

飞秒激光对氟化镁烧蚀机理研究*

李成斌 贾天卿 孙海轶 李晓溪 徐世珍 冯东海 王晓峰 葛晓春 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)

(2005 年 4 月 8 日收到, 2005 年 6 月 16 日收到修改稿)

用扫描电镜 (SEM) 研究了氟化镁在 800 nm 超短脉冲激光作用下的单枪表面烧蚀形貌. 根据烧蚀斑面积与激光脉冲能量间的对数关系, 测得烧蚀阈值与激光脉宽的关系曲线 (55—750 fs), 计算了导带电子的双光子吸收, 改进了多速率方程模型, 很好地解释了实验结果.

关键词: 飞秒激光, 氟化镁, 烧蚀机理, 双光子吸收

PACC: 4262A, 6180, 7750

1. 引言

超短脉冲激光对材料的微加工和烧蚀机理是人们研究的热点^[1-9]. 氟化镁是一种很好的紫外光窗口和光纤材料, 有广泛的应用前景, 但是目前尚未见到飞秒激光脉冲作用下氟化镁烧蚀的研究报道. 2004 年 Rethfeld 提出了一种计算材料破坏阈值的多速率方程模型^[10]. 该模型考虑特殊高能电子的作用, 研究了在强激光照射下导带电子的碰撞级联过程, 解释了一些实验现象. 但是它只是考虑导带电子的单光子吸收. 近年来研究表明, 导带电子的双光子吸收在飞秒激光与材料相互作用过程中起重要作用^[11, 12].

本文采用 800 nm 超短脉冲激光和扫描电镜 (SEM), 研究了氟化镁单枪表面烧蚀形貌. 利用烧蚀斑面积与激光脉冲能量间的对数关系, 测量了氟化镁烧蚀阈值与激光脉宽 (55—750 fs) 的关系曲线. 理论上考虑到被激发电子在超短时间范围内的非稳态能量分布, 计算了导带电子的双光子吸收, 发展了多速率方程模型, 研究了飞秒激光脉冲对氟化镁的烧蚀机理.

2. 实验装置与结果

实验采用钛-蓝宝石激光器, 其标准输出是脉冲

宽为 50 fs, 波长 800 nm, 最大输出能量 600 μ J. 我们采用半波片和起偏镜连续调节输出脉冲的能量, 通过调节压缩光栅改变脉冲宽度. 脉冲通过透镜垂直聚焦在样品前表面, 束腰半径约为 25 μ m, 氟化镁样品厚约 1 mm, 双面抛光. 样品被固定在三维移动靶架上, 每一个点打一枪.

图 1 为样品在飞秒激光脉冲作用下, 用扫描电镜观察到的材料烧蚀形貌. 烧蚀坑边缘非常清晰, 看不到明显的热力学熔化作用的痕迹. 这与材料在长脉冲激光作用下的烧蚀形貌完全不同. 材料在激光照射下, 电子通过发射声子冷却, 与晶格达到热平衡的时间在 ps 量级. 热扩散、材料熔化的时间为几十皮秒. 因此, 在长脉冲激光作用下, 电子气中沉积的激光能量在激光脉冲照射材料的时间间隔内就传给离子, 并导致材料的加热、熔化乃至烧蚀. 热力学效应在激光与材料的相互作用中起重要作用. 然而, 当脉宽降低到飞秒量级, 这个尺度小于电子-声子相互作用时间, 电子气中沉积的激光能量来不及传给离子, 导致材料的“冷烧蚀”.

材料的烧蚀阈值是指在材料的表面形成永久性可探测损伤的最小激光能量. 目前实验测量材料烧蚀阈值有很多种方法^[1, 2, 4, 6, 13, 14], 我们测量了烧蚀斑的面积, 发现其与激光能量的对数成线性依赖关系^[15]. 结果如图 2 所示, 由直线的横轴截距能够计算烧蚀阈值 F_{th} , 斜率可以确定束腰半径 L 的大小.

用这种方法, 我们测定了 800 nm 激光照射下,

* 国家重点基础研究发展规划项目 (批准号: G1999075200) 资助的课题.

