

文章编号: 0258-7025(2004)Supplement-0158-03

# 飞秒强激光脉冲激发下 Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 薄膜光学常量的瞬态变化

刘建华<sup>1,2</sup>, M. Mero<sup>2</sup>, A. Sabbah<sup>2</sup>, W. Rudolph<sup>2</sup>

(<sup>1</sup> 复旦大学 光科学与工程系, 三束材料改性国家重点实验室, 上海, 200433 )  
(<sup>2</sup> Dept. Physics & Astronomy, University of New Mexico, NM 87131 )

**摘要** 用抽运-探测方法研究了 Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 单层膜在预损伤(60%损伤阈值)的抽运强度下反射和透射率的瞬态变化。观察到其峰值出现在抽运后约 100 fs 处, 然后以约 600 fs 的时间常量衰减。用单层吸收膜加透明衬底的理论模型对实验结果进行拟合, 得出光学参量(折射率  $n$  和消光系数  $k$ )瞬态变化的峰值为  $\Delta n = -3.4\%$  和  $\Delta k = 0.042$ , 对应吸收系数增大了 3 个数量级。

**关键词** 飞秒激光; 光学薄膜; 超快过程; 激光损伤

中图分类号 140.3055

文献标识码 A

## Transients of the Optical Constants for Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> Film Under Excitation of Femtosecond Laser Pulses

LIU Jian-hua<sup>2</sup>, M. Mero<sup>2</sup>, A. Sabbah<sup>2</sup>, W. Rudolph<sup>2</sup>

(<sup>1</sup> Dept. of Optical Science and Engineering, Fudan University, Shanghai, 200433 China; )  
(<sup>2</sup> Dept. Physics & Astronomy, University of New Mexico, NM 87131 )

**Abstract** Ultrafast changes of reflection and transmission were measured simultaneously for Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> single layer on fused silica substrate under excitation of femtosecond laser pulses. Peak modifications of -3.4% for index of refraction and 0.042 for extinction coefficient were retrieved respectively by a model of single absorption layer on transparent substrate. The maxima of changes emerged about 100 fs after the pump pulse, and then decayed with a time constant of about 600 fs.

**Key words** femtosecond laser; optical film; ultrafast process; laser damage

### 1 引言

强激光脉冲对光学材料的损伤物理图象包括如下三个基本方面:

1)自由载流子产生——价电子的强场离化;2)载流子浓度雪崩倍增——导带自由电子的强场加速获得动能,并与其他价带电子雪崩碰撞;3)晶格破坏——电子—晶格相互作用导致晶格温度升高至破坏。其基本结论是材料的损伤阈值  $F(\text{J}/\text{cm}^2)$  与激光脉冲的宽度  $(\tau)$  的平方根成正比:  $F \propto \tau^{1/2}$  (Scaling law)<sup>[1]</sup>。

飞秒激光脉冲作用下光学材料的损伤目前主要有自由电子雪崩倍增和多光子强场离化两种机理,然而关于初始自由载流子的产生,实验上还未取得明确的证据。同时,损伤的微观过程也是一个有待研究的问题。

本文用时间分辨的方法对 Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 薄膜中自由载流子产生及弛豫的时间尺度及其对薄膜的光学参量的影响进行了研究。实验结果表明,反射和透射系数的瞬态变化的峰值出现在抽运后约 100 fs 处,然后以约 600 fs 的时间常量衰减。由此计算出的折射率的相对变化峰值为 -3.4%, 光致消光系数的变化峰值为 0.042。

### 2 实验

研究采用简并抽运-探测方法,两束光来自于 Ti:Sapphire 飞秒激光放大器系统。中心波长 800 nm, 重复频率 10 Hz, 放大器输出脉冲宽度 24 fs。系统时间分辨率为 42 fs。抽运-探测光强比为 1000:2。激发强度为损伤阈值的 60%。抽运和探测光斑半径 80  $\mu\text{m}$  和 30  $\mu\text{m}$ 。利用多通道数据采集系统同步采

作者简介: 刘建华(1965-),男,复旦大学光科学与工程系副教授,超快光物理,主要从事非线性光学方面的研究。

E-mail: jhliu@fudan.edu.cn

样反射,透射和参考光脉冲的强度并以软件设置强度甄别窗口,并辅以多次平均以抑制脉冲强度的不均匀,提高系统信噪比。系统强度分辨率达 0.2%。

所用样品为室温离子束溅射法制备的单层 Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 薄膜,光学厚度(od)为 6 倍的四分之一波长( $\lambda=790\text{ nm}$ ),即  $od=6\lambda/4$ 。衬底为熔石英。实验框图如图 1 所示。

