

飞秒激光多脉冲烧蚀过程中飞秒时间分辨电子状态的观测研究

王谦豪^{1,2}, 赵华龙^{1*}, 杨小君¹, 温文龙¹, 李益^{1,2}

¹中国科学院西安光学精密机械研究所光子制造系统与应用研究中心, 陕西 西安 710119;

²中国科学院大学, 北京 100049

摘要 为研究飞秒激光加工硬脆透明材料时存在的“微裂纹”与“诱导条纹”等共性工艺问题,利用飞秒时间分辨泵浦探测阴影成像技术,对飞秒激光多脉冲烧蚀石英玻璃过程中的电子动力学过程进行成像,分析了激光脉冲电离材料初期(700 fs之前)等离子体丝的演化情况。多脉冲诱导微结构的存在使成丝区域分布在微结构的两侧与光脉冲传播的轴线方向,前者主要是由微结构侧壁对光脉冲的折射造成的,而后者则是由微结构底面与侧壁形貌不同导致的光程差引起的。实验结果揭示了多脉冲加工过程中脉冲串诱导微结构对后续光场的重塑效应,该效应影响了等离子体成丝区域与能量沉积的分布,这是共性工艺问题产生的核心机制。

关键词 激光技术; 飞秒激光微加工; 泵浦探测阴影成像; 多脉冲烧蚀; 等离子体

中图分类号 TN249

文献标志码 A

DOI: 10.3788/CJL230834

1 引言

金刚石、蓝宝石、碳化硅与石英玻璃等硬脆透明材料凭借其优异的物理、化学和力学性能在航空航天、电子制造等领域被广泛应用^[1-2]。飞秒激光具有极高的峰值功率与高斯分布的横场能量,其与材料相互作用时会发生非线性吸收过程,该过程包含单光子与多光子吸收^[3]。这种物理机制使得飞秒激光微加工技术在透明硬脆材料的刻蚀、切割与钻孔等方面具有无可替代的优势。对于单脉冲烧蚀而言,非线性吸收过程使得飞秒激光加工具有超过衍射极限的空间分辨率与可控的热影响区^[4]。但在实际的激光微加工应用中,往往需要通过调节焦点在材料内的相对位置与脉冲的辐照数量来控制消融后结构的形貌与深度^[5-9],其中包含了复杂的物理过程,包括能量沉积^[10-11]、能量转移^[12]与能量弛豫^[13]等各种机制。在这些机制共同存在的极端非平衡状态下,人们对材料内“微裂纹”与“诱导条纹”等共性工艺问题的产生机制尚没有直观的认识。因此,从机理上对这些工艺问题的形成进行解释,是认识光与材料相互作用以及多脉冲加工硬脆材料物理过程的重中之重。

飞秒激光脉冲在介质中传播时,由于光功率密度非常大(大于自聚焦的临界功率),会发生自聚焦效应^[14],而且随着聚焦的增强材料内部会发生非线性电离(包括光致电离与雪崩电离)。自聚焦现象是在强电

磁场存在的情况下由折射率非线性变化的光学克尔效应导致的。强激光辐照材料时,材料的折射率并不恒定。折射率不仅与激光频率有关(即激光色散),还依赖于激光强度的变化。因此,具有高斯强度分布的强激光场会产生一个不均匀的折射率分布,其波前的曲率与透镜类似。这种效应的累积就导致了介质内部光束的自聚焦。电离的自由电子等离子体会对后沿的光脉冲进行散焦,当自聚焦效应与散焦同时存在时,就产生了激光成丝(在介质内部表现为电离的等离子体丝)。

Sun等^[15]通过数值模拟研究了皮秒多脉冲烧蚀玻璃过程中的电子动力学,模拟结果表明皮秒激光对玻璃的损伤机制本质上取决于光束在材料中的非线性传播。其中有规律的能量沉积会导致凹坑下产生穿透层,因为在皮秒脉冲的作用下,材料的去除依赖于电子与晶格之间的热传递。“裂纹”被确定为由电离强度的峰值引起的损伤,代表了非线性传播过程中电子数密度的峰值。Wang等^[16]通过泵浦探测阴影成像技术对多脉冲吸收过程中的结构辅助激光诱导等离子体成丝过程进行了直接观测。结果显示,在飞秒激光多脉冲烧蚀过程中,折射效应引起的激光发散传播与自聚焦效应之间的竞争重塑了随后到来的光场。上述研究在一定程度上揭示了超快激光在硬脆材料中的传播以及超快激光对硬脆材料的损伤机制,但还远远不能满足实际的加工需求。如:刻蚀微流道时,需要将焦点向材

收稿日期: 2023-05-16; 修回日期: 2023-07-23; 录用日期: 2023-08-01; 网络首发日期: 2023-08-15

通信作者: *281731466@qq.com

料内部进给并辐照一定的脉冲数,以实现微流道形貌的控制,而且不同的进给量与聚焦条件对应着不同的微观形貌,需要重新考虑不同微观形貌下的光场非线性传播与电离;为了去除结构内的残渣,在激光加工完成之后需要进行超声清洗等处理,其间会不可避免地产生产微裂纹等共性工艺问题。

为了探究飞秒激光微加工实际应用场景下材料内部微裂纹与诱导条纹等共性工艺问题的产生与光场传播机制,笔者基于泵浦探测阴影成像技术得到了不同聚焦条件与焦点位置下材料微结构的形成以及微结构对后续光场的重塑过程,同时通过飞秒时间分辨等离子体丝的阴影演化图像揭示了共性工艺问题的产生机制。

2 实验原理

2.1 实验装置

搭建的飞秒时间分辨泵浦探测阴影成像实验装置如图 1 所示。掺镱固体飞秒激光器(Light Conversion, PHAROS)发出中心波长为 1026 nm、脉冲宽度为 290 fs、单脉冲能量为 200 μ J 的水平线偏振激光脉冲。总体思

路为:激光器输出的主激光脉冲先经过一对反射镜(M1与M2)进行指向性控制(可通过增加M1与M2之间的空间距离来获得更大的调整量),之后经过半波片(HWP1)和偏振分光棱镜(PBS1)进行激光功率的总体调节。调整半波片快轴与激光脉冲偏振方向的夹角使光束经PBS1之后获得两种偏振分量(S偏振与P偏振)。P光经过非偏振平板分束镜(BS,反射透射比为9:1)后分为泵浦端与探测端,泵浦端占总功率的90%。泵浦端经半波片(HWP2)与偏振分束棱镜(PBS2)进行功率调节后经显微物镜聚焦在材料上,移动位移平台可对材料与焦点之间的相对空间位置进行调节。采用步进电机延迟线对探测端与泵浦端的相对光程进行调节。探测光经BBO晶体进行非线性频率变换(倍频)后进入短波反射镜,短波反射镜输出较为纯净的倍频光。当聚焦的泵浦光与材料作用时,探测光从材料侧面入射,穿过作用区域后经显微物镜放大,最后在CCD上成像。焦点存在自发光辐射,因此需要采用激光滤波片进行短波选择,以提高信噪比。由于CCD靶面尺寸的限制,在进行大范围成像时,将CCD进行一维移动(stage 2),以获得不同的成像区域。

