

不同宽度脉冲激光对白宝石损伤的结构特征*

程光华¹ 王屹山¹ 赵 卫¹ 陈国夫¹ 刘 青²

(1 中国科学院西安光学精密机械研究所瞬态光学与光子技术国家重点实验室, 西安 710068)

(2 浙江万里学院应用物理研究所, 宁波 315101)

摘 要 研究了白宝石($\langle 0001 \rangle$ 切割)晶体在 800nm ns、ps 和 fs 激光脉冲作用下的损伤形态. 实验发现, 在纳秒脉冲作用下, 损伤外型与晶体的结构参量一致, 呈“米”字形; 在皮秒激光脉冲作用下, 损伤外型呈“十”字形; 而在飞秒激光脉冲作用下, 损伤外形呈“一”字形; 说明白宝石晶体结构损伤与应力作用下晶体缺陷的择优取向有关.

关键词 白宝石晶体; 激光损伤; 超短激光脉冲

中图分类号 O437 **文献标识码** A

0 引言

通过高阶非线性效应, 脉冲激光可以将能量沉积在透明介质内部, 导致介质的光学损伤, 这在激光技术领域成为发展高功率激光一个限制性因素. 然而, 在激光加工领域, 用最廉价的激光系统实现精密器件的制备是人们追求的另一个目标. 过去的研究工作主要集中研究不同脉冲宽度、不同能量、不同材料折射率的变化^[1~3], 研究对象绝大多数是各向同性的玻璃材料, 很少涉及到各向异性晶体^[4,5]. 事实上, 晶体的各向异性对激光辐射的光热效应、光化学效应和光物理效应更为敏感. 例如飞秒激光脉冲作用在铈酸锂晶体表面会出现各向异性的微爆, 聚焦到内部会产生与压电效应相关的结构改变^[6]. 因此, 通过研究激光辐射作用下晶体的损伤特性有可能得到激光的某些物理化学特性和晶体的结构参量特性.

本文利用宽能带介质在强激光作用下产生多光子吸收从而导致焦点区域结构性改变的特征, 详细研究了白宝石(sapphire)晶体在 ns、ps 和 fs 脉冲激光作用下的损伤形态. 并根据该晶体的机械、热学、电学特性分析了材料的损伤阈值与结构参量的关系. 与熔融石英不同, 超短脉冲激光作用在晶体内部时, 呈现出强的各向异性. 对 $\langle 0001 \rangle$ 切割的白宝石, 在 ns 脉冲作用下, 损伤外型呈“米”字形, 与晶体的结构参量一致; 在 ps 激光脉冲作用下, 损伤外型呈“十”字形, 而在 fs 激光脉冲作用下, 损伤外形呈“一”字形. 实验表明这些结构与激光的偏振方向无关, 这种结构可能与晶体在膨胀应力下缺陷的择优取向有关. 而在白宝石晶体表面, 在空气和晶体界

面形成高温等离子体, 直接使焦点附近区域的材料汽化, 形成圆形截面的点.

1 实验及结果

实验过程中用了三台不同脉冲宽度的钛宝石激光器: 调 Q YLF(Photonic Inc, USA) 泵浦的钛宝石激光器, 输出脉冲宽度 30 ns, 能量 1 mJ; 钛宝石再生放大器(Spitfire, Spectra Physica, USA), 输出脉冲宽度 100 fs, 单脉冲能量 0.8 mJ; 和自己组装的钛宝石多通放大器, 输出能量 0.8 mJ、脉冲宽度 6~0.03 ps. 白宝石的切割方向为 $\langle 0001 \rangle$, 直径 25.6 mm, 厚度 0.5 mm. 实验装置见文献[7], 激光脉冲用 50 倍、数值孔径 0.55 的长工作距离物镜聚焦到样品上, 激光入射方向与 Z 轴垂直, 405 nm 发光二极管、物镜和 CCD 构成透射式显微成像系统, 用来实时观测激光损伤点的形态. 白宝石样品固定在一个计算机控制的三维移动平台上(Pi Inc), 平台的最小分辨率为 7 μm , 移动范围最大 15 cm. 移动平台与激光器之间由同步信号控制, 当移动平台到制定位置时, 给激光器一个触发信号, 激光脉冲输出, 因此在扫描过程中能确保一个损伤点由一个激光脉冲产生^[8].

