

偏振对飞秒激光辐照 LiF 晶体的影响

王承伟 赵全忠 张扬 王关德 钱静 鲍宗杰 李阳博 柏锋 范文中

Influence of polarization on irradiating LiF crystal by femtosecond laser

Wang Cheng-Wei Zhao Quan-Zhong Zhang Yang Wang Guan-De Qian Jing Bao Zong-Jie Li Yang-Bo Bai Feng Fan Wen-Zhong

引用信息 Citation: [Acta Physica Sinica](#), 64, 205204 (2015) DOI: 10.7498/aps.64.205204

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.205204>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2015/V64/I20>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

铷原子耦合光频率近共振时的电磁感应透明

[Electromagnetically induced transparency in a near-resonance coupling field](#)

物理学报.2015, 64(15): 154208 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.154208>

基于数字相干叠加的相干光正交频分复用系统中光纤非线性容忍性研究

[Fiber nonlinearity tolerance research of coherent optical orthogonal frequency division multiplexed system based on digital coherent superposition](#)

物理学报.2015, 64(14): 144203 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.144203>

有源环形谐振腔辅助滤波的单模光电振荡器

[Single mode optoelectronic oscillator assisted by active ring resonance cavity filtering](#)

物理学报.2015, 64(4): 044202 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.044202>

MoS₂ 纳微薄膜激光非线性透射的调控研究

[Research on the controllable nonlinear laser transmission properties of MoS₂ nano-micron film](#)

物理学报.2015, 64(3): 034214 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.034214>

超短超强激光导引及对电子加速的影响

[Ultra-short ultra-intense laser guiding and its influence on electron acceleration](#)

物理学报.2012, 61(16): 165201 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.61.165201>

偏振对飞秒激光辐照 LiF 晶体的影响*

王承伟¹⁾²⁾³⁾ 赵全忠^{2)†} 张扬²⁾ 王关德²⁾ 钱静²⁾ 鲍宗杰²⁾ 李阳博²⁾
柏锋²⁾ 范文中²⁾

1) (同济大学物理科学与工程学院, 上海 200092)

2) (中国科学院上海光学精密机械研究所, 强场激光物理国家重点实验室, 上海 201800)

3) (中国科学院大学, 北京 100049)

(2015年3月16日收到; 2015年5月27日收到修改稿)

飞秒激光聚焦到 LiF 晶体内部, 晶体的加工形貌随偏振改变. 实验表明, 偏振方向平行于 $\langle 110 \rangle$ 晶向时, 加工起点到表面的距离是 $\langle 100 \rangle$ 偏振下的 1.08 倍; 而 $\langle 110 \rangle$ 偏振下加工终点到表面的距离是 $\langle 100 \rangle$ 偏振下的 1.01 倍. 为了解释加工形貌的偏振依赖, 建立了逆韧致辐射、雪崩电离和无辐射跃迁的模型, 首先, 价带电子通过强场电离和雪崩电离, 从激光中吸收能量跃迁到导带, 该过程用电子密度演化方程和傍轴非线性薛定谔方程描述, 求解方程得到导带电子密度; 其次, 导带电子通过无辐射跃迁过程释放能量给晶格, 由能量守恒计算出晶格温度沿激光传播方向的分布; 最后, 晶格温度超过熔点以上的区域被加工. 模拟结果显示, $\langle 110 \rangle$ 偏振下加工起点到表面的距离是 $\langle 100 \rangle$ 偏振下的 1.03 倍, 而 $\langle 110 \rangle$ 偏振下加工终点到表面的距离是 $\langle 100 \rangle$ 偏振下的 0.981 倍, 与实验结果基本一致. 虽然 Z 扫描技术测量的非线性折射率随偏振方向变化, 但是非线性折射率的变化趋势与实验结果相反. 模拟和实验证明逆韧致辐射导致加工形貌随偏振变化.

关键词: 逆韧致辐射, 无辐射跃迁, 雪崩电离, 非线性折射率

PACS: 52.38.Hb, 42.65.-k, 52.50.Jm, 52.38.Mf

DOI: 10.7498/aps.64.205204

1 引言

飞秒激光脉宽短因而光强大, 电介质受到飞秒激光的作用, 诱导出色心、金属纳米粒子、波导、纳米光栅以及微孔洞等微纳结构^[1-6]. 偏振对激光加工具有重要影响, 涉及的光学机理包括线性与非线性光学. 本文选择线性折射率各向同性的立方晶体 LiF 作为研究对象, 但实验表明 LiF 晶体的加工形貌随偏振变化, 因此该现象是线性光学以外的因素引起的.

非线性光学过程包括自聚焦、强场电离、逆韧致辐射和雪崩电离, 其他物理过程包括无辐射跃迁、冲击波和库仑爆炸等^[3,7-10]. 飞秒激光辐照电介质, 首先发生的是强场电离, 主要发生在 100 fs 内^[9], 价带电子通过强场电离, 即多光子电离或者

隧道电离跃迁到导带. 其次发生的是逆韧致辐射和雪崩电离, 各种电离在电介质内诱导出色心, 可应用在玻璃彩色内雕、色心激光器中^[5,11]. 激光辐照电介质, 多光子电离和雪崩电离形成的等离子体密度超过临界值时, 电介质被光学击穿并形成微通道^[12]. 再次发生的是库仑爆炸, 库仑爆炸是电介质中的电子被电离后, 带正电的原子相互排斥^[10], 电子在线偏光作用下振荡, 库仑力与偏振有关. 由于表面原子受周围原子的束缚少, 因而在表面能够观察到库仑爆炸^[7]. 但是电介质内部原子受到周围原子的束缚, 即使原子被电离, 也停留在原来的位置, 难以发生库仑爆炸. 随后发生的是无辐射跃迁, 导带电子通过无辐射跃迁回到价带, 将能量传递给晶格. 最后发生的是晶格温度升高, 融化并气化产生冲击波, 向外膨胀形成空洞. 投影摄像技术观察到冲击波沿球面扩张, 根据不同时间下的冲

* 国家重点基础研究发展计划 (批准号: 2011CB808103) 和国家自然科学基金 (批准号: 61178024, 11374316) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: zqz@siom.ac.cn

击波前沿位置, 计算出扩张速度、单位体积的质量和压力^[13]. 抽运探测实验表明, 0.5—2.0 ps 内能够观察到空洞^[9], 冲击波压力与空洞结构柱面对称. 虽然冲击波可创造 100 GPa 量级的高压, 使晶体从常温下的面心立方经过相变成为高压下的体心立方^[14], 但冲击波与偏振方向无关. 高压、高温使质量转移^[15], 被辐照区域周围偶极子密度增大或减小, 从而提高了折射率, 可用于直接波导. 综上所述, 对于立方晶体, 强场电离与偏振无关, 与偏振有关的非线性光学机理包括自聚焦、逆韧致辐射和库仑爆炸.

实验观察到不同偏振的飞秒激光在 LiF 晶体内部的加工形貌不同, 因为库仑爆炸仅发生在表面而非内部, 所以本文尝试用自聚焦或逆韧致辐射来解释偏振对加工形貌的影响. 自聚焦系数与非线性折射率成正比, LiF 晶体的非线性折射率能够用 Z 扫描技术、反斯托克斯拉曼或者时间分辨光谱等方法来测量. Z 扫描技术被用来测量 1064, 532, 355 和 266 nm 四个波长下的非线性折射率^[16]. 反斯托克斯拉曼实验不仅可测量 532 nm 处的三阶非线性极化率张量元的相对值^[17], 而且以石英晶体为参考值, 可测量出 694 nm 处非线性极化率的绝对值与偏振的关系^[18]. 用时间分辨光谱方法测量激光偏振平行于 <100> 晶向时 LiF 晶体在 1064 nm 处的非线性折射率^[19]. 据我们所知, LiF 晶体在钛宝石飞秒激光波长 800 nm 附近的非线性折射率以及非线性折射率随偏振的变化关系尚未测量. 本文采用改进的 Z 扫描装置^[20], 测量 LiF 晶体在各个偏振方向下的非线性折射率.

