

# 飞秒激光与透明介质的相互作用\*

陈国夫<sup>†</sup>

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

**摘要** 随着飞秒( $1\text{fs} = 1 \times 10^{-15}\text{s}$ )激光技术的不断成熟,飞秒激光器不但在实验室能产生小于10fs的光脉冲,啁啾放大后的飞秒光脉冲的聚焦峰值功率密度可达到 $10^{21}\text{W}/\text{cm}^2$ 以上,而且飞秒激光系统已实现全固体、小型化结构,其稳定性和可靠性大大提高,因此在科学技术研究中的应用越来越广.文章重点介绍飞秒激光的主要特性和它与透明介质(如熔融石英、光学玻璃、对激光透明的高分子聚合物(PMMA)等)的相互作用过程,分析它们之间的非线性相互作用过程引起的材料特性或结构变化的物理机制和可能的应用,尤其在高密度大容量三维存储和微光子器件制造等方面的应用可能性.

**关键词** 飞秒激光,透明介质,非线性,三维光存储,微光子器件

## Interaction of femto-second laser pulses with transparent materials

CHEN Guo-Fu<sup>†</sup>

(State Key Laboratory of Transient Optic Technology, Xian Institute of Optics and Precision Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Xian 710068, China)

**Abstract** Femtosecond lasers not only can generate light pulses shorter than 10fs and obtain a focused pulse peak power of more than  $10^{21}\text{W}/\text{cm}^2$  after chirped pulse amplification and compression, but can also be made into a compact, all solid state device with good stability and reliability. They therefore have extremely extensive applications in scientific research. This paper describes the main properties of femtosecond lasers and their interaction with transparent materials such as fused silica, optical glasses and PMMA polymers. The various mechanics of the changes in material properties or structure caused by the nonlinear interactions and their applications in 3-dimensional optical high density huge memories, continuous wave generation and micro-photo-device fabrication are discussed.

**Keywords** femto-second laser, transparent materials, non-linear interaction, 3-dimensional light memory, continuous wave, micro-photo-device.

## 1 引言

20世纪60年代激光问世以来,激光技术及其应用发展十分迅速.按照激光器工作物质可分为化学激光器、半导体激光器、固体激光器、气体激光器、染料激光器和光纤激光器等.从它的运转特性可分为连续激光器、脉冲激光器、单频激光器、可调谐激光器等.激光最大的特点是高亮度、高相干性.因此,它在科学研究、通信、测距、制导、光电控制、激光加

工与热处理、军事、生物工程等领域获得广泛应用.

20世纪90年代初,高质量的掺钛蓝宝石研制成功后,飞秒脉冲激光器的发展和應用十分引人注目.飞秒激光脉冲具有独特的性质,为基础科学研究和应用科学研究提供了强有力的工具.飞秒激光与透明介质相互作用的非线性现象研究,只是飞秒激光应用的一小部分.为了使更广泛的读者(特别是

\* 2004-12-08收到初稿,2005-02-22修回

<sup>†</sup> 通讯联系人. Email: chengf@opt.ac.cn

非本专业的青年读者)对飞秒激光特性和它与透明介质相互作用有初浅的了解,本文力图从物理角度来阐明飞秒激光的产生机制及其与透明介质相互作用现象的特性.

## 2 飞秒激光脉冲特性和脉冲的产生与放大

飞秒激光的主要特性是发光持续时间短、脉冲峰值功率高,在介质中传输时产生群速度色散、自相位调制和自聚焦,易与介质产生光学非线性等.它是研究光与物质相互作用快过程的重要工具之一,在物理、化学、生物、信息等领域都获得广泛应用.众所周知,许多物质的物理、化学变化过程都在皮秒( $1\text{ps} = 1 \times 10^{-12}\text{s}$ )或飞秒(fs)时间尺度内完成的,采用飞秒激光技术可对这些超快过程进行实时、直接的诊断.飞秒激光的性质还特别适用于微结构加工,加工精度不受光波衍射极限限制,加工精度可小于100nm.

