基于纳飞秒双脉冲激光的蓝宝石蚀除研究

王懋露, 梅伟, 杨立军, 王扬*

哈尔滨工业大学机电工程学院, 哈尔滨 150001

*联系人, E-mail: wyyh@hit.edu.cn

收稿日期: 2018-12-29; 接受日期: 2019-02-21; 网络出版日期: 2019-09-18

国家自然科学基金(编号: 51275117)资助项目

摘要 蓝宝石作为一种典型的宽带隙半导体材料具有良好的理化特性, 在机械电子、航空航天、微电子等领域具有广阔的应用前景. 本文提出采用纳飞秒双束激光进行蓝宝石加工的方法, 利用飞秒脉冲峰值功率高的特性, 通过多光子电离与碰撞电离, 激发蓝宝石表面自由电子从而提高了蓝宝石对纳秒激光的吸收率, 同时利用纳秒激光能量相对较大, 技术成熟的优势, 实现对蓝宝石材料的高质高效加工. 为了揭示纳飞秒双束激光与蓝宝石材料的能量耦合机制, 采用Fokker-Plank方程、Drude模型、双温模型对飞秒激光诱发的自由电子的演化过程及自由电子与入射激光之间的相互作用进行研究, 并通过有限元仿真模拟了纳飞秒双激光与蓝宝石材料相互作用的能量耦合过程与蚀除过程, 分析了纳飞秒双脉冲激光作用下, 不同脉冲延时下等离子浓度的时空演化规律及其对入射激光吸收系数及反射率等表面光学特性的影响规律, 揭示了纳飞秒双激光高效高质加工蓝宝石材料的机理. 该研究对实现蓝宝石等宽带隙半导体等脆硬材料的高质高效加工具有重要意义.

关键词 蓝宝石, 双脉冲激光, 激光蚀除, 自由电子浓度

PACS: 41.75.Jv, 42.25.Bs, 42.50.Hz

1 引言

宽带隙半导体材料(例如蓝宝石、碳化硅、氮化镓等)具有良好的理化特性, 如化学性能稳定、热膨胀系数小、耐腐蚀、抗磨损等, 因而在机械电子、航空航天、微电子等领域具有广阔的应用前景^[1-6]. 然而由于上述材料具有高硬度、高脆性及价格昂贵的特点, 且工业生产中对其加工效率及加工质量要求不断提高, 对其加工工艺不断提出新的挑战. 这些新的挑战对于传统加工技术而言, 则存在巨大困难或超出了其理

论工艺极限. 目前, 对其常用的加工方法有磨削^[7]、反应离子刻蚀^[8]、光电化学刻蚀^[9]、激光加工^[10-12]等. 采用金刚石砂轮进行磨削的加工费用最多可占整个产品的50%, 降低了器件的性价比; 刻蚀方法虽然能够加工大深径比, 但工艺过程复杂, 而且加工效率很低. 近年来, 飞秒激光凭借其脉冲持续时间极短、峰值功率极高的特点, 已在材料加工过程中表现出了一系列独特的优点, 但是由于飞秒激光脉冲能量很小, 蚀除效率较低, 很难满足工业生产对效率的要求. 而能量相对较大的纳秒脉冲激光虽然已经广泛应用到工业生产

引用格式: 王懋露, 梅伟, 杨立军, 等. 基于纳飞秒双脉冲激光的蓝宝石蚀除研究. 中国科学: 物理学 力学 天文学, 2020, 50: 034205

Wang M L, Mei W, Yang L J, et al. Investigation on sapphire ablation by femtosecond-nanosecond dual beam laser (in Chinese). Sci Sin-Phys Mech Astron, 2020, 50: 034205, doi: [10.1360/SSPMA2018-00420](https://doi.org/10.1360/SSPMA2018-00420)

中, 如对金属材料、半导体材料进行加工, 但是由于宽带隙半导体材料对通常的纳秒激光吸收率很低, 因此很难实现有效加工.

为了改善宽带隙半导体材料的加工质量及效率, 各国学者采用飞秒-飞秒、纳秒-纳秒双脉冲激光对宽带隙材料进行了相应的实验, 加工效率、加工质量略有改善, 但是仍然存在跟单纯飞秒、纳秒加工相同的问题^[11,12]. Sugioka等人^[13]采用脉宽为纳秒级的紫外拉曼激光器和4倍频YAG激光器对石英玻璃进行去除试验, 结果表明, 不同波长激光束同时作用时, 对改善石英玻璃的加工质量和加工效率有一定作用, Sugioka等人^[13]认为加工效率的改善是由于拉曼激光中的短波长成分首先将石英玻璃激发到受激态, 而受激态对拉曼激光的基频光($\lambda=266\text{ nm}$)吸收效率较高. Zhang等人^[14]为了改善KrF准分子激光($\lambda=248\text{ nm}$)对石英玻璃的加工质量及效率, 在KrF准分子激光脉冲中叠加一个波长更短的极紫外F₂激光脉冲($\lambda=157\text{ nm}$), 双脉冲的共同作用明显地提高了蚀除效率, 减少了碎片沉积, 并且通过调整脉冲之间的延时可以进一步改善加工质量, 在这里F₂激光脉冲的主要作用也是将石英玻璃激发到受激态, 以提高对KrF准分子激光的吸收. 美国密苏里科技大学的Rao等人^[15,16]在前人研究的基础上, 开展了对纳飞秒双激光与绝缘材料的相互作用的研究工作, 指出两个脉冲之间的延时对加工效率有明显的影响. Zhou等人^[17]采用了一种新的空间双脉冲激光烧蚀方案, 提高了硅基材料纳秒激光烧蚀的加工质量和效率.

