

时域整形皮秒激光双脉冲烧蚀玻璃表面特性

刘文凤^{1,2}, 孙明莹^{1*}, 石逸群^{1,2}, 郭亚晶¹, 徐英明^{1,2}, 焦兆阳¹, 崔子健¹, 朱健强^{1**}¹中国科学院上海光学精密机械研究所高功率激光物理重点实验室, 上海 201800;²中国科学院大学, 北京 100049

摘要 基于亚纳秒间隔的皮秒激光双脉冲,研究了双脉冲时域整形对K9玻璃表面烧蚀特性的调控规律。当子脉冲间隔为667 ps时,不同形状双脉冲下玻璃表面的烧蚀形貌随激光通量增加的变化规律明显不同,而泵浦通量起着决定性作用。当泵浦通量低于阈值时,双脉冲烧蚀特性基本与单脉冲相似;当泵浦通量在阈值附近时,泵浦脉冲对玻璃表面的微米尺度的烧蚀会显著增强探测脉冲的烧蚀效应。当泵浦通量高于1.3倍阈值时,泵浦脉冲在玻璃与空气界面附近产生冲击波,探测脉冲被冲击波的高密度前沿界面反射和干涉,在中心烧蚀区域周围产生了圆环状烧蚀形貌,且圆环分布与探测通量密切相关。双脉冲烧蚀的内径尺寸与泵浦通量相关,而外径尺寸与双脉冲的形状、通量均相关。对比研究了子脉冲间隔为333 ps和667 ps时的等通量双脉冲烧蚀形貌,结果发现:低通量下较小的脉冲间隔可以增强烧蚀效应;高于烧蚀阈值的泵浦脉冲会影响探测脉冲的能量沉积;两种脉冲间隔下环状形貌的不同反映了泵浦脉冲产生的冲击波的传输特性不同。最后基于实验结果讨论了双脉冲序列时域整形进行表面烧蚀调控的物理机制。

关键词 激光技术; 激光烧蚀; 皮秒激光; 双脉冲; 时域整形

中图分类号 O437 **文献标志码** A

DOI: 10.3788/CJL221235

1 引言

超短激光脉冲烧蚀具有热影响区小、精度高等优势^[1-3],在玻璃切割、光栅刻写、微透镜阵列加工等^[4-11]方面得到了广泛应用。科研人员一直在探索超短脉冲激光烧蚀微加工工艺的优化。通常情况下,改变激光加工参数(如脉冲能量、脉冲宽度、重复频率等)是优化烧蚀工艺的主要手段。近年来,基于脉冲序列模式的超短脉冲激光材料微纳加工得到了广泛关注。相关研究表明,脉冲序列模式是提高材料去除效率和去除质量的有效手段^[12-16]。

脉冲序列模式的子脉冲重复频率受限于锁模激光谐振腔,通常约为100 MHz;通过控制烧蚀与热积累等效应,MHz脉冲序列可以显著提升烧蚀效率^[12,16]。然而,为了实现更高的加工效率,近年来,子脉冲重复频率在GHz量级的脉冲序列激光烧蚀加工成为研究热点,并取得了重要进展^[14,16-19]。子脉冲重复频率达到GHz量级的超短脉冲序列能够同时对电子动力学过程和热效应的精密调控,从而实现烧蚀机理和烧蚀效应的控制和优化。然而,脉冲序列烧蚀涉及的激光与物质相互作用的时间跨度较大、物理过程繁多,

烧蚀实验现象较为复杂。对于金属^[20]和半导体^[17]来说,可以通过GHz脉冲序列(或频率接近GHz的脉冲序列)的“烧蚀冷却”来提高烧蚀效率,但由于等离子体膨胀的屏蔽效应、流体动力效应、孵化效应和热积累等作用,加工质量和效率难以同时兼顾^[21-22]。对于具有宽带隙的电介质材料来说,由于非线性效应,其烧蚀规律将更加复杂。例如,随着每个脉冲序列的脉冲数从1增加到25,钠石灰玻璃和蓝宝石的烧蚀效率分别增加了约2.3和6倍^[23]。因此,子脉冲重复频率为GHz量级的脉冲序列是超短脉冲激光微加工研究的重要方向,深入研究脉冲序列烧蚀的物理机理具有重要意义。

GHz脉冲序列激光微加工研究主要集中在飞秒激光脉冲领域,而皮秒脉冲激光是目前工业领域应用最广泛的激光,皮秒激光脉冲序列烧蚀效应的研究还比较少^[16]。皮秒激光脉冲烧蚀阈值远高于飞秒激光脉冲的烧蚀阈值,烧蚀能量密度较高,沉积在烧蚀区域的能量较高。因此,皮秒脉冲与飞秒脉冲的烧蚀效应存在显著差异^[13,24]。双脉冲属于脉冲序列模式的最简单形式,泵浦-探测方法是研究脉冲序列烧蚀物理过程的主要方法^[12-13,15,25-30]。因此,研究皮秒双脉冲烧蚀有助

收稿日期: 2022-09-13; 修回日期: 2022-10-24; 录用日期: 2022-11-09; 网络首发日期: 2022-11-19

基金项目: 国家自然科学基金(61975218)、中国科学院战略性先导科技专项(XDA25020202)、中国科学院大科学计划培育专项(181231KYSB20170022)、中国科学院青年创新促进会项目(2018282)

通信作者: *sunmy@siom.ac.cn; **jqzhu@siom.ac.cn

于揭示皮秒脉冲序列烧蚀的物理机理。

笔者将双脉冲序列与时域整形相结合(基于亚纳秒级间隔的双脉冲序列,通过时域整形调节子脉冲的能量比和时间延迟,对脉冲序列的形状进行灵活调制),探究了K9玻璃表面的烧蚀过程与烧蚀机理。首先,将双脉冲的时间间隔固定为667 ps,通过调整双脉冲序列的能量比改变双脉冲的时域形状,研究了单脉冲和不同形状的双脉冲对激光烧蚀形貌、烧蚀尺寸、烧蚀阈值的影响;基于不同双脉冲形状下烧蚀形貌的共性,将不同通量下的烧蚀形貌分为5类,基于特征形貌随通量变化的曲线分析了双脉冲烧蚀的规律。然后,将能量比为1:1的双脉冲的时间间隔进一步减小为333 ps,分析了两种延迟下烧蚀特性的变化规律与诱因。最后,讨论了双脉冲序列时域整形实现烧蚀特性调控的基本机制。

2 实验装置和方法

皮秒激光烧蚀实验装置如图1所示,包括激光器、能量调节模块、双脉冲延迟光路模块、激光烧蚀模块。

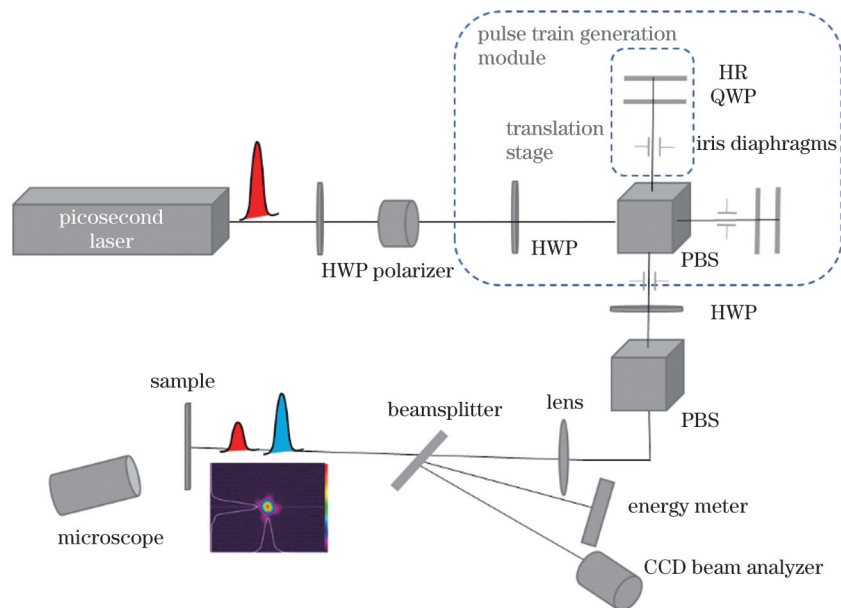


图1 皮秒双脉冲激光烧蚀测试装置示意图(HWP:半波片;QWP:四分之一波片;HR:高反镜;PBS:偏振分光镜。插图为光束质量分析仪记录的双脉冲焦斑形貌)

