



飞秒激光脉冲作用熔石英的超快传热动力学研究

余方锐 杜广庆 Waqas AHMAD 陆宇 杨青 陈烽

Ultrafast heat transfer dynamics induced by femtosecond laser pulse in fused silica

YU Fangrui, DU Guangqing, Waqas AHMAD, LU Yu, YANG Qing, CHEN Feng

引用本文:

余方锐, 杜广庆, Waqas AHMAD, 等. 飞秒激光脉冲作用熔石英的超快传热动力学研究[J]. 应用光学, 2024, 45(3): 529–536. DOI: 10.5768/JAO202445.0310006

YU Fangrui, DU Guangqing, Waqas AHMAD, et al. Ultrafast heat transfer dynamics induced by femtosecond laser pulse in fused silica[J]. *Journal of Applied Optics*, 2024, 45(3): 529–536. DOI: 10.5768/JAO202445.0310006

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.5768/JAO202445.0310006>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

单脉冲飞秒激光时域参数测量技术研究

Research on time domain parameters measurement of single pulse femtosecond laser

应用光学. 2020, 41(4): 690–696 <https://doi.org/10.5768/JAO202041.0407001>

静/动态刻蚀对熔石英表面质量和激光损伤的影响

Effect of static/dynamic etching on surface quality and laser-induced damage of fused silica

应用光学. 2017, 38(5): 837–843 <https://doi.org/10.5768/JAO201738.0507003>

纳秒脉冲激光对金属丝电爆炸过程的瞬态测量方法研究

Transient measurement on electric explosion of metal wire by nanosecond pulsed laser

应用光学. 2019, 40(6): 1109–1114 <https://doi.org/10.5768/JAO201940.0603005>

飞秒激光脉冲宽度和脉冲波形测试技术

Research on femto-second laser pulse width and pulse waveform measurement technology

应用光学. 2019, 40(2): 291–299 <https://doi.org/10.5768/JAO201940.0203003>

超快太赫兹时域光谱系统

Ultra-fast terahertz time domain spectroscopy system

应用光学. 2019, 40(2): 229–232 <https://doi.org/10.5768/JAO201940.0201008>

色散管理掺铥光纤激光器高能量脉冲的产生

Generation of high-energy pulses in dispersion-managed Tm-doped fiber laser

应用光学. 2019, 40(4): 551–556 <https://doi.org/10.5768/JAO201940.0401004>



关注微信公众号, 获得更多资讯信息

文章编号:1002-2082 (2024) 03-0529-08

飞秒激光脉冲作用熔石英的超快传热动力学研究

余方锐¹, 杜广庆¹, Waqas AHMAD¹, 陆 宇¹, 杨 青², 陈 烽¹

(1. 西安交通大学 电子科学与工程学院 西安交通大学机械制造系统工程国家重点实验室 陕西省信息光子技术重点实验室,
陕西 西安 710049; 2. 西安交通大学 仪器科学与技术学院, 陕西 西安 710049)

摘要: 飞秒激光具有超短脉冲宽度、超高峰值功率的特点, 飞秒激光与物质作用表现出的非线性吸收和低热扩散特性, 使其在高精密微纳器件加工中有着重要的应用前景。建立了针对飞秒激光脉冲与熔石英作用的瞬态光电离以及非平衡传热的超快动力学模型。通过数值求解该模型获得了飞秒激光单脉冲作用熔石英的载流子密度和非平衡电子与声子温度的时空演化; 得到了在非平衡态条件下, 电声耦合时间随激光能量密度、脉冲宽度的近线性调控规律。进一步研究得到了瞬态电子热导、热容、电声耦合系数的变化规律, 并对上述模拟现象进行了分析和探讨。

关键词: 飞秒激光脉冲; 瞬态光电离; 超快传热; 双温模型

中图分类号: TN249

文献标志码: A

DOI: [10.5768/JAO202445.0310006](https://doi.org/10.5768/JAO202445.0310006)

Ultrafast heat transfer dynamics induced by femtosecond laser pulse in fused silica

YU Fangrui¹, DU Guangqing¹, Waqas AHMAD¹, LU Yu¹, YANG Qing², CHEN Feng¹

(1. Shaanxi Key Laboratory of Photonics Technology for Information, State Key Laboratory for Manufacturing System Engineering, School of Electronic Science and Engineering, Xi'an Jiaotong University, Xi'an 710049, China;
2. School of Instrument Science and Technology, Xi'an Jiaotong University, Xi'an 710049, China)

Abstract: Femtosecond laser interacts with material shows nonlinear absorption and low thermal diffusion due to the ultrashort pulse width and ultrahigh peak power, which makes it important in the manufacturing of high-precision micro-nano devices. An ultrafast dynamic model for transient photoionization and non-equilibrium heat transfer of femtosecond laser pulses interacting with fused silica was established. By numerical solution, the spatio-temporal evolution of carrier density and non-equilibrium electron and phonon temperature of fused silica excited under femtosecond laser single pulse was obtained, and the nearly linear regulation law of electron-phonon coupling time with laser energy density and pulse width under non-equilibrium conditions was obtained. The variation laws of transient electron thermal conductivity, thermal capacity and electron-phonon coupling coefficient were further investigated in details. And the above simulation results were analyzed and discussed.

