

偏振激光诱导金属表面周期条纹结构机理的研究

唐延甫 聂真威

中国科学院长春光学精密机械与物理研究所, 吉林 长春 130033

摘要 不同偏振态激光诱导金属表面产生条纹结构的研究有很多,但对形成该结构的机理分析较少。通过在光路中插入1/4波片用于改变飞秒激光偏振态,使产生的偏振激光垂直照射到金属钨表面产生条纹结构,进而研究这种条纹结构的产生机理和激光偏振态对产生这种结构的影响。研究发现,不同偏振态的飞秒激光与对应诱导产生的条纹结构之间具有很好的一致性。当1/4波片周期性单向旋转时,激光偏振态随之周期性变化,金属表面形成的条纹结构的方向也相应地随之改变,最大偏转角度约 $\pi/4$ 。对这种条纹方向随波片旋转而变化现象的机理进行了理论分析,分析表明不同偏振态的飞秒激光诱导金属表面产生条纹结构的方向由激光进入双折射晶体(如1/4波片)后分解的电矢量分量决定。

关键词 激光光学; 飞秒激光; 偏振态; 钨; 条纹结构; 1/4波片

中图分类号 O436/TN249

文献标识码 A

doi: 10.3788/CJL201542.0702002

Study on Periodic Ripples on Metallic Surfaces Induced by Polarized Lasers

Tang Yanfu Nie Zhenwei

*Changchun Institute of Optics, Fine Mechanics and Physics, China Academy of Sciences,
Changchun, Jilin 130033, China*

Abstract There are many studies on phenomenon of periodic ripples induced by polarized lasers on the surface of metal, but studies on mechanism are few. Femtosecond laser is polarized through inserting a quarter waveplate into the beam path, and then vertically transmitted onto the surface of tungsten to produce ripples. And then the mechanism of the inducing ripples and influence of polarization of laser on the inducing ripples is studied. It is found that periodic ripples have a good correspondence with polarization of femtosecond laser. When the quarter waveplate rotates periodically of single direction, the polarization of femtosecond laser and the direction of periodic ripples change accordingly. The maximum inclining angle of ripples is about $\pi/4$. An analysis of the mechanism of matter that direction of ripples changes along with rotating of quarter waveplate is given. Theoretical analyses indicate that the direction of periodic ripples induced by polarized laser is primary decided by electricity vector components grown at the moment of laser flies across birefringent crystals, for example a quarter waveplate.

Key words laser optics; femtosecond laser; polarization; tungsten; periodic ripples; quarter waveplate

OCIS codes 140.3390; 140.7090; 260.5430

1 引 言

自从1965年Brinbaum^[1]通过激光照射半导体并在表面观察到条纹结构以来,关于激光诱导金属表面条纹结构的研究一直倍受关注,随着超短脉冲激光的出现,有关飞秒激光诱导材料表面产生周期条纹结构的报道越来越多,这种周期条纹结构可以改变材料本身的物理化学性质,如光学增强吸收^[2-3]可大幅提高太阳能电池等对光的吸收效率,也可提高光耦合结构的耦合效率^[4]以及LED的光提取效率^[5],还表现出偏振散射

收稿日期: 2014-12-15; 收到修改稿日期: 2015-02-07

作者简介: 唐延甫(1987—),男,助理研究员,主要从事激光与物质作用和光学检测等方面的研究。

E-mail: tangyanfu_123@163.com

特性^[6],这些决定了其广泛的应用前景,另外这种条纹结构对研究激光与物质相互作用的机理^[7-10]也有重要的意义。Reif等^[11]通过不同偏振态的激光诱导陶瓷材料(CaF_2 和 MgF_2)表面并产生不同方向的周期条纹结构,发现对于入射光为圆偏振光时,材料表面不能形成条纹结构,取而代之的是无数的纳米级颗粒物,除此之外他们还在其他材料(SiC , ZnSe 和 ZnO)上观察到类似的现象,认为产生这种现象的原因主要归结于库伦爆炸;Zhong等^[12]发现当入射激光为圆偏振光时, ZnO 表面并不能产生条纹结构,而是在光斑作用区域内覆盖着直径约150 nm的纳米颗粒,他们认为线偏振光诱导产生的周期条纹结构是由入射光波与表面散射波的干涉造成的,而圆偏振光诱导产生的纳米颗粒是由库仑爆炸引起的;Ran等^[13]通过不同参数的线偏振飞秒激光作用在Zr-非晶合金上得到周期条纹结构,并且发现产生的周期性条纹结构的方向与激光的偏振方向平行,认为二次谐波的产生是这种结构形成的主要原因;Zhao等^[14-15]通过实验发现当入射激光为圆偏振光时,可以在金属表面诱导产生条纹结构,条纹方向与线偏振光入射时产生的条纹结构的方向夹角约 $\pi/4$,对于条纹形成的机理,他们认为是由于入射波和表面等离子体波干涉产生的,但是没有合理解释圆偏振入射光对应产生的周期条纹结构的机理。

