

文章编号: 0258-7025(2010)03-0722-04

飞秒激光诱导铬膜产生周期性微结构

武腾飞^{1,2} 周常河¹ 朱林伟^{1,2}

(¹ 中国科学院上海光学精密机械研究所, 上海 201800; ² 中国科学院研究生院, 北京 100049)

摘要 通过纳焦量级的飞秒激光在铬膜表面诱导出了周期性微结构, 并使用入射飞秒激光和激发的表面等离子体波之间的干涉理论模拟分析了飞秒激光作用下铬膜表面的温度场分布情况, 定性地解释了铬膜表面周期性微结构产生的机理。实验和理论结果有助于对飞秒激光和铬膜相互作用机制的理解。

关键词 超快光学; 飞秒激光; 表面等离子体波; 周期性微结构

中图分类号 TN 249 **文献标识码** A **doi**: 10.3788/CJL20103703.0722

Periodic Microstructures On Chromium Film Induced by Femtosecond Laser

Wu Tengfei^{1,2} Zhou Changhe¹ Zhu Linwei^{1,2}

(¹ Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China)

² Graduate University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China

Abstract The surface periodic microstructures on chromium film were induced by the nanojoule femtosecond laser. We analyzed the distribution of temperature on the chromium film surface with the theory of interference between the incident laser and the excited surface plasmons wave and the principles of periodic surface structures were explained. Experimental results are in coincidence with numerical simulation. The periodic microstructures formed on the chromium film should be helpful for us to understand the physical mechanism of the interaction between the chromium film and the femtosecond laser.

Key words ultrafast optics; femtosecond laser; surface plasmon wave; periodic microstructures

1 引言

近几年飞秒激光微加工已经成为超快光学领域中非常活跃的研究方向。由于飞秒激光具有超高的峰值功率和超短的脉宽, 所以它能加工高精度的微光学元件^[1~7]。近来很多文献报道了飞秒激光在电介质、半导体以及金属材料中诱导出了周期性表面微结构^[8~13]。周期性微结构的材料有许多新的应用, 比如红外探测器、高灵敏度传感器和宽带太阳能吸收装置等。郭春雷等^[10]已经研究了飞秒激光在重金属(金、银和铜)表面诱导的周期性微结构。他

们的研究表明, 具有较大电声耦合系数的金属产生的周期性微结构更清晰。

因为过渡金属铬的电声耦合系数比重金属的电声耦合系数大一个数量级, 所以选择微电子工业经常用的铬膜(即铬掩膜板)作为研究样品。实验中使用纳焦量级的飞秒激光在铬膜表面诱导出了周期性微结构。通过对样品进行电子扫描显微分析发现, 微结构的周期接近于入射飞秒激光的波长。最后利用入射飞秒激光和激发的表面等离子体波之间的干涉理论定性解释了周期性微结构产生的机理。

收稿日期: 2009-05-22; 收到修改稿日期: 2009-06-02

基金项目: 国家 973 计划(2006CB806000)、国家自然科学基金(60878035)和上海市科学技术委员会(07SA14)资助课题。

作者简介: 武腾飞(1983—), 男, 博士研究生, 主要从事飞秒信息处理技术方面的研究。E-mail: tengfei.wu@163.com

导师简介: 周常河(1966—), 男, 研究员, 博士生导师, 主要从事衍射光学、微光学和飞秒信息处理技术等方面的研究。

E-mail: chazhou@mail.shcnc.ac.cn(通信联系人)

2 实 验

实验装置如图 1 所示。光源 1 采用相干公司的 76 MHz 钛蓝宝石飞秒激光振荡器。飞秒激光的脉宽为 70 fs。激光器输出光的平均功率和中心波长分别为 550 mW 和 800 nm。飞秒脉宽通过实验室自制的达曼 FROG 装置测量^[14]，入射激光功率的大小通过旋转衰减器 2 来调节。为了获得质量较好且焦斑较小的光束，首先要使用 3 和 4 组成的扩束器对输出的飞秒光进行扩束。用来加工铬膜的显微物镜的数值孔径为 0.65，放大倍数为 40 倍。铬膜的厚度为 145 nm。三维微平台 9 由 NI 公司的 PCI-7344 控制卡和伺服放大系统控制。微动平台的移动精度是 30 nm。图 1 中的 6 所表示的 CCD 用来精确控制显微物镜 8 的焦平面和铬膜表面完全重合。实验前在黄光下使用丙酮和乙醇对铬膜进行清洗。实验的正常温度为 300 K。飞秒激光输出功率的波动范围约在 1.5%。

