

飞秒激光作用下薄膜破坏的力学过程

张红鹰 吴师岗

(山东理工大学材料科学与工程学院, 淄博 255049)

(2006 年 7 月 6 日收到, 2006 年 11 月 15 日收到修改稿)

提出了等离子体膨胀的力学模型, 在等离子体膨胀过程中考虑了球壳膨胀时的惯性效应, 实现了动态特性的模拟. 采用能量守恒原理, 研究了薄膜中等离子体受限制爆炸的薄膜损伤机理的力学特性, 并对薄膜损伤的发展作了初步探讨.

关键词: 等离子体, 膨胀, 薄膜, 激光

PACC: 5250, 6770, 7360

1. 引言

飞秒激光与材料的相互作用, 由于激光功率非常高、作用时间非常短, 所以会形成电子温度很高, 离子温度较冷的等离子体. 电子温度很高的等离子体不能稳定存在, 有迅速膨胀的趋势. 因此在飞秒激光作用下, 在薄膜表面甚至内部, 一旦形成等离子体, 薄膜的破坏往往不可避免. 在薄膜表面形成的等离子体, 类似于飞秒激光作用于固体靶表面的情况, 研究得比较多^[1-9]. 而在薄膜内部杂质或者激光干涉形成的驻波场波腹处, 由于强烈吸收而在薄膜内部出现的等离子体, 也已经作为薄膜的一种损伤机理被提出来了^[10, 11]. 现有的研究大多集中在等离子体的形成过程, 但对于等离子体形成后薄膜破坏的力学过程研究得很少, 本文对此进行了初步研究.

2. 等离子体膨胀的力学模型

等离子体中的电子在激光作用下, 能量和平均自由程均增加, 一些能量和平均自由程足够大的电子会逃离等离子体区域使等离子体不再呈电中性. 非电中性的等离子体不能稳定存在, 由于库仑力的作用, 它有膨胀的趋势. 假设杂质是导体, 那么杂质的带电量 Q 聚集在其表面. 将杂质视为球体, 则球内没有电场, 球外的电场强度^[12]为 $Q/(4\pi r'^2)$. 对电场在全空间积分, 可以得到静电场总能量为

$$E_{\text{PC}} = \frac{1}{2} \int \left(\frac{Q^2}{4\pi r'^2} \right)^2 r'^2 dr' d\Omega = \frac{Q^2}{8\pi} \int_r^\infty \frac{1}{r'^2} dr' = \frac{Q^2}{8\pi r}. \quad (1)$$

根据膨胀过程中的能量守恒定律, 忽略热效应, 则静电场势能全部转化成了膨胀动能

$$P_{\text{PC}} \cdot 4\pi r^2 \frac{\partial r}{\partial t} = - \frac{\partial E_{\text{PC}}}{\partial t} = - \frac{Q^2}{8\pi} \cdot \left(- \frac{1}{r^2} \frac{\partial r}{\partial t} \right). \quad (2)$$

可以得到静电场引起的压力为

$$P_{\text{PC}} = \frac{Q^2}{32\pi^2 r^4}. \quad (3)$$

另外, 在膨胀过程中高速热电子会牵引离子扩张, 电子的热能转化成杂质膨胀的动能. 由热电子牵引带来的压力^[2-5]称为电子热压力

$$P_e = n_e k T_e. \quad (4)$$

所以等离子体膨胀中的总压力为

$$P = P_e + P_{\text{PC}} = n_e k T_e + \frac{Q^2}{32\pi^2 r^4}. \quad (5)$$

可见, 压力随电子数密度、杂质带电量以及杂质半径变化, 在爆炸过程中, 杂质等离子体带电量可以认为不变, 半径增加引起电子密度减小. 再结合适当的力学模型, 就可以确定这种情况下的杂质破坏阈值. 这里没有特别考虑等离子体膨胀的受约束影响, 能量向薄膜基体的转移在下面的分析中得到体现.

假设在激光作用期间等离子体杂质球不发生膨胀. 由于薄膜内的等离子体通常发生在短脉冲激光作用中, 且等离子体的建立是在脉冲的后期^[7], 再考虑到等离子体的带电量的积累需要时间, 所以在激光作用期间等离子体膨胀所剩时间很少, 因此这个假设和实际情况不会带来太大的误差. 非电中性的

杂质体系很不稳定,由前面分析内压作用,迅速膨胀释放其积累的能量.假设爆炸过程中,杂质体始终保持球形,采用受内压球壳的膨胀模型来解决膨胀过程,分析薄膜的损伤阈值.膨胀过程中,压力满足关系

$$P_{\text{PC}} + P_e = P_1 + P_2, \quad (6)$$

其中 P_1 是球壳由于变形产生的抵抗压力,它与径向变形量直接相关^[13],即

$$P_1 = \frac{(D^3 - r^3) \cdot (r' - r)}{r^3 \cdot \left(\frac{r}{3\lambda + 2\mu} + \frac{D^3}{4\mu \cdot r^2} \right)}, \quad (7)$$