图 1 是用 30 ns、100 μJ 激光脉冲作用下白宝石体内形成的典型“米”字形损伤结构, 对于 $\langle 0001 \rangle$ 方向切割的晶体, 这与白宝石晶体结构相对应. 图 2 是用 20 μJ 的 5.7 ps 激光脉冲到晶体内部产生的“十”字形损伤, 旋转激发光的偏振方向, “十”字方向没有产生变化; 当旋转晶体时, “十”字方向产生了相应的旋转, 这说明损伤外型与偏振方向无关; 用 10 μJ 的 fs 激光脉冲聚焦到白宝石内部时, 损伤外形如图 3, 呈“一”字型. 这种现象与光学玻璃和铈酸锂晶体的损伤不同. 对光学玻璃而言, 除了高重复率 fs 激光作用下的双折射现象以外, 不同激光脉冲在光学玻璃内部产生的损伤都是各向同性. 在铈酸锂晶

* 中国科学院知识创新方向性项目资助

Tel: 029-88887615 Email: gcheng@opt.ac.cn

收稿日期: 2005-04-28

体内的损伤虽然是各向异性的,但与激光脉冲宽度没有关系.

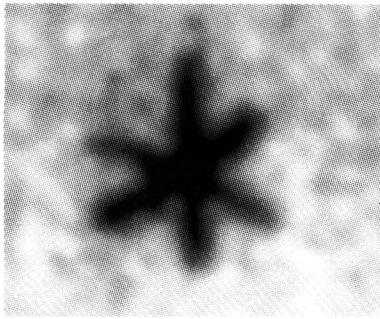


图1 在<0001>面内观察到的纳秒激光脉冲在白宝石切割内部造成的损伤形态
Fig.1 Damage morphology inside sapphire in <0001> crystalline plane

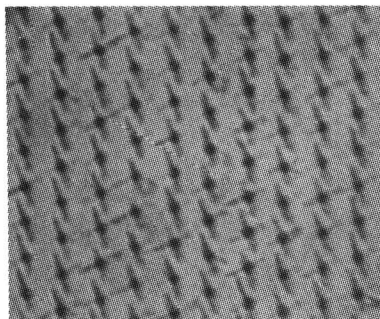


图2 皮秒激光在白宝石内部造成损伤的外形
Fig.2 Damage morphology inside sapphire

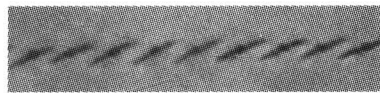


图3 飞秒激光在白宝石内部造成的损伤外形
Fig.3 Damage morphology inside sapphire crystal in <0001> plane induced by 100 fs laser pulse

为了与铌酸锂晶体表面的损伤作比较,用三种不同脉冲宽度的激光在白宝石表面造成损伤,图4是用 ns 激光脉冲在白宝石表面上产生的高温微爆(焦点在样品外面);图5是 ps 激光脉冲在样品表面造成的损伤(焦点在表面上),应力作用使晶体产生裂纹;图6是 fs 激光脉冲诱导的微爆膨胀,焦点在表面内部 $10\ \mu\text{m}$ 左右,焦点区域体积膨胀把物质推向表面,在表面上形成凸起的小点,这些现象与熔

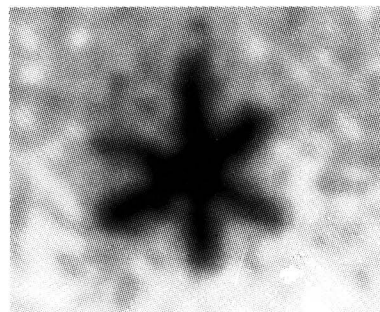


图4 纳秒激光脉冲在白宝石晶体表面形成的损伤
Fig.4 Dots on the surface of sapphire induced by ns laser pulse

