

飞秒激光烧蚀石英微孔的时间分辨阴影成像

魏健¹, 张彬^{1*}, 刘晖², 张航³

¹ 四川大学电子信息学院, 四川 成都 610065;

² 西安工程大学机电工程学院, 陕西 西安 710048;

³ 中国工程物理研究院流体物理研究所, 四川 绵阳 621900

摘要 建立了基于飞秒激光抽运-探测原理的时间分辨阴影成像平台, 直接获取了飞秒激光烧蚀石英微孔的超快过程图像。在不同能量密度、时间延迟、脉冲数量条件下, 观察到随时间延迟变化的等离子体通道衰退、冲击波膨胀和微孔伸长现象。实验结果表明, 所提系统有助于飞秒激光烧蚀诱导透明介质内部微纳结构的原位观察。

关键词 超快光学; 飞秒现象; 超快成像; 微纳制造; 冲击波

中图分类号 V261.8

文献标识码 A

doi: 10.3788/CJL201946.0508020

Time-Resolved Shadowgraphic Imaging of Femtosecond Laser Ablated Micro-Holes in Silica Glass

Wei Jian¹, Zhang Bin^{1*}, Liu Hui², Zhang Hang³

¹ College of Electronics and Information Engineering, Sichuan University, Chengdu, Sichuan 610065, China;

² School of Mechanical and Electrical Engineering, Xi'an Polytechnic University, Xi'an, Shaanxi 710048, China;

³ Institute of Fluid Physics, China Academy of Engineering Physics, Mianyang, Sichuan 621900, China

Abstract A time-resolved shadowgraphic imaging system based on femtosecond laser pump and probe is established for directly imaging the ultrafast process of femtosecond laser ablating of micro-holes in silica glass. The time-delay dependent phenomena of plasma channel decay, shock wave expansion, and micro-hole stretch are observed when the energy density, time-delay, and pulse number change. The experimental results show that the proposed system is very efficient for the *in situ* observation of the micro-nanostructures in transparent media induced by femtosecond laser ablation.

Key words ultrafast optics; femtosecond phenomena; ultrafast imaging; micro-nano fabrication; shock wave

OCIS codes 320.2250; 220.4000; 100.0118

1 引言

透明介质中的微流体系统是现代微全分析系统的重要组成部件, 在生命科学、生物医学、环境能源、环保安全等领域有重要的用途。传统三维微流体系统的制备包括常压成型^[1]、准分子激光掩模刻蚀^[2]等方法, 这些方法具有工艺难度大、成品率低、加工空间结构局限等缺陷。飞秒激光直写加工三维微纳结构技术的出现, 为透明介质内部三维微流体系统的制备带来新的机遇^[3-4]。飞秒激光具有超短的脉冲宽度 (10^{-15} s) 和超高的峰值功率密度

(10^{22} W/cm²), 在透明材料加工制造领域呈现出独特的优势。与普通长脉冲激光或连续激光不同, 飞秒激光能聚焦于透明材料内部, 只在焦点处发生多光子电离、微爆等物理过程。定点诱导微纳结构已被广泛用于不透明材料的表面改性(如金属表面纳米周期结构产生^[5-6]), 以及诱导透明介质内部微纳结构(如光波导^[7-8]、纳米孔^[9]等)的产生与制备。

飞秒激光加工透明介质微孔是飞秒激光三维制备微流体系统的基础, 该过程中涉及的相关物理量(如飞秒激光脉宽、波长、能量、偏振态等), 将直接影响飞秒激光直写三维微流路制备的成功率。掌握飞

收稿日期: 2018-10-26; 修回日期: 2019-01-11; 录用日期: 2019-02-25

基金项目: 国家自然科学基金(11872058)、超光滑表面无损检测安徽省重点实验室开放课题(CGHBMSJC06)