D 是杂质填埋的深度,即杂质球心位置到薄膜表面的距离. λ, μ 是 Lamé 弹性常数, r 是杂质初始半径, r' 是径向位置变量. P_2 是爆炸过程中杂质体前沿径向推进速度变化引起的球壳变形的惯性压力.它与变形加速度直接相关,即

$$P_2 = \zeta \cdot \frac{\rho(D^3 - r^3)}{3r'^2} \cdot \ddot{r}', \quad (8)$$

ζ 是质量修正因子,它对应于最终喷溅材料的质量和模型中球壳总质量的比值.(6)式的压力关系式没有解析解,只可以做数值解.运用初始条件

$$\begin{aligned} \ddot{r}'(t=0) &= (P_{\text{PC}} + P_e) \left(\zeta \cdot \frac{\rho(D^3 - r^3)}{3r'^2} \right), \\ \dot{r}'(t=0) &= 0, \\ r'(t=0) &= r, \end{aligned} \quad (9)$$

对牛顿运动方程采用 LeapFrog 法计算每个时刻对应的等离子体体积和其前沿推进速度、加速度等参数.该模型中杂质体积有一个最大值,达到最大值时,如果还没有达到材料的临界强度,则薄膜不会破坏.

忽略球壳膨胀过程中引起的热,最临界的破坏情况是杂质达到最大体积时刚好破坏,这时的膨胀速度是零.根据能量守恒,可知电子热能以及杂质系统的静电场能量的变化全部转化成球壳的变形势

$$U = \int_0^{\Delta r'_{\text{max}}} P_1 \cdot (4\pi r'^2) dr',$$

在由静电场能量和电子热能与激光场强的关系就可以得到薄膜的损伤阈值.

3. 白金杂质的离子体爆炸分析

以杂质形成的等离子体为例(由驻波场形成的内部局域等离子体与之类似),分析等离子体破坏的力学过程特点.在激光薄膜中,常见的杂质是白金颗

粒,其原子量是 195.1,密度是 21.4 g/cm^3 ,原子密度为 $21.4(195.1 \times 1.66 \times 10^{-24}) = 6.61 \times 10^{22} \text{ electrons/cm}^3$,对应的电子数也在 $10^{22} \text{ electrons/cm}^3$ 数量级.本文重点研究高温等离子体形成以后,在受到外压限制的情况下,杂质等离子体爆炸的发展情况,找出导致一定强度的材料损伤所需要的初始等离子体密度、电子温度与材料强度的关系,以及爆炸过程中各种压力和爆炸波速度、加速度随时间演化的情况.假设逃逸电子比例为 50%,根据前面分析得到的公式,研究下面三种情况:1)位置深度为 300 nm,等离子体中剩余电子密度为 $1 \times 10^{22} \text{ electrons/cm}^3$,杂质半径分别为 100 nm,150 nm,200 nm,250 nm;2)杂质半径为 250 nm,等离子体中剩余电子密度为 $1 \times 10^{22} \text{ electrons/cm}^3$,位置深度分别为 300 nm,350 nm,400 nm,450 nm;3)位置深度 300 nm,杂质半径 250 nm,等离子体中剩余电子密度分别为 $1 \times 10^{21} \text{ electrons/cm}^3$, $5 \times 10^{21} \text{ electrons/cm}^3$, $1 \times 10^{22} \text{ electrons/cm}^3$, $5 \times 10^{22} \text{ electrons/cm}^3$.假设爆炸过程中剩余电子数目不变,材料强度取 100MPa,质量因子取为 0.1.由计算机运算得到的杂质爆炸演化过程,以及相应密度下破坏所需要的最小电子温度,结果如图 1—5 所示.分别是:图 1,不同尺寸的杂质等离子体下的电子临界温度;图 2,不同深度的杂质等离子体下的电子临界温度;图 3,不同电子密度的等离子体下的电子临界温度;图 4,等离子体膨胀的径向速度、加速度的时间演化情况;图 5,等离子体膨胀的库仑压力、电子热压力随时间演化情况.

