

文章编号: 1000-7032(2012)10-1143-06

## 短脉冲激光加工双温方程的优化运算

金方圆<sup>1,2</sup>, 鄂书林<sup>1\*</sup>, 王海峰<sup>1</sup>, 陈波<sup>1</sup>

(1. 中国科学院长春光学精密机械与物理研究所, 吉林 长春 130033;

2. 中国科学院大学, 北京 100039)

**摘要:** 为研究双温方程中电子热传导项和电子与晶格耦合项对激光辐照物体表面温度场求解的影响, 对这两项施加了约束条件。由于飞秒和亚皮秒激光与物质相互作用时间短, 电子与晶格来不及耦合, 所以对耦合项施加时间约束; 根据相分离条件(CPPS), 对热传导项施加空间约束。利用有限元方法建立了激光烧蚀金属铜膜表面的有限元模型。通过分析双温方程中热传导项和耦合项对计算结果的影响, 发现短脉冲激光与铜金属相互作用过程中电子与晶格耦合项可以忽略, 而传导项不可忽略。求解适当激光功率下的双温方程, 得到了激光作用中心电子与晶格在不同脉冲宽度激光辐照下的温度变化关系。根据 100 fs 激光作用后晶格温度场的空间分布情况, 研究了激光作用的相分离区域、相爆炸区域以及熔融区域的分布情况。

**关键词:** 短脉冲激光; 双温方程; 有限元; 相分离(CPPS)

中图分类号: TN241

文献标识码: A

DOI: 10.3788/fjxb20123310.1143

## Calculation of An Optimized Two Temperature Model for Ultra-short Laser Ablation

JIN Fang-yuan<sup>1,2</sup>, E Shu-lin<sup>1\*</sup>, WANG Hai-feng<sup>1</sup>, CHEN Bo<sup>1</sup>

(1. Changchun Institute of Optics, Fine Mechanics and Physics, Chinese Academy of Sciences, Changchun 130033, China;

2. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100039, China)

\* Corresponding Author, E-mail: eshulin@sohu.com

**Abstract:** Since the pulse duration of femtosecond and sub-picosecond laser are quite short, the electrons and lattice in material can't couple in time when the sample is irradiated by ultra-short pulse laser. According to critical-point phase separation (CPPS) theory and actual laser ablation process, the thermal conductivity in the model can be restricted regionally. Based on aforementioned analysis, an optimized two temperature model (TTM) is formulated, which provides a new perspective into the energy transport process during ultrashort single pulse laser ablation. Using finite element analysis (FEA) software, a model which exhibits the cuprum film sample irradiated by ultra-short pulse laser is proposed. Taking account of symmetrical spatial shape of Gaussian distribution laser on the sample, part of the model is used to calculate simply. According to calculation, the electron-lattice coupling and thermal conduction transient parts in the optimized TTM are analyzed separately. The results indicate that, during ultra-short laser irradiating on cuprum film, the coupling item can be neglected, but the conduction item can't be neglected. The conduction item plays a major role during femtosecond and sub-picosecond laser irradiating on cuprum, while the

收稿日期: 2012-06-26; 修订日期: 2012-07-28

基金项目: 国家自然科学基金(10878004/A03)资助项目

作者简介: 金方圆(1989-), 男, 河南商丘人, 主要从事微光学器件加工的研究。

E-mail: jinfangyuan610@163.com

electron-lattice coupling item plays a major part after laser's effect. With finite element method (FEM), the optimized 1D and 2D TTM model are calculated. For the purpose of ablating sample, suitable laser pulse fluence of 100 fs, 300 fs, 1 ps, 2 ps are applied. The electron and lattice transient temperature distribution evolutions along time in the centre of laser irradiated zone are obtained. For further analysis, according to the spatial lattice temperature distribution, phase separation zone, phase explosion zone and melting zone are calculated.

