

脉冲激光烧蚀中电声弛豫时间的确定

胡德志[†]

(华北科技学院基础部, 三河 065201)

(2008 年 4 月 20 日收到, 2008 年 6 月 13 日收到修改稿)

为了提高脉冲激光制备薄膜的质量, 准确掌握电声弛豫时间是关键, 它对脉冲激光脉宽和能量密度的选取起着决定性的作用. 文中以铝靶材为例, 利用经典的双温方程通过时域有限差分法(FDTD)得到电子、离子亚系统的温度随时间和位置演化的图像, 进而得到电声弛豫时间的准确值. 这样便能准确划分热烧蚀和非平衡烧蚀, 从而更好地控制激光的烧蚀过程. 同时找出了电声弛豫时间随激光脉宽以及能量密度变化的规律.

关键词: 飞秒激光, 电声弛豫时间, 双温方程, 激光能量密度

PACC: 5225, 5250J, 6610C

1. 引 言

随着飞秒激光技术的快速发展, 超精细微加工得到了极大的推广. 飞秒激光与金属、非金属材料相互作用的特殊性质^[1]使得亚微米加工成为了可能, 使得精细加工技术向前迈进了一大步. 自从 1995 年以来飞秒激光就被应用到亚微米加工制造领域^[2-6], 而且成果不断. 现在, 金属薄膜的超精细微加工已经被广泛应用于高密度数据存储和半导体微电子器件制造方面, 但是超短脉冲激光和物质相互作用的物理机制还不是十分明确. 研究表明电声弛豫时间对脉冲激光烧蚀靶材的微观机制的划分起着决定性的作用^[7-10]. 但是, 电声弛豫时间极短(皮秒量级), 一直以来很难通过仪器直接测量.

本文以铝靶材为例, 直接利用双温方程通过数值计算得到电子、离子亚系统的温度随时间和位置演化的图像, 进而可以得到电声弛豫时间的准确值. 同时找出了电声弛豫时间随激光脉宽以及能量密度变化的规律.

2. 理论和模型

2.1. 物理背景

研究表明, 脉冲激光的烧蚀机制大致可划分成

两大类, 即热烧蚀(有时也称为热平衡烧蚀)和非平衡烧蚀(有时也称为非热烧蚀)^[7-10]. 当激光脉冲宽度大于电声耦合时间时, 称其为热烧蚀, 当激光脉宽小于电声耦合时间时, 我们称其为非平衡烧蚀. 一般来说, 电声耦合时间大约是几个皮秒^[9, 10]. 当脉冲激光辐照靶材表面时, 由于电子质量远小于离子质量, 靶材表面的自由电子首先吸收大量能量, 其能量急剧增加. 电子之间相互碰撞, 互相传递着能量. 经过数十飞秒后^[11], 电子亚系统内部达到热平衡, 如果此时激光仍作用于靶材表面, 电子系统将吸收激光能量, 其温度将急剧增加. 而在此时间内, 离子系统只能吸收很少的激光能量, 温度几乎不变. 这样电子亚系统和离子亚系统之间就形成了巨大的温度差. 因此, 如果脉冲频率在飞秒级区段, 靶材内便形成电子亚系统的表征温度 T_e 和离子亚系统的表征温度 T_i 两个温度. 这便是双温模型建立的物理背景. 相应的烧蚀过程称为非平衡烧蚀.