本文主要介绍了一种不同偏振态飞秒激光照射金属钨表面产生周期条纹结构的方法,由于影响制备的条纹结构的因素^[16]有很多,主要讨论了入射激光的偏振态对条纹结构的影响,通过在激光光路中插入一片1/4波片用于改变入射飞秒激光的偏振态,之后垂直照射到金属钨表面,最终在金属表面获得条纹结构。结合实验现象又分析了产生这种条纹结构现象的机理,理论分析发现不同偏振态的入射飞秒激光照射到金属钨表面产生条纹结构,这种结构的方向由入射激光进入到1/4波片后分解的电矢量分量决定。

2 实验条件与方法

本实验中使用的激光是由掺钛蓝宝石激光器(Spectra Physics HP-Spitfire 50)输出的线偏振飞秒激光(重复频率为1 kHz,中心波长为800 nm,光谱宽度为30 nm的高斯光束,脉冲宽度为50 fs,最大输出光功率为5 W),实验中通过一个中性衰减片来调节激光功率使入射光以合适的能量作用到金属表面。飞秒激光的初始偏振方向由一个格兰棱镜来确定,之后在光路中插入一片零级1/4波片用于改变入射激光的偏振态,当旋转波片至不同的角度时,可获得对应偏振态的椭圆偏振光。最后通过一个4倍物镜聚焦并垂直照射到已固定在三维移动平台(New Port UTM100 PPE1)的目标靶板上,其中靶板是经过机械抛光的金属钨板,规格为15 mm×15 mm×1 mm;在实验中通过控制三维移动平台三轴移动,以达到激光“扫描”样品表面的目的。由于飞秒激光脉冲焦点处的能量极高,易击穿周围空气,造成空气电离而直接影响实验结果,具体影响结果和机理此处不做详细讨论,通过控制移动平台将靶板“被照射面”移动至入射激光经物镜聚焦后的焦点前方300 μm 处,经计算,此处光斑大小约60 μm ,通过中性衰减片调节入射到靶板表面的激光能量。接着通过控制移动转台以0.2 mm/s的速度沿与初始入射激光线偏振方向平行的方向移动。按照上述方案进行实验后,将激光照射后的靶板浸入到丙酮中进行清洗,以去除激光与靶板作用过程中产生的碎屑。清洗完成后将靶板置于扫描电子显微镜(SEM, Hitachi S-4800)下观察激光作用区域的微观特征,图1为波片光轴与入射激光初始偏振方向平行,即波片未旋转 $\theta=0$ 时,激光诱导钨表面产生的条纹结构,黑色双箭头代表波片光轴及入射激光的初始偏振方向。从图1中可以看到当波片未旋转时产生的条纹结构基本水平,偏转角度大小约 3° 。

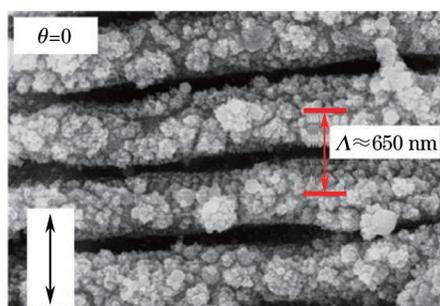


图1 波片光轴与入射激光的初始偏振方向平行时钨表面条纹结构的SEM图

Fig.1 SEM image of ripples induced on Tungsten surface when optic axis of waveplate parallel to the original laser polarization direction