* E-mail: zhangbinff@sohu.com

秒激光烧蚀透明介质过程中的物理现象、物理过程,如飞秒激光自聚焦、多光子电离、库伦爆炸、碎屑飞溅、冲击波膨胀,有助于飞秒激光直写加工相关工艺的优化。例如:为了增加微流路内壁的光滑程度,Li等^[10]采用水辅助的方式进行飞秒激光三维微流路制备,减缓了加工过程中冲击波、碎屑对内壁的破坏,并且能及时带出加工碎屑;为了提高纵横比,李艳娜等^[11]采用飞秒激光结合酸腐蚀法在硅基板上制备了高纵横比的狭槽。由于缺少原位监测手段,需要将利用飞秒激光直写技术加工后形成的内部结构切开、抛光才能进行观察,无法原位观测到飞秒激光加工过程中出现的超快现象。同时,飞秒激光直写加工过程中的参数也无法直接获取,如微结构成型速率。

飞秒激光抽运-探测阴影成像技术适合不透明材料的表面、透明介质表面及内部微结构的原位实时成像,是一项用于监测飞秒激光烧蚀介质超快动力学过程的技术。Zhang等^[12]利用该技术研究了飞秒激光烧蚀金属铝表面以形成超快冲击波的演化过程;Pan等^[13]研究了飞秒激光诱导石英介质内部等离子体弛豫的超快过程。这些研究对于原位获取飞秒激光微纳加工参数、优化飞秒激光加工条件提供了重要的参考价值。当前,利用飞秒激光直写技术制备三维微流路已成为研究热点,飞秒激光抽运-探测阴影成像技术平台有望成为原位监测飞秒激光三维微纳加工的强力支撑平台,并可提高制备过程中的实时原位监测能力。

本文以透明石英玻璃为研究对象,建立飞秒激光抽运-探测阴影成像平台,实时观测飞秒激光诱导石英介质由表及里的微孔的形成过程。通过调节飞秒激光烧蚀能量、成像时间延迟等条件,获得了石英介质由表及里微孔形成的动态过程,分析了石英介质表面和内部冲击波的演化规律。

2 实验装置

飞秒激光抽运-探测阴影成像技术平台如图1(a)所示,其中S为机械快门,BS为分束器,L为透镜,BBO为倍频晶体,time-delay为时间延迟线,F1为滤波片,ICCD为超快相机,DG535为延时发生器,M为反射镜。飞秒激光器出射的飞秒激光(脉宽为130 fs,中心波长为800 nm,重复频率为1 kHz)分成两束。其中一束作为抽运光,通过延迟线后引入显微镜系统,并由放大倍数为10的物镜(数值孔径为0.25)进行聚焦。实验中,调整样品台

高度,将抽运光(即烧蚀光)的几何焦点聚焦于石英表面以下约0.5 mm,利用刀口法,测得烧蚀激光在石英表面的聚焦光斑直径约为20 μm 。另一束飞秒激光作为探测光,通过一块1 mm的BBO晶体后波长变为400 nm,从侧面照射抽运光烧蚀石英玻璃区域。机械快门放置于未分束前的飞秒激光光路上,用于控制飞秒激光。实验中设置快门时间为4 ms,因此对于重复频率为1 kHz的飞秒激光光源而言,快门每开关1次,便有4个飞秒激光脉冲通过。高速相机的最短曝光时间为2 ns,因此采集的图像具有极高的信噪比。实验中控制高速相机的曝光时间为0.999 ms,一方面可以使每次高速相机打开只拍摄1个飞秒激光脉冲作用的成像,另一方面可以增大采集到图像的机会。利用延时触发器连接机械快门和高速相机,保持快门和图像采集的同步性。实验中,将抽运光的焦点聚焦于石英玻璃的表面,通过可调衰减器控制入射抽运光的能量。成像系统的时间分辨率取决于飞秒激光脉宽和延迟线的精度,优于1 ps。该抽运-探测的零延时由飞秒激光诱导玻璃内部等离子体通道形成过程进行确定,如图1(b)所示。将飞秒激光焦点聚焦于石英表面以下5 mm处,并调节能量至破坏阈值以下,在该条加下,抽运光将在石英介质内部诱导等离子通道产生,即飞秒成丝现象。在负延时或时间零点附近(时间零点附近20 fs),无法观测到黑色的等离子通道。增大时间延迟,即可观察到随时间延迟不断伸长的等离子体通道。该方法得到的成像系统的时间零点不确定度在20 fs以内。由于观察飞秒激光烧蚀石英玻璃过程的时间零点不确定度为纳秒量级,因此零点的判断误差不影响对整体实验现象的观察。

