**2.4 激光光场理论（一万字）**

**2.4.1 激光与激光器（张子豪2000字）**

激光（LASER）是“通过受激辐射产生的光放大”（**L**ight **A**mplification by **S**timulated **E**mission of **R**adiation）的缩写，指通过刺激原子导致电子跃迁释放辐射能量而产生的具有同调性的增强光子束，其特点包括发散度极小、亮度很高、单色性好、相干性好等。

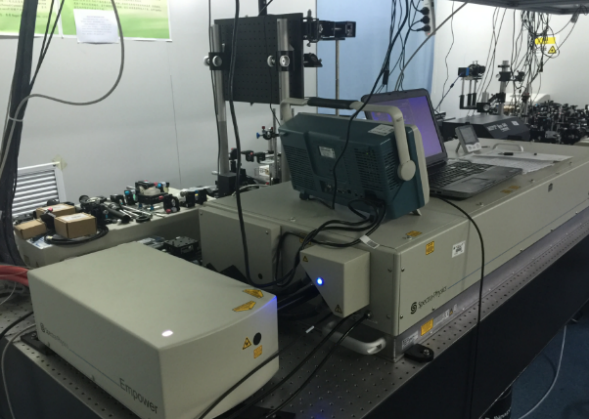
世界上第一台红宝石激光器在1960年由美国人梅曼（T. H. Maiman）发明。在中国科学院长春光机所王大珩的率领下，王之江、邓锡铭等研究人员在1961年用国产红宝石制造出了中国第一台红宝石激光器。美国贝尔实验室的Fork等研究人员在1981年首次利用环形染料激光器的脉冲碰撞锁模运转将激光的脉宽缩小至飞秒量级（1fs=10-15 s），得到了飞秒激光脉冲，图2-1所示即是飞秒激光器的震荡级与放大级装置。由于激光加工具有精度高、强度大、无需接触、灵活性好等优点，在制造领域被广泛应用。在早期激光主要被用在一些传统加工领域，比如激光焊接、激光打孔、激光切割等，而且大多选用金属材料为加工对象，金属材料的表面被高强度的激光束照射，这使金属发生烧蚀，进而达到材料被去除的目的。后来随着激光加工技术的迅速发展与应用，在能源、航空和生物医学等领域都能看到激光加工的身影。

图2-1 飞秒激光发射装置

众所周知，光与物质作用时会发生自发辐射，除此之外，阿尔伯特·爱因斯坦在1917年预测了光受激辐射的过程。根据他的理论，激发态原子向低能态的转变不仅可以自发发生，也可以由适当频率的入射光子激发。单位时间、单位体积的吸收光子数或跃迁数d*N*/d*t* |st如下：

|  |  |  |
| --- | --- | --- |
|  |  | ( 2‑1 ) |
|  |  | ( 2‑2 ) |

其中，*N*表示处于激发态的能量为*E*的原子密度，*σ*21表示受激辐射的横截面，*t*和*x*分别表示沿传播方向的时间和坐标，*φ*表示光子的通量，光的强度*I*与光子通量*φ*成比例关系，下标“st”表示的是受激辐射的过程。

光的自发辐射会随机地发生在任意方向上，而通过受激辐射产生的光子会在与入射光子相同的方向上传播，且发射光波能与入射光波相干，这意味着它们具有相同的频率和相位。与自发辐射相反，受激辐射能够导致入射光的放大，且辐射光波具有与激发光波相同的频率、相位和传播方向。

总结来说，激光非常重要，因为它具有普通光所不具有的四大特性：亮度高、单色性好、相干性好、方向性好。

通常我们说激光的亮度高，其实就是说激光的瞬时功率大，激光在经过透镜的聚焦后，将其能量集聚在非常小的焦点位置，从而由于能量高度集中可以产生高压和几万甚至几百万摄氏度的高温，这种特性使得激光几乎可以加工所有的材料。随着激光技术的不断发展，除了由于在空间位置上高度集中而产生的高功率，在时间上通过压缩激光的脉宽使之高度集中也会产生很高的瞬时功率。

光已经被证明是一种电磁波，光是什么颜色取决于光的波长，一般来说，普通光源的光的波长范围较宽，所以我们能从太阳光里分出红、橙、黄、绿、青、蓝、紫七种可见光以及红外光、紫外光等不可见光。而激光的谱线宽度要窄很多，也就是说激光的单色性非常好，某种确定波长的激光的波长变化范围不到万分之一纳米。

对于波来说，频率相同、相位差恒定是相干的前提。而从激光器发射出来的由无数光量子组成的光波具有相同的频率、相位和偏振方向，这使得激光具有很强的相干性。

普通光源发光方向具有任意性，而激光的发散角可以限制在小于几个毫弧度内，激光几乎可以认为其沿平行方向发射，如果激光射向月球，则其在月球的光斑直径不超过2km。

激光光子具有波粒二象性，其波动性体现在它的本质——激光是一种电磁波，存在相互垂直的电场分量和磁场分量，且满足麦克斯韦方程，其粒子性可由光电效应证明，这也引导提出了光量子的概念，光的辐射实质上是以光速运动的光子流。