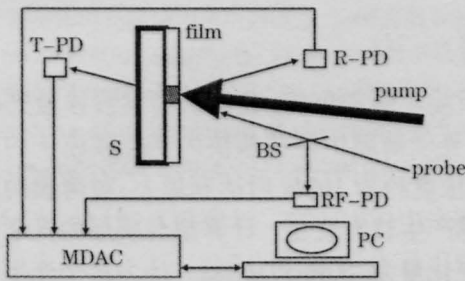


图 1 抽运-探测实验示意图。T-PD,R-PD,RF-PD 分别代表透射、反射和参考通道的光电二极管。BS:分束镜。S:熔石英衬底。MDAC:多通道数据采集卡。PC:计算机

Fig.1 Schematic diagram of the pump-probe experiments. T-PD, R-PD, and RF-PD represent the transmission, reflection and channel reference channel photodiode, respectively, BS: beam splitter, S: fused silica substrate, film: Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> film, MDAC: multi-channel data acquisition card, and PC: personal computer.

### 3 结果及分析

实验结果如图 2 所示,图 3 为放大器输出的激光光谱。从图 2 中可以看到,由于抽运脉冲的作用,样品表面的反射率的变化峰值增加了约 80%,透射率的峰值则下降了 32%。图中曲线为 5 次扫描平均的结果,且每次扫描曲线无明显畸变。说明在此抽

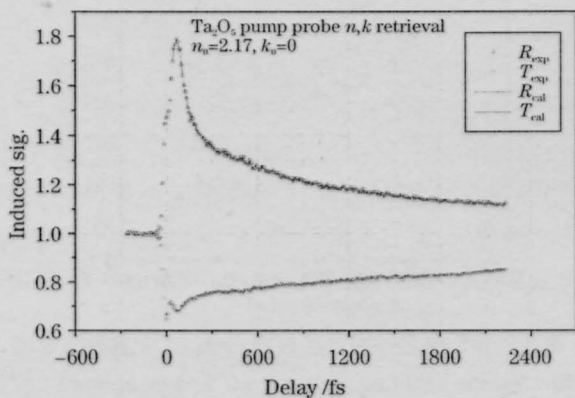


图 2 强光抽运导致的 Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 薄膜透射率和反射率在飞秒时间的相对变化

Fig.2 Pump induced transmission and reflection change in the Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> sample vs time delay in fs

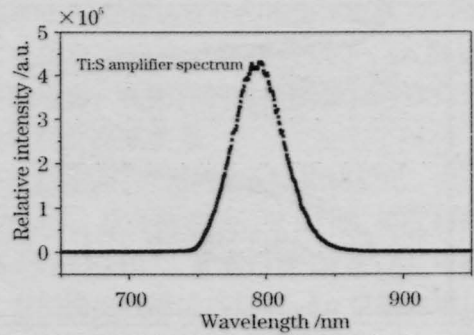


图 3 激光放大器的输出光谱

Fig.3 Laser spectrum of the amplifier output

运强度(损伤阈值的 60%)下样品内部发生了一定的变化,而且这个变化是可逆的,在相邻脉冲之间,样品内部的变化已经完全恢复。

这个由于抽运引起的变化可以表征为样品光学常量的变化。设样品在抽运脉冲作用前的光学常量为( $n_0, k_0$ ), $n$ 和 $k$ 分别为折射率和消光系数<sup>[2]</sup>。由于抽运的作用,光学常量便产生了一个增量,分别用 $\Delta n(\tau)$ 和 $\Delta k(\tau)$ 来表示。此时薄膜的瞬时光学常量 $n(\tau)$ 和 $k(\tau)$ 可表示为 $n(\tau)=n_0+\Delta n(\tau)$ 和 $k(\tau)=k_0+\Delta k(\tau)$ 。 $\tau$ 为抽运光与探测光的相对延时。

光学常量的改变,将会导致薄膜的反射和透射特性的改变,因为表面反射率和透射率是空气层、膜层及衬底的光学常量的函数<sup>[2,3]</sup>。反之,根据膜层的反射率和透射率及衬底的光学常量,也可以推出膜层的光学常量。

$R_\lambda=R(n_s, k_s, n_d, k_d, d, \lambda, \theta)$   $T_\lambda=T(n_s, k_s, n_d, k_d, d, \lambda, \theta)$  (1)  
式中下标  $s$  表示衬底,  $d$  为膜层的厚度,  $\lambda$  为入射光波长,  $\theta$  为光线入射角。

采用单层(光致)吸收膜加透明衬底的理论模型,求解(1)式就需要解二元方程组。这通常只有采用数值解法。而(1)式表示的只是单一波长下的膜层反射率和透射率。由图 3 可以看到,放大器输出的光谱宽度约有 50 多纳米,而探测器测到的反射和透射信号是对整个激光脉冲光谱的积分。因此必须对谱中所有波长的反射及透射进行计算才能有效还原其光学常量。为此采用如下的计算模型

$$R_c = \frac{\sum_{\lambda} R_{\lambda} \cdot I_{\lambda}}{\sum_{\lambda} I_{\lambda}}, \quad T_c = \frac{\sum_{\lambda} T_{\lambda} \cdot I_{\lambda}}{\sum_{\lambda} I_{\lambda}} \quad (2)$$