**Key words:** ultra-short laser pulse; two temperature model (TTM); finite element method (FEM); critical-point phase separation (CPPS)

## 1 引 言

激光具有较高的能量密度,短脉冲激光能够对物体表面进行精细加工。目前,激光加工技术已经应用到许多前沿技术领域,如对透明材料内部进行三维加工<sup>[1]</sup>、利用双光子聚合制备新型聚合物材料<sup>[2]</sup>、利用激光脉冲沉积制备新功能薄膜<sup>[3]</sup>以及通过激光刻蚀制备新型光学器件<sup>[4]</sup>等。为了解释激光对金属加工过程中产生的现象,通常用双温方程模型<sup>[5]</sup>、流体动力学模型<sup>[6]</sup>、分子动力学模型<sup>[7]</sup>和综合模型<sup>[8]</sup>等对短脉冲激光与物质相互作用的过程进行理论研究,其中双温方程模型是最简单、最常用的模型。用数值差分运算、傅里叶变换、有限元方法求解双温耦合方程也是惯用的方法。Chichkov<sup>[9]</sup>通过理论分析给出了飞秒、皮秒以及纳秒激光作用金属物质时的双温模型的约化方法,并求解得到相应解析解的数学表达式。Vatsya<sup>[10]</sup>假设加工过程中电子与晶格的热容量以及电子热传导不随温度变化,对双温方程进行傅里叶运算,得到电子与晶格温度在频域的变化函数,最后利用 matlab 软件对函数进行逆傅里叶变换,得到电子与晶格温度变化曲线。倪晓昌<sup>[11]</sup>对双温方程进行了约化,分析了飞秒领域对双温方程约化的合理性,并用有限差分法对飞秒、皮秒激光在金属表面烧蚀过程的温度场进行了一维数值模拟,得到电子与晶格温度随时间变化的曲线。同样,房然然<sup>[12]</sup>采用数值差分的方法对一维双温方程进行计算,得到电子与晶格温度随深度和时间变化的关系。石云飞<sup>[13-14]</sup>采用有限元法对激光烧蚀材料的温度场进行了模拟,同样得到了电子与晶格温度的变化关系。

本文通过分析短脉冲激光辐照铜膜的物理过

程对双温方程中热传导项和电子与晶格耦合项分别施加约束条件,得到优化后的双温方程,并分析了其合理性及使用范围。利用有限元方法建立了二维热传导双温模型,选用适当能量的单脉冲激光,根据相分离条件,通过分析晶格温度场的空间分布得到了激光作用的相分离区域、相爆炸区域和熔融区域。

## 2 一维双温模型的求解与优化

Anisimov 根据非稳态热传导方程得到了分析激光与金属相互作用过程中热扩散现象的双温方程:

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

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

$C_e$  和  $C_l$  分别表示电子和晶格单位体积比热容,  $k_e = k_0 T_e / T_l$  是电子的热传导率,  $\gamma$  是电子和晶格耦合常数。当电子能量低于费米能级时,非热平衡条件下,电子的比热容  $C_e = C'_e T_e$ ,  $C'_e$  是个常数。从上述方程就可以得到电子的冷却时间  $T_e = C_e / \gamma$ , 而晶格的加热时间  $T_l = C_l / \gamma$ ,  $S$  为激光光源项,本文采用基模高斯光束进行运算。

### 2.1 一维双温模型的求解

采用有限元方法对一维双温模型进行求解运算,模型采用的数据如下:使用平顶激光  $S(z, t) = I_0 (1 - R) \mu \exp(-\mu z)$  作为光源项,  $I_0$  为功率密度,单脉冲激光能量为 14.14 nJ,聚焦光斑半径为  $r_a = 10 \mu\text{m}$ ;烧蚀材料为金属铜膜,材料吸收系数  $\mu = 7 \times 10^7 \text{ m}^{-1}$ ,反射率  $R = 0.61$ ,  $C_e = 96.6 \times T_e \text{ J}/(\text{K} \cdot \text{m}^3)$ ,  $C_l = 3.43 \times 10^6 \text{ J}/(\text{K} \cdot \text{m}^3)$ ,

$k_e = 401 T_e / T_1 \text{ W/K}, \gamma = 1.2 \times 10^{17} \text{ W}/(\text{m}^3 \cdot \text{K})$ 。铜膜的膜厚为 500 nm, 以保证单脉冲激光束的能量不能透过膜层, 表层采用绝热条件, 底部温度设为室温 300 K。激光脉冲宽度分别选为 50 fs、100 fs、300 fs 和 1 ps, 取材料表面激光束辐照中心点计算其电子与晶格温度变化, 得到的结果如图 1 所示。