3 分析与讨论

实验研究了不同抽运光能量下飞秒激光烧蚀石英玻璃的超快过程。设置抽运光功率为0.5 mW,焦点处激光能量密度为0.16 J/cm²,该能量密度在飞秒激光烧蚀石英玻璃的破坏阈值以下^[14],实验结果如图2(a)所示。从图2(a)中可以看出,随着时间延迟的增加,石英玻璃表面产生了逐渐膨胀的冲击波,如箭头所示。该冲击波是由于石英玻璃表面电子吸收飞秒激光能量后迅速形成的高温等离子体向外膨胀并挤压周围空气而形成的^[12]。在石英玻璃内部,当时间延迟在2.5 ns以内,可以观测到沿着飞秒激光传输方向的一条通道。该通道是由飞秒激光在石英玻璃内部传输过程中产生自聚焦、电子

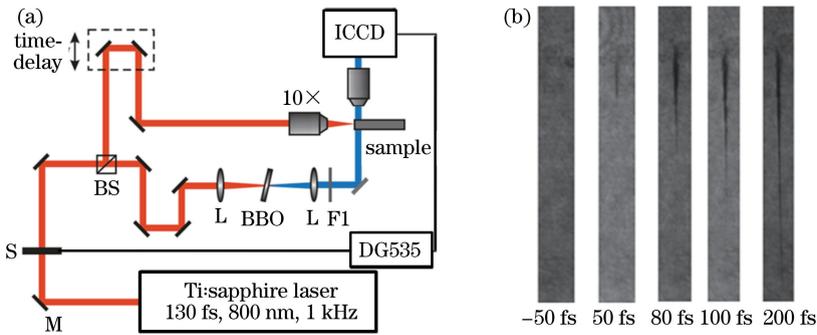


图 1 时间分辨阴影成像光路图及时间延时校准方法。(a)时间分辨阴影成像光路图；(b)石英介质中零延时附近的飞秒激光诱导的等离子通道

Fig. 1 Optical path of time-resolved shadowgraphic imaging and calibration method of time-delay. (a) Optical path of time-resolved shadowgraphic imaging; (b) plasma channels induced by femtosecond laser in fused silica under near zero time-delay

发生电离后形成的等离子体通道。等离子体对 400 nm 照射光的吸收或散射,导致在 ICCD 上留下阴影,因此可以清晰地观测到等离子体通道。在时间延迟大于 2.5 ns 时,由于石英内部的等离子体通道内电子由激发态逐渐恢复,对 400 nm 光的吸收和散射减弱,该通道的成像阴影逐渐消失。图 2(b)为石英表面的冲击波轮廓随时间膨胀的过程。利用膨胀距离与时间延迟的比值,估算出时间延迟在 1~3 ns 之间时,冲击波的平均膨胀速度为 7×10^3 m/s。根据 Sedov-Taylor 理论^[15]:

$$R = \lambda (E/\rho)^{1/(2+\beta)} t^{2/(2+\beta)}, \quad (1)$$

式中: λ 为常数,近似为 1; E 为冲击波释放能量; ρ

为空气密度; t 为时间延迟; $\beta=1, 2, 3, \beta=3$ 时冲击波为球面波传输, $\beta=2$ 时冲击波为柱面波传输, $\beta=1$ 时冲击波为平面波传输。对冲击波传输距离进行拟合,拟合直线的斜率为 0.497,恰好对应于 Sedov-Taylor 理论公式中 $\beta=2$ 的情况,说明冲击波是以柱面波的形式传输,这与通常激光烧蚀材料表面形成的球面波传输形式不同^[12],产生柱面波形式传播的主要原因是:实验中烧蚀飞秒激光焦点聚焦于石英玻璃表面,表面冲击波的传输形式依然会受到飞秒激光电离空气等离子体通道的影响,这与前期的实验结果一致^[16]。