激光的定义为通过受激辐射产生的光放大，因此激光器的工作原理基于受激辐射。当外来辐射作用时，受激吸收和受激辐射同时起作用，由受激辐射提供的增益d*I* |st抵消了吸收d*I* |a，因此强度*I*的变化为

|  |  |  |
| --- | --- | --- |
|  |  | ( 2‑3 ) |

当*g d*较小时，增益*G*可由如下公式进行近似：

|  |  |  |
| --- | --- | --- |
|  |  | ( 2‑4 ) |

其中，*g*表示能级的简并度，*d*表示介质的厚度，*σ*表示受激辐射的横截面，*N*表示处于激发态的能量为*E*的原子密度。

因此，产生激光的先决条件是要满足*N*2 > *N*1，这种情况也被称为粒子数反转并且偏离热平衡。在热平衡状态，大多数原子处于基态，原子之间的碰撞导致产生一些处于激发态的原子，它们的能量分别用E1，E2，E3……表示，若系统处于热平衡状态，相应的原子密度N1，N2，N3……可由玻尔兹曼分布给出：

|  |  |  |
| --- | --- | --- |
|  |  | ( 2‑5 ) |

其中，*T*表示开尔文绝对温度，玻尔兹曼常数*k* = 1.38🞨1023 J/K = 8.6🞨10-5 eV/K，在室温下，*T* = 300K，*kT* = 24.9 meV。

我们通常所说的激光器，就是使光源的光子受到激励而发生能级跃迁，实现粒子数反转，然后通过受激辐射而产生光放大的装置。因此激光器一般均由泵浦源（为工作物质实现粒子数反转提供能量）和光谐振腔（轴向传播光放大，决定输出功率、振荡模式、发散角）、增益介质（被激励后能产生粒子数反转的工作物质）三个部分组成。

按照不同的分类标准，激光器可被分为不同的类型：

根据增益介质——固体激光器（红宝石，Nd:YAG，钕玻璃激光器等）、气体激光器（He-Ne，CO2，氩离子激光器等）、液体激光器（染料激光器等）、半导体激光器、自由电子激光器；

根据运转方式——连续激光器（激光输出以连续方式持续进行）、单次脉冲激光器（激光输出是一个单次脉冲过程）、多次脉冲激光器（激光输出是一系列重复脉冲激光）、超短脉冲激光器（纳秒、皮秒、飞秒、阿秒量级脉宽）、调Q激光器（在短时间内进行强激光振荡和高功率脉冲输出）、可调谐激光器（激光输出波长在一定的范围内连续可控变化）；

根据激励方式——光泵式激光器（全部的固体激光器和液体激光器，少数气体激光器和半导体激光器）、电激励式激光器（以气体放电的气体激光器和以结电流/高能电子束注入的半导体激光器）、化学激光器（溴化氢激光器、一氧化碳激光器、氧碘激光器）、核泵浦激光器（以核裂变为激励方式的核泵浦氦氩激光器）；

根据波段——远红外激光器（波长范围在25-1000μm）、中红外激光器（波长范围在2.5-25μm）、近红外激光器（波长范围在0.75-2.5μm）、可见波长激光器（波长范围在0.4-0.7μm）、近紫外激光器（波长范围在0.2-0.4μm）、真空紫外激光器（波长范围在0.05-0.2μm）、X射线激光器（波长范围在<0.05μm）。

由于超短脉冲激光在加工领域表现出的超快、超强、三维超精密的特点，不断缩短脉冲激光的脉宽是超快脉冲激光的发展趋势。目前，商用超快脉冲激光器已经可以做到脉宽为飞秒量级（1fs=10-15 s），脉宽为阿秒量级（1as=10-18 s）的超快脉冲激光器也已经在实验室被成功研制。

**2.4.2 激光加工（张学强2000字）**

激光技术推动了众多领域的迅速发展，应用范围越来越广，其中激光加工技术是最具有代表性、用途最广的激光应用技术。激光加工是指将激光聚焦到微小的空间，利用其高密度的能量进行非接触、高精度加工的方法。激光加工的自动化程度高，生产效率高，产品质量稳定可靠，且制造过程中清洁无污染，环保指标高，是建设资源节约型、环境友好型社会所应提倡的一种先进制造技术，被公认为是21世纪先进制造技术的代表性加工手段[1]。激光加工可解决传统加工方法难以实现的难题，非常适合于航空航天、军工国防等领域中具有重大需求的难加工、高精尖零件的制造，同时也广泛应用于汽车、电子、机械制造、冶金等重要国民经济领域。

由于激光加工的能量来源于光，其在加工方式和加工机理方面与其他加工方法具有明显的区别。相对于其他加工技术，激光加工具有独特的优势：

（1）可加工材料范围广。聚焦的激光光斑尺寸微小，能量密度极高，因此可以加工高熔点、高强度的合金材料，也可以加工陶瓷、金刚石、玻璃（石英）等硬脆性材料以及其他一些常规制造技术难以加工的材料；

（2）非接触加工。加工速度快，可控性好，无噪声，对工件无直接冲击，因此无机械变形，能够对塑性材料、薄壁工件等进行高精度的加工，并且激光束的能量及其移动速度均可调，因此可以实现多种制造工艺和加工目的；

（3）加工灵活、适应性强。激光束易于导向、聚焦，可通过调整光路系统实现激光作用方向和位置的改变，极易与数控系统配合，对复杂形状的工件进行加工，因此激光加工是一种极为灵活的加工方法；

（4）加工的热影响区小。激光加工过程中，激光束能量密度高，加工速度快，并且是局部加工，对非激光照射部位没有或影响极小，因此，其热影响区小，工件热变形小，后续加工量小；

（5）可实现精密加工。激光束焦点光斑直径很小，且激光能量遵循高斯分布，可通过调节焦斑尺寸、激光能量等手段实现高精度的选择性加工，激光加工在高精密的微纳制造领域起到越来越重要的作用；

