

# 飞秒激光在石英玻璃中诱导微爆炸的理论研究<sup>\*</sup>

徐世珍<sup>†</sup> 贾天卿 孙海轶 李晓溪 程兆谷 冯东海 李成斌 徐至展

(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)

(2004 年 12 月 19 日收到, 2005 年 1 月 31 日收到修改稿)

利用有限元方法建立了二维模型, 研究了飞秒激光作用下石英玻璃中导带电子的产生、激光能量的沉积、导带电子和能量扩散等微观过程. 计算了导带电子扩散引起的局部净电荷及其形成的静电场分布, 初步揭示了微爆炸的演化过程.

关键词: 雪崩击穿模型, 微爆炸, 飞秒激光, 有限元方法

PACC: 4255R, 4270C, 7750

## 1. 引言

由于飞秒激光的脉冲宽度小于电子与晶格的相互作用时间, 导致材料的“冷烧蚀”和高度空间选择性, 大大促进了飞秒激光微细加工技术的发展. 近年来, 人们利用飞秒激光在透明材料中制备出了多种微结构, 如光波导、光存储和光子晶体等<sup>[1-5]</sup>. Mazur<sup>[6]</sup>课题组初步研究了微加工的物理机理, 并提出了微爆炸模型. 该模型认为, 由于激光焦点处强度很高, 材料将被电离. 电子大量吸收激光能量形成高能、高压区, 材料从激光焦斑中心区飞出, 在周围形成一个高密度区的微结构. 然而, 他们仅对微爆炸作了初步讨论, 并没有进行深入地理论研究.

本文利用有限元方法, 计算了石英玻璃中导带电子的产生、激光能量的沉积, 以及导带电子扩散形成的静电场的演化, 初步揭示了微爆炸的形成机理.

## 2. 理论计算

在柱坐标中, 高斯分布的激光强度为

$$I(r, z, t) = I_0(r, z, t) \times \frac{I_0}{\tau} \times \exp\left(-2 \times \frac{r^2}{\omega_0^2}\right) \times \exp\left(-2.7726 \times \frac{t^2}{\tau^2}\right), \quad (1)$$

式中  $I_0$  是入射激光强度,  $\tau$  是激光脉宽,  $\omega_0$  是激光

束腰半径,  $C$  是相对激光强度. 本文利用传输矩阵方法, 计算了激光在材料中的传播特性.

导带电子是通过光致电离和碰撞电离产生的<sup>[7]</sup>. 光致电离速率和碰撞电离速率分别通过 Keldysh 理论<sup>[8,9]</sup>和 Double-flux 模型<sup>[10]</sup>计算. 导带电子  $n_c(r, z, t)$  随时间的演化方程为

$$\frac{\partial n_c}{\partial t} = (R_{PI} + II \cdot n_c) \left(1 - \frac{n_c}{N_0}\right), \quad (2)$$

式中  $R_{PI}$  是光致电离速率,  $II$  是碰撞电离速率.  $R_{PI}$  和  $II$  是材料中激光强度分布的函数, 具体计算在文献<sup>[11]</sup>中有详细描述. 材料中初始价带电子密度  $N_0 = 2.2 \times 10^{22} \text{ cm}^{-3} (1 - n_c/N_0)$  是价带电子耗尽因子.

激光能量通过导带电子光吸收沉积在材料中, 其能量密度为

$$E_{\text{dep}}(r, z, t) = \int n_c(r, z, t) \bar{W}(I(r, z, t)) dt \quad (3)$$

式中  $\bar{W}$  是导带电子吸收激光能量的平均吸收速率<sup>[12]</sup>.

材料中沉积的能量将通过导带电子扩散和非弹性散射进行扩散, 其扩散方程为

$$\nabla \cdot \mathbf{q}_X(r, z, t) + S_X(r, z, t) = \frac{\partial X(r, z, t)}{\partial t} \quad (4)$$

式中  $S_X(r, z, t)$  是源项,  $\mathbf{q}_X$  是能流矢量项. 字符  $X = n_c, E_{\text{dep}}$  分别代表导带电子密度和沉积的能量.

能流矢量方程为

<sup>\*</sup> 国家自然科学基金(批准号: G60108002)资助的课题.

