

文章编号: 1001-1455(2004)03-0207-05

飞秒激光辐照铝材料的分子动力学数值模拟*

辛建婷, 祝文军, 刘仓理

(中国工程物理研究院流体物理研究所, 四川 绵阳 621900)

摘要: 采用大尺度分子动力学方法对飞秒激光辐照金属铝材料的效应进行了数值模拟。利用分子动力学方法给出了飞秒激光辐照后, 材料表面发生熔化和喷溅, 冷凝后形成一层很薄的多孔介质的物理图像, 及产生的应力波传播过程等。数值模拟结果表明分子动力学方法可以用于飞秒激光对材料辐照效应的研究。

关键词: 固体力学; 烧蚀; 分子动力学程序; 飞秒激光; 铝

中图分类号: O347.5

国标学科代码: 130·1555

文献标志码: A

1 引言

近年来, 由于超短脉冲激光技术的发展, 带动了超短脉冲激光与材料相互作用的研究。飞秒激光辐照金属材料的过程是一个十分复杂的物理过程, 要涉及到等离子体、材料熔化和喷溅、热波的产生和发展过程等诸多方面。为了从数值模拟方面对飞秒激光辐照材料的超快形变等问题进行探索和研究, L. A. Falkovsky 等^[1]基于玻尔兹曼方程和费米-狄拉克配分函数, 提出了一种热电子爆炸模型。J. K. Chen 等^[2]提出了双曲双温模型。在这两种模型的基础上, J. K. Chen 等^[3]又提出了超快热弹性模型, 这些模型中都对材料对激光能量吸收的非线性过程做了大量的简化。同时, 利用传统的连续介质力学的方法对这一过程进行数值模拟会遇到一些目前还难以解决的问题, 包括高应变率下材料参数选取, 状态方程的描述等。另外, 固液界面的产生及熔化材料的喷溅也超出了连续介质假设的范畴。

与连续介质力学的方法不同, 分子动力学方法是一种基于统计力学的计算方法。它通过对材料中单个原子的受力进行分析, 可以跟踪每个原子的轨迹, 通过统计得到整个模型状态的计算方法, 避免了连续介质假设的局限。

本文中利用分子动力学方法对飞秒激光与铝材料的相互作用过程进行数值模拟, 对飞秒激光辐照后, 激光能量沉积后引起的热效应对材料表面的破坏机制以及材料的应力等进行了计算, 采用分子动力学方法对飞秒激光辐照金属材料过程进行数值模拟的探索工作。

2 物理模型

对飞秒激光对金属材料 LY12 铝的烧蚀过程进行了数值模拟。激光能量为 150mJ, 在直径为 $\varnothing 4$ mm 的光斑范围内平均分布。计算中选择激光光斑中心位置的铝靶材料为研究对象建立模型, 由于受到计算时间和条件的限制, 铝材料计算模型选择为 12.15nm \times 12.15nm \times 81nm 的长方体, 共包括 774000 个铝原子, 如图 1 所示。在 x, y 方向上取周期性边界条件, 激光加载方向沿 z 轴方向, 激光作用面为自由边界条件, 而模型 z 轴的另一端面为固定边界条件, 将模型下面两层原子固定, 以模拟晶体内部结构。

计算中激光波长 800nm, 激光脉宽 50fs, 激光脉冲假设为随时间的高斯分布, 激光能量为 150mJ。激光能量加载在铝材料表面, 铝材料对波长为 800nm 的激光的反射系数取为 0.88^[4], 即铝材料吸收了 12% 的激光能量。而铝材料对 800nm 波长的激光的吸收深度为 10nm^[5], 在吸收深度内能量随距材料表面

* 收稿日期: 2003-06-12; 修回日期: 2003-12-23

作者简介: 辛建婷(1975—), 女, 硕士。

的厚度呈指数衰减,沉积在每层原子上的能量平均分配到该层的每个原子上,将每个原子所吸收的激光能量全部转换为原子的动能,这是由于模型计算中未考虑激光能量转换为原子振动能的机

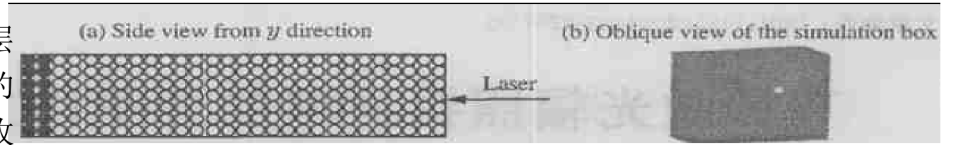


图 1 数值计算模型

Fig. 1 Schematic illustration of simulation model

制,直接将激光能量转换为靶材料中的原子的动能来实现激光加载的,即沉积在原子上的能量全部转化为该原子的动能。模型的计算步长为 1fs,激光加载为计算开始 200fs 后,总计算时间为 20ps。