由计算结果可知,同样的自由电子密度和位置深度下,半径越大的杂质等离子体引起薄膜破坏所需要的临界温度越小,从 3.3 eV 降低到 0.9 eV.半径大的杂质等离子体电子总数多,相对于小尺寸杂质等离子体而言,同样的总电子热能对应的电子温度低.而电子热能在膨胀中转变成球壳变形能和膨胀动能,所以电子热能决定了膨胀所能达到的程度.由图 5 可以看出库仑作用在整个膨胀过程中所起作用不大,这里的分析均不考虑它的影响,实际上库仑作用只有在杂质半径小于 50Å 时才占优势,这只有在研究团簇等离子体的情况下才考虑^[3-5];同样电子密度和杂质半径下,位置越浅的杂质越容易引起薄膜破坏,对应的电子温度为 2.4 eV—0.9 eV.位置越浅,模型中球壳越薄,所能存储的变形能越少,所以较少的电子热能就足够使其破裂,即薄膜的破坏;对于一指定的杂质,形成的等离子体的电子密度越

大,破坏所需要的温度越低,这从能量守恒角度也可以很容易得到解释.可见电子总热能与薄膜的破坏有直接的的决定性关系,电子总热能超过薄膜材料所能存储的最大变形能很多的时候,薄膜必然破坏.

从图 1 2 3 中可以看出,薄膜发生破坏所需要的电子温度并不高,都小于 9 eV,多数集中在 1—3 eV 之间,最小的只有 0.2 eV.而等离子体的电子平均温度,根据麦克斯韦分布律可以大致认为比材料电离势的一半值稍大一点^[2-5],对于白金杂质在 5—6 eV.可见材料内部形成等离子体以后决大多数情况是薄膜必然破坏,但是也有不会破坏的情况,这说明此时破坏还具有统计性特点.

图 4、图 5 给出了杂质爆炸过程中,等离子体膨胀的径向速度、加速度、库仑压力、电子热压力随时间的演化情况.加速度开始时最大,达到 $1.8 \times 10^{14} \text{ m/s}^2$,此时速度由零开始迅速上升,当库仑压力和电子热压力与球壳的阻抗压力平衡时,加速度为零,速度达最大值 $10 \times 10^3 \text{ m/s}$,随后加速度为负,膨胀靠惯性继续进行,速度下降,在速度为零之前如果薄膜承受不了就发生破坏.