Key words: femtosecond laser pulse; transient photoionization; ultrafast heat transfer; two-temperature model

引言

飞秒激光作用材料具有低热扩散、高精度以及环境友好的优势, 使其在微纳功能器件加工中发挥着重要作用^[1-3]。相比于光刻、电子束加工、压印等技术, 飞秒激光加工具有加工效率高、精度

高、环境友好、无需真空、无需模板、无需拼接等优点, 被广泛应用于生物医学^[4-5]、光波导^[6-7]、超疏水表面^[8-10]、超疏油表面^[11-12]等功能器件的制备。特别是对于通过传统方式难以加工的硬脆材料, 如石英玻璃等, 飞秒激光能够在其内部实施真三

收稿日期: 2023-10-08; 修回日期: 2024-03-14

基金项目: 国家自然科学基金 (61875158, 62175195); 国家重点研发计划 (2017YFB1104700); 中央高校基本科研业务费

作者简介: 余方锐 (1999—), 男, 硕士研究生, 主要从事飞秒激光与物质相互作用研究。E-mail: yfr1999@stu.xjtu.edu.cn

通信作者: 杜广庆 (1982—), 男, 副教授, 主要从事飞秒激光与物质相互作用研究。E-mail: guangqingdu@mail.xjtu.edu.cn

陈烽 (1968—), 男, 教授, 主要从事飞秒激光微纳制造与超快成像研究。E-mail: chenfeng@mail.xjtu.edu.cn

维加工,因而在高质量深孔等三维结构制备方面具有巨大优势。

飞秒激光作用材料的强非线性效应和非平衡传热过程与其加工中材料作用区低热扩散^[13-14]、高精度^[15-16]、材料广泛^[17-19]等密切相关。飞秒激光作用材料的强非线性吸收,使得材料内部产生大量自由电子,随后激光脉冲会与自由电子发生进一步碰撞吸收,导致电子温度在脉冲持续时间内急剧升高;而声子由于具有较高的热容,在此过程中温度上升非常缓慢,导致所谓“冷”加热过程,此过程的自由电子和声子处于高度非平衡态。随后,在皮秒时间尺度,处于非平衡态的电子与声子之间发生局域化电声耦合,该过程发生在材料中的局域范围,从而导致加工精度显著提升。描述上述过程的双温模型最早由俄罗斯的 ANISIMOV S I 等人提出,并进行了理论分析^[20]。随后,针对飞秒激光作用各种材料的非线性吸收或者非平衡传热过程,国内外进行了一系列研究^[21-23]。近年来,JIANG L 等理论研究了飞秒激光作用石英材料的非线性激发过程,表明飞秒激光脉冲作用熔石英材料的不同电离机制对于电子密度变化影响较为显著,并揭示了电子密度增加所引起熔石英材料吸收系数增加的现象^[24]。DUG Q 等理论分析了 Au/Ni 双层膜的超快动力学的非平衡传热过程,研究表明,底层 Ni 膜优先于表层 Au 膜被加热,这与 Ni 具有较高的电声耦合系数有关^[25]。由于非线性电离机制对自由载流子产生,特别是随后的载流子以及非平衡态电声耦合过程,以及材料烧蚀过程都有着重要的影响,探究飞秒激光作用材料的多光子电离、碰撞电离、电声耦合动力学过程,以及激光参数对其的调控作用具有非常重要的意义。本文建立了飞秒激光脉冲与熔石英作用的瞬态光电离以及非平衡传热的超快动力学一维模型。基于该模型研究了熔石英亚表面层的飞秒尺度电子密度以及皮秒尺度电声温度的时空演化规律;并探究了飞秒激光脉冲能量密度以及脉宽对于瞬态电离和超快传热过程的调控作用;研究分析了瞬态电子热导、热容、电声耦合系数的变化,并对上述模拟现象进行了探讨。

1 飞秒激光作用石英的动力学模型

由于熔石英材料存在一个很宽的带隙(约 9 eV),飞秒激光作用熔石英材料会先与其价电子发生多

光子电离作用,从而产生大量自由电子,自由电子又会和周围的电子发生碰撞,诱发雪崩电离等极端过程,进一步产生更多自由电子。同时,由于上述自由电子激发消耗激光能量,导致激光能量沿深度方向快速衰减。上述超快电离过程的数学模型如下^[26]:

$$\frac{\partial n_e}{\partial t} = \alpha_i I n_e + P(I) \quad (1)$$

式中: n_e 为电子密度; I 为光强; α_i 为碰撞电离系数,取 $\alpha_i=4 \text{ cm}^2/\text{J}$; $P(I)$ 为多光子电离项,取以下公式: $P(I) = \delta_6 I^6$ (2)

由于使用的激光中心波长为 800 nm,并考虑熔石英的禁带宽度 9.0 eV,式(2)中 δ_6 代表 6 光子吸收系数, $\delta_6=6 \times 10^8 \text{ cm}^{-3} \cdot \text{ps}^{-1} \cdot (\text{cm}^2/\text{TW})^6$ 。

由于非线性吸收作用,入射的飞秒激光光强随材料深度方向呈衰减趋势,其数学模型如下:

$$\frac{\partial I}{\partial z} = -\alpha I \quad (3)$$

式中 α 为光强吸收系数,取以下公式:

$$\alpha = \alpha_h + \alpha_i n_e U_i \quad (4)$$

由于在电离过程中造成激光光强衰减的主要机制为碰撞电离,因而可以忽略多光子电离在激光光强衰减中的作用。式中, U_i 是熔石英的带隙, $U_i=9.0 \text{ eV}$; α_h 是自由电子吸收,由下式表示:

$$\alpha_h = \frac{2\omega f_2}{c} \quad (5)$$

式中: ω 为入射激光的频率; c 为真空中的光速; f_2 由式(6)决定:

$$f_2 = \sqrt{\frac{-\varepsilon_1 + \sqrt{\varepsilon_1^2 + \varepsilon_2^2}}{2}} \quad (6)$$