采用的原子间相互作用为原子嵌入势 (EAM),具体形式如下^[6]

$$U = \sum_i F(\rho_i) + \frac{1}{2} \sum_{\substack{i,j \\ (i \neq j)}} \phi(r_{ij}) \quad (1)$$

式中

$$\rho_i = \sum_{j(\neq i)} f_j(r_{ij}) \quad (2)$$

$$f(r) = \rho_e \sum_{l=0}^5 \frac{c_l}{12} \left[\frac{r_0}{r} \right]^l \quad (3)$$

$$\phi(r) = -\phi_0 \left[1 + \delta \left[\frac{r}{r_0} - 1 \right] \right] e^{-\gamma \left[\frac{r}{r_0} - 1 \right]} \quad (4)$$

$$F(\rho) = -E_c \left[1 - \frac{\alpha}{\beta} \ln \left[\frac{\rho}{\rho_e} \right] \right] \left[\frac{\rho}{\rho_e} \right]^{\frac{\alpha}{\beta}} +$$

$$\frac{1}{2} \phi_0 \sum_{m=1}^3 s_m e^{-(\sqrt{m}-1)\gamma} \left[1 + (\sqrt{m}-1) \delta - \sqrt{m} \frac{\delta}{\beta} \ln \left[\frac{\rho}{\rho_e} \right] \right] \left[\frac{\rho}{\rho_e} \right]^{\frac{\sqrt{m}\gamma}{\beta}} \quad (5)$$

U 是内部总能量, ρ_i 是对其它原子而言第 i 个原子的电子云密度, f_j 是作为从第 i 个原子中心算距离第 j 个原子的电子云密度函数, r_{ij} 是第 i 个原子和第 j 个原子之间的距离, $F(\rho_i)$ 是将第 i 个原子嵌入密度为 ρ_i 的电子云中的能量, Φ_{ij} 是第 i 个原子和第 j 个原子间的中心势, $s_1=12.0$, $s_2=6.0$, $s_3=24.0$ 。 $F(\rho_i)$ 称为嵌入函数。这些关系式都是由 Johnson 嵌入原子分析方法得到的。公式中的具体参数分别为: $E_c=3.39$, $\phi_0=0.1318$, $r_0=2.8638$, $\alpha=4.60$, $\beta=7.10$, $\gamma=7.34759$, $\delta=7.35$, $c_0=0.64085$, $c_1=-6.83764$, $c_2=26.75616$, $c_3=-47.16495$, $c_4=36.18925$, $c_5=-8.60834$ 。这些参数是通过在零温时,对铝单晶力学性能的拟合而得到的势能,可以准确描述结合能 E_c 、晶格常数 $\sqrt{2}r_0$ 、弛豫后的缺陷形成能和稳态 fcc 晶体的弹性常数。

原子的初始速度在所研究的温度范围内在麦克斯维玻尔兹曼分布中随机选取,模型的初始温度为 300K。计算中对温度的控制是采用 langevin 运动方程^[7]

$$m_i \frac{d^2 x_i(t)}{dt^2} = F_i\{x_i(t)\} - \gamma_i \frac{dx_i}{dt} m_i + R_i(t) \quad (6)$$

使系统处于恒定温度为 300K 的外部环境中, γ_i 的选取与位置和时间无关,在计算中取为 10^{-15} ,反映了铝原子的特征振荡频率。

3 数值模拟结果

3.1 材料表面的烧蚀形貌

激光能量沉积时间被认为是很短的,在模拟计算中不考虑。

由图 2 可见,在激光作用结束 4.7ps 后,材料表面的晶格结构已经破坏,并且呈熔融态(指原子处于熔化状态,即不再保持长程有序的状态),部分原子向外飞出,材料表面已经发生严重烧蚀,材料烧蚀区域呈海绵状,形成孔洞。此时的熔化深度为 8.9nm。

图 3 中则显示,铝材料在 20ps 时,材料的表面烧蚀部分已经重新凝结,部分结晶(熔化的原子冷却

后重新组成晶格结构), 熔化深度减少 1.5nm 左右, 而在材料中形成了一层玻璃态(熔化的原子冷却后已不具备熔化前的规则晶格结构, 原子不做长程运动, 而是在所在位置附近振动)和一层多孔层。