综上所述可以看出双脉冲激光要对宽带隙绝缘材料产生高的加工效率与好的加工效果, 需要具备两个条件: 第一, 需要有激发脉冲, 能量不需要很大, 但是要能使宽带隙材料产生激发态; 第二, 需要有加工脉冲, 提供加工所需的必要能量, 并能够利用激发态耦合到工件中. 飞秒激光由于其非线性效应, 宽带隙半导体材料很容易被其激发而产生完全电离, 非常适合作为激发脉冲, 而纳秒激光一方面单脉冲能量相对较大, 另一方面技术成熟, 技术参数能够在较大的范围内选择、调节, 有利于保证加工质量与提高加工效率. 因此在纳秒脉冲中附加一个飞秒脉冲通过合理控制激光参数及脉冲延时将有可能同时集合飞秒激光加工精度高和纳秒激光加工效率高的优点, 实现对宽带隙半导

体材料的高精度、高效率可兼顾的微纳加工.

蓝宝石具有良好的理化特性, 在机械电子、航空航天、微电子等领域具有广阔的应用前景. 然而其与金刚石、熔融石英等宽带隙半导体材料类似, 属于典型的难加工材料^[18]. 本文将在前人的基础上, 将飞秒、纳秒激光的优点相结合, 以蓝宝石材料为研究对象, 采用仿真和试验研究相结合的方法对其在纳飞秒双激光作用下的能量耦合特性、蚀除机制进行研究, 分析飞秒脉冲与纳秒脉冲激光蚀除的时序综合作用机理, 建立宽带隙半导体材料的纳飞秒双激光蚀除数学模型. 该研究对实现蓝宝石等宽带隙半导体材料的高效、高精度加工, 促进其在航空航天关键零件的高精度加工、激光核聚变点火靶的微结构加工、微型传感器微结构加工等方面的应用具有重要意义.

2 纳飞秒双激光实验装置

建立的纳飞秒双脉冲激光加工的实验装置其工作原理如图1所示. 飞秒激光波长1030 nm, 脉宽255 fs, 纳秒激光波长355 nm, 脉宽20 ns, 每束激光都经过一个半波片和一个线偏振器, 通过旋转半波片, 可以在不改变输出光的偏振方向的情况下, 调整激光的输出功率. 脉冲延时通过自制的分辨率为纳秒级的数字延时器进行精确调整, 聚焦物镜采用反射式聚焦镜, 这样就可以对两种不同波长的激光聚焦到同一点.

为了精确控制脉冲延时, 采用反射镜将双脉冲激光反射聚焦到高速光敏探测器上, 并将探测结果作为输入信号输入示波器, 进而通过示波器显示双脉冲之

图1 (网络版彩图)纳飞秒双脉冲激光加工示意图

Figure 1 (Color online) Schematic diagram of ns-fs double pulse laser ablation.

间的延时, 通过调整脉冲数字延时器即可实现对纳飞秒双脉冲延时的调整, 如图2所示.

利用上述实验装置对纳飞秒双脉冲激光加工时脉宽之间组合、波长组合、能量组合、共振组合及脉冲延时对加工过程进行了研究, 优化加工过程. 通过脉冲延时对激光加工过程影响的研究, 发现脉冲延时对加工过程影响很大, 通过调整脉冲延时, 可以很好地调整加工过程中自由电子的浓度, 从而改变次脉冲与自由电子之间的能量耦合, 进而可通过调整脉冲延时对加工过程进行调整, 实现不同的加工需求.

3 纳飞秒双激光与蓝宝石相互作用的理论基础

飞秒激光可以在极短的时间内产生极大的峰值能量密度($>10^{13}$ W/cm²)和快速能量沉积, 通过多光子电离和雪崩电离在材料表面产生大量的自由电子. 自由电子浓度的分布与激光能量分布有关, 考虑多光子吸收、雪崩电离和电子的衰减, 根据Fokker-Plank方程可得材料中自由电子浓度随时间的变化. 基于Drude模型可知, 在自由电子的作用下, 蓝宝石表面会呈现强烈的金属性, 对入射光的吸收率会大大提高. 根据飞秒激光激发的自由电子持续时间, 在适当的时刻施加一个同轴的纳秒脉冲, 蓝宝石对纳秒激光的吸收率将得到很大的提高, 使原本吸收率极低的纳秒激光耦合到蓝宝石材料内部, 极大地提高加工效率. 纳飞秒双激光与蓝宝石相互作用可分为以下几个部分.