加工形貌随偏振的变化, 要么是各向异性的非线性折射率导致, 要么是偏振依赖的逆韧致辐射系数引起. 导带电子在激光电场作用下受迫振动, 运动方向与偏振方向相同, 导带电子通过逆韧致辐射从激光中吸收能量^[21], 然后从导带底跃迁到较高能级, 接着导带电子与价带电子碰撞后回到导带底, 同时让价带电子跃迁到导带. 在脉宽时间内, 逆韧致辐射和碰撞不断重复, 引起雪崩电离, 导带电子密度呈指数式增长^[22]. 晶体内的无辐射跃迁过程产生的能量都传递给晶格, 使晶格温度超过熔点, 从而被加工. 不同偏振下原子间距不同, 假设导带电子寿命随原子间距成正比, 由于逆韧致辐射系数与导带电子寿命成反比, 因此原子间距越大的偏振方向, 逆韧致辐射和碰撞产生的导带电子数越少. 不同偏振下, 晶体通过逆韧致辐射和无辐射跃迁, 从激光得到的能量不同, 可能导致晶体的加工

形貌不同.

2 实验

用飞秒激光辐照六面抛光的 LiF 晶体 (福晶科技), 装置如图 1 所示. 飞秒激光器 (Spectra Physics Spitfire) 的光束被可翻折镜片分为两束, 一束用于闭孔 Z 扫描实验, 另外一束用于激光微加工. 为了用 Z 扫描技术测量非线性折射率随偏振的变化, 用半波片调节偏振方向, 而且半波片前放置了格兰棱镜, 保证入射的激光为完全线偏光. 四分之一波片与激光器的偏振方向夹角为 45°, 使激光变为圆偏光, 因此偏振分束器透射和反射的光功率接近. 反射光不仅用于 Z 扫描测量的参考光, 而且用载玻片反射到自相关仪 (APE mini) 内, 用于测量脉宽. Z 扫描的透镜焦距为 300 mm, 样品用分辨率为 1 μm 的一维电动位移平台 (大恒光电 GCD 014100) 移动. 光束分析仪 (Spiricon LW230) 测量透镜后不同位置的腰斑直径. 光纤光谱仪 (Ocean Optics USB2000+) 测量飞秒激光的中心波长 $\lambda = 787$ nm. 分别用热探测器 (Coherent PM3) 和硅探测器 (Coherent OP-VIS2) 测量参考光和信号光, 然后通过功率计表头 (Coherent Fieldmax TO) 输入到计算机中. Z 扫描的光路比较常见, 详细的光路可以参考文献^[20].

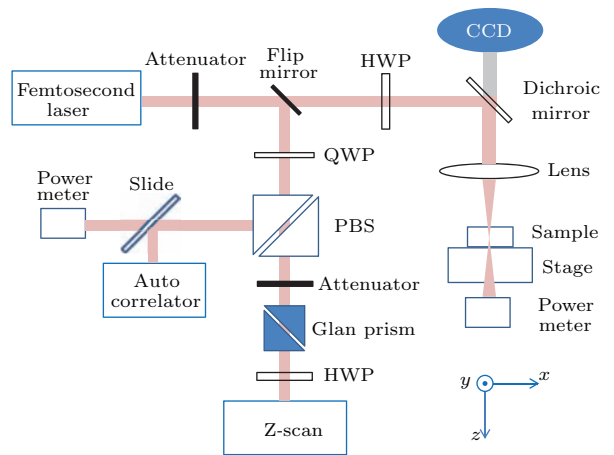


图 1 飞秒激光辐照及测试光路示意图. PBS, 偏振分束器; HWP, 半波片; QWP, 四分之一波片.
Fig. 1. Illustration of the light path for femtosecond laser irradiation and measurement. PBS, polarized beam splitter; HWP, half wave plate; QWP, quarter wave plate.

立方晶体被飞秒激光加工的装置如图 1 右边所示. 功率计放置在物镜下方距离物镜二倍焦距处, 中性密度衰减器 (Thorlabs NDC-100 C) 用来

调节单脉冲能量. 物镜 (Nickon) 倍数为 10, 显微镜的筒长为 200 mm, 因此该物镜的焦距为 20 mm. LiF 晶体的上表面完成对焦后, 被三维移动平台 (Prior Stage II) 朝着物镜移动距离 $d = 600 \mu\text{m}$. 固定单脉冲能量、物镜焦距、聚焦深度和脉宽, 用半波片 (Thorlabs) 改变偏振方向, 得到不同偏振的加工形貌. 用光学显微镜 (Nickon Eclipse ME600) 观察加工形貌, 然后用二向色镜后的 CCD (明美 MC50) 拍照.

3 结果与讨论

3.1 LiF 晶体内加工形貌的偏振依赖现象

不同偏振方向的单个飞秒激光脉冲在 LiF 晶体内部加工形貌不同. 如图 2 (a) 中的主视图所示, $\langle 100 \rangle$ 偏振下飞秒激光加工区域的长度明显长于 $\langle 110 \rangle$ 偏振. 设激光沿晶轴坐标系的 z 轴入射, 偏振沿 $\langle 100 \rangle$ 晶向, 即偏振方向与 x 轴夹角为 0° 时, 起点距离表面 $699 \mu\text{m}$, 丝长度为 $167 \mu\text{m}$, 光丝终点距表面 $866 \mu\text{m}$; 偏振沿 $\langle 110 \rangle$ 晶向, 即偏振方向与 x 轴夹角为 45° 时, 起点距离表面 $756 \mu\text{m}$, 丝长度为 $116 \mu\text{m}$, 光丝终点距表面 $872 \mu\text{m}$. 由于空气和 LiF 晶体界面的折射, 以 n_0 表示 LiF 晶体的折射率, 焦点离表面距离为 $n_0 d = 833 \mu\text{m}$, 因此加工区域的终点在透镜焦点附近. 由图 2 (b) 和图 2 (c) 可知, 微裂纹沿着 $[100]$ 以及 $[010]$ 晶向, 可能由激光加工引起的热应力或者微爆炸作用力引起. 由于 LiF 晶体的滑移系为 $\{110\}\langle 1\bar{1}0 \rangle$ [23], 在外力作用下, 沿 $\langle 100 \rangle$ 晶向的分力最大, 因此 $\langle 100 \rangle$ 晶向的强度最低 [24], 裂纹沿着 $[100]$ 或者 $[010]$ 晶向.