式中  $R_c, T_c$  为计算的全谱反射率和透射率,  $R_{\lambda}$  和  $T_{\lambda}$  为计算的单波长的情况。  $I_{\lambda}$  为激光脉冲光谱中波长为  $\lambda$  的光谱强度。

图 4 为根据(2)式和图 3 的光谱数据计算出的膜

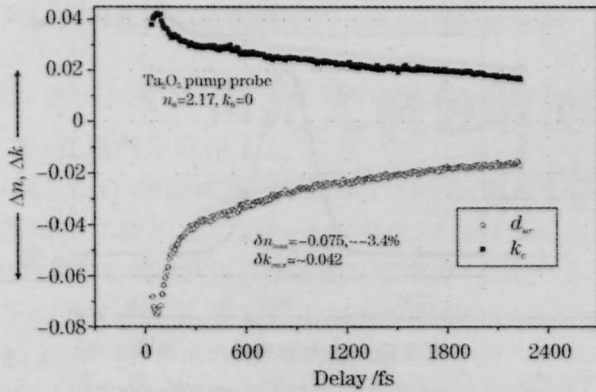


图4 在60%损伤阈值的飞秒激光脉冲抽运强度下,拟合计算的Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>薄膜中的光学常数的瞬态变化

Fig.4 Retrieved changes of optical constants and their dynamics for the Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> film under the excitation of the fs laser pulse at the pump intensity about 60% of its damage threshold

层折射率和消光系数的变化值。计算所取初值为:膜参量 $n_{r0}=2.17, k_{r0}=0$ ;膜层厚度 $d=546$  nm。并设膜的几何厚度在实验过程中不发生变化。探测光的入射角 $\theta_{p0}=17.7^\circ$ 为实验值。衬底参量 $n_{s0}=1.45, k_{s0}=0$ 。计算过程中折射率和消光系数的变化步长为 $h_n=0.0001, h_k=0.0001$ 。计算终止的误差容限为实验值的千分之一( $e=(\text{experimental value of } R \text{ and } T)/1000$ )。

在图2中,点为实验数据,线为(2)式根据以上数据的迭代计算值。可以看出,计算结果收敛性很好。说明实验中抽运光的确对层的的光学特性造成了很大的影响。而这一影响可以归结为自由载流子的产生。其结果是折射率下降,吸收上升。对应于800 nm的吸收系数约为 $7.1 \times 10^3 \text{ cm}^{-1}$ 。

从图2中还可以看到,这个变化过程在抽运发

生后100 fs时达到极大。这个结果与A. Kaiser的模型相吻合<sup>[4]</sup>。Kaiser认为多光子离化是自由电子产生的主要机理。而雪崩的效应通常发生在200 fs以后。在我们的实验中,抽运强度不太高,因此光生载流子的浓度还未达到临界值<sup>[6]</sup>( $10^{21} \text{ cm}^{-3}$ ),因此载流子对能带的影响还很小,因而雪崩作用不应当很大。随后的弛豫速度约600 fs。主要是电子与晶格相互作用的过程。

## 4 结 论

根据实验和分析,我们认为飞秒强激光脉冲作用下,光学薄膜中存在超快的光生载流子的产生过程,其浓度约为100fs后达到最大,对薄膜的反射和透射都产生较大改变。计算拟合膜层的光学常量的峰值变化量为-3.4%和0.042。认为这个光生载流子的产生主要还是多光子的强场离化作用。

## 参 考 文 献

- 1 B. C. Stuart, M. D. Feit, A. M. Rubenchik *et al.*. Laser induced damage in dielectrics with nanosecond to subpicosecond pulses[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 1995, 74(12):2248-2251
- 2 M. Born, E. Wolf. *Principle of Optics* [M]. Sixth edition, Pergamon Press, 1959
- 3 Tang Jinguang, Zheng Quan. *Applied Film Optics* [M]. Shanghai: Shanghai Press of Science & Technology, 1984. 10  
唐晋光,郑权. *应用薄膜光学*[M].上海:上海科学技术出版社1984, 10
- 4 A. Kaiser. Microscopic processes in dielectrics under irradiation by subpicosecond laser pulses[J]. *Phys. Rev. B*, 2000, 61(17): 11437-1150
- 5 Mark Mero, Liu Jianhua, Ali Sabbah *et al.*. Femtosecond pulse damage and pre-damage behavior of dielectric thin films [C]. *SPIE*, 2002, 4932:538-549