

# 飞秒激光烧蚀铝靶产生喷射物的 超快脉冲数字全息诊断<sup>\*</sup>

胡浩丰 王晓雷<sup>†</sup> 李智磊 张楠 翟宏琛<sup>‡</sup>

(南开大学现代光学研究所, 光电信息技术科学教育部重点实验室, 天津 300071)

(2009 年 1 月 14 日收到, 2009 年 2 月 17 日收到修改稿)

采用脉冲数字显微全息技术, 对 50 fs 单脉冲激光烧蚀铝靶过程中的物质喷射以及等离子体演化的动态过程进行了实验研究, 获得了高时空分辨的动态数字全息图. 由全息图观察到了热弹力波引起的二次喷射现象, 并且报道了大延迟下喷射物质对 400 nm 探测光所引起的干涉条纹的反常移动现象. 通过对全息图进行数字再现, 得到了不同延迟下探测光穿过等离子体后的二维相位分布, 并运用逆 Abel 变换算法获得了等离子体折射率以及等效电子密度的时空演化动态过程. 根据实验以及计算所得到的有关于喷射物的光学性质, 对喷射物的结构和成分进行了分析.

关键词: 脉冲数字全息, 飞秒激光烧蚀, 超快时间分辨, 等离子体

PACC: 4240M, 4280W, 5270K

## 1. 引 言

近年来, 飞秒激光精细微加工技术因其高精度、高空间分辨率、高广泛性等诸多优点, 开创了激光微加工的崭新领域. 与此同时, 许多科学工作者对飞秒激光烧蚀的机理进行了大量的研究工作<sup>[1-7]</sup>; 但其中大部分关于烧蚀机理的研究都是从分子动力学的微观角度, 通过计算模拟激光作用区域内某部分原子或分子的行为特征, 来揭示飞秒激光烧蚀过程中物质去除的基本物理机理, 如相位爆炸<sup>[3]</sup>、库仑爆炸<sup>[4]</sup>、光机械碎化<sup>[3, 5]</sup>和临界点相位分离<sup>[6]</sup>等, 只有少量工作针对飞秒激光烧蚀中物质喷射的动态过程进行了高时间、空间分辨的实验研究.

在飞秒脉冲激光烧蚀中, 超短的脉冲宽度导致激光与物质相互作用的时间远小于系统响应所需的时间, 因而从根本上排除了热扩散的存在和影响, 这一特点也使得飞秒激光烧蚀与长脉冲烧蚀的机理截然不同. 由于在飞秒激光烧蚀期间, 靶材表面产生的物质喷射过程是涉及到多种物理机理并且强烈地依赖于激光参数和靶材性质的极其复杂的物理过程,

因此获得其高时间、空间分辨的图像信息将能更为直观和形象地帮助我们观察和研究这个物理过程. 文献 [7] 利用抽运探测技术对飞秒激光烧蚀铝产生的等离子体进行了时间分辨动态阴影记录, 并对飞秒激光烧蚀过程进行了初步的定性研究. 但由于该阴影图只能记录喷射物对探测光的强度调制信息, 因此对研究飞秒激光烧蚀机理存在一定的局限性. 相比之下, 飞秒脉冲显微数字全息术是研究激光等离子体动态过程及性质的更为有效的实验手段<sup>[8, 9]</sup>. 一方面, 因其基于飞秒抽运探测技术而拥有极高的时间分辨率; 另一方面, 通过数字再现可以定量地获得被测物的光强信息以及相位信息, 进而可通过对相位信息的计算获得等离子体的折射率, 因此可对烧蚀过程进行更为综合、全面的定量研究. 近年来, 该技术已被用于研究飞秒激光等离子体自生磁场<sup>[10, 11]</sup>等方面, 然而该应用仅关注烧蚀过程中早期等离子体的性质, 并没有对飞秒激光烧蚀靶材的超快动态过程进行过深入的分析 and 研究.

本文采用飞秒显微数字全息技术, 对飞秒激光烧蚀铝靶过程中产生的物质喷射进行了动态全息记录, 获得了最大延迟时间为 5.3 ns 的高时间、空间分

<sup>\*</sup> 国家自然科学基金重点项目(批准号: 60838001)与高等学校博士学科点专项科研基金(批准号: 20070055029)资助的课题.