3.1 自由电子的产生

在飞秒激光作用下, 考虑多光子吸收、雪崩电离以及自由电子的衰减, 根据Fokker-Plank方程可得材料

图2 (网络版彩图)不同延时下的纳飞秒脉冲序列
Figure 2 (Color online) Ns-fs pulse trains with different time delay.

中自由电子浓度的变化规律如下式所示:

$$\frac{\partial n_e}{\partial t} = a_i I_f + \delta_m I_f^m + \frac{n_e}{\tau}, \quad (1)$$

式中, a_i 为雪崩电离系数(cm²/J); δ_m 为多光子吸收系数(cm¹³/W⁷); n_e 为自由电子浓度(m⁻³); I_f 为飞秒激光能量密度(W/m²); τ 为电子扩散时间常数(s). 其中式(1)右侧第一项为雪崩电离产生的自由电子, 第二项为多光子电离产生的自由电子, 第三项为由于非弹性碰撞及自由电子从聚焦区向周围扩散造成的自由电子流失.

对于蓝宝石材料, 电子扩散时间常数 τ 一般取为150 ps^[18]. 雪崩电离和多光子电离的影响因素很多, 本课题为简化模型, 为了提高计算速度, 对雪崩电离和多光子电离系数进行简化估算. 本文采用波长为1030 nm, 脉宽255 fs的飞秒激光器, 对于近红外光来说, 光子能量较低, 蓝宝石带隙为8.8 eV, 需要同时吸收8个光子的能量才能发生多光子电离过程.

多光子吸收系数由多光子吸收截面系数, 光子数目以及激光频率确定, 如下式所示:

$$\delta_m = \frac{\beta^m}{m \hbar \omega}. \quad (2)$$

根据文献[18]提供的公式, 计算可得当飞秒激光强度为 6×10^{13} W/m²时, 8光子吸收系数 $\beta^{(8)} = 5.29 \times 10^{-91}$ cm¹³/W⁷, 进而可得 $\delta_m = 5.45 \times 10^{-74}$ m³ s⁻¹ (W/m²)⁻⁶.

雪崩电离系数由截面系数和能带宽度确定, 如下式所示:

$$a_i = \frac{\sigma}{n^2 E_g}, \quad (3)$$

式中, σ 为雪崩电离的截面系数(cm²); n 为折射率; E_g 为禁带宽度(eV).

雪崩电离截面系数 σ 通过式(4)计算^[19]:

$$\sigma = \frac{ne^2 \tau_c}{cm \epsilon_0} \times \frac{1}{1 + (\omega \tau_c)^2}, \quad (4)$$

式中, e 为电子电荷(C); ϵ_0 为真空中的介电常数(F/m); τ_c 为电子碰撞时间(fs); m_e 为电子质量(kg).

对于蓝宝石材料, 在波长为1030 nm的折射系数为1.75^[19], 典型的电子碰撞时间为1–5 fs^[17], 本文取蓝宝石的电子碰撞时间为 $\tau_c = 4$ fs, 则对于波长为1030 nm的红外飞秒激光, 雪崩电离截面系数 σ 为 2.39×10^{-17} cm².

3.2 双温模型

当纳秒激光作用后, 由于飞秒激光诱发的等离子

的存在, 使得纳秒激光与宽带隙半导体材料之间由弱耦合变为强耦合. 由于纳秒激光的热作用, 材料温度迅速升高, 热效应形成的蚀除不能再忽略.

为了计算电子与晶格温度的相互耦合效应, 在仿真中耦合了双温模型:

$$C_e \frac{\partial T_e}{\partial t} = \nabla (\kappa_e \nabla T_e) - \alpha(T_e - T_l) + I_f, \quad (5)$$

$$C_l \frac{\partial T_l}{\partial t} = \nabla (\kappa_l \nabla T_l) + \alpha(T_e - T_l) - H, \quad (6)$$

式中, C_e 为电子比热($\text{J m}^{-3} \text{K}^{-1}$); C_l 为晶格比热($\text{J m}^{-3} \text{K}^{-1}$); κ_l 为晶格导热系数($\text{W m}^{-1} \text{K}^{-1}$); α 为电子晶格耦合系数($\text{W m}^{-3} \text{K}^{-1}$); T_l 为晶格温度(K); H 为材料蚀除的能量损失(J).

$$H = C_l(T_l - T_0) + H_{\text{lalent}}, \quad (7)$$

式中, H_{lalent} 为相变潜热.

一方面双温模型能够在飞秒作用阶段直观地反映电子与晶格温度的相互耦合效应, 提高了飞秒激光作用阶段能量耦合的精度, 另一方面到了纳秒脉冲作用阶段, 由于电子温度与晶格温度平衡, 双温模型可退化为傅里叶传热方程, 计算晶格温度, 从而确定材料的热物性参数, 并进一步根据熔点计算材料的蚀除范围.