Fig. 1 Schematic of picosecond dual-pulse laser ablation test platform (HWP: half wave-plate; QWP: quarter wave-plate; HR: high reflectance mirror; PBS: polarization beam splitter. The insert shows focal spot of dual-pulse recorded by beam analyzer)

实验样品选用厚度为1 mm的K9玻璃,激光烧蚀实验在大气环境中进行。为了研究不同通量下的激光烧蚀特性并获得烧蚀阈值,选取15个能量阶梯对样品的前表面进行辐照,每个通量有12个有效点,激光能量范围覆盖了烧蚀阈值和数倍于阈值的高通量区域。采用高倍率光学显微镜(OM)和扫描电子显微镜(SEM)对烧蚀形貌进行表征。由烧蚀直径 D 与激光峰值能量密度 F 的拟合关系(详见3.3节)可得^[31]单脉冲烧蚀阈值 F_{th} 为 9.5 J/cm^2 。

激光器输出激光的脉宽(半峰全宽)为8.9 ps,光束直径为7 mm,中心波长为1053 nm。半波片(HWP)和偏振片组合用来调整双脉冲的总能量。双脉冲延迟光路模块完成脉冲分束、延迟、合束功能。在该模块中,HWP和偏振分光棱镜(PBS)产生两个不同偏振的子脉冲,通过旋转HWP可以控制两个子脉冲的能量比;子脉冲通过 0° 高反镜(HR)往返经过四分之一波片(QWP)实现偏振转变,之后再次经过PBS合束。在延迟线中,通过电动位移台高精度地控制时间延迟。经过PBS合束后获得双脉冲序列,再经过一组HWP和PBS输出偏振相同的两个子脉冲,子脉冲由焦距为300 mm的透镜聚焦在样品表面。两个子脉冲的光束路径通过小孔光阑和光束分析仪进行严格的同轴准直,以便使焦斑在焦深内的空间上重叠。在实验中,损伤测试中的焦斑和脉冲能量分别由取样光路中的光束分析仪和能量计进行监测,光束分析仪记录的子脉冲和双脉冲序列的焦斑形态如图1中的插图所示。可见,双脉冲焦斑均呈现为高斯脉冲轮廓,聚焦光斑半径($1/e^2$)为 $38.5 \mu\text{m}$ 。

在双脉冲序列实验中,两子脉冲分别称为泵浦脉冲和探测脉冲,其通量分别表示为 ϕ_{pump} 和 ϕ_{probe} ,它们的脉冲能量是独立调节的,双脉冲序列的通量为 $\phi_{\text{train}} = \phi_{\text{pump}} + \phi_{\text{probe}}$ 。把泵浦脉冲通量与脉冲序列通量的比值定义为脉冲序列形状因子,即 $\eta = \phi_{\text{pump}} / \phi_{\text{train}}$, $\eta = 0, 1$ 分别表示单脉冲。在激光辐照过程中,双脉冲序列作为一个脉冲,整体调节激光能量,即每个测试点都被一个形状因子 η 固定的双脉冲序列辐照;通过能量计和光束质量分析仪测量双脉冲能量和焦斑面积,从而获得

双脉冲通量 ϕ_{train} 。泵浦脉冲通量 ϕ_{pump} 和探测脉冲通量 ϕ_{probe} 根据测得的双脉冲通量 ϕ_{train} 与脉冲序列形状因子 η 的关系计算得到。

3 实验结果

3.1 烧蚀形貌

为了研究亚纳秒皮秒双脉冲的时域整形对烧蚀形貌的影响,将双脉冲的时间间隔固定为 667 ps,将不同形状的双脉冲作用于样品前表面。在不同形状因子的双脉冲辐照下,K9 玻璃的烧蚀形貌随通量的变化如图 2 所示,其中形状因子 $\eta=0, 0.33, 0.50, 0.67$ ($\eta=0$ 表示单脉冲)。低通量时,4 种脉冲形状下的玻璃烧蚀形貌基本一致;随着通量增加,烧蚀区域尺寸均逐渐增大,烧蚀形貌的差异逐渐显现出来。根据不同通量下玻璃表面

烧蚀形貌的不同,可将烧蚀形貌分成 5 种类型:1) 对于不同的双脉冲形状,在阈值附近的小通量下烧蚀后,烧蚀形貌与单脉冲烧蚀后的一样,均为高密度散点状形态,如图 2(a1)~(d1)所示。2) 随着通量增加,散点开始聚集在一起,烧蚀面积不断增大,烧蚀形貌为灰黑色圆形区域,如图 2(a2)~(c2)以及图 2(a3)所示。3) 随着通量进一步增加,中心浅色烧蚀区域开始出现散斑,中心散斑发展成中心颜色浅、边缘呈灰黑色的圆形区域,如图 2(b3)、(c3)所示;4) 当 $\eta \leq 0.50$ 时,烧蚀中心的圆形区域逐渐发展成环状,整个烧蚀形貌分为内环和多组同心圆环,且内环外径的直径均随着通量的增大而增大,如图 2(b4)~(c4)所示。5) 当 $\eta > 0.50$ 时,中心烧蚀区域为内环,较为清晰明显,而外环对比度低(外环出现在 $0.50 < \eta \leq 0.75$ 范围内),如图 2(d2)~(d4)所示。

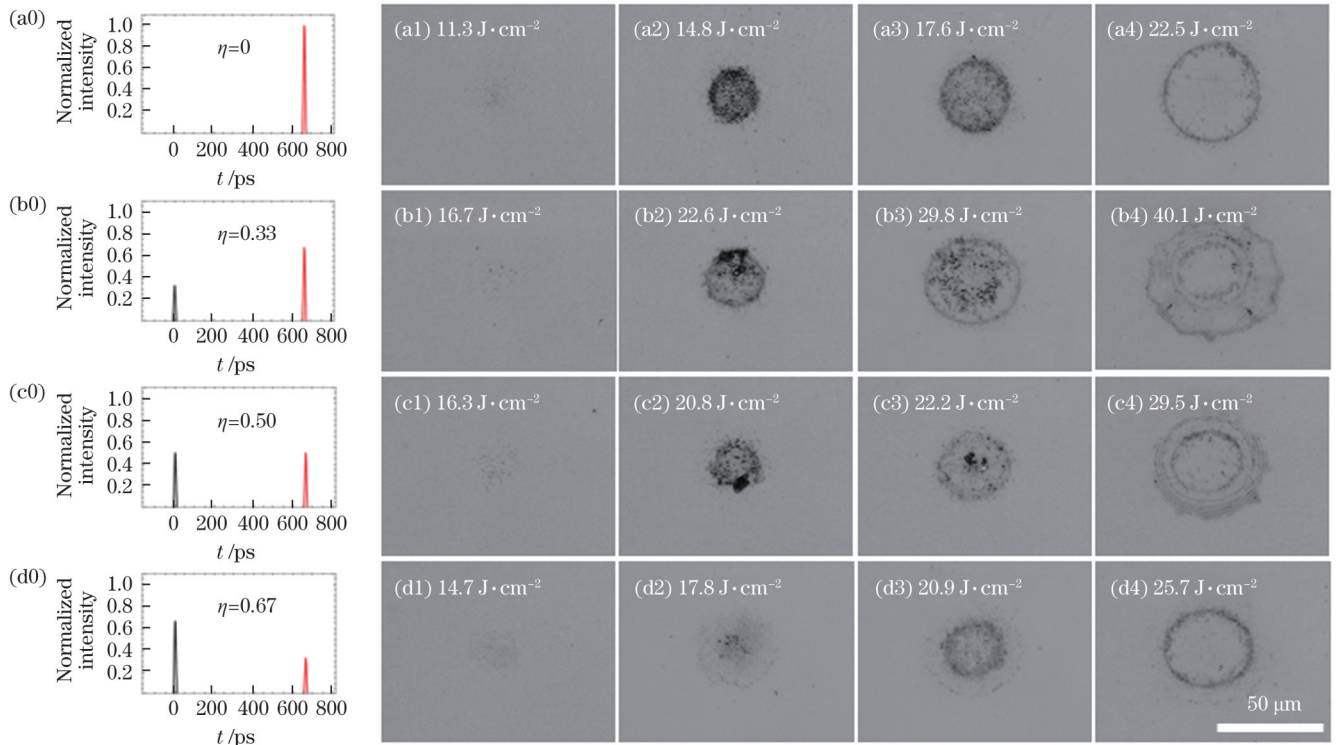


图 2 不同形状的双脉冲辐照下,玻璃烧蚀形貌随激光通量的变化。(a0)~(d0)不同形状因子(η)的双脉冲序列;(a1)~(a4) $\eta=0$ 时,不同通量下玻璃的烧蚀形貌;(b1)~(b4) $\eta=0.33$ 时,不同通量下玻璃的烧蚀形貌;(c1)~(c4) $\eta=0.50$ 时,不同通量下玻璃的烧蚀形貌;(d1)~(d4) $\eta=0.67$ 时,不同通量下玻璃的烧蚀形貌