<sup>†</sup> E-mail: cecyxs@sohu.com

$$\begin{aligned} q_X &= \frac{1}{3} L \nabla \cdot (vX) \\ &= \frac{1}{3} L v \nabla \cdot X + \frac{1}{3} L X \nabla \cdot (v), \quad (5) \end{aligned}$$

式中  $L = 3\text{nm}$  是导带电子自由程<sup>[13]</sup>.  $v$  是导带电子速度, 可以通过  $\frac{1}{2} m_e v^2 = \bar{E}_K$  和  $\bar{E}_K = E_{\text{dep}}/n_e$  计算, 其中  $\bar{E}$  是电子动能<sup>[12]</sup>.

由于电子的扩散打破了局域电荷中性, 在材料中形成了净电荷分布. 对应的静电场  $E$  由泊松方程求解,

$$\frac{\partial E(r, z, t)}{\partial r} + \frac{\partial E(r, z, t)}{\partial z} = \frac{e}{\epsilon_r \epsilon_0} (n_i - n_e) \quad (6)$$

式中  $\epsilon_r$  是材料的相对介电常数,  $\epsilon_0$  是真空介电常数 ( $n_i - n_e$ ) 是净电荷体密度. 我们假设边界条件为: 在距激光焦斑较远的边界上 ( $z$  约  $1.20\mu\text{m}$ ), 其电场强度为 0.

由于导带电子的产生、激光能量的沉积、导带电子的扩散和能量的扩散是同时进行的, 所以我们将整个脉冲时间分成若干小的时间段. 在每个时间段内, 首先计算激光强度分布、光致电离速率、碰撞电离速率和 CBE 的产生; 其次计算能量吸收平均速率和能量的沉积, 然后计算导带电子的扩散和能量的扩散. 这个过程在每个时间段内循环进行, 计算流程图如图 1 所示.

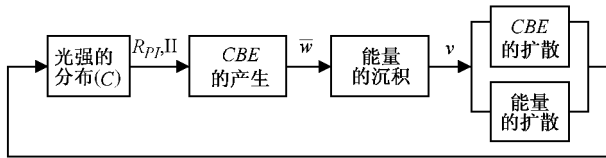


图 1 计算流程图

图 2 给出了有限元网格划分图. 在柱坐标中, 考虑到激光强度轴向对称分布, 我们仅计算与激光入射方向平行的中心截面的一半. 激光入射方向为  $z$  轴方向. 半径  $r$  上先按坐标 0, 25, 50, 100, 200, 300, 400, 500nm 分成 7 小段, 第一段再等分为 30 小段, 其他每段分别等分为 15 小段;  $z$  轴上先按坐标 0, 1, 2.5, 4.5, 7, 10, 13.5, 17.5, 22.5, 28.5, 36.5, 46.5, 58.5, 74.5, 94.5, 118.5, 150.5, 190.5, 238.5, 302.5, 382.5, 478.5, 606.5, 820.5, 1241.5nm 分为 24 小段, 然后前 21 段再分别等分为 3 小段, 最后 3 段分别依次分为 4, 6, 9 小段.

在本文的数值计算中, 激光波长为  $800\text{nm}$ , 激光

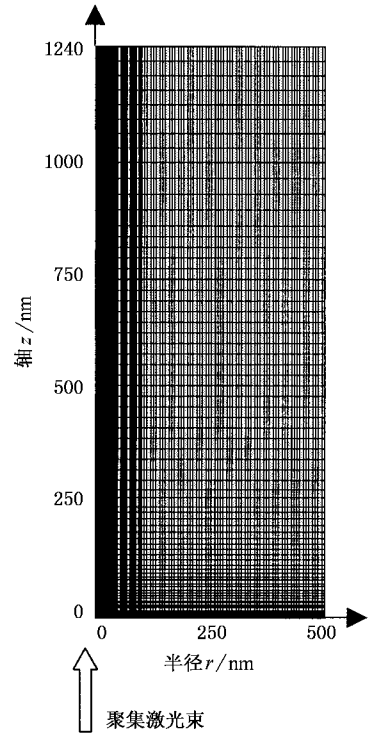


图 2 有限元网格划分图

强度  $I_0 = 2.5\text{J}/\text{cm}^2$ <sup>[14]</sup> (稍高于石英玻璃的烧蚀阈值) 脉宽  $\tau = 100\text{fs}$ , 束腰半径  $\omega_0 = 0.4\mu\text{m}$ . 计算的时间间隔为  $5\text{fs}$ , 时间范围为  $-100$ — $100\text{fs}$ .