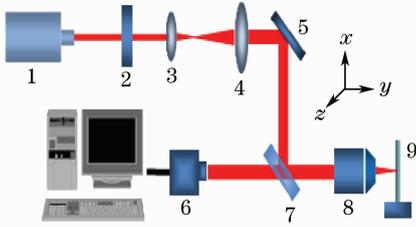


图 1 飞秒激光在铬膜表面诱导周期性微结构的实验装置图

Fig. 1 Experimental setup for laser-induced periodic surface structures (LIPSSs) on chromium film

实验过程中控制样品的移动速度为 300 $\mu\text{m/s}$ ，入射飞秒激光的功率为 35 mW，通过扫描电子显微镜 (SEM) 观察，飞秒激光处理后的铬膜表面形貌如图 2 所示。图 2 显示表面微结构的周期大约相当于入射激光的波长。

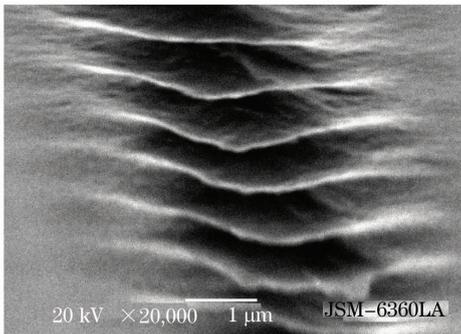


图 2 铬膜表面周期性微结构的 SEM 图

Fig. 2 SEM photograph of periodic microstructures on chromium film

3 理论分析

J. E. Sipe 等^[15]曾经提出通过入射激光和表面等离子体波之间的干涉解释激光诱导的周期性表面微结构的观点。所以采用这种观点来解释飞秒激光在铬膜表面诱导的周期性结构^[16]。在飞秒激光和铬膜相互作用过程中，可以认为铬膜是由电子和声子两个热的子系统组成。作用初始阶段，由于电子的热传导系数较高，激光能量首先传递给电子，电子的温度迅速升高。随后由于电-声耦合作用，电子温度逐渐降低，进而电子和声子温度达到热平衡。所以可以用双温模型描述电子-声子的热平衡动力学过程^[17]

$$C_e(T_e) \frac{\partial T_e}{\partial t} = K_e \nabla^2 T_e - G(T_e - T_1) + P(x, y, t), \quad (1)$$

$$C_1 \frac{\partial T_1}{\partial t} = G(T_e - T_1), \quad (2)$$

其中 C_e 和 C_1 是电子和声子的热容量， K_e 是电子的热容量^[18~20]， G 表示电声耦合系数。电子的热容量与温度的关系是 $C_e = \gamma T_e$ ， $\gamma = 194 \text{ J} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{K}^{-2}$ ，而声子的热容量是 $C_1 = 3.6 \times 10^6 \text{ J} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{K}^{-1}$ ，铬的电声耦合常数为 $G = 4.2 \times 10^{17} \text{ W} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{K}^{-1}$ 。铬膜表面电子和声子的温度变化过程可以通过求解双温方程得到。

由于激发的表面等离子体波和入射激光的频率相同，所以入射波和表面等离子体波可以用 $E_1 \exp[i(\mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r} - \omega t)]$ 和 $E_2 \exp[i(\mathbf{k}_2 \cdot \mathbf{r} - \omega t)]$ 表示。两列波在铬膜表面的干涉光强分布可以表示为^[15]

$$I = E_1^2 + E_2^2 + 2E_1 \cdot E_2 \cos[(\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2) \cdot \mathbf{r}], \quad (3)$$

干涉光强的波矢量分布在 xz 平面，那么可以得出在该平面的干涉条纹周期

$$d = \frac{2\pi}{|\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2|} = \frac{\lambda_{\text{vac}}}{(c/v_{\text{spw}} - \sin \theta)}, \quad (4)$$

其中 λ_{vac} 为真空中入射光波波长， v_{spw} 表示表面等离子体波的波速， θ 为入射光的入射角。由于在实验中入射光垂直入射到样品表面以及 $v_{\text{spw}} \approx c$ ，所以可以得到干涉条纹周期和波长的关系为 $d \approx \lambda$ 。进而(1)式的最后一项可以由下式替代

$$P(x, y, t) = \sqrt{\frac{\beta}{\pi}} \frac{F_0}{\delta t_p} (1 - R) \left[1 + \cos\left(\frac{2z}{L} \pi\right) \right] \cdot \exp\left[-\left(\frac{y}{\delta}\right) - \beta\left(\frac{t - 2t_p}{t_p}\right)^2\right], \quad (5)$$

其中 $\beta = 4 \ln 2$ 是高斯光束的常数因子， F_0 表示入射激光能量， δ 为穿透深度， t_p 为飞秒激光的半峰全宽。 $R = 0.31$ 表示铬膜表面的反射率。 z 是加工过程中