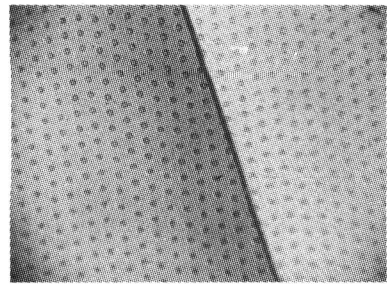


图5 皮秒激光脉冲在白宝石晶体表面形成的损伤,中间是激光作用过程中形成的裂纹
Fig.5 Craters on the surface of the sapphire crystal induced by 6 ps excitation pulse. The line in the middle shows a line-like imperfection after irradiated by ps laser pulse

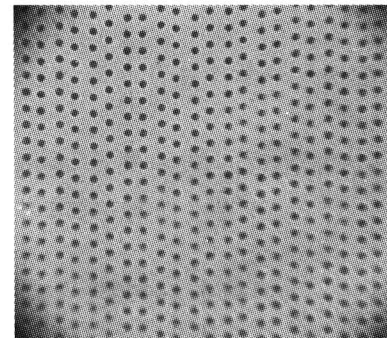


图6 飞秒激光在白宝石表面形成的损伤
Fig.6 Drum-like dots on the surface of the sapphire crystal generator by fs laser while the focus is inside of the crystal and near the surface

融石英的损伤一致,仅能反映出不同脉宽激光的热效应不同.

2 分析和讨论

2.1 长脉冲损伤机理

连续激光和长脉冲激光的损伤,热效应起主导作用.样品内部通过杂质或多光子吸收,产生少量自由电子;自由电子通过逆向轫致辐射的方式吸收入射激光能量后,动能增加,通过与分子或离子的碰撞而电离出新的低动能的自由电子,这种过程使得自由电子的数目呈几何级数增加,这就是雪崩电离机理.其结果就是在透明体内产生了一个高密度 ($10^{18} \sim 10^{20}$ 电子/ cm^3) 自由电子等离子体^[8].有了高强度的等离子体之后,等离子体中的自由电子通过逆向轫致辐射,吸收大部分的人射激光能量,达到更高的温度.在辐照点将产生极大的应力,当应力超过材料的极限强度时发生微爆.从图1来看,ns 激光对白宝石的损伤主要以热效应为主,损伤形态以炸裂为主,外型呈“米”字形;功率较高时,除炸裂破坏外,中心出现熔融区^[9].

2.2 超短脉冲损伤机理

随着脉冲宽度的减小,热效应越来越弱.超短激光脉冲紧聚焦透明介质内部,会诱导样品内产生

强烈的非线性吸收,其结果仍然是产生一个高浓度的自由电子等离子体.与长脉冲相比,雪崩电离的作用随脉冲宽度的变短而迅速减弱.对 100 fs 的激光脉冲来说,自由电子来不及将能量传递给附近的离子或晶格,因此只有在焦点以内的区域才会产生一些物理或化学变化,而热效应并不明显,因此 fs 激光微加工也被称之为“冷”加工.当 ps 激光脉冲聚焦到白宝石内部,炸裂明显减少,呈现出“十”字形,与 ps 激光在铌酸锂晶体内部损伤外形结构相似,但在白宝石晶体内部与激光偏振方向无关.fs 激光产生的损伤外形更为特殊,呈“一”字形;而对于〈0001〉切割的白宝石片,在 XY 平面是各向同性的.虽然入射激光是偏振的,但改变激光的偏振方向,发现,“一”字走向并没有随激光偏振方向的改变而改变.

2.3 阈值分析

用 ps 和 fs 激光脉冲辐照白宝石晶体时,在监视系统中可以观察到损伤的阈值比熔融石英高 1.5 倍左右,其它玻璃材料和一些晶体的微爆损伤阈值的差别都较小.下面对熔融石英和白宝石的各项物理参量进行分析比较,研究它们的损伤阈值出现如此大的差别的原因.表 1 列出了熔融石英和白宝石的各项物理参量^[12].