电子亚系统和离子亚系统之间相互作用, 就是通常的电声相互作用. 研究表明, 通过电声相互作用, 电子将能量逐渐传递给离子, 使得两个亚系统之间的温度差逐渐减小. 经过大约几皮秒到数十皮秒的时间后, 两个亚系统温度达到平衡, 相应的作用时间称为电声弛豫时间 t_{ie} . 通常, 纳秒级脉冲激光由于脉冲宽度 t_p 大大超过电声弛豫时间 t_{ie} , 两个亚系统之间早已达到平衡, 其后的作用过程以热效应为主, 因此称之为热烧蚀. 可见, 电声弛豫时间 t_{ie} 是

[†] E-mail: wjswjshh@163.com

划分烧蚀机制的关键. 文献 [12, 13] 仅考虑了电子热传导和电声耦合作用, 忽略了激光热源项对电声弛豫时间的影响, 简化双温方程后得到了电声耦合时间. 虽然得到了近似的解析解, 但是当辐照靶材表面的激光能量密度较大, 热源相的影响较大, 实际上是不能忽略的. 因此, 文献 [12, 13] 中得到的解析解仅仅适用于低能短脉冲激光烧蚀, 对于高能短脉冲激光烧蚀就不再适用了. 因此, 考虑激光热源项是十分必要的.

2.2. 经典的双温模型 (TTM)

1975 年苏联学者 Anisimov 考虑到电声耦合作用对烧蚀机制的影响, 将被激光辐照的靶材划分成电子和离子两个亚系统. 结合能量守恒原理和傅里叶热传导定律得到了经典的双温方程^[1]. 通过双温方程可以较好地描述电子和离子亚系统温度随时间和位置演化的规律. 其方程如下:

$$C_e \frac{\partial T_e}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} k_e \frac{\partial T_e}{\partial x} - g(T_e - T_i) + A(x, t), \quad (1)$$

$$C_i \frac{\partial T_i}{\partial t} = g(T_e - T_i), \quad (2)$$

其中 C_i, C_e 分别为离子的比热容和电子的比热容; K_e 是电子热传导率; $A(x, t)$ 是激光热源项. 为了使结果更准确, 本文在计算中也采用了高斯型分布函数^[14, 15]

$$A(x, t) = (1 - R)\alpha q(t) \exp[-\alpha x], \quad (3)$$

$$q(t) = q_0 \exp[-4\ln(2)(t/t_p - 1)^2], \quad (4)$$

其中 $q(t)$ 是激光脉冲时间的函数部分; q_0 是激光功率密度; R, α 是靶材的反射率和光学吸收系数; g 是靶材的电声耦合系数.

根据能量守恒定律, 给出在靶材的表面 ($x = 0$) 上的边界条件

$$-k_s \left. \frac{\partial T_s(x, t)}{\partial x} \right|_{x=0} = \alpha q(t) \quad (0 < t \leq t_p), \quad (5)$$

同时根据绝热条件, 在单个脉冲辐照时间内最大的热传导深度 δ 满足条件

$$\left. \frac{\partial T_s(x, t)}{\partial x} \right|_{x=\delta} = 0 \quad (0 < t \leq t_p). \quad (6)$$

设靶材的初始温度为 T_0 , 则

$$T_s|_{t=0} = T_0. \quad (7)$$

至此, 给出了激光烧蚀综合模型的边界条件和初始条件.

2.3. 离子亚系统和电子亚系统的温度随时间和位置的变化规律

2.3.1. 激光烧蚀综合模型的差分方程

微分方程组 (1)–(4) 没有满足边界条件 (5)–(7) 的解析解, 下面利用有限差分解微分方程组, 对具有上述边界条件和初始条件的双温方程进行数值求解.

将时间和空间区域进行离散化处理, 所处理的空间区域的线度为烧蚀时间内的热扩散距离 δ , 将方程组差分离散化, 则对于节点 (i, j) , 相应的差分方程组可以写为

$$\begin{aligned} & c_e \frac{T_e(i, j+1) - T_e(i, j)}{\Delta t} \\ & = k_e \frac{T_e(i+1, j+1) + T_e(i-1, j+1) - T_e(i, j+1)}{(\Delta x)^2} \\ & \quad - g[T_e(i, j+1) - T_i(i, j+1)] + A(i\Delta x, j\Delta t), \\ & c_i \frac{T_i(i, j+1) - T_i(i, j)}{\Delta t} \\ & = g[T_e(i, j+1) - T_i(i, j+1)], \\ & A(i\Delta x, j\Delta t) = (1 - R)\alpha q(j\Delta t) \exp[-\alpha i\Delta x], \\ & q(j\Delta t) = q_0 \exp[-\ln(2)(j\Delta t/t_p - 1)^2] \end{aligned}$$