（6）无需特殊的加工环境。相比于电子束和离子束加工，激光加工不需要严格的真空环境，其在大气环境下即可实现加工，且不易受电磁干扰。

激光加工由于其突出的特点，在众多领域中都具有许多重要的实际应用，比如激光打孔、激光切割、激光焊接、激光强化和激光微纳加工等。激光打孔是最早被实际应用的激光加工技术，具有精度高、适应性强、效率高等优势，尤其适合加工高熔点、高硬度材料，利用空间整形的飞秒激光打孔已经可以实现1000：1超高深径比的高质量微孔[2]；激光切割是目前应用最为广泛的激光加工技术之一，具有精度高、切缝窄、非接触式加工、切割速度快、加工材料范围广等特点。激光切割不仅擅长复杂平面零件切割成形，目前在三维空间曲面切割方面也展现出其独特优势[3]，在航空航天、汽车、钣金加工、工程机械、医疗器械和石油化工等行业具有广阔的应用前景；激光焊接是激光加工技术的重要领域，与传统焊接技术相比，其独特优势是焊接变形小、焊接深度大、焊接速度快、焊接质量好、设备操控性好和无污染等。此外，由于激光焊接具有能量密度高的特点，对于高熔点、高反射率、高导热率和物理特性相差较大的金属焊接具有明显的技术优势[4]；激光强化是激光加工技术中的一个重要方向，是提高金属材料表面的机械性能、耐磨性、耐腐蚀性等表面性能的重要方法。其中激光冲击强化技术是目前最有效的金属材料表面强化工艺之一，尤其适用于加工壁薄且型面复杂的结构，已经成为航空发动机各关键零部件的必要加工手段[5]；激光微纳加工技术可以制备特定的微纳结构以及微纳器件，在表面与界面工程、微机械、微电子、微光学等领域具有极其重要的应用地位，例如通过双光子聚合的激光微纳加工方法可以在树脂材料上制造出空间分辨率高达120 nm的“纳米牛”[6]。激光加工已然成为加工制造业的重要制造技术手段，越来越能够体现一个国家在工业制造领域的加工水平。



图 1. 双光子聚合方法制备的纳米牛[6]

随着激光技术和激光器的发展，超快激光加工技术迅速应用于先进微纳制造和其他现代制造领域。超快激光由于具有超短脉宽和超高瞬时能量密度的明显突出特点，具有许多明显的优势，包括热影响区小，空间分辨率高、非接触式制造等，并且超快激光可以加工几乎所有已知材料[7]。超快激光的特性使激光加工的精度显著提高，使纳米尺度的微机械、微电子元件成为可能，从而带来了激光加工领域的革命性进步。

**参考文献**

1. 虞钢，虞和济. 激光制造工艺力学[M]. 北京：国防工业出版社, 2012.
2. Q. Xie, X.W. Li, L. Jiang, B. Xia, X.L. Yan, W.W. Zhao, and Y.F. Lu. High-Aspect-Ratio, High-Quality Microdrilling by Electron Density Control Using a Femtosecond Laser Bessel Beam[J]. Applied Physics A, 2016, 122, 136.
3. 朱有坤，黄木春，崔永忠，周罡. 基于Motoman机器人的激光三维切割技术[J]. 激光杂志, 2016 ,37(10): 39-41.
4. 谢冀江，郭劲，刘喜明等. 激光加工技术及其应用[M]. 北京：科学出版社, 2012.
5. 卢国鑫，金涛，周亦胄，赵吉宾，刘纪德，乔红超，孙晓峰. 激光冲击强化在高温合金材料应用上的研究进展[J]. 中国有色金属学报, 2018, 28(09): 1755-1764.
6. S. Kawata, H. B.Sun, T. Tanaka, and K. Takada. Finer features for functional microdevices[J]. Nature, 2001, 412, 697–698.
7. L. Jiang, A. D. Wang, B. Li, T. H. Cui and Y. F. Lu. Electrons dynamics control by shaping femtosecond laser pulses in micro/nanofabrication: modeling, method, measurement and application. Light: Science & Applications, 2018, 7, 17134.

**2.4.3 超快激光与材料相互作用（6000字）**

2.4.3.1超快激光与金属相互作用（梁密生、许晨阳2000字）

2.4.3.2超快激光与非金属相互作用（原永玖、XX2000字）

**超快激光与非金属材料相互作用的理论背景**

我们熟知的超快激光对加工的材料具有普适性，不仅能够精密加工金属等传统材料，也可以实现对非金属包括新型材料的加工。而在此过程中，涉及到了非常复杂的物理学、光学的理论知识，这包含了多方面对激光与物质相互作用的机理的解释与研究。同时，区别于传统激光与高反射吸收率的金属材料相互作用，超快激光由于其极高的峰值功率，可以成功的激发形成高度电离的等离子体，这个过程相对而言更为复杂，过程之中设计到很多物理过程，包括：光热、光电、光致机械效应等等[1]，也包括材料与激光的化学过程，会形成很多化学键的变化，以及空位的产生，这对材料的化学属性有很大的影响。

针对这样的过程，传统激光通过Drude模型可以做以阐释[2]：

2

公式中的n代表折射率，代表消光系数；ω代表σ频率下的电导率。ε表示介电函数，μ则表示磁导率。我们知道，在这个模型当中，我们认定自由电子为金属中的电子，整个过程是电子通过碰撞并吸收红外射线，进而获得光子的能量，传递给晶格，最后导致材料的熔化[2]。由于传统激光在加工过程中，介电函数一般被认为是一个常数，因此我们可以通过Fresnel公式表示其光学特性[2]：