一方面加工的长度与偏振有关, 另一方面加工的宽度也与偏振有关. 如图 2 (b) 中的右视图所示, $\langle 100 \rangle$ 偏振下激光的加工宽度为 $75 \mu\text{m}$, 长于 $\langle 110 \rangle$ 偏振下的 $64 \mu\text{m}$. 利用飞秒激光在 LiF 内直写光栅, 如图 3 所示, 测量光栅的衍射效率, 可以计算出折射率的改变量 [25]. 直写速度 $1000 \mu\text{m/s}$, 光栅周期 d_g 为 $64 \mu\text{m}$, 入射 He-Ne 光波长 λ_0 为 633 nm , 根据 $\theta_0 = \text{asin}(\lambda_0/2/d_g)$, Bragg 衍射角 θ_0 为 4.9 mrad . 根据 Kogelnik 耦合波理论, 当光栅的电介质吸收弱, 而且入射光偏振方向垂直于入射面条件下 [26], 一级衍射效率 $\eta = \sin^2(\pi \Delta n d_t / \lambda_0 \cos \theta_0)$ [27], 式中光栅厚度 d_t 在 $\langle 100 \rangle$ 和 $\langle 110 \rangle$ 偏振下分别为 723 和 $678 \mu\text{m}$. $\langle 100 \rangle$ 和 $\langle 110 \rangle$ 偏振下测量到的衍射效率分别为 2.3% 和 2.9% , 所以 $\langle 100 \rangle$ 和 $\langle 110 \rangle$ 偏振下的

折射率改变量 Δn 分别为 4.2×10^{-5} 和 5.1×10^{-5} . 尽管实验中单脉冲能量、物镜焦距、聚焦深度、脉宽、样品与脉冲数目都固定, 仅有偏振从 $\langle 100 \rangle$ 变化到 $\langle 110 \rangle$, 加工形貌依然有所改变.

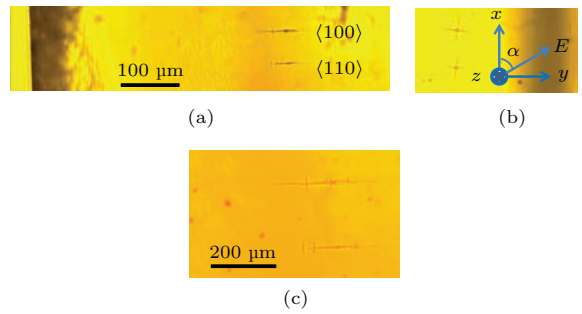


图 2 (网刊彩色) 偏振方向平行于 $\langle 100 \rangle$ 晶向以及 $\langle 110 \rangle$ 晶向的激光在 LiF 晶体内部诱导的加工形貌 (a) 10 倍物镜下的主视图; (b) 侧视图; (c) 20 倍物镜下的主视图
Fig. 2. (color online) Processing morphology induced by femtosecond laser of which the polarization directions are parallel to crystal orientations $\langle 100 \rangle$ and $\langle 110 \rangle$: (a) Front view under the objective lenses with the magnification of 10 times; (b) side view; (c) front view under the objective lenses with the magnification of 20 times.

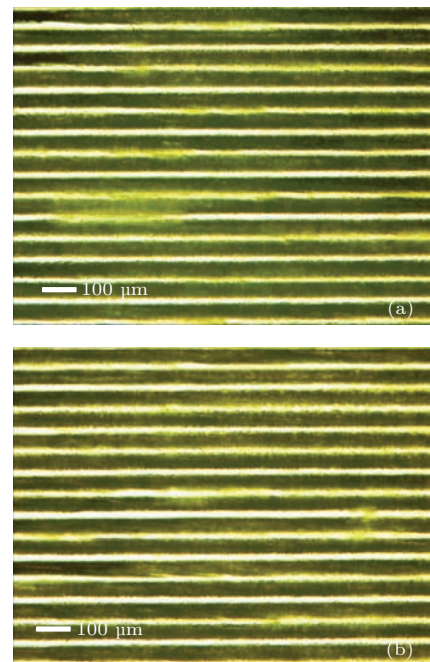


图 3 飞秒激光直写的光栅 飞秒激光的偏振平行于 (a) $\langle 100 \rangle$, (b) $\langle 110 \rangle$
Fig. 3. Grating written directly by femtosecond laser, polarization of femtosecond laser is parallel to (a) $\langle 100 \rangle$, (b) $\langle 110 \rangle$.

立方晶体加工形貌随偏振变化并非由线性光学引起. 线性光学包括菲涅耳反射、双折射、空气与材料界面的反射和折射, 根据菲涅耳公式, 相

同入射角下s光与p光反射率不同, Nolte等^[28]和Collins等^[29]都认为多个脉冲烧蚀材料后形成V形坑,不同偏振激光在V形坑与材料界面处的反射率不同,导致激光加工形貌受到偏振的影响.本实验仅使用单个脉冲,加工区域没有形成V形坑,加工区域不会发生反射.加工形貌依赖偏振的现象,自聚焦随偏振变化可能是原因之一^[8].自聚焦系数与非线性折射率成正比,因此需要掌握不同偏振下的非线性折射率.

3.2 各向异性的非线性折射率

尽管加工形貌和自聚焦都随偏振变化,但是自聚焦对加工形貌的影响尚不清楚,有待进一步的研究.自聚焦系数与非线性折射率成正比,用闭孔Z扫描装置测量不同偏振下的非线性折射率.

偏振方向平行于 $\langle 100 \rangle$ 晶向时,非线性折射率从闭孔Z扫描曲线中得到.用Z扫描技术测量了透过率 T 随位置 z 的变化,如图4中的方形点所示.吸收峰和谷的透过率分别为124%和71%,峰谷间距 ΔT_{p-v} 为53%.样品前功率 P 用硅探测器测量得0.375 mW,自相关仪测得脉宽 τ 为208 fs,重复频率 R 为1 kHz,光束分析仪结合一维电动位移台,测量出Z扫描装置中透镜后的束腰半径 ω_0 和瑞利距离 z_0 分别为31.4 μm 和2.95 mm,峰值光强 $I_0 = 4(\ln 2/\pi)^{0.5} P / (R\tau\pi\omega_0^2) = 1.80 \times 10^{16} \text{ W/m}^2$.样品厚度 L 用游标卡尺测量得1.97 mm,而且线性吸收系数 α_1 测量为230 m^{-1} ,所以样品有效厚度 $L_{\text{eff}} = (1 - \exp(-\alpha_1 L)) / \alpha_1 = 1.93 \text{ mm}$.小孔透过率 S 的测量值为6.37%.如果相位改变 $\Delta\Phi_0 = \Delta T_{p-v} / (0.406(1 - S)^{0.25})$ 的数值小于 π , (1a)式就适用于计算非线性折射率^[30].由于所有偏振方向的 $\Delta\Phi_0$ 值都小于 π , $\langle 100 \rangle$ 偏振下 $\Delta\Phi_0$ 值为1.33,因此(1a)式适用于求解不同偏振下的非线性折射率,其中 $\langle 100 \rangle$ 偏振下 n_2 的实验值为 $4.82 \times 10^{-21} \text{ m}^2/\text{W}$.

$$n_2 = \frac{\lambda \Delta T_{p-v}}{0.812\pi(1 - S)^{0.25} L_{\text{eff}} I_0}, \quad (1a)$$

$$T(u, \Delta\Phi_0) = 1 + \frac{4\Delta\Phi_0(u + u_0)}{[(u + u_0)^2 + 9][(u + u_0)^2 + 1]}. \quad (1b)$$

偏振方向平行于 $\langle 100 \rangle$ 晶向时,闭孔Z扫描的拟合曲线与实验数据一致.拟合曲线如图4中实线所示, $u = z/z_0$ 表示 z 轴的相对坐标.(1b)式的拟

合在MATLAB中用最小二乘法完成, u_0 是由于测试时样品原点未放置在焦点处引起的.

