

数值模拟飞秒激光加热金属的热电子发射^{*}

陈安民 高 勋 姜远飞 丁大军 刘 航 金明星[†]

(吉林大学原子与分子物理研究所, 长春 130012)

(2009 年 9 月 24 日收到; 2010 年 1 月 6 日收到修改稿)

研究了超短超强激光脉冲与薄膜靶相互作用中产生的电子热发射. 当超短激光脉冲与薄膜靶相互作用时, 首先入射超短脉冲激光对吸收深度内的自由电子进行热激发; 接下来热激发电子将能量传递到附近的晶格, 再通过电子和晶格二体系的热传导, 以及电子晶格间的热耦合, 将能量传递到材料的内部. 因此, 电子在皮秒级甚至更短的时间内不能与晶格进行能量耦合, 使电子温度超出晶格温度很多, 电子热发射就变得非常明显了. 用双温方程联合 Richardson-Dushman 方程的方法对飞秒脉冲激光照射金属靶的电子热发射进行了研究, 结果发现电子热发射对飞秒激光照射下的金属靶材的电子温度和晶格温度的变化有着重要的影响, 同时薄膜厚度与激光的能量密度直接影响热电子的发射.

关键词: 激光烧蚀, 双温模型, 电子发射

PACC: 5250, 5225, 6370

1. 引 言

自从超短脉冲激光出现以来, 金属的热电子弛豫动力学就吸引了很多研究者的兴趣^[1-6]. 它的激发时间在亚皮秒范围, 在多光子光电子发射和热电子发射的减少有个分割线, 因为电子的比热远远小于晶格的比热, 电子气在短暂的时间内不能与晶格进行能量耦合, 使电子温度超出晶格温度很多, 这样非平衡电子加热就变得非常明显了. 金属中包含了很多电子, 特别是在满带能级上(如导带), 这些电子可以在金属里面自由运动而不能脱离金属. 如果一个电子要从金属中逃逸出去, 这个电子需要的能量大约是 1.5—6 eV. 在热电子发射中, 从热碰撞到逃逸金属电子需要足够的能量. 电子的发射数和相应的热电子发射电流主要依赖于金属的温度.

本文数值模拟了飞秒激光加热金属的热电子发射, 用双温度模型(TTM)计算薄膜的温度, 用 Richardson-Dushman 方程估算热电子发射率. 结果发现电子热发射对飞秒激光照射下的金属靶材的电子温度和晶格温度的变化有着重要的影响, 同时薄膜的厚度与激光的能量密度直接影响热电子的

发射.

2. 热电子发射理论模型

超短脉冲激光与金属相互作用时, 金属中由于存在大量自由电子, 可通过逆韧致吸收过程而吸收激光能量. 趋肤层厚度内的自由电子吸收激光能量后, 电子温度迅速升高, 随后通过电子热扩散将能量传递到金属靶材内部, 以及通过电子与晶格的耦合过程传递给周围晶格^[7,8]. 超短脉冲激光与金属相互作用过程可用一维双温两步热传导方程来描述^[9-11]

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

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

这里 C 是热容, T 是温度, G 为电子-晶格耦合系数^[12-14], 下标 e 和 l 代表电子和晶格; 热源项 $S(x, t) = \sqrt{4 \ln(2) / \pi} (A \alpha I / t_p) \cdot \exp(-\alpha x - 4 \ln(2) \times ((t - t_p) / t_p)^2)$ ^[15,16], 其中 α 为吸收系数, A 为表面对激光的吸收率, t_p 为脉冲宽度, I 为激光能量密度; 当电子温度低于 Fermi 温度时, 电子热容的表达

^{*} 国家自然科学基金(批准号:10534010)资助的课题.

[†] 通讯联系人. E-mail: mxjin@mail.jlu.du.cn

式为 $C_e = \gamma T_e^{[17,18]}$, 其中 $\gamma = \pi^2 n_e k_B / 2T_F$, n_e 是电子密度, k_B 是 Boltzmann 常数, T_F 为 Fermi 温度; $k_e = k_0 b T_e / (a T_e^2 + b T_1)$ 是电子热传导率^[19], 其中 a, b 分别表示电子-电子和电子-原子碰撞率, 在低温时, 电子-电子的碰撞能被忽略, 电子的传导率变为 $k_e = k_0 T_e / T_1^{[20,21]}$.