### 3. 结果分析

导带电子和能量随时间的演化分别如图 3 和图 4 所示. 从图 3 可见, 在  $10\text{fs}$  附近, 材料表层导带电子密度迅速增加, 在激光照射中心处有小部分区域的导带电子密度超过了  $1.5 \times 10^{21}\text{cm}^{-3}$  (假定为阈值导带电子密度); 从  $15\text{fs}$ ,  $20\text{fs}$ ,  $35\text{fs}$  的导带电子密度分布图可见, 导带电子密度超过  $1.5 \times 10^{21}\text{cm}^{-3}$  的区域迅速扩大到  $70\text{fs}$ , 材料表面处 ( $r = 0, z = 0$ ) 的导带电子密度达到最大值  $2.0 \times 10^{22}\text{cm}^{-3}$ .

随着导带电子密度的增加, 激光能量能有效地沉积在导带电子气中. 从图 4 可见, 材料中沉积的激光能量迅速增加, 如  $15\text{fs}$ ,  $20\text{fs}$  能量分布所示; 至  $t = 35\text{fs}$  时, 材料表层沉积能量已达到烧蚀阈值能量 ( $54\text{kJ}/\text{cm}^2$ <sup>[12]</sup>); 到  $70\text{fs}$  时, 材料表层能量达到最大值约  $150\text{kJ}/\text{cm}^2$ , 而后能量继续沉积并向周围扩散.

在飞秒时间尺度内, 电子的能量不能及时传给晶格, 所以激光的能量沉积在电子气中. 电子的动能远大于格点离子动能, 同时离子的质量远大于电

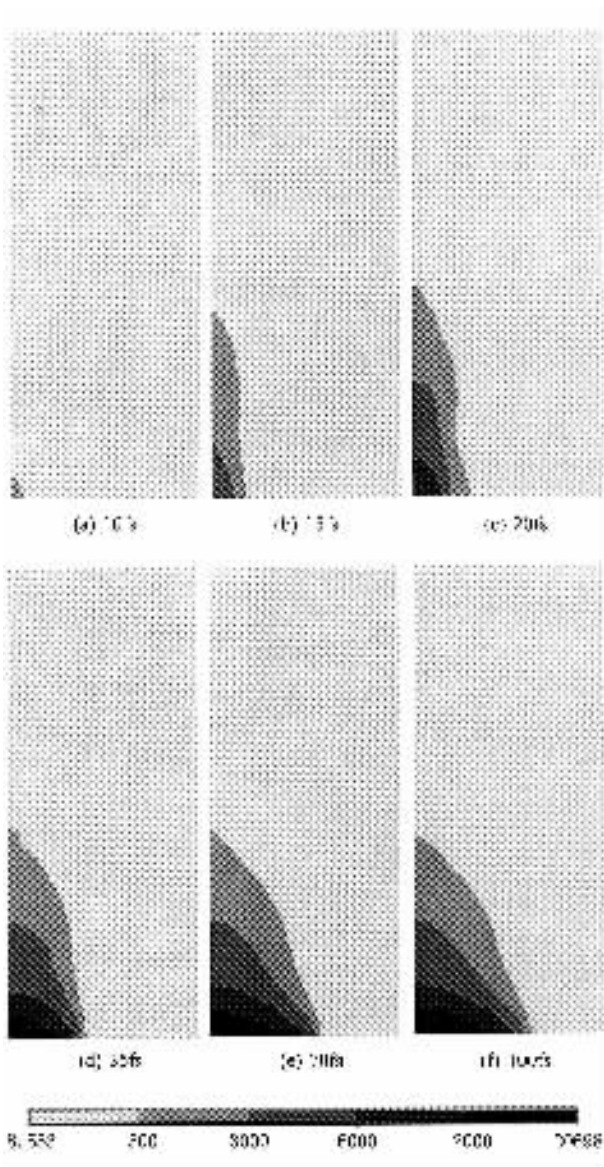


图3 不同时间点的导带电子密度分布彩色云图(单位是  $10^{18} \text{ cm}^{-3}$ )

