

入射角对飞秒激光诱导金属表面周期性结构的影响

李普年 李智华 范敬钦

(华中科技大学物理学院, 湖北 武汉 430074)

摘要 用脉宽为 60 fs, 频率为 1 kHz, 中心波长为 800 nm 的飞秒脉冲激光照射在高纯度的 Cu、Ag、Au 金属靶材表面, 在损伤阈值附近产生周期性结构, 并随着脉冲作用数的增加, 产生的规则周期性结构被破坏。研究了入射角度对周期性结构大小的影响, 发现在较小角度时, 三种金属周期性结构大小几乎没有区别, 在较大角度时, 三者之间的差别也微乎其微; 不同金属的损伤阈值各不相同, 因此, 认为入射激光的能量密度在较小角度时只影响表面周期性结构的锐利程度, 并不影响其大小。并从激光诱导金属表面产生周期性结构的理论出发进行了理论验证, 也表现出同样的规律

关键词 飞秒激光; 周期性结构; 损伤阈值; 扫描电子显微镜

中图分类号 O434.14 文献标识码 A doi: 10.3788/AOS20092902.1902

Effects of Incident Angle on Metal Periodic Structures Induced by Femtosecond Laser Pulses

Li Punian Li Zhihua Fan Jingqin

(School of Physics, Huazhong University of Science and Technology, Wuhan, Hubei 430074, China)

Abstract Near the damage threshold, the periodic surface structure on pure Cu, Ag and Au produced by femtosecond laser pulses of 60 fs at 1 kHz repetition with the central wavelength of 800 nm is observed by scanning electronic microscope (SEM). With the number of laser pulses increasing, the structure is damaged obviously. The period of the structure depending on the incidence angle is studied, and it is found that the period of the three metals are almost the same when the incidence angle is small. The difference between each other is still infinitesimal when the incident angle is large. Different metals have different damage threshold, so it is believed that the incident laser energy density at small angle affects the periodic structures' sharpness only. It was verified in terms of surface periodic structures theory (SPSs).

Key words femtosecond laser pulse; surface period structure; damage threshold; SEM

1 引 言

自 20 世纪 60 年代激光诞生以来, 人们就开始进行激光与物质相互作用的研究。在过去, 激光诱导固体材料表面周期性结构的研究已经广泛的展开^[1~5]。当入射激光的功率密度在材料的损伤阈值附近时, 就会产生周期性结构。通常周期性结构的为入射激光波长大小, 并垂直与入射激光的极化方向^[6]。周期性表面结构通常出现在长波脉冲照射后的不同材料表面, 如半导体、金属和电介质。

对这种周期性表面结构产生的理论解释最早是在 1982 年 H. M. VanDriel 等提出的干涉理论模型, 即表面散射波和入射波相互干涉的结果, 即表面散射波模型^[7,8], 该模型具有物理上的直观性, 能够在一定程度上解释周期性结构的形成, 但在某些情况下具有一定的局限性。该理论无法解释周期性结构对激光极化方式的依赖, 经表面散射的波不满足麦克斯韦方程。

2002 年 Jurgen Reif 等提出了库仑爆炸模型

收稿日期: 2008-07-17; 收到修改稿日期: 2008-12-17

基金项目: 国家自然科学基金(10604017)资助课题。

作者简介: 李普年(1984—), 男, 硕士研究生, 主要从事飞秒激光与物质相互作用方面的研究。E-mail: lipunian88@126.com

导师简介: 李智华(1976—), 女, 博士, 副教授, 主要从事激光与材料的相互作用方面的研究。

E-mail: lizhihua@mail.hust.edu.cn(通信联系人)

(Coulomb explosion), 该模型认为在低于靶材烧蚀阈值下, 飞秒激光作用形成的新结构, 是靶材表面库仑爆炸后, 由自组织引起的表面弛豫现象引起的。这种模型能够解释介电材料在低于烧蚀能量密度阈值多脉冲作用下产生周期小于波长的周期性结构, 但无法解释金属靶材表面产生的周期性结构^[9]。