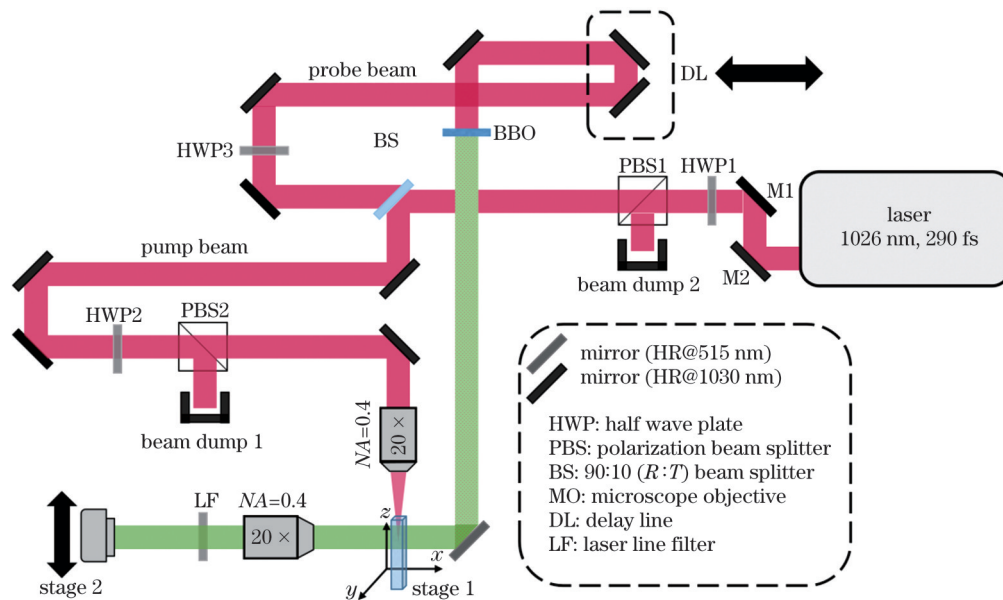


图 1 泵浦探测阴影成像装置

Fig. 1 Pump-probe shadow imaging device

2.2 焦点位置的确定以及不同焦点位置下石英表面的激光通量计算

焦点的空间位置决定了实验数据的准确性。通过对聚焦焦点处空气电离等离子体的阴影进行成像即可确定焦点的实际空间位置。调节步进电机的延迟线,找到空气电离最强的时刻。对材料所在的机械位移平台进行 z 轴调节,当空气等离子体刚与材料表面接触时即为 $z=0$ 处,如图 2 所示。

在控制焦点向石英内部移动的过程中,表面的激光通量会发生变化,这对于激光脉冲在石英内部的传

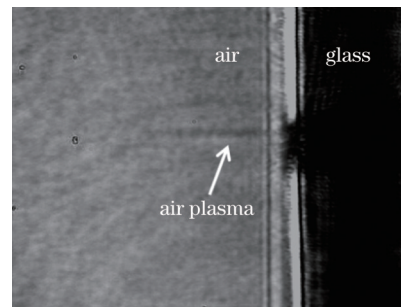


图 2 空气等离子体在材料表面

Fig. 2 Air plasma at the material surface

播电离是至关重要的。依据基模高斯光束的传播规律,笔者计算了现有条件下不同焦点位置处石英表面的激光通量。图 3 中: w_0 为聚焦显微物镜之前光束的束腰半径,亦为激光器出光口的光斑半径(3 mm); l 为透镜(透镜的焦距为 F)前束腰位置到透镜平面的距离,亦为泵浦光的光程(1000 mm); w'_0 为经透镜聚焦后的束腰半径。使用高斯光束的 q 参数计算聚焦后的束腰半径以及不同焦点位置下石英表面的能流密度。 q 参数体现了高斯光束的束腰半径与等相位面这两个重要参数。

设入射高斯光束束腰处的 q 参数为 q_0 ,在透镜面处出射的高斯光束的 q 参数为 q_F ,出射高斯光束束腰处的 q 参数为 q'_0 ,则可得

$$q_0 = i \frac{\pi w_0^2}{\lambda}, \quad (1)$$

$$q_F = q'_0 - l' = i \frac{\pi w'^2_0}{\lambda} - l', \quad (2)$$

式中: λ 为波长; l' 为透镜与聚焦后束腰之间的距离。

从入射高斯光束束腰到透镜出射面的变化矩阵为

$$\begin{bmatrix} A & B \\ C & D \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ -\frac{1}{F} & 1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 & l \\ 0 & 1 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1 & l \\ -\frac{1}{F} & 1 - \frac{l}{F} \end{bmatrix}, \quad (3)$$

则经透镜出射的高斯光束在出射面处的 q_F 参数为

$$q_F = \frac{Aq_0 + B}{Cq_0 + D} = \frac{i \frac{\pi w'^2_0}{\lambda} + l}{-\frac{1}{F} i \frac{\pi w'^2_0}{\lambda} + \left(1 - \frac{l}{F}\right)} = i \frac{\pi w'^2_0}{\lambda} - l'. \quad (4)$$

式(4)的虚部和实部相等,可得,

$$l' = F + \frac{(l-F)F^2}{(l-F)^2 + \left(\frac{\pi w_0^2}{\lambda}\right)^2}, \quad (5)$$

$$w'^2_0 = \frac{F^2 w_0^2}{(F-l)^2 + \left(\frac{\pi w_0^2}{\lambda}\right)^2}. \quad (6)$$

认为聚焦后的焦点为高斯光束经透镜传输后的束

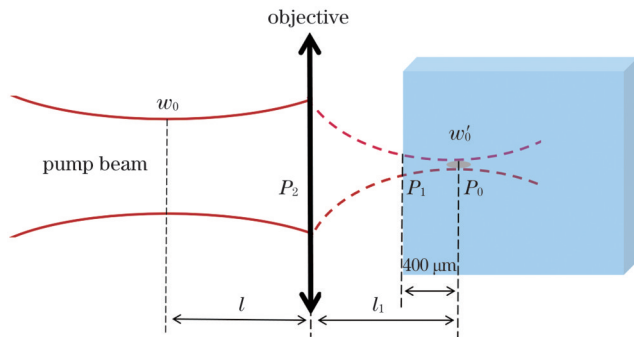


图 3 焦点在材料内部 100 μm 处时高斯光束的传播情况

Fig. 3 Propagation of Gaussian beam when the focus is 100 μm inside the material

腰。计算不同焦点位置下材料表面的面积,这里的面积用不同位置的光斑半径来表征,则

$$w(z) = w_0 \sqrt{1 + \left(\frac{z}{F}\right)^2} = w_0 \sqrt{1 + \left(\frac{\lambda z}{\pi w_0^2}\right)^2}. \quad (7)$$

令 z 取 0 μm 和 100 μm 即可得到不同聚焦物镜、不同焦点位置下材料表面的功率密度,如表 1 所示。

表 1 不同条件下材料表面的光功率密度

Table 1 Power density on material surface under different conditions

Focusing condition	Focusing position	Power density / ($\text{W} \cdot \text{cm}^{-3}$)
20 \times , NA=0.4	Surface(0 μm)	2.3×10^{15}
20 \times , NA=0.4	+100 μm	2×10^{12}
40 \times , NA=0.6	Surface(0 μm)	5.1×10^{15}
40 \times , NA=0.6	+100 μm	9.04×10^{11}

3 分析与讨论

本文研究了多脉冲烧蚀中微结构的形成对后续光脉冲传播与电离的影响。调节 HWP2(半波片)与 PBS2(偏振分光棱镜)控制泵浦光功率为 4.5 W, 20 kHz 重复频率对应的单脉冲能量为 22.5 μJ 。向材料辐照 219 个脉冲后,观察第 220 个脉冲在材料内部的传播情况(图 4)。此外,在不同的聚焦条件与焦点位置下,多脉冲(219 个)烧蚀后会形成侧壁斜率和深径比等不同的微结构形貌。当泵浦光脉冲通过介质内部时,会通过电离产生自由电子等离子体,等离子体吸收探测光时会在视场内形成阴影。