式中 ε_1 和 ε_2 关系式如下^[27]:

$$\varepsilon = \varepsilon_1 + i\varepsilon_2 = \varepsilon_r - \left(\frac{\omega_p}{\omega}\right)^2 \frac{1}{1 + iv/\omega} \quad (7)$$

式中: ε_r 为相对介电常数, $\varepsilon_r=2.4$; v 为电子碰撞频率, $v=1 \text{ fs}^{-1}$; ω_p 为等离子振荡频率, $\omega_p = \sqrt{n_e e^2 / \varepsilon_0 m_e}$, e 为电子的电荷量, ε_0 是真空介电常数, m_e 是电子质量, $m_e=9.11 \times 10^{-31} \text{ kg}$ 。

其中光强 I 在表面 $z=0$ 处满足以下表达式:

$$I(0, t) = I_0 (1 - R) \exp \left\{ -4 \ln(2) \left(\frac{t - 2\tau_p}{\tau_p} \right)^2 \right\} \quad (8)$$

式中: R 为反射率; τ_p 为入射飞秒激光脉冲的脉宽; I_0 为光强峰值,满足以下表达式^[28]:

$$I_0 = \sqrt{\frac{4 \ln(2)}{\pi}} \frac{F}{\tau_p} \quad (9)$$

式中 F 为入射飞秒激光脉冲的能量密度。

飞秒激光作用熔石英材料会激发大量的价电子, 而处于激发态的高温电子与周围电子碰撞, 将能量传给周围电子; 同时受激电子会与周围的晶格发生碰撞, 将热量传递给周围的声子。在飞秒到皮秒时间尺度, 当电子、声子温度达到平衡时, 整个电声弛豫过程结束, 飞秒激光作用熔石英材料的非平衡传热过程可由双温模型方程描述^[29]:

$$\begin{cases} C_e \frac{\partial T_e}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} (k_e \frac{\partial T_e}{\partial z}) - g(T_e - T_p) + Q \\ C_p \frac{\partial T_p}{\partial t} = g(T_e - T_p) \end{cases} \quad (10)$$

式中: T_e 是电子温度; C_e 是电子热容; k_e 是电子热导; g 是电声耦合系数, $g=0.06n_e^{2/3} \text{ W} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{K}^{-1}$; Q 是热源; T_p 是声子温度; C_p 是声子热容, $C_p=1.65 \times 10^6 \text{ J} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{K}^{-1}$ ^[30]。

电子热容 C_e 由式(11)表示:

$$C_e = \frac{3}{2} k_B n_e \quad (11)$$

式中 k_B 为玻尔兹曼常数。

电子热导 k_e 由式(12)表示:

$$k_e = 2k_B^2 n_e \mu_e T_e / e \quad (12)$$

式中 μ_e 为电子迁移率, $\mu_e=2 \times 10^{-4} \text{ m}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ 。

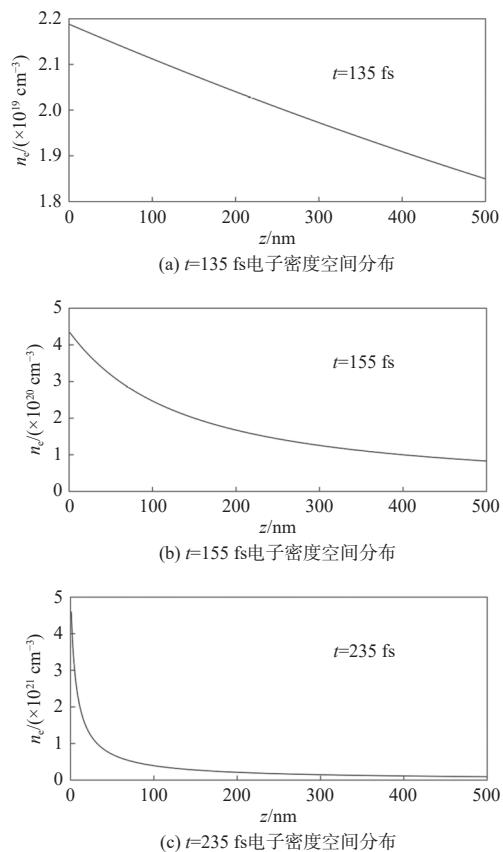
热源 Q 是激光脉冲在石英材料中的热沉积, 其表达式为^[26]

$$Q = \alpha_l I \quad (13)$$

2 仿真结果

图 1 所示为飞秒激光单脉冲作用熔石英电离区的电子密度时空演化。从图 1(a)可以看出, 在 $t=135 \text{ fs}$ 时刻, 由于熔石英中的束缚电子受到入射激光的非线性光电离作用, 在亚表面层内 ($z < 100 \text{ nm}$) 产生了大量自由电子, 且电子密度随材料深度方向 (z 正方向) 呈近线性下降。从图 1(b)可以看出, 在 $t=155 \text{ fs}$ 时刻, 熔石英电离区的电子密度明显整体高于 $t=135 \text{ fs}$ 时刻的电子密度, 且亚表面层的电子密度随深度下降较快, 明显偏离线性趋势。电子密度随深度快速下降是由于亚表面层电离区产生的大量自由电子引起的非线性电离衰减的结果。从图 1(c)可以看出, 在 $t=235 \text{ fs}$ 时刻, 熔石英表面处的最大电子密度 ($z=0$) 较 $t=155 \text{ fs}$ 时刻的电子密度升高一个数量级。从图 1(d)可以看出, $t=435 \text{ fs}$ 时刻的电子密度相比 $t=235 \text{ fs}$ 时刻的电子密度没有明显变化。由于我们主要探究非线