子(高三个数量级),所以,电子的扩散速度远高于离子,后者近似可看作不动.这样,导带电子的扩散导致正负电荷分离,所形成的净电荷密度可累积达到  $10^{20} \sim 10^{21} \text{ cm}^{-3}$  数量级.净电荷的出现导致焦点附近形成很强的静电场.图5给出了总电场强度随时间的演化图.在  $10 \text{ fs}$  附近,材料中电场强度迅速增加;到  $20 \text{ fs}$  时有小部分区域达到了阈值电场强度( $57 \times 10^9 \text{ V/m}$ ),随后超过阈值电场强度的区域继续扩大(如  $25 \text{ fs}$  和  $30 \text{ fs}$  的电场强度分布所示);在  $35 \text{ fs}$  附近,材料内电场强度的最大值高达  $160 \times 10^9 \text{ V/m}$ .在较大的电场强度作用下,导带电子的漂移不可忽略,其电场强度的最大值将减小<sup>[15]</sup>.

当材料中产生的静电力大于晶格间作用力时,

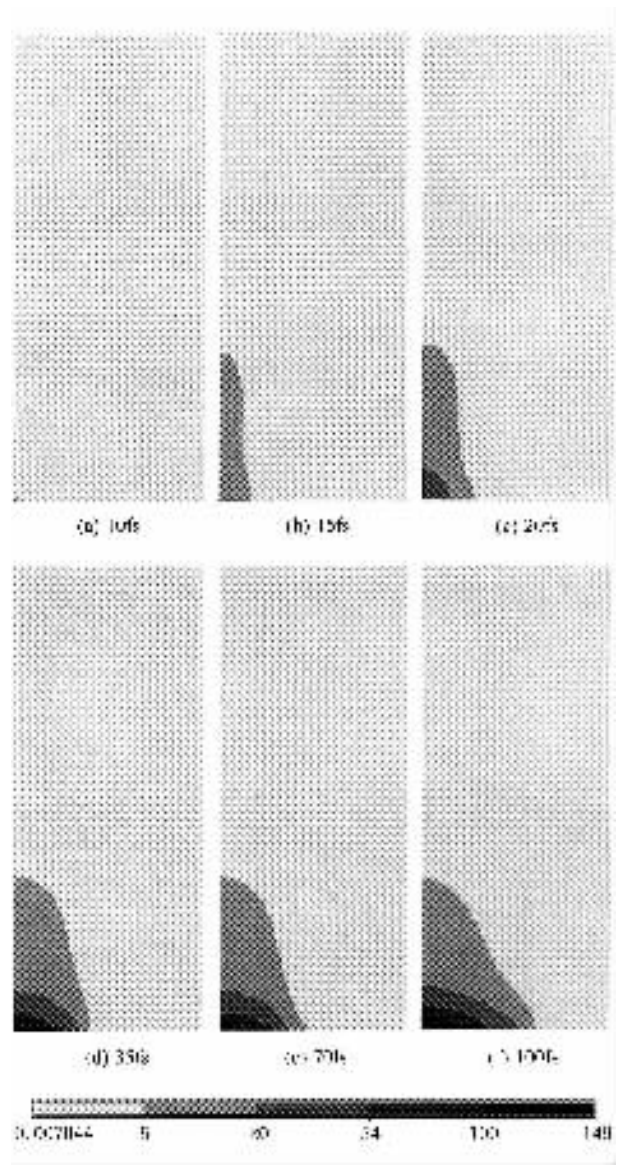


图4 不同时间点的能量分布彩色云图(单位是  $\text{kJ/cm}^3$ )

其化学键将断裂并导致材料的破坏.也就是说,巨大的离子间斥力将破坏材料晶格并引发微爆炸<sup>[14]</sup>.我们估算了导致材料化学键断裂的阈值电场强度

$$E_{\text{th}} = \sqrt{\frac{2\Delta_{\text{sub}}}{\epsilon_r \epsilon_0}}, \quad (7)$$

式中  $\Delta_{\text{sub}}$  表示单位体积化学键破坏所需要的能量,可以由材料升华热估算得到<sup>[15]</sup>.对于石英玻璃,我们用烧蚀阈值能量来替代  $\Delta_{\text{sub}} = 54 \text{ kJ/cm}^3$ <sup>[12]</sup>,得到阈值电场强度为  $57 \times 10^9 \text{ V/m}$ .