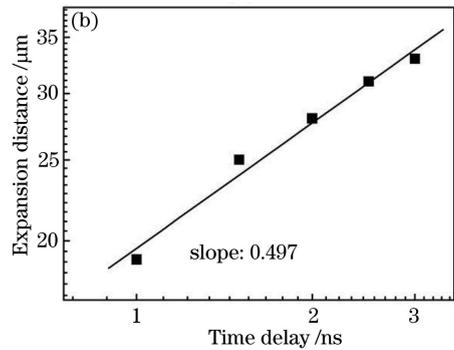
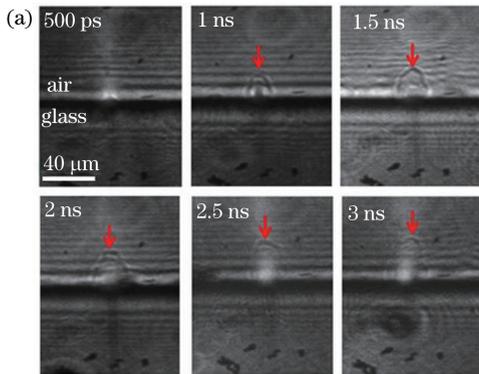


图 2 石英玻璃表面冲击波超快动力学。(a)抽运激光能量密度为 0.16 J/cm^2 时飞秒激光烧蚀石英玻璃的时间分辨阴影成像图;(b)冲击波膨胀距离随时间延迟的变化

Fig. 2 Ultrafast dynamics of shock wave on surface of quartz glass. (a) Time-resolved shadowgraphs of femtosecond laser ablated silica glass when pump laser energy density is 0.16 J/cm^2 ; (b) expansion distance of shock wave versus time-delay

当抽运光能量增大至石英玻璃破坏阈值以上,飞秒激光焦点聚焦于石英玻璃表面不动,通过飞秒激光烧蚀获得纵向微通道,如图 3 所示。图 3(a)、(b)表示在固定抽运光能量密度为 2.0 J/cm^2 时,时间延迟分别为 0.5 ns 和 1.5 ns 的阴影成像图。

可以发现:

1) 在图 3(b)中,当石英玻璃表面的沉积脉冲数量较少时(小于 16),可以清晰看到石英玻璃表面有向外膨胀的冲击波。这主要是因为沉积脉冲数较少,石英表面纵向微孔未有效形成,飞秒激光烧蚀石英玻璃产生的等离子体只能向表面扩散,因此挤压

在相同的沉积脉冲数下,通过对比图 3(a)、(b)

周围空气形成冲击波膨胀。石英玻璃表面冲击波膨胀的现象在飞秒激光脉冲数量增加后逐渐消失,这主要是由于纵向微孔形成后,飞秒激光脉冲能量向微孔底部沉积,反向喷射的等离子能量被微孔内壁或碎屑吸收和散射,不能喷射出石英玻璃表面。而在图 3(a)中,即使脉冲沉积数量只有 4 个,也未能在石英玻璃表面观测到冲击波的形成。这主要是由于时间延迟较小,仅为 0.5 ns,石英玻璃表面处于飞秒激光诱导产生稠密等离子体的状态,未达到向外膨胀的状态,这与图 2 中 0.5 ns 的时间延迟情况一致。

2) 飞秒激光脉冲沉积数量相同时,在时间延迟

长的图像中可以看到更长的微孔。这说明微孔是在飞秒激光作用一段时间后慢慢伸长的。同样,观察到图 3(b)中的裂纹更长,说明由飞秒激光烧蚀冲击产生的裂纹也在这段时间内慢慢变长。

3) 在图 3(b)中的微孔底部可以看到圆弧状的冲击波轮廓,而图 3(a)中没有出现此现象。这说明抽运光的能量主要沉积在微孔的底部。微孔底部物质吸收抽运光能量后,一方面被加热形成等离子体并反向喷射,另一方面继续向石英玻璃内部挤压,形成机械应力波。机械应力波的传输速度大于微孔的刻蚀速度,因此在时间延迟大于 1.5 ns 后,可以在微孔底端看到冲击波轮廓。