3.3 蓝宝石材料性质的改变及其对入射激光的影响

飞秒激光作用蓝宝石之前, 可以认为光强在时间和空间上都服从高斯分布, 假设激光的焦点正好位于工件表面 $z=0$ 处, 考虑到激光与等离子体的相互作用, 则在材料内部激光的强度可以表示为

$$I_f = \frac{2F_f}{\sqrt{\pi \ln 2} t_{\text{pf}}} (1 - R) \times \exp \left[-\frac{r^2}{r_0^2} - (4 \ln 2) \frac{t^2}{t_{\text{pf}}^2} - \int_0^z \alpha dz \right], \quad (8)$$

式中, F_f 为激光峰值能量密度(W/m^2); R 为材料表面反射率; r 为表示距高斯光束轴线的距离(m); r_0 为激光光斑半径(m); z 为距被加工材料表面的深度(m); α 为激光吸收系数(m^{-1}); t_{pf} 为飞秒激光脉冲宽度(s); t_0 为峰值功率所处时刻(s).

大量自由电子的存在使蓝宝石表面的光学性质完全改变, 呈现强烈的金属性. 为了分析自由电子对蓝宝

石材料表面光学性质的影响, 基于Drude模型建立了介电系数与自由电子浓度的关系如下式所示:

$$\begin{aligned} \varepsilon(t, r, z) &= \varepsilon_1(t, z) + i\varepsilon_2(t, z) \\ &= \left[1 - \frac{\omega_p^2(n_e) \tau_c^2(t, r, z)}{1 + \omega^2 \tau_c^2(t, r, z)} \right] \\ &\quad + i \left[\frac{\omega_p^2(n_e) \tau_c^2(t, r, z)}{\omega(1 + \omega^2 \tau_c^2(t, r, z))} \right], \end{aligned} \quad (9)$$

式中, ε 为蓝宝石表面介电系数; ε_1 为蓝宝石表面介电系数的实部; ε_2 为蓝宝石表面介电系数的虚部; ω 为入射激光的振动频率; ω_p 为蓝宝石表面等离子体频率.

其中等离子频率

$$\omega_p^2 = \frac{n_e e^2}{\varepsilon_0 m_e}. \quad (10)$$

根据介电系数与折射率之间的关系, 可以进一步计算激光在蓝宝石表面的反射率, 如下式所示:

$$R = \frac{(n-1)^2 + \kappa^2}{(n+1)^2 + \kappa^2}, \quad (11)$$

式中, n 为折射率; κ 为消光系数. n 和 κ 分别由介电系数平方根的实部与虚部决定.

根据Drude模型, 自由电子对入射激光能量的吸收系数为

$$\alpha_h = \frac{4\pi\kappa}{\lambda}. \quad (12)$$

对于蓝宝石这种绝缘材料, 首先要吸收一部分的能量用于电离产生自由电子, 因此蓝宝石材料对飞秒激光的吸收系数可表达为

$$\alpha = \alpha_h + \left(\frac{\sigma}{n^2 E_g} I n_e + \frac{\beta^m}{m \hbar \omega} I^m \right) E_g. \quad (13)$$

3.4 仿真流程

根据以上理论分析建立了纳飞秒激光加工蓝宝石材料的有限元仿真模型. 激光能量分布在空间上呈三维轴对称的高斯分布, 假定圆形光斑区域材料的消融特性呈旋转对称分布. 因此, 将模型简化为在二维 rz 平面上进行计算, 极大地减少了计算时间. 仿真区域为直径 $40 \mu\text{m}$, 高度 $30 \mu\text{m}$ 的圆柱, 激光载荷沿圆柱轴向聚焦于上表面, 为了提高仿真效率及精度, 在仿真区域采用非均匀网格划分, 在轴线及上表面区域采用较密的网格划分, 在飞秒激光作用阶段时间步长采用 1 fs ,

纳秒激光作用阶段时间步长采用 1 ps.

给定系统的初始条件为环境温度 $T_0=293$ K, 环境压力 $P_0=10^5$ Pa. 单脉冲激光与材料作用时间相对于材料通过热传导至边界的时间短, 边界处的局部温度不会影响材料消融过程. 如图3所示, 在几何模型的三边应用绝热边界条件, 对称轴处不施加约束. 仿真中采用飞秒激光能量密度为 12 J/cm^2 , 脉冲宽度为 255 fs, 波长为 1030 nm; 纳秒激光能量密度为 60 J/cm^2 , 脉冲宽度为 20 nm, 波长为 355 nm.

根据以上理论分析进行了纳飞秒双脉冲激光加工宽带隙半导体材料的数值模拟, 具体模拟流程如下所示:

- (1) 根据入射飞秒激光强度, 计算自由电子浓度分布(自由电子产生);
- (2) 根据自由电子浓度, 计算自由电子温度及晶格温度(双温模型);
- (3) 根据自由电子温度, 计算自由电子的介电常数;

图 3 (网络版彩图) 仿真模型. (a) 模型网格划分; (b) 边界条件

Figure 3 (Color online) Simulation model. (a) Model mesh generation; (b) boundary condition.

图 4 (网络版彩图) 对称轴处不同深度自由电子浓度随时间的变化规律. (a) 时间 0-1 ps; (b) 时间 0-6 ns

Figure 4 (Color online) Variation of free electron density at different depths with time at symmetry axis. (a) 0-1 ps; (b) 0-6 ns.