其中，R表示反射率，代表吸收率。我们可以通过其反射率和吸收率表征激光与材料作用的变化。而超快激光由于其作用时间超短、瞬时功率极高，加工的过程中电子密度急速上升，电子与原子的库伦碰撞使能量快速传递至晶格，随后引起材料的相变，完成加工。其加工过程中的机理涉及到载流子激发和电离等过程，例如超快激光与半导体相互作用时，主要存在线性电离和双光子电离，可以用公式来进行阐述[3]：



公式中，σ1表示线性电离截面系数；σ2 代表双光子电离截面系数； β是指雪崩电离系数；n1表示离子密度。

**超快激光与非金属材料作用的理论基础**

一般来说，超快激光加工材料时，我们可以将其分为三个过程来论述：激光光束的吸收，相变机制和等离子体膨胀和辐射。

（1）激光光束吸收

作为超快激光与非金属材料作用的第一个过程，此阶段主要是激光与电子的相互作用。在此过程中，非金属材料电子系统主要表现为非线性的光吸收，而非线性电离由光致电离和碰撞电离组成，分别可以表现为多光子电离、隧道电离，雪崩电离。自由电子得到能量加热以后，发生能级的跃迁，从而引发非线性电离。这样的一个过程实际上是一个非平衡态的，电子系统通过电子与声子之间的耦合作用，将能量传递给晶格。为了描述多光子电离和隧道电离，我们会利用Keldysh参数来定义两种电离发生的条件：



在公式中，ω代表了激光频率，m 为电子质量，IP代表介质的离化势，e表示电子电荷，E 为激光场强度，当 γ<<1 时为隧道电离，当 γ>>1 时为多光子电离[4]。而当自由电子吸收能量后。具有足够的动能，在自由的随意碰撞中，会引发碰撞电离，即自由电子将能量带给被束缚的电子，从而产生雪崩电离，这一过程普遍存在于超快激光与非金属材料的加工中，同时能够引起电子密度的指数增长。图1就是激光光束吸收过程的示意图。

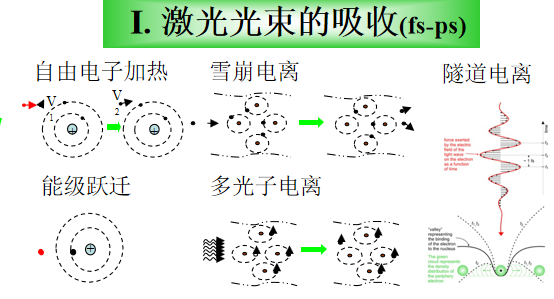


图1激光光束吸收过程机理示意图

（2）相变机制

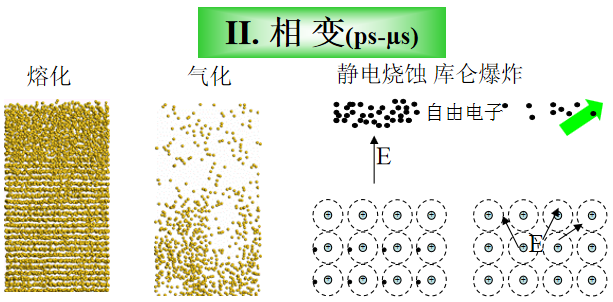
超快激光在被电子吸收并产生大量自由电子后，电子与声子之间会发生相变的作用。这一过程分为热相变和非热相变两个机制。在热相变过程中，主要又包括了随晶格温度快速升高后，引发的熔化和气化的过程。而非热相变中，也可以实现材料的去除。当原子被光子电离后，产生的自由电子脱离，留下了全是带正电荷的离子，这些离子随后在库伦力的作用下发生库伦爆炸，从而完成相变过程。另一方面，静电烧蚀也是非热相变中的另一种机制，它是由于超快激光照射后，电子离开表面时使得离子收到吸引力而发生相变过程。过程如图2所示

图2相变过程机理示意图

（3）等离子体膨胀和辐射

由于超快激光所产生的电子密度的变化是瞬时变化，并且是有包含多个物理化学的过程，同时，前面也提到过，物质在超快激光的作用下，表现为一个非平衡的过程，在这个过程中不仅电子的动能与电子密度在实时变化，电子与声子之间的作用也无时无刻不在发生，等离子体的产生和膨胀实际贯穿于整个过程包括吸收、相变及大尺度的等离子体膨胀和辐射。正如图3所示，在多尺度的情况下，等离子体的膨胀与辐射都有特定的变化，超快激光所产生的等离子体团的过程是一个跨时间与空间尺度的非平衡过程，其中涉及了连续动力学，热力学以及流体力学等多个物理理论。

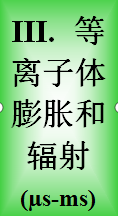
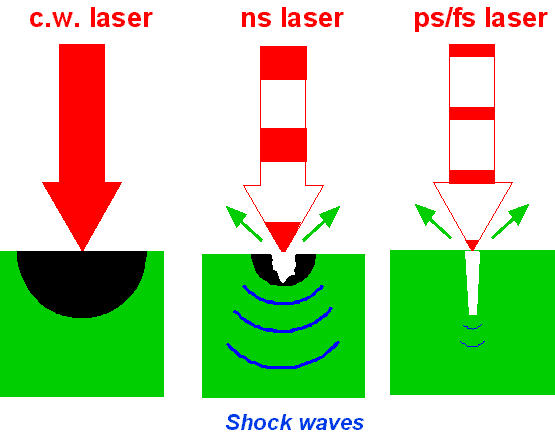
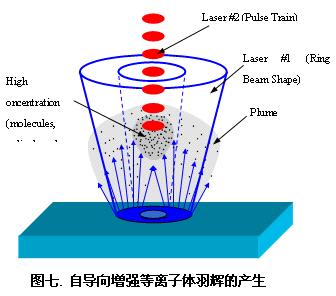