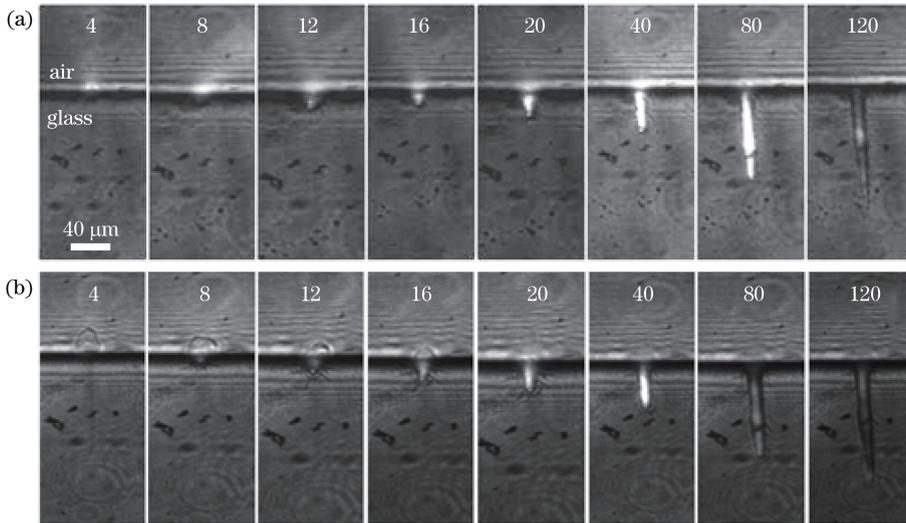


图 3 不同时间延迟下微孔形貌与脉冲数关系。(a) 0.5 ns;(b) 1.5 ns

Fig. 3 Relationship between micro-hole profile and pulse number under different time-delays. (a) 0.5 ns; (b) 1.5 ns

飞秒激光沉积脉冲数量与纵向微孔纵横比的关系如图 4 所示。当沉积脉冲数量较少时,纵向微孔的长度随脉冲数量增加得较快,纵横比变化显著。这主要是由于沉积脉冲数量较少时,微孔比较浅,微孔内的烧蚀碎屑可以及时飞出微孔口,大部分的飞

秒激光能量被微孔底部吸收。随着沉积脉冲数量的增多,微孔长度增加,微孔的纵横比变化随激光脉冲数量的变化逐渐缓慢。这主要是由于微孔变深后,内部碎屑不能及时飞出微孔口,造成对后入射的激光的吸收或散射,这样就减少了微孔底部吸收的激光能量。因此,要获得较高纵横比的微孔,利用液体流动带出碎屑的方式进行辅助加工。此外,微孔加深后,微孔底部离飞秒激光聚焦点越远,瞬时功率密度越低,也可能使微孔底部的功率密度达不到石英破坏阈值。

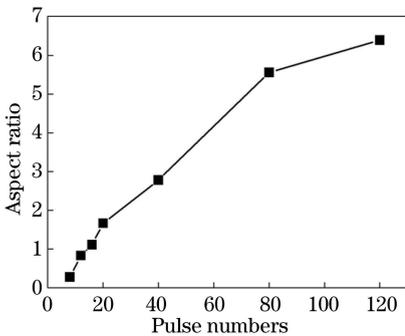


图 4 纵向微孔纵横比与飞秒激光数量的关系

Fig. 4 Relationship between micro-hole aspect ratio and femtosecond laser pulse number

4 结 论

利用飞秒激光抽运-探测时间分辨阴影成像技术观察飞秒激光烧蚀制备石英玻璃微孔的过程。当飞秒激光烧蚀能量密度低于石英玻璃破坏阈值时,可以在石英玻璃表面观测到冲击波随时间延迟的增加而逐渐膨胀的过程,在石英玻璃内部飞

秒激光的传输方向上可观测到随时间延迟的增大而逐渐衰退的等离子体通道。当飞秒激光烧蚀能量密度大于石英玻璃的破坏阈值时,可观测到随沉积激光脉冲数量的增加而伸长的纵向微孔。在较长的时间延迟(1.5 ns)下,可以在石英表面观测到冲击波随沉积脉冲数的增加而衰退,在纵向微孔底部可观察到冲击波传输的轮廓。这些动态过程的观测得益于飞秒激光抽运-探测时间分辨阴影成像技术的原位观测能力,免去为获取加工参数而进行石英玻璃的切开、抛光过程,大大提高加工参数的获取效率。同时,通过该技术还观测到加工过程中的冲击波演化、等离子体通道衰退等超快现象,为飞秒激光加工的物理机制研究提供一定的参考依据。