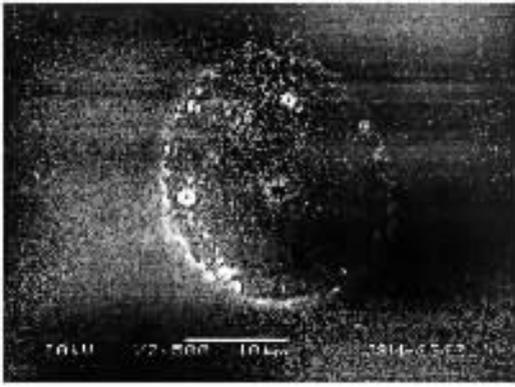


图 1 扫描电镜测氟化镁表面烧蚀形貌图

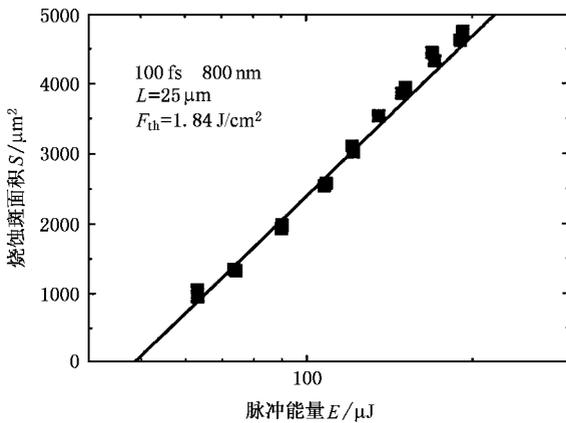


图 2 激光烧蚀斑面积与脉冲能量的依赖关系

氟化镁材料烧蚀阈值与脉宽的依赖关系. 结果如图 3 中▲所示. 随着脉宽减小, 材料的烧蚀阈值也在下降, 此时的依赖关系已经明显偏离了热力学破坏规律.

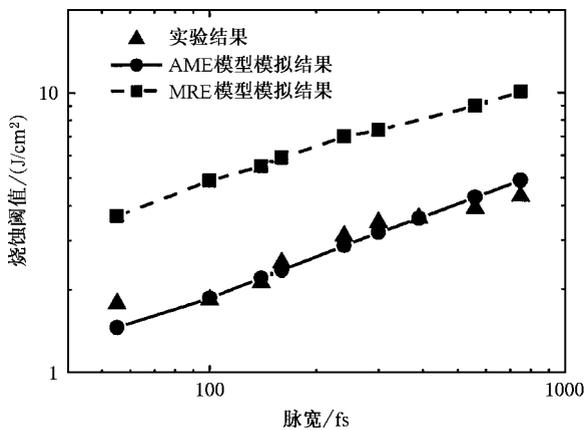


图 3 烧蚀阈值与脉宽的依赖关系

3. 理论计算

超短脉冲激光对材料的烧蚀, 目前普遍采用的还是雪崩击穿模型, 这种模型处理碰撞电离时, 考虑全部电子都对碰撞起作用. 在文献 [10] 认为导带高能电子对碰撞电离过程起直接作用, 它的瞬态分布应该被考虑. 但是他只是考虑了导带电子的单光子吸收. 文献 [11] 研究了在激光材料相互作用过程中导带电子的多光子吸收; 文献 [3, 12] 也对多光子吸收效应进行了理论和实验研究. 这些结果表明在飞秒激光与透明材料的相互作用过程中, 随着激光强度的增加, 双光子吸收效应会越来越重要的作用.

与文献 [9] 类似, 本文不考虑导带电子-电子散射和电子-声子散射相互作用过程, 并采用微扰理论计算导带电子的单光子和双光子吸收速率^[3, 5], 发展了多速率方程模型. 图 4 表示导带电子的碰撞级联过程. 在高能超短脉冲激光照射下, 电子从价带 (VB) 顶激发到导带 (CB) 底, 电子动能趋于零 ($\epsilon_0 \approx 0$). 定义离散能级 $\epsilon_j := \epsilon_{j-1} + \hbar\omega_L$, ω_L 为激光频率, 此时电子数密度为 n_j . 在激光照射下, 导带底的低动能电子继续吸收光子能量, $W_{1pt}(\epsilon_j)$ 和 $W_{2pt}(\epsilon_j)$ 分别表示单光子和双光子吸收速率. 当电子动能 $\epsilon_k = \epsilon_0 + k\hbar\omega_L$ 超过碰撞电离的临界能 ϵ_{crit} , 这些电子发