许多科学技术工作者多年来在该领域研究的前沿课题是,力图产生更短的脉冲和更高峰值功率的飞秒激光光源,目前产生小于10fs的飞秒激光器已从生产厂商购买.而亚飞秒或称为阿秒( $1\text{as} = 1 \times 10^{-18}\text{s}$ )激光脉冲在实验室已经获得.

飞秒激光是如何产生的呢?简单地说,它是在激光振荡腔内的不同光波相位锁定相干叠加的结果,最终形成发光持续时间极短的激光脉冲,因此相位锁定的激光的纵模数越多,可望产生的激光脉冲的持续时间就越短.当然,飞秒激光在振荡腔内进行传输的过程中存在群速度色散、自相位调制、自聚焦等线性的或非线性的效应.产生飞秒激光脉冲的基本条件包括(1)增益介质的激光振荡带宽(宽荧光增益介质) $\Delta\nu$ 应尽可能宽(2)宽带激光振荡器设计;(3)群速度色散补偿(如光栅对、棱镜对、啁啾镜等),也称为色散管理(4)相位调制或强度调制元件(声光调制器、空间光调制器、可饱和吸收体、非线性引起的类可饱和吸收体、自聚焦等).产生飞秒激光脉冲的主要技术有主动锁模、被动锁模、主被动锁模、孤子锁模等<sup>[1-3]</sup>.

图1为飞秒激光振荡器原理图及光脉冲测量曲线,其中 $M_0$ 为抽运光全反镜, $M_1, M_1'$ 为飞秒激光的全反凹面镜(曲率半径50mm), $M_2$ 为飞秒激光的全反镜, $M_3$ 为飞秒激光的输出镜,Ti:s为掺钛蓝宝石晶体, $P_1, P_2$ 为棱镜对群速度色散补偿元件.

掺钛蓝宝石激光器产生飞秒激光脉冲的主要机

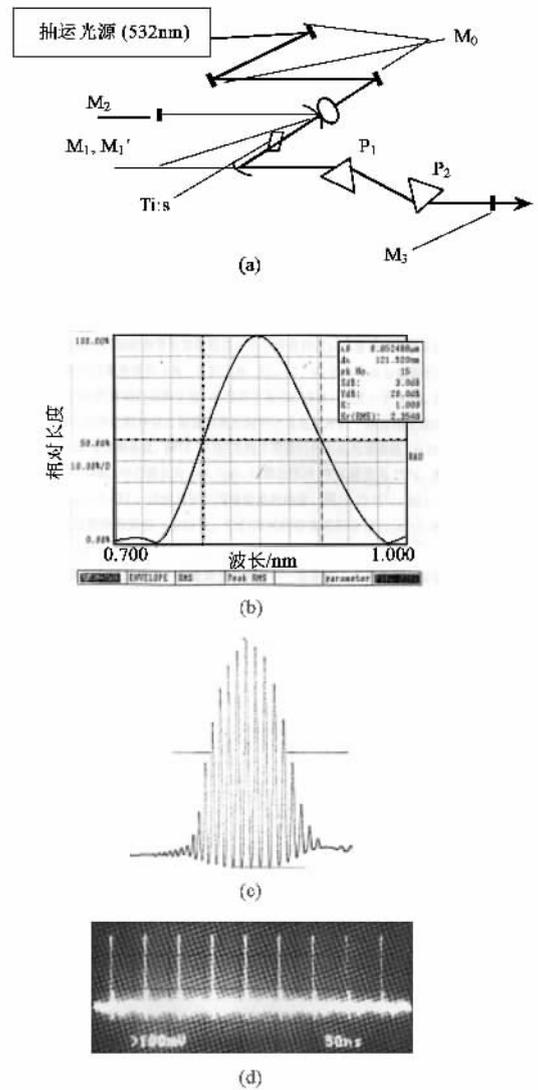


图1 掺钛蓝宝石飞秒激光器的原理图和输出激光脉冲相关曲线 (a)掺钛蓝宝石飞秒激光振荡器 (b)飞秒激光脉冲光谱;(c)飞秒激光脉冲干涉自相关函数曲线(脉冲宽度13fs)(d)飞秒激光脉冲链示波器照片

