

# Modelo de Dos Temperaturas de la Evaporación Láser de Blancos Sólidos.

Tolentino Eslava, Pedro<sup>1,3</sup>, Gutiérrez Tapia, César<sup>2</sup> y Camps Carvajal, Enrique<sup>2,3</sup>.

<sup>1</sup>Facultad de Ciencias Físico Matemáticas, BUAP, <sup>2</sup>Departamento de Física, ININ,

<sup>3</sup>Posgrado en Ciencia de Materiales, UAEM.

## Resumen.

Se describe la transmisión de energía en el proceso de evaporación de un blanco sólido por un pulso láser mediante el modelo de dos temperaturas el cual consiste en dos ecuaciones de conducción del calor acopladas mediante un factor de acoplamiento electrón-fonón que significa la tasa de transferencia de energía entre los electrones y la red. Se calcula este factor de acoplamiento electrón-fonón para el caso particular del grafito, se muestra la obtención de las soluciones analíticas en una dimensión espacial del sistema de ecuaciones diferenciales parciales no lineales considerando dos formas del pulso láser (gausiano y función delta) y se analizan las distribuciones de temperatura electrónica y de la red.

## 1. Introducción.

En la interacción de radiación láser con un blanco sólido ocurre de forma simultánea la evaporación y su ablación. El estudio de la conducción del calor en el sólido es muy importante ya que la distribución de temperaturas en la superficie del blanco es determinante en las características del plasma que se forma. Para describir adecuadamente el proceso de formación y expansión de la pluma de plasma es necesario por lo tanto conocer los mecanismos físicos de interacción de la radiación láser con el blanco.

Uno de los problemas de la ablación láser de sólidos es conocer como se distribuye la energía del láser en el sólido y en el

vapor. Tal distribución fuertemente depende de las propiedades ópticas y termodinámicas del material del blanco irradiado, la longitud de onda de la radiación y la duración e intensidad del pulso láser.

Del análisis del balance de energía resulta que debemos considerar diferentes vías de la distribución de energía donde las **más** importantes son: la reflectividad y la conductividad térmica del material del blanco, las fracciones de energía gastadas en la fusión y evaporación del blanco, y la energía absorbida por el plasma.

La interacción láser-sólido es un fenómeno físico muy complejo ya que son procesos que se realizan en tiempos muy cortos. Por lo anterior, es necesario considerar los estados meta-estables y un factor de acoplamiento electrón-fonón para cada tipo de material de acuerdo con la cantidad de electrones libres.

Una buena aproximación en una dimensión espacial de la evaporación en la ablación láser la proporciona el modelo térmico el cual se basa en la teoría de difusión del calor. La aproximación en una dimensión espacial se basa en el hecho de que los procesos son tan rápidos, que los cambios preferentemente se realizan a lo largo de frente de onda del láser. En nuestro caso, tenemos un sistema de dos ecuaciones de conducción del calor acopladas mediante un factor de acoplamiento electrón-fonón que representa la tasa de transferencia de energía entre los electrones y la red. El

caso particular del grafito (semi-metal) presenta dificultades adicionales respecto del cálculo del factor de acoplamiento.

En el presente trabajo se estudia la evaporación en la ablación láser utilizando el modelo de dos temperaturas, suponiendo que la temperatura del gas electrónico y la temperatura de los fonones (la red) son distintas pero acopladas mediante la constante de transferencia de energía electrón-fonón. Se calcula el factor de acoplamiento electrón-fonón del grafito pirolítico de alta pureza considerando cuatro átomos por celda unitaria hexagonal. Se considera el caso unidimensional en el espacio y dos formas del pulso: una de tipo delta de Dirac (transferencia instantánea) y otra de tipo gaussiano (transferencia no instantánea). Se determinan las distribuciones de temperatura electrónica y de la red.

## 2. Metodología.

La teoría clásica de conducción del calor en un blanco sólido postula la validez de la ley de Fourier de transferencia del calor descrita por la ecuación diferencial parcial

$$\rho(T)C(T)\frac{\partial T}{\partial t} = \nabla \cdot [k(T)\nabla T] + Q(x, y, z, t) \quad (1)$$

donde  $\rho$  es la densidad de masa,  $C$  es la capacidad calorífica a presión constante,  $k$  es la conductividad térmica,  $T$  la temperatura y  $Q$  es la fuente de calor.