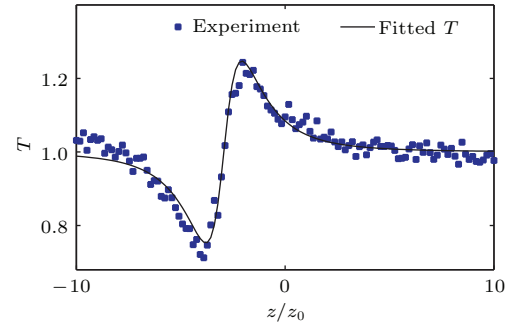


图4 偏振平行于 $\langle 100 \rangle$ 晶向时LiF晶体的闭孔Z扫描曲线

Fig. 4. Close-aperture Z-scan curve of LiF crystal when the polarization direction is parallel to the crystal orientation $\langle 100 \rangle$.

利用闭孔Z扫描技术,测量出各个偏振方向下的非线性折射率.图5中的圆点展示了各个偏振方向下的非线性折射率.偏振方向与 x 轴,即 $\langle 100 \rangle$ 晶向的夹角为 α , α 组成公差为 8° 、从 0° 变化到 184° 的等差数列.偏振方向用半波片调节,然后用闭孔Z扫描技术测量非线性折射率,并且用自相关仪实时测量脉宽.测量的非线性折射率以 90° 为周期变化.为了解释这个周期性现象,有必要推导出非线性折射率与偏振方向的关系.令偏振方向与晶轴坐标系 x, y, z 的夹角分别为 α, β 和 γ .利用点群 $m\bar{3}m$ 的张量元对称性^[31],LiF的非线性极化率表示如(2a)式,

$$\chi_{\text{eff}}^{(3)} = \chi_{xxxx}^{(3)} + 2(\chi_{xxyy}^{(3)} + \chi_{xyxy}^{(3)} + \chi_{xyyx}^{(3)} - \chi_{xxxx}^{(3)})(\cos^2 \alpha \cos^2 \beta + \cos^2 \beta \cos^2 \gamma + \cos^2 \gamma \cos^2 \alpha), \quad (2a)$$

$$n_2(\alpha) = \frac{3}{4\epsilon_0 c n_0^2} \left[\chi_{xxxx}^{(3)} + \frac{1}{2}(\chi_{xxyy}^{(3)} + \chi_{xyxy}^{(3)} + \chi_{xyyx}^{(3)} - \chi_{xxxx}^{(3)}) \sin^2(2\alpha) \right], \quad (2b)$$

式中 ϵ_0 和 c 分别表示真空介电常数和光速, $\chi_{xxxx}^{(3)}$, $\chi_{xxyy}^{(3)}$, $\chi_{xyxy}^{(3)}$ 和 $\chi_{xyyx}^{(3)}$ 均为三阶极化率的张量元.(2b)式表明,非线性折射率 n_2 与偏振角 α 有关,显然 $n_2(\alpha)$ 以 90° 为周期.令传输坐标系 $x'y'z'$ 与晶轴坐标系 xyz 重合,各个物理量在两个坐标系中的表达式相同.激光沿 z 轴入射, $\gamma = 90^\circ$, $\cos \beta = \sin \alpha$.结合非线性折射率与非线性极化率的关系^[30],传输坐标系中非线性折射率简化为(2b)式.拟合曲线与实验测得的非线性折射率一

致, 如图 5 中的曲线所示, 拟合出 (3) 式:

$$n_2(\alpha) \text{ (m}^2/\text{W)} \\ = 4.47 \times 10^{-21} + 1.01 \times 10^{-21} \sin^2(2\alpha). \quad (3)$$

结合 (2) 和 (3) 式, 计算出非线性极化率张量元 $\chi_{xxxx}^{(3)}$ 和 $\chi_{xyxy}^{(3)} + \chi_{xyyx}^{(3)}$ 分别为 3.05×10^{-23} 和 $4.43 \times 10^{-23} \text{ m}^2/\text{V}^2$. 激光的脉冲宽度处于飞秒量级, 热效应、电致伸缩、导带电子的贡献都可以忽略, 非线性极化率只能由被束缚的价带电子引起 [32], 因此符号为正, 与实验结果一致.

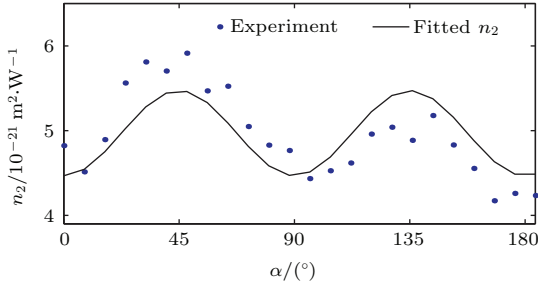


图 5 非线性折射率 n_2 和偏振角 α 的关系

Fig. 5. The relation of nonlinear refractive index n_2 and the polarization angle α .

本文实验测得 787 nm 处非线性折射率 n_2 的平均值为 $4.95 \times 10^{-21} \text{ m}^2/\text{W}$. 文献报道的 532 nm 处 n_2 的值为 $5.73 \times 10^{-21} \text{ m}^2/\text{W}$, 1064 nm 处 n_2 的值为 $1.05 \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$, 因此实验值与文献报道 n_2 的数量级相同 [16]. 偏振方向平行于 x 轴, 即 $\langle 100 \rangle$ 晶向偏振时 $\alpha = 0^\circ$, 拟合的非线性折射率取极小值 $4.47 \times 10^{-21} \text{ m}^2/\text{W}$; 偏振方向在 x 轴和 y 轴平分线上, 即 $\langle 110 \rangle$ 晶向偏振时 $\alpha = 45^\circ$, 非线性折射率取极大值 $5.47 \times 10^{-21} \text{ m}^2/\text{W}$. $\langle 110 \rangle$ 偏振下的 n_2 比 $\langle 100 \rangle$ 偏振高 20%. 偏振从 $\langle 100 \rangle$ 转到 $\langle 110 \rangle$ 晶向, 非线性折射率 n_2 增大, 自聚焦效应增强, 成丝起点离表面更浅. 不过, 图 2 显示偏振从 $\langle 100 \rangle$ 转到 $\langle 110 \rangle$ 晶向, 成丝起点离表面反而更深. 综上所述, 成丝形貌随偏振的变化不是由非线性折射率随偏振变化引起, 而是由逆韧致辐射引起.

3.3 逆韧致辐射、雪崩电离和无辐射跃迁模型

逆韧致辐射过程中, 导带电子不仅受到光电场的作用, 而且受到复合过程的影响. 导带电子沿着光电场的方向即偏振方向做受迫振动, 激光脉冲过去后, 质量为 m_e 的导带电子以平行于偏振方向的速度运动, 经过 s 个原子后回到价带, 将能量 E 传递给声子. 因此导带电子寿命 $\tau_c = sa/\sqrt{2E/m_e}$,

正比于原子间距 a . 各个偏振方向下原子间距不同, $\langle 100 \rangle$ 偏振原子间距为 a_0 , 导带电子寿命取极小值; $\langle 110 \rangle$ 偏振原子间距为 $\sqrt{2}a_0$, 导带电子寿命取极大值. 逆韧致辐射是指导带电子多次从光电场中吸收能量, 在导带中不断向更高能级跃迁. 吸收的能量与逆韧致辐射系数乘以电子密度和光强, 韧致辐射系数与导带电子寿命有关. LiF 晶体的导带电子寿命 τ_c 为 1 ns [33], 将 1 ns 当作导带电子寿命的平均值, 那么 $\langle 100 \rangle$ 和 $\langle 110 \rangle$ 偏振的导带电子寿命分别为 0.83 和 1.17 ns. 由于逆韧致辐射系数 $\sigma = 1/(\epsilon_0 m_e c n_0) * e^2 \tau_c / (1 + \omega^2 \tau_c^2)$ [21], 式中 ω 和 e 分别表示激光圆频率和电子的电荷量, 因此 $\langle 100 \rangle$ 和 $\langle 110 \rangle$ 偏振下的 σ 分别为 1.61×10^{-27} 和 $1.14 \times 10^{-27} \text{ m}^2$.