制是自聚焦与光阑(软光阑或硬光阑)效应引起的强度调制,群速度色散补偿,自相位调制相互平衡的结果.掺钛蓝宝石的自聚焦是由于高强度激光的空间分布引起折射率空间分布变化形成的.由于自聚焦是由介质的克尔效应引起的,当飞秒脉冲的光强随时间变化时,飞秒激光引起的自聚焦效应也随时间变化.折射率随光强的空间变化 $[n = n_0 + n_2 I(x, y, t)]$ 如图2所示.

由图2可知,脉冲包络中心的光强比脉冲前后沿的强度大,这意味着脉冲中心的自聚焦比脉冲前后沿的自聚焦强,加上受腔内光阑(硬光阑或软光阑)的限制,使脉冲的中心损耗比脉冲前后沿的损

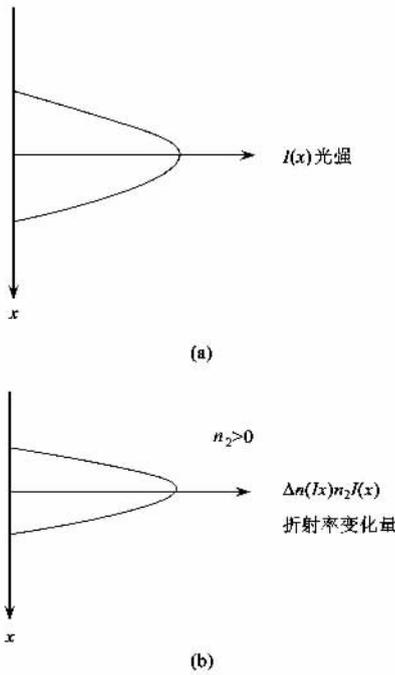


图2 克尔效应引起自聚焦( $n_2 > 0$ ) (a)激光束的强度随光束半径的变化 (b)激光束引起的非线性折射率随光束半径的变化

耗小,结果形成与强度有关的强度调制,产生光脉冲。脉冲在腔内循环过程中受群速补偿器和自相位调制的影响,会使脉冲发生变化,如果它们之间产生飞秒脉冲条件达到最佳平衡时,激光器将输出飞秒激光脉冲。

由激光振荡器产生的飞秒脉冲能量比较小,用于研究光与物质相互作用的非线性,其光脉冲峰值功率不够高,因此,还必须对飞秒光脉冲进行放大,使飞秒脉冲放大到一定的能量后再进行光脉冲压缩,达到足够高的峰值功率。当前国际上成熟的技术主要有啁啾脉冲再生放大技术<sup>[4]</sup>和啁啾脉冲多通放大技术<sup>[5]</sup>,用于对飞秒激光脉冲进行放大。啁啾脉冲再生放大技术的最大特点是系统结构简单,光束质量好,操作维护容易,可小型化。图3 4 5为我们研制的高重复率(1kHz)飞秒激光脉冲再生放大器<sup>[6]</sup>的原理图及所获得的部分实验结果。