性电离机制对电子密度的影响, 因此没有引入俄歇复合等电子损耗机制, 故而随着脉冲结束, 电子密度随脉冲衰减趋于饱和。图 1(e)表示不同电离机制在材料内部引起的电子密度变化率, 可以看出, 当分别考虑两种电离机制作用时, 在亚表面层 ($z=100 \text{ nm}$) 处, 碰撞电离引起的电子密度变化率和光电离引起的电子密度变化率都呈现出先上升后下降的趋势, 且碰撞电离引起的电子密度变化率大于光电离引起的电子密度变化率, 在 $t>115 \text{ fs}$ 后碰撞电离引起的电子密度变化率 ($\partial n_e / \partial t$) 比光电离引起的电子密度变化率下降更慢。这是由于光电离的主要作用是产生作为种子的自由电子, 这些自由电子会进而诱发雪崩过程, 碰撞电离过程是产生大量自由电子的主要过程。从图 1(f)可以看出, 碰撞电离引起的电子密度变化率和光电离引起的电子密度变化率随材料深度方向 (z 正方向) 呈逐渐饱和的下降趋势。由于电离过程主要发生在亚表面层以内 ($z=100 \text{ nm}$ 处), 且随着深度的增加, 激光强度减弱, 导致更深区域的激光强度远低于多光子阈值强度, 故而电离率在材料更深区域逐渐呈现出饱和的趋势。该结果对于澄清不同电离机制对电离动力学的时间演化过程的影响, 并对于如何进一步调控电子密度演化具有理论指导意义。



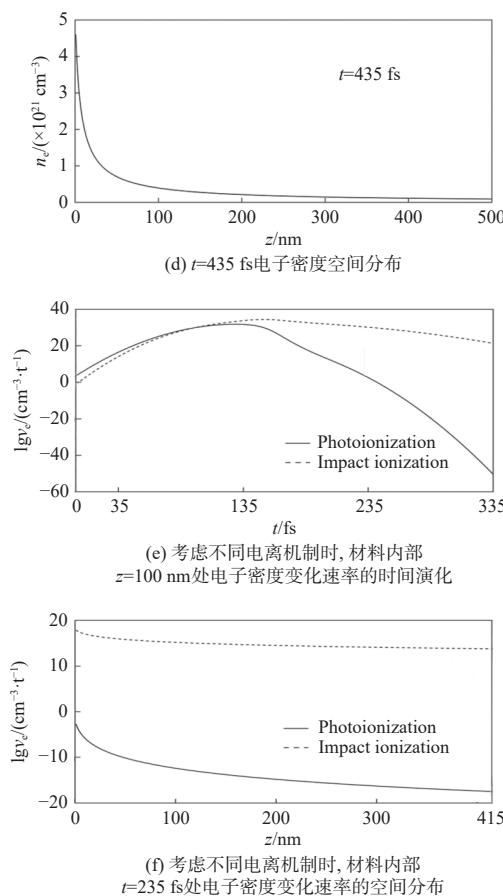
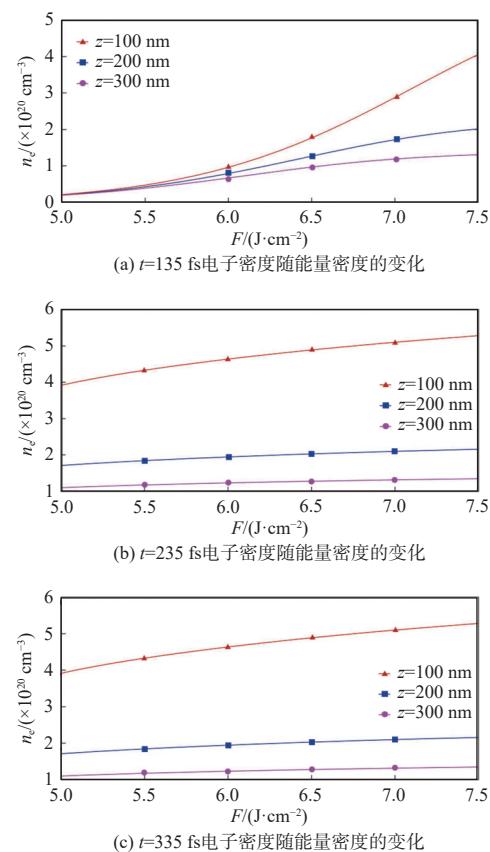


图 1 飞秒激光单脉冲作用熔石英电离区的电子密度时空演化(脉冲宽度 $\tau_p=65 \text{ fs}$, 激光能量密度 $F=5 \text{ J/cm}^2$)

Fig. 1 Spatio-temporal evolution of electron density in ionization region of fused silica irradiated by single femtosecond laser pulse (pulse width τ_p is 65 fs, energy density F is 5 J/cm^2)

图 2 所示为飞秒激光能量密度和脉冲宽度对熔石英电离区不同深度的电子密度的影响。可以看到,在 $t=135 \text{ fs}$ 时刻,自由电子密度随输入激光的能量密度增大而增大(见图 2(a))。当激光能量密度小于 5.3 J/cm^2 时,不同深度位置($z=100 \text{ nm}$ 、 200 nm 、 300 nm)产生的自由电子密度几乎相等;当激光能量密度大于 5.3 J/cm^2 时,不同深度位置的电子密度呈现明显差异,且亚表面层($z=100 \text{ nm}$)的电子密度随激光能量密度增加最为显著,在材料较深的位置($z=200 \text{ nm}$ 、 300 nm),电子密度上升缓慢。这是由于非线性电离导致的激光能量局域化吸收的缘故,在材料亚表面层多光子电离和碰撞电离均较为显著,导致产生大量的自由电子,而随着深度的增加,激光能量衰减会导致非线性电离机制减弱。因此,随着深度增加,电子密度上升较为缓慢。如图 2(b)所示,在 $t=235 \text{ fs}$ 时刻,自由电