首先在 20 \times (NA=0.4)的聚焦条件下,分别研究泵浦光焦点在石英表面及石英内部 100 μm 时多脉冲烧蚀微结构过程中辅助脉冲的传播与电离情况。如图 5 所示,当焦点位置在石英表面时,石英表面在激光脉冲的作用下逐渐形成小孔凹坑形貌,凹坑深度为 36.8 μm 。同时,在脉冲传播过程中,小孔两侧出现了等离子体“侧枝”;随着延迟时间增加,在激光脉冲传播的中轴线上出现了电子数密度的峰值。当焦点位置在石英材料内部 100 μm 处时(如图 6 所示),小孔的侧壁斜率减小,出现了更明显的侧枝等离子体分布,同时轴线上等离子体距离小孔底部更远。

基于阴影图像中的相对瞬态透过率分布,计算出了不同延迟时间下介质内部飞秒激光激发等离子体的电子数密度。对 20 \times (NA=0.4)的聚焦情况进行透过率分析。图中阴影的瞬态透过率可以通过阴影图像的相对灰度值的比值进行表述,那么瞬态透过率 T 可表示为

$$T = \frac{I_{\text{pf}}}{I_{\text{pb}}} = 1 - \frac{g_{\text{m}} - g_{\text{b}}}{g_{\text{b}}}, \quad (8)$$

即瞬态透过率为探测光透过介质、等离子体之后的强

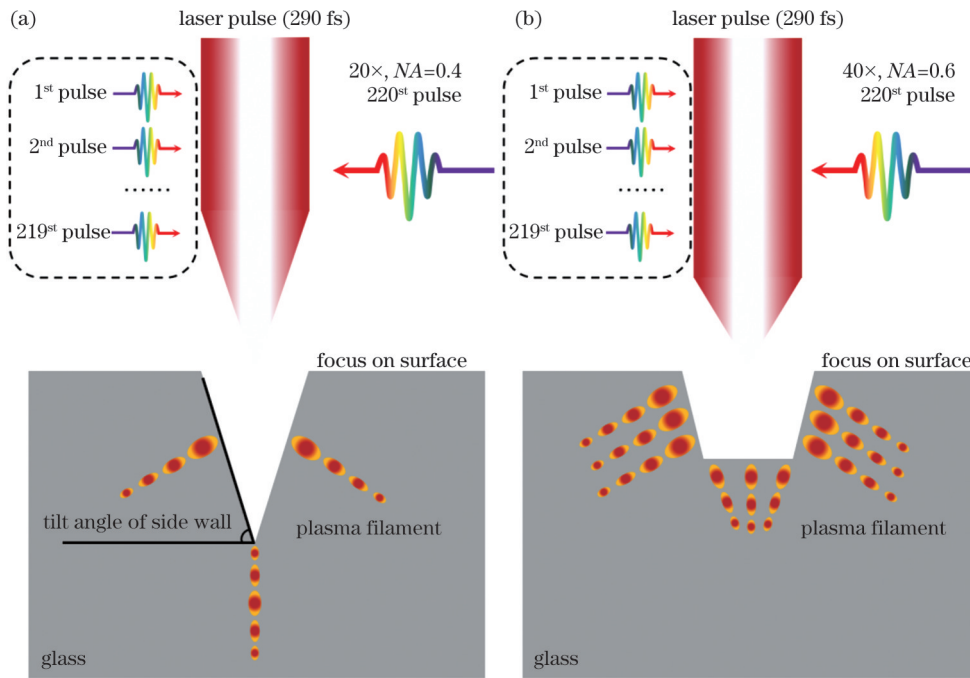


图 4 焦点在石英表面时,前 219 个脉冲辐照材料所形成的微结构对后续单个脉冲传播与电离的影响。(a) $20\times$, $NA=0.4$; (b) $40\times$, $NA=0.6$

Fig. 4 Effects of the microstructure formed by the first 219 pulses irradiating the material on propagation and ionization of subsequent individual pulses when the focus is on the quartz surface. (a) $20\times$, $NA=0.4$; (b) $40\times$, $NA=0.6$

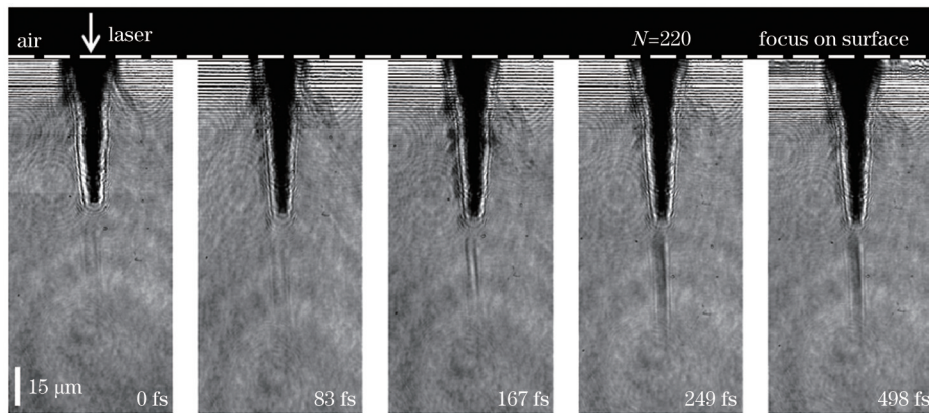


图 5 $20\times$ 聚焦且焦点在石英表面时,第 220 个脉冲的传播过程

Fig. 5 Propagation of the 220th pulse when the focusing condition is $20\times$ and the focal point is at the quartz surface

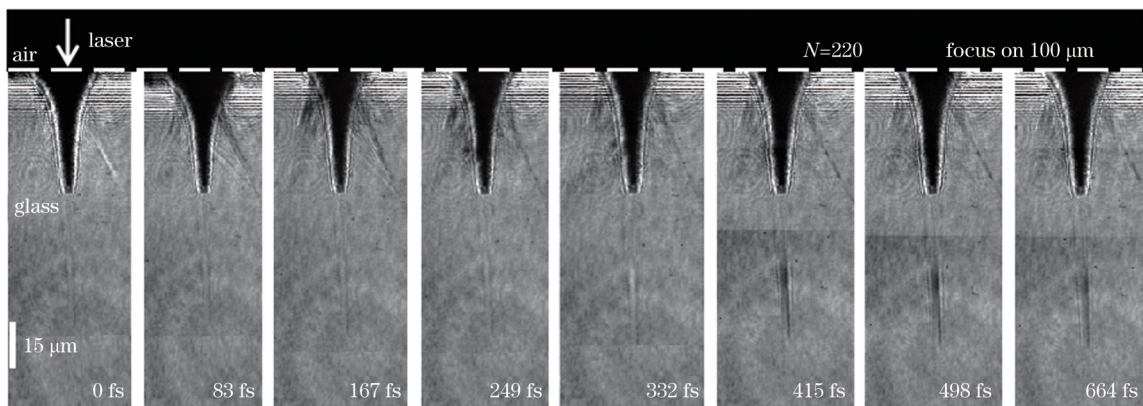


图 6 $20\times$ 聚焦且焦点在石英内部 $100\ \mu\text{m}$ 时,第 220 个脉冲的传播过程

Fig. 6 Propagation of the 220th pulse when the focusing condition is $20\times$ and the focal point is $100\ \mu\text{m}$ inside the quartz