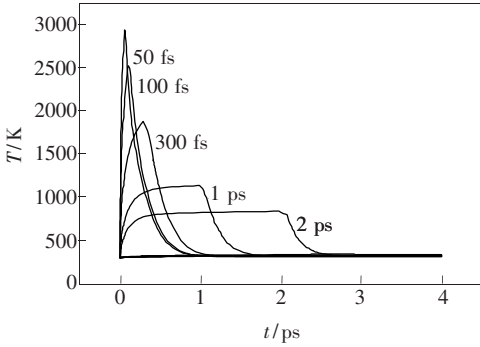


图 1 不同脉冲宽度时, 表层电子与晶格温度的变化关系。  
Fig. 1 Surface temperature evolutions vs. time for different pulse durations

上述结果与有限差分运算得到的结果符合得很好。由于采用的激光脉冲宽度窄、能量密度大, 所以电子温度迅速提高并在激光作用结束时达到最大值, 此时晶格温度变化极小。激光作用后, 电子温度快速下降, 晶格温度缓慢上升, 直到它们的温度达到平衡, 电子与晶格耦合时间随着激光脉冲宽度的增加而增加。由于双温方程是由传统热传导方程经过合理物理分析得到的, 也符合典型抛物型偏微分方程的表达形式, 因此, 能够利用有限元分析求解偏微分方程的方法得到双温方程数值解。

### 2.2 一维双温方程的优化

假设当激光脉冲为飞秒量级时, 在脉冲间隔内电子热传导过程十分缓慢, 可忽略不计<sup>[11]</sup>。选用上述激光项对脉冲宽度为 300 fs 的激光进行计算, 结果如图 2 所示。

由图 2 可见, 在激光辐照过程中, 电子接收到的能量不能完全用来升高自身温度, 还存在着电子与电子之间由于相互碰撞而产生的传热现象。对方程加以分析: 只有当激光脉冲宽度远小于电子冷却的时间, 即  $t_p \ll t_e$ , 在时间项  $t \ll t_e$  的范围内, 满足  $C_e T_e / t \gg \gamma T_e$ , 电子与晶格的耦合项才可以忽略。由于上述条件在激光与电子相互作用的时间范围内, 所以满足忽略耦合项的条件。将脉冲