<sup>†</sup> E-mail: wangxiaolei@nankai.edu.cn

<sup>‡</sup> E-mail: zhai@nankai.edu.cn

辨的序列数字全息图.在此基础上,对不同时刻喷射物的相位信息、折射率以及自由电子密度等物理量进行了定量计算,并且根据计算结果对喷射物的结构及成分进行了分析和研究.

## 2. 实验装置

实验装置如图 1 所示,实验使用的钛:蓝宝石(Ti:sapphire)飞秒激光放大系统(HP-Spitfire, Spectra-Physics Inc.)的参数指标为:脉宽 50 fs,中心波长 800 nm,重复频率 1 kHz.在实验中,由飞秒激光放大系统发出的单脉冲首先经分光板  $BS_1$  分为抽运光脉冲和探测光脉冲,抽运光脉冲经过延迟光路  $Delay_1$  后,通过 10 倍显微物镜( $NA = 0.25$ )聚焦到金属铝靶的表面.金属铝靶在实验前,进行了仔细的打磨和抛光处理,获得了平整而均匀的表面,从而保证了实验的重复性;并且每当记录下一幅全息图后,都要在下次记录前将目标靶移动到未被烧蚀过的新位置.为了避免激光直接引发空气电离,从而对喷射

物的成像产生干扰,铝靶被放置于焦点前(如图中虚线框内所示)的某个位置.实验中,靶面上的抽运光能量密度为  $40 \text{ J/cm}^2$ .由  $BS_1$  分出的探测光脉冲经过光路  $Delay_2$  延迟后入射到 BBO 晶体,被倍频为 400 nm 的探测光,再经  $BS_2$  分为物光和参考光后被导入图中右侧所示的迈克尔逊干涉仪.其中,  $Delay_1$  和  $Delay_2$  用于调节抽运光和探测光之间的时间延迟;  $Delay_3$  用于调节物光和参考光的光程差,使其满足相干条件.由  $L_1$  ( $f = 1.5 \text{ cm}$ ) 和  $L_2$  ( $f = 30 \text{ cm}$ ) 组成的  $4f$  系统将喷射物放大后成像于 CCD 记录面上.400 nm 带通滤波片和中性密度衰减片用于阻止探测光中剩余的 800 nm 光和烧蚀过程中产生的荧光以及散射的抽运光进入 CCD.实验中使用的 CCD 型号为 MINTRON 1881EX,其像素数以及像素大小分别为  $576 \times 768$  和  $10.8 \mu\text{m} \times 10 \mu\text{m}$ .为了记录 50 fs 的单脉冲激光烧蚀铝靶后喷射物的时间分辨全息图,在实验过程中要保证 CCD 的图像采集频率与飞秒激光系统发射频率相匹配.

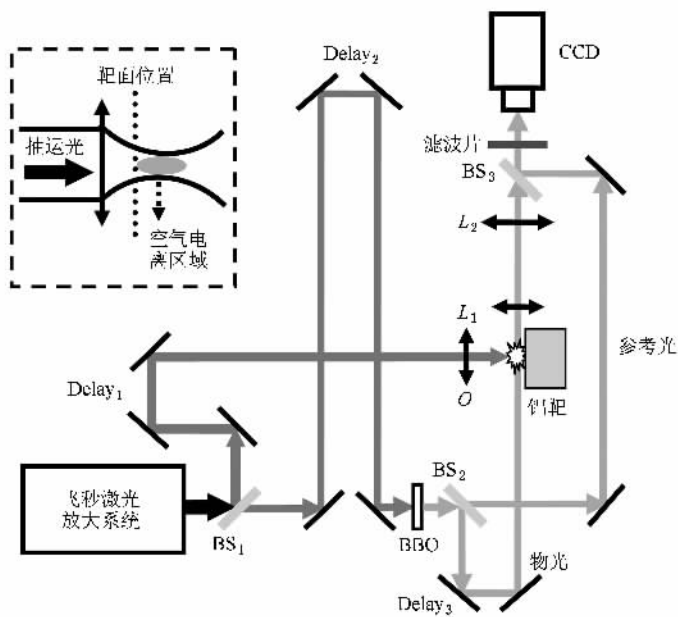


图 1 实验装置图(BS 为分光板, O 为显微物镜)