显然, 差分方程组的截断误差为 $o(\Delta t + (\Delta x)^2)$, 以下将利用该差分方程组对铝靶材进行模拟研究. 通过新的模型, 可以很方便地求出高斯型的脉冲激光和不同靶材相互作用过程中, 靶材表面及内部电子和离子随时间位置演化的温度图像.

2.3.2. 对铝靶材的模拟研究

为明确起见, 我们以铝靶材为例进行研究. 铝靶材的物理热属性参数如下^[12, 13, 15, 16].

热导率 $K = 2.36 \text{ W/m} \cdot \text{K}$, 电子比热容为 $91 \times 10^{-6} \text{ J/m}^3 \cdot \text{K}^2$, 晶格比热为 $2.41 \text{ J/m}^3 \cdot \text{K}$, 费米能为 11.6 eV , 吸收系数为 $6.67 \times 10^5 \text{ cm}^{-1}$, 反射率为 0.85 , 耦合系数为 $7.05 \times 10^{16} \text{ W/m}^3 \cdot \text{K}$.

2.3.3. 电子温度和离子温度随时间和位置的演化规律

在激光波长为 800 nm , 脉宽为 100 fs , 激光能量密度为 0.12 J/cm^2 的红外激光辐照下, 将铝的物理热属性参数代入经典的双温方程中, 得到靶材被烧蚀前电子和离子两个亚系统的温度随时间和位置的演化图像, 如图 1 所示.

由图 1(a) 可以看出, 在单个激光脉冲辐照时间内, 电子亚系统的温度增加极快, 但是它随深度的变化很大. 在单个激光脉冲的间歇时间内, 电子亚系

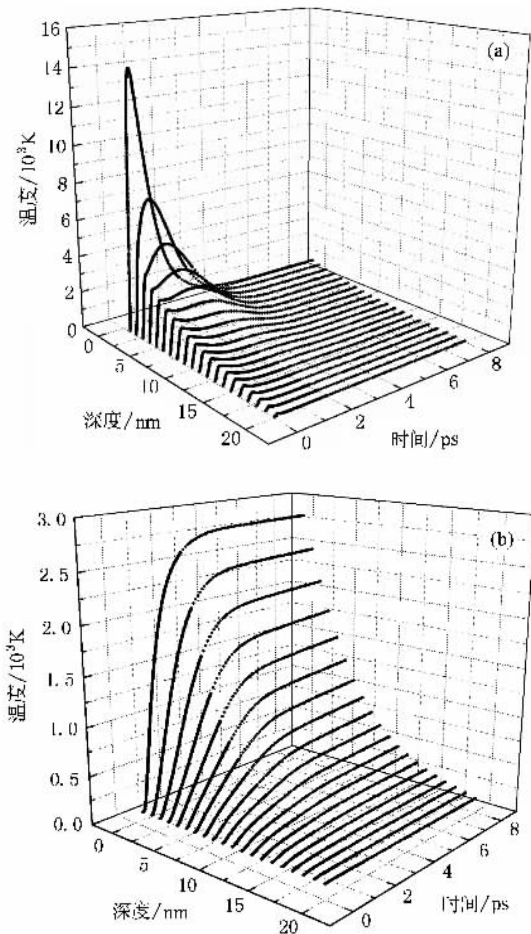


图1 铝靶材温度随时间和位置的变化规律 (a)电子亚系统的温度随时间和位置变化规律 (b)离子亚系统的温度随时间和位置变化规律

统的温度显著降低. 在电声耦合时间 t_{ic} 之后, 电子亚系统的温度变化很小, 而随深度的变化也较小.