3 实验结果与分析

当旋转1/4波片至不同角度时,入射激光照射到金属钨靶板表面,作用区域形成的条纹状结构各不相同,如图2所示。

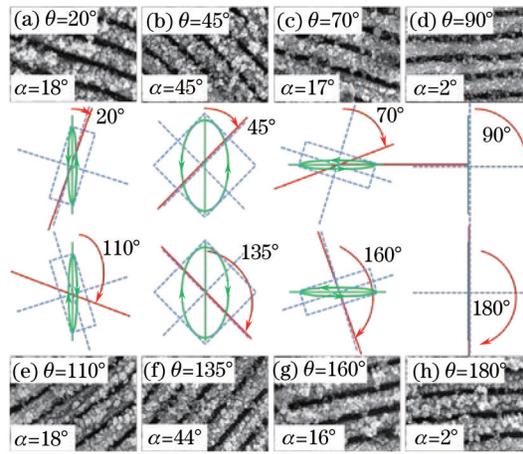


图2 条纹结构偏转角度 α 随波片角度 θ 变化的SEM图

Fig.2 SEM images of inclining angle α of the ripples change with rotating angle θ of the waveplate

当旋转波片至 $\theta=0$ 时,波片光轴方向与入射线偏振激光的偏振方向平行,由SEM图可以看到,此时条纹结构方向基本垂直于入射激光偏振方向,条纹间周期约为650 nm,略小于入射激光波长,结构表面覆盖着纳米级颗粒,这些颗粒的产生可认为是激光作用在材料表面而产生的喷射物。顺时针旋转波片,在波片角度 θ 在 $0\sim\pi/2$ 变化过程中,入射到靶板表面的飞秒激光将演变为椭圆偏振光,偏振态随之发生变化;在波片角度 $\theta=\pi/9$ 时,对应条纹结构的方向沿水平顺时针旋转了约 $\pi/10$;继续旋转波片至 $\theta=\pi/4$ 时,此时椭圆偏振光通常被大家认为是圆偏振光,此“圆偏振光”照射到金属表面时,产生了规整的周期性条纹结构,并且条纹方向沿水平顺时针偏转达到了最大,偏转角度约 $\pi/4$ 。继续旋转波片,当 $\theta=7\pi/18$ 时,产生的条纹结构依然沿水平方向顺时针偏转,但偏转角度从 $\pi/4$ 逐渐减小,此时条纹结构与水平方向夹角约 $\pi/10$,当 $\theta=\pi/2$ 时,产生的条纹结构方向基本水平,此时的偏振光演变为线偏振光。若继续旋转波片,即 θ 在 $\pi/2\sim\pi$ 范围时,发现对应产生的条纹结构方向发生了很大的变化,即条纹方向沿水平向逆时针方向偏转,但条纹结构偏转角度与 θ 在 $0\sim\pi/2$ 时相似。

首先,讨论实验中1/4波片补偿的相位延迟 δ 。对于测量1/4波片补偿的相位延迟的报道^[17-19]已有很多,本实验根据波片自身的特性(比如材料、厚度等)以及光源的特性(比如波长、光谱宽度等)计算波片实际补偿的相位延迟。

当光束通过一片波片后,分解为o光与e光并产生相位延迟,即波片补偿的相位延迟,与入射光波长有如下关系^[20]:

$$\delta(\lambda) = \frac{2\pi d}{\lambda} (\Delta_0 + \Delta_1 \times \lambda + \Delta_2 \times \lambda^2 + \dots), \quad (1)$$

式中 d 代表波片厚度,实验中的1/4波片厚度 $d=28\ \mu\text{m}$; Δ_0 、 Δ_1 、 Δ_2 分别代表双折射晶体特征系数,实验1/4波片的材料为石英, $\Delta_0=0.011945$, $\Delta_1=-0.008214$, $\Delta_2=0.005714$ ^[20]。

从(1)式可以看到,当一束激光通过一片1/4波片后,波片补偿的相位延迟并不是一个常数,而是一个与波长和波片材料有关的量。理想情况时,即单波长的光通过1/4波片后,波片能够补偿 $\pi/2$ 的相位延迟,但当一束具有一定光谱宽度的光束通过1/4波片后,波片便不能补偿 $\pi/2$ 的相位延迟,故实验中的线偏振光通过1/4波片后,无论怎样旋转波片,始终不能得到一束圆偏振光。

对 $\cos\delta(\lambda)$ 进行全光谱积分,得到 $\cos\delta(\lambda)=0.8$,即 $\delta\approx\pi/5$,并不是大家所熟知的 $\delta=\pi/2$ 。这也导致了光束通过波片后椭圆度始终小于1,即不能成为圆偏振光。