Si consideramos la propagación del calor solamente en una dirección (dirección del frente de onda del láser), por ejemplo  $x$ , la ecuación (1) toma la forma

$$\rho(T)C(T)\frac{\partial T}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \cdot \left[ k(T)\frac{\partial T}{\partial x} \right] + Q(x, t) \quad (2)$$

Si las constantes termofísicas  $\rho$ ,  $C$  y  $k$  son independientes de la temperatura la ecuación (2) se reduce a

$$\frac{\partial T}{\partial t} = D \frac{\partial^2 T}{\partial x^2} + Q(x, t) \quad (3)$$

donde  $K = k / \rho C$  es la difusividad térmica.

Para un cuerpo limitado isótropo que ocupa la mitad del espacio,  $x \geq 0$ , la absorción de radiación en una primera aproximación obedece a la ley de Beer[1] dada por

$$I(x, t) = (1 - R) I_0(t) \exp(-\alpha x)$$

donde  $I_0$  es la intensidad de la radiación láser incidente. La reflectancia  $R$ , dependiente de la longitud de onda, y el coeficiente de absorción  $\alpha$  son características del material y pueden variar con el tiempo como resultado del calentamiento, los cambios de fase y las reacciones químicas provocadas por la radiación láser. La fuente de calor correspondiente puede entonces ser expresada como

$$Q(x, t) = \frac{dI}{dx} = (1 - R) I_0(t) \alpha \exp(-\alpha x) \quad (4)$$

Cuando la duración del pulso  $t_p$  es mayor que el tiempo de relajación térmica  $\tau_0$  es válido el modelo de una temperatura, y cuando  $t_p < \tau_0$  se aplica el modelo de dos temperaturas.

El modelo de dos temperaturas está basado en dos consideraciones: en primer lugar los electrones absorben toda la energía del pulso láser y posteriormente transfieren una parte de la energía a la red (fonones). En segundo lugar, supone que la red y el gas de electrones pueden ser considerados como dos subsistemas con temperaturas diferentes  $T_i$  y  $T_e$  cuya evolución se describe mediante un sistema de ecuaciones acopladas por una constante  $G$  denominada el factor de acoplamiento electrón-fonón [2]

$$C_i(T_i) \frac{\partial T_i}{\partial t} = \nabla \cdot [k_i \nabla T_i] + G(T_e - T_i) + Q_i \quad (5a)$$

$$C_e(T_e) \frac{\partial T_e}{\partial t} = \nabla \cdot [k_e \nabla T_e] - G(T_e - T_i) + Q_e \quad (5b)$$

donde los subíndices *i* y *e* denotan a la red y los electrones,  $\nabla \cdot [k_i \nabla T_i]$  es el término difusivo y  $G(T_e - T_i)$  describe el intercambio de energía entre los dos subsistemas.

El sistema de ecuaciones (1.5) se resuelve considerando dos formas del pulso láser:

A) Una función delta de Dirac en la parte temporal  $F(t) = \delta(t - t^*)$  que se interpreta como una transferencia instantánea de energía y el término fuente se transforma como

$$Q(x, t) = (1 - R) I \alpha \exp(-\alpha x) \delta(t - t^*) \quad (6)$$

B) Una aproximación gaussiana, obteniendo para el término fuente

$$Q(x, t) = 0.94 \frac{(1 - R) J}{t_p d} \exp \left[ -\frac{x}{d} - 2.77 \left( \frac{t}{t_p} \right)^2 \right] \quad (7)$$

donde  $J$  es la fluencia láser y  $d$  es la longitud de penetración óptica.

El factor de acoplamiento electrón-fonón es una propiedad del material y de acuerdo con [3] se define como

$$G = \frac{\pi^2 m_e n_e v_s^2}{6 \tau_e T_e} \quad (8)$$

donde  $\tau_e$  es la masa electrónica,  $n_e$  es la densidad electrónica,  $v_s$  es la velocidad del sonido en el material y  $\tau_e$  es el tiempo de relajación electrónica.

Existen en la literatura otras expresiones para definir el factor de acoplamiento. En este trabajo utilizaremos las que mejor se han estudiado para obtener aquella que mejor ajuste con los datos experimentales

reportados para metales. De acuerdo a Qiu y Tien [4]

$$G = \frac{\pi^4 m_e n_e v_s^2}{6 \tau_e (T_e) T_e} \quad (9)$$

y considerando que se cumple la ley de Wiedemann-Franz el factor de acoplamiento se puede aproximar a

$$G = \frac{\pi^4 (n_e v_s k_B)^2}{K_e} \quad (10)$$

donde  $k_B$  es la constante de Boltzmann y  $K_e$  es la conductividad térmica electrónica.