## 3. 实验结果及分析

图 2 为 50 fs 单脉冲激光烧蚀铝靶后,在不同延迟时记录下的等离子体的全息图.图中,右侧黑色区域为铝靶,抽运脉冲从左侧入射并被聚焦到铝靶表

面.本实验采用像面全息的记录方式,因此从记录下的全息图上可以较清楚地观察到等离子体的形貌特征.这一系列超快时间分辨的全息图反映了等离子体时空演化的动态过程,即随着延迟时间的不断增加,喷射物从被烧蚀的区域逐渐向外界膨胀,并在膨胀过程中形成冲击波(如图中箭头 A 所示);此外,

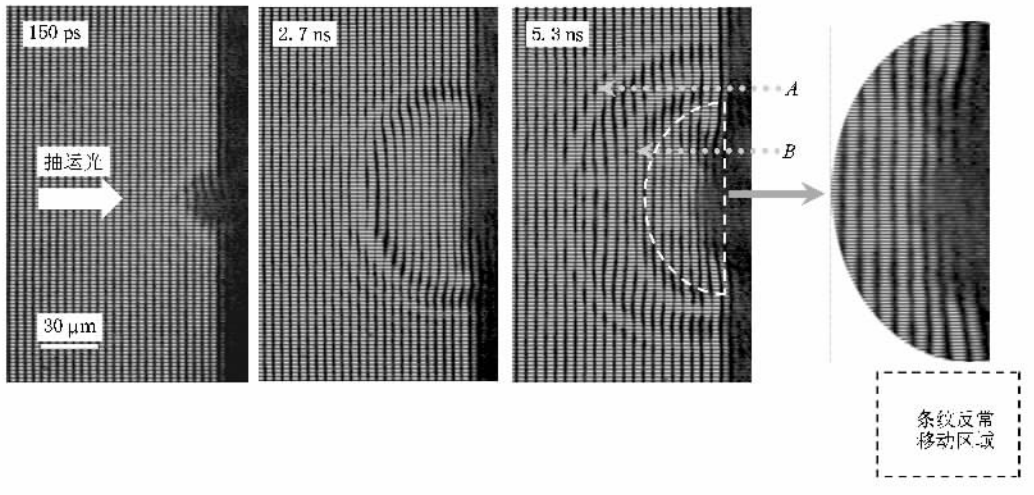


图2 不同延迟时等离子体的干涉图(A为冲击波波前,B为二次喷射物质接触前端)

喷射物早期的膨胀速度明显快于晚期,并且其结构也随着时间的延续而变得愈加丰富和复杂.其中,在2.7 ns附近时,铝靶表面开始喷射出使探测光透射率减弱的物质,使全息图中靶面附近区域变暗.此外,在延迟时间为5.3 ns的全息图中,可以清楚地观察到在喷射物的内部出现了二次喷射现象<sup>[7]</sup>以及第二次物质喷射的接触前端(如图中箭头B所示).我们认为这一现象是由于脉冲激光轰击铝靶时产生的热弹力波引起的<sup>[12]</sup>.

图2中另一个值得注意的现象是:当延迟为150 ps和2.7 ns时,所有的条纹都朝着铝靶表面方向弯曲(在图中为向右侧弯曲);而在最后一幅延迟为5.3 ns的干涉图中,靠近靶面区域的干涉条纹朝着表面以外的方向弯曲(在图中为向左侧弯曲).为了能更清楚地表征这一现象,我们将发生干涉条纹反常移动的区域进行了放大(如图中白色虚线框所示).这一现象表明此刻喷射物折射率的性质发生了变化.