子密度随激光能量密度增大而呈近线性上升。如图 2(c)所示,在 $t=335 \text{ fs}$ 时刻,自由电子密度曲线相比于 $t=235 \text{ fs}$ 时刻的情况,几乎不再变化。如图 2(d)所示,在 $t=135 \text{ fs}$ 时刻,当飞秒激光脉冲宽度 $\tau_p < 60 \text{ fs}$ 时,在亚表面层($z=100 \text{ nm}$)的自由电子密度相比更深区域($z=200 \text{ nm}$, 300 nm)的自由电子密度,随着脉冲宽度增大而减小的趋势更为剧烈;当飞秒激光脉冲宽度 $\tau_p > 60 \text{ fs}$ 时,电子密度随深度增加而呈现快速下降,并随着脉冲宽度增加,电子密度下降整体减缓,且不同深度($z=100 \text{ nm}$ 、 200 nm 、 300 nm)的自由电子密度最终趋于相等。如图 2(e)所示,在 $t=235 \text{ fs}$ 时刻,自由电子密度随着飞秒激光脉冲宽度增大而整体呈近线性减小趋势,且不同深度处($z=100 \text{ nm}$ 、 200 nm 、 300 nm)的电子密度具有明显的差异;当飞秒激光脉冲宽度 $\tau_p > 65 \text{ fs}$ 时,由于碰撞电离在 $t=135 \text{ fs} \sim 235 \text{ fs}$ 起主要作用,在过程中产生大量自由电子,从而引起自由电子密度的显著变化。如图 2(f)所示,在 $t=335 \text{ fs}$ 时刻,由于脉冲辐照早已结束,因此多光子电离和碰撞电离均不会产生更多的电子,导致该时刻熔石英电离区不同深度的电子密度相比 $t=235 \text{ fs}$ 时刻变化不大。



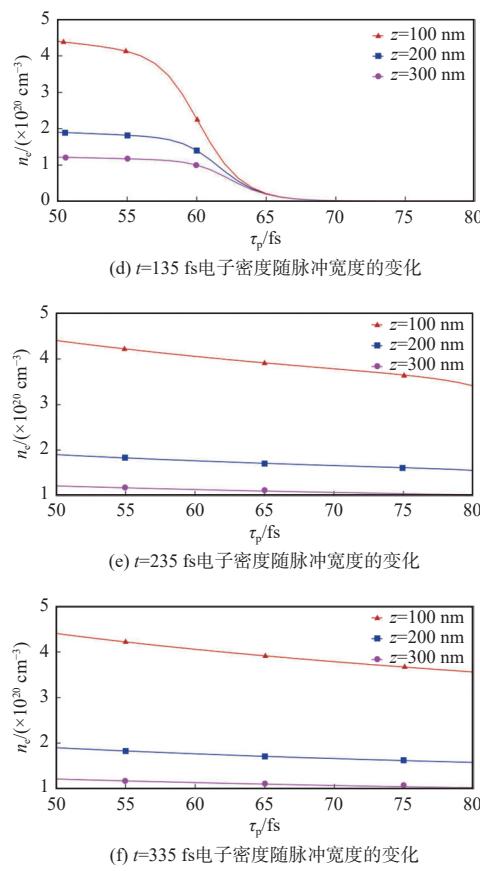
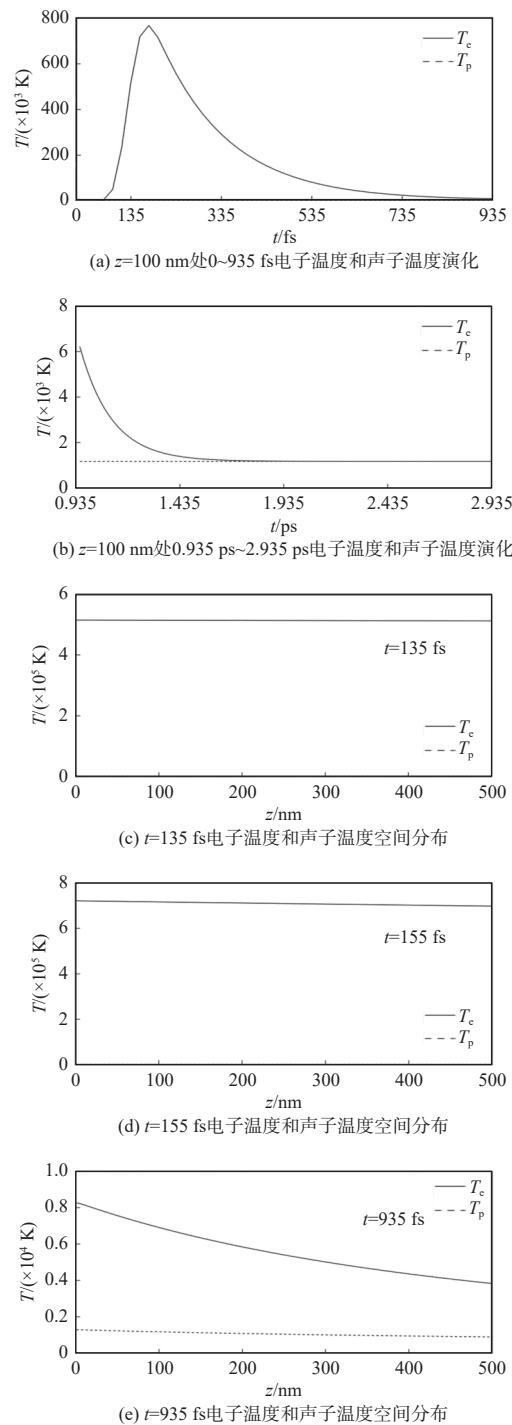