由图 1(b)可以看出, 离子亚系统在电声耦合时间 t_{ic} 内, 其温度也在不断上升, 但是和电子亚系统相比其温度上升速度要慢很多. 在电声耦合时间 t_{ic} 之后, 离子亚系统的温度上升速度更加缓慢, 但随深度变化很大.

总而言之, 随着时间的推移, 最终电子亚系统的温度和离子亚系统的温度合二为一, 可以用一个系统温度来表示, 这与实验结果完全符合.

2.3.4. 激光辐照靶材时靶材表面电子和离子亚系统的温度随时间的演化规律

激光辐照靶材表面时, 激光和电子亚系统相互作用交换能量的同时, 也可能和离子亚系统相互作用, 而离子亚系统和电子亚系统之间也存在着相互作用. 因此, 这是一个十分复杂的过程. 但是在不

同的时间段内, 必然只有一种作用机制占主导地位, 这也是研究其物理机制的关键. 图 2 表示的是波长为 800 nm, 脉宽为 100 fs, 能量密度为 0.12 J/cm^2 的脉冲激光辐照时铝靶材表面离子和电子亚系统随时间演化的温度图像. 从图 2 中可以看出, 在激光和靶材相互作用过程中, 在激光辐照靶材的极短时间内电子亚系统吸收了绝大部分的激光能量, 温度急剧上升, 而离子亚系统的温度几乎不变. 可见, 此时激光和电子亚系统的相互作用占主要地位. 这段时间内, 脉冲激光的能量密度对电子亚系统的温度影响很大. 在单个脉冲激光辐照时间后, 电子和离子亚系统之间形成很大的温度差 (32000 K). 当激光暂时停止, 和电子亚系统的相互作用处于间歇状态时, 电子亚系统和离子亚系统之间的作用 (即电声耦合作用) 占主导地位. 电子亚系统把刚才吸收的激光能量逐步传递给离子亚系统. 在经过电声耦合弛豫时间 t_{ic} 之后, 电子亚系统和离子亚系统达到平衡状态. 此时, 电子亚系统的温度和离子亚系统的温度达到一致, 这时的温度即为通常所说的靶材表面温度. 因此, 根据离子和电子亚系统温度变化的图像还可以得到准确的电声弛豫时间. 从图 2 我们便可以得到波长为 800 nm, 脉宽为 100 fs, 能量密度为 0.12 J/cm^2 的脉冲激光辐照铝靶材表面时电声耦合弛豫时间为 4.3 ps.

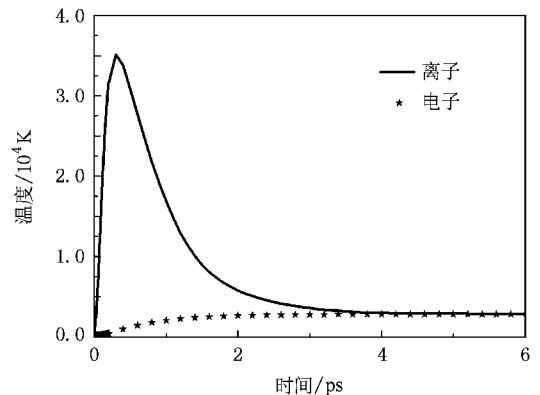


图2 脉宽为 100 fs 激光作用于铝靶材表面时电子和离子温度随时间变化的图像

3. 不同脉宽激光烧蚀靶材的变化规律

文献 [12, 13] 指出, 当脉冲激光的脉宽变化时电声耦合弛豫时间也将随之发生改变. 但是, 这仅仅是通过近似计算得到的结果, 受到计算条件的限制.

实际上,通过数值计算可以准确的对双温方程求解.下面就利用双温方程对不同脉宽的短脉冲激光烧蚀铝靶材过程进行理论研究.当激光能量密度较小时,电声耦合弛豫时间随激光脉宽的增加而逐渐增大,其结果和文献中描述的基本一致.