在相移干涉计量中,条纹移动的数量可表示为<sup>[13]</sup>

$$N_f = \frac{1}{\lambda} \int_0^l (1 - \eta) \lambda dl, \quad (1)$$

其中 $\eta$ 为等离子体在积分路径上不同位置处的折射率,而自由电子对等离子体折射的贡献为<sup>[13]</sup>

$$\eta = (1 - n_e/n_{\text{crit}})^2, \quad (2)$$

其中 $n_{\text{crit}} = \pi(\epsilon_0 r_0 \lambda^2)$ 表示等离子体临界密度, $r_0$ 为经典电子半径.对于 $\lambda = 400 \text{ nm}$ 的探测光, $n_{\text{crit}} = 6.875 \times 10^{21} / \text{cm}^3$ ,因此当干涉条纹朝着铝靶表面弯曲时,对应着自由电子折射率小于1, $N_f$ 大于0,如

图2中延迟为150 ps和2.7 ns的两图所示.而当积分路径上等离子体的平均折射率大于1时,即 $N_f$ 为负值时,条纹会发生反常移动.所以,在延迟为5.3 ns时拍摄到的全息图表明,此刻在靠近靶面处喷射出大量折射率大于1的物质,而这些喷射物质对折射率的影响会大于自由电子对折射率的影响而处于主导地位,并且该物质会使得探测光的透过率变低.

由于实验中采用离轴全息记录方式,物光波的正一级频谱与零级以及负一级频谱在傅里叶频谱空间彼此分离,因此在对全息图的数字再现过程中,我们首先对全息图进行傅里叶变换,将其变换到傅里叶频谱空间,然后进行滤波处理,即仅保留正一级频谱,而滤掉频谱的其他级次,这样便可有效地消除再现像中的零级像和共轭像.随后对正一级频谱进行逆傅里叶变换,获得空域的物光波复振幅分布.经过上述的数字再现过程,我们从图2拍摄到的数字全息图定量地反演出相位信息,它标志着探测光穿过等离子体后的相位调制.我们将调制后的相位信息与没有等离子体时的相位信息相减,便反演出了二维的相位差分布,如图3所示.其中,当等离子体平均折射率小于空气折射率时,相位差为正值,反之则为负值.可以看到,相位差整体上随着时间的增加而逐渐减小.图3中值得注意的是:延迟为150 ps和2.7 ns时,等离子体内部各个位置相位差均为正值,表明该阶段喷射物平均折射率小于空气折射率;而当延迟为5.3 ns时,靶面附近区域(图中虚线内1区域)相位差远小于0,即该区域内平均折射率远大于空气折射率,因此条纹发生明显的反常移动.这一计算结果与图2中的现象完全符合.

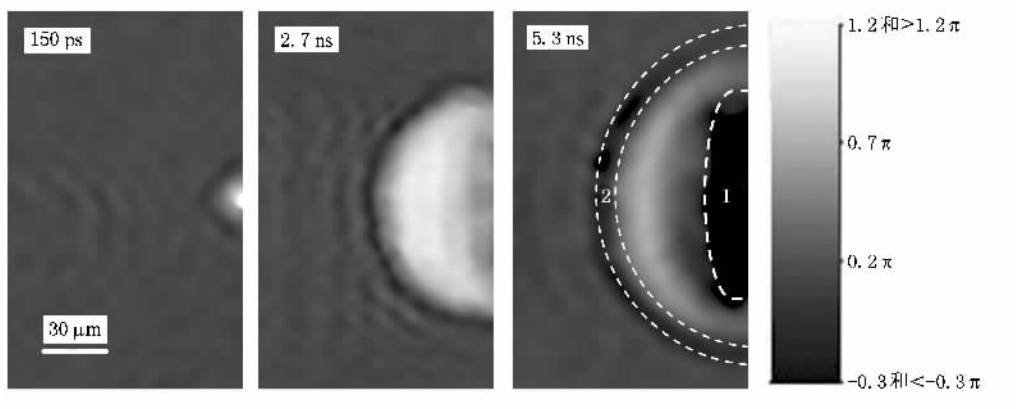


图3 探测光相位差二维分布

此外,由图3还可以观察到在各个延迟下喷射物前端外侧区域(图中虚线内2区域)的相位差小于0.这是由于喷射物在膨胀过程中把周围的空气压缩到了冲击波前端的一个薄层内<sup>[3,14,15]</sup>,因此这个薄层内的主要成分是被冲击波压缩的空气,因而其平均折射率大于常温常压下空气的折射率。