1981 年 Becker 等提出光子共振吸收模型^[10], 认为超短强激光辐照导致的高于熔点温度的热起伏驱动靶材局域激发, 从而诱导表面周期性结构; 同年, Van Vechten 提出玻色子凝聚模型^[11], 认为强飞秒激光脉冲与靶材相互作用是产生高密度的载流子, 等离子激化波开始产生和破坏电子-空穴对, 载流子变成成对的载流子, 如同玻色子, 并根据玻色子凝聚的机理凝聚, 从而形成表面周期性结构。

还有研究者认为可能的机理是“能量的不均匀分布^[1,2]”, 认为周期性结构的形成由于能量周期性沉积形成的。该理论虽然成功的解释了一些现象, 但认为与材料的特性无关, 但在一定条件下, 周期性结构的大小与材料的特性有关。

本文用线性极化的飞秒激光照射纯金属 Ag、Cu、Au 靶材的表面, 研究了三种金属周期性结构的大小对飞秒激光脉冲入射角度的依赖关系。发现三种金属表面周期性结构的大小在激光小角度入射时几乎没有差别, 在较大角度时, 三者之间的差别也微乎其微。并从理论上进行了验证。

2 实验装置与过程

整个实验过程是在大气的环境中进行的, 实验采用带有放大系统的钛蓝宝石激光系统, 产生频率为 1 KHz, 中心波长为 800 nm、脉冲宽度为 60 fs 的线性极化激光。用半波片对光束的能量进行调节, 焦耳能量计可以测出每个脉冲的能量, 采用机械快门控制作用在样品表面的脉冲数。用焦距为 30 cm 的透镜对激光束进行聚焦, 金属靶材用不同的砂纸从粗到细依次进行打磨, 每次打磨后均用无水乙醇进行清洗, 并将样品放在三维移动平台上。入射角度从 10°变化到 90°, 每次改变 10°。为了获得烧蚀靶材表面的形貌, 用扫描电子显微镜 (SEM) 观察烧蚀区域表面的情况。

3 实验结果与讨论

为了简单起见而又能说明问题, 只以铜 (Cu) 靶材为例。图 1 是单个脉冲能量为 0.8 mJ, 分别照射

17 个和 67 个脉冲后观察到的铜 (Cu) 的 SEM 图像, 可以看出 17 个脉冲时靶材表面已经形成很明显的周期性结构, 并具有垂直与入射激光的极化方向。随着脉冲作用数的增加, 周期性结构被破坏。通过调节参数激光的入射角度和激光的能量密度, 产生一系列明显的周期性结构。测量它们周期性结构的大小^[6], 如图 2 所示。从图 2 可以看出在角度小于 60°的时候, 三种金属周期性结构的大小几乎没有差别, 就是在大于 60°的角度范围内, 差别也是很小的, 但随着入射角度增加, 差别增加。

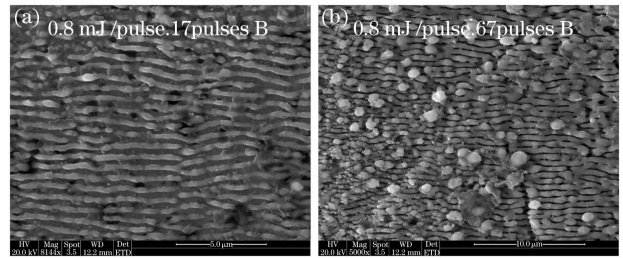


图 1 单脉冲能量为 0.8 mJ, 17 个(a)和 67 个(b)脉冲照射后的 SEM 图像

Fig. 1 The SEM images of Cu after irradiated by fs laser of 0.8 mJ/pulse, 17 (a) and 67 pulses (b)