如果金属中的电子温度足够高, 那么 Fermi-Dirac 分布的尾部将趋向真空, 导致热电子发射. 来自金属中的热电子发射率, 忽略空间电荷场, 能用 Richardson-Dushman 来表达^[22]:

$$\frac{dN}{dt} = B(k_B T_e)^2 \exp\left[\frac{-(E_F + e\phi - \mu)}{k_B T_e}\right], \quad (3)$$

这里 k_B 是 Boltzmann 常数, ϕ 是金属的功函, $E_F = ((hc)^2 / 8mc^2) (2/\pi)^{2/3} (n_e)^{2/3}$ 是 Fermi 能^[23], $\mu = E_F (1 - (\pi^2/12)(k_B T_e / E_F)^2)$ 是化学势^[23], $B = 4\pi m / h^3$, m 是电子质量, h 是 Planck 常量, c 是光速, N 是被估算离开金属表面的电子数. 一个电子要从金属的内部逃逸, $E_F + e\phi$ 是它的简化势垒, 是作为金属的内势.

因为金属表面辐射电子将导致电子密度梯度, 电子密度用 n_e 表示, 那么用扩散方程计算电子密度的扩散:

$$\frac{\partial n_e}{\partial t} = D_e \frac{\partial^2 n_e}{\partial x^2}, \quad (4)$$

这里, D_e 是电子扩散系数, $D_e = \mu_e k_B T_e / e$, $\mu_e = |v| / E$, $v = eE\tau_e / m$ 是漂移速度, $\tau_e = 3mk_e / \pi^2 n_e k_B^2 T_e$ 为电子弛豫时间^[24].

方程(1), (2)的初始条件和边界条件为

$$T_e(x, 0) = T_1(x, 0) = T_0, \quad (5)$$

$$k_e \frac{\partial T_e(0, t)}{\partial x} = (E_F + e\phi) \dot{N}, \quad (6)$$

$$\frac{\partial T_e(d, t)}{\partial x} = 0. \quad (7)$$

方程(4)的初始条件与边界条件为

$$n_e(x, 0) = n_{e0}, \quad (8)$$

$$D_e \frac{\partial n_e(0, t)}{\partial x} = \dot{N}, \quad (9)$$

$$\frac{\partial n_e(d, t)}{\partial x} = 0, \quad (10)$$

这里 n_{e0} 为薄膜初始的电子密度, d 是薄膜厚度.

3. 计算结果与讨论

我们以铜靶为例(参数见表1), 靶材的厚度(即薄膜厚度)是 200 nm, 激光的脉宽为 100 fs, 波长为 800 nm. 图1为能量密度为 1000 J/m² 的激光照射下, 铜靶材电子密度随时间和空间的变化关系.

表1 铜的参数^[25]

G	k_0	C_1	$1/\alpha$	A	T_F	a	b	T_0	n_{e0}
$10^6 \text{ J} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$	$\text{J} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$	$10^6 \text{ J} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{K}^{-1}$	10^{-9} m		10^4 K	$10^7 \text{ s}^{-1} \cdot \text{K}^{-2}$	$10^{11} \text{ s}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$	K	10^{28} m^{-3}
10	401	3.5	12.2	0.035	8.12	1.28	1.23	300	8.47

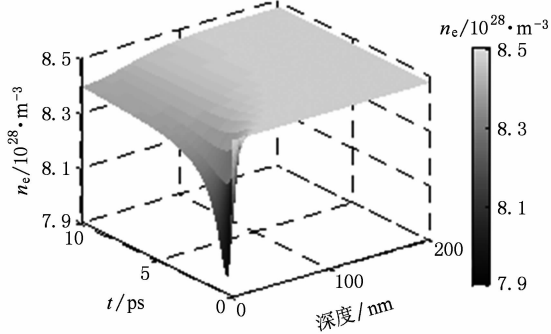


图1 典型的飞秒激光照射下电子密度随时间和空间的分布
($t_p = 100 \text{ fs}$, $d = 200 \text{ nm}$, $I = 1000 \text{ J/m}^2$)

图2和图3分别展示了铜表面处电子温度和晶格温度随时间的变化关系. 从图中我们可以很清晰地看到, 电子热发射对电子温度和晶格温度有着极

其重要的影响, 没有电子热发射的电子温度和晶格温度相对于有电子热发射的温度是比较高的. 其中没有电子热发射的最高电子温度和晶格温度分别为 23260 和 1481 K, 有电子热发射的最高电子温度和晶格温度为 21256 和 1138 K.