图2 飞秒激光能量密度和脉冲宽度对熔石英电离区电子密度调控:(a)~(c) 脉冲宽度 $\tau_p=65$ fs; (d)~(f) 激光能量密度 $F=5$ J/cm 2

Fig. 2 Regulation of electron density in ionization region of fused silica irradiated by femtosecond laser energy density or pulse width: (a)~(c) pulse width τ_p is 65 fs, (d)~(f) energy density F is 5 J/cm 2

图3 所示为飞秒激光作用熔石英材料激发区电子温度和声子温度的时空演化。从图3(a)可以看出,在亚皮秒时间尺度,电子温度先迅速升高,随后缓慢减小,且在 $t=155$ fs 时刻出现峰值,温度达到约 7.8×10^5 K;在随后的皮秒时间尺度,由于电声耦合作用,电子温度随时间继续下降,同时声子温度缓慢上升;在约为 $t=1.835$ ps 时刻,电子与声子获得相同温度,两者达到电声平衡状态,此时,电声平衡温度约为 1300 K(见图3(b))。图3(c)表示, $t=135$ fs 时刻电子温度和声子温度材料内部保持一致,这可能与飞秒脉冲激发的非平衡态高温电子引起的超高热导密切相关,高热导会引起电子系统在材料深度方向被瞬态同质加热,因而导致早期的超高温电子和声子温度在深度范围呈现一致性分布的特点。从图3(d)可

以看出,在 $t=155$ fs 时刻,电子和声子温度和 $t=135$ fs 时刻随深度的分布几乎相同,但电子温度整体明显高于声子温度。从图3(e)可以看出,在 $t=935$ fs 时刻,电子和声子温度随材料深度方向(z 正方向)呈近线性缓慢下降。在 $t=2.935$ ps 时刻,电子温度曲线和声子温度曲线重合,此时电子和声子温度趋于一致,材料内部达到电声平衡态(见图3(f))。



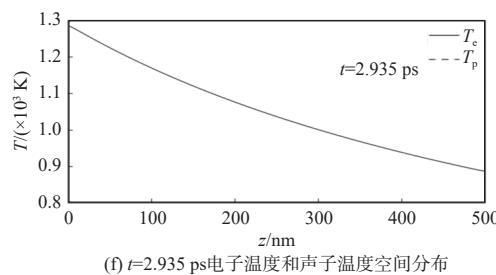
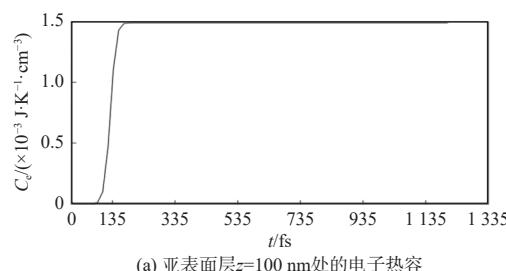


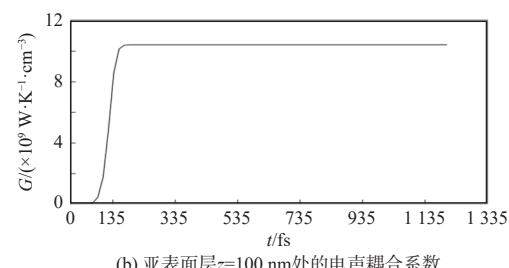
图 3 飞秒激光单脉冲作用熔石英材料激发区电子温度和声子温度的时空演化(脉冲宽度 $\tau_p=65$ fs, 能量密度 $F=5$ J/cm²)

Fig. 3 Spatio-temporal evolution of electron temperature and phonon temperature in ionization region of fused silica irradiated by single femtosecond laser pulse (pulse width τ_p is 65 fs, energy density F is 5 J/cm²)

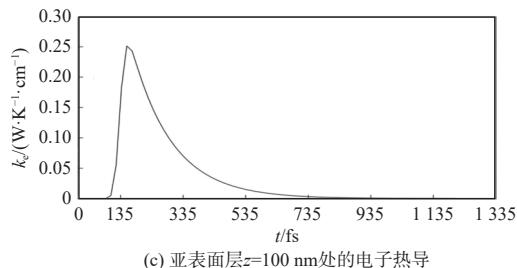
图 4 为飞秒激光作用熔石英材料激发区的电子热容、电子热导以及电声耦合系数随时间的演化。从图 4(a)中可以看出,在脉冲作用时间内,电子热容随时间迅速增大;随后,电子热容变化逐渐趋于饱和,最终达到 1.5×10^{-3} J·K⁻¹·cm⁻³。从图 4(b)中可以看出,电声耦合系数与电子热容具有相似的规律,脉冲持续时间内呈现显著增大,随后出现饱和,饱和值约为 10.4×10^9 W·K⁻¹·cm⁻³。由于电子热容和电声耦合系数都与电子密度相关,因而其时间演化依赖于电子密度的时间演化。另外,这里的电子密度时间演化没有引入俄歇复合等电子损耗过程,因而电子热容和电声耦合系数随时间最终会达到最大的饱和值,而未出现下降趋势。从图 4(c)中可以看出,电子热导随时间呈现出先上升后下降的趋势。在 $t=155$ fs 时刻左右到达峰值,其值约为 0.25 W·K⁻¹·cm⁻¹;当 $t < 155$ fs 时,由于飞秒脉冲光电离的作用,在熔石英亚表面产生了大量自由电子,导致该区域电子密度和电子温度均显著升高,进而引起电子热导急剧上升;当 $t > 155$ fs 时,由于电子密度增长饱和,电声耦合机制导致电子温度在皮秒尺度逐渐减小,因此,电子热导在该时间尺度呈减小趋势。