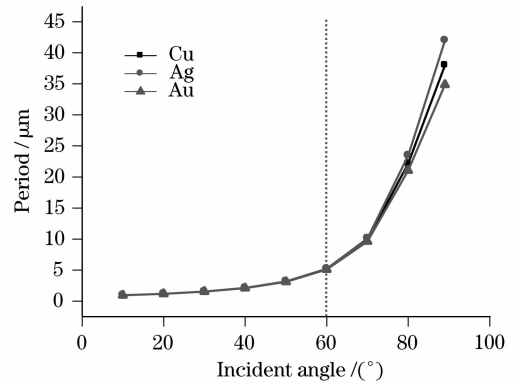


图 2 不同角度时 Cu、Ag、Au 周期性结构的变化

Fig. 2 The periods of Cu, Ag, Au with different incidence angle

在表面散射波模型^[7,8]中, 对于 S 极化的激光, 其周期性结构的大小为: $d = \lambda / (1 \pm \sin \theta)$, 对于 P 极化的激光, 其周期性结构的大小为: $d = \lambda / \cos \theta$ 。

对于金属, 周期性结构是由于入射激光与表面激发的等离子体激源相互干涉的形成^[12]。对于线性极化的激光, S_+ 和 S_- 周期性结构的大小为^[12]

$$d_{\pm} = \frac{\lambda}{\eta \pm \sin \theta},$$

其中 $\eta = \text{Re}[\epsilon / (\epsilon + 1)]^{1/2}$ 是在金属与空气接触面表面等离子体有效折射系数的实数部分。 ϵ 为金属的介电常数, 其中 S_- 占主导地位。下面从理论上验

证实验的结论。

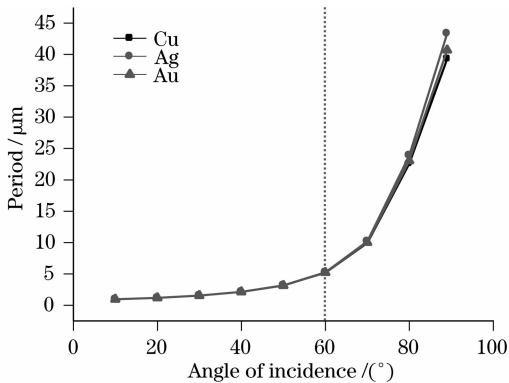


图3 通过公式计算得出的三种金属周期性结构的大小随角度的变化趋势

Fig. 3 The periods of Cu, Ag, Au according to the equation

对于波长 $\lambda = 800 \text{ nm}$ 的入射激光, Cu, Ag, Au 的介电常数 ϵ 分别为^[13]: $\epsilon_{\text{Cu}} = -25.3 + 2.5i$, $\epsilon_{\text{Ag}} = -28.0 + 1.52i$, $\epsilon_{\text{Au}} = -26.2 + 1.85i$ 。将这三个复数介电常数代入上述公式, 可以计算出三种金属周期性结构的大小, 如图3所示。可以看出, 同样是在小于 60° 的时候, 三种金属的周期性结构的大小几乎没有差别, 大于 60° 的时候差别同样很小但随着角度增加, 差别有所增加。三种金属产生周期性结构的能量密度不同, 但在小角度时周期性结构的大小几乎没有区别, 因此认为入射激光的能量密度在小角度入射时并不影响周期性结构的大小, 而只影响表面周期性结构的锐利程度。

4 结论与展望

实验中在三种金属损伤阈值附近产生了规则的周期性结构, 并进行测量, 发现在小于 60° 时, 三种金属周期性结构的大小几乎没有区别, 在大于 60° 时, 差别也很小随着入射角的增加, 差别增大。并从激光诱导金属表面周期性结构的理论上进行验证, 具有同样的规律。入射激光的能量密度在小角度入射时并不影响周期性结构的大小, 而只影响表面周期性结构的锐利程度。