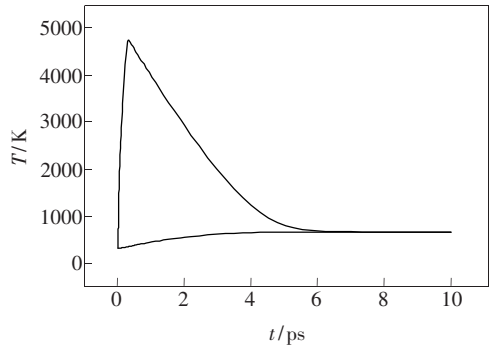


图 2 无热传导项双温方程中电子与晶格温度的变化关系

Fig. 2 Temperature evolution vs. time in TTM without conduction item

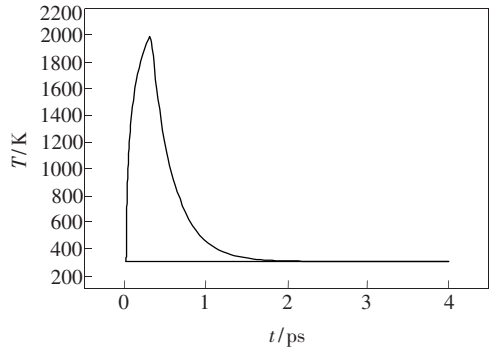


图 3 无耦合项时电子与晶格温度的变化关系

Fig. 3 Temperature evolution vs. time in TTM without coupling item

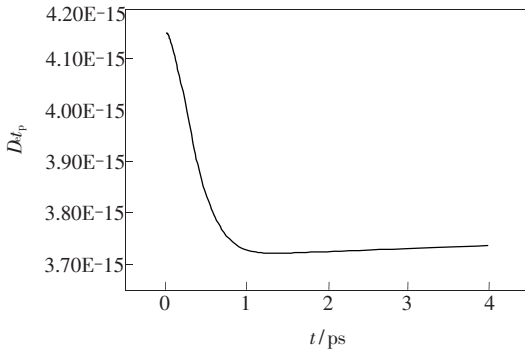
宽度设为 300 fs 代入方程求解, 结果如图 3 所示。

对比图 1、2、3 可知, 在飞秒激光作用阶段可以忽略耦合项而不可以忽略热传导项。激光作用后, 电子与晶格温度的变化主要靠耦合项, 使得电子温度迅速上升以后将热量全部传送给晶格的时间在 1.6 ps 左右。由于晶格温度上升全靠电子与其耦合, 所以温度基本不变。

上述分析的实际物理意义是: 当满足条件  $D_e t_p < \mu^{-2}$  ( $D_e = k_e / C_e$ , 是电子的热扩散率) 时, 激光的热穿透深度是个极小的值, 可以忽略热传导项<sup>[9]</sup>。 $D_e t_p$  随时间的变化规律如图 4 所示。

计算采用的铜材料的吸收系数  $\mu = 7 \times 10^7 \text{ m}^{-1}$ , 不满足  $D_e t_p < \mu^{-2}$  的条件, 再次证明在解决双温模型问题时, 不能忽略热传导项。

F. Vidal 等<sup>[15]</sup>模拟了短脉冲激光与铝靶材的作用过程, 认为能量密度为 0.6 ~ 1 J/cm<sup>2</sup> 的激光与金属作用时存在一个相分离点 CPPS (Critical point phase separation), 它控制加工过程中各种物

图 4  $D_e t_p$  随时间的变化关系Fig. 4  $D_e t_p$  evolution vs. time

理现象的产生。Wu<sup>[16]</sup>称靶材料晶格达到相分离点的最大温度为相分离温度:

$$T_{\text{sep}} = T_c \left( \frac{\rho_0}{\rho_c} \right)^{2/3}, \quad (3)$$

其中  $\rho_0$ 、 $\rho_c$  和  $T_c$  分别为靶材料的密度、相分离区域的材料密度以及相分离临界温度。

Hu<sup>[17]</sup>认为,当靶材温度达到相分离温度后,可把靶材溅射的物体看做理想气体,激光去除区域的边界线为绝热线,因此可以把发生相分离区域的热传导系数设置为 0。根据以上分析,定义 UPULSE 函数,类似于矩形函数,其意义为 UPULSE( $x - x_1, x - x_2$ ) 在  $x \in (x_1, x_2)$  时为 1,其他区间为 0;定义 USTEP 阶跃函数 USTEP( $x - x_0$ ),其意义是括号内取正时函数值为 1,反之为 0。综合上述讨论,将模拟时间设为  $T$ ,就可以将方程(1)、(2)优化为:

$$C_e = \frac{\partial T_e}{\partial t} = - \frac{\partial}{\partial z} \left[ k_e \frac{\partial T_e}{\partial z} \right].$$

$$\text{USTEP}(T_{\text{sep}} - T_1) - \gamma(T_e - T_1) \cdot$$

$$\text{UPULSE}(t - t_p, t - T) + S(z, t), \quad (4)$$

$$C_1 \frac{\partial T_1}{\partial t} = \gamma(T_e - T_1) \cdot \text{UPULSE}(t - t_p, t - T).$$

$$(5)$$

它不仅在时间上对耦合项进行了限制,体现了在激光作用过程中耦合项对电子温度变化影响不大的结论;而且在空间上对激光去除区域的热传导项进行了限制,优化了有限元方法计算双温模型的结果。

### 3 二维双温模型的建立与应用

根据相分离条件,在一维双温模型求解过程中,激光并未把物质去除。激光具有轴对称

的性质,可以建立二维模型对双温方程求解激光去除物质的过程。在短脉冲激光与物质相互作用过程中,物质的很多参数都随着温度的变化而变化<sup>[8,14]</sup>,解析上很难处理材料参数随温度变化的情况。有限元方法建立在严密的数学理论基础,能同时处理多种因素产生的复杂影响。对于非线性方程,既能求出全场的数值解,又能对任一点作较精确的描述。求解过程中建立模型的参数如下:

初始有限元模型:材料沿  $X$  轴方向长度为  $11.5 \mu\text{m}$ ,材料沿  $-Y$  轴方向厚度为  $1.5 \mu\text{m}$ ,三角形网格的最大长度约为  $0.77 \mu\text{m}$ ,网格节点数为 33 605,单元格数为 16 038。随着模拟计算的进行,节点数会按照求解精度做出调整。选取的时间步长为  $10^{-20} \text{s}$ ,求解过程中电子与晶格温度误差设为  $0.1 \text{K}$ ,误差界限设为  $0.000 08$ 。为得到更加准确的数值解,在激光辐照中心附近区域网格划分比远处的网格密,随着求解的进行,为了满足求解精度要求,节点数会随着时间做相应的调整。材料表面和左边界采用绝热条件,其他边界温度为  $300 \text{K}$ 。激光模式为基模平顶高斯光束:

$$S = (1 - R) \cdot EP / (\pi \cdot r_a^2 \cdot t_p) \cdot \exp[-4\ln 2 \cdot (t/t_p)^2] \cdot \exp(-\mu y), \quad (6)$$

其中  $0 \leq t \leq t_p$ 。

结合优化后的双温方程(4)、(5)分别对脉冲宽度为  $100 \text{fs}$ 、 $300 \text{fs}$ 、 $1 \text{ps}$  和  $2 \text{ps}$  的单脉冲激光辐照铜膜表面模型进行计算,得到激光作用中心处的电子与晶格温度的变化关系,如图 5 所示。

求解过程中采用的激光单脉冲能量为  $15 \mu\text{J}$ ,对于脉冲宽度为  $300 \text{fs}$  的激光,恰好使铜晶格的温度达到相分离温度<sup>[17]</sup> ( $T_{\text{sep}} = 15 000 \text{K}$ )。由图 5 可知,飞秒激光以及亚皮秒激光对物质作用时,电子与晶格温度的变化规律基本相近,因此它们对物体加工的精度也相近。同图 1 进行对比,可见优化后的双温方程更适用于二维计算;同文献[13]、[14]结果类比,可知该结果合理。对所得结果进行分析可知,电子与晶格的耦合时间与脉冲宽度和激光单脉冲能量有关。对比优化后的双温模型以及原方程所求结果可知,该方程确实适用于求解亚皮秒以及飞秒激光对物质的作用过程。

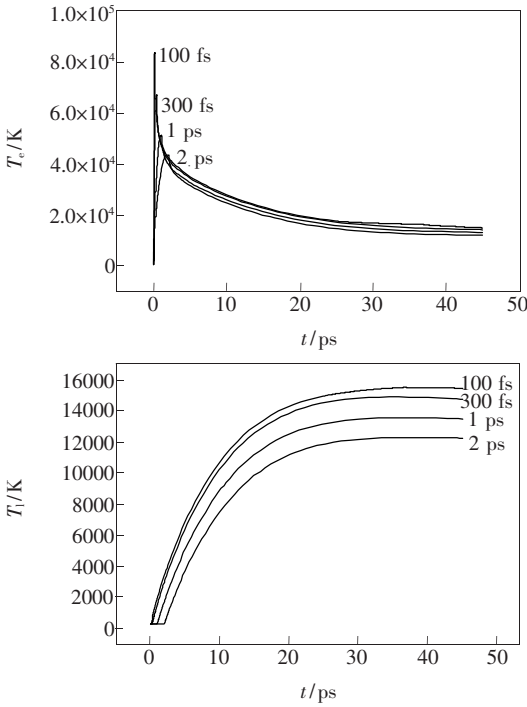


图5 根据优化后的双温方程得到的电子与晶格温度的变化关系

Fig. 5 Electron and lattice temperature evolutions in optimized TTM

### 3.1 晶格温度场的空间分布

图6为脉冲宽度为100 fs的激光照射金属铜表面后电子与晶格耦合结束时晶格温度的等值线图。从图6可知,在激光辐照区域,同一深度的晶格温度相等,边界处存在一定偏差是电子的热传导效应引起的。附近电子通过耦合将能量传递给晶格,该过程中电子与电子之间的热传导显得不那么重要。