图3 飞秒脉冲放大流程

飞秒光脉冲放大的关键技术有:种子脉冲的展宽,种子脉冲的注入,放大脉冲的倒出,脉冲压缩,抽

运光脉冲与种子光脉冲之间的同步,减小自聚焦和自相位调制。

图4所示的飞秒激光脉冲再生放大系统由脉冲展宽器、再生放大器和脉冲压缩器组成。 $M_0$ 为抽运光全反镜, $M_1-M_7$ 为放大激光全反镜。

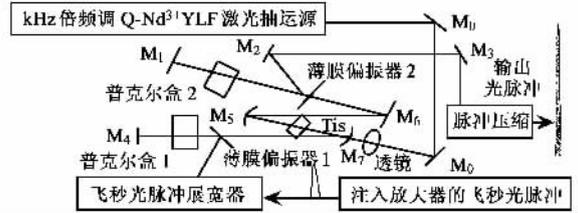


图4 高重复率(1kHz)飞秒激光脉冲再生放大系统原理图

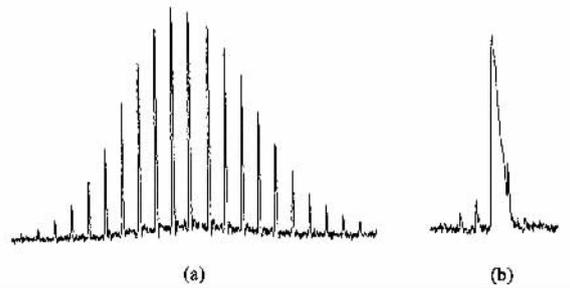


图5 高重复率(1kHz)飞秒激光脉冲再生放大的过程 (a)飞秒激光脉冲在再生放大器中的放大进展过程;(b)再生放大器输出的单脉冲

### 3 飞秒激光与透明介质的相互作用

#### 3.1 超连续光谱的产生

飞秒激光脉冲与透明介质的相互作用的实验,是使人印象最深的实验之一,它导致白光连续光谱的产生。倘若把高功率的光脉冲聚焦,聚焦功率密度达到  $10^{13} - 10^{14} \text{ W/cm}^2$  以上,并将这束高功率密度的光脉冲入射到透明介质(如熔融石英、水、光学玻璃等)内,高功率密度的超短光脉冲会转换成白光输出,其光谱范围可以从红外到紫外,产生明显的光谱增宽。图6是用波长为800nm的高功率飞秒激光脉冲与石英相互作用产生的白光超连续谱曲线及光斑照片。

超连续谱的产生是一个包含光信号的时间和空间光束特性的复杂过程。飞秒激光脉冲导致光谱展宽的主要过程和机理是,由于折射率随光强发生变化,引起自相位调制(SPM),当然,其他非线性效应也可能起作用。这是因为在实验中观察到的白光超连续谱的光谱特性,仅用自相位调制不能够完整解

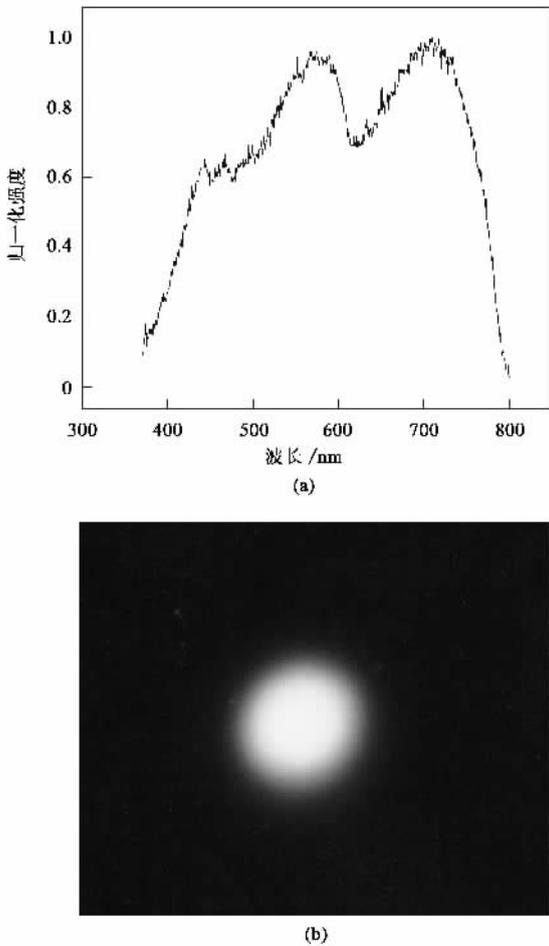


图6 飞秒激光脉冲与石英相互作用产生的白光超连续谱曲线及光斑照片 (a)超连续谱曲线(光谱前后沿截断是光探测器响应所致)(b)超连续谱白光光斑照片

释。如光谱分布的不对称和自陡化,两边光谱强度单调减少等必须采用其他机理解释。对超连续谱有贡献的其他非线性效应可能是参量四光子混频和拉曼散射,如果参与这一过程的波矢满足相位匹配,这些非线性过程是特别有效的。出现在超连续谱中的光束畸变,是由于所有的波矢  $k$  或相位匹配波和入射脉冲的传播方向之间没有匹配所致。