表 1 白宝石和熔融石英性能参量

材料/性能	白宝石(Al_2O_3)	熔融石英
密度:	3.98 g/cm ³	2.2 g/cm ³
熔点:	2050°C	1100(变形点)
莫氏硬度:	9	6
抗弯强度:	600 MPa	48 MPa
抗压强度:	2100 MPa	1100 MPa
杨氏模量:	345 GPa	73 GPa
剪切模量	148 GPa	31 GPa
体模量	240 GPa	41 GPa
泊松比	0.25	0.17
热膨胀系数	5.8×10^{-6}	$5.5 \times 10^{-7}/\text{C}$
热导率	0.040($\perp c$) 0.041($\parallel c$)	1.38
能带宽度	9.9 eV	9 eV
非线性折射率	$2.5 \times 10^{-16} \text{ cm}^2/\text{W}$	$3 \times 10^{-16} \text{ cm}^2/\text{W}$

首先,从白宝石对 fs 激光脉冲的吸收来看,材料的光电性能决定着激光脉冲在其内的繁衍和吸收.理论上介质的损伤阈值由临界导带自由电子密度决定^[13].而自由电子等离子体密度与激光强度 I 的关系近似为^[14]: $\rho \propto (I/\Delta E)^k \exp(2k)$.显然,等离子体密度与光强和介质带宽有关.虽然,熔融石英和白宝石的非线性折射率有差别,但由于等离子体的激发,用相同物镜聚焦同一光束在介质内的光斑大小基本一样^[15],因此本文认为光强相同.从能带宽度

这个参量考虑,熔融石英的吸收边沿在 185 nm,对应 5 光子吸收;而白宝石的吸收边沿在 150 nm,对应 6 光子吸收.一般来讲,6 光子吸收截面比 5 光子吸收要小,这可能会引起白宝石的损伤阈值较高.

其次,温度可能是影响阈值最重要的因素之一,不同的激光能量在焦点区域产生的温度不同,A. M. Streltsov^[4]等详细分析了不同能量和峰值功率密度的激光脉冲在不同玻璃内部产生的温度.结果显示,在相同的能量或峰值功率密度激光脉冲辐照下,不同玻璃材料内部的温度变化不大;而且材料内部温度的增加与能量或峰值功率密度并不是线性关系.例如一个 0.41 μJ 的 fs 激光脉冲用 0.65NA 的物镜聚焦到熔融石英内会产生 1250° 的高温(略高出熔融石英的软化点),而一个 0.65 μJ 的脉冲就可以产生 2200° 的温度(略高出白宝石的融点).单从这个角度考虑,白宝石的损伤阈值就可能比熔融石英高 50%.

表 1 是白宝石和熔融石英性能参量.因为焦点区域的高温膨胀会诱导介质发生微爆,焦点区域的物质结构发生变化,在相同的温度下,结构变化将由材料的机械性能决定.实验中,只有变化区域大于 400 nm 时,成像系统才能够分辨;因此,结构变化区域大于 400 nm 时才能发现材料的损伤.从表 1 可以看出,白宝石的三个模量和两个破坏强度都比熔融石英高 2~10 倍,这就意味着在相同能量的微爆下,白宝石的结构变化要比熔融石英要小得多.由于没有考虑到白宝石晶体大的热膨胀系数,对热效应起主导作用的长脉冲损伤情况,白宝石的损伤阈值和熔融石英损伤阈值的差别应该小一些,这与文献[9]的实验结果一致.由于微爆所产生的应力是冲击波,与材料破坏区域大小最密切的就是体模量;在相同的冲击波下,白宝石比熔融石英的形变要小 6 倍左右.如果体模量与损伤阈值相关的话,要得到 400 nm 的损伤面积,白宝石需要的激光能量要高得多.从上面的分析可知,光学材料飞秒激光损伤阈值与结构参量关系不大,而与材料的禁带宽度十分密切.