强场电离使价带电子跃迁到导带, 导带电子通过逆韧致辐射、碰撞过程发生雪崩效应, 导带电子密度呈级数增加. 具体的导带电子密度变化过程用方程 (4a) 来表达 [34], 右边第一项表示强场电离在单位时间内引起导带电子增加的数目, 强场电离率 $w(I)$ 与光强 I 有关, 用 Keldysh 公式来计算 [35], ρ_{VB} 和 $\rho_{VB} - \rho$ 分别表示初始时刻以及 t 时刻价带中的电子数目, ρ_{VB} 为 $3.67 \times 10^{29} \text{ m}^{-3}$; 第二项表示雪崩电离, 平均每个导带电子通过逆韧致辐射能量增加 σI , 通过碰撞使价带中的 $\sigma I/E_g$ 个电子跃迁到导带; 第三项表示导带电子复合, 电子数目减少. 因为 τ_c 远大于脉冲宽度, 所以复合过程在脉冲时间内可以忽略, 求解方程 (4a) 得到 (4b), 先算出参数 ρ_1 和 b , 再计算出导带电子密度 ρ .

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = w(I) \times \frac{\rho_{VB} - \rho}{\rho_{VB}} + \frac{\sigma I}{E_g} \times \rho \times \frac{\rho_{VB} - \rho}{\rho_{VB}} - \frac{\rho}{\tau_c}, \quad (4a)$$

$$\rho = \rho_1 + \left\{ -b - \frac{1}{\rho_1} + b \exp \left[\left(\frac{2\sigma I}{E_g \rho_{VB}} \times \rho_1 - \frac{\sigma I}{E_g} + \frac{w}{\rho_{VB}} \right) \tau \right] \right\}^{-1}, \\ \rho_1 = \frac{\frac{\sigma I}{E_g} - \frac{w}{\rho_{VB}} + \sqrt{\left(\frac{\sigma I}{E_g} - \frac{w}{\rho_{VB}} \right)^2 + \frac{4\sigma I w}{E_g \rho_{VB}}}}{\frac{2\sigma I}{E_g \rho_{VB}}}, \\ b = -\frac{1}{\rho_1} + \frac{\frac{2\sigma I}{E_g \rho_{VB}} \times \rho_1 - \frac{\sigma I}{E_g} + \frac{w}{\rho_{VB}}}{\frac{\sigma I}{E_g \rho_{VB}}}, \quad (4b)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial E}{\partial z} = & \frac{i}{2n_0k_0} \left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} \right) E \\ & - w \times \frac{\rho_{\text{VB}} - \rho}{\rho_{\text{VB}}} \times \frac{E_g}{\varepsilon_0 c n_0} |E|^{-2} E \\ & - \frac{\sigma}{2} \rho E. \end{aligned} \quad (4c)$$

飞秒激光在 LiF 晶体内传输, 一方面晶体的导带电子密度增加, 用电子密度演化方程表达; 另一方面激光能量下降, 用傍轴非线性薛定谔方程 (4c) 式来描述 [21]. (4c) 式右边第一项描述横向衍射, 低光强下这一项起关键作用, 激光经过透镜后腰斑半径随传输方向 z 呈现双曲线分布, 波矢 $\mathbf{k}_0 = 2\pi/\lambda$; 第二项为强场电离, 引起光强减小. 紧束缚近似计算的价带和导带间最小间距为 10.9 eV, $\langle 100 \rangle$ 偏振的平均带隙 10.8 eV 小于 $\langle 110 \rangle$ 偏振的带隙 12.1 eV, 分别对应于 7 光子电离和 8 光子电离 [36]. 尽管 $\langle 100 \rangle$ 偏振的电离率 w 大于 $\langle 110 \rangle$ 偏振, 但是数值模拟表明 $\langle 100 \rangle$ 偏振和 $\langle 110 \rangle$ 偏振从激光吸收的能量接近. 不考虑偏振对带隙 E_g 的影响, 采用 9.4 eV 作为带隙 [37]. 第三项为等离子体, 即导带电子引起, 导带电子通过逆韧致辐射降低光强.

为了求解激光与 LiF 晶体相互作用时电子密度与光强的分布, 必须给出晶体表面的光强分布. 到达 LiF 晶体前的激光腰斑大光强小, 强场电离和雪崩电离弱, 可以忽略. 若飞秒激光在物镜前为平面波, 利用亥姆霍兹方程, 即忽略电离的方程 (4c) 得到电场 E 在 xy 坐标平面上的分布如下:

$$\begin{aligned} E(x, y, z = -n_0d) \\ = E_0 \frac{w_0}{w_d} \exp \left(-\frac{x^2 + y^2}{w_d^2} \right) \\ \times \exp \left[i \left(\mathbf{k}_0 z_d - \arctan \left(\frac{\lambda z_d}{\pi w_0^2} \right) \right) \right] \\ \times \exp \left(i \frac{\mathbf{k}_0 (x^2 + y^2)}{2R(d)} \right), \end{aligned} \quad (5)$$

上式作为方程组 (4) 的边界条件, 式中 w_0 , w_d 分别为焦点处和样品表面的腰斑半径, 束腰半径 $w_0 = \lambda f/\pi w_1 = 1.34 \mu\text{m}$, 其中物镜焦距 f 是 20 mm, 透镜前的光斑半径 w_1 用光束分析仪测得为 2.7 mm. 初始位置 $z_d = -f + d$, E_0 和 $R(d)$ 分别表示焦点处电场强度和曲率半径. 由于空气与 LiF 晶体界面的折射, 实际的焦点位于 LiF 晶体内部 n_0d 处, 设该处为传播方向 z 的原点, 线性折射率 n_0 为 1.39 [38]. 样品前的单脉冲能量测量值为 128 μJ , 而脉冲宽度 τ 用自相关仪测量为 183 fs. 用分

布傅里叶法求解方程 (4b), (4c) 和 (5), 得到导带电子密度和光强在 LiF 晶体内的分布如图 6 所示.

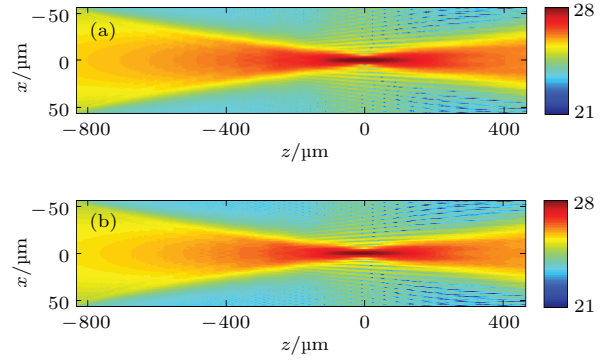


图6 (网刊彩色) 不同偏振方向下导带电子的对数在 xz 平面上的分布 (a) $\langle 100 \rangle$ 偏振; (b) $\langle 110 \rangle$ 偏振

Fig. 6. (color online) Distribution of logarithmic conduction band electrons on xz plane at different polarization: (a) $\langle 100 \rangle$ polarization; (b) $\langle 110 \rangle$ polarization.