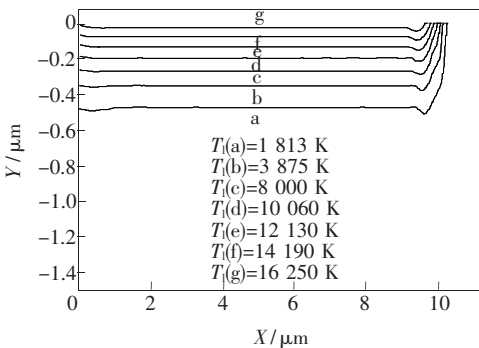


图6 电子与晶格耦合结束时的晶格温度场分布

Fig. 6 Isotherms of lattice after electrons and lattice coupling

### 3.2 激光加工过程中的相分离区域

图7为脉宽为100 fs的激光辐照边界处晶格温度的横向分布情况。结合图6可知,作用半径  $r$

满足  $0 \leq r \leq 9.65 \mu\text{m}$ 、作用深度  $d$  满足  $0 \leq d \leq 0.1 \mu\text{m}$  的区域是激光作用的相分离区域。根据相分离条件,只有当晶格的温度大于  $T_{\text{sep}}$  时,铜膜表面相应区域为理想气体,边界为绝热条件。根据相爆炸理论<sup>[18]</sup>,金属铜的相爆炸临界温度  $T(\text{tc})$  为 5 394 K (0.465 eV), 因此,在  $9.65 \mu\text{m} \leq r \leq 10.08 \mu\text{m}$ 、 $0.1 \mu\text{m} \leq d \leq 0.45 \mu\text{m}$  的区域存在着相爆炸区,可认为这个区域的物体存在着气液并存的状态。铜金属的熔点为 1 358 K,那么可认为在  $10.08 \mu\text{m} \leq r \leq 10.2 \mu\text{m}$ 、 $0.45 \mu\text{m} \leq d \leq 0.6 \mu\text{m}$  的区域存在着熔融区域,这个区域的物体处于固液并存的状态。分析可知,处于相分离区域的物体完全气化,材料被完全加工,不会出现残渣;处于相爆炸区域的材料只有很小一部分以气体形态喷射出来,另外小部分残留在材料上,大部分材料没有被加工。因此,相爆炸区域会造成加工过程中出现少量残渣,而熔融区域的物体不会被加工,但是其晶格遭到破坏,是形成热影响区的主要原因。对于实际加工来说,选择适当的激光功率,然后通过模拟得到这3个区域,不仅可以更好地研究加工过程中所产生的物理现象,还可以控制加工精度,从而得到高质量的加工器件。

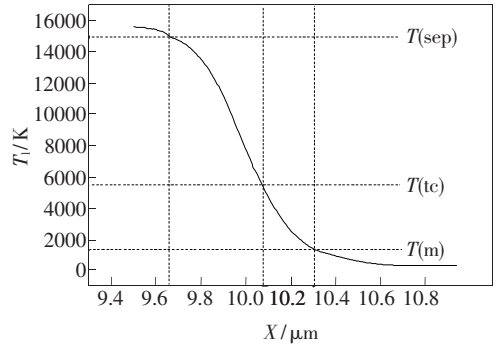


图7 晶格温度场的横向分布 ( $9.5 \mu\text{m} \leq r \leq 10.9 \mu\text{m}$ )

Fig. 7 Lattice temperature distribution ( $9.5 \mu\text{m} \leq r \leq 10.9 \mu\text{m}$ )

## 4 结 论

通过分析激光与铜膜作用的物理原理,得出在激光辐照铜金属膜过程中电子与晶格耦合过程可以忽略而热传导不可忽略的结论。根据超短脉冲激光与物质相互作用的相分离理论,对模型激光去除区域的热传导系数施加约束条件,最终对双温方程进行了合理优化。采用单脉冲能量为  $15 \mu\text{J}$  的激光建立了适合实际加工的有限元模型,得到几个不同脉冲宽度的激光辐照铜膜表面