2.4 损伤形态分析

ns 激光损伤主要是热效应,由于白宝石晶体的热膨胀系数比熔融石英大;因此,ns 激光脉冲对白宝石的损伤形态与微秒脉冲和连续光相似,外型都呈现规则的“米”字形结构,如图 1.这与六方晶系(0001)方向的晶胞结构图一致,XYT 三轴在同一平面内,相互间的夹角为 120°.这说明在热应力作用下,晶体沿轴向发生滑移,出现类似位错一样的损伤.图 5 是用 ps 激光脉冲聚焦到白宝石表面刻写的一

个阵列,点间距为 $5\ \mu\text{m}$,中间出现一道明显的位错.实际上,在生长白宝石晶体的冷却过程中,也会出现由于热应力产生的线性缺陷^[16]

对 fs 激光脉冲而言,热效应不是主要的损伤机理,晶体内部产生“一”字形损伤,而且与激光的偏振方向无关.这种结构可能与晶体对应的点群和晶体缺陷的择优取向有关,例如体心立方金属在室温缺陷倾向于 $\langle 111 \rangle$ 和 $\langle 112 \rangle$ 平面,在高温下倾向于 $\langle 110 \rangle$ 和 $\langle 123 \rangle$ 平面.在密堆六方结构中,低温下滑移在 $\langle 0001 \rangle$ 基面上进行;在 230°C 以上,滑移发生在 $\langle 1011 \rangle$ 面内.具体分析不同宽度的激光脉冲在晶体内部产生的缺陷机理有相当大的难度,已经超出了本文的实验条件.

如图 4、5 和 6,当激光的焦点聚焦在样品表面时,在空气和样品的界面上先形成高温等离子体;这两个原因,其一是由于空气的电离阈值比白宝石低,其二是白宝石晶体表面存在杂质^[17].界面处等离子体的温度可达 5000°C ,完全可以直接将材料气化,形成了圆形截面的坑.与三角晶体不同,六角型晶体的各向异性在表面微爆时难以显示出来.当焦点在样品内部但很靠近表面时,fs 激光脉冲诱导的微爆膨胀,把焦点区域的物质推向表面,在表面上形成凸起的小点.这是由于激光作用时间非常短,高温膨胀的材料在推向表面时迅速固化的结果,在这个过程中,还可能伴随着重结晶^[7].

3 结论

损伤形貌能够为分析损伤机理提供有用的信息.本文利用宽能带介质在强激光作用下产生多光子吸收从而导致焦点区域结构性改变的特征,详细研究了白宝石(sapphire)晶体在 ps 和 fs 脉冲激光作用下的损伤形态.对 $\langle 0001 \rangle$ 切割的白宝石,在 ns 脉冲作用下,损伤外型呈“米”字形,与晶体的结构参量一致;在 ps 和 fs 激光脉冲作用下,损伤外型呈“十”字形,可能与晶体在膨胀应力下缺陷的择优取向有关.实验还发现白宝石晶体的损伤阈值比熔融石英高 1.5 倍,从材料的机械、热学、电光特性分析了材料的能带宽度、熔点、体积模量都会对激光损伤阈值产生影响,发现材料的飞秒激光损伤阈值对机械、热学参量不敏感,而与带宽关系密切.这些微结构为激光微加工和材料处理提供了有用的信息,例如在白宝石晶体表面用飞秒激光处理形成具有带隙结构的纳米点阵,再结合化学气相沉积技术,生长激光薄膜材料,可以改变激光材料的发射波长,这是下一步将尝试的实验.