Fig. 2 Variation of ablation morphology with increasing laser fluence under different shapes of dual-pulse radiation. (a0)~(d0) Dual-pulse train with various shape factors; (a1)~(a4) ablation morphology of glass under different laser fluences when $\eta=0$; (b1)~(b4) ablation morphology of glass under different laser fluence when $\eta=0.33$; (c1)~(c4) ablation morphology of glass under different laser fluences when $\eta=0.50$; (d1)~(d4) ablation morphology of glass under different laser fluences when $\eta=0.67$

为了深入分析烧蚀形貌背后的物理机理,对上述 5 种烧蚀形貌特征进行 SEM 表征。烧蚀形貌的 SEM 图像如图 3 所示,形貌特征具有高度可重复性。如图 3(a1)~(a3)所示,皮秒双脉冲阈值附近小通量下的烧蚀形貌与单脉冲作用下的相同,均为离散的高密度亚微米散点状,即第一类烧蚀形貌,该形貌是高密度缺陷诱致的百纳米尺度离散型点状损伤^[32]。双脉冲阈值和散点的微观形貌同样受脉冲形状的控制^[29]。

第二类形貌的中心烧蚀区域出现了少量熔融现象,如图 3(d2)、(d3)的中心区域所示,而外部低通量辐射区域呈现为阈值附近小通量下烧蚀的散点形貌,该烧蚀形貌特征与增大通量后的单脉冲烧蚀形貌相同。随着通量进一步增加,烧蚀形貌发展成第三类形貌,如图 3(b1)~(b3)所示,中心区域呈现为高斯脉冲高通量辐照下产生的熔融态,并伴有裂纹。第二类和第三类形貌中均观察到了少量表面周期性结构。第四类上升

型双脉冲烧蚀形貌出现了“同心环”特征,如图 3(c1)~(c3)所示,中心区域的烧蚀得到了抑制,外围产生了丰富的规则的环状结构,圆环间距不等,且随着远离烧蚀中心而减小。这与飞秒双脉冲激光烧蚀玻璃的探测光

与冲击波相互作用诱致的同心环有着相似的特征^[30]。第五类是下降型双脉冲烧蚀形貌,中心熔融烧蚀形貌取决于较高通量的泵浦脉冲,外部是通量较低的探测脉冲的影响区。

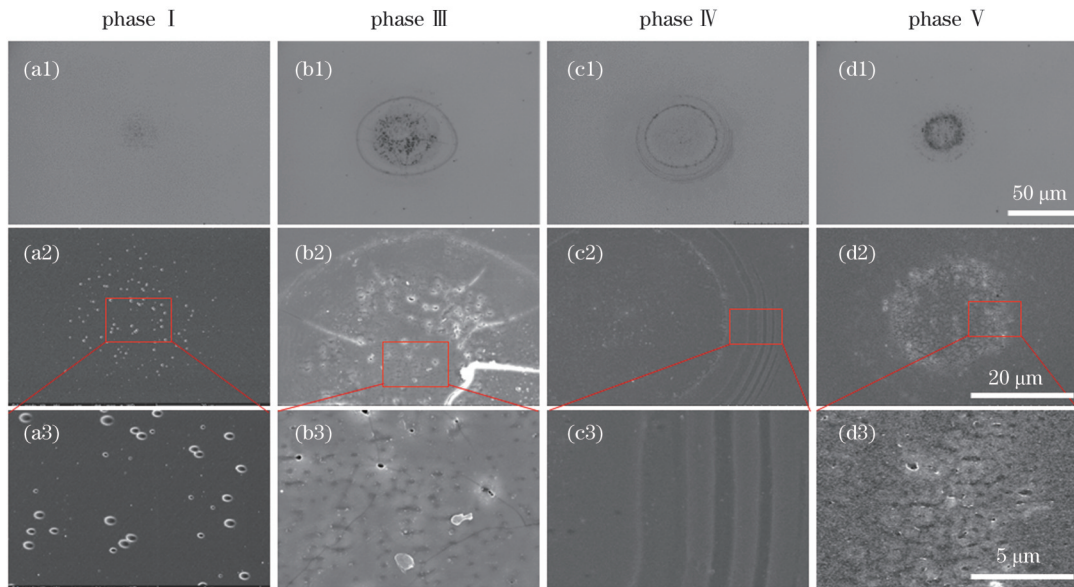


图 3 4类烧蚀形貌的代表性光学显微镜图像和SEM图像。(a1)~(d1)光学显微镜图像;(a2)~(d2)SEM图像;(a3)~(d3)SEM图像的细节放大图

Fig. 3 Optical microscopy images and SEM images of four types of representative ablation morphologies. (a1)–(d1) Optical microscopy images; (a2)–(d2) SEM images; (a3)–(d3) detail enlargement of SEM images

将 9 种双脉冲形状 ($0 < \eta < 1$) 下的烧蚀形貌依据上面的 5 种特征进行分类,对每一种烧蚀形貌对应的通量进行统计,得到了不同泵浦、探测通量下烧蚀形貌的分布规律,如图 4 所示。不同斜率的数据点对应不同的双脉冲形状因子,比如,蓝色虚线代表 $\eta = 0.50$ 的双脉冲下的烧蚀形貌随泵浦通量的变化曲线。红色点划线为前三类形貌和后两类形貌的分界线。

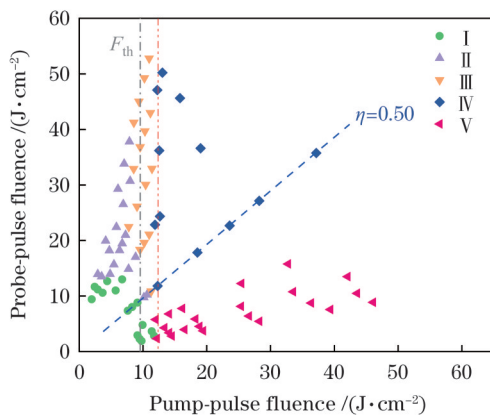


图 4 不同泵浦、探测通量下 5 类双脉冲烧蚀形貌的分布图
Fig. 4 Distribution of five kinds of dual-pulse ablation morphologies in different pump and probe fluences

图 4 中,绿色圆形数据代表第一类形貌,这些数据关于 $\eta = 0.50$ 的蓝色虚线对称分布,说明第一类亚微米散点烧蚀形貌与脉冲形状无关,是通量在阈值附近的

子脉冲引发的烧蚀形貌,取决于双脉冲中能量较高的子脉冲。第二和第三类形貌主要发生在 $\eta < 0.50$ 的区域,此区域的泵浦通量较小,且该区域呈扇形。第二类形貌对应的泵浦通量低于烧蚀阈值,因此烧蚀形貌主要由探测脉冲产生,与单脉冲烧蚀形貌类似。第三类形貌对应的泵浦通量在阈值附近,或略高于单脉冲阈值,在探测脉冲辐照时,泵浦脉冲已经产生了散点状烧蚀,因此该区域在探测脉冲的作用下将产生不同于单脉冲的烧蚀形貌,如图 3(b1)~(b3)所示。有趣的是,由图中的红色点划线可知,不同泵浦探测能量比条件下,第四和第五类形貌的起始泵浦通量一致,说明这两类烧蚀形貌与泵浦脉冲通量的大小密切相关。红色点划线对应的泵浦通量为 12.5 J/cm^2 ,约为单脉冲阈值的 1.3 倍。这表明,高于这个通量,泵浦脉冲将产生特殊的烧蚀现象,对探测脉冲烧蚀作用产生了显著影响,从而在中心烧蚀区域周围形成环状烧蚀形貌。第四类和第五类烧蚀形貌的数据点关于 $\eta = 0.50$ 直线对称分布,第四类形貌对应 $\eta \leq 0.50$,即探测脉冲通量大于等于泵浦脉冲通量,此时产生的是多组同心环状条纹形貌;第五类形貌对应 $\eta > 0.50$,即探测脉冲通量小于泵浦脉冲通量,此时中心烧蚀区域外只有一个较弱的环带。这一结果表明,泵浦脉冲通量大于 12.5 J/cm^2 是产生这两种形貌的前提条件,而探测脉冲通量的大小决定了烧蚀形貌的种类。