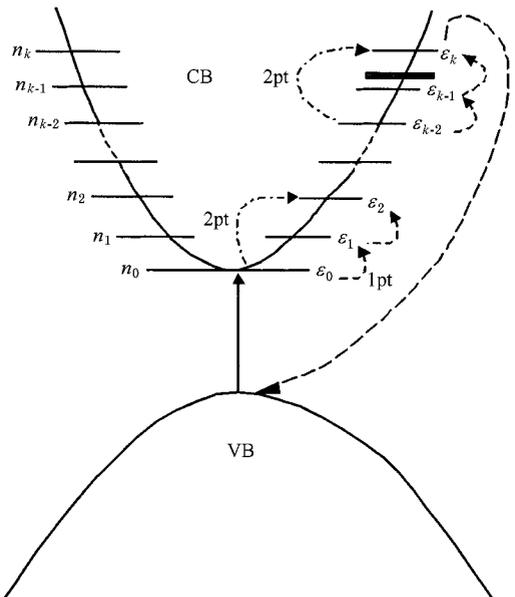


图 4 激光照射下介质材料中电子的变化过程

生碰撞电离,假定碰撞速率为 α , k 取值为 $k =$

$\left[\frac{\epsilon_{\text{crit}}}{\hbar\omega_L} \right]$. 这个过程可以用下列方程组表示:

$$\begin{aligned} \dot{n}_0 &= \dot{n}_{\text{pi}} + 2\alpha n_k - W_{1\text{pt}}(\epsilon_0)n_0 - W_{2\text{pt}}(\epsilon_0)n_0, \\ \dot{n}_1 &= W_{1\text{pt}}(\epsilon_0)n_0 - W_{1\text{pt}}(\epsilon_1)n_1 - W_{2\text{pt}}(\epsilon_1)n_1, \\ \dot{n}_2 &= W_{1\text{pt}}(\epsilon_1)n_1 + W_{2\text{pt}}(\epsilon_0)n_0 - W_{2\text{pt}}(\epsilon_2)n_2 \\ &\quad - W_{1\text{pt}}(\epsilon_2)n_2, \\ \dot{n}_3 &= W_{1\text{pt}}(\epsilon_2)n_2 + W_{2\text{pt}}(\epsilon_1)n_1 - W_{2\text{pt}}(\epsilon_3)n_3 \\ &\quad - W_{1\text{pt}}(\epsilon_3)n_3, \\ \dot{n}_{k-1} &= W_{1\text{pt}}(\epsilon_{k-2})n_{k-2} + W_{2\text{pt}}(\epsilon_{k-3})n_{k-3} \\ &\quad - W_{2\text{pt}}(\epsilon_{k-1})n_{k-1} - W_{1\text{pt}}(\epsilon_{k-1})n_{k-1}, \\ \dot{n}_k &= W_{1\text{pt}}(\epsilon_{k-1})n_{k-1} + W_{2\text{pt}}(\epsilon_{k-2})n_{k-2} \\ &\quad + W_{2\text{pt}}(\epsilon_{k-1})n_{k-1} - \alpha n_k. \end{aligned} \quad (1)$$

图5为采用多速率方程(MRE)模型和我们发展

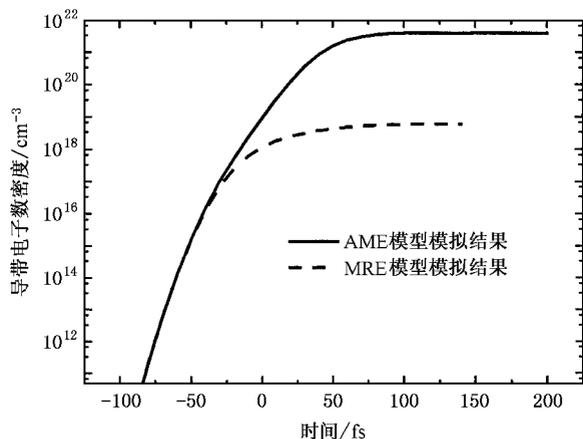


图5 导带电子数密度的演化,激发强度 1.865 J/cm^2 ,脉宽 100 fs

的模型(AME)计算得到的导带电子数密度的演化,激光强度 1.865 J/cm^2 ,脉宽 100 fs .如果只考虑单光子吸收,导带电子数密度只能达到 10^{18} cm^{-3} ,而考虑双光子吸收导带电子数密度可以达到 10^{21} cm^{-3} .

最近的实验结果表明,对于介质材料的烧蚀,激光能量必需达到 10 kJ/cm^2 以上^[16,17],也就是导带电子数密度达到 10^{21} cm^{-3} 以上.这与通过等离子体共振吸收确定的阈值标准是一致的^[18].

图3是我们采用等离子体共振吸收作为阈值标准,计算得到的材料烧蚀阈值与激光脉宽的依赖关系.实线为采用我们的模型即考虑双光子吸收的计算结果,与实验符合得很好.虚线对应于只考虑导带电子单光子吸收的情况,计算结果比实验测得的烧蚀阈值高了一倍多.