Al-Nimr y Arpaci [5] consideraron el cálculo de la velocidad del sonido en el material como:

$$v_s = \frac{k_B T_D}{2 \pi h (6 \pi^2 n_a)^{1/3}} \quad (11)$$

donde  $h$  es la constante de Planck,  $n_a$  es la densidad fonónica y  $T_D$  es la temperatura de Debye.

Jian y Tsai [6] simplificaron el cálculo introduciendo el bulk modulus  $B$  para conocer la velocidad del sonido

$$v_s = (B / \rho)^{1/2} \quad (12)$$

donde  $\rho$  es la densidad de masa.

### 3. Resultados.

#### 3.1. Cálculo del factor de acoplamiento.

Los resultados del cálculo del factor de acoplamiento para el caso del grafito considerando tres modelos propuestos en [4,5,6] se muestran en la Tabla 1.

	Ref. [4]	Ref. [5]	Ref. [6]
Au	$2.93 \times 10^{17}$	$2.65 \times 10^{17}$	$1.01 \times 10^{17}$
Pb	$2.83 \times 10^{17}$	$4.48 \times 10^{17}$	$1.21 \times 10^{17}$
Grafito	$5.73 \times 10^{17}$	$2.22 \times 10^{17}$	$3.41 \times 10^{17}$

Tabla 1. Cálculo del factor de acoplamiento electrón-fonón.

En la comparación de estos resultados con las mediciones reportadas en la literatura para los metales se encontró que los de la Ref. [6] se ajustan mejor, por lo cual se utiliza para nuestros cálculos el valor de  $G = 3.41 \times 10^8 \text{ W/m}^3 \text{ K}$ .

### 3.2 Consideraciones sobre la capacidad calorífica.

En general  $C_i$  y  $C_e$  dependen de la temperatura, sin embargo para valores de  $T > T_D$  su comportamiento es constante. Para valores menores que  $T_D$  se puede utilizar la relación[8]:

$$C_e \approx a_0 + \gamma T \quad (13)$$

donde para el caso del grafito se encontró que  $\gamma = 5.09 \times 10^{-3}$ . De este resultado, considerando que  $a_0 = 17.15$  [9], podemos considerar que  $C_e$  es constante respecto de la temperatura.

En las soluciones siguientes utilizaremos las propiedades del grafito:

$$C_e = 7.16 \text{ J/kg K},$$

$$C_i = 7.16 \times 10^2 \text{ J/kg K},$$

$$K_e = 1.38 \times 10^3 \text{ W/mK}, R = 0.403,$$

$$\alpha = 5.0 \times 10^7 \text{ m}, L = 5 \times 10^{-6} \text{ m}, t^* = 0,$$

$$T_i = 300 \text{ K}, G = 3.41 \times 10^8 \text{ W/m}^3 \text{ K}$$

y los parámetros del equipo siguientes:

$$I = 10^5 \text{ W/m}^2, t_p = 28 \times 10^{-9} \text{ s},$$

$$\lambda = 1064 \times 10^{-9} \text{ m}.$$

### 3.3. Transferencia instantánea de energía.

Consideremos el término fuente (6). Cuando  $t \leq t_0$ , donde  $t_0$  es el tiempo de duración de la primera etapa y no hay término difusivo, utilizando las condiciones iniciales y de frontera [5]

$$T_e(x, 0) = T_i(x, 0) = T^{(i)}, \frac{\partial T(0, t)}{\partial x} = \frac{\partial T(t, L)}{\partial x}.$$

se obtiene su solución analítica. Los resultados analíticos son correctos cualitativamente. Aproximadamente la temperatura electrónica tarda un microsegundo para alcanzar el valor de la temperatura ambiente, mientras que en ese mismo intervalo de tiempo la temperatura de la red aumenta hasta casi alcanzar el equilibrio térmico con el gas electrónico.

Cuando  $t \geq t_0$  cesa el intercambio de energía electrón-fonón ( $G = 0$ ), el proceso se convierte en uno puramente difusivo y considerando las condiciones iniciales y de frontera [5]

$$T(x, t_0) = T^{(i)} + \frac{Q_0(x)}{C_i + C_e}, \frac{\partial T(0, t)}{\partial x} = \frac{\partial T(t, L)}{\partial x},$$

obtenemos la solución correspondiente.

Cuando se consideran los efectos disipativos, la solución se muestra en la Figura 1. Notamos que la temperatura de la red decrece más rápidamente con respecto al caso no disipativo. Esto se debe a que los procesos de difusión son dominantes. La temperatura disminuye drásticamente hasta estabilizarse en un tiempo menor a los 40 ps.