(4) 根据自由电子的介电常数计算出自由电子对入射激光的反射率及吸收系数;

(5) 根据反射率及吸收系数, 计算入射激光的强度随时间、空间的变化规律;

(6) 然后重复步骤(1)-(5), 直到自由电子浓度与电子温度收敛;

(7) 进入下一时间段, 重复(1)-(6), 直至整个纳飞秒脉冲结束. 在脉冲辐照结束后, 如果晶格温度大于或等于熔化温度, 则材料被蚀除.

4 结果与讨论

飞秒激光作用蓝宝石产生的自由电子在激光能量耦合过程中起着重要的作用. 激光能量密度为 12 J/cm^2 , 开始作用时刻为 200 fs, 工件表面自由电子浓度的时空变化规律如图4所示. 200 fs之前, 自由电子浓度相对较低, 主要处于多光子电离阶段; 随着激光能量的增大, 自由电子浓度逐渐增大, 大约在 220 fs, 最表面处(0-100 nm)自由电子的浓度开始超过自由电子阈值浓度($1 \times 10^{28} \text{ m}^{-3}$), 进入雪崩电离阶段, 自由电子浓度迅速增大, 表面 200 nm 以下, 仍然在自由电子阈值浓度之下, 其电子浓度主要是受多光子电离的影响. 在 600 fs 时, 飞秒激光脉冲结束, 自由电子的浓度达到最大值. 由于激光能量在空间上呈高斯分布, 所以在工件表面 $r=0$ 处自由电子浓度最高, 随着半径增大, 自由电子浓度下降, 基本上自由电子浓度在半径方向上服从高斯分布, 随着深度的增加径向电子密度的差异减小, 趋向平坦, 如图5所示.

受自由电子浓度的调控, 入射激光光强的时空分布也产生了相应的变化, 如图6所示. 由于蓝宝石是一

图 5 (网络版彩图)600 fs时, 自由电子浓度的空间分布

Figure 5 (Color online) The spatial distribution of free electron density at 600 fs.

种透明材料, 在波长 $0.2\text{--}5\text{ }\mu\text{m}$ 时, 其透过率在85%以上, 几乎不发生反射; 在 $0\text{--}200\text{ fs}$ 的范围内, 尚未发生雪崩电离, 由于多光子电离产生的自由电子浓度较低, 其对入射飞秒脉冲作用较小, 因此初始阶段反射率和吸收系数很小, 各深度处的激光强度与入射飞秒激光差别很小. 随着自由电子浓度的增大, 入射激光强度随深度迅速衰减. 这主要是因为雪崩电离发生后, 大量自由电子的形成, 使材料表面具有了金属特性, 表面反射率、吸收系数迅速增大.

图7和8显示了飞秒激光作用下蓝宝石的表面反射率、吸收系数随时间的变化规律. 激光辐照之前, 工件表面的反射率和吸收率几乎为零, 随着激光辐照, 表面自由电子浓度不断增大, 在220 fs达到自由电子阈值浓度后, 工件表面对激光的反射率和吸收率迅速增长, 工件表面的反射率在220 fs左右, 从0迅速增大到0.95左右, 表面的吸收系数达到 $3\times 10^7\text{ m}^{-1}$, 随着深度的增加, 吸收系数迅速下降, 这将导致激光能量在表面就被迅速吸收. 当飞秒脉冲结束后, 失去了外部能量的激励,

图 6 (网络版彩图)对称轴处飞秒激光功率密度随时间的变化

Figure 6 (Color online) Distribution of fs laser power with time at symmetry axis.

图 7 (网络版彩图)飞秒激光作用下蓝宝石表面反射率的变化

Figure 7 (Color online) Variation of sapphire surface reflectivity with time under fs laser irradiation.

图 8 (网络版彩图)飞秒激光作用下蓝宝石不同深度吸收系数的变化

Figure 8 (Color online) Variation of sapphire absorption coefficient with time under fs laser irradiation.

自由电子浓度开始下降, 工件表面的吸收系数、反射率也随之下降.

飞秒激光激发后, 产生大量自由电子, 随着自由电子浓度的提高其对入射激光的反射率及吸收系数也不断增大, 当达到自由电子阈值浓度时, 等离子体的频率达到入射激光的频率, 产生等离子体共振吸收, 激光能量迅速在聚焦区域沉积, 该区域晶格的稳定性遭到不可逆的破坏, 在几个ps时间范围内导致晶格无序化(非热熔化), 在电声耦合完成之前就形成了蚀除, 因此本文在飞秒激光作用阶段忽略热烧蚀, 把自由电子阈值浓度作为材料蚀除的标准. 为了验证该蚀除标准的有效性, 利用双温模型对烧蚀过程中的晶格的温度进行了计算, 发现自由电子阈值浓度作为蚀除标准得出的蚀除曲线与公认的熔化温度作为蚀除曲线基本一致.