在一般情况下,等离子体的折射率是由其自由电子密度决定的,因此我们可以利用相位信息计算出等离子体的自由电子密度分布;但因探测光相位差二维分布反映的仅仅是折射率在积分路径上的叠加效果,因此只能反映出自由电子的平均密度.为了更好地了解喷射物中自由电子密度的三维分布情况,我们采用逆 Abel 变换法则进行了推算.在计算中,我们假设等离子体折射率只受自由电子的影响,即将喷射物中各种物质对折射率的影响的总合折合成相应数目的自由电子的影响,因而得出的等离子体中心轴自由电子密度可被认为是等效电子密度,结果如图4所示.由图中可以看出在中心轴上自由电子密度的最大值随着时间的增加而逐渐降低。

此外,从图4中还能注意到,在物质喷射的早期(延迟时间为150 ps时)靶面处的自由电子密度最大,为 $4.25 \times 10^{20}/\text{cm}^3$ ,该值远远大于空气的数密度<sup>[16]</sup>,因此早期喷射物中的自由电子主要来源于铝靶电离时从靶面逸出的自由电子.同时,极高的自由电子密度也说明此时喷射物为高度电离的状态,因而其中包含了大量的铝离子.并且,早期的自由电子密度会随着与靶面距离的增加而急剧下降.而在喷射过程发展的晚期(延迟时间为2.7 ns后),轴向远端(喷射物前端)区域自由电子密度变得较大,该区域标志着喷射物电离空气的电离前端.另外,在延迟时间为2.7 ns和5.3 ns时,等离子体内部区域的自

由电子密度相对于边缘处的密度急剧减小,并在靶面附近降为负值,这是由于大量折射率大于1的物质的喷射导致计算出的自由电子密度大大偏小.因此可认为此计算出的晚期等离子体的自由电子密度分布不能有效地反映其空间分布的真实情况。

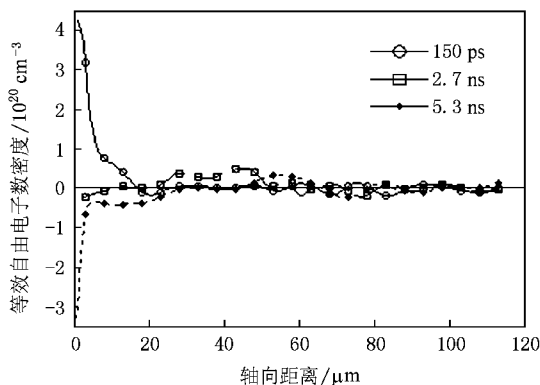


图4 等离子体中心轴上等效自由电子密度分布

## 4. 结 论

本文利用脉冲数字全息技术得到了飞秒激光烧蚀铝靶过程中产生喷射物质的高时间、空间分辨的全息图,通过观察像面全息图像清楚地了解了二次喷射现象以及喷射物的形貌和结构特征,并通过数值计算得出了不同时刻等离子体折射率以及等效自由电子密度的空间分布情况.通过对上述实验和计算结果的分析,我们报道了在不同延迟时刻以及不同位置处喷射物可能的性质及成分,即早期的喷射物呈现出等离子体的性质,其主要成分是自由电子和离子,而在延迟较大的时刻,铝靶表面会喷射出大

量折射率大于 1 的物质,这些喷射物质对折射率的影响会大于自由电子对折射率的影响而处于主导地位,并且该物质会使得探测光的透过率变低.

作者感谢李璐杰硕士在实验中的帮助,刘海涛教授、朱晓农教授给予的有益探讨,以及飞秒激光实验平台的成员们所提供的便利的实验条件.