参考文献

- 1 Yin X, Fang N, Zhang X, *et al.* Near-field two-photon nanolithography using an apertureless optical probe. *Appl Phys Lett*, 2002, **81**(19):3663~3665
- 2 Glezer E N, Millsavljevic M, Huang L, *et al.* Three-dimensional optical storage inside transparent materials. *Opt Lett*, 1996, **21**(24):2023~2025
- 3 Chan J, Huser T, Risbud S H, *et al.* Structural changes in fused silica after exposure to focused femtosecond laser pulses. *Opt Lett*, 2001, **26**(21):1726~1728
- 4 Strellsov A M, Borrelli N F. Study of femtosecond-laser-written waveguides in glasses. *J Opt Soc Am B*, 2002, **19**(10):2496~2502
- 5 Cheng Guanghua, Wang Yishan, White J D, *et al.* Demonstration of high-density three-dimensional storage in fused silica by femtosecond laser pulses. *J Appl Phys*, 2003, **82**(4):1841~1844
- 6 Cheng Guanghua, Yu Lianjun, Wang Yishan, *et al.* A compact Ti: sapphire femtosecond amplifier without compressor at high repetition rate. *Chin Opt Lett*, 2003, **1**(4):225~227
- 7 Cheng Guanghua, White J D, Wang Yishan, *et al.* Microstructure on surface of $\text{linbo}_3 : \text{Fe}$ induced by a single ultra-short laser pulse. *Chin Phys Lett*, 2003, **24**(8):1311~1313
- 8 胡来胜, 马健康, 徐志刚, 等. 定时中断对飞秒激光脉冲调制的研究. 光子学报, 2004, **33**(9):1032~1034
Hu L S, Ma J K, Xu Z G, *et al.* *Acta Photonica Sinica*, 2004, **33**(9):1032~1034
- 9 刘青, 程光华, 王屹山, 等. 飞秒脉冲在透明材料中的三维光存储及其机理. 光子学报, 2003, **32**(3):276~279
Liu Q, Cheng G H, Wang Y S, *et al.* *Acta Photonica Sinica*, 2003, **32**(3):276~279
- 10 李仲伉, 程雷, 李成富. 熔石英玻璃和白宝石晶体激光损伤的研究. 中国激光, 2002, **29**(10):920~924
Li Z Y, Cheng L, Li C F. *J Chin Laser*, 2002, **29**(10):920~924
- 11 Stoian R, Varel H, Rosenfeld A, *et al.* Campbell, Ion time-of-flight analysis of ultrashort pulsed laser-induced processing of Al_2O_3 . *Applied Surface Science*, 2000, **165**(1):44~55
- 12 <http://www.fj-sapphire.com/pro1.htm> and <http://www accuratus.com/fused.html>
- 13 孙呈伟. 激光辐照效应. 北京:国防工业出版社, 2002. 283~289
Sun C W. *Laser Irradiation Effects*. Beijing, National Defense and Industry Press, 2002. 283~289
- 14 程光华, 刘青, 杨玲珍, 等. 飞秒激光脉冲诱导透明介质的非线性吸收和折射率改变轮廓的研究. 光子学报, 2003, **32**(11):1281~1285

- Cheng G H, Liu Q, Yang L Z, *et al.* *Acta Photonica Sinica*, 2003, **32**(11): 1281~1285
- 15 Yau T W, Lee C H, Wang Y S, *et al.* Uncollapsed self-focusing of femtosecond pulses in dielectric media due to the saturation of nonlinear refractive index. *Proc CLEO*, 2000, 2~4
- 16 Henderson B. Imperfections in crystal. Beijing: College Education Press, 1983. 16
- 17 Salleo A, Genin F Y, Feit M D, *et al.* Energy deposition at front and rear surfaces during picosecond laser interaction with fused silica. *Applied Physics Letters*, 2001, **78**(19): 2840~2842

Structural Characteristics Induced by Nanosecond, Picosecond, and Femtosecond Laser Pulse in Sapphire

Cheng Guanghua¹, Wang Yishan¹, Zhao Wei¹, Chen Guofu¹, Liu Qing²

¹ State Key Laboratory of Transient Optics and Photonics, Xi'an Institute of Optics and Precision Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Xi'an 710068

² Applied Physics Institute, Zhejiang Wanli College, Ningbo 315101

Received date: 2005-04-28

Abstract The damage threshold and morphology of sapphire crystal $\langle 0001 \rangle$ have been investigated by nanosecond (ns), picosecond (ps), and femtosecond (fs) laser pulse at 800 nm based on the mechanical, thermal, and photon-electrical properties of sapphire crystal. The star-like crack which is associated with the point group of sapphire crystal is induced by ns laser pulse, and the cross crack induced by ps and line-like crack by fs laser pulse may be relation to the preferred dislocation from anisotropic stain tensor.

Keywords Sapphire crystal; Laser damage; Ultrashort laser pulse



Cheng Guanghua was born in 1976 and received his B. S. degree from the Dept. of Physics, Northwest University in 1999. Now he is working as a Ph. D. candidate at the State Key Laboratory of Transient Optics Technology, Xi'an Institute of Optics and Precision Mechanics, Chinese Academy of Sciences. His research interests are nonlinear optics, ultrashort pulse generation, laser material processing and three dimension optical data storage.