3.2 烧蚀尺寸分析

由图 4 可知双脉冲烧蚀环状形貌出现的起始通量与泵浦脉冲密切相关。为了深入探索时域整形双脉冲对烧蚀形貌的调控作用,定量分析了不同形状双脉冲辐照条件下烧蚀尺寸随通量的变化。不同能量密度的激光辐照诱致的表面烧蚀形貌不同,可将烧蚀区域分为光斑中心的改性区和外围离散

点状烧蚀区。首先,基于上升型脉冲形状($\eta \leq 0.50$)和下降型脉冲形状($\eta > 0.50$)的双脉冲典型烧蚀形貌,定义了烧蚀尺寸——外径 D_{out} 和内环 D_{core} ,如图 5 所示。然后,统计了 6 种形状($\eta = 0, 0.25, 0.33, 0.50, 0.67, 0.75$)双脉冲烧蚀形貌,得到了内环和外径随泵浦、探测和双脉冲通量变化的曲线,如图 6 所示。

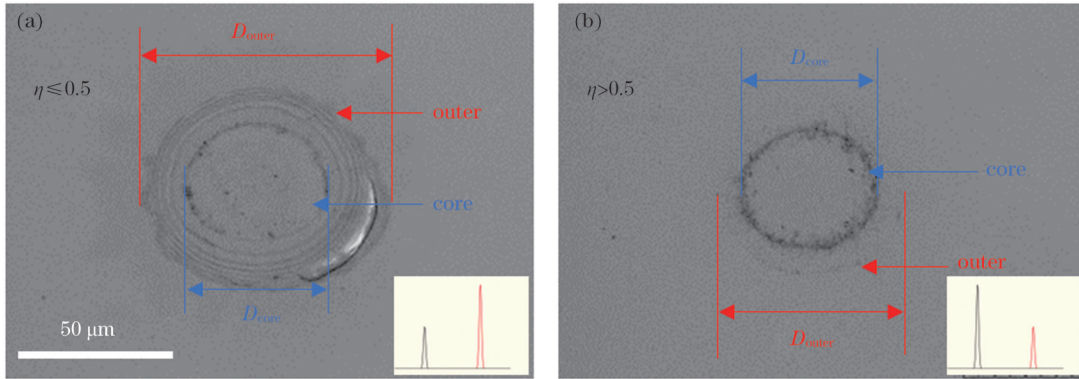


图 5 典型双脉冲烧蚀形貌的尺寸定义示意图。(a)第四类烧蚀形貌;(b)第五类形貌

Fig. 5 Size definition of typical dual-pulse ablation morphologies. (a) Ablation morphology for phase IV; (b) ablation morphology for phase V

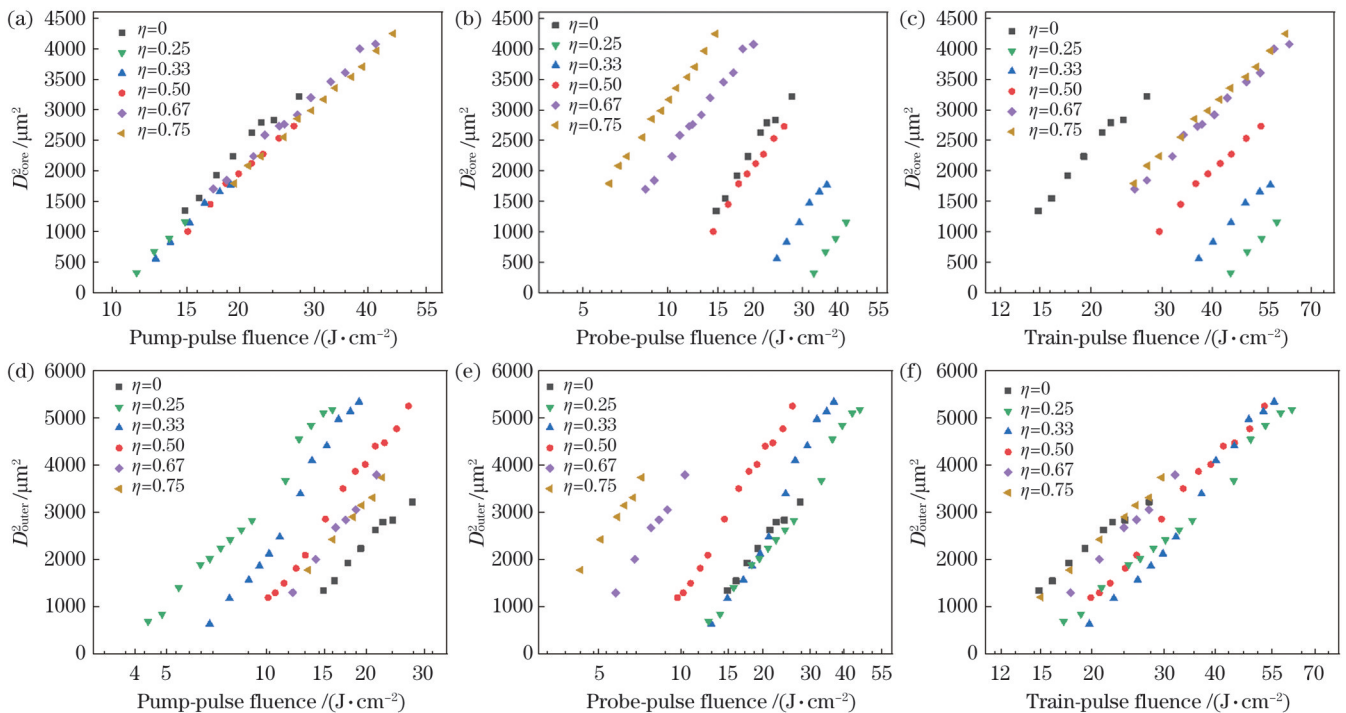


图 6 不同形状双脉冲辐照下, D_{core}^2 和 D_{outer}^2 随激光通量的变化。(a)(d) D_{core}^2 和 D_{outer}^2 随泵浦通量的变化;(b)(e) D_{core}^2 和 D_{outer}^2 随探测通量的变化;(c)(f) D_{core}^2 和 D_{outer}^2 随双脉冲通量的变化

Fig. 6 Under dual-pulse irradiation with different shapes, D_{core}^2 and D_{outer}^2 as a function of laser fluence. (a)(d) D_{core}^2 and D_{outer}^2 as a function of pump fluence; (b)(e) D_{core}^2 and D_{outer}^2 as a function of probe fluence; (c)(f) D_{core}^2 and D_{outer}^2 as a function of train-pulse fluence

由图 6(a)~(c)可以看出,内环尺寸仅与泵浦脉冲通量相关,且内环尺寸随泵浦通量的增大而增大,与通量的对数基本成线性关系。由图 6(d)~(f)可以看出,外径尺寸与激光通量的关系更为复杂,与双脉冲时域整形的关系更加密切,下文将进行具体分析。

由图 6(d)可知,在相同的泵浦通量下, $\eta = 0.67$ 和 $\eta = 0.75$ 的烧蚀外径的平方几乎相同,但均比相同通量下的单脉冲烧蚀尺寸大 $1000 \mu\text{m}^2$ 左右。这说明下降型($\eta > 0.50$)双脉冲烧蚀外径主要取决于泵浦脉冲,但经探测脉冲作用后,外径尺寸大于单脉冲烧蚀外径尺寸。

这进一步表明泵浦脉冲烧蚀喷溅对探测激光进行了衍射或散射,显著增加了烧蚀影响区域。图 6(d)中 $\eta \leq 0.50$ 的数据表明,在相同的泵浦通量下,随着探测脉冲能量增加,外径尺寸逐渐增大,这一规律在图 6(e)中表现得更加明显。

如图 6(e)所示,在相同的探测脉冲通量下,当探测通量小于 22 J/cm^2 时, $\eta=0.25$ 和 $\eta=0.33$ 的烧蚀外径尺寸几乎相同,且均与图 4 中的红色竖线一致。这说明泵浦通量小于 12.5 J/cm^2 时(单脉冲烧蚀阈值 9.5 J/cm^2),泵浦脉冲对玻璃表面产生的孵化效应或者散点式烧蚀不会影响探测脉冲导致的最终烧蚀外径尺寸,外径尺寸仅与探测通量有关,此时的烧蚀形貌对应于图 4 中的第二、第三类形貌。随着探测通量进一步增大,泵浦脉冲通量大于 12.5 J/cm^2 ,对玻璃表面产生了强烈的烧蚀效应, $\eta=0.33$ 时的烧蚀外径尺寸显著大于 $\eta=0.25$ 时的烧蚀外径尺寸。这表明泵浦通量越高,最终的烧蚀外径最大,此时的烧蚀形貌对应图 4 中的第四类形貌。