热平衡时不同深度的晶格温度由图4给出. 热电子发射对不同深度的晶格温度有很大的影响, 其中在靶材表面处, 没有电子热发射的晶格温度为 1449 K, 有电子热发射的晶格温度为 1111 K; 在靶材底部(深度为 200 nm)处, 没有电子热发射的晶格温度为 602 K, 有电子热发射的晶格温度为 539 K. 可以看出它们在表面处温差比较大, 而越往靶材内部晶格温度相差逐渐变小, 说明热电子发射对靶材表面温度影响比较大, 原因在于强激光照射下, 靶材表面存在热电子发射, 这些发射的热电子带走了

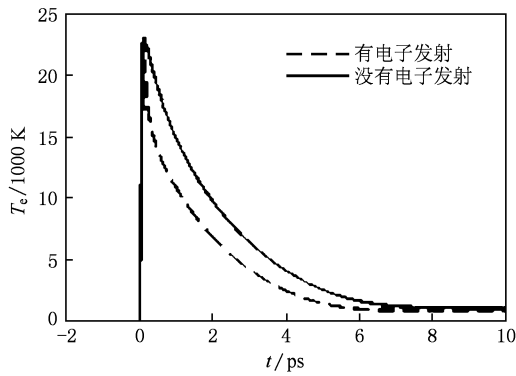


图2 表面处电子温度随时间的变化,没有电子热发射的电子温度比较高,有电子热发射的电子温度比较低($t_p = 100$ fs, $x = 0$ nm, $I = 1000$ J/m²)

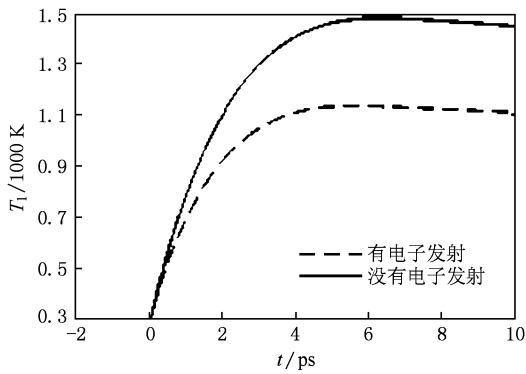


图3 表面处晶格温度随时间的变化,没有电子热发射的晶格温度比较高,有电子热发射的晶格温度比较低($t_p = 100$ fs, $x = 0$ nm, $I = 1000$ J/m²)

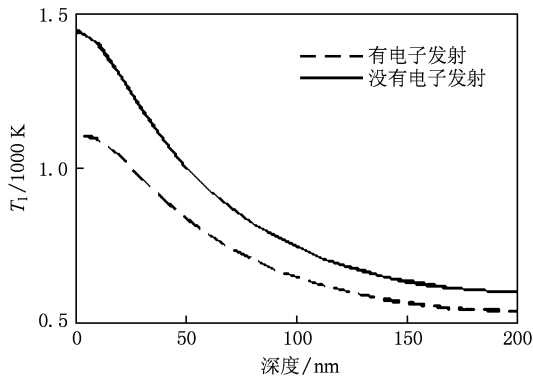


图4 热平衡时不同深度的晶格温度,没有电子热发射的晶格温度比较高,有电子热发射的晶格温度比较低($t_p = 100$ fs, $t = 10$ ps, $I = 1000$ J/m²)

很多能量.