图6给出了  $t = 35 \text{ fs}$  时,净电荷分布、电场强度沿半径  $r$  方向的分布( $E_r$ )以及电场强度沿  $z$  方向的分布( $E_z$ ).从图6可以看出, $E_r$  占了总电场强度(图5(d))的绝大部分值.从图6(b)可见,在激光焦点附

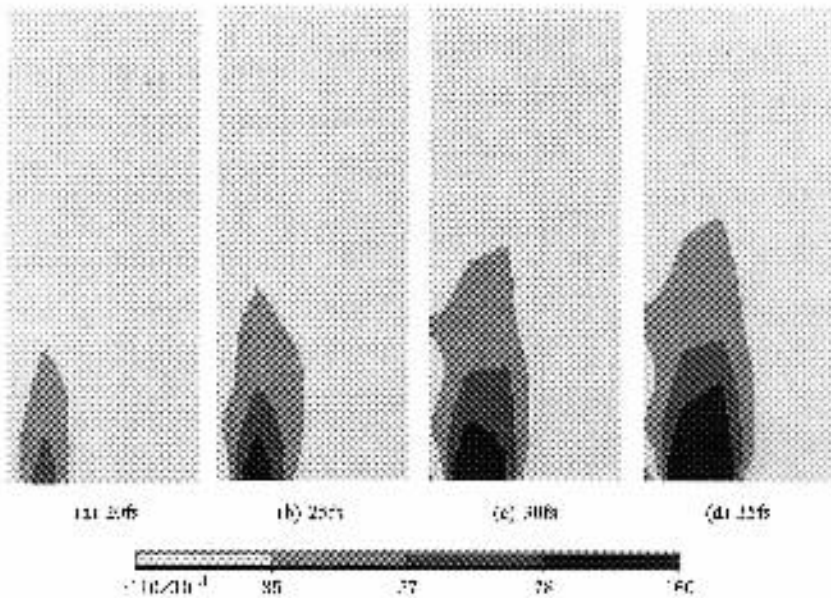


图 5 不同时间点的电场强度分布彩色云图(单位是  $10^9 \text{ V/m}$ )

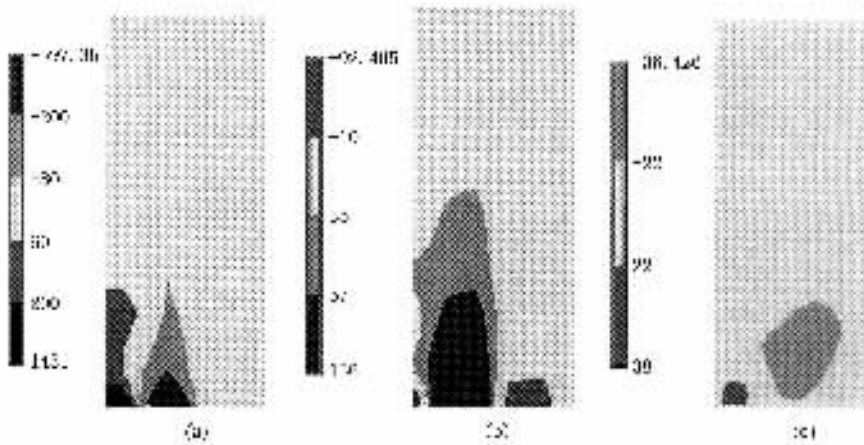


图 6 在 35fs 时 (a)净电荷分布 ( $n_i - n_e$ ) ,单位是  $10^{18} \text{ cm}^{-3}$  (b)电场强度沿半径方向( $E_r$ )和(c)轴向分布 ( $E_z$ )的彩色云图,单位是  $10^9 \text{ V/m}$

近约 200nm 的范围内有一个很强的正电场强度区域 (大于阈值电场强度),晶格将在静电力的作用下沿  $r$  正向运动,形成微爆炸.同时,在其周围还存在一个负电场强度区域,晶格将在静电力的作用下沿  $r$  负方向运动.这样,焦斑中心喷出的正粒子在周围减速、凝固下来,形成一个中心密度低、周围密度高的微结构.所以,在静电力作用下,材料晶格将被打断,且在能量集中的激光焦斑中心区将发生材料向周围喷出形成微孔,在微孔周围形成材料高密度区.可见,在能量较低的情况下,静电力是透明材料中引发微爆炸的直接动力,是微结构形成的直接

原因.