样品的扫描方向, y 是垂直于铬膜表面的方向。

4 结果与讨论

通过图 2 看到, 铬膜表面形成的周期性微结构与文献[21]中所得相似, 但是以前没有很好地解释这种现象。因为铬膜表面被加工的区域关于 z 轴具有空间对称性。在理论模拟中可以选择一个焦斑为计算区域 ($-0.75 \leq z \leq 0.75 \mu\text{m}$), 把焦斑中心当作坐标原点。图 3 是计算模拟出的铬膜表面电子、声子的暂

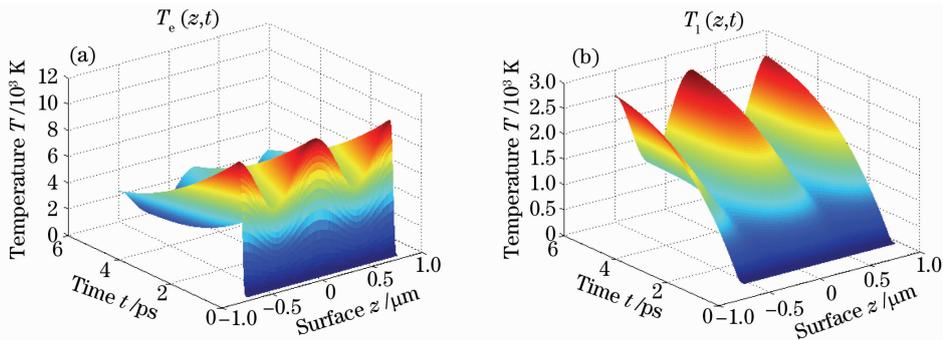


图 3 铬膜表面电子(a)和声子(b)的暂态温度随时间的变化关系图

Fig. 3 Transient electron (a) and phonon (b) temperature distribution on the surface of the chromium film ($y=0$) as a function of time

图 4 表示电子和声子的温度随铬膜深度的变化关系。由图看出电子和声子的温度随铬膜深度下降很快, 在铬膜内部 145 nm 深度处, 电子和声子的温度基本上降到 1000 K 以下。综合图 3 和图 4 可知, 飞秒激光和铬膜作用的初始阶段所形成的电子和声子高度不均匀的温度分布通过热扩散效应和电声耦合效应很快下降并最终达到平衡, 然后导致铬膜表面周期性微结构的形成。实验和理论分析有助于进一步理解飞秒激光诱导铬膜表面产生周期性微结构。

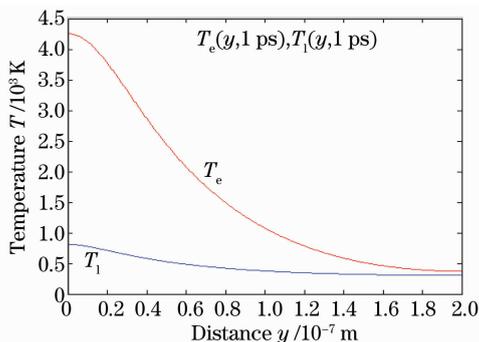


图 4 电子和声子的温度随铬膜内部深度的变化关系图 ($t=1 \text{ ps}$)

Fig. 4 Electron and phonon temperature distribution as a function of the depth below the sample surface at $t=1 \text{ ps}$

态温度随时间的变化分布图。在电声耦合过程中, 可以发现电子和声子的最高温度分别是 8000 K 和 2500 K。图 3(a)和(b)表示, 电声耦合作用使电子和声子的温度最终达到热平衡, 而且在图 3 中可以明显地看到激光作用铬膜区域的温度呈周期性分布且周期和微结构的周期基本一致。可以定性地认为飞秒激光作用后铬膜表面的周期性温度分布最终导致这种周期性微结构的形成。

5 结 论

报道了使用纳焦量级的飞秒激光在铬膜表面诱导出周期性微结构, 并采用入射光和激发的表面等离子体波间的干涉理论对铬膜表面的温度场进行模拟分析。分析结果表明干涉在铬膜表面周期性微结构的形成中起着关键作用。通过分析有助于进一步理解飞秒激光和铬膜相互作用的机理。