一般情况下,非线性过程必须与群速色散结合起来讨论。采用薄的介质( $L \ll L_D$ )  $L_D$  是由群速色散引起的走离长度,在此条件下,既可以减小群速色散作用,又可以减小除 SPM 外的其他非线性的影响。采用自相位调制技术产生的宽谱带脉冲是强的啁啾脉冲,即它不是傅里叶变换脉冲。为了使这种脉冲成为优良的飞秒光源,必须用光脉冲压缩器压缩。理想的飞秒连续谱脉冲可压缩到接近带宽极限的飞秒脉冲,压缩后的光脉冲比抽运脉冲短得多。这种连续谱

脉冲能使光谱仪具有优于 10fs 的时间分辨率。

### 3.2 超短光脉冲的自聚焦

超短光脉冲在各向同性的透明介质中传播的特性与介质的折射有关<sup>[7]</sup>,介质折射率近似为  $n = n_0 + n_2K(x, y, t)$ ,它包括线性折射率和非线性折射率两种( $n_0$  为线性折射率,  $n_2K(x, y, t)$  为非线性折射率)。当强激光在介质中传播时,强激光引起的非线性折射率  $n_2K(x, y, t)$  不能忽略,非线性折射率大小和分布与光强有关,从而引起光束的自聚焦( $n_2 > 0$ )或自散焦( $n_2 < 0$ ),临界功率<sup>[7,8]</sup>近似为  $P_{cr} = 3.77\lambda^2 / (8\pi n_0 n_2)$ 。

超短光脉冲的自聚焦除考虑衍射和自透镜外,还必须考虑自相位调制引起的光谱展宽和色散<sup>[7]</sup>。

假设透明介质存在自聚焦非线性,但可忽略高于  $\bar{n}_2 I_0$  的高阶非线性项,脉冲的时-空传播方程为

$$\left[ \frac{\partial}{\partial z} - \frac{i}{2k_1} \left( \frac{\partial}{\partial x^2} + \frac{\partial}{\partial y^2} \right) + \frac{i}{2} k_1'' \frac{\partial^2}{\partial t^2} - i \frac{n_2 k_1}{n_0} |\bar{E}|^2 - \alpha \right] \bar{E} = 0 \quad (1)$$

式中  $\alpha$  表示增益或损耗系数。

假定输入脉冲是无啁啾脉冲,因为光脉冲的群速色散(GVD)将引起脉冲展宽和峰值功率的减小,所以对飞秒光脉冲,有更高的临界功率。对于超短脉冲自聚焦完整的时-空特性计算十分复杂,而且是当前正在研究和有争论的课题。特别是对极短的高功率脉冲,甚至用于推导(1)式的某些近似都是有疑问的。因为在极高功率条件下,更高次的线性色散,更高次的非线性以及非线性的有限响应时间均需要考虑。现在采用的(1)式中,包括了群速色散、衍射、自相位调制等主要物理机制,为了讨论自聚焦,假定介质既没有增益也没有吸收,即  $\alpha = 0$ 。

以无啁啾的高斯光脉冲作为初始条件,可对(1)式进行数值计算。对正常色散介质( $k_1'' > 0$ )情况,在自聚焦阈值附近进行数值计算表明,光脉冲出现分裂。这是因为一开始由于群速色散,脉冲被展宽,当脉冲开始自聚焦时,在脉冲中心附近的区域经受最强的自相位调制,而色散又引起信号最强的调制部分偏离脉冲中心,结果造成初始高斯脉冲分裂成两个脉冲。