飞秒激光诱导金属表面产生的结构可以改变金属的光吸收率, 使之变为所谓的“黑金属^[14]”, 可以毫无选择性的吸收各种波段的光, 通过控制飞秒激光诱导表面周期性结构 (FLIPSS) 周期的大小, 带有 FLIPSS 的表面在改变光学特性方面是一项应用广泛的技术。若考虑飞秒激光加工过程的低污染和可以加工各种复杂形状器件等的优势, FLIPSS 技术会在光子学、光电子学、热辐射源和生物光学器件等

方面有潜在的应用^[15]。若选择适当的参数条件, 获得形状规则并可以控制的高密度波纹状周期性结构, 为利用飞秒激光快速制作表面纳米器件提供实验基础^[16]。

致谢 特别感谢国家光电实验室激光科学与技术研究部陆培祥教授组杨光老师、龙华老师以及陈爱平硕士等在激光脉冲烧蚀实验过程中给予的热情帮助。所有表征均在华中科技大学分析测试中心完成。

参 考 文 献

- 1 J. E. Sipe, J. F. Young, J. S. Preston *et al.*. Laser-induced periodic surface structure. I. Theory [J]. *Phys. Rev. B*, 1983, **2**(27), 1141~154
 - 2 J. F. Young, J. S. Phys., H. M. van Driel *et al.*. Phys. Laser-induced periodic surface structure. II. Experiments on Ge, Si, Al, and brass [J] *Phys. Rev. B*, 1983, **2**(27), 1155~1172
 - 3 J. F. Young, J. E. Sipe, H. M. van Driel. Laser-induced periodic surface structure. III. Fluence regimes, the role of feedback, and details of the induced topography in germanium [J]. *Phys. Rev. B*, 1984, **4**(30), 2001~2015
 - 4 G. A. Golubenko, A. A. Samokhin, V. A. Sychugov. *Kvantovaya Elektron.* [M] Moscow, 1984. 11, 1850
 - 5 J. G. Fujimoto, J. M. Liu, E. P. Ippen. Femtosecond laser interaction with metallic tungsten and nonequilibrium electron and lattice temperatures [J]. *Phys. Rev. Lett.*, 1984, **19**(53), 1837~1840.
 - 6 Jincheng Wang, Chunlei Guo. Formation of extraordinarily uniform periodic structures on metals induced by femtosecond laser pulses [J]. *J. of Appl. Phys.*, 2006, **2**(100), 023511
 - 7 M. Oron, G. Sorensen. New experimental evidence of the periodic surface structure in laser annealing [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 1979, **10**(35): 782
 - 8 D. J. Ehrlich, S. R. J. Brueck, J. Y. Tsao. Optical pulse compression based on enhanced frequency chirping [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 1982, **41**(1): 1~3
 - 9 J. Reif, F. Costache, M. Henyk *et al.*. Ripples revisited: non-classical morphology at the bottom of femtosecond laser ablation craters in transparent dielectrics [J]. *Appl. Surf.*, 2002, **30** (197~198): 891
 - 10 J. F. Gibbons, L. D. Hess, T. W. Sigmon. *Laser and Electron-Beam Solid Interactions and Materials Processing* [M]. Boston, Mass., 1980. 629
 - 11 J. A. Van Vechten. Experimental tests for boson condensation and superconductivity in semiconductors during pulsed beam annealing [J]. *Solid State Commun.*, 1981, **12**(39), 1285~1291
 - 12 A. M. Bonch-Bruевич, M. N. Libenson, V. S. Makin *et al.*. Surface electromagnetic waves in optics [J]. *Opt. Eng.*, 1992, **31**, 718
 - 13 E. D. Palik, *Handbook of Optical Constants of Solids* [M] (Academic, Orlando) 1985, Part I
 - 14 A. Y. Vorobyev, C. Guo. Enhanced absorptance of gold following multipulse femtosecond laser ablation [J]. *Phys. Rev. B*, 2005, **19**(72), 195422.
 - 15 A. Y. Vorobyev, Chunlei Guo. Spectral and polarization responses of femtosecond laser induced periodic surface structures on metals [J]. *J. of Appl. Phys.*, 2008, **4**(103), 043513
 - 16 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