图3是能量密度为 0.01 J/cm^2 ,脉宽分别为 $300, 500, 700, 900\text{ fs}$ 的激光烧蚀铝靶材时,表面电子和离子亚系统的温度随时间演化的图像.从图3可以看出,不同脉宽激光烧蚀铝靶材时电子离子亚系统温度的变化趋势基本一致,都经历了三个阶段.还可以直观地看出,随着激光脉宽的逐渐增加,电子亚系统和离子亚系统的最大温度都在逐渐降低.但离子亚系统的温度相对于电子亚系统变化幅度要小一些.对于不同脉宽激光烧蚀的温度图像,电子和离子亚系统到达平衡时的温度呈现出阶梯状.由此可见,在激光能量密度不变的情况下,改变激光的脉宽,对激光的烧蚀有较大的影响.同时,由图3还可以清楚地看到,电子亚系统和离子亚系统达到平衡的时间也在逐渐的增加,即电声耦合时间 t_{ic} 随激光脉冲宽度的增加也在逐渐的增加.除此之外,本文还将计算得到的电声耦合弛豫时间和文献[12,13]给出的电声耦合弛豫时间进行了比较,如图4所示.两种方式得到的电声耦合弛豫时间基本一致.

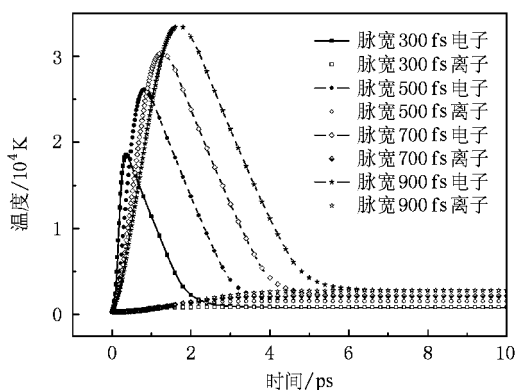


图3 脉宽分别为 $300, 500, 700, 900\text{ fs}$ 的激光烧蚀铝靶材时表面电子离子亚系统温度随时间变化的图像

4. 不同能量密度的激光烧蚀靶材时电声弛豫时间的变化规律

文献[12,13]在忽略了激光热源项对电声弛豫时间的影响,简化双温模型后得到电声耦合时间.但实验研究表明,电声耦合弛豫时间不仅与激光脉宽有关,而且和激光能量密度的大小也有着直接的

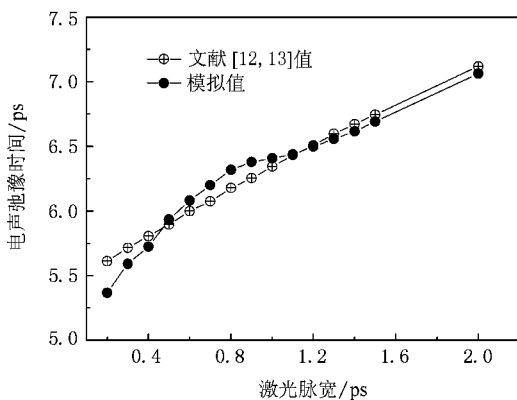


图4 电声弛豫时间随激光脉冲宽度的变化规律图像

联系^[17],我们必须考虑激光能量密度对电声耦合弛豫时间的影响.本文利用双温方程通过数值计算得到了不同能量密度的激光烧蚀铝靶材表面时电子和离子亚系统的温度演化图像,如图5所示.