由图 6(f)可以看出: $\eta > 0.50$ 时的烧蚀外径尺寸显著大于 $\eta \leq 0.50$ 时的外径尺寸;在 $\eta > 0.50$ 和 $\eta \leq 0.50$ 两种情况下,烧蚀外径尺寸与具体的双脉冲形状关系不大。在高通量条件下,只有 $\eta \leq 0.50$ 的结果,外径烧蚀尺寸基本上取决于双脉冲的总能量。因此,双脉冲烧蚀区域的外径尺寸是泵浦和探测脉冲共同作用的结果。

3.3 烧蚀阈值分析

双脉冲作用在样品表面的激光焦斑呈高斯分布,如图 1 中的插图所示。由能量密度与光束半径、烧蚀阈值之间的关系^[31]可知,烧蚀直径 D 与激光能量密度 F (又称通量)的关系为

$$D^2 = 2\omega_0^2 (\ln F - \ln F_{th}), \quad (1)$$

式中: ω_0 为焦斑半径 ($1/e^2$); F_{th} 为烧蚀阈值。对烧蚀尺寸 D^2 与对应通量 $\ln F$ 进行线性拟合,所得拟合曲线的截距(即烧蚀尺寸 $D=0$ 时对应的通量大小)为烧蚀阈值,斜率为烧蚀光斑的尺寸。图 7 展示了单脉冲烧蚀尺寸与双脉冲通量的关系,以及双脉冲形状因子 $\eta=0.50$ 时(即泵浦与探测脉冲能量同时),内环和外径尺寸与双脉冲通量的关系。基于拟合曲线得到了对应的焦斑半径和烧蚀阈值,如表 1 所示。可以看到,通过内环尺寸与通量拟合曲线 ($D_{core}-F$ 曲线)得到的焦斑半径为 $38.2 \mu\text{m}$,这与单脉冲的焦斑半径 $38.5 \mu\text{m}$ 比较吻合。这一结果验证了图 6 得到的结论,即:对于双脉冲烧蚀形貌的环状结构,内环只取决于泵浦脉冲。基于式(1),将外径尺寸与通量的拟合曲线 ($D_{out}-F$ 曲线)得到的阈值定义为双脉冲作用于样品的烧蚀阈值,得到 $\eta=0.50$ 时双脉冲烧蚀阈值 $F_{train}=13.7 \text{ J/cm}^2$ 。该阈值对应的单个脉冲通量为 6.9 J/cm^2 ,低于单脉冲阈值,说明两个脉冲之间存在明显的孵化效应。拟合获

得的焦斑半径为 $44 \mu\text{m}$,大于测量获得的焦斑尺寸。这表明双脉冲之间的相互作用使得烧蚀影响区域的尺寸显著增加,但仍与焦斑尺寸保持一定的关系。

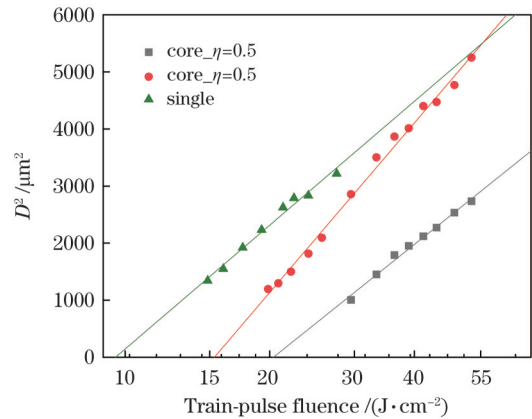


图 7 在 $\eta=0.50$ 的双脉冲条件下,内环和外径烧蚀尺寸与双脉冲通量的关系

Fig. 7 Ablation size of core and outer rings as a function of train-pulse fluence with $\eta=0.50$

表 1 根据拟合曲线得到的焦斑半径和烧蚀阈值
Table 1 Focus spot radius and ablation threshold obtained according fitting curves

Fitting curve	Focus spot radius $\omega_0 / \mu\text{m}$	Ablation threshold / $(\text{J} \cdot \text{cm}^{-2})$
$D_{core}-F$	38.2	20.4
$D_{out}-F$	44.0	13.7
Single pulse	38.5	9.5

此外,统计了不同形状双脉冲序列的烧蚀阈值,在图 8 中用绿色方形数据点线表示。可以看到,烧蚀阈值曲线关于 $\eta=0.50$ 非对称分布。这说明不同形状的双脉冲具有不同的烧蚀阈值,且烧蚀阈值与双脉冲形状密切相关,同时也表明上升型和下降型脉冲形状对应的烧蚀机理不相同。另外,分析了内环阈值对应的泵浦通量,在图 8 中用橙色三角数据点线表示。可见,内环阈值与双脉冲时域整形无关,稳定在 10 J/cm^2 附

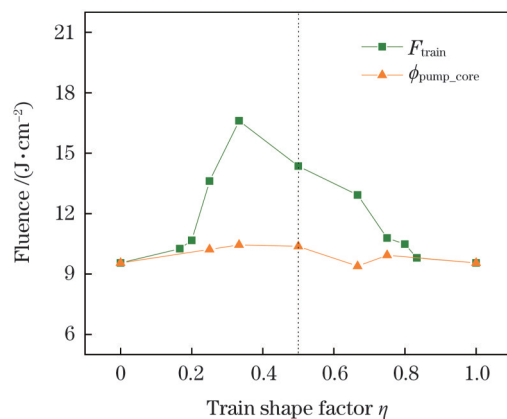


图 8 双脉冲序列烧蚀阈值与脉冲形状因子的关系
Fig. 8 Relation between ablation threshold and shape factor for dual-pulse train

近,与单脉冲烧蚀阈值 9.5 J/cm^2 相近,且仅与泵浦通量有关。

3.4 脉冲延迟的影响

为了研究双脉冲时间间隔对烧蚀过程的影响,在泵浦与探测脉冲能量比为 $1:1$ 且脉冲形状因子 $\eta=0.50$ 的条件下,将泵浦和探测脉冲间隔从 667 ps 缩短为 333 ps ,得到了两种脉冲间隔下的烧蚀形貌与通量的关系,如图 9 所示。可以看到,两种脉冲间隔下的烧蚀形貌类型相似,但烧蚀效果有所区别。为了定量地进行对比,统计了两种脉冲间隔下烧蚀尺寸与通量的关系曲线,如图 10 所示。根据图 10(a)可以得到与图 6(a)相同的结论,即:内环尺寸始终取决于泵浦脉冲,与双脉冲延迟无关。由图 10(b)可以看出:当通量较低时, 333 ps 脉冲间隔下的烧蚀尺寸较 667 ps 下的大,但烧蚀阈值较 667 ps 下的低。这说明较小脉冲间隔下的烧蚀效率明显更高。随着通量增加, 333 ps 脉冲间隔下的烧蚀尺寸较 667 ps 下的略小。这说明在

667 ps 脉冲间隔下,焦斑中心区域的高泵浦通量产生的烧蚀羽流和冲击波对探测激光形成了强烈的屏蔽效应,增加了烧蚀区域的外径尺寸。

通过仔细对比两种脉冲间隔下的高通量激光烧蚀形貌可以发现, 667 ps 脉冲间隔下存在多个环状烧蚀形貌,如图 9(b3)和图 9(b4)所示。 333 ps 脉冲间隔对应的烧蚀形貌中心周围的环状形貌少且不明显,如图 9(a3)和图 9(a4)所示。多个同心环的环状形貌与泵浦脉冲产生的冲击波高密度前沿有关,探测脉冲被冲击波前沿反射和干涉后,在样品表面形成了环形干涉条纹,从而形成了环状烧蚀形貌;泵浦脉冲烧蚀产生的冲击波前沿的传输特性决定了不同时刻冲击波前沿的尺寸,从而导致 333 ps 和 667 ps 脉冲间隔对应的烧蚀环状形貌有所区别。