图3等离子体膨胀和辐射机理示意图

总而言之，超快激光与非金属材料相互作用的过程相比于超快激光与金属材料作用要复杂，其中涉及了多个物理化学方面的理论，另外，值得我们注意的是，通过调控超快激光的相关参数，包括超快激光的脉冲数量、中心波长、脉冲的持续时间、激光的功率等等[5-6]参数，可以影响超快激光与非金属材料相互作用的过程，对我们探究其物理机制有一定的意义。

[1] 国家自然科学基金委员会工程与材料科学部 . 机械工程学科发展战略报告

(2011~2020)[M]. 北京：科学出版社, 2010:229-233.

1. Reinhart Poprawe. 激光制造工艺——基础、展望和创新应用实例[M]. 北京:清华大学出版社,2008:4-67.
2. N. M. Bulgakova, R. Stoian, A. Rosenfeld, I. V. Hertel, and E. E. B. Campbell. Electronic transport and consequences for material removal in ultrafast pulsed laser ablation of materials [J]. Physical Review B, 2004, 69: 054102.
3. Keldysh L V. Ionization in the field of a strong electromagnetic wave [J]. Sov. Phys. JETP, 1965, 20, 5: 1307-1314.
4. Xufeng Jing, Jianda Shao, Junchao Zhang, Yunxia Jin, Hongbo He, and Zhengxiu Fan. Calculation of femtosecond pulse laser induced damage threshold for broadband antireflective microstructure arrays [J]. Optics Express, 2009, 17(26): 24137-24152.
5. L. Jiang, and H. L. Tsai. Energy transport and material removal in wide bandgap materials by a femtosecond laser pulse [J]. International Journal of Heat and Mass Transfer, 2005, 48: 487-499.

2.4.3.3 基于波粒二象性的量子等离子体模型（鲁意博2000字）

量子等离子体模型综合考虑了飞秒激光的波粒二象性，激光辐照后材料的光学/热力学特性变化以及改性后的材料对激光光场的影响，可全面地描述和理解激光诱导亚波长周期性表面结构的物理现象。

**（1）电磁波的传播**

光是一种重要的自然现象，具有波粒二象性（Wave-particle duality）。在研究激光与物质的相互作用时，可从激光的波粒二象性出发，结合激光电磁波和光子的性质来研究其作用规律，并建立相应的理论模型。

激光作为一种电磁波，在求解其传播问题时，可直接求解麦克斯韦方程组。

麦克斯韦方程组（Maxwell's equations）是描述电磁场基本规律的方程组[20]，在真空中其微分形式可表示如下：

 （1）

其中：为电场强度，单位为伏特/米（V/m）；为电通量密度，单位为库伦/米2（C/m2）；为磁场强度，单位为安培/米（A/m）；为磁通量强度，单位为韦伯/米2（Wb/m2）；为电流密度，单位为安培/米2（A/m2）；为真空中的介电系数，单位为法拉/米（F/m）；为真空中的磁导系数，单位为亨利/米（H/m）；为电荷密度。

因为电磁波在传播时，已经脱离了场源，因此，，。

令，将上述条件代入麦克斯韦方程组并变换可以得到真空中电磁波传播的波动方程：

 （2）

通过求解上述公式可以得到电磁场的波动解，即电磁波，其中*c*是电磁波在真空中的传播速度。

在无限大的各向同性均匀介质中，电磁场的传播速度为：

 （3）

则在介质中电磁场传播的波动方程为：

 （4）

在线性各项同性介质中，单色电磁波传播问题的基本方程为：



或  （5）

其中：

 （6）

电磁波在传播过程中，都会遇到介质或导体的分界面，所以存在一个边值问题，一般情况下的边值关系如下所示：

 （7）

 （8）

因为电磁波的传播问题不涉及场源的电荷和电流，而界面上的电荷、电流分布应该是传播的电磁波所激发的。所以在非导体截面上不存在面电荷和面电流，即

 （9）

则相应的边值关系为：

 （10）

因此在求解场方程时，其边值关系为电场和磁场的切线分量连续即可。

在各项同性线性均匀介质中，平面单色电磁波的能流密度为：

 （11）

对于均匀介质中的平面单色电磁波，

 （12）

所以

 （13）

即电场能量和磁场能量相等。瞬时能流密度矢量（坡印廷矢量/Poynting vector）为[67]：

 （14）

则坡印廷矢量的瞬时值为：

 （15）

光作为一种电磁波，其平均能流密度就是通常物理光学中所说的光的强度（简称光强，用*I*来表示），即单位面积上的平均光功率。因此可通过平均能流密度来对光强进行描述：

 （16）

**（2）飞秒激光电子动态调控的亚波长周期结构的成形理论及模型建立**

**a. 飞秒激光脉冲传播**

假设入射飞秒激光脉冲沿着材料的厚度方向（即深度*z*轴方向）传播，即TM模式的线偏振光  和  。则入射电磁场的磁场可表示为：

 （24）

根据麦克斯韦方程可得，入射光的电场在径向*r*方向和深度*z*方向分量的振幅分别为：

 （25）

 （26）

 （27）

,  （28）

其中**为磁场矢量；，分别为入射激光磁场的振幅和入射激光的磁场包络线；*Eri* 和 *Ezi*分别为入射激光在*r*方向和*z*方向的电场分量；*t*为时间；*tp*为飞秒激光脉宽；*r*为距离激光中心轴的径向距离；*r0*为激光光斑半径的*1/e*；**为材料吸收系数（后面章节详细介绍）；*z*为距离材料表面的深度距离；为*r*方向波数；为*z*方向波数；为激光中心频率；*n*为折射率；** 为真空介电常数；为磁导系数；为入射角，。