接下来从偏振椭圆分析^[21-22],当一束线偏振光通过一片1/4波片后,由于晶体双折射现象,该线偏振光将发展成为一束椭圆偏振光,椭圆偏振光两个电矢量分量表达式可表示为

$$\begin{cases} E_u = A_u \cos \omega t \\ E_v = A_v \cos(\omega t + \delta) \end{cases} \quad (2)$$

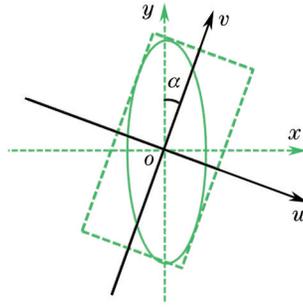


图3 新旧坐标系中的偏振椭圆

Fig.3 Polarization ellipse in new and old coordinate systems

由于此偏振椭圆方程不是标准椭圆方程,为了方便讨论,将偏振椭圆方程简化为标准椭圆方程,现引入一个新的坐标系,图3中坐标系 uov 表示初始坐标系,坐标系 xoy 表示新坐标系,新旧坐标系夹角为 α ,经过转换后,新的偏振椭圆有以下关系:

$$\sin 2\alpha \cos 2\theta - \cos 2\alpha \sin 2\theta \cos \delta = 0, \quad (3)$$

式中 θ 表示初始线偏振光的偏振方向与波片光轴的夹角,即波片旋转角度, α 也表示旋转后产生的椭圆偏振光长轴与初始线偏振方向的夹角, δ 表示入射偏振光两电场分量间的相位延迟,即偏振椭圆沿两坐标轴的分量间的相位延迟,此实验中 $\cos \delta(\lambda) = 0.8$ 。

首先分析当旋转波片至以下角度时的情形^[21]:

- 1) 当 $\theta = 0$ 或 π 时,入射光为线偏振光,且 $\delta_{in} = 0$,光束通过波片时,并未发生双折射,故 $\delta_{out} = 0$,从而有 $\alpha = 0$;
- 2) 当 $\theta = \pi/4$ 时, $\delta_{in} = -\pi$, $-\pi < \delta_{out} + \delta < -(\pi/2)$, δ_{out} 位于第三象限,此时偏振椭圆为左旋,如图 2(b)所示。如果波片补偿的相位延迟为 $\pi/2$,则 $\delta_{out} = -(\pi/2)$,此时偏振椭圆退化为圆;
- 3) 当 $\theta = \pi/2$ 时,光束通过波片也未发生双折射,因而 $\alpha = 0$;
- 4) 当 $\theta = 3\pi/4$ 时,此时 $\delta_{in} = 0$, $0 < \delta_{out} + \delta < \pi/2$, δ_{out} 位于第一象限,此时偏振椭圆为右旋,如图 2(f)所示。当 $\theta \in (0, \pi)$ 且 $\theta \neq 0, \pi/4, \pi/2, 3\pi/4, \pi$ 时,(3)式可简化为

$$\tan 2\alpha = \tan 2\theta \cos \delta. \quad (4)$$

(4)式也表达了线偏振光在经过 $1/4$ 波片时分解电场矢量与初始线偏振方向的夹角 α 、波片光轴与初始线偏振方向的夹角(或波片旋转角度) θ 、线偏振光在经过 $1/4$ 波片后两电场矢量分量的相位延迟,即波片补偿的相位延迟 δ 间的关系。