度 I_{pf} 与仅透过介质时的强度 I_{pb} 之比。式(8)中的 g_m 为反转后的灰度值, g_b 为读取的背景的反转灰度值。设 α 为介质内部等离子体的吸收系数, 则根据一维微分式 $dI_p/dy = -\alpha I^{[17]}$, 可以求得吸收系数为

$$\alpha = \frac{1}{d} \ln \left(\frac{I_{pf}}{I_{pb}} \right), \quad (9)$$

式中: d 为等离子体丝的直径。吸收系数 α 与等离子体的频率 ω_p 直接相关, 即

$$\alpha = \frac{\tau}{nc} \frac{\omega_p^2}{1 + \omega^2 \tau^2}, \quad (10)$$

式中: n 为玻璃介质的折射率系数; c 为介质中的光速; ω 为探测光的频率; τ 为散射时间, 其值为 0.2 fs。等离子体的频率 ω_p 是电子数密度 n_e 的函数, 这说明电子数密度与瞬态透过率直接相关。下面对介质中等离子体的电子数密度与分布做估计, 此处忽略等离子体的三维特征对电子数密度的影响。

瞬态电子数密度主要由探测图像的区域透过率

T_a 与 Drude 模型^[18] 中的逆韧致辐射吸收截面 σ 决定, 即

$$n_e = - \frac{\ln T_a}{\sigma x_{FWHM}}. \quad (11)$$

式中: x_{FWHM} 为半峰全宽。

为了更清楚地观察第 220 个脉冲在凹坑中的传播情况, 基于阴影图进行计算并将计算结果转化为彩色电子数密度分布图。图 7 所示为第 220 个脉冲的传播过程。当焦点在石英表面时, 凹坑的周围形成了自由电子层。这是由于激光脉冲在当前形貌的凹坑中传播时, 沿着凹坑侧壁进行了发散传播, 而到达凹坑底部时, 激光脉冲没有发散, 而是形成了电子密度较高的多丝会聚现象, 这是由凹坑底部相对平坦的形貌决定的。当焦点在材料内部 100 μm 时, 凹坑侧壁的斜率减小, 出现了更明显的等离子体“侧枝”。凹坑侧壁斜率的减小使得泵浦光在凹坑侧壁的人射角减小, 这样在后续脉冲到来时就会进行聚焦成丝。从图 7(b) 中可以看出, 在 83 fs 时形成了明显的侧枝。在 415 fs 时刻, 在激光脉冲传播轴线上出现了明显的等离子体密度峰值。

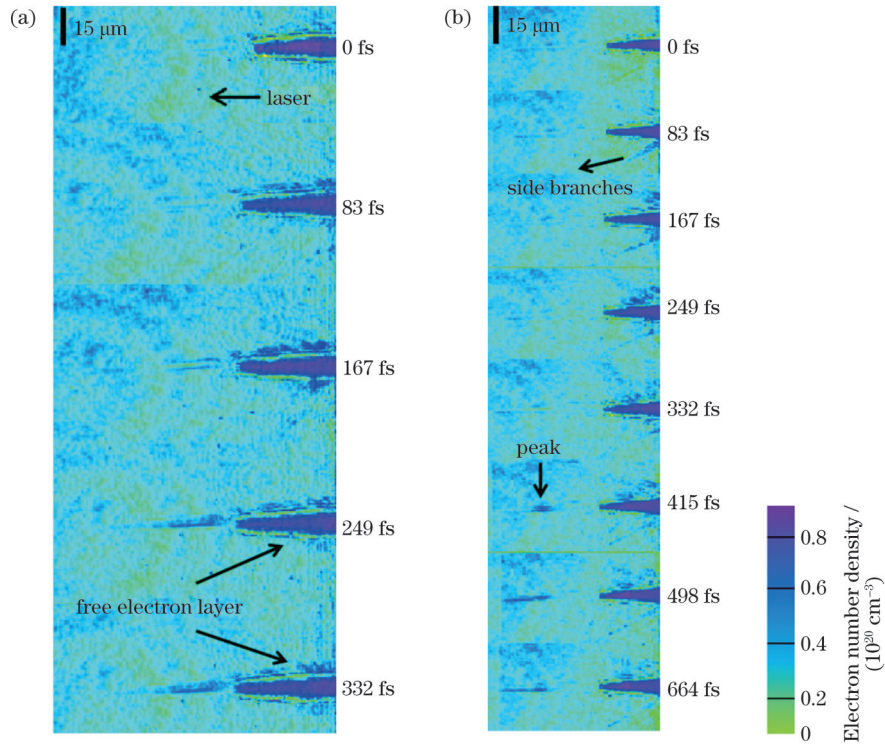


图 7 彩色自由电子数密度分布图。(a)焦点在石英表面; (b)焦点在石英内部 100 μm 处

Fig. 7 Color number density distribution of free electrons. (a) Focal point is at the quartz surface; (b) focal point is 100 μm inside the quartz

进一步得到了不同时刻、不同焦点位置处泵浦光传输轴线上的瞬态电子数密度分布, 如图 8 所示。当焦点在石英表面时, 0 fs 时刻的最大电子数密度为 $0.43 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$; 随着延时增加, 电子数密度逐渐升高, 并在延时为 249 fs 时达到最大值 $0.48 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ 。当焦点在石英内部 100 μm 时, 0 fs 时刻的最大电子数密度为 $0.49 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$, 电子数密度在 498 fs 时达到极大

值 $0.66 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ 。由图 7(b) 也可以看出焦点位置向石英内部进给之后, 传输轴线上的最大电子数密度的出现时间相对更晚。同时, 电子数密度的峰值与凹坑底部的距离也更远, 这主要是因为几何焦点本身相对于凹坑更远, 而且当泵浦光在凹坑内传播时, 经凹坑侧壁与底部传播的光程不同导致了光场的空间强度分布不同, 进而改变了传播轴线上的最大电离位置。总体

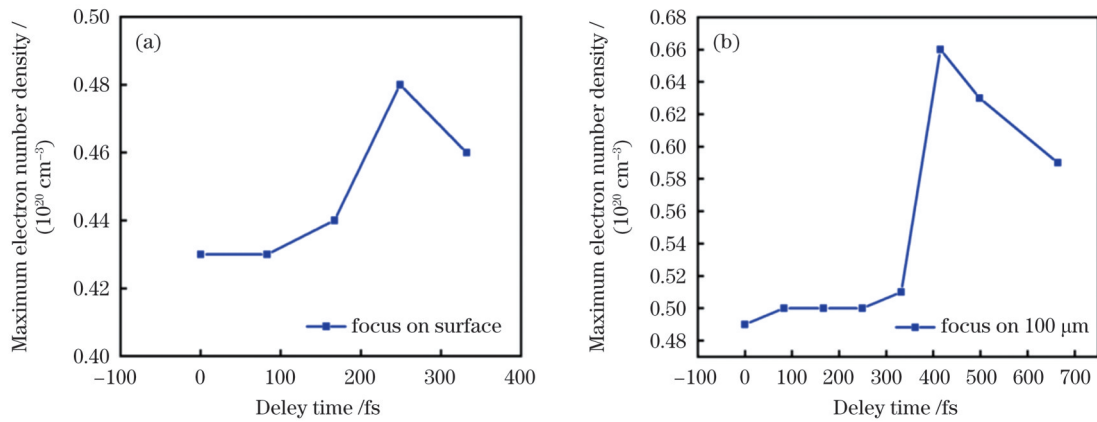


图 8 20×聚焦时最大电子数密度的时间分布。(a)焦点在石英表面;(b)焦点在石英内部100 μm处

Fig. 8 Time distribution of maximum electron number density when the focusing condition is 20×. (a) Focal point is at the quartz surface; (b) focal point is 100 μm inside the quartz