偏振方向转动时电子密度在 xz 平面上的分布不同. 图 6 右边的颜色条表示电子密度以 10 为底的对数, 图 6(a) 和图 6(b) 的焦点附近区域的电子密度均高达 $1 \times 10^{28} \text{ m}^{-3}$, 超过损伤阈值 10^{27} m^{-3} [7,29], 这与图 2 中加工区域位于焦点附近一致. 从图 6 可以看出, 偏振平行于 $\langle 100 \rangle$ 时的电子密度大于 $\langle 100 \rangle$ 偏振的电子密度, 定性地解释了偏振平行于 $\langle 100 \rangle$ 时的烧蚀长度大于 $\langle 100 \rangle$ 偏振.

进一步定量地解释偏振平行于 $\langle 100 \rangle$ 的烧蚀长度大于 $\langle 100 \rangle$ 偏振, 依赖于沿传播方向的电子密度或者晶格温度分布. 由于飞秒激光脉宽短, 电子来得及响应但是晶格来不及响应, 因此晶体被飞秒激光辐照后, 电子温度迅速升高, 晶格仍是室温 [39]. 电子和晶格间存在很高的温度梯度, 推动热量从电子传递给晶格. 电子和晶格热传递的过程至少 100 ps, 原因是脉宽只有在 100 ps 以上时, 热传递模型推导出的阈值通量与 $\sqrt{\tau}$ 成正比的规律才适用 [40]. 多光子电离和雪崩电离产生的电子, 位于较高能量的导带, 电子不稳定, 一定时间后就回到低能量的价带, 这个过程称为复合. 除了辐射跃迁, 还有电子-声子碰撞复合、缺陷态俘获复合、深能级俘获复合、俄歇复合等无辐射跃迁过程 [41]. 电子-声子弛豫复合、缺陷态俘获复合和深能级辅助复合都把电子损失的能量转移给晶格 [42], 缺陷态俘获复合使复合时间长达几十纳秒 [22]. 晶体内部俄歇复合产生的电子不能运动到晶体外, 于是俄歇电子将把复合时电子损失的能量传递给晶格. 总的来说, 无辐射跃迁过程中电子损失的能量都传递给晶格. 加工区域的晶格通过声子耦合传递给附近区

域, 经过几微秒降到室温, 因此重复频率在 200 kHz 以上的激光能够观察到热累积效应^[43].

飞秒激光加工电介质的过程中, 电子作为能量传递的媒介, 把能量从激光传递给电介质. 由能量守恒, 透明电介质的最终温度 T 如下:

$$\begin{aligned}
 T &= T_0 + \frac{\rho E_g}{d_{sl} C_{ps}} \\
 &(\rho E_g \leq (T_m - T_0) d_{sl} C_{ps}), \\
 T &= T_m \\
 &((T_m - T_0) d_{sl} C_{ps} \\
 &< \rho E_g \leq (T_m - T_0) d_{sl} C_{ps} + \Delta H_m d_{sl}), \\
 T &= T_m + \frac{\rho E_g - (T_m - T_0) d_{sl} C_{ps} - \Delta H_m d_{sl}}{d_{sl} C_{pl}} \\
 &((T_m - T_0) d_{sl} C_{ps} + \Delta H_m d_{sl} \\
 &< \rho E_g \leq (T_m - T_0) d_{sl} C_{ps} + \Delta H_m d_{sl} \\
 &+ (T_v - T_m) d_{sl} C_{pl}), \\
 T &= T_v \\
 &((T_m - T_0) d_{sl} C_{ps} + \Delta H_m d_{sl} \\
 &+ (T_v - T_m) d_{sl} C_{pl} < \rho E_g \\
 &\leq (T_m - T_0) d_{sl} C_{ps} + \Delta H_m d_{sl} \\
 &+ (T_v - T_m) d_{sl} C_{pl} + \Delta H_v), \\
 T &= T_v + [\rho E_g - (T_m - T_0) d_{sl} C_{ps} - \Delta H_m d_{sl} \\
 &- (T_v - T_m) d_{sl} C_{pl} - \Delta H_v d_{sl}] \times (d_v C_v)^{-1} \\
 &(\rho E_g > (T_m - T_0) d_{sl} C_{ps} + \Delta H_m d_{sl} \\
 &+ (T_v - T_m) d_{sl} C_{pl} + \Delta H_v d_{sl}), \quad (6)
 \end{aligned}$$

式中室温 T_0 为 20 °C, LiF 晶体的密度 d_{sl} 为 2.635 g/cm³. 等压比热容 $C_{ps}(T/K) = 2.2694 + 1.726 \times 10^{-4}T - 3.040 \times 10^{-7}T^2 + 6.738 \times 10^{-10}T^3 - 196.23/(T + 273.16)$, 以室温为起点、熔点为终点积分, 求得 C_{ps} 的平均值为 2.057 J/(g·°C). LiF 晶体的熔点 T_m 为 848.1 °C, 融化焓 ΔH_m 为 1.044×10^3 J/g^[44]; 沸点 T_v 为 1676 °C, 气化焓 ΔH_v 为 8.231×10^3 J/g, 等压比热容 C_{pl} 为 2.501 J/(g·°C). 利用 (6) 式求解出 LiF 晶体在飞秒激光辐照时的温度分布.

LiF 晶体沿激光传播方向的温度分布与激光偏振有关. 晶格在电子无辐射跃迁过程中获得能量, 随之晶格温度升高. 无论是 $\langle 100 \rangle$ 偏振还是 $\langle 110 \rangle$ 偏振, 图 7 中的温度分布在焦点附近都出现一个峰, 说明焦点附近温度最高. 位置 z 从表面向焦点移动, 当温度升到 T_m 时, 部分晶格融化, 恒压状态下 LiF 晶体固态液态共存, 因此图 7 中出现温

度恒等于 T_m 的线段; 位置 z 继续向焦点移动, 当晶格温度超过 T_m , 晶格完全融化, 冷却后形成多晶体, 晶体被加工; 位置移动到焦点附近, 当晶格温度达到沸点 T_v , 部分液化的晶格气化, 恒压状态下 LiF 晶体液态气态共存, 因此图 7 中出现温度恒等于 T_v 的线段. 被激光辐照区域的温度升高, 完全融化甚至气化后凝固, LiF 单晶体因为加工变成含有气孔的多晶体. 图 2 中被激光辐照区域之所以呈黑色, 是因为气化膨胀形成的孔洞界面的反射, 以及多晶体晶面的反射, 使含有气孔的多晶体不透明. 当且仅当温度超过 T_m 的区域完全融化, 该区域被激光加工. $\langle 100 \rangle$ 偏振时完全融化区域的起点距离表面 734 μm , 终点距离表面 927 μm , 被加工区域的长度为 193 μm ; $\langle 110 \rangle$ 偏振时完全融化区域的起点为 752 μm , 终点为 909 μm , 被加工区域的长度为 157 μm . 模拟结果表明: 偏振方向沿 $\langle 110 \rangle$ 时加工的起点到表面的距离是 $\langle 100 \rangle$ 偏振的 1.03 倍, 而实验观察到偏振方向沿 $\langle 110 \rangle$ 晶向时加工的起点到表面的距离是 $\langle 100 \rangle$ 偏振的 1.08 倍, 误差 4.63%; 偏振方向沿 $\langle 110 \rangle$ 晶向的加工终点到表面的距离是 $\langle 100 \rangle$ 偏振的 0.981 倍, 而实验观察到偏振方向沿 $\langle 110 \rangle$ 晶向的加工终点到表面的距离是 $\langle 100 \rangle$ 偏振的 1.01 倍, 误差 2.87%. 模拟误差在 5% 以内, 清楚地解释了 $\langle 100 \rangle$ 偏振的加工长度大于 $\langle 110 \rangle$ 偏振. 总之, 逆韧致吸收、雪崩电离和无辐射跃迁模型得到的温度分布, 与实验的加工形貌基本一致.