接下来分析波片的旋转角度 θ 从 0 到 π ,对应照射到金属表面时的激光偏振态变化情况。当 θ 在 $0 \sim \pi/4$ 变化时, $A_y = A_0 \cos \theta > A_x = A_0 \sin \theta$,可以理解为矩形框中 A_y 分量对形成条纹结构的方向起到了“主要作用”,由(4)式可知,此时 α 随 θ 单调变化,即 α 单调递增;当 $\theta = \pi/4$ 时,由(4)式可知, $\alpha = \frac{1}{2} \times \arctan[\tan 2\theta \times \cos \delta(\lambda)] = \frac{\pi}{4}$;继续旋转波片使 θ 在 $\pi/4 \sim \pi/2$ 变化时,此时 $A_x = A_0 \cos \theta > A_y = A_0 \sin \theta$,分解的电矢量分量较之前发生了变化,两电矢量分量大小发生了“交换”,即矩形框长短边发生了“交换”,也可以理解为偏振椭圆的长短轴发生了“交换”,然而不仅仅是长短轴发生变化,根据(4)式可知,假设偏振椭圆长短轴未发生交换,当 θ 从 $\pi/4 \sim \pi/2$ 时, α 应相应的从 $\pi/4 \sim \pi/2$,事实上,交换后长轴与波片光轴的夹角应为 $(\pi/2) - \alpha$,可理解为从 $\pi/4 \sim 0$,即椭圆长轴从 $\pi/4$ 开始逆时针旋转至 0 ,所以结合图 2(c)和图 3 认为矩形框中 A_y 分量对形成条纹结构的方向仍然起着“主要作用”。继续旋转波片至 $\theta = \pi/2$ 时,由于未发生双折射,入射线偏振光依然沿着原偏振方向偏振,即竖直方向;当 θ 从 $\pi/2 \sim \pi$ 的情形,与 $0 \sim \pi/2$ 情形类似,不同的是此时椭圆偏振光的旋光方向发生了变化,同时 δ_{out} 处在第二象限内,最终导致椭圆偏振光长轴的旋转方向发生了改变,即偏振椭圆向逆时针方向偏转。

通过结合实验现象和理论分析可以初步认为当旋转1/4波片至不同角度时对应产生的椭圆偏振光具有不同的偏振度,偏振椭圆的长轴大小也不同,并且激光入射至波片时分解的电矢量分量的大小和方向也不相同,其中 y 方向矢量一直对产生的条纹结构的方向起到主要作用。

4 结 论

通过在光路中插入1/4波片改变入射激光偏振态,再照射到金属表面上后,产生的条纹结构有很大的差异,其中主要表现在条纹结构的方向上,相对于初始位置最大偏转角度约 $\pm\pi/4$,同时不同偏振态的激光与对应条纹结构之间具有很好的对应关系,理论分析表明条纹结构的方向与入射激光照射到波片后分解的电矢量分量之间有着重要关系。现有的理论还无法完全解释,但一般认为由激光照射材料表面后激发的等离子体波与入射波之间的干涉^[9,12,14-15]造成的,这种等离子体波沿着金属表面向外扩散,强度衰减很快,扩散过程中与入射的光波发生干涉;对于椭圆偏振光,由于“ x 、 y 方向分量”均参与发生干涉,但“ y 方向”始终处于主导地位。本文的工作对激光与物质相互作用机理的研究具有一定的参考价值,并且对控制金属表面产生的微结构等应用方面将有一定的帮助。