设初始的高斯脉冲为  $\bar{E}(x, y, 0, t) = E_0 \exp(-t^2/\tau_c^2) \exp[-(x^2 + y^2)/w_0^2]$ , 路德(Luther)等人证明(1)式的解(当  $\alpha = 0$ )仅与两个参量相关:

$$\gamma = \rho_0/2L_d \quad (2)$$

$$p = P_0/P_{cr} \quad (3)$$

式中  $\rho_0$  为与自聚焦有关的参数,  $L_d$  为色散长度,  $P_0$  为脉冲峰值功率,  $P_{cr}$  为连续(CW)光束的临界功率.  $\gamma$  是色散强度相对于衍射强度的量度,  $p$  表示输入脉冲强度与连续(CW)辐射的非线性临界强度的相对值. 超短脉冲的自聚焦阈值为  $P_{th} = P_{th} P_{cr}$ , 在此阈值时, 特征色散长度  $Z_{HLGVD}$  超过自聚焦长度  $Z_{sf}$ , 即  $Z_{HLGVD} > Z_{sf}$ . 在不存在衍射的条件下, 新的色散长度  $Z_{HLGVD}$  定义为由自相位调制和正常 GVD 共同作用, 使脉冲峰值功率减少到临界功率( $p = 1$ )的色散长度. 阈值条件  $Z_{HLGVD} = Z_{sf}$ , 导出关系式

$$Z_{NLGVD} \approx 0.5\rho_0 \left[ \frac{\sqrt{3.38 + 5.2(p^2 - 1)} - 1.84}{15\gamma p} \right]^{1/2} \quad (4)$$

和

$$\gamma \approx \frac{\sqrt{3.38 + 5.2(p_{th}^2 - 1)} - 1.84 | (p_{th}^2 - 0.852)^2 - 0.0219 |}{2p_{th}} \quad (5)$$

实验已观察到飞秒脉冲的自聚焦可使飞秒光脉冲以稳定的光弹(light bullets)形式在色散、非线性介质内无畸变传输. 当强度增加时, 较高阶的非线性效应占优势, 正如 CW 的情况一样. 然而, 引起 CW 辐射形成稳定细丝的负的  $\bar{n}_4 I^2$  未必使光脉冲稳定. 在脉冲经过特征距离  $L_d$  之后, 脉冲开始色散, 结果引起脉冲峰值的减少, 从而减弱了自聚焦.

#### 4 飞秒激光三维存储和光子器件制造

在讨论飞秒激光三维存储和光子器件制造之前, 我们先讨论飞秒激光在透明介质内的非线性吸收过程和产生微结构的变化<sup>[8]</sup>. 脉冲宽度为亚十皮秒或飞秒的激光束在介质中产生等离子体过程可以理解为存在雪崩电离和隧道电离过程<sup>[9]</sup>, 由于存在受热激发的电子、物质的不纯和缺陷等原因, 有可能在介质中提供初始自由电子, 这些自由电子非线性吸收大量的激光能量形成高能电子, 这些电子的能量传递给邻近的原子、分子或晶格, 引起雪崩电离, 雪崩电离导致电子密度不断增加, 直至其接近等离子体临界密度, 形成高密度等离子体, 并对激光强烈吸收, 当高强激光迅速消失后, 高密度的等离子体的能量传递给周围的原子、分子, 导致介质表面或内部永久性结构改变, 结构改变的尺度可小于光波的衍射极限, 精度小于 100nm<sup>[10]</sup>. 飞秒激光脉冲被聚焦

在透明介质上, 对透明介质造成小于光波衍射极限的结构损伤, 可从图 7 进行理解.