(a) Side view from *y* direction

(b) Oblique view of the deposition area



图 2 4.7ps 时计算结果

Fig.2 Snapshots of simulation box 4.7ps after laser deposition

(a) Side view from *y* direction

(b) Oblique view of the deposition area



图 3 20ps 时计算结果

Fig.3 Snapshots of simulation box 20ps after laser deposition

3.2 材料温度和材料中应力的计算结果

3.2.1 模型中所有原子总动能

计算结果(见图 4)显示, 飞秒激光作用后原子总动能迅速增大, 激光作用结束后, 原子总动能逐渐下降, 在激光作用结束 20ps 后已经基本恢复为平衡态值。

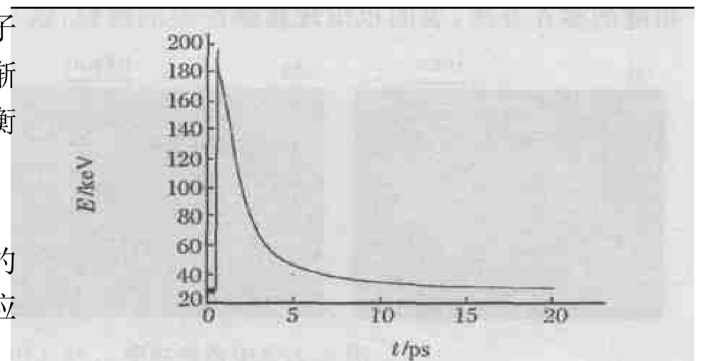


图 4 原子总动能随时间变化曲线

Fig. 4 Total kinetic energy variation along with time evolution

3.2.2 应力计算结果

图 5 为数值模拟得到的材料中 11nm 深度处的应力随时间的变化, 其最高应力约为 8GPa 左右, 应力脉冲的传播速度为 5.01km/s。

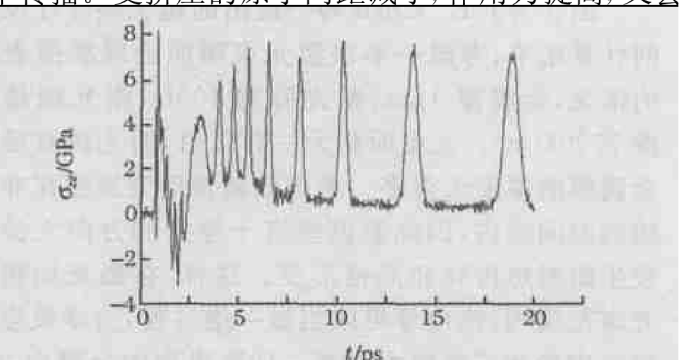


图 5 铝材料 11nm 深度位置处的应力曲线

Fig. 5 σ_z variation along with time evolution at location 11nm from the surface

对于应力曲线的分析, 目前认为, 飞秒激光作用于金属铝表面 10nm (铝对波长为 800nm 的激光的趋肤深度) 的深度, 材料表面原子温度迅速升高, 原子运动速度加快, 相互碰撞挤压形成应力波向靶材料中传播。受挤压的原子间距减小, 作用力提高, 又会向外膨胀, 其作用过程类似弹簧, 原子不断被压缩膨胀, 从而形成一个一个的应力脉冲向靶材料中传播。

当材料表面的原子开始熔化到一部分熔化的材料重新冷凝形成多孔介质, 材料的晶格结构被破坏, 应力脉冲在这三种不同状态(多孔介质, 熔化状态材料和保持晶格结构的材料)的材料中以不同速度传播, 多孔介质和熔化状态材料密度较低, 应力脉冲传播速度较低, 这造成了后续的应力脉冲的速度降低, 如图 5 所示, 脉冲间的时间间隔也会变大。

另外还采用原子键对分析的方法对不同时刻, 材料表面的烧蚀熔化深度进行了计算。图 6 为 20ps 时的熔化界面。图 7 是熔化深度随时间的变化关系, 从图中可以看到材料表面熔化深度的变化过程, 反映了熔化材料重新冷凝的过程。



图 6 20ps 时材料的熔化界面
Fig. 6 Illustration of solid-liquid interface
20ps after laser deposition