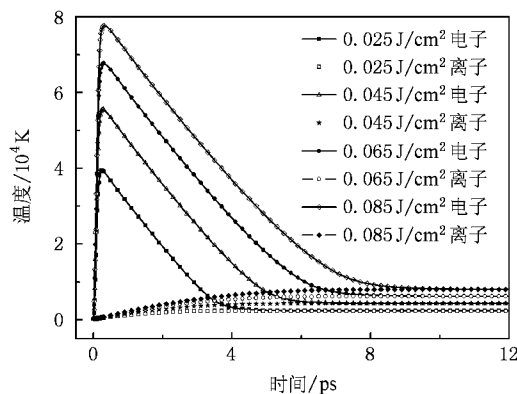


图5 脉宽为 1 ps 能量密度分别为 $0.025, 0.045, 0.065, 0.085\text{ J/cm}^2$ 的激光烧蚀铝靶材时表面电子亚系统和离子亚系统的温度随时间变化的图像

图5展示的是脉宽为 1 ps 能量密度分别为 $0.025, 0.045, 0.065, 0.085\text{ J/cm}^2$ 的激光烧蚀铝靶材时表面电子亚系统和离子亚系统的温度随时间变化的图像.从图5可以清楚地看出,当激光能量密度逐渐增加时,电子和离子亚系统的最大温度也随之逐渐增加,电声弛豫时间也在逐渐增加,由 6.1 ps 增加到 10.5 ps .为了更清晰地表明电声弛豫时间随激光能量密度变化的规律,本文还给出了电声弛豫时间和激光能量密度的图像,如图6所示.从图6中可以清楚地看到,由文献[12,13]给出的电声耦合时间却始终保持在 5.7 ps ,不随激光能量密度的改变而发生变化.但是,利用经典的双温方程通过数值计算得到的电声耦合弛豫时间随激光能量密度的增

加逐渐增加,而且几乎是线性增加的。由此可见,只有考虑激光能量密度对电声弛豫时间的影响才能够与实验结果符合[17,18]。产生这样结果的原因是由于电声碰撞频率 $\omega_{pe} = (4\pi e^2 n_e / m_e)^{1/2} \cdot 10^{16} \text{ s}^{-1}$ 通常是恒定不变的。从能级跃迁的角度看,每次电子和声子碰撞电子传递给晶格的能量等于固定的能隙。因此,每次碰撞传递的能量大小不变。相同时间内通过电声碰撞传递的总能量也不变。所以当激光电磁场的能量增加时,电子亚系统的能量也增

加,电声碰撞传递的总能量增加,电声相互作用时间也就随之增长,这与图6所反映的结果基本一致。

5. 总 结

1)探讨了脉冲激光烧蚀靶材过程中热烧蚀和非平衡烧蚀的异同点,找出了划分两种烧蚀机制的重要物理量——电声耦合弛豫时间,并以铝靶材为例,利用双温模型通过数值计算得到了电子、离子亚系统的温度随时间和位置的变化规律,结果与实验相符。

2)根据脉冲激光烧蚀机理通过对经典的双温方程求解得到了不同激光脉宽下以及不同激光能量密度下的电声弛豫时间的准确值。发现当单个脉冲激光能量密度不变时改变脉冲宽度,电声弛豫时间会逐渐增加,与文献[12,13]中给出的一致,但是当单个脉冲宽度不变时改变激光能量密度,电声弛豫时间也会随之逐渐增加,与文献中给出的结论不同,而与文献[18]反映的结果相同——当激光能量密度增加,激光非平衡烧蚀逐渐向热烧蚀转变。这是电子亚系统和离子亚系统间能量差距增大而平均单次碰撞传递能量不变的必然结果。