对于脉冲序列激光加工来说,在低通量加工条件下,脉冲序列之间的时间间隔应适当减小,以避免前序脉冲烧蚀产物对后续脉冲激光的能量沉积产生屏蔽效

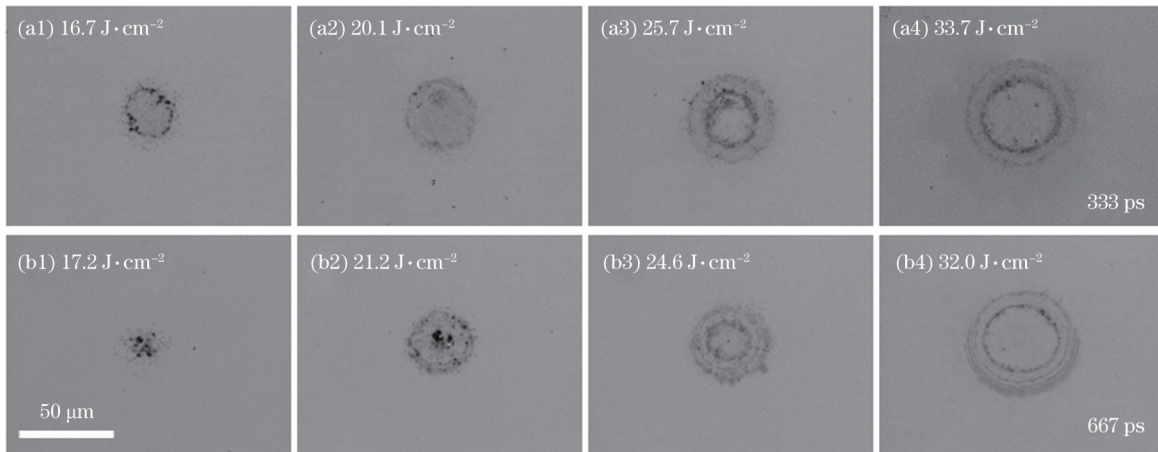


图 9 等能量双脉冲($\eta=0.50$)辐照条件下,不同脉冲间隔的双脉冲烧蚀形貌与激光通量的关系。(a)脉冲间隔为 333 ps ; (b)脉冲间隔为 667 ps

Fig. 9 Relationship between ablation morphology and laser fluence for different pulse intervals of dual-pulse with $\eta=0.50$. (a) Pulse interval of 333 ps ; (b) pulse interval of 667 ps

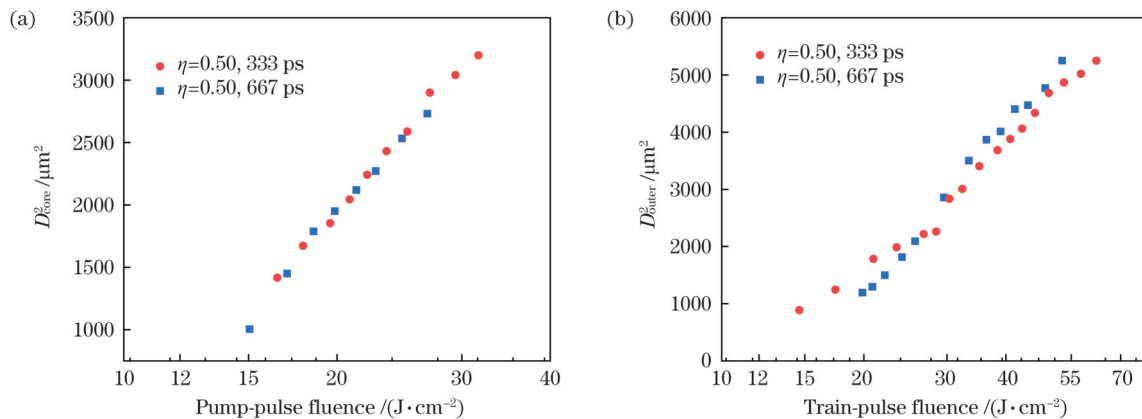


图 10 等能量双脉冲($\eta=0.5$)条件下,不同脉冲间隔的双脉冲烧蚀尺寸与激光通量的关系。(a) D_{core}^2 随泵浦通量的变化; (b) D_{outer}^2 随双脉冲通量的变化

Fig. 10 Under dual-pulse with $\eta=0.50$, relationship between ablation size and laser fluence for different pulse intervals of dual-pulse. (a) D_{core}^2 as a function of pump fluence; (b) D_{outer}^2 as a function of train-pulse fluence

应;在高通量加工条件下,需要综合考虑脉冲烧蚀产生的冲击波屏蔽效应对激光烧蚀效率的影响,将空气环境改为真空环境可避免冲击波的产生。

3.5 实验结果讨论

实验结果证明了双脉冲时域整形可以实现烧蚀形

貌的调控,烧蚀形貌的种类与泵浦脉冲通量密切相关。为了揭示双脉冲烧蚀的潜在物理机制,图 11 给出了 5 种烧蚀形貌产生过程的物理图像的定向分析,包括脉冲形状、泵浦脉冲烧蚀表面与探测脉冲的作用、最终烧蚀形貌等。

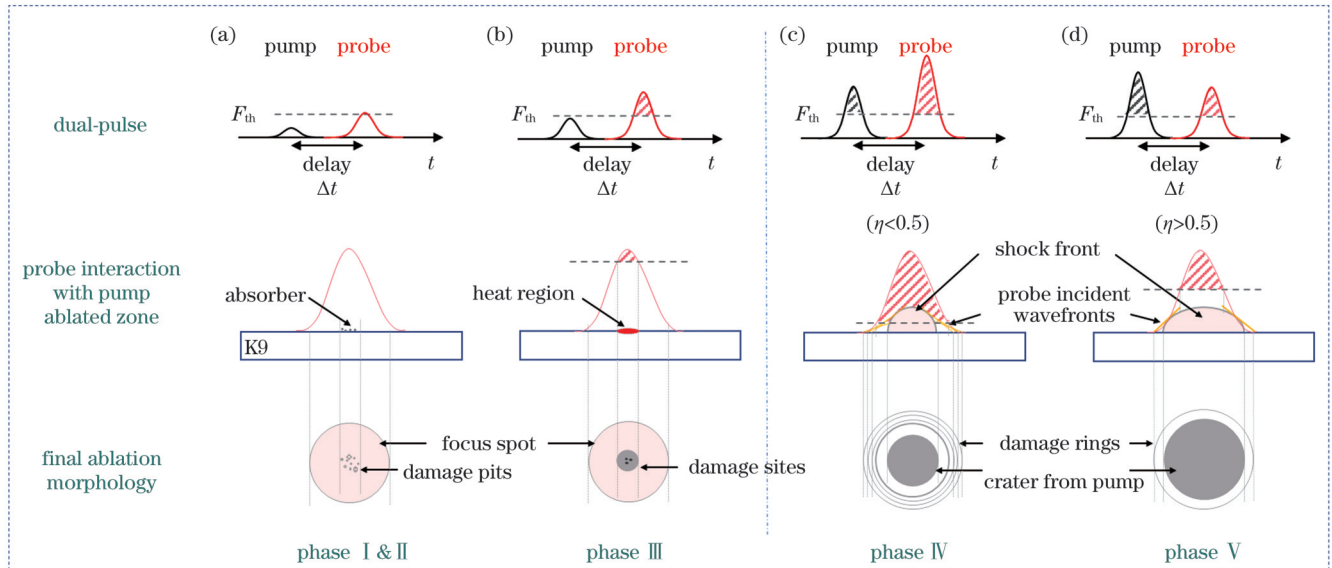


图 11 皮秒双脉冲作用于 K9 玻璃的烧蚀过程示意图。(a) 第一和第二类烧蚀形貌;(b) 第三类烧蚀形貌;(c) 第四类烧蚀形貌;(d) 第五类烧蚀形貌

Fig. 11 Schematics of ablation process of K9 glass by picosecond dual-pulse. (a) Ablation morphologies for phases I and II; (b) ablation morphology for phase III; (c) ablation morphology for phase IV; (d) ablation morphology for phase V

前三类烧蚀形貌对应的泵浦脉冲低于或接近于烧蚀阈值,此时泵浦脉冲没有产生影响或者仅对表面材料进行了改性(孵化效应),烧蚀形貌和烧蚀尺寸主要由探测通量决定,如图 11(a)和图 11(b)所示,双脉冲时域整形对烧蚀形貌的影响较小。当探测脉冲作用时,泵浦脉冲产生的烧蚀产物对探测脉冲没有产生屏蔽作用,烧蚀特性基本与单脉冲相似,而泵浦脉冲产生的烧蚀区域将增加对探测脉冲能量的吸收,从而增强烧蚀效应。随着泵浦通量增大到阈值附近,泵浦脉冲作用在样品表面已经足够对材料进行改性或产生散点状烧蚀,所以在探测脉冲作用后的烧蚀形貌(第三类烧蚀形貌)中能看出两个子脉冲相互作用的影响,如图 11(c)所示。