参 考 文 献

- 1 M Birnbaum. Semiconductor surface damage produced by ruby lasers[J]. J Appl Phys, 1965, 36(11): 3688.
- 2 A Y Vorobyev, Chunlei Guo. Effects of nanostructure-covered femtosecond laser-induced periodic surface structures on optical absorptance of metals[J]. Appl Phys A, 2007, 86(3): 321-324.
- 3 Q Z Zhao, F Ciobanu, S Malzer, *et al.*. Enhancement of optical absorption and photocurrent of 6H-SiC by laser surface nanostructuring[J]. Appl Phys Lett, 2007, 91(12): 121107.
- 4 Liu Dengkuan, Chen Sijing, You Lixing, *et al.*. Fiber coupling of superconducting nanowire single-photon detectors[J]. Optics and Precision Engineering, 2013, 21(6): 1496-1502.
刘登宽,陈思井,尤立星,等. 超导纳米线单光子探测器的光耦合结构[J]. 光学精密工程, 2013, 21(6): 1496-1502.
- 5 Yin Zhengmao. Improving Light Extraction Efficiency of GaN-Based Leds by Osicle Micro & Nano Structures[D]. Jinan: Shandong University, 2014: 35-109.
尹正茂. 氧化物微纳米结构提高GaN基LED光提取效率的研究[D]. 济南: 山东大学, 2014: 35-109.
- 6 Xue Jun, Yang Yong, Li Chen, *et al.*. Research on polarized scattering of self-organized nanogratings induced by femtosecond laser[J]. Acta Optica Sinica, 2014, 34(4): 0432001.
薛军,杨勇,李晨,等. 飞秒激光诱导自组织纳米光栅偏振散射特性研究[J]. 光学学报, 2014, 34(4): 0432001.
- 7 He Fei, Cheng Ya. Femtosecond laser micromachining: frontier in laser precision micromachining[J]. Chinese J Lasers, 2007, 34(5): 595-622.
何飞,程亚. 飞秒激光微加工: 激光精密加工领域的新前沿[J]. 中国激光, 2007, 34(5): 595-622.
- 8 J Sipe, J Yong, J Preston, *et al.*. Laser-induced periodic surface structure, I. theory[J]. Phys Rev B, 1983, 27(2): 1141-1154.
- 9 M Huang, F Zhao, Y Cheng, *et al.*. Origin of laser induced near-subwavelength ripples: interference between surface plasmons and incident laser[J]. ACS Nano, 2009, 3(12): 4062-4070.
- 10 J Bonse, S Baudach, J Kruger, *et al.*. Femtosecond laser ablation of silicon: modification thresholds and morphology[J]. Appl Phys A, 2002, 74(1): 19-25.
- 11 J Reif, O Varlamova, F Costache. Femtosecond laser induced nanostructure formation: self-organization control parameters[J]. Appl Phys A, 2008, 92(4): 1019-1024.
- 12 Zhong Minjian, Guo Guanglei, Yang Junyi. Femtosecond pulse laser-induced self-organized nanostructures on the surface of ZnO crystal[J]. Chinese Physics B, 2008, 17(4): 1223-1226.
- 13 Lingling Ran, Shiliang Qu. Structure formation on the surface of alloys irradiated by femtosecond laser pulses[J]. Appl Surface Sci, 2010, 256(8): 2315-2318.
- 14 Q Z Zhao, S Malzer, L J Wang. Formation of subwavelength periodic structures on tungsten induced by ultrashort laser pulses[J]. Opt Lett, 2007, 32(13): 1932-1934.
- 15 Q Z Zhao, F Ciobanu, L J Wang. Self-organized regular arrays of carbon nanocones induced by ultrashort laser pulses and their field emission properties[J]. J Appl Phys, 2009, 105: 083103.

- 16 Gao Shengmiao, Han Peigao, Yan Kezhu. Research progress of femtosecond laser fabricating silicon-based micro/nano structure[J]. Laser & Optoelectronics Progress, 2013, 50(11): 110002.
 高盛森, 韩培高, 闫珂柱. 飞秒激光对硅表面微构造的研究进展[J]. 激光与光电子学进展, 2013, 50(11): 110002.
- 17 Bo Feng, Zhu Jianqiang, Kang Jun. Precise measurement and factors analysis for phase retardation of wave plate[J]. Chinese J Lasers, 2007, 34(6): 851-856.
 薄 锋, 朱健强, 康 俊. 波片相位延迟的精确测量及影响因素分析[J]. 中国激光, 2007, 34(6): 851-856.
- 18 Wang Zhengping, Li Qingbo, Tan Qiao, *et al.*. Method of measuring practical retardance value and judging the fast or slow axis of quarter-wave plate[J]. Chinese J Lasers, 2005, 32(4): 523-528.
 王政平, 李庆波, 谭 巧, 等. 测量 $\lambda/4$ 波片实际相移量并判定快慢轴的方法[J]. 中国激光, 2005, 32(4): 523-528.
- 19 Xu Canhua, Xu Qifeng, Xie Nan. Using crystal wedge to measure temperature dependence of quartz wave plates' phase retardation[J]. Acta Optica Sinica, 2014, 34(2): 0212004.
 许灿华, 徐启峰, 谢 楠. 用晶体斜劈方法测量石英波片相位延迟的温度特性[J]. 光学学报, 2014, 34(2): 0212004.
- 20 M Emam Ismail. Retardation calculation for achromatic and apochromatic quarter and half wave plates of gypsum based birefringent crystal[J]. Opt Commun, 2010, 283(22): 4536-4540.
- 21 Zhao Kaihua, Zhong Xihua. Optics[M]. Beijing: Peking University Press, 2008: 187-202.
 赵凯华, 钟锡华. 光学[M]. 北京: 北京大学出版社, 2008: 187-202.
- 22 M Born, E Wolf. Principles of Optics[M]. Beijing: Science Press, 1981: 928-931.
 M 玻恩, E 沃耳夫. 光学原理[M]. 北京: 科学出版社, 1981: 928-931.

栏目编辑: 宋梅梅