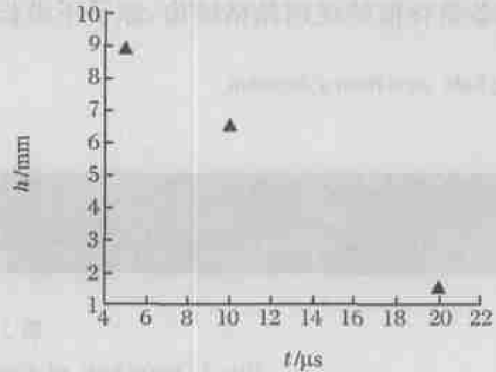


图 7 烧蚀深度随时间的变化关系
Fig. 7 Melting depth variation along with time revolution

4 模拟结果讨论

4.1 计算得到的材料表面烧蚀形貌与实验样品表面形貌的比较

从数值模拟的结果可以看出,飞秒激光辐照后,金属表面迅速熔化,部分材料发生喷溅,熔化材料重新冷凝形成一层多孔介质,但其深度很浅,仅为 2nm 左右。图 8 中为功率密度为 $1.76 \times 10^{13} \text{W/cm}^2$ 的飞秒激光辐照铝材料后的表面形貌。从图 8(d)光斑中心区的形貌中看到材料沿晶界熔化后,裸露的晶粒逐渐球化。而从数值计算的材料表面的烧蚀状态形态看到材料表面烧蚀熔化后重新冷凝,形成一层很薄的多孔介质,表面也出现重新冷凝的颗粒,这与金相形貌的观察结果是定性吻合的。

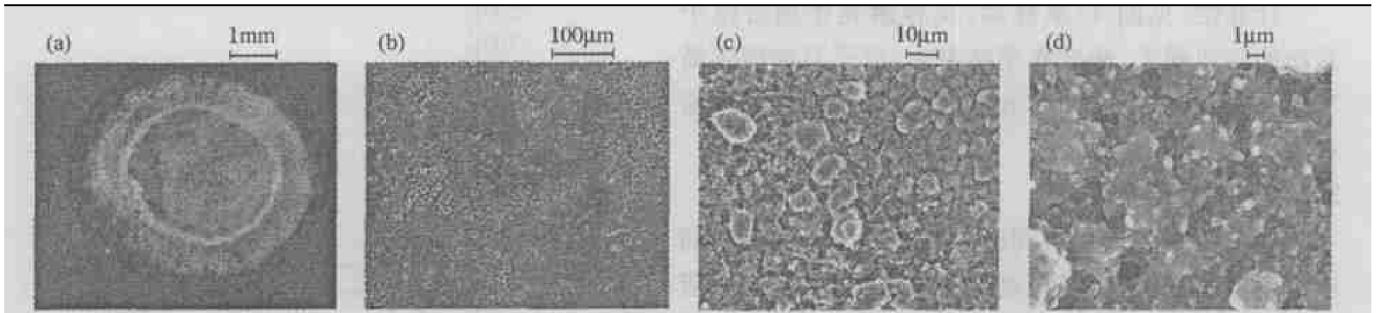


图 8 大气中激光功率 $1.76 \times 10^{13} \text{W/cm}^2$ 辐照时 LY12 铝表面形貌

Fig. 8 Surface morphology of LY12 Al exposing to atmosphere under laser radiation with power of $1.76 \times 10^{13} \text{W/cm}^2$

4.2 材料中的应力与连续介质方法计算得到的结果的比较

图 9 为 J.K. Chen 等^[3]提出的超快热弹性模型的计算结果,考虑一平顶激光束辐照金属膜前表面的情况,金膜厚 1µm,激光脉宽 100fs,激光能量密度 7790J/m^2 。光斑面积为有限值,而光斑直径比金属膜的厚度大很多。考虑到超快形变发生在非常短的时间段内,因此假设垂直于厚度的方向上没有发生瞬时热传导和晶格形变。这样,在激光加热的光斑范围内,热传导可以当做一维过程,力学效应为轴向应变和三维应力状态。计算得到的金膜中 0 ~ 200nm 深度处的最高应力为 5 ~ 6GPa。这一结果与本文的结果较为吻合;另外由各向同性热弹性体的 Duhamel-Neumann 定律^[7]有

$$\sigma_{ij} = \sigma_{ij}^R + \lambda e_{,\mu\nu} \delta_{ij} + 2Ge_{ij} - \beta \delta_{ij} (T - T_0) \quad (7)$$