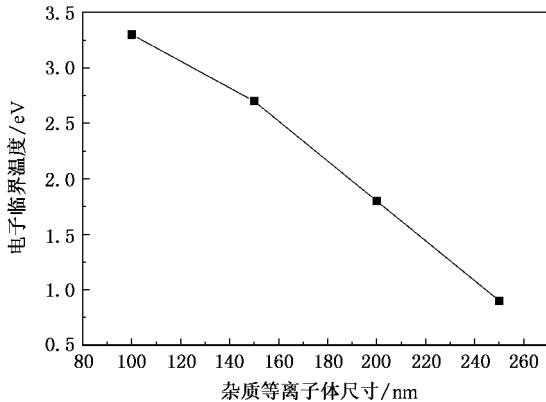


图 1 不同尺寸杂质等离子体下的临界温度

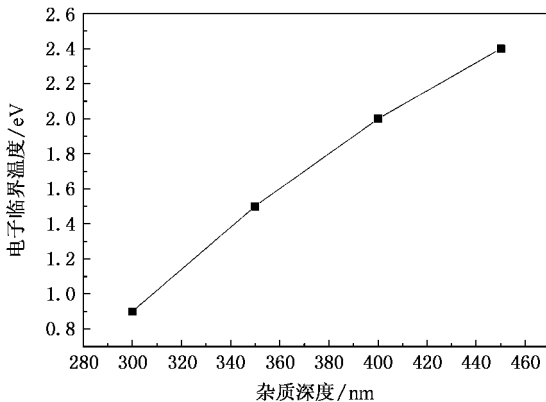


图 2 不同深度杂质等离子体下的电子临界温度

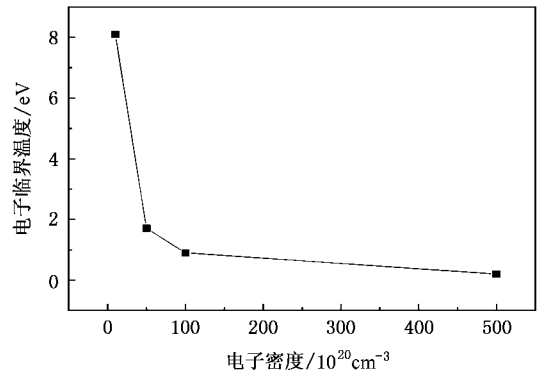


图 3 不同电子密度等离子体下的电子临界温度

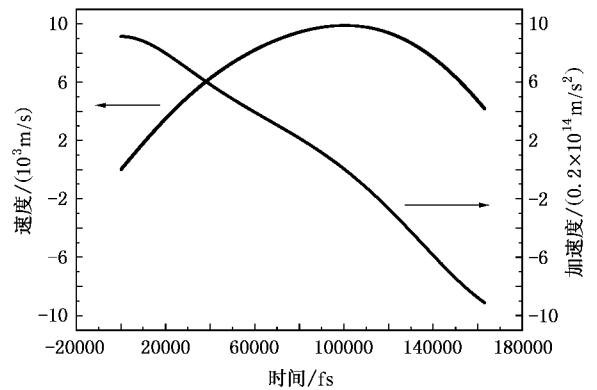


图 4 杂质等离子体膨胀的径向速度、加速度的时间演化情况

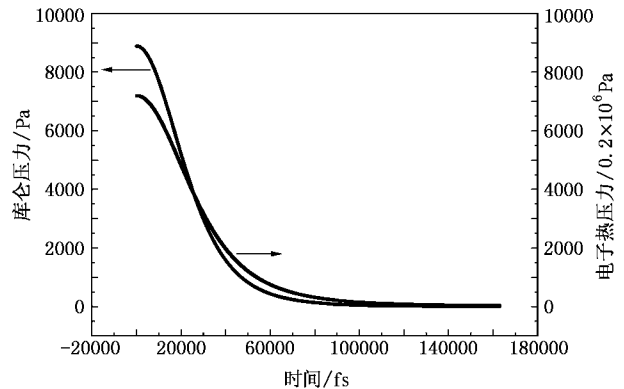


图 5 杂质等离子体膨胀的库仑压力、电子热压力的时间演化情况

4. 结 论

1. 目前等离子体研究主要集中在气相等离子体以及团簇态等离子体的特性上,对于固相等离子体,主要侧重在固体靶表面的等离子体向真空或者空气中膨胀的研究,这些是没有外部压力的情况,而

对于固体材料内局部区域的高密度等离子体,受到一定压力限制的膨胀情况研究很少,本文在这方面作了一些初步研究.

2. 等离子体膨胀过程中考虑了球壳膨胀时的惯性效应,真正的实现了动态特性的模拟.

3. 以薄膜中的白金杂质为例,由实验数据拟合出光电离和雪崩电离的参数后,得到相应的电子密度和温度,并对薄膜损伤的力学发展过程作了初步探讨.

-
- [1] Arnold D , Cartier E 1992 *Phys. Rev. B* **46** 15102
- [2] Kaiser A , Rethfeld B , Vicanek M *et al* 2000 *Phys. Rev. B* **61** 11437
- [3] Mora P 2003 *Phys. Rev. Lett.* **90** 185002 – 1
- [4] Ditmire T , Donnelly T , Rubenchik A M *et al* 1996 *Phys. Rev. A* **53** 3379
- [5] Lezius M , Dobosz S , Normand D *et al* 1998 *Phys. Rev. Lett.* **80** 261
- [6] Deng X P , Jia T Q , Leng Y X *et al* 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 2216 (in Chinese) [邓蕴沛、贾天卿、冷雨欣等 2004 物理学报 **53** 2216]
- [7] Stuart B C , Feit M D , Herman S *et al* 1996 *Phys. Rev. B* **53** 1749
- [8] Gu Y Q , Cai D F , Zheng Z J *et al* 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 185 (in Chinese) [谷渝秋、蔡达锋、郑志坚等 2005 物理学报 **54** 185]
- [9] Liu Y Q , Zhang J , Liang W X 2005 *Chin. Phys.* **14** 1671
- [10] Jasapara J , Nampoothiri A V V , Rudolph W 2001 *Phys. Rev. B* **63** 045117 – 1
- [11] Mero M , Liu J , Rudolph W *et al* 2005 *Phys. Rev. B* **71** 115109 – 1
- [12] Guo S H 1979 *Electromotion Dynam* (Beijing : Higher Education Press) 56—57 (in Chinese) [郭硕鸿 1979 电动力学(北京:高等教育出版社)第 56—57 页]
- [13] Huang H W 1998 *Journal of China University of Geosciences* **23** 326 (in Chinese) [黄宏伟 1998 中国地质大学学报 **23** 326]

The dynamic process of thin films damage induced by femtosecond laser

Zhang Hong-Ying Wu Shi-Gang

(School of Materials Science and Engineering , Shandong University of Technology , Zibo 255049 , China)

(Received 6 July 2006 ; revised manuscript received 15 November 2006)

Abstract

A dynamic model of plasma explosion is put forward. The inertia factor is considered during plasma expansion, and the dynamic simulation is carried out. The dynamic mechanism of film damage induced by plasma blast is discussed. Damage development of thin film is preliminarily investigated.

Keywords : plasma , blast , films , laser

PACC : 5250 , 6770 , 7360