- [ 1 ] Chichkov B N , Momma C , Nolte S , von Alvensleben F , Tunnermann A 1996 *Appl. Phys. A* **63** 109
- [ 2 ] Margetic V , Ban T , Leis F , Niemax K , Hergenroder R 2003 *Spectrochimica Acta B* **58** 415
- [ 3 ] Lorazo P , Lewis L J , Meunier M 2003 *Phys. Rev. Lett.* **91** 225502
- [ 4 ] Roeterdink W G , Juurlink L B F , Vaughan O P H , Dura Diez J , Bonn M , Kleyn A W 2003 *Appl. Phys. Lett.* **82** 4190
- [ 5 ] Perez D , Lewis L J 2002 *Phys. Rev. Lett.* **89** 25504
- [ 6 ] Vidal F , Johnston T W , Barthelemy O *et al* 2003 *Phys. Rev. Lett.* **86** 2573
- [ 7 ] Zhang N , Zhu X N , Yang J J , Wang X L , Wang M W 2007 *Phys. Rev. Lett.* **99** 167602
- [ 8 ] Wang X L , Zhai H C , Mu G G 2006 *Optical Letters* **31** 1636
- [ 9 ] Wang X L , Zhai H C 2007 *Optics Communications* **275** 42
- [ 10 ] Li Y T , Zhang J , Chen L M , Xia J F *et al* 2001 *Science in China A* **31** 85 ( in Chinese ) [ 李玉同、张 杰、陈黎明、夏江帆 等 2001 中国科学 A 辑 **31** 85 ]
- [ 11 ] Li Y T , Zhang J , Chen L M , Xia J F *et al* 2000 *Acta Phys. Sin.* **49** 1400 ( in Chinese ) [ 李玉同、张 杰、陈黎明、夏江帆 等 2000 物理学报 **49** 1400 ]
- [ 12 ] Wang X , Xu X 2002 *Journal of Thermal Stress* **25** 457
- [ 13 ] Filevich J , Rocca J J , Marconi M C , Moon S J *et al* 2005 *Phys. Rev. Lett.* **94** 035005
- [ 14 ] Zeng X Z , Mao X L , Mao S S *et al* 2006 *Appl. Phys. Lett.* **88** 061502
- [ 15 ] Arnold N , Gruber J , Heitz J 1999 *Appl. Physics. A* **69** S87
- [ 16 ] Mao S S , Mao X L , Greif R , Russo R E 2000 *Appl. Phys. Lett.* **77** 2464

# Ultra-fast pulsed digital holographic diagnosis of ejected material in femtosecond laser ablation of aluminum \*

Hu Hao-Feng Wang Xiao-Lei<sup>†</sup> Li Zhi-Lei Zhang Nan Zhai Hong-Chen<sup>‡</sup>

(*Institute of Modern Optics ,Nankai University ,Key Laboratory of Optoelectronic Information Science & Technology ,Ministry of Education ,Tianjin 300071 ,China*)

( Received 14 January 2009 ; revised manuscript received 17 February 2009 )

## Abstract

The dynamic process of material ejection and plasma evolution in single 50 fs laser pulse ablation of aluminum target is investigated using pulsed digital micro-holography , and highly temporally and spatially resolved dynamic digital holograms are obtained. The secondary material ejection induced by the thermoelastic wave is observed in the holograms , and at the same time , we firstly report the phenomenon of anomalous fringe shift at large time delays that results from the effect of the ejected material towards the probe beam of 400 nm wavelength. Through digital reconstruction , the two-dimensional phase shift distribution of the probe beam is obtained. By employing inverse Abel transform , we also obtained the dynamic process of spatial and temporal evolution of refractive index and free electron density distribution of the plasma. The structure and composition of the ejected material is analyzed according to its optical properties which are obtained through experiment and calculation.

**Keywords** : pulsed digital holography , femtosecond laser ablation , ultra-fast time resolved , plasma

**PACC** : 4240M , 4280W , 5270K

---

\* Project supported by the State Key Program of National Natural Science of China ( Grant No. 60838001 ) and the Specialized Research Fund for the Doctoral Program of Higher Education of China ( Grant No. 20070055029 ).

<sup>†</sup> E-mail : wangxiaolei@nankai.edu.cn

<sup>‡</sup> E-mail : zhai@nankai.edu.cn