参 考 文 献

- 1 C. B. Schaffer, A. Brodeur, J. F. Garcia *et al.*. Micromachining bulk glass by use of femtosecond laser pulses with nanojoule energy [J]. *Opt. Lett.*, 2001, **26**(2): 93~95
- 2 Satoshi Kawata, Hong-Bo Sun, Tomokazu Tanaka *et al.*. Finer features for functional microdevices [J]. *Nature*, 2001, **412**(6848): 697~698
- 3 M. Y. Shen, C. H. Crouch, J. E. Carey *et al.*. Formation of regular arrays of silicon microspikes by femtosecond laser irradiation through a mask [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2003, **82**(11): 1715~1717
- 4 Yinzhong Wu, Ching-Yue Wang, Wei Jia *et al.*. Influence of scanning velocity on femtosecond laser direct writing lines on FOTURAN glass [J]. *Chin. Opt. Lett.*, 2008, **6**(1): 51~53
- 5 Xiao Hu, Juan Song, Qinling Zhou *et al.*. Self-formation of void array in Al_2O_3 crystal by femtosecond laser irradiation [J]. *Chin. Opt. Lett.*, 2008, **6**(5): 388~390
- 6 Zehua Han, Changhe Zhou, Enwen Dai. Ultrafast thermoelasticity modeling of microbump formation irradiated by femtosecond laser [J]. *Chin. Opt. Lett.*, 2008, **06**(8):

- 619~621
- 7 Haifeng Yang, Ming Zhou, Juan Dai *et al.*. Performance testing of log pile photonic crystal fast-fabricated by direct femtosecond laser writing [J]. *Chin. Opt. Lett.*, 2008, **6**(11): 864~867
- 8 X. D. Guo, R. X. Li, Y. Hang *et al.*. Femtosecond laser-induced periodic surface structure on ZnO [J]. *Mater. Lett.*, 2008, **62**(12/13): 1769~1771
- 9 A. Borowiec, H. K. Haugen. Subwavelength ripple formation on the surfaces of compound semiconductors irradiated with femtosecond laser pulses [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2003, **82**(25): 4462~4464
- 10 Jincheng Wang, Chunlei Guo. Ultrafast dynamics of femtosecond laser-induced periodic surface pattern formation on metals [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2005, **87**(25): 251914
- 11 X. D. Guo, R. X. Li, Y. Hang *et al.*. Raman spectroscopy and luminescent properties of ZnO nanostructures fabricated by femtosecond laser pulses [J]. *Mater. Lett.*, 2007, **61**(23/24): 4583~4586
- 12 Stephen J. Mihailov, Christopher W. Smelser, Ping Lu *et al.*. Fiber Bragg gratings made with a phase mask and 800-nm femtosecond radiation [J]. *Opt. Lett.*, 2003, **28**(12): 995~997
- 13 Guo Xiaodong, Li Ruxin, Yu Bingkun *et al.*. Femtosecond laser pulses induced nanostructures on ZnO in different ablation conditions [J]. *Acta Optica Sinica*, 2008, **28**(5): 1017~1020
郭晓东, 李儒新, 余昺鲲等. 不同烧蚀条件下飞秒激光脉冲诱导 ZnO 纳米结构研究[J]. *光学学报*, 2008, **28**(5): 1017~1020
- 14 Enwen Dai, Changhe Zhou, Guowei Li. Dammann SHG-FROG for characterization of the ultrashort optical pulses [J]. *Opt. Express*, 2005, **13**(16): 6145~6152
- 15 J. E. Sipe, Jeff F. Young, J. S. Preston *et al.*. Laser-induced periodic surface structure. I. Theory [J]. *Phys. Rev. B*, 1983, **27**(2): 1141~1154
- 16 Jincheng Wang, Chunlei Guo. Numerical study of ultrafast dynamics of femtosecond laser-induced periodic surface structure formation on noble metals [J]. *J. Appl. Phys.*, 2007, **102**(5): 053522
- 17 C. K. Sun, L. Acioli, J. G. Fujimoto *et al.*. Femtosecond investigation of electron thermalization in gold [J]. *Phys. Rev. B*, 1993, **48**(16): 12365~12368
- 18 Jaegu Kim, Suckjoo Na. Metal thin film ablation with femtosecond pulsed laser [J]. *Optics & Laser Technology*, 2007, **39**(17): 1443~1448
- 19 Zehua Han, Changhe Zhou, Enwen Dai *et al.*. Ultrafast double pulses ablation of Cr film on glass [J]. *Opt. Commun.*, 2008, **281**(18): 4723~4726
- 20 F. Keilmann, Y. H. Bai. Periodic surface structures frozen into CO₂ laser-melted quartz [J]. *Appl. Phys. A*, 1982, **29**(1): 9~18
- 21 Han Zehua, Zhou Changhe, Dai Enwen. Microripple structures induced by femtosecond laser pulses [J]. *Chinese. J. Lasers*, 2007, **34**(5): 715~718
韩泽华, 周常河, 戴恩文. 飞秒激光诱导波纹状微突起结构[J]. *中国激光*, 2007, **34**(5): 715~718