当飞秒激光辐照材料表面之后，在经过电离过程之后产生大量电子，并使材料表面具有类金属的特性。当空气层（介电函数为）和绝缘体材料（介电函数为）的分界面上，由于激光作用后产生的自由电子发生集体震荡，即可产生表面等离子体，当使复合介电函数的实部小于-1时，即可形成波。这种波被叫作表面等离子体波（Surface Plasma Wave）[85]，是一种表面电磁波。

在平面结构中激发表面等离子体波，须满足如下几个条件：

（1）入射光必须是横磁(TM)偏振光，即p偏振光；

（2）材料与空气界面的两侧必须满足介电常数符号相反；

（3）满足波矢匹配条件。

满足波矢匹配条件时，激发表面等离子体波应满足：

 （29）

满足以上三个条件，则会发生表面等离子体共振，激发表面等离子体波，之后，入射激光的能量发生转移，转移成为表面等离子体波的振动，反射光的强度就会相应的减弱。

下面从另一个角度来进一步分析表面等离子体波的激发条件。表面等离子体波是金属内部的自由电子的纵向密度波的振荡，要形成该自由电子的密度波，则外加电场就必须在金属的表面法向方向上有分量，因为这个分量可以形成自由电子的密度波，即表面等离子体波。而本文中，入射激光为TM模式的线偏振光，而且在电场在材料表面的法向方向具有分量，因此能够激发表面等离子体波。表面电磁波依赖于表面电子等离子体的周期性振荡和传播，由于这种波是因电子密度分布的周期性而形成，该波的特点是：1）场分布在沿着界面方向是高度局域的，是消逝波；2）在平行于表面的方向，场是可以传播的，但是由于金属的损耗存在，所以在传播的过程中会有衰减存在，传播距离有限。通常都利用电磁波来描述这种波进而进行分析，但这种波的实质是大量电子的集体震荡，是电子密度的波动。因此也可以将这种波描述为电子密度波的形式。则由入射激光诱导产生的表面等离子体波（surface electromagnetic waves / SEWs ）为： 和 。

假设电场或磁场的分量*A(t, r, z,)*在径向*r*方向的表达式[22]如下：

 (30)

其中入射激光诱导产生的表面等离子体场的电场在径向*r*方向和深度*z*方向分量的振幅分别为：

 (31)

 (32)

其中表面等离子体波的波数可表达为：

 (33)

入射激光和其诱导产生的表面等离子体场之间会发生相互的叠加和相互影响，从而形成综合作用的耦合场，其耦合场可表达如下：

 (34)

根据电磁场能量的计算公式可得知电磁场电场磁场分量与光强之间的关系，因此入射光的光强振幅和磁场振幅之间的关系也可反推得知。在本文的量子等离子体模型建立过程中，假设激光的光斑聚焦于材料表面，即z=0 nm处，并且初始激光光强峰值表示为，则其表达式如下所示：

 (35)

在激光辐照材料表面时，材料表面会发生反射，使初始入射激光因材料表面的反射作用而损失部分能量。因此，经过材料表面反射之后，激光光强分布可表示为：

 (36)

根据电磁场基本知识坡印廷矢量反推得到初始入射激光磁场的振幅*H0*，激光在材料中传播、激光能量被材料吸收以及激光诱导产生表面等离子体场等均会改变光场分布，包括入射激光光场分布、表面等离子体场光场分布和耦合场光场分布等。

则入射光经过反射后的光强、表面等离子体场光强和二者相互耦合的耦合场光强可分别表示为：

 (37)

**b. 自由电子的产生**

飞秒激光在材料中以波的形式进行传播，但是在与材料相互作用的过程中，光的粒子特性体现的更加明显，如：光子-电子之间的相互作用、电子-电子之间的相互作用以及电子-声子之间的相互耦合等。

在飞秒激光烧蚀宽禁带材料时，自由电子密度随时间的演化过程可以用如下公式进行描述：

 （38）

其中是自由电子密度；*I*是材料内部的激光强度；是碰撞电离项；是光致电离项；为自由电子复合项。

其中碰撞电离与材料内部光强成正比，表达式如下：

 （39）

其中*αi*是常数，对于宽禁带材料熔融石英，为4±0.6 cm2/J[86]。

公式（2.47）中光致电离项可用如下公式进行描述：

 （40）

其中是*N*光子吸收的横截面；*N*为吸收光子个数。若入射飞秒激光的中心波长为800 nm时，*N*为6，*N*光子吸收的横截面为。

此外，自由电子复合项对自由电子密度也有很大的影响，但是自由电子的复合过程是一个极其复杂的过程，所以目前关于自由电子复合项的处理基本上通过实验拟合一个常数。目前自由电子密度的复合时间主要有60 fs，90 fs，和150 fs。

**c. 激光-等离子体相互作用：光学性质**

*Rethfeld*等人[23]使用全玻尔兹曼碰撞积分证明了用激光-等离子体相互作用可以很好的描述高离子化电介质材料中飞秒激光的吸收。这是因为在飞秒激光作用下，离子化材料的自由电子密度达1021到1023 cm-3，这与金属材料的自由电子密度相当，使离子化材料具有金属特性。因此，本研究中，等离子体的空间域和时域的复介电函数表达式如下[93]：