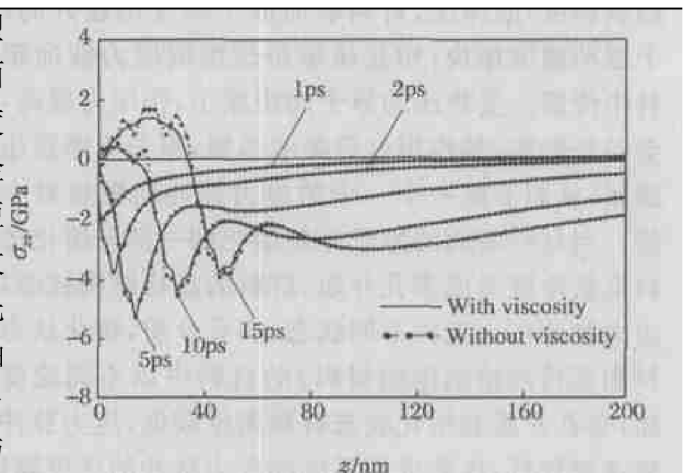


图 9 采用超快热弹性模型计算的金膜中 z 轴的轴向应力
Fig. 9 Stress σ_{zz} in the first fifth of a gold film heated by laser pulse by means of ultrafast thermoelasticity model calculation

$$\beta = \frac{\alpha_1 E}{1 - 2\nu} \quad (8)$$

如果仅考虑由温度引起的热应力, 可有

$$\sigma_{zz} = \beta(T - T_0) = \frac{\alpha_1 E}{1 - 2\nu}(T - T_0) \quad (9)$$

由数值模拟的计算结果, $\Delta T \approx 1600\text{K}$, 而对于铝材料 $\alpha_1 = 2.3 \times 10^{-5} \text{K}^{-1}$, $E = 72\text{GPa}$, $\nu = 0.34$ 。由式(10)可以得到 $\sigma_{zz} = 8.3\text{GPa}$, 这一结果与本文数值计算结果相符。

5 结 束 语

采用分子动力学方法对飞秒激光辐照金属铝材料的效应进行了数值模拟计算, 模拟结果给出了激光表面作用区的由于能量沉积引起的微观破坏图象。计算结果表明, 脉宽为 50fs、功率密度为 $2.4 \times 10^{13} \text{W/cm}^2$ 的激光辐照铝材料后, 材料表面迅速熔化, 并向外喷溅, 重新冷凝后形成一层只有 2nm 的玻璃态层和多孔状层, 激光在材料中引起的应力波峰值达到 8GPa 范围。飞秒激光与材料相互作用的机理复杂, 目前实验研究还比较困难。本文模拟结果对于飞秒激光辐照效应的机制的进行了探索, 进一步的实验比较需要更高分辨率的金相分析和探测飞秒响应的应力探测器。

参考文献:

- [1] Falkovsky L A, Mishchenko E G. Electron-lattice kinetics of metals heated by ultrashort laser pulses[J]. J Exp Theor Phys, 1999, 88: 84—88.
- [2] Chen J K, Beraun J E. Numerical study of ultrashort laser pulse interactions with metal films[J]. Numerical Heat Transfer, Part A, 2001, 40: 1—20.
- [3] Chen J K, Beraun J E, Grimes L E, et al. Modeling of femtosecond laser-induced non-equilibrium deformation in metal films[J]. International Journal of Solids and Structures, 2002, 39: 3199—3216.
- [4] Gray E. American institute of physics handbook[M]. London: McGraw-Hill Book Company, 1972.
- [5] 孙承纬. 激光辐照效应[M]. 北京: 国防工业出版社, 2002.
- [6] Mei J, Davenport J W. Free-energy calculations and the melting point of Al[J]. Physical Review B, 1992, 46: 21—25.
- [7] Leach A R. Molecular modelling principles and application[M]. New York: Addison Wesley Longman Limited, 1996.

Molecular dynamics simulation of radiation effects in Al foil irradiated by femtosecond laser beams

XIN Jian-ting^{*}, ZHU Wen-jun, LIU Cang-li

(Institute of Fluid Physics, China Academy of Engineering Physics,
Mianyang 621900, Sichuan, China)

Abstract: A large scale molecular dynamics (MD) method has been employed to reveal the atomistic information of the femtosecond laser ablation of an Al foil surface. A $12.15\text{nm} \times 12.15\text{nm} \times 81\text{nm}$ supercell involving more than 700,000 atoms is arranged to simulate the ablation process in the center area of the foil. According to the simulation an ablation stress wave of magnitude 8GPa results in the foil irradiated with laser energy 11943J/m^2 . The simulation results show that a porous layer and a glass-like layer are formed on the foil surface due to the laser ablation and the condensation afterwards and it is consistent with the laser ablated specimen's metallographic analysis.

Key words: solid mechanical; ablation; molecular dynamics; femtosecond laser; Al

^{*} Corresponding author: XIN Jian-ting

E-mail address: Jane-xjt@hotmail.com

Telephone: 0816-2484157