当泵浦脉冲通量高于烧蚀阈值时,烧蚀形貌是两个子脉冲共同作用的结果,即泵浦脉冲在样品表面的烧蚀产物对探测脉冲产生了显著影响,通过双脉冲时域整形可以有效调控烧蚀形貌,如图 11(c)和图 11(d)所示。 $\eta \leq 0.50$ 与 $\eta > 0.50$ 时的烧蚀形貌虽有区别,但形成机制可认为是一样的,即:探测脉冲与泵浦脉冲产生的冲击波发生干涉,产生了环状烧蚀结构。第四类烧蚀形貌限定在 $\eta \leq 0.50$ 的条件下,此时泵浦通量已经高于烧蚀阈值,在样品表面附近形成了冲击波前沿,其持续时间在纳秒量级^[33],所以更高通量的探测脉冲在到达表面之前首先与泵浦脉冲产生的冲击波相互作

用,从而导致干涉环的同心图案延伸至相当大的半径。第五类烧蚀形貌限定在 $\eta > 0.50$ 条件下,此时泵浦通量高于烧蚀阈值,而探测通量低于泵浦通量,因此较低通量的探测脉冲与泵浦脉冲形成的冲击波作用的程度小,烧蚀形貌仅表现为一个对比度低的外环,且随着探测通量降低,外环逐渐不再明显甚至消失。

综上,双脉冲时域整形通过调控泵浦和探测通量来灵活控制泵浦脉冲的初始烧蚀尺寸、烧蚀程度以及探测脉冲的激光传输和能量沉积过程,从而获得了多种类型的烧蚀形貌,实现烧蚀形貌的可控。

当脉冲序列的子脉冲重复频率达到 GHz 量级时,子脉冲时间间隔小于 1 ns,每个子脉冲的通量对于脉冲序列的烧蚀至关重要。如果子脉冲通量较低,子脉冲在样品表面的电离激发和烧蚀不会影响后续子脉冲的辐照,而且可以增加能量沉积,从而增强烧蚀效应。如果子脉冲通量足够高,子脉冲产生的烧蚀冲击波会对后续脉冲的能量沉积和烧蚀去除产生屏蔽效应,此时需要优化烧蚀气氛或子脉冲时间间隔等参数,以控制子脉冲在烧蚀过程中的相互影响,实现烧蚀效率的优化。

4 结 论

对亚纳秒间隔的双皮秒脉冲序列进行时域整形,可实现对 K9 玻璃表面烧蚀形貌、烧蚀尺寸和烧蚀阈值

的调控。在 667 ps 的脉冲间隔下,基于不同形状因子的双脉冲损伤形貌的变化规律将不同通量下的烧蚀形貌分为五类。烧蚀形貌主要取决于泵浦通量的大小,低于烧蚀阈值的泵浦通量对样品表面没有影响或者仅对样品表面产生微弱的改性作用,双脉冲的烧蚀特性基本与单脉冲相似。在高于烧蚀阈值的泵浦脉冲辐照下,双脉冲烧蚀形貌呈现“同心环”特征,这是探测光与泵浦脉冲产生的冲击波发生干涉产生的环状烧蚀结构,并且圆环的尺寸随着通量的增加而增大。通过分析特征形貌随通量变化的曲线可以得到:内环的特性基本上只取决于泵浦脉冲,而且内环尺寸和烧蚀阈值与单脉冲的相近;烧蚀外环尺寸是两个子脉冲烧蚀共同作用的结果;不同形状的双脉冲具有不同的烧蚀阈值,上升形状的双脉冲具有较高的烧蚀阈值。此外,进一步分析了 333 ps 子脉冲间隔下的烧蚀特性,并将其与 667 ps 子脉冲间隔下的烧蚀特征进行了对比,结果表明:在低通量辐照条件下,333 ps 子脉冲间隔的双脉冲具有更低的烧蚀阈值和更高的烧蚀效率;随着泵浦通量高于烧蚀阈值,泵浦脉冲的冲击波限制了较小脉冲间隔下探测脉冲的能量沉积。最后基于实验结果讨论了基于双脉冲序列的时域整形进行表面烧蚀调控的物理过程,这有助于更深入地理解和优化透明介质的 GHz 激光烧蚀。

参 考 文 献

- [1] Lorazo P, Lewis L J, Meunier M. Short-pulse laser ablation of solids: from phase explosion to fragmentation[J]. *Physical Review Letters*, 2003, 91(22): 225502.
- [2] Ameer-Beg S, Perrie W, Rathbone S, et al. Femtosecond laser microstructuring of materials[J]. *Applied Surface Science*, 1998, 127/128/129: 875-880.
- [3] Bulushev E, Bessmeltsev V, Dostovalov A, et al. High-speed and crack-free direct-writing of microchannels on glass by an IR femtosecond laser[J]. *Optics and Lasers in Engineering*, 2016, 79: 39-47.
- [4] Butkus S, Paipulas D, Sirutkaitis R, et al. Rapid cutting and drilling of transparent materials via femtosecond laser filamentation [J]. *Journal of Laser Micro/Nanoengineering*, 2014, 9(3): 213-220.
- [5] Qiu J R. Femtosecond laser-induced microstructures in glasses and applications in micro-optics[J]. *Chemical Record*, 2004, 4(1): 50-58.
- [6] Yan Z, Li P Y, Gao J C, et al. Anisotropic nanostructure generated by a spatial-temporal manipulated picosecond pulse for multidimensional optical data storage[J]. *Optics Letters*, 2021, 46(21): 5485-5488.
- [7] Taylor R, Hnatovsky C, Simova E. Applications of femtosecond laser induced self-organized planar nanocracks inside fused silica glass[J]. *Laser & Photonics Review*, 2008, 2(1/2): 26-46.
- [8] Du G Q, Yang Q, Chen F, et al. Direct fabrication of seamless roller molds with gapless and shaped-controlled concave microlens arrays[J]. *Optics Letters*, 2012, 37(21): 4404-4406.
- [9] 矫知真, 李纪超, 陈招弟, 等. 激光加工减反射表面研究进展[J]. *中国激光*, 2021, 48(2): 0202011.
Jiao Z Z, Li J C, Chen Z D, et al. Research progress on laser processing of antireflection surfaces[J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2021, 48(2): 0202011.
- [10] 王琳, 樊华, 李臻曠, 等. 基于飞秒激光诱导双折射效应的时间胶囊的制备(特邀)[J]. *光子学报*, 2021, 50(6): 0650105.
Wang L, Fan H, Li Z Z, et al. Fabrication of time capsules by femtosecond laser-induced birefringence(invited)[J]. *Acta Photonica Sinica*, 2021, 50(6): 0650105.
- [11] 王田宇, 李欣, 卞进田, 等. 激光诱导表面周期性结构的研究进展[J]. *激光与光电子学进展*, 2021, 58(7): 0700007.
Wang T Y, Li X, Bian J T, et al. Research progress of laser-induced surface periodic structure[J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2021, 58(7): 0700007.
- [12] Stankevič V, Račiukaitis G, Gečys P. Chemical etching of fused silica after modification with two-pulse bursts of femtosecond laser [J]. *Optics Express*, 2021, 29(20): 31393-31407.
- [13] Stankevič V, Karosas J, Račiukaitis G, et al. Improvement of etching anisotropy in fused silica by dual-pulse fabrication[J]. *Micromachines*, 2020, 11(5): 483.
- [14] Schwarz S, Rung S, Esen C, et al. Enhanced ablation efficiency using GHz bursts in micromachining fused silica[J]. *Optics Letters*, 2021, 46(2): 282-285.
- [15] Lin Z Y, Ji L F, Hong M H. Enhancement of femtosecond laser-induced surface ablation via temporal overlapping dual-pulse irradiation[J]. *Photonics Research*, 2020, 8(3): 271-278.
- [16] Žemaitis A, Gaidys M, Gečys P, et al. Femtosecond laser ablation by bursts in the MHz and GHz pulse repetition rates[J]. *Optics Express*, 2021, 29(5): 7641-7653.
- [17] Mishchik K, Bonamis G, Qiao J, et al. High-efficiency femtosecond ablation of silicon with GHz repetition rate laser source[J]. *Optics Letters*, 2019, 44(9): 2193-2196.
- [18] Bonamis G, Audouard E, Hönninger C, et al. Systematic study of laser ablation with GHz bursts of femtosecond pulses[J]. *Optics Express*, 2020, 28(19): 27702-27714.
- [19] Gedvilas M, Račiukaitis G. Spatial zigzag evolution of cracks in moving sapphire initiated by bursts of picosecond laser pulses for ultrafast wafer dicing[J]. *RSC Advances*, 2020, 10(55): 33213-33220.
- [20] Kerse C, Kalaycıoğlu H, Elahi P, et al. Ablation-cooled material removal with ultrafast bursts of pulses[J]. *Nature*, 2016, 537(7618): 84-88.
- [21] Remund S, Gafner M, Chaja M, et al. Investigations concerning the removal rate and surface quality for laser machining with GHz bursts in real surface structuring applications[C]//2020 Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO), May 10-15, 2020, San Jose, CA, USA. Washington, D.C.: Optica Publishing Group, 2020: AW4I.3.
- [22] Mur J, Petkovšek R. Near-THz bursts of pulses-governing surface ablation mechanisms for laser material processing[J]. *Applied Surface Science*, 2019, 478: 355-360.
- [23] Remund S M, Gafner M, Chaja M V, et al. Milling applications with GHz burst: investigations concerning the removal rate and machining quality[J]. *Procedia CIRP*, 2020, 94: 850-855.
- [24] Žemaitis A, Gečys P, Barkauskas M, et al. Highly-efficient laser ablation of copper by bursts of ultrashort tuneable (fs-ps) pulses[J]. *Scientific Reports*, 2019, 9: 12280.
- [25] Astrauskas I, Kaksis E, Flöry T, et al. High-energy pulse stacking via regenerative pulse-burst amplification[J]. *Optics Letters*, 2017, 42(11): 2201-2204.
- [26] Li M, Menon S, Nibarger J P, et al. Ultrafast electron dynamics in femtosecond optical breakdown of dielectrics[J]. *Physical Review Letters*, 1999, 82(11): 2394-2397.
- [27] Nguyen D N, Emmert L A, Patel D, et al. Transient phenomena in the dielectric breakdown of HfO₂ optical films probed by ultrafast laser pulse pairs[J]. *Applied Physics Letters*, 2010, 97(19): 191909.
- [28] Kařka K R P, Hoffman B N, Kozlov A A, et al. Dynamics of electronic excitations involved in laser-induced damage in HfO₂ and SiO₂ films[J]. *Optics Letters*, 2021, 46(7): 1684-1687.
- [29] Liu W F, Sun M Y, Cui Z J, et al. Modulation of laser damage by temporal shaping of double picosecond pulses[J]. *Optics Letters*, 2022, 47(15): 3856-3859.