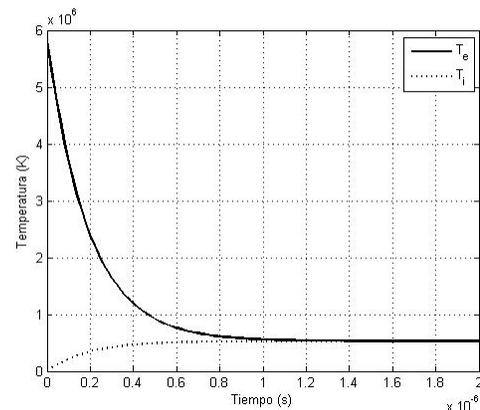


Figura 1. Distribución de la temperatura de la red respecto del tiempo no considerando efectos disipativos.

### 3.4. Transferencia no instantánea de energía.

Considerando la forma del pulso (7) y las condiciones iniciales y de frontera siguientes [7]:

$$T_e(x, 0^+) = \frac{(1-R)J}{C_e d} \exp\left(-\frac{x}{d}\right),$$

$$T_i(x, 0^+) = T_i(x, 0^-) = 0,$$

$$\frac{\partial T_i}{\partial t}(x, 0^+) = \frac{(1-R)J}{vd} \exp\left(-\frac{x}{d}\right),$$

$$\frac{\partial T_i}{\partial x}(0, t) = \frac{\partial T_i}{\partial x}(t, L) = 0.$$

La solución analítica se muestra en la Figura 2.

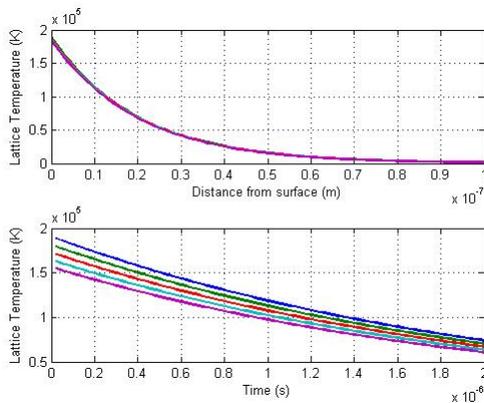


Figura 2. Distribución de la temperatura fonónica respecto del tiempo para un perfil de pulso láser tipo gaussiano.

Se puede notar (Fig. 2) que la duración de la transferencia de calor alcanza un valor asintótico en un tiempo menor que 1 ps.

### Conclusiones.

Se encontró que el mejor ajuste para el cálculo del factor de acoplamiento electrón-fonón para el caso del grafito se obtiene cuando se considera el modulo total (bulk modulus) en la definición de la

velocidad del sonido en el material. La consideración de constancia de la capacidad calorífica también es posible dado que el coeficiente de la parte lineal de (13) es pequeño. Las distribuciones de temperatura electrónica y de la red muestran un comportamiento adecuado para los sólidos, y reproduce los resultados cualitativos de otros autores [4, 6].

### Referencias.

- 1 Bauerle, D. *Laser processing and chemistry*, Third edition, Berlin, Springer-Verlag, 2000.
- 2 Anisimov, S. I., Kapeliovich, B. L., and Perelman, T. L., 1974, *Electron emission from metal surfaces exposed to ultrashort laser pulses*, Sov. Phys. JETP, **39**, 375-377.
- 3 Kaganov, M. I., Lifshits, I. M., and Tanatarov, L. V., 1957, *Relaxation between electrons and the crystalline lattice*, Sov. Phys. JETP **4**, 173-178.
- 4 Qiu, T. Q., and Tien, C. L., 1992, *Short-pulse laser heating on metals*, Int. J. Heat Mass Transfer, **35**, 719-726.
- 5 Al Nimr, M. A., and Arpaci, V. S., 1999, *Picosecond thermal pulses in thin metal films*, J. Appl. Phys., **85**, 2517-2521.
- 6 Jian, L., and Tsai, H. L., 2005, *Improved two-temperature model and its application in ultrashort laser heating of metal films*, J. Heat trans., **127**, 1167-1173.
- 7 Smith, A. N., Hostetler, J. L., and Norris, P. M., 1999, *Nonequilibrium heating in metal films: An analytical and numerical analysis*, Numerical Heat Transfer, Part A, **35**, 859-873.
- 8 Ashcroft, N. W. and Mermin, N. D., *Solid State Physics*, Thomson Learning, New York, 1976.
- 9 Ragone D. V., *Thermodynamics of Materials*, John Wiley, 1995, pag. 14.