基于自由电子阈值浓度作为激光蚀除的标准进行了蚀坑形貌的预测, 结果如图9所示, 从图中可以看出, 在0–300 fs这个时间段, 由于反射率、吸收率都很低, 材料不同深度处, 激光能量分布基本上与入射光差别不大, 自由电子浓度尚未达到蚀除阈值, 因此不形成蚀除. 在 $t=600$ fs时刻, 通过自由电子阈值浓度作为蚀除条件所预测的蚀坑形状接近高斯分布, 只是底部相对更平坦, 由于此时的最高电子浓度远大于阈值浓度, 随着时间的推移蚀坑还将进一步扩展. $t=1$ ps时, 可以很明显地看出蚀坑宽度的增大要比深度大得多, 底部也更平坦. 这是因为在光斑中心, 形成的自由电子密度非常高, 大部分激光能量将会被反射, 随着入射深度的增大光斑中心的光强与周围光强的差别降低, 使自由电子浓度随入射深度的增加分布更加均匀, 如图6所示, 这将导致阈值自由电子浓度决定的蚀坑底部的形貌不再服从高斯分布, 而是更加平坦. 当 $t=8$ ps, 蚀坑深度达到最大, $r=0.95$ μm , $z=0.14$ μm .

当纳秒激光($60 \text{ J}/\text{cm}^2$)和飞秒激光($12 \text{ J}/\text{cm}^2$)共同作用于蓝宝石表面时, 蓝宝石表面自由电子浓度的变化如图10所示. 飞秒激光作用前, 蓝宝石几乎不吸收纳秒激光能量, 飞秒激光作用时, 材料由于非线性吸收而产生电离, 在材料表面激发出大量的自由电子, 如图4所示, 表面自由电子的浓度在200 fs的时间内在200 nm的深度范围内迅速达到阈值自由电子浓度. 在表面自由电子的作用下, 材料的光学性质发生显著变

图9 (网络版彩图) 飞秒激光作用下, 不同时刻蓝宝石凹坑形貌. (a) 300 fs; (b) 600 fs; (c) 1 ps; (d) 8 ps

Figure 9 (Color online) Variation of sapphire pit morphology with time under fs laser irradiation. (a) 300 fs; (b) 600 fs; (c) 1 ps; (d) 8 ps.

图10 (网络版彩图) 纳飞秒双激光作用下自由电子浓度随时间的变化

Figure 10 (Color online) Variation of free electron density with time under ns-fs dual pulse laser.

化, 对入射的飞秒激光(1030 nm)及纳秒激光(355 nm)的反射率及吸收率显著增强. 由于飞秒激光与纳秒激光波长不同, 因此蓝宝石材料对其反射率和吸收率并不相同.

图11和12分别表示, 纳飞秒双束激光作用下, 蓝宝石对红外飞秒激光和紫外纳秒激光的吸收系数随时间的变化. 蓝宝石对激光的吸收系数与表面自由电子浓度呈正相关的关系(图13), 飞秒脉冲内, 自由电子浓度达到峰值, 吸收系数达到峰值. 而后, 随着电子浓度的降低, 材料吸收系数逐渐降低. 从图11和12的对比可以看出, 蓝宝石对紫外纳秒激光的吸收系数高于对红外飞秒激光的吸收系数.

图14和15分别表示纳飞秒双脉冲作用下, 蓝宝石对红外飞秒激光和紫外纳秒激光的反射率随时间的变化. 反射率和自由电子浓度呈正相关的关系(图16), 当自由电子浓度达到阈值自由电子浓度时, 产生等离子

图11 (网络版彩图) 飞秒激光吸收系数随时间的变化

Figure 11 (Color online) Variation of fs laser absorption coefficient with time.

图 12 (网络版彩图)纳秒激光吸收系数随时间的变化
Figure 12 (Color online) Variation of ns laser absorption coefficient with time.

图 15 (网络版彩图)纳秒激光反射率随时间的变化
Figure 15 (Color online) Variation of ns laser reflectivity with time.

图 13 (网络版彩图)蓝宝石吸收系数与自由电子浓度的关系
Figure 13 (Color online) Relationship between sapphire absorption coefficient and free electron density.

图 16 (网络版彩图)反射率与自由电子浓度的关系
Figure 16 (Color online) Relationship between sapphire reflectivity and free electron density.

图 14 (网络版彩图)飞秒激光反射率随时间的变化
Figure 14 (Color online) Variation of fs laser reflectivity with time.

屏蔽现象,材料对激光的反射率迅速升高,红外飞秒激光几乎发生全反射,而对于纳秒紫外激光,当自由电子浓度达到阈值自由电子浓度时,紫外激光不会发生全反射,仍有相当部分能量被材料表面吸收.因此蓝宝

石表面自由电子浓度在一定深度范围内一直维持着一定的浓度,直到纳秒激光消失,如图10所示.这部分能量最终将通过电声耦合,转化为热能,在蓝宝石表面进一步形成热烧蚀,由于阈值自由电子浓度作为蚀除阈值,由于没有考虑热烧蚀的作用,存在较大的误差,根据蓝宝石材料的热烧蚀激励,选择熔化温度作为纳飞秒共同作用时的蚀除标准.