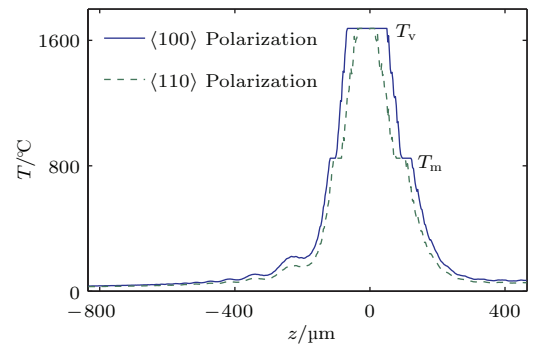


图 7 不同偏振下晶体温度沿 z 轴的分布
Fig. 7. Distribution of crystal temperature along z axis at different polarization.

4 结 论

LiF 晶体被飞秒激光加工的实验中, 加工形貌随着偏振方向的改变而改变. 一方面偏振方向平行于 $\langle 110 \rangle$ 晶向时, 加工的起点到表面的距离是 $\langle 100 \rangle$ 偏振的 1.08 倍, 另一方面偏振方向平行于

(110) 晶向时, 加工终点到表面的距离是 (100) 偏振的 1.01 倍. 不同偏振的飞秒激光在立方晶体内部诱导的微结构不同, 可能的机理是自聚焦或者逆韧致辐射. 自聚焦系数与非线性折射率 n_2 成正比, 为了掌握自聚焦随偏振的变化关系, 本文报道了任意偏振下 LiF 晶体在钛宝石激光波长处的 n_2 . Z 扫描技术测量得 $n_2(\alpha)(\text{m}^2/\text{W}) = 4.47 \times 10^{-21} + 1.01 \times 10^{-21} \times \sin^2(2\alpha)$, 式中 α 为位于 {001} 面上的偏振方向与 (100) 晶向的夹角. 偏振方向从 (110) 转动到 (100), 非线性折射率减小, 因而自聚焦效应减弱. 如果自聚焦引起加工形貌随偏振变化, 那么 (100) 偏振下加工起点距离表面比 (110) 偏振距离表面的距离更长, 但是实验中 (100) 偏振下加工起点距离表面比 (110) 偏振下更短. 因此加工形貌随偏振变化并非由依赖偏振的自聚焦引起. 为了调查加工形貌随偏振变化的原因, 本文建立了逆韧致辐射、雪崩电离和无辐射跃迁的模型, 我们认为无辐射跃迁对于激光加工材料的过程具有重要作用. 因为 (110) 偏振的逆韧致辐射系数小于 (100) 偏振的系数, 所以 (110) 偏振下逆韧致辐射和雪崩电离产生的电子密度小于 (100) 偏振下的密度. 首先逆韧致辐射、雪崩电离使激光能量传递给电子, 该过程用电子密度演化方程以及傍轴非线性薛定谔方程描述, 求解出导带电子密度; 然后无辐射跃迁过程中电子将能量传递给晶格, 该过程用能量守恒描述, 计算出晶格温度沿传播方向的分布; 最后晶格温度升高到熔点以上的区域被加工. 模拟结果表明, 一方面偏振方向沿 (110) 时加工的起点到表面的距离是 (100) 偏振的 1.03 倍, 另一方面偏振方向沿 (110) 晶向的加工终点到表面的距离是 (100) 偏振的 0.981 倍, 与实验结果误差在 5% 以内. 模拟和实验基本一致, 证明了依赖偏振的逆韧致辐射导致加工形貌随飞秒激光偏振变化, 有助于推动电介质在飞秒激光诱导下形成微结构的应用.

感谢中国科学院上海光学精密机械研究所的博士生郭晓杨与作者讨论非线性薛定谔方程的求解.

参考文献

- [1] Beresna M, Gecevičius M, Kazansky P G 2011 *Opt. Mater. Express* **1** 10117
- [2] Dong M M, Wang C W, Wu Z X, Zhang Y, Pan H H, Zhao Q Z 2013 *Opt. Express* **21** 15522
- [3] Shimotsuma Y, Hirao K, Kazansky P G, Qiu J 2005 *Jpn. J. Appl. Phys.* **44** 4735
- [4] Song J, Wang X, Hu X, Dai Y, Qiu J, Cheng Y, Xu Z 2008 *Appl. Phys. Lett.* **92** 092904
- [5] Qiu J, Jiang X, Zhu C, Shirai M, Si J, Jiang N, Hirao K 2004 *Angew. Chem. Int. Ed. Engl.* **43** 2230
- [6] Shimotsuma Y, Kazansky P G, Qiu J, Hirao K 2003 *Phys. Rev. Lett.* **91** 247405
- [7] Balling P, Schou J 2013 *Rep. Prog. Phys.* **76** 036502
- [8] Dharmadhikari A, Alti K, Dharmadhikari J, Mathur D 2007 *Phys. Rev. A* **76** 033811
- [9] Kaiser A, Rethfeld B, Vicanek M, Simon G 2000 *Phys. Rev. B* **61** 11437
- [10] Stoian R, Ashkenasi D, Rosenfeld A, Campbell E E B 2000 *Phys. Rev. B: Condens. Matter Mater. Phys.* **62** 13167
- [11] Ter-Mikirtychev V V 1995 *Opt. Commun.* **119** 109
- [12] Li S X, Bai Z C, Huang Z, Zhang X, Qin S J, Mao W X 2012 *Acta Phys. Sin.* **61** 115201 (in Chinese) [李世熊, 白忠臣, 黄政, 张欣, 秦水介, 毛文雪 2012 物理学报 **61** 115201]
- [13] Liu T H, Hao Z Q, Gao X, Liu Z H, Lin J Q 2014 *Chin. Phys. B* **23** 085203
- [14] Vailionis A, Gamaly E G, Mizeikis V, Yang W, Rode A V, Juodkazis S 2011 *Nat. Commun.* **2** 445
- [15] Mermillod-Blondin A, Burakov I, Meshcheryakov Y, Bulgakova N, Audouard E, Rosenfeld A, Husakou A, Hertel I, Stoian R 2008 *Phys. Rev. B* **77** 104205
- [16] de Salvo R, Said A A, Hagan D J, van Stryland E W, Sheik-Bahae M 1996 *IEEE J. Quantum Electron.* **32** 1324
- [17] Bombach R, Hemmerling B 1992 *Appl. Opt.* **31** 367
- [18] Maker P, Terhune R 1964 *Phys. Rev.* **137** 801
- [19] Milam D, Weber M J, Glass A J 1977 *Appl. Phys. Lett.* **31** 822
- [20] Liu F, Xing Q R, Hu M L, Li Y F, Wang C L, Chai L, Wang Q Y 2011 *Acta Phys. Sin.* **60** 017806 (in Chinese) [刘丰, 邢岐荣, 胡明列, 栗岩峰, 王昌雷, 柴路, 王清月 2011 物理学报 **60** 017806]
- [21] Couairon A, Mysyrowicz A 2007 *Phys. Rep.* **441** 47
- [22] Wu S, Wu D, Xu J, Hanada Y, Suganuma R, Wang H, Makimura T, Sugioka K, Midorikawa K 2012 *Opt. Express* **20** 28893
- [23] Sirdeshmukh D B, Rao K K 1988 *J. Mater. Sci. Lett.* **7** 567
- [24] Brookes C A, O'Neill J B, Redfern B A W 1971 *Proc. R. Soc. A: Math. Phys. Eng. Sci.* **322** 73
- [25] Zhao Q Z, Qiu J R, Yang L Y, Jiang X W, Zhao C J, Zhu C S 2003 *Chin. Phys. Lett.* **20** 1858
- [26] Yin Q, Wu J, Qian G, Ma X H 2008 *Opt. Optoelectron. Technol.* **6** 25
- [27] Kogelnik H 1969 *Bell Syst. Tech. J.* **48** 2909
- [28] Nolte S, Momma C, Kamlage G, Ostendorf A, Fallnich C, von Alvensleben F, Welling H 1999 *Appl. Phys. A* **68** 563
- [29] Collins A, Rostohar D, Prieto C, Chan Y K, Oconnor G M 2014 *Opt. Lasers Eng.* **60** 18
- [30] de Salvo R, Sheik-Bahae M, Said A A, Hagan D J, van Stryland E W 1993 *Opt. Lett.* **18** 194
- [31] Shang C, Hsu H 1987 *IEEE J. Quantum Electron.* **23** 177