 （41）

其中*e*是电荷；是电子质量；是自由空间介电常数；*ω*是激光频率；是自由电子弛豫时间。等离子体频率定义为[93]：

 （42）

在临界电子密度时，等离子频率与激光频率相等。

其中在临界电子密度为[76]

 （43）

其中*c*是真空中光速，*λ*是激光波长。复介电函数可分成如下的实部和虚部：

 （44）

复折射系数*f*和复介电函数的关系如下：

 （45）

其中*v*是材料中光速；*f1*是标准折射系数；*f2*是消光系数。因此，*f1*和*f2*的表达式如下：

 （46）

 （47）

离子化材料的表面反射率可以由菲涅耳方程确定：

 （48）

等离子体通过电子加热的光强吸收系数为：

 （49）

上式中只表示通过电子加热吸收的部分激光能量，通过电离也有一部分能量的吸收。飞秒激光与电介质材料相互作用时，包含自由电子加热和电离的总的激光能量吸收系数为：

 （50）

其中*UI*是材料的禁带宽度，*αi*是碰撞电离常数。

**d.自由电子加热：电子弛豫时间**

一般来说，在飞秒激光脉冲的作用下，自由电子可被光子激发得到远高于费米能的平均动能，因此具有高温或者低密度的自由电子可视为理想气体。由电子-离子碰撞决定的自由电子弛豫时间可由下列的Spitzer公式进行计算：

 （51）

其中*vei*是电子-离子碰撞频率；*Z*是离子的电荷状态；*Tev*是平均动能，单位是eV，经常用于宏观热动力学中温度的表示； 是库仑爆炸对数，由下列表达式确定[96]：

 （52）

其中最大和最小库仑参数分别为：

 （53）

 （54）

其中*kB*是玻尔兹曼常数。

但是，在激光烧蚀开始，电子动能相对较低，电子-声子碰撞对自由电子弛豫时间有很大影响。因此，当电子动能与费米能相当或者更低时，需要同时考虑电子-声子及电子-离子碰撞的贡献，自由电子弛豫时间由下式确定[97]：

 （55）

其中*ve*是电子碰撞频率，*vep*是电子-声子碰撞频率，由下式决定[94,96]：

 （56）

其中*M*是原子质量单位；*ħ*=*h*/2π是约化普朗克常量；*UIP*是离子化势能；*TD*是德拜温度；*Tl*是晶格温度。

自由电子的产生和加热在很短的时间内即可完成，而电子加热由下列方程决定[83]：

 （57）

其中*T*是电子温度；*ce*是自由电子比热容；*αh*是自由电子吸收系数。在考虑较宽的温度范围时，计算高密度自由电子的比热及联系*Tev*和*T*应包含量子处理。费米-狄拉克分布中能态*εk*的电子平均数<*nk*>由下式决定:

 （58）

其中，*μ*是化学势。电子气的化学势可由下式计算[98]：

 （59）

上式中省略了高阶项。其中*εF*是费米能，由下式决定[99]：

 （60）

费米温度由关系式*kBTF*=*εF*确定。每个电子的平均动能由下式计算：

 （61）

其中*ε*是自由电子的动能；*Ne*是自由电子总数；*ρ*(*ε*)是态密度，由下式计算[99]：

 （62）

每个电子的平均比热容可通过下列热容的定义确定：

 （63）

其中*V*是体积。在温度远低于费米温度时，每个电子的平均比热由下式给出[98]：

 （64）

其中*γ*是一个电子的热容常量。经典方法中，理想电子气的平均动能和比热如下：

 ， （65）

**（4）飞秒激光诱导亚波长周期性表面结构的形成机制及模拟结果分析**

基于飞秒激光的波粒二象性所建立的量子等离子体模型使我们能够全面的描述和理解激光诱导亚波长周期性表面结构这一物理现象，研究其形成机制。考虑到经激光辐照后材料的光学/热力学特性以及改性后的材料对激光光场的影响，我们认为入射飞秒激光与其诱导产生的表面等离子体场之间的相互作用在亚波长表面周期结构的形成过程中有着重要的作用，具体的飞秒激光诱导亚波长周期结构的形成过程如下：

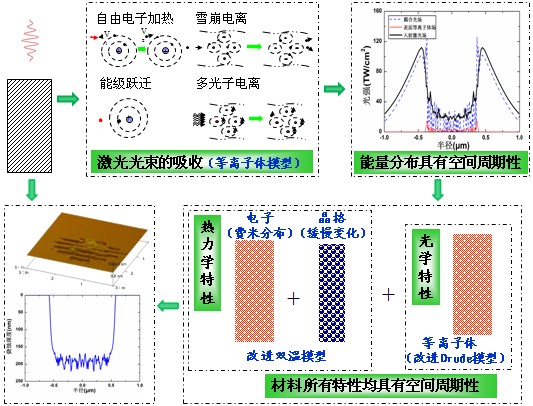


图2.3模型整体结构示意图

以熔融石英为例，TM模式的飞秒激光垂直入射熔融石英材料表面，激光烧蚀方向为材料的厚度方向，在模型的中综合考虑了多光子电离、碰撞电离和自由电子复合等对自由电子的产生和湮灭的机理。自由电子复合的时间常数约为90 fs，总的激光通量为5 J/cm2，每个脉冲串为包含两个子脉冲的脉冲序列，每个子脉冲的激光能量分布完全相同，即每个脉冲能量为2.5 J/cm2，脉宽为50 fs，中心波长为800 nm，脉冲间隔为50 fs，光斑大小为1.0μm。模型预测激光烧蚀阈值为3.4 J/cm2，即对每个子脉冲的烧蚀阈值为1.7 J/cm2，与实验测量值3.3 J/cm2基本一致。