- [30] Heins A, Guo C L. Shock-induced concentric rings in femtosecond laser ablation of glass[J]. *Journal of Applied Physics*, 2013, 113 (22): 223506.
- [31] 郝艳飞, 孙明营, 时双, 等. 皮秒激光烧蚀 K9 玻璃后表面损伤研究[J]. *中国激光*, 2017, 44(1): 0102015.
Hao Y F, Sun M Y, Shi S, et al. Research on rear surface damage in picosecond laser ablation of K9 glass[J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2017, 44(1): 0102015.
- [32] Ly S, Shen N, Negres R A, et al. The role of defects in laser-induced modifications of silica coatings and fused silica using picosecond pulses at 1053 nm: I. Damage morphology[J]. *Optics Express*, 2017, 25(13): 15161-15178.
- [33] Wang Q S, Jiang L, Sun J Y, et al. Enhancing the expansion of a plasma shockwave by crater-induced laser refocusing in femtosecond laser ablation of fused silica[J]. *Photonics Research*, 2017, 5(5): 488-493.

Picosecond Laser Ablation of Glass Surface by Dual-Pulse Temporal Shaping

Liu Wenfeng^{1,2}, Sun Mingying^{1*}, Shi Yiqun^{1,2}, Guo Yajing¹, Xu Yingming^{1,2}, Jiao Zhaoyang¹, Cui Zijian¹, Zhu Jianqiang^{1**}

¹*National Laboratory on High Power Laser and Physics, Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China;*

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

Abstract

Objective In recent years, ultrashort pulsed laser material micromachining based on the burst mode has received extensive attention, and the burst mode is an effective method to improve the efficiency and quality of material removal. For higher processing efficiency, the subpulse repetition frequency is increased to GHz, which enables the precise regulation of both electron dynamics and thermal effects and thus the control and optimization of the ablation mechanism and effect. However, pulse train ablation involves complex physical processes and experimental phenomena. It is important to study the physical mechanisms of pulse train ablation. Research on laser micromachining of GHz pulse trains mainly focuses on femtosecond lasers; however, the ablation effect of picosecond pulse trains is still less studied, although picosecond lasers are currently the most widely used in industry. Pico- and femto-pulses have significant ablation effect differences. Among them, dual-pulse (pump-probe) is the simplest form of the burst mode, which is the main method used to study the physical process of pulse train ablation. Therefore, the study of picosecond dual-pulse ablation is important to reveal the physical mechanism of picosecond burst ablation. In this study, we combined a dual-pulse train and temporal shaping to investigate the ablation process and mechanism of the K9 glass surface.

Methods We proposed the temporal shaping of a dual-pulse train at the sub-nanosecond scale to study laser ablation on a glass surface. First, the time interval of the dual-pulse was fixed at 667 ps. The effects of single- and dual-pulses with various shapes on the laser ablation characteristics were studied by adjusting the energy ratio of the dual-pulse. The ablation morphology under different fluences was classified based on similarities with various dual-pulse shapes. Then, the distribution curve of the characteristic morphology with fluence was used to analyze the law of subpulse ablation. Second, we further reduced the time interval of the flat-shaped dual-pulse to 333 ps and analyzed the variation law and factors of the ablation characteristics under two delays. Finally, the physical process of surface ablation modulation based on the temporal shaping of the dual-pulse train is discussed based on the experimental results.

Results and Discussions The experimental results show that the temporally shaped dual-picosecond pulse train at the sub-nanosecond scale has a significant effect on the ablation morphology, size, and threshold of K9 glass surface. With a subpulse interval of 667 ps, the ablation morphology at different fluences was grouped into five characteristic types based on the dual-pulse ablation morphology with various shape factors (Fig. 4). The ablation morphology depends mainly on the pump pulse fluence. The pump fluence below the ablation threshold has no effect or only weakly modified areas on the sample surface, and the ablation characteristics of dual-pulse are similar to those of a single pulse. With a pump pulse above the threshold, the dual-pulse ablation morphology has concentric rings (Fig. 5). The distribution curve of the characteristic morphology with fluence (Fig. 6) demonstrates that the characteristics of the core ring depend only on the pump pulse, whose size and threshold are similar to those of the single pulse, whereas the outer size is the result of the combined effect of the two sub-pulse ablations. Dual-pulses of various shapes have different ablation thresholds (Fig. 8), and the ramp-up-shaped train has a higher threshold. In addition, we compared the ablation morphology of flat-shaped dual-pulses with subpulse intervals of 333 and 667 ps (Fig. 9). A smaller interval has a lower threshold and higher ablation efficiency at a low fluence, whereas the ablation outcome of the pump pulse above the threshold prevents the energy deposition of the probe pulse (Fig. 10). A qualitative analysis of the schematic of the ablation process is shown in Fig. 11. By adjusting the fluence of the pump and probe pulses, the temporally shaped dual-pulse can flexibly control the initial ablation size and plumes caused by the pump pulse, laser propagation, and energy deposition of the probe pulse, resulting in various types of ablation morphologies.

Conclusions Based on the dual-pulse with sub-nanosecond intervals, we investigate the regulation of dual-pulse temporal shaping on the picosecond ablation characteristics of the K9 glass surface, including ablation morphology, size, and threshold. First, with a subpulse interval of 667 ps, the dependence of the ablation morphology on the laser fluence is significantly different for various shapes of dual-pulses, and the pump pulse plays a critical role. When the pump fluence is below the threshold, the dual-pulse ablation characteristics are similar to those of a single pulse. When the pump fluence is near the threshold, the ablation of pump pulse on the surface at the submicron scale significantly enhances the ablation effect of the probe pulse. When the pump fluence is more than 1.3 times of the threshold, the pump pulse generates a shock wave near the surface, and the probe pulse is reflected and interfered by the high-density shock front, which produces concentric rings around the central ablation region. The core size of dual-pulse ablation is related to the pump fluence, whereas the outer diameter size is related to both the dual-pulse shape and fluence. Second, we compare the ablation morphology of flat-shaped dual-pulses with subpulse intervals of 333 and 667 ps. A smaller interval enhances the ablation effect at a low fluence, whereas the ablation outcome of a pump pulse above the threshold prevents the energy deposition of the probe pulse. The difference in concentric ring morphology between the two intervals reflects the transmission of the shock front caused by the pump pulse. Finally, the physical mechanism of surface ablation regulation by dual-pulse temporal shaping is discussed based on the experimental results, which contributes to further understanding and optimization of the laser ablation of transparent materials in GHz.

Key words laser technique; laser ablation; picosecond laser; dual-pulse; temporal shaping