从图 4 可见,沉积能量超过阈值能量的区域的纵横比约为 0.5(平行和垂直激光传播方向的长度的比值)相反,从图 5 可见,总电场强度超过阈值电场强度的区域的纵横比约为 2.一般来说,利用飞秒激光在透明材料中制备微通道时,如果激光扫描方向垂直于激光传播方向,将形成一个椭圆的,具有大的纵横比(约为 2—3)的微通道<sup>[16]</sup>.如果只考虑能量的沉积,无法解释这种微结构的形成机理,但是结合电场强度分布的影响,则不难理解这种具有大的纵横比的微结构的形成过程.

## 4. 结 论

本文通过有限元方法,求解了二维雪崩击穿模

型,研究了导带电子的产生、能量的沉积、导带电子和能量扩散. 计算了电子扩散引起的净电荷和相应的静电场分布,初步揭示了微爆炸的演化过程.

- [ 1 ] Schaffer C B , Brodeur A , Garcia J F and Mazur E 2001 *Opt. Lett.* **26** 93
- [ 2 ] Davis K M , Miura K , Sugimoto N and Hirao K 2001 *Opt. Lett.* **21** 1729
- [ 3 ] Cheng G H , Wang Y S , White J D , Liu Q , Zhao W and Chen G F 2003 *J. Appl. Phys.* **94** 1304
- [ 4 ] Sun H B , Xu Y , Juodkazis S *et al* 2001 *Opt. Lett.* **26** 325
- [ 5 ] Luo L , Li C , Wang D , Yang H , Jiang H and Gong Q 2002 *Appl. Phys. A* **74** 497
- [ 6 ] Glezer E N and Mazur E 1997 *Appl. Phys. Lett.* **71** 882
- [ 7 ] Li X X , Jia T Q , Feng D H and Xu Z Z 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 2154 ( in Chinese ) [ 李晓溪、贾天卿、冯东海、徐至展 2004 物理学报 **53** 2154 ]
- [ 8 ] Keldysh L V 1965 *Soviet Physics JETP* **20** 1307
- [ 9 ] Tien A C , Backus S , Kapteyn H , Murnane M and Mourou G 1999 *Phys. Rev. Lett.* **82** 3883
- [ 10 ] Stuart B C , Feit M D , Herman S *et al* 1996 *Phys. Rev. B* **53** 1749
- [ 11 ] Jia T Q , Li R X , Liu Z and Xu Z Z 2002 *Appl. Phys. A* **74** 503
- [ 12 ] Jia T Q , Xu Z Z , Li R X *et al* 2004 *J. Appl. Phys.* **95** 5166
- [ 13 ] Fischetti M V , Dimaria D J , Brorson S D *et al* 1985 *Phys. Rev. B* **31** 8124
- [ 14 ] Jia T Q , Xu Z Z , Li X X , Li R X , Shuai B and Zhao F L 2003 *Appl. Phys. Lett.* **82** 4382
- [ 15 ] Bulgakova N M , Stoian R , Rosenseld A *et al* 2004 *Phys. Rev. B* **69** 054102
- [ 16 ] Cheng Y , Sugioka K , Midorikawa K *et al* 2003 *Opt. Lett.* **28** 55

# Theoretical analysis of fs-laser induced micro-explosion in fused silica<sup>\*</sup>

Xu Shi-Zhen<sup>†</sup> Jia Tian-Qing Sun Hai-Yi Li Xiao-Xi Cheng Zhao-Gu Feng Dong-Hai Li Cheng-Bin Xu Zhi-Zhan  
( State Key Laboratory of High Field Laser Physics , Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics , Chinese Academy of Sciences , Shanghai 201800 , China )  
( Received 19 December 2004 ; revised manuscript received 31 January 2005 )

## Abstract

Based on the avalanche model , the evolution of femtosecond laser induced micro-explosion in fused silica was investigated. The microscopic processes , including the production of conduction band electron ( CBE ) , laser energy deposition , CBE and energy diffusion were solved by a finite element method in two-dimensional cylindrical coordinates. The accumulated net charge and the electrostatic field were also calculated. The results indicate that the CBE and energy diffusions play an important role in the micro-explosion in dielectrics.

**Keywords** : avalanche model , micro-explosion , finite element method , femtosecond laser

**PACC** : 4255R , 4270C , 7750

<sup>\*</sup> Project supported by the National Natural Science Foundation of China ( Grant No. G60108002 ).

<sup>†</sup>E-mail : cecyxs@sohu.com