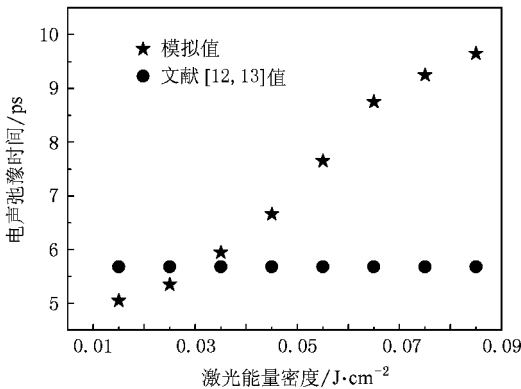


图6 电声弛豫时间随激光能量密度的变化规律

- [1] Anisimov S I, Kapeliovich B L, Perelman T L 1975 *Sov. Phys. JETP* **39** 375
- [2] Wang J C, Guo C L 2005 *Appl. Phys. Lett.* **87** 251914
- [3] Pronko P P, Dutta S K, Squier J, Rudd J V, Du D, Mourou G 1995 *Opt. Commun.* **114** 106
- [4] Liu X, Du D, Mourou G 1997 *IEEE J. Quantum Electron* **33** 1706
- [5] Chu L Z, Lu L F, Wang Y L, Fu G S 2007 *Acta Phys. Sin.* **56** 3374 (in Chinese)[褚立志、卢丽芳、王英龙、傅广生 2007 物理学报 **56** 3374]
- [6] Wan Y L, Lu L F, Yan C Y, Chu L Z, Zhou Y, Fu G S, Peng Y C 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 5738 (in Chinese)[王英龙、卢丽芳、闫常瑜、褚立志、周阳、傅广生、彭英才 2005 物理学报 **54** 5738]
- [7] von der Linde D, Sokolowski-Tinten K, Bialkowski J 1997 *Appl. Surf. Sci.* **109** 1101
- [8] Gamaly E G, Madsen N R, Duering M 2004 *Phys. Rev. B* **71** 174405
- [9] Colombier J P, Combis P, Bonneau F, Harzic R L, Audouard E 2005 *Phys. Rev. B* **71** 165406
- [10] Ki H, Mazumder J 2002 *J. Laser Appl.* **17** 110
- [11] Cheng C R, Xu X F 2005 *Phys. Rev. B* **72** 165415
- [12] Nolte S, Momma C, Jacobs H, Tünnermann A, Chichkov B N, Wellegehausen B, Welling H 1997 *Opt. Soc. Am. B* **14** 2716
- [13] Nedialkov N N, Imamova S E, Atanasov P A 2004 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **37** 638
- [14] Chen J K, Latham W P, Beraun J E 2005 *J. Laser Appl.* **17** 63
- [15] Picciotto A, Kra J, Láská L, Rohlena K, Torrisi L, Gammino S, Mezzasalma A M, Caridi F 2006 *Nuclear Instrum. Meth. Phys. Res. B* **247** 261
- [16] Yamashita Y, Yokomine T, Ebara S, Shimizu A 2006 *Fusion Eng. Design* **81** 1695
- [17] Amoruso S, Wang X, Altucci C, Lisio C, Armenante M, Bruzzese R, Velotta R 2000 *Appl. Phys. Lett.* **77** 3728
- [18] Nedialkov N N, Imamova S E, Atanasov P A, Atanasov P A, Berger P, Dausinger F 2005 *Appl. Surf. Sci.* **247** 243

Numerical calculation of the electron-phonon coupling relaxation time in pulse laser ablation

Hu De-Zhi[†]

(*Department of Basic Courses , North China Institute of Science and Technology , Sanhe 065201 , China*)

(Received 20 April 2008 ; revised manuscript received 13 June 2008)

Abstract

The key to improving the quality of thin film prepared by pulse laser deposition , is to properly control the electron-phonon coupling relaxation time which determines the pulse duration and the laser fluence. Taking the aluminum targets as an example , we obtain the evolution temperature of electron subsystem and ion subsystem by solving the standard two temperature equation using the finite-difference time-domain (FDTD) method. Then , we obtain the electron-phonon coupling relaxation time , which can distinguish between the thermal ablation and the non-equilibrium ablation to ensure that we can control the process of pulse laser ablation well. In addition , we find out how does the electron-phonon coupling relaxation time change with the pulse duration and the laser fluence.

Keywords : femtosecond laser , the electron-phonon coupling relaxation time , two temperature equation , laser fluence

PACC : 5225 , 5250J , 6610C

[†] E-mail : wjswjshh@163.com