不同薄膜厚度下的发射电子数随时间的变化关系如图5所示.可以看出,发射电子数在皮秒量级,因此可以作为皮秒量级的电子束源.图6给出了

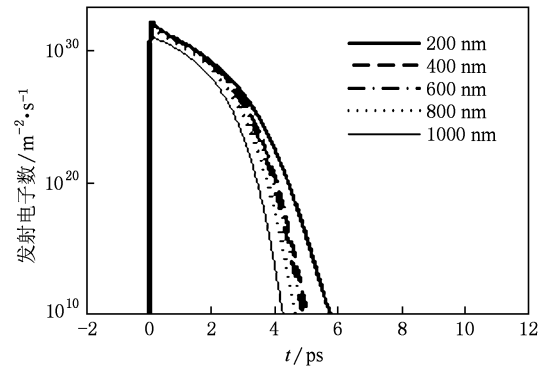


图5 不同薄膜厚度下发射电子数随时间的变化关系($t_p = 100$ fs, $I = 1000$ J/m²)

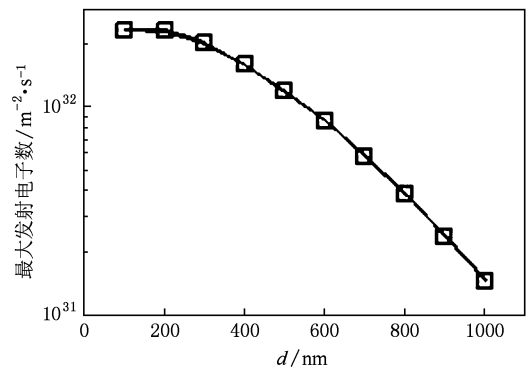


图6 最大发射电子数随薄膜厚度的变化关系($t_p = 100$ fs, $I = 1000$ J/m²)

最大发射电子数随薄膜厚度的变化关系.可以看出,随着薄膜厚度的增加,最大的热电子发射数逐渐减弱,说明当薄膜厚度增加时,有很多的能量传递到薄膜内部,使在薄膜表面处的能量减少,这样薄膜表面处的温度也相应减少.而热电子发射数和温度密切相关,因此热电子发射也随之减少.图7给出了最大发射电子数随激光能量密度的变化关系.

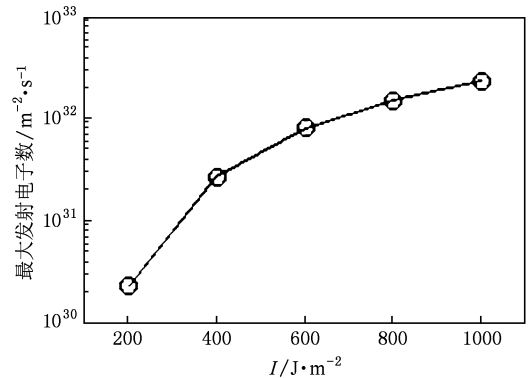


图7 最大发射电子数随激光能量密度的变化关系($t_p = 100$ fs, $d = 200$ nm)

从图中我们看到,随着脉冲能量密度的增加,发射电子数明显增加,这说明激光的能量密度将直接影响电子数的发射。

4. 结 论

利用双温模型联合 Richardson-Dushman 方程的

方法对飞秒脉冲激光照射金属靶材的电子热发射进行了研究,结果发现:电子热发射对飞秒激光照射下的金属靶材的电子温度和晶格温度的变化有着重要的影响,同时薄膜的厚度与激光的能量密度直接影响热电子的发射。由于飞秒照射产生的电子热发射是在皮秒量级的,因此是一种非常有潜在应用价值的皮秒量级的电子束源。