4. 结 论

本文研究了 800 nm 超短脉冲激光作用下氟化镁的单枪表面烧蚀形貌,根据烧蚀面积与激光脉冲能量成对数关系,测定激光的束腰半径以及材料的破坏阈值,得到烧蚀阈值随激光脉宽变化($55\text{—}750 \text{ fs}$)的关系曲线.

理论上我们在雪崩模型的基础上,考虑到被激发电子在超短时间范围内的非稳态能量分布,引入导带电子的双光子吸收,发展了多速率方程模型.通过比较我们发现:当引进了双光子吸收,理论模拟的结果可以很好地与实验结果符合.如果不考虑双光子吸收,得到的理论烧蚀阈值比实验结果高了一倍多.因而对于超短脉冲对透明材料的烧蚀过程,导带电子的双光子吸收是很重要的因素.

[1] Du D, Liu X, Korn G, Squier J, Mourou G 1994 *Appl. Phys. Lett.* **64** 3071

[2] Stuart B C, Feit M D, Herman S, A, Bubenchik M, Shore B W, Perry M D 1995 *Phys. Rev. Lett.* **74** 2248

[3] Jia T Q, Xu Z Z, Li R X, Feng D H, Li X X, Cheng C F, Sun H Y, Xu N S, Wang H Z 2004 *J. Appl. Phys.* **95** 5166

[4] Quere F, Guizard S, Martin Ph, Petite G, Merdji H, Carre B, Hergott J F, Deroff L L 2000 *Phys. Rev. B* **61** 9883

[5] Jia T Q, Xu Z Z, Li X X, Li R X, Shuai B, Zhao F L 2003 *Appl. Phys. Lett.* **82** 4382

[6] Li X X, Jia T Q, Feng D H, 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]

[7] Wang D L, Li C D, Luo L, Yang H, Gong Q H 2001 *Chin. Phys. Lett.* **18** 65

[8] Cheng G H, Liu Q, Wang Y S, Yu L J, Zhao W, Chen G F 2004 *Acta Photonica Sinica* **33** 412 (in Chinese) [程光华、刘青、王屹山、于连君、赵卫、陈国夫 2004 光子学报 **33** 412]

[9] Zhao Q Z, Qiu J R, Zhao C J, Jiang X W, Zhu C S 2005 *Chin. Phys.* **14** 1181

[10] Rethfeld B 2004 *Phys. Rev. Lett.* **92** 187401

[11] Belsky A, Martin P, Bachau H, Vasil'ev A N, Yatsenko B N, Guizard S, Geoffroy G, Petite G 2004 *Europhys. Lett.* **67** 301

[12] Jia T Q, Chen H, Wu X 2000 *Acta Phys. Sin.* **49** 1277 (in Chinese) [贾天卿、陈鸿、吴翔 2000 物理学报 **49** 1277]

[13] Martin Ph, Guizard S, Daguzan P, Petite G, D'Oliveira P, Meynadier P, Peerdrix M 1997 *Phys. Rev. B* **55** 5799

[14] Quéré F, Guizard S, Martin Ph 2001 *Europhys. Lett.* **56** 138

- [15] Liu J M 1982 *Opt. Lett.* **7** 196
[16] Ben-Yakar Adela , Byer Robert L 2004 *J. Appl. Phys.* **96** 5316
[17] Jia T Q , Li X X , Feng D H , Cheng C F , Li R X , Chen H , Xu Z
Z 2004 *Appl. Phys. A* **81** 645
[18] Sokolowski-Tinten K , Von der Linde D 2000 *Phys. Rev. B* **61** 2643

Mechanism of femtosecond laser-induced damage in magnesium fluoride^{*}

Li Cheng-Bin Jia Tian-Qing Sun Hai-Yi Li Xiao-Xi Xu Shi-Zhen

Feng Dong-Hai Wang Xiao-Feng Ge Xiao-Chun 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 8 April 2005 ; revised manuscript received 16 June 2005)

Abstract

Single-shot damage morphology of magnesium fluoride induced by femtosecond laser pulse was studied with scanning electron microscope (SEM). The laser pulses used were 800 nm central wavelength. By the linear relationship between the area of damage spot and the logarithm of the laser energy , we measured the dependence of damage threshold on the pulse duration ranging from 55 femtosecond (fs) to 750 fs . We have calculated the two-photon absorption in the conduction band and improved the multiple-equation model (*Phys. Rev. Lett.* **92** 187401 , 2004). The experimental results are well explained by our model.

Keywords : femtosecond laser , magnesium fluoride , damage mechanism , two-photon absorption

PACC : 4262A , 6180 , 7750

^{*} Project supported by the State Key Program of Basic Research of China (Grant No. G1999075200).