来看,在此聚焦条件下形成的微结构对后续脉冲诱导的等离子体的电子数密度均先增大后减小,并形成了明显的等离子体侧枝。

基于40×(NA=0.6)聚焦条件,对多脉冲烧蚀下光脉冲的传播与电离过程进行研究。如图9、10所示,在多脉冲辐照下,石英表面形成了近似倒梯形的凹坑结构。基于此结构,后续脉冲进行了能量的再分布,并形成了明显的等离子体侧枝。当焦点在石英表面时,石英表面在219个脉冲辐照下形成了宽25.96 μm、深

10 μm的倒梯形微结构;当焦点在石英材料内部100 μm时,凹坑的深径比增大,宽为22.8 μm,深为11.4 μm。焦点在材料内部时得到了更大深径比的凹坑结构(与焦点在表面时相比)。当光场传输到微结构时,在微结构底面形成多丝分布(83 fs时刻);随着时间延迟的增加,光场不断增强,成丝数量减少。由图11可知:当焦点在材料表面时,最大电子数密度出现在167 fs时刻,为 $3.2 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$;当焦点在材料内部100 μm处时,249 fs时刻出现最大的电子数密度,为 $2.2 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ 。

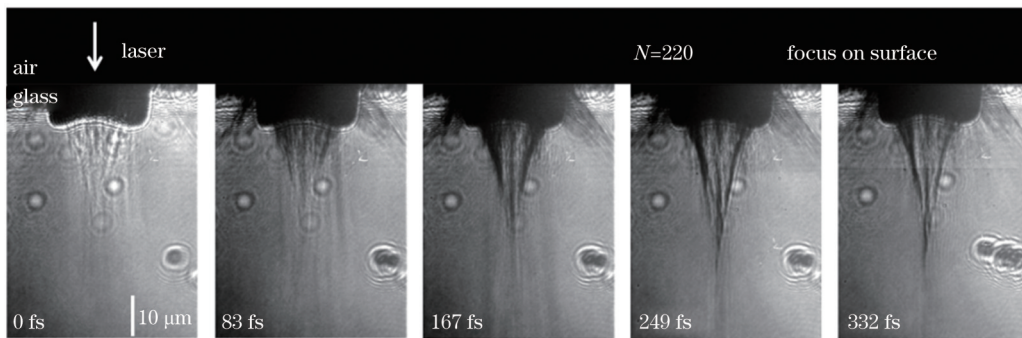


图 9 40×聚焦且焦点在石英表面时,第220个脉冲传播过程的阴影图

Fig. 9 Shaded diagrams of the propagation process of the 220th pulse when focusing condition is 40× and the focal point is at the quartz surface

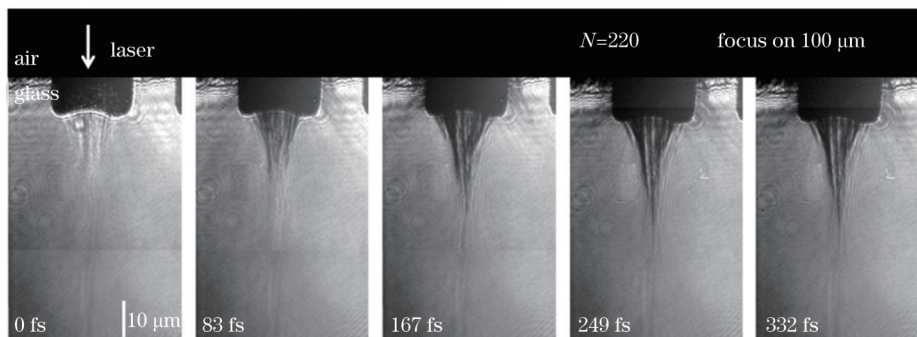


图 10 40×聚焦且焦点在石英内部100 μm处时,第220个脉冲传播过程的阴影图

Fig. 10 Shaded diagrams of the propagation process of the 220th pulse when focusing condition is 40× and the focal point is 100 μm inside the quartz

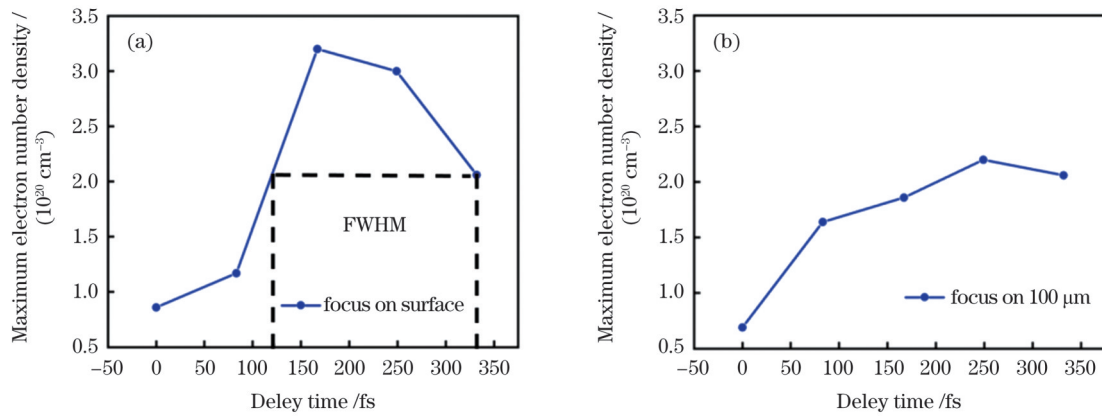


图 11 40×聚焦时最大电子数密度随时间的变化。(a)焦点在石英表面;(b)焦点在石英内部100 μm处

Fig. 11 Variation of maximum electron number density with time when the focusing condition is 40×. (a) Focal point is at the quartz surface; (b) focal point is 100 μm inside the quartz

从不同聚焦条件下最大电子数密度的时间分布可以得到电子演化的弛豫时间(表2)。用最大电子数密度随时间演化曲线的半峰全宽(FWHM)表征电子的演化,可以发现电子演化是一个超快弛豫过程。由图11可以看到,在不同的聚焦条件下,自由电子的演化时间均小于激光脉冲的脉宽,这由两方面因素决定。其中的一个因素是自由电子的瞬态平均吸收系数,其变化是一个超快弛豫过程。另一个决定因素是不同形貌介质中的克尔效应。折射率主要依赖于非线性折射率: $n = n_0 + n_2 I(r, t)$, 其中, n_0 和 n_2 分别为材料的原始线性折射率以及与三阶磁化率 $\chi^{(3)}$ 相关的非线性克尔系数, $\chi^{(3)} = 4\epsilon_0 c n_2 n_0^2 / 3$ (ϵ_0 为真空的介电常数, c 为真空中的光速)。因此,强度呈高斯分布的强激光场会产生一个不均匀的折射率分布,其波前的曲率变化形成了“透镜”,并且这种效应是累积的,最终导致了光束自聚焦,在显微物镜聚焦的“双透镜”作用下,焦点的瑞利长度很短,光强在空间中的变化很快,故很难维持更长的等离子体丝。

表2 不同聚焦条件下,最大电子数密度的弛豫时间比较
Table 2 Comparison of relaxation time of maximum electron number density under different focusing conditions

Focusing condition	Focusing position	FWHM / fs	Pulse width / fs
20×, NA=0.4	Surface	125	290
20×, NA=0.4	100 μm	250	290
40×, NA=0.6	Surface	200	290
40×, NA=0.6	100 μm	125	290