图17显示了在纳飞秒同时作用时,基于熔化温度作为蚀除阈值预测的蚀除形貌,与单飞秒激光作用相比,凹坑深度显著增大.计算结果显示,与单飞秒激光作用相比,孔深增加至750 nm.当纳秒激光相对于飞秒激光延时10 ns时,其蚀除形貌如图18所示,其蚀除深度大约为600 nm,相比零延时情况下,深度减小了20%.这主要是因为当纳秒激光相对于飞秒激光有一定延时后,飞秒激光结束后,在没有外界能量的激励下,其诱发自由电子浓度将会由于非弹性碰撞及电子扩散而迅速衰减.通过合理调控纳飞秒双脉冲之间的

图 17 (网络版彩图)纳飞秒脉冲激光在零延时凹坑形貌
Figure 17 (Color online) Pit morphology by fs-ns dual beam laser with no time delay.

图 18 (网络版彩图)纳飞秒脉冲有 10 ns 延时下的凹坑形貌
Figure 18 (Color online) Pit morphology by fs-ns dual beam laser with 10 ns time delay.

延时, 可以对自由电子密度进行调控, 进而实现对宽带隙材料蚀除过程的调控. 由于自由电子的弛豫时间很

短, 为了实现高效蚀除一般将纳秒激光与飞秒激光同时作用.

为验证上述仿真的准确性, 设计了纳飞秒激光烧蚀蓝宝石的试验, 并与仿真结果进行对比. 分别对单飞秒脉冲、纳飞秒脉冲零延时和纳飞秒脉冲有 10 ns 延时的情况下, 激光烧蚀微孔进行试验. 为便于试验测量, 固定激光脉冲数为 5, 进行多组试验. 利用原子力显微镜测量微孔深度的大小.

如图 19 分别为不同脉冲组合下, 激光烧蚀孔的原子力显微镜形貌图, 由图可知, 单飞秒作用下微孔深度最小, 纳飞秒脉冲作用下微孔深度有明显的提高. 根据仿真所用激光的能量密度参数, 在不同激光脉冲组合下对 500 μm 厚的蓝宝石分别进行五组烧蚀试验, 试验脉冲个数为 5, 利用原子力显微镜测量微孔深度大小, 并记录于表 1.

假设每个脉冲作用下, 激光蚀除深度相同, 则单飞秒脉冲、纳飞秒脉冲零延时、纳飞秒脉冲 10 ns 延时下, 单脉冲蚀除深度分别为 134, 620, 524 nm, 与测量深度 140, 750, 600 nm 接近, 变化趋势一致, 验证了仿真的有效性. 通过比较可知飞秒脉冲的测量深度与仿真深度非常接近, 而纳飞秒双脉冲的测量深度与仿真深度差别较大, 且仿真深度都大于测量深度, 其原因可能有两个方面, 一方面是由于在实际加工过程中随着脉冲个数的增加, 单脉冲蚀除率会随之下降, 本文孔测量深度是多个脉冲求取的平均值, 因此该测量平均值会相对偏低些, 另一方面纳飞秒双脉冲加工蚀坑形貌预测以熔化温度作为阈值, 忽略了飞秒作用阶段由于

图 19 (网络版彩图)激光烧蚀孔的形貌(原子力显微镜). (a) 5 个飞秒脉冲; (b) 5 个纳飞秒脉冲(零延时); (c) 5 个纳飞秒脉冲(延时 10 ns)

Figure 19 (Color online) Pit morphology measured by atomic force microscope. (a) 5 fs laser pulses; (b) 5 ns-fs laser pulses (zero delay); (c) 5 ns-fs laser pulses (10 ns delay).

表 1 不同类型激光作用下的微孔深度(5个脉冲)**Table 1** Ablation depth (5 pulses) under different types of laser

激光类型	1	2	3	4	5	平均值
飞秒脉冲 (nm)	650	690	700	630	680	670
纳飞秒脉冲零延时 (μm)	2.90	3.00	3.20	3.10	3.30	3.10
纳飞秒脉冲10 ns延时 (μm)	2.7	2.4	2.7	2.5	2.8	2.62

非热熔化产生的蚀除。

5 结论

本文基于Fokker-Plank方程、Drude模型、双温模型对纳飞秒双激光与蓝宝石材料之间的相互作用进行研究, 通过有限元仿真模拟了纳飞秒激光与蓝宝石材料相互作用的能量耦合过程与蚀除过程, 揭示了纳飞秒激光脉冲作用下自由电子浓度的时空演化规律及其

对吸收系数及反射率等的影响规律及蚀除规律, 研究表明在纳飞秒双脉冲激光作用下, 使得蓝宝石表面产生大量自由电子, 较高的自由电子密度, 使其具有金属特性, 这导致后续纳秒激光能量的吸收增加. 因此, 飞秒激光脉冲引起的光学特性变化是更有效去除宽带隙材料的根本原因, 通过合理调控纳飞秒双脉冲之间的延时, 可以对自由电子密度进行调控, 进而实现对宽带隙材料蚀除过程的调控. 该研究对进一步揭示纳飞秒双激光蚀除宽带隙材料的作用机制具有重要指导意义.