(a) 亚表面层 $z=100$ nm 处的电子热容



(b) 亚表面层 $z=100$ nm 处的电声耦合系数

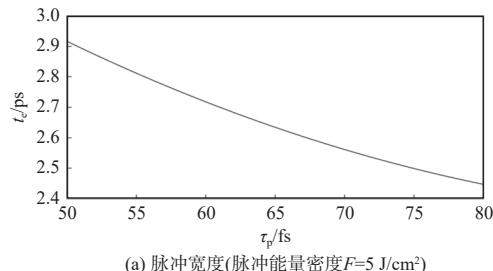


(c) 亚表面层 $z=100$ nm 处的电子热导

图 4 飞秒激光作用熔石英材料激发区的电子热容、电子热导、电声耦合系数的时间演化(脉冲宽度 $\tau_p=65$ fs, 能量密度 $F=5$ J/cm²)

Fig. 4 Spatio-temporal evolution of electron thermal capacity, electron thermal conductivity and electron-phonon coupling coefficient in excited region of fused silica irradiated by femtosecond laser (pulse width τ_p is 65 fs, energy density F is 5 J/cm²)

图 5 为电声平衡时间随飞秒激光脉冲宽度以及脉冲能量密度的变化规律。从图 5(a)可以看出,当保持激光能量密度不变时,电声平衡时间随着脉冲宽度的增加而呈现近线性减小。事实上,在极端非平衡条件下,当给定激光能量密度,声子加热周期缩短导致声子温度上升时间不足,因而引起声子温度难以很快达到材料熔化和相爆点,从而可以进一步说明飞秒激光烧蚀阈值随脉冲宽度下降的现象。从图 5(b)中可以看出,电声平衡时间随着激光能量密度的增加呈现近线性增加,电声平衡时间变化范围在数皮秒的尺度。上述结果表明:通过减小飞秒激光脉冲宽度,或者增大激光能量密度均可以使电声平衡时间延长,从而延长声子加热周期,使亚表面获得高的声子温度。这对于如何将激光能量扩散限制在非平衡态,从而有效抑制传统平衡态的傅里叶热扩散,进而提高激光能量沉积精准性和加工精度具有一定的理论意义。



(a) 脉冲宽度(脉冲能量密度 $F=5$ J/cm²)

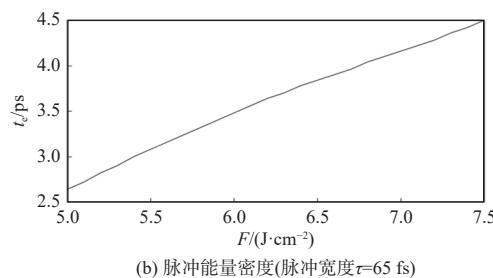


图 5 飞秒激光脉冲宽度以及脉冲能量密度对电声平衡时间的调控 ($z=100$ nm)

Fig. 5 Regulation of electron-phonon equilibrium time by femtosecond laser pulse width and pulse energy density (z is 100 nm)

3 结论

本文通过建模仿真,探讨了飞秒激光作用熔石英的瞬态动力学规律,研究表明:当分别考虑两种电离机制作用时,碰撞电离引起的电子密度变化率和光电离引起的电子密度变化率都呈现出先上升后下降的趋势,且碰撞电离引起的电子密度变化率大于光电离引起的电子密度变化率。在 $t>115$ fs 后,碰撞电离引起的电子密度变化率比光电离引起的电子密度变化率下降更慢。在脉冲宽度范围内,电子热容和电声耦合系数均随时间迅速增大,随后趋于饱和,电子热导随时间呈现出先上升后下降的趋势。非平衡态条件下,通过减小飞秒激光脉冲宽度,或者增大激光能量密度均可获得较长的电声平衡时间。研究结果对于探明飞秒激光作用材料的多光子电离、碰撞电离、电声耦合动力学过程,以及激光参数对上述动力学过程的调控作用具有理论指导意义。

参考文献:

- [1] EATON S M, HADDEN J P, BHARADWAJ V, et al. Quantum micro-nano devices fabricated in diamond by femtosecond laser and ion irradiation[J]. *Advanced Quantum Technologies*, 2019, 2(5/6): 1900006.
- [2] CHEN T, WANG W J, TAO T, et al. Multi-scale micro-nano structures prepared by laser cleaning assisted laser ablation for broadband ultralow reflectivity silicon surfaces in ambient air[J]. *Applied Surface Science*, 2020, 509: 145182.
- [3] HUANG J, FU X P, LIU G X, et al. Micro/nano-structures-enhanced triboelectric nanogenerators by femtosecond laser direct writing[J]. *Nano Energy*, 2019, 62: 638-644.
- [4] WU H, LIU T, XU Z Y, et al. Enhanced bacteriostatic activity, osteogenesis and osseointegration of silicon nitride/polyetherketoneketone composites with femtosecond laser induced micro/nano structural surface[J]. *Applied Materials Today*, 2020, 18: 100523.
- [5] OUYANG X, LIU T, ZHANG Y X, et al. Ultrasensitive optofluidic enzyme-linked immunosorbent assay by on-chip integrated polymer whispering-gallery-mode micro-laser sensors[J]. *Lab on a Chip*, 2020, 20(14): 2438-2446.
- [6] DENG J, WANG D N. Ultra-sensitive strain sensor based on femtosecond laser inscribed in-fiber reflection mirrors and vernier effect[J]. *Journal of Lightwave Technology*, 2019, 37(19): 4935-4939.
- [7] WOLF A, DOSTOVALOV A, BRONNIKOV K, et al. Arrays of fiber Bragg gratings selectively inscribed in different cores of 7-core spun optical fiber by IR femtosecond laser pulses[J]. *Optics Express*, 2019, 27(10): 13978-13990.
- [8] YONG J L, YANG Q, HUO J L, et al. Underwater gas self-transportation along femtosecond laser-written open superhydrophobic surface microchannels (<100 μ m) for bubble/gas manipulation[J]. *International Journal of Extreme Manufacturing*, 2022, 4(1): 015002.
- [9] YONG J L, SINGH S C, ZHAN Z B, et al. Substrate-independent, fast, and reversible switching between underwater superaerophobity and aerophilicity on the femtosecond laser-induced superhydrophobic surfaces for selectively repelling or capturing bubbles in water[J]. *ACS Applied Materials & Interfaces*, 2019, 11(8): 8667-8675.
- [10] JALIL S A, AKRAM M, BHAT J A, et al. Creating superhydrophobic and antibacterial surfaces on gold by femtosecond laser pulses[J]. *Applied Surface Science*, 2020, 506: 144952.
- [11] ZHANG J Z, YONG J L, YANG Q, et al. Femtosecond laser-induced underwater superoleophobic surfaces with reversible pH-responsive wettability[J]. *Langmuir*, 2019, 35(9): 3295-3301.
- [12] CHENG Y, YANG Q, FANG Y, et al. Underwater anisotropic 3D superoleophobic tracks applied for the directional movement of oil droplets and the microdroplets reaction[J]. *Advanced Materials Interfaces*, 2019, 6(10): 1900067.

- [13] WANG X C, ZHENG H Y, CHU P L, et al. Femtosecond laser drilling of alumina ceramic substrates[J]. *Applied Physics A*, 2010, 101(2): 271-278.
- [14] JIANG H, MA C W, LI M, et al. Femtosecond laser drilling of cylindrical holes for carbon fiber-reinforced polymer (CFRP) composites[J]. *Molecules*, 2021, 26(10): 2953.
- [15] LU Y, KAI L, YANG Q, et al. Laser fabrication of nano-holes on silica through surface window assisted nano-drilling (SWAN)[J]. *Nanomaterials*, 2021, 11(12): 3340.
- [16] KAI L, CHEN C Y, LU Y, et al. Insight on the regulation mechanism of the nanochannels in hard and brittle materials induced by spatially shaped femtosecond laser[J]. *Frontiers in Chemistry*, 2022, 10: 973570.
- [17] WORTS N, JONES J, SQUIER J. Surface structure modification of additively manufactured titanium components via femtosecond laser micromachining[J]. *Optics Communications*, 2019, 430: 352-357.
- [18] ZHANG Y C, JIANG Q L, CAO K Q, et al. Extremely regular periodic surface structures in a large area efficiently induced on silicon by temporally shaped femtosecond laser[J]. *Photonics Research*, 2021, 9(5): 839.
- [19] SCHWARZ S, RUNG S, ESEN C, et al. Enhanced ablation efficiency using GHz bursts in micromachining fused silica[J]. *Optics Letters*, 2021, 46(2): 282-285.
- [20] ANISIMOV S I, KAPELIOVICH B L, PERELMAN T L. Electron emission from metal surfaces exposed to ultrashort laser pulses[J]. *Zhurnal Eksperimentalnoi i Teoreticheskoi Fiziki*, 1974, 66: 776-781.
- [21] SOKOLOWSKI-TINTEN K, VON DER LINDE D. Generation of dense electron-hole plasmas in silicon[J]. *Physical Review B*, 2000, 61(4): 2643-2650.
- [22] RETHFELD B. Unified model for the free-electron avalanche in laser-irradiated dielectrics[J]. *Physical Review Letters*, 2004, 92(18): 187401.
- [23] KLOSSIKA J J, GRATZKE U, VICANEK M, et al. Importance of a finite speed of heat propagation in metals irradiated by femtosecond laser pulses[J]. *Physical Review B*, 1996, 54(15): 10277-10279.
- [24] JIANG L, TSAI H L. Plasma modeling for ultrashort pulse laser ablation of dielectrics[J]. *Journal of Applied Physics*, 2006, 100(2): 23116-23116-7.
- [25] DU G Q, YU F R, LU Y, et al. Ultrafast thermalization dynamics in Au/Ni film excited by femtosecond laser double-pulse vortex beam[J]. *International Journal of Thermal Sciences*, 2023, 187: 108208.
- [26] JIANG L, TSAI H L. Energy transport and material removal in wide bandgap materials by a femtosecond laser pulse[J]. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 2005, 48(3/4): 487-499.
- [27] RETHFELD B, BRENK O, MEDVEDEV N, et al. Interaction of dielectrics with femtosecond laser pulses: application of kinetic approach and multiple rate equation[J]. *Applied Physics A*, 2010, 101(1): 19-25.
- [28] RÄMER A, OSMANI O, RETHFELD B. Laser damage in silicon: energy absorption, relaxation, and transport[J]. *Journal of Applied Physics*, 2014, 116(5): 053508.
- [29] BURAKOV I M, BULGAKOVA N M, STOIAN R, et al. Theoretical investigations of material modification using temporally shaped femtosecond laser pulses[J]. *Applied Physics A*, 2005, 81(8): 1639-1645.
- [30] CHIMIER B, UTÉZA O, SANNER N, et al. Damage and ablation thresholds of fused-silica in femtosecond regime[J]. *Physical Review B*, 2011, 84(9): 094104.