基于高时间分辨图像可知,多脉冲辐照下所形成样品的微观形貌对后续激光脉冲的光场分布进行了重塑,即样品的形貌影响了激光的传播与电离过程。在这里,第220个脉冲的激光场被前219个脉冲烧蚀产生的微结构进行了空间重塑。图12、13给出了使

用前219个脉冲产生的微结构形态。在20×聚焦下,当焦点在石英表面时,第220个脉冲被微结构的侧壁折射(图12中的“edge”区域,侧壁斜率为 K_1),形成了微弱的等离子体丝。此时,“edge”区域折射的影响强于激光的自聚焦效应。同时,激光场经过微结构的“center”区域后,电子数密度达到峰值。当焦点向石英内部进给后(+100 μm处),微结构的侧壁倾斜角减小,“edge”区域(斜率为 K_2)形成了更明显的等离子体丝;激光在传播轴线与“edge”区域的光程差异,导致电子数密度的峰值出现在离“center”区域更远的位置。

在40×聚焦时,219个脉冲辐照形成了与20×聚焦时完全不同的微结构形貌,微结构呈倒梯形(如图13所示)。当焦点在石英表面时,形成的倒梯形侧壁的斜率为 K_1 ,激光场在整个“edge”区域均产生了等离子体丝。当焦点在石英内部100 μm处时,形成的倒梯形侧壁的斜率为 K_2 ,此时侧壁的倾斜角增大,激光场在整个“edge”区域产生的等离子体丝均减弱,并且在倒梯形“center”区域产生了强烈的成丝现象。这是因为此区域相对“平坦”,激光场的自聚焦效应与等离子体的散焦效应占主导。总体来看,在多脉冲加工场景下,能量沉积(传播电离)由材料的线性折射率、随光强变化的非线性折射率、等离子体的散焦效应、微结构形貌、焦点的空间位置、材料表面的激光通量共同决定,其中的微结构形貌主要影响后续光场的传播与电离,进而影响了能量的沉积。

为深入理解多脉冲加工中的微裂纹、诱导条纹等共性工艺问题,将裂纹区域与瞬态电离区域进行对比研究。分析图14(a)、(b)可以发现,在V形微结构的侧壁出现了微裂纹与诱导条纹,并且裂纹存在于整个侧壁上(e、f区域)。V形结构的形成伴随着微裂纹的产生过程,随着侧壁倾斜角的变化(消融),电离成丝的方向不断变化,直至横扫了整个侧壁区域(“edge”区

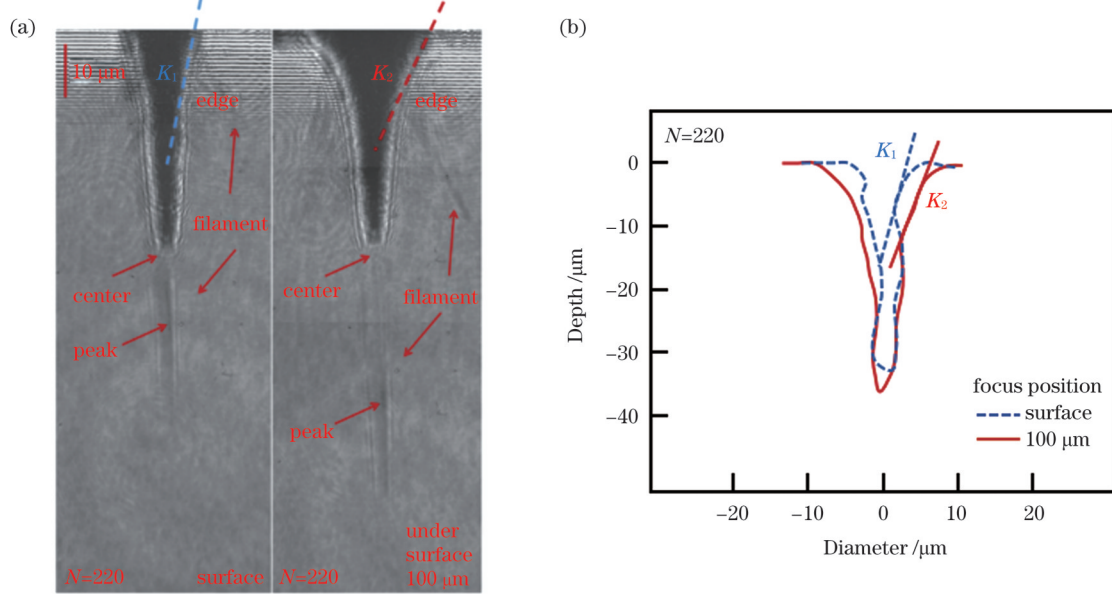


图 12 焦点在不同位置时的光传播与电离过程(20×聚焦)。(a) 498 fs 时刻的光传播与电离图;(b) 220 个脉冲所形成的凹坑形貌
Fig. 12 Propagation and ionization of the pulse when the focus is different locations (20× focus). (a) Propagation and ionization images of the pulse at 498 fs; (b) crater morphology formed by the first 220 pulses

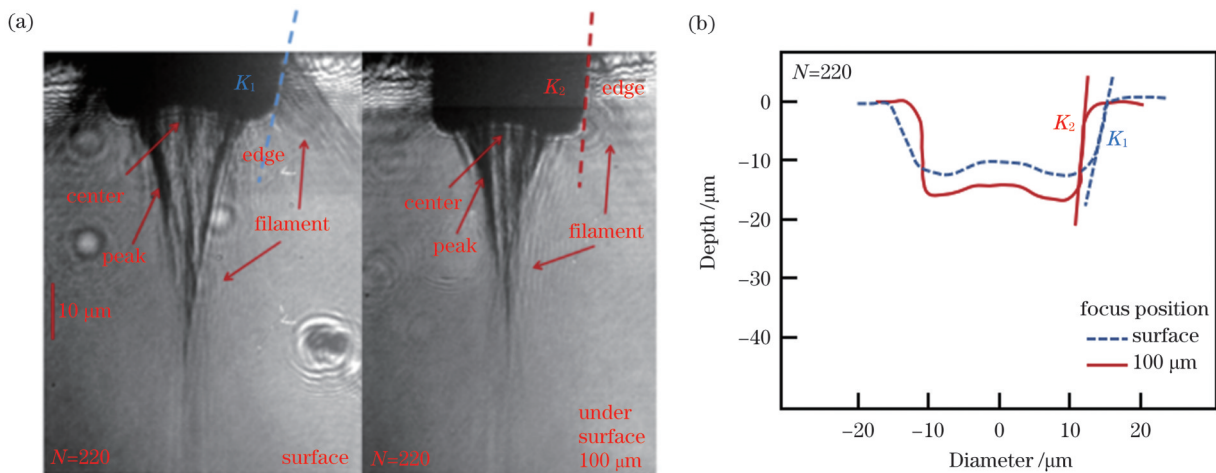


图 13 焦点在不同位置时的光传播与电离过程(40×聚焦)。(a) 498 fs 时刻的光传播与电离图;(b) 220 个脉冲所形成的凹坑形貌
Fig. 13 Propagation and ionization of the pulse when the focus is different locations (40× focus). (a) Propagation and ionization images of the pulse at 498 fs; (b) crater morphology formed by the first 220 pulses

域)。激光传输轴线方向上增强的等离子体分布在加工过程中表现为微结构深度的增加。由图 15(a)、(b) 可知,在形成倒梯形微结构过程中,侧壁(z 区域)与底面(g 区域)均发生了碎裂,对应于倒梯形微结构侧壁与底面处的等离子体成丝过程。由于侧壁与底面对后续光场进行了重塑,影响了能量的沉积,从而产生了裂纹与碎裂。不同微结构对光场传播与电离过程的影响是微裂纹等共性工艺问题的产生机制。