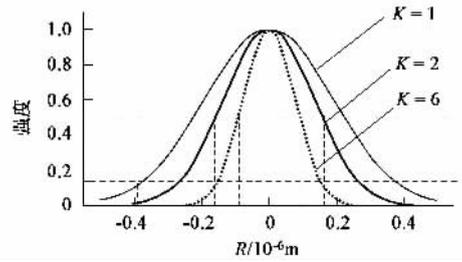


图 7 不同非线性吸收阶数的自由电子等离子体密度在光斑束腰处的径向分布

从自由电子等离子体密度在光斑束腰的径向分布可知, 不同的非线性吸收材料在相同径向距离处的等离子体的密度不同, 产生自由电子能量阈值越高的材料, 在相同激光束强度分布(高斯分布)的条件下, 产生具有相同密度的等离子体的半径越小, 这表明, 材料非线性吸收阶数越高, 其损伤区域越小. 由于聚焦光斑在焦点处的光强最大, 所以, 在透明介质中由于材料的非线性的阈值效应, 通过选择合适的飞秒激光能量和使用强聚焦透镜, 在聚焦点附近产生高密度自由电子等离子体, 形成永久性损伤<sup>[11]</sup>或材料物理性能的变化, 其损伤区域的大小与材料的非线性阈值及聚焦光强有关, 因此, 利用这种非线性效应, 可实现二进制数据的高密度多层存储<sup>[12]</sup>. 图 8 是利用 150fs 激光和数值孔径 NA = 0.5 的镜头与折射率  $n = 1.7$  的固体浸没透镜相结合的复合透镜 (NA = 0.85), 在熔融石英内部记录的多层存储和读出的结果, 存储密度为  $1.1 \times 10^{12}/\text{cm}^3$ , 存储层数为 5 层.

应用飞秒激光可以在透明介质表面或在透明介质内部刻写光子器件, 如光波导、光反射器、衍射光栅等. 图 10 是用自制的高重复率(1kHz)飞秒激光在 ZBaF15 光学玻璃内刻写的衍射光栅显微照片及衍射光斑照片.

#### 5 结束语

自从激光问世以来, 应用激光独有的特性给科学技术创建了许多新的学科和新的技术. 尤其是飞秒激光脉冲的出现, 为开展在极端条件下的物理、化学、生物、材料及光学非线性特性研究提供了高空间分辨率和高的时间分辨率(我们称为高时空分辨)以及极高强度的光源, 使这些在极端条件下的现象更明显或处理变得简单容易. 飞秒激光与透明介质

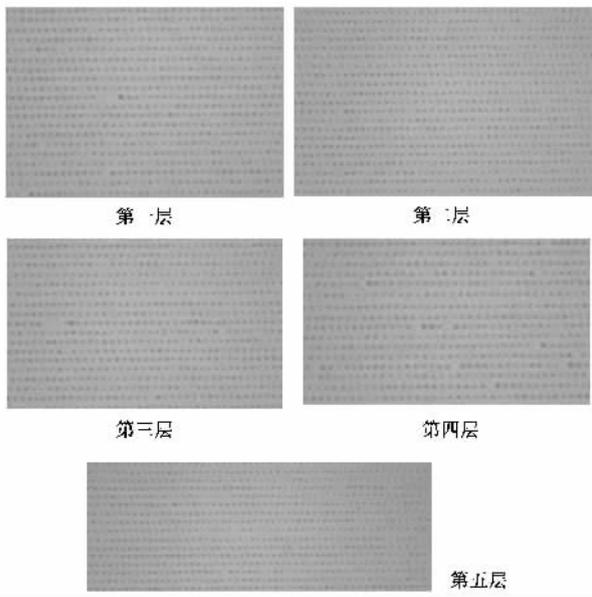


图8 在熔融石英玻璃内部存储密度为  $1.1 \times 10^{12}$  bits/cm<sup>3</sup>, 点间距  $0.6 \mu\text{m}$ , 层间距为  $2.5 \mu\text{m}$