- [32] van Stryland E W, Hagan D J 2009 *Self-focusing: Past, Present* (Berlin: Springer) p573
- [33] Tolk N H, Albridge R G, Barnes A V, Haglund R F, Hudson L T, Mendenhall M H, Russell D P, Sarnthein J, Savundararaj P M, Wang P W 1987 *Desorption Induced by Electronic Transitions DIET III, Springer Series in Surface Sciences* (Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg) p284
- [34] Burakov I M, Bulgakova N M, Stoian R, Mermillod-Blondin A, Audouard E, Rosenfeld A, Husakou A, Hertel I V 2007 *J. Appl. Phys.* **101** 043506
- [35] Keldysh L 1965 *Sov. Phys. JETP* **20** 1307
- [36] Chaney R, Lafon E, Lin C 1971 *Phys. Rev. B* **4** 2734
- [37] Hamrin K, Johansson G, Gelius U, Nordling C, Siegbahn K 1970 *Phys. Scr.* **1** 277
- [38] Li H H 1976 *J. Phys. Chem. Ref. Data* **5** 329
- [39] Chichkov B, Momma C, Nolte S, Alvensleben F, Tunnermann A 1996 *Appl. Phys. A* **63** 109
- [40] Stuart B, Feit M, Herman S, Rubenchik A, Shore B, Perry M 1996 *Phys. Rev. B: Condens. Matter* **53** 1749
- [41] Petite G, Daguzan P, Guizard S, Martin P 1996 *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B: Beam Interact. Mater. Atoms* **107** 97
- [42] Luque A, Martí A, Antolín E, Tablero C 2006 *Phys. B: Condens. Matter* **382** 320
- [43] Eaton S M, Zhang H B, Herman P R, Yoshino F 2005 *Opt. Express* **13** 4708
- [44] Douglas T B, Dever J L 1954 *J. Am. Chem. Soc.* **76** 4826

Influence of polarization on irradiating LiF crystal by femtosecond laser*

Wang Cheng-Wei¹⁾²⁾³⁾ Zhao Quan-Zhong^{2)†} Zhang Yang²⁾ Wang Guan-De²⁾ Qian Jing²⁾
 Bao Zong-Jie²⁾ Li Yang-Bo²⁾ Bai Feng²⁾ Fan Wen-Zhong²⁾

1) (School of Physics Science and Engineering, Tongji University, Shanghai 200092, China)

2) (State Key Laboratory of High Field Laser Physics, Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China)

3) (University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

(Received 16 March 2015; revised manuscript received 27 May 2015)

Abstract

The processing morphology of cubic crystal LiF irradiated by femtosecond laser varies with the polarization direction. When the polarization direction is parallel to the crystal orientation $\langle 110 \rangle$, the distance between the starting point and the surface is 1.08 times that along $\langle 100 \rangle$ polarization, and the distance between the end point and the surface is 1.01 times. While the cubic crystal is irradiated by a femtosecond laser, self-focusing and inverse bremsstrahlung are two probable mechanisms dependent on polarization. In order to investigate the relation between the self-focusing and polarization, in this paper we report the nonlinear refractive index n_2 of LiF crystal which is linear with respect to self-focusing coefficient. The Z-scan technique is used to measure the nonlinear refractive indexes at different polarizations. As the polarization direction is rotated from $\langle 110 \rangle$ to $\langle 100 \rangle$, the nonlinear refractive index decreases, and the self-focusing effect becomes weaker. If self-focusing leads to the dependence of morphology on polarization, the distance between the starting point and the surface for $\langle 100 \rangle$ polarization should be longer than that for $\langle 110 \rangle$ polarization. However, the experiment exhibits an opposite result that the distance between starting point and the surface for $\langle 100 \rangle$ polarization is shorter than that for $\langle 110 \rangle$ polarization. Therefore, the processing morphology which changes with polarization is not a consequence of the self-focusing. So in order to understand why the processing morphology varies with polarization, in

* Project supported by the National Basic Research Program of China (Grant No. 2011CB808103) and the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 61178024, 11374316).

† Corresponding author. E-mail: zqz@siom.ac.cn

this paper we present a model which combines inverse bremsstrahlung, avalanche ionization and radiationless transition. We believe that the recombination due to radiationless transition has a great effect on laser machining. The inverse bremsstrahlung coefficient of $\langle 110 \rangle$ polarization is less than that of $\langle 100 \rangle$ polarization, as a result, the density of free electrons which are produced by inverse bremsstrahlung and avalanche ionization at $\langle 110 \rangle$ polarization is less than that at $\langle 100 \rangle$ polarization. At first, the laser energy is transferred to the free electrons by inverse bremsstrahlung and avalanche ionization, which is described by the paraxial nonlinear Schrodinger equation and evolution equation of electron density. The density of free electrons is obtained by solving the equations. Then free electrons transfer the energy to the crystal lattice in the process of recombination through radiationless transition, which is depicted by energy conservation and gives the distribution of lattice temperature along the propagation direction. Finally, the area in LiF crystal of which the lattice temperature climbs up to above the melting point is processed. According to the simulation, the distance between the starting point and the surface at $\langle 110 \rangle$ polarization is 1.03 times that at $\langle 100 \rangle$ polarization, and the distance between the end point and the surface at $\langle 110 \rangle$ polarization is 0.981 times that at $\langle 100 \rangle$ polarization. These are consistent with the experimental results. Simulation and experimental results demonstrate that the inverse bremsstrahlung, which is dependent on polarization, is the main reason for morphology changing with the polarization of femtosecond laser. These research results may contribute to inducing microstructure in transparent dielectrics through femtosecond laser.

Keywords: inverse bremsstrahlung, radiationless transition, avalanche ionization, nonlinear refractive index

PACS: 52.38.Hb, 42.65.-k, 52.50.Jm, 52.38.Mf

DOI: [10.7498/aps.64.205204](https://doi.org/10.7498/aps.64.205204)