4 结 论

针对激光加工硬脆透明材料过程中的共性工艺问题,笔者通过搭建泵浦探测阴影成像系统,对其中的电子动力学过程进行了瞬态观测。结果表明,在多脉冲

辐照下,不同微结构形貌对后续光场的重塑效应引导了非线性电离过程。对于 V 形结构,其形成过程伴随着侧壁倾斜角的减小,进而对后续光场的电离成丝方向进行引导,电离方向横扫整个侧壁区域。电离成丝的分布对应了微结构两侧“微裂纹”与“诱导条纹”的产生区域。对于倒梯形结构,在相对平坦的底部中心区域出现了强烈的电离成丝效应,这是其底部产生碎裂的根本原因。

总体而言,不同形貌微结构辅助下的光场重塑效应是影响能量沉积的关键,也是共性工艺问题的产生机制。这一结果为加工工艺的优化指明了方向,如脉冲数量的选择与焦点进给量的控制。此外,高时间分辨的泵浦探测阴影成像技术可预测硬脆透明材料的

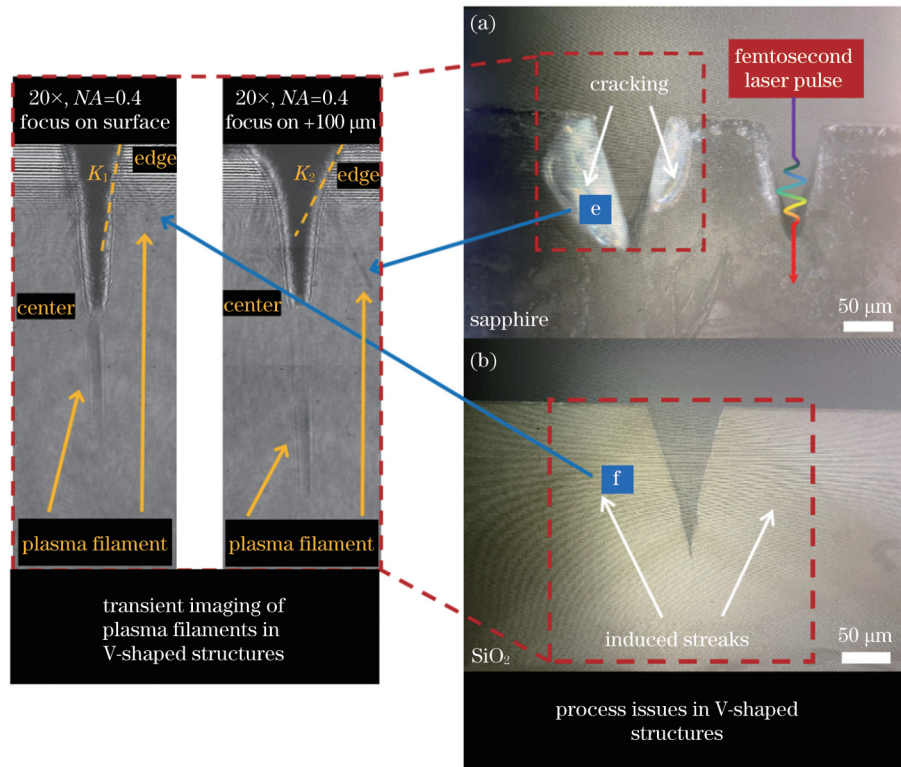


图 14 加工 V 形微结构中的共性工艺问题与瞬态电离图像。(a) 加工蓝宝石 V 形结构中的微裂纹问题；(b) 加工 SiO₂ 中的诱导条纹问题

Fig. 14 Common process problems and transient ionization images in processing V-shaped microstructures. (a) Microcracking problem in processing sapphire V-shaped structures; (b) induced streak problem in processing SiO₂

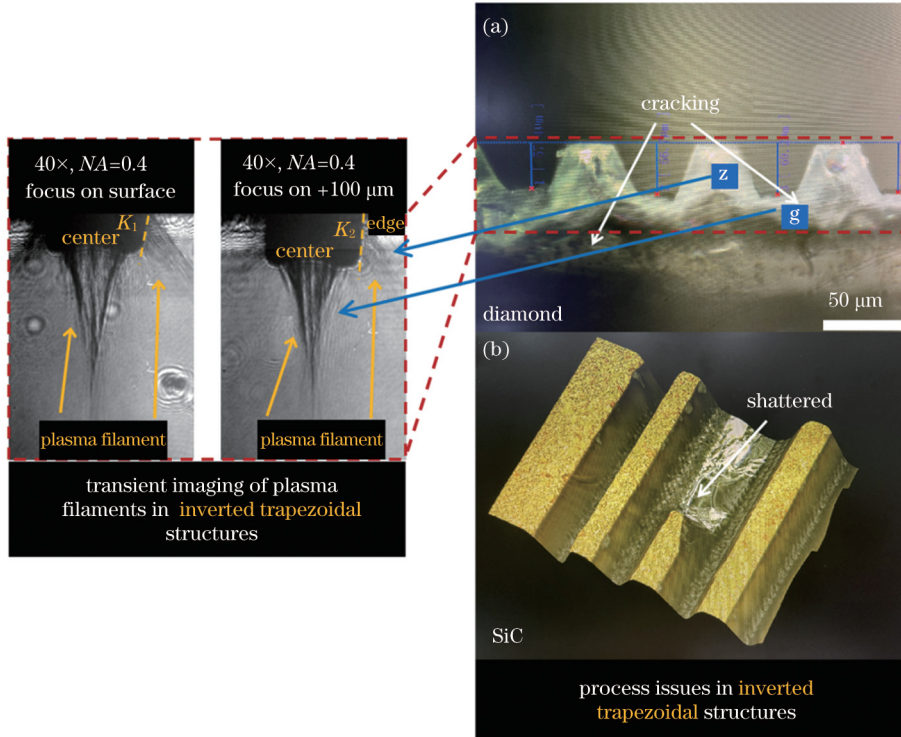


图 15 加工倒梯形微结构中的共性工艺问题与瞬态电离图像。(a) 加工金刚石倒梯形结构中的裂纹问题；(b) 加工 SiC 倒梯形结构中的碎裂问题

Fig. 15 Common process problems and transient ionization images in processing inverted trapezoidal microstructures. (a) Cracking problem in processing diamond inverted trapezoidal structures; (b) fragmentation problem in processing SiC inverted trapezoidal structures