参 考 文 献

- [1] Muck A, Wang J, Jacobs M, *et al.* Fabrication of poly (methyl methacrylate) microfluidic chips by atmospheric molding[J]. *Analytical Chemistry*, 2004, 76(8): 2290-2297.
- [2] Shen X F, Chen T, Wu J X. Fabrication of microfluidic chip with two-step using excimer laser ablation micromachining technique and replica molding technology[J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2011, 38(9): 0903004.
申雪飞, 陈涛, 吴靖轩. 准分子激光微加工技术结合模塑技术加工微流控芯片[J]. *中国激光*, 2011, 38(9): 0903004.
- [3] Davis K M, Miura K, Sugimoto N, *et al.* Writing waveguides in glass with a femtosecond laser [J]. *Optics Letters*, 1996, 21(21): 1729-1731.
- [4] Kawata S, Sun H B, Tanaka T, *et al.* Finer features for functional microdevices [J]. *Nature*, 2001, 412(6848): 697-698.
- [5] Yang Q B, Deng B, Wang Y T, *et al.* Superhydrophobic surface of aluminium base induced by femtosecond laser [J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2017, 54(10): 101408.
杨奇彪, 邓波, 汪于涛, 等. 飞秒激光诱导铝基的超疏水表面[J]. *激光与光电子学进展*, 2017, 54(10): 101408.
- [6] Li C, Cheng G H, Stoian R. Investigation of femtosecond laser-induced periodic surface structure on tungsten [J]. *Acta Optica Sinica*, 2016, 36(5): 0532001.
李晨, 程光华, Stoian Razvan. 飞秒激光诱导金属钨表面周期性自组织结构的研究[J]. *光学学报*, 2016, 36(5): 0532001.
- [7] Gattass R R, Mazur E, Femtosecond laser micromachining in transparent materials [J]. *Nature Photonics*, 2008, 2(4): 219-225.
- [8] Miura K, Qiu J R, Inouye H, *et al.* Photowritten optical waveguides in various glasses with ultrashort pulse laser [J]. *Applied Physics Letters*, 1998, 71(23): 3329-3331.
- [9] Kanehira S, Si J H, Qiu J R, *et al.* Periodic nanovoid structures via femtosecond laser irradiation [J]. *Nano Letters*, 2005, 5(8): 1591-1595.
- [10] Li Y, Qu S L, Water-assisted femtosecond laser ablation for fabricating three-dimensional microfluidic chips [J]. *Current Applied Physics*, 2013, 13(7): 1292-1295.
- [11] Li Y N, Chen T, Pan A, *et al.* Fabrication of high-aspect-ratio allsilicon grooves using femtosecond laser irradiation and wet etching [J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2015, 42(1): 0103007.
李艳娜, 陈涛, 潘安, 等. 利用飞秒激光辐照结合湿法腐蚀方法制备高纵横比全硅槽的研究[J]. *中国激光*, 2015, 42(1): 0103007.
- [12] Zhang N, Zhu X N, Yang J J, *et al.* Time-resolved shadowgraphs of materials ejection in intense femtosecond laser ablation of aluminum [J]. *Physical Review Letters*, 2007, 99(16): 167602.
- [13] Pan C J, Jiang L, Wang Q S, *et al.* Temporal-spatial measurement of electron relaxation time in femtosecond laser induced plasma using two-color pump-probe imaging technique [J]. *Applied Physics Letters*, 2018, 112(19): 191101.
- [14] Zhou G F, Hu H D, Niu X D, *et al.* Investigation on etching parameter of fused silica based on femtosecond laser [J]. *Applied Laser*, 2012, 32(1): 45-48.
- [15] Sedov L I. Similarity and dimensional methods in mechanics [M]. Boca Raton: CRC Press, 1993.
- [16] Zhang H, Zhang F T, Du X, *et al.* Influence of laser induced air breakdown on femtosecond laser ablation of aluminum [J]. *Optics Express*, 2015, 23(2): 1370-1376.