参考文献

- Feng Q, Li X, Han G, et al. (AlGa)₂O₃ solar-blind photodetectors on sapphire with wider bandgap and improved responsivity. *Opt Mater Express*, 2017, 7: 1240
- Wang J, Guo B, Zhao Q, et al. Dependence of material removal on crystal orientation of sapphire under cross scratching. *J Eur Ceramic Soc*, 2017, 37: 2465–2472
- Dobrovinskaya E R, Lytvynov L A, Pishchik V. Sapphire: Material, Manufacturing, Applications. New York: Springer-Verlag Inc., 2009. 42–45
- Tang H L, Li H J, Xu J. Growth and Development of Sapphire Crystal for LED Applications. In: Ferreira S, ed. Advanced Topics on Crystal Growth. London: InTech, 2013
- Spence D E, Kean P N, Sibbett W. 60-fsec pulse generation from a self-mode-locked Ti:sapphire laser. *Opt Lett*, 1991, 16: 42–44
- Jiang L, Tsai H L. A plasma model combined with an improved two-temperature equation for ultrafast laser ablation of dielectrics. *J Appl Phys*, 2008, 104: 093101
- Cheng J, Wu J, Gong Y D, et al. Grinding forces in micro slot-grinding (MSG) of single crystal sapphire. *Int J Machine Tools Manuf*, 2017, 112: 7–20
- Crunteanu A, Pollnau M, Jänchen G, et al. Ti:sapphire rib channel waveguide fabricated by reactive ion etching of a planar waveguide. *Appl Phys B*, 2002, 75: 15–17
- Chan C H, Hou C H, Tseng S Z, et al. Improved output power of GaN-based light-emitting diodes grown on a nanopatterned sapphire substrate. *Appl Phys Lett*, 2009, 95: 011110
- Jiang L, Tsai H L. Energy transport and material removal in wide bandgap materials by a femtosecond laser pulse. *Int J Heat Mass Transfer*, 2005, 48: 487–499
- Deng Y P, Xie X H, Xiong H, et al. Optical breakdown for silica and silicon with double femtosecond laser pulses. *Opt Express*, 2005, 13: 3096–3103
- Forsman A C, Banks P S, Perry M D, et al. Double-pulse machining as a technique for the enhancement of material removal rates in laser machining of metals. *J Appl Phys*, 2005, 98: 033302
- Sugioka K, Wada S, Tashiro H, et al. Multiwavelength excitation by vacuum-ultraviolet beams coupled with fourth harmonics of a Q-switched Nd:YAG laser for high-quality ablation of fused quartz. *Appl Phys Lett*, 1995, 67: 2789–2791

- 14 Zhang J, Sugioka K, Takahashi T, et al. Dual-beam ablation of fused silica by multiwavelength excitation process using KrF excimer and F-2 lasers. *Appl Phys A*, 2000, 71: 23–26
- 15 Rao Z H, Lin C H, Jiang L, et al. Investigations of femtosecond-nanosecond dual-beam laser ablation of dielectrics. In: *Proceedings of the ASME 2009 2nd Micro/Nanoscale Heat & Mass Transfer International Conference*. Shanghai, 2009
- 16 Lin C H, Rao Z H, Jiang L, et al. Investigations of femtosecond-nanosecond dual-beam laser ablation of dielectrics. *Opt Lett*, 2010, 35: 2490–2492
- 17 Zhou R, Lin S, Ding Y, et al. Enhancement of laser ablation via interacting spatial double-pulse effect. *Opto-Electron Adv*, 2018, 1: 18001401–18001406
- 18 Tate J L. Intense laser propagation in sapphire. Dissertation for Doctoral Degree. The Ohio State: The Ohio State University, 2004. 47–82
- 19 Feit M D, Fleck Jr. J A. Effect of refraction on spot-size dependence of laser-induced breakdown. *Appl Phys Lett*, 1974, 24: 169–172

Investigation on sapphire ablation by femtosecond-nanosecond dual beam laser

WANG MaoLu, MEI Wei, YANG LiJun & WANG Yang^{*}

School of Mechatronics Engineering, Harbin Institute of Technology, Harbin 150001, China

Sapphire as a typical wide bandgap semiconductor material, has good physical and chemical properties and is widely used in mechanical electronics, aerospace, microelectronics and other fields. In order to improve ablation efficiency and at the same time ensure the processing quality, the ns-fs dual beam laser ablation method is proposed to process sapphire, which utilizes the high peak power of femtosecond pulses to excite free electrons through multiphoton ionization and collision ionization and the relatively larger fluence of nanosecond laser to improve the processing efficiency. In order to reveal the energy coupling mechanism between ns-fs dual beam laser and sapphire material, Fokker-Plank equation, Drude model and two-temperature model were used to study the evolution process of free electrons induced by femtosecond laser and the interaction between free electrons and incident laser. The energy coupling process and ablation process were simulated by finite element method, and the space-time evolution law of electron densities and its influence on surface optical properties such as absorption coefficient and reflectivity under different pulse delays were studied to reveal the mechanism of high-efficiency and high-quality processing of sapphire by ns-fs dual beam laser. This research is of great significance to the high-efficiency and high-quality processing of brittle and hard materials.

sapphire, dual beam laser, laser ablation, free electron density

PACS: 41.75.Jv, 42.25.Bs, 42.50.Hz

doi: [10.1360/SSPMA2018-00420](https://doi.org/10.1360/SSPMA2018-00420)