film irradiated by a 100fs laser pulse as a typical example, thermal stress development in the lattice sub-system, temperature along with temperature gradient and electron heat flux were modeled by using artificial viscosity and the adaptive step finite-difference algorithm. It is shown that the early period of laser heating is a non-equilibrium process and forming large hot-electron blast force. It is also found that electron heat flow presents bimodal phenomenon. In addition, thermal stress induced by ultra-fast laser heating could be the main reason for mechanical damage.

Key words: Ultra-fast pulse Laser; Metal films; Ultra-fast thermo-elasticity; Thermal stress; Non-thermal equilibrium



WANG De-fei was born in 1983 in Henan Province, China. He received the B. S. degree in 2006. Now he is studying for his M. S. degree in Sichuan University. His research interests mainly include laser technology, laser physics and ultra-short laser pulse interactions with materials.