-
- [1] Nolte S, Momma C, Jacobs H 1997 *J. Opt. Soc. Am. B* **14** 2716
- [2] Bulgakova N M 2004 *Phys. Rev. B* **69** 54102
- [3] Gu Y Q, Cai D F, Zheng Z J, Yang X D, Zhou W M, Jiao C Y, Chen H, Wen T S, Chunyu S T 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 186 (in Chinese) [谷渝秋、蔡达锋、郑志坚、杨向东、周维民、焦春晔、陈 豪、温天舒、淳于书泰 2005 物理学报 **54** 186]
- [4] Xu M H, Liang T J, Zhang J 2006 *Acta Phys. Sin.* **55** 2357 (in Chinese) [徐妙华、梁天骄、张 杰 2006 物理学报 **55** 2357]
- [5] Li K, Li Y T, Zhang J, Yuan X H, Xu M H, Wang Z H, Zhang J 2006 *Acta Phys. Sin.* **55** 5909 (in Chinese) [李 昆、李玉同、张 军、远晓辉、徐妙华、王兆华、张 杰 2006 物理学报 **55** 5909]
- [6] Huang W Z, Li Y T, Xiong Y, Zhang S G, Wen X L, Hong W, Gu Y Q, Wen T S, He Y L 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 111 (in Chinese) [黄文忠、李玉同、熊 勇、张双根、温贤伦、洪 伟、谷渝秋、温天舒、何颖玲 2008 物理学报 **57** 111]
- [7] Corkum P B, Brunel F, Sherman N K 1988 *Phys. Rev. Lett.* **61** 2886
- [8] Zhigilei L V, Lin Z B, Ivanov D S 2009 *J. Phys. Chem. C* **113** 11892
- [9] Cheng J, Perrie W, Sharp M, Edwardson S P 2009 *Appl. Phys. A* **95** 739
- [10] Gan Y, Chen J K 2009 *Appl. Phys. Lett.* **94** 201116
- [11] Hu D Z 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 1077 (in Chinese) [胡德志 2009 物理学报 **58** 1077]
- [12] Allen P B 1987 *Phys. Rev. Lett.* **59** 1460
- [13] Wang X Y, Riffe D M, Lee Y S 1994 *Phys. Rev. B* **50** 8016
- [14] Huang J, Zhang Y W, Chen J K 2009 *Appl. Phys. A* **95** 643
- [15] Qiu T Q, Tin C L 1993 *J. Heat Trans.* **115** 835
- [16] Unal A A, Stalmashonak A, Seifert G, Graener H 2009 *Phys. Rev. B* **79** 115411
- [17] Chen J K, Beraun J E 2003 *J. Opt. A: Pure Appl. Opt.* **5** 168
- [18] Kim J, Na S 2007 *Opt. Laser Technol.* **39** 1443
- [19] Yang J J, Liu W W, Zhu X N 2007 *Chin. Phys.* **16** 2003
- [20] Tang J 2008 *Appl. Phys. Lett.* **92** 11901
- [21] Tai P T, Yu P, Tang J 2009 *J. Phys. Chem. C* **113** 15014
- [22] Smith A L, Breitwieser R 1970 *J. Appl. Phys.* **41** 436
- [23] Jiang L, Tsai H L 2006 *J. Appl. Phys.* **100** 23116
- [24] Jiang L, Tsai H L 2005 *J. Heat Trans.* **127** 1167
- [25] Christensen B H, Vestentoft K, Balling P 2006 *Appl. Surf. Sci.* **253** 6347

Numerical simulation of femtosecond laser heating of metal films using electron thermal emission^{*}

Chen An-Min Gao Xun Jiang Yuan-Fei Ding Da-Jun Liu Hang Jin Ming-Xing[†]

(*Institute of Atomic and Molecular Physics, Jilin University, Changchun 130012, China*)

(Received 24 September 2009; revised manuscript received 6 January 2010)

Abstract

The whole process of the electron thermal emission by ultrafast pulsed laser is studied in the paper. When an ultra-short laser pulse interaction with the target film, first of all, the incident laser excites free electrons within the absorption depth; next, electron energy is transferred to nearby lattice through the heat transfer systems of the free electron and lattice, and by the thermal coupling between the electron and the lattice, the energy is delivered to the internal material. Therefore, in a short period of ps and shorter, the energy coupling of the electron and lattice can not be established. So that the electron temperature is much higher than the lattice temperature, the electron thermal emission becomes apparent. The characteristics of thermionic emission of the films during ultrashort pulse laser ablation are investigated using two-temperature model coupled with the Richardson-Dushman equation. It is found that electron thermal emission can significantly change the development of electron and lattice temperatures, meanwhile, the film thickness and laser fluence directly affect electron thermal emission.

Keywords: laser ablation, two-temperature model, electron emission

PACC: 5250, 5225, 6370

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 10534010).

[†] Corresponding author. E-mail: mxjin@mail.jlu.du.cn