碎裂区域,并有望成为高端加工装备在线监测的有力工具。

参 考 文 献

- [1] 吴梦楠, 李晓炜, 向志昆, 等. 飞秒激光时空整形电子动态调控加工微光学元件[J]. 中国激光, 2022, 49(10): 1002501.
Wu M N, Li X W, Xiang Z K, et al. Machining of micro-optical elements using electrons dynamics controlled temporally/spatially shaped femtosecond laser[J]. Chinese Journal of Lasers, 2022, 49(10): 1002501.
- [2] 韦新宇, 温秋玲, 陆静, 等. 紫外纳秒激光加工金刚石微槽工艺参数优化研究[J]. 中国激光, 2022, 49(10): 1002406.
Wei X Y, Wen Q L, Lu J, et al. Research on parameters optimization of diamond microgrooves processed by ultraviolet nanosecond laser[J]. Chinese Journal of Lasers, 2022, 49(10): 1002406.
- [3] 刘文凤, 孙明营, 石逸群, 等. 时域整形皮秒激光双脉冲烧蚀玻璃表面特性[J]. 中国激光, 2023, 50(12): 1202201.
Liu W F, Sun M Y, Shi Y Q, et al. Picosecond laser ablation of glass surface by dual-pulse temporal shaping[J]. Chinese Journal of Lasers, 2023, 50(12): 1202201.
- [4] Kaiser A, Rethfeld B, Vicanek M, et al. Microscopic processes in dielectrics under irradiation by subpicosecond laser pulses[J]. Physical Review B, 2000, 61(17): 11437-11450.
- [5] Shah L, Tawney J, Richardson M, et al. Femtosecond laser deep hole drilling of silicate glasses in air[J]. Applied Surface Science, 2001, 183(3/4): 151-164.
- [6] Zoubir A, Shah L, Richardson K, et al. Practical uses of femtosecond laser micro-materials processing[J]. Applied Physics A, 2003, 77(2): 311-315.
- [7] Hwang D J, Choi T Y, Grigoropoulos C P. Liquid-assisted femtosecond laser drilling of straight and three-dimensional microchannels in glass[J]. Applied Physics A, 2004, 79(3): 605-612.
- [8] Cheng Y, Sugioka K, Midorikawa K. Microfluidic laser embedded in glass by three-dimensional femtosecond laser microprocessing [J]. Optics Letters, 2004, 29(17): 2007-2009.
- [9] Méndez C, Vázquez de Aldana J R, Torchia G A, et al. Integrated-grating-induced control of second-harmonic beams in frequency-doubling crystals[J]. Optics Letters, 2005, 30(20): 2763-2765.
- [10] Potemkin F, Mareev E, Bezsudnova Y, et al. Controlled energy deposition and void-like modification inside transparent solids by two-color tightly focused femtosecond laser pulses[J]. Applied Physics Letters, 2017, 110(16): 163903.
- [11] Tsibidis G D, Fotakis C, Stratakis E. From ripples to spikes: a hydrodynamical mechanism to interpret femtosecond laser-induced self-assembled structures[J]. Physical Review B, 2015, 92(4): 041405.
- [12] Linic S, Aslam U, Boerigter C, et al. Photochemical transformations on plasmonic metal nanoparticles[J]. Nature Materials, 2015, 14(6): 567-576.
- [13] Liao C, Fan K, Xu R L, et al. Laser-annealing-made amplified spontaneous emission of “giant” CdSe/CdS core/shell nanocrystals transferred from bulk-like shell to quantum-confined core[J]. Photonics Research, 2015, 3(5): 200-205.
- [14] Couairon A, Mysyrowicz A. Femtosecond filamentation in transparent media[J]. Physics Reports, 2007, 441(2/3/4): 47-189.
- [15] Sun M Y, Eppelt U, Russ S, et al. Numerical analysis of laser ablation and damage in glass with multiple picosecond laser pulses [J]. Optics Express, 2013, 21(7): 7858-7867.
- [16] Wang F F, Pan C J, Sun J Y, et al. Direct observation of structure-assisted filament splitting during ultrafast multiple-pulse laser ablation[J]. Optics Express, 2019, 27(7): 10050-10057.
- [17] Sun Q A, Jiang H B, Liu Y, et al. Measurement of the collision time of dense electronic plasma induced by a femtosecond laser in fused silica[J]. Optics Letters, 2005, 30(3): 320-322.
- [18] Noack J, Vogel A. Laser-induced plasma formation in water at nanosecond to femtosecond time scales: calculation of thresholds, absorption coefficients, and energy density[J]. IEEE Journal of Quantum Electronics, 1999, 35(8): 1156-1167.

Femtosecond Time-Resolved Electronic States in Femtosecond Laser Multipulse Ablation

Wang Qianhao^{1,2}, Zhao Hualong^{1*}, Yang Xiaojun¹, Wen Wenlong¹, Li Yi^{1,2}

¹Photonic Manufacturing System and Application Research Center, Xi'an Institute of Optics and Precision Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Xi'an 710119, Shaanxi, China;

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

Abstract

Objective This study investigates the prevalent process problems, such as “microcracking” and “induced streaking,” in the femtosecond laser processing of hard and brittle transparent materials. The study employs the femtosecond time-resolved pump-probe shadow imaging technique to visualize the electron dynamics during the femtosecond laser multi-pulse ablation of quartz glass. Particularly, the plasma filament evolution at the early stage of laser pulse ionization (before 700 fs) is analyzed. The multi-pulse-induced microstructures distribute the filament formation regions on both sides of the microstructure with respect to the axial direction of the light pulse propagation. The distribution on both sides is primarily due to the refraction of the light pulse by the sidewalls of the microstructure, while that on the axis is caused by the difference in the shape of the bottom and sidewalls of the microstructure, creating the light range difference. The empirical results show that the pulse train induces a remodeling effect of the microstructure on the subsequent light field during multi-pulse processing, affecting the distribution of the plasma filament formation region and energy deposition—the core mechanism responsible for common process problems.

Methods A femtosecond time-resolved pump-probe shadow imaging setup was built to capture the propagation and ionization process of a single subsequent pulse beneath the microstructure induced by irradiating the material with 219 fs pulses. First, the actual

spatial location of the focus was determined by imaging the shadow of the air-ionized plasma at the focus. After that, the power density at the material surface was obtained for different focus positions. The distinctive “V” and “inverted trapezoid” shapes were obtained after controlling the relative positions of the laser focus and the material. Second, the ionization process of femtosecond time-resolved propagation of the 220th pulse under different microstructures was obtained by modulating the time delay between pump and probe beams. Finally, the ionized filament-forming regions in the transient ionization images were compared with the process defects to reveal the formation mechanism of the process defects.

Results and Discussions The propagation and ionization process of the 220th pulse is observed using femtosecond time-resolved pump-probe shadow imaging (Figs. 5. 6. 9. 10). The physical mechanisms governing process problems such as “microcracking” in micromachining of hard and brittle materials are revealed. The light-field remodeling effect, guided by various morphology microstructures, leads to energy deposition and the mechanism of generating common process problems. In the context of multi-pulse processing, the influence of energy deposition (propagation and ionization) is determined by the linear refractive index of the material, a nonlinear refractive index that varies with the light intensity, plasma defocusing effect, microstructure morphology, and the focusing conditions in conjunction with the laser fluence on the material surface. Moreover, the relaxation time of ionized free electron number density during light field propagation is determined to be less than 300 fs across diverse microstructures.

Conclusions Under multi-pulse irradiation, the remodeling effect of different microstructural morphologies on the subsequent light field orchestrates the nonlinear ionization process. In the case of the V-shaped structure, the formation process is accompanied by decreasing tilt angle of the sidewalls, guiding the ionization filamentation direction of the subsequent light field and sweeping across the sidewall region. It corresponds to the areas of “microcracks” and “induced stripes” on both sides of the microstructure. Conversely, the “inverted trapezoidal” structure yields strong ionization filament formation at its relatively flat bottom center region owing to the ionization effect at the bottom of the structure. For the “inverted trapezoidal” structure, a strong ionization effect occurs at the center of the relatively flat bottom, which is the root cause of the fragmentation at the bottom. Overall, the light-field remodeling effect, facilitated by different morphology microstructures, plays a crucial role in energy deposition and governing the common process problems. This result offers directions for optimizing machining processes, such as selecting the number of pulses and controlling the focal feed. Additionally, the high-temporal-resolution pump-probe shadow imaging technique holds promise for predicting fragmentation regions in different morphologies of hard and brittle transparent materials, serving as a powerful tool for online monitoring of high-end processing equipment.

Key words laser technique; femtosecond laser micromachining; pump-probe shadow imaging; multi-pulse ablation; plasma