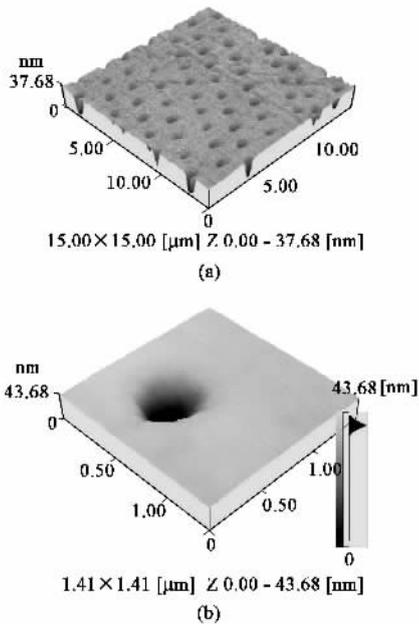


图9 (a)原子力显微镜测量熔融石英微破坏区的立体形貌 (b)原子力显微镜测量单一微爆点的立体形貌

的相互作用,一是由于介质的非线性效应,引起折射率随光强变化,主要产生自相位调制,自聚焦,当然,还有其他相关效应,这些效应直接诱导超连续谱产生或传输光束的自聚焦( $n_2 > 0$ )或自散焦( $n_2 < 0$ ),使光束发生变化;二是在透明介质内部,高功率光束的焦点附近将产生高密度等离子体,使透明介质在光束的聚焦区域形成永久性破坏、折射率的改变、或

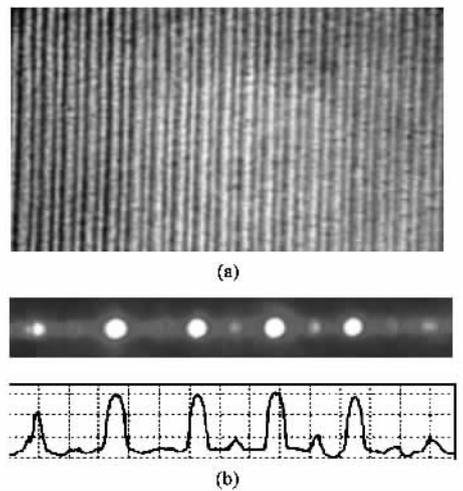


图10 (a)飞秒激光脉冲在 ZBaF15 光学玻璃内制造的行间距为  $2 \mu\text{m}$  衍射光栅显微照片 (b)光栅衍射光斑照片及衍射光强度曲线

物理化学性能的变化,利用这些特性除可实现高密度三维光数据存储外,还可进行微光子器件的制造、超精细微加工和半导体器件的修理或光刻掩模版的修理等.利用飞秒激光与透明介质的相互作用的线性和非线性效应,开拓新的应用领域仍是当前的国际热点研究课题,将为新技术的发展做出更多更大的贡献.

### 参 考 文 献

- [ 1 ] Jung I D, Kartner F X, Matuschek N *et al.* Opt. Lett., 1997, 22: 1009
- [ 2 ] Gerullo G, Stagira S, Silvestri D. Opt. Lett., 1998, 23: 1283 (23) 2044
- [ 3 ] 王屹山,陈国夫,赵尚弘等. 光子学报, 2000, 29: 203 [ Wang Y S, Chen G F, Zhao S H *et al.* Acta Photonica Sinica, 2000, 29: 203 (in Chinese) ]
- [ 4 ] Rudd J V, Korn G, Kana S *et al.* Opt. Lett., 1993, 18
- [ 5 ] Curley P F, Blanc C, Cheriaux G *et al.* Opt Communications, 1996, 131: 72
- [ 6 ] Zhao S H, Wang Y S, Chen G F *et al.* Science in China (Series A), 1998, 41: 107
- [ 7 ] 石顺祥,陈国夫,赵卫等. 非线性光学,第一版. 西安:西安电子科技大学出版社, 2003 [ Shi S X, Chen G F, Zhao W *et al.* Nonlinear Optics. Xian: Xidian University Press, 2003 (in Chinese) ]
- [ 8 ] Marburger J H. Quantum Electron, 1975, 4: 35
- [ 9 ] Stuart B C, Feit M D, Herman S *et al.* Phys. Rev., 1996, B53: 1749
- [ 10 ] Chen G H, White J D, Liu Q *et al.* Chin. Phys. Lett., 2003, 20(8): 1283
- [ 11 ] 刘青,程光华,王屹山等. 光子学报, 2003, 32(3): 276 [ Liu Q, Cheng G F, Wang Y S *et al.* Acta Photonica Sinica, 2003, 32(3): 276 (in Chinese) ]
- [ 12 ] Chen G H, Wang Y S, White J D *et al.* J. Appl. Phys., 2003, 94: 1304