中心点电子与晶格温度的变化曲线。对脉冲宽度为 100 fs 的激光进行进一步计算,得到了晶格温度场空间分布情况以及激光作用的相分离区域、相爆炸区域和熔融区域。

## 参 考 文 献:

- [ 1 ] Glezer E N, Milosavljevic M, Huang L, *et al.* Three-dimensional optical storage in side transparent materials [J]. *Opt. Lett.*, 1996, 21(24):2023-2025.
- [ 2 ] Mendonca C R, Orlando S, Cosendey G. Femtosecond laser micro machining in the conjugated polymer MEH-PPV [J]. *Appl. Surf. Sci.*, 2007, 254(4):1135-1139.
- [ 3 ] Wang L, Xu H Y, Li X H, *et al.* Optical and electrical properties of p-type ZnO: N films grown by N-plasma assisted pulsed laser deposition [J]. *Chin. J. Lumin.* (发光学报), 2011, 32(10):977-982 (in English).
- [ 4 ] Tian Z R, Liu Y F, Jin Y, *et al.* Fabrication of polymer distributed feedback laser by direct interference ablation [J]. *Chin. J. Lumin.* (发光学报), 2012, 33(2):197-200 (in Chinese).
- [ 5 ] Anisimov S I, Kapeliovich B L, Perelman T L, *et al.* Electron emission from metal surface exposed to ultra-short laser pulses [J]. *Sov. Phys. JETP*, 1974, 39:375-378.
- [ 6 ] Itina T E, Hermann J, Delaporte P H, *et al.* Modeling of metal ablation induced by ultrashort laser pulses [J]. *Thin Solid Films*, 2004, 453-454:513-517.
- [ 7 ] Xu X F, Cheng C R, Chowdhury I H. Molecular dynamics study of phase change mechanisms during femtosecond laser ablation [J]. *J. Heat Trans.*, 2004, 126:727-734.
- [ 8 ] Zhu S J, Wang X L, Zhu W H, *et al.* Numerical simulation for influence of pulse duration on femtosecond laser ablation of alloy [J]. *Laser Technology* (激光技术), 2011, 26(6):39-44 (in Chinese).
- [ 9 ] Chichkov B N, Momma C, Nolte S, *et al.* Femtosecond, picosecond and nanosecond laser ablation of solids [J]. *Appl. Phys.*, 1996, 63(2):109-115
- [ 10 ] Vatsya S R, Virk K S. Solution of two-temperature thermal diffusion model of laser-metal interactions [J]. *J. Laser Appl.*, 2003, 15(4):273-278.
- [ 11 ] Ni X C, Wang Q Y. Finite difference method for thermal analysis of femtosecond-picosecond pulse laser ablation on metal surface [J]. *Chin. J. Lasers* (中国激光), 2004, 31(3):277-280 (in Chinese).
- [ 12 ] Fang R R, Zhang D M, Wei H, *et al.* Effect of pulse width and fluence of femtosecond laser on electron phonon relaxation time [J]. *Chin. Phys. Lett.* (中国物理快报), 2008, 25(10):3716-3719 (in English).
- [ 13 ] Lu L Z, Shi Y F, Xu C G, *et al.* Numerical simulation of influence of pulse width on temperature generated by femtosecond laser [J]. *J. Jiangsu University: Natural Science Edition* (江苏大学学报, 自然科学版), 2011, 32(2):199-204 (in Chinese).
- [ 14 ] Shi Y F, Lu L Z, Xu C G, *et al.* Influence of physical parameters on ultrashort pulse laser excitation temperature field [J]. *J. Appl. Opt.* (应用光学), 2011, 32(4):810-816 (in Chinese).
- [ 15 ] Vidal F, Johnston T W, Laville S, *et al.* Critical-point phase separation in laser ablation of conductors [J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2001, 86(6):2573-2576.
- [ 16 ] Wu B X, Shin Y C. A simple model for high fluence ultra-short pulsed laser metal ablation [J]. *Appl. Surf. Sci.*, 2007, 253(8):4079-4084.
- [ 17 ] Hu W Q, Shin Y C, King G. Modeling of multi-burst mode pico-second laser ablation for improved material removal rate [J]. *Appl. Phys. A*, 2010, 98(2):407-415.
- [ 18 ] Yang J, Zhao Y, Zhu X. Theoretical studies of ultrafast ablation of metal targets dominated by phase explosion [J]. *Appl. Phys. A*, 2007, 89(2):571-578.