**参考文献**

1. Lu Y F, Yu J J and Choi W K. Theoretical analysis of laser-induced periodic structures at silicon-dioxide/ silicon and silicon-dioxide/ aluminum interfaces [J], Appl. Phys. Lett., 1997, 71, 3439-3440.
2. Dong Y Y and Molian P A. Coulomb explosion-induced formation of highly oriented nanoparticles on thin films of 3C-SiC by the femtosecond pulsed laser [J], Appl. Phys. Lett., 2004, 84, 10-12.
3. Jia T Q, Chert H X, Huang M, Zhao F L, Qiu J R, Li R X, Xu Z Z, He X K, Zhang J and Kuroda H. Formation of nanogratings on the surface of a ZnSe crystal irradiated by femtosecond laser pulses [J], Phys. Rev. B, 2005, 72, 125429.
4. Jia T Q, Zhao F L, Huang M, Chen H X, Qiu J R, Li R X, Xu Z Z and Kuroda H. Alignment of nanopartieles formed on the surface of 6H-SiC crystals irradiated by two collinear femtosecond laser beams [J], Appl. Phys. Lett., 2006, 88, 111117.
5. Le Harzic R, Dörr D, Sauer D, Neumeier M, Epple M, Zimmermann H and Stracke F. Large-area, uniform, high-spatial-frequency ripples generated on silicon using a nanojoule-femtosecond laser at high repetition rate [J], Opt. Express, 2011, 36, 229-231.
6. Dufft D, Rosenfeld A, Das S K, Grunwald R and Bonse J. Femtosecond laser-induced periodic surface structures revisited: A comparative study on ZnO [J], J. Appl. Phys., 2009, 105, 034908.
7. Costache F, Henyk M and Reif J. Modification of dielectric surface with ultra-short laser pulses [J], Appl. Surf. Sci. 2002, 186, 352-357.
8. Varlamova O, Costache F, Reif J and Bestehorn M. Self-organized pattern formation upon femtosecond laser ablation by circular polarized light [J], Appl. Surf. Sci., 2006, 252, 4702-4706.
9. Bhardwaj V R, Simova E, Rajeev P P, Hnatovsky C, Taylor R S, Rayner D M and Corkum P B. Optically produced arrays of planar nanostructures inside fused silica [J], Phys. Rev. Lett., 2006, 96, 057404.
10. Gottmann J and Wagner R. Sub-wavelength ripple formation on dielectric and metallic materials induced by tightly focused femto-second laser radiation [C], Proc. of SPIE 2006, 6106, 61061R.
11. Bonse J and Krüger. Pulse number denpendence of laser-induced periodic surface structures for femtosecond laser irradiation of silicon [J], J. Appl. Phys., 2010, 108, 034903.
12. Wang J and Guo C. Ultrafast dynamics of femtosecond laser-induced periodic surface pattern formation on metals [J], Appl. Phys. Lett., 2005, 87, 251914.
13. Wang J and Guo C. Formation of extraordinarily uniform periodic structures on metals induced by femtosecond laser pulses [J], J. Appl. Phys., 2006, 100, 023511.
14. Huang M, Zhao F, Cheng Y, Xu N and Xu Z. Origin of laser-induced near-subwavelength ripples: interference between surface plasmons and incident laser [J], ACS Nano, 2009, 3, 4062–4070.
15. Gattass R and Mazur E. Femtosecond laser micromaching in transparent materials [J], Nature Photon., 2008, 2, 219-225.
16. Stuart B C, Felt M D, Rubcnchik A M, Shore B W and Perry M D. Laser-induced damage in dielectrics with nanosecond to subpicosecond pulses [J], Phys. Rev. Lett., 1995, 74, 2248-2251.
17. Tien A C, Backus S, Kapteyn H, Murnane M and Mourou G, Short-pulse laser damage in transparent materials as a function of pulse duration [J], Phys. Rev. Lett., 1999, 82, 3883-3886.
18. Schaffer C B, Brodeur A and Mazur E. Laser-induced breakdown and damage in bulk transparent materials inducezl by tightly focused femtosecond laser pulses [J], Meas. Sci. Technol., 2001, 12, 1784-1794.
19. Sudrie L, Couairon A, Franco M, Bamouroux B, Prade B, Tzortzalds S and Mysyrowicz A. Femtosecond laser-induced damage and filamentary propagation in fused silica [J], Phys. Rev. Lett., 2002, 89, 186601.
20. Griffiths, David J. Introduction to electrodynamics. Third Edition, Prentice Hall. 1999, ISBN 013805326X
21. Yee K S. Numerical solution of initial boundary value problems involving Maxwell’s equations in isotropic media [J]. IEEE Transactions on antennas and propagation, 1966, 14(8): 302-307.
22. Pitarke J M, Silkin V M and Chulkovand E V. Theory of Surface Plasmons and Surface-plasmon Polaritons. [J], Rep. Prog. Phys., 2007, 70, 1:1–87.
23. Rethfeld B, Kaiser A, Vicanek M. Ultrafast dynamics of nonequilibrium electrons in metals under femtosecond laser irradiation [J]. Physical Review B, 2002, 65, 214303-214313.