

文章编号: 0258-7025(2007)11-1498-04

纳米 Si 镶嵌 SiN_x 薄膜实现 Nd:YAG 激光器被动锁模

王加贤, 郭亨群, 李立卫, 吕 蓬

(华侨大学信息科学与工程学院, 福建 泉州 362021)

摘要 采用射频磁控溅射技术和热退火处理技术制备了石英衬底的纳米 Si 镶嵌 SiN_x 薄膜(nc-Si-SiN_x), 薄膜厚度为 200 nm。由 X 射线衍射(XRD)谱计算得出, 经 800 °C 连续 3 h 退火的薄膜中的 Si 晶粒平均尺寸为 1.7 nm。把纳米 Si 镶嵌 SiN_x 薄膜作为可饱和吸收体插入闪光灯抽运的平凹腔 Nd:YAG 激光器内, 实现 1.06 μm 激光的被动锁模运转。当激光器腔长为 120 cm 时, 获得平均脉冲宽度 32 ps, 输出能量 25 mJ 的单脉冲序列, 脉冲序列的包络时间约 480 ns, 锁模调制深度接近 100%。量子限域效应使得纳米 Si 的能隙宽度大于 1.06 μm 光子能量, 所以双光子饱和吸收和光生载流子的快速能量弛豫是导致纳米 Si 镶嵌 SiN_x 薄膜实现 1.06 μm 激光被动锁模的主要原因。

关键词 激光技术; 纳米硅; 被动锁模; 双光子吸收

中图分类号 TN 248.1 **文献标识码** A

Passive Mode-Locking in Nd:YAG Laser Using Nanocrystalline Silicon Embedded in SiN_x Film

WANG Jia-xian, GUO Heng-qun, LI Li-wei, LÜ Peng

(College of Information Science and Engineering, Huaqiao University, Quanzhou, Fujian 362021, China)

Abstract The nanocrystalline silicon embedded in SiN_x (nc-Si-SiN_x) film was prepared by radio-frequency (RF) magnetron sputtering technique and thermal annealing. The film of 200 nm thick was deposited on silica glass slice. The average diameter of nanocrystalline silicon in the film annealed at 800 °C for three hours was about 1.7 nm according to X-ray diffraction (XRD) spectrum. The passive mode-locking operation of a flash-lamp pumped Nd:YAG laser was achieved by inserting the nc-Si-SiN_x film as the saturable absorber into the plane-concave resonator. A single pulse train with average pulse duration of 32 ps and energy of 25 mJ was obtained when the cavity length was 120 cm. The sustained time of a single pulse train was about 480 ns and the modulation depth of mode-locking was nearly 100%. The nc-Si-SiN_x film passive mode-locking at 1.06 μm laser was mainly ascribed to two-photon saturable absorption and fast energy relaxation processes of carriers excited by laser in the nanocrystalline silicon since the energy band gap of the nanocrystalline silicon affected by the quantum confinement related effects was larger than the photon energy of 1.06 μm laser.

Key words laser technique; nanocrystalline silicon; passive mode-locking; two-photon absorption

1 引 言

长期以来, Nd:YAG 激光器一直采用有机染料(如五甲川溶于二氯已烷溶液)作为可饱和吸收体实现被动锁模, 以获得皮秒量级的光脉冲。由于有机

染料有毒性, 稳定性差, 使用很不方便, 所以采用晶体或半导体材料代替染料实现激光器的被动锁模是人们颇感兴趣的研究课题。已报道的研究结果有: 采用 Cr⁴⁺:YAG 晶体作为可饱和吸收体, 利用它对 1.06 μm 激光的激发态饱和吸收实现 Nd:YAG 激

收稿日期: 2007-02-08; 收到修改稿日期: 2007-06-11

基金项目: 国家自然科学基金(60678053), 福建省自然科学基金(A0610023)和集成光电子学国家重点实验室半导体所开放课题(06004)资助项目。

作者简介: 王加贤(1955—), 男, 福建人, 教授, 博士, 主要从事固体激光技术与器件、超短光脉冲技术方面的研究。

E-mail: wangjx@hqu.edu.cn

光器的被动锁模^[1],但获得的锁模脉冲较宽,锁模概率和稳定性也比较差;采用单晶 Si 或 GaAs 也实现了 Nd:YAG 激光器的被动调 Q 锁模^[2,3],但实验条件较苛刻,稳定性较差,锁模深度不够,所以没有更进一步的发展;近年来已陆续采用半导体可饱和吸收镜(SESAM)实现激光二极管(LD)连续抽运的 Nd:YVO₄ 和 Nd:YAG 的被动锁模,获得几十皮秒的光脉冲序列^[4~7]。用于 1.06 μm 激光被动锁模的半导体可饱和吸收镜一般采用 GaAs 为衬底,其上由 GaAs 和 AlAs 交错生长半导体布拉格反射镜(DBR),反射镜上面再生长一层半导体可饱和吸收体薄膜(In_{0.25}Ga_{0.75}As/GaAs 量子阱),最上层利用 GaAs 与空气的界面作为反射镜。半导体可饱和吸收镜的锁模效果好,但制作比较复杂,成本比较贵,而且都是作为端镜使用。作者在研究纳米 Si 镶嵌 SiN_x 薄膜的发光与非线性光学性能时发现,把石英衬底的纳米 Si 镶嵌 SiN_x 薄膜插入 Nd:YAG 激光器中,也可以实现 1.06 μm 激光的被动锁模。本文报道这一实验结果,并用双光子饱和吸收效应解释它的被动锁模机制。

2 纳米 Si 镶嵌 SiN_x 薄膜的制备

采用射频磁控反应溅射法制备富硅氮化硅薄膜。作为溅射气体的高纯度 Ar 和反应气体的高纯度 N₂ 经质量流量计精确控制通入磁控室,溅射靶材为高纯度的单晶 Si。选取石英片作为衬底,经过常规清洗后放入磁控室。镀膜前,先用高纯度 Ar 对硅靶预溅射数分钟后再通入氮气,待工作气体和溅射功率等参数充分稳定后打开挡板进行溅射镀膜。制备薄膜的主要参数为:射频功率保持为 300 W,工作气压保持在 1.2 Pa,气体流量比 R [Ar (cm³/min)/N₂ (cm³/min)] 为 80/20,衬底不加热,沉积时间为 20 min,膜厚监测仪显示薄膜厚度约为 200 nm。薄膜生成后置于退火炉里,在氮气保护下经过 800 °C 连续 3 h 的退火处理使之晶化。

采用 X 射线衍射(XRD)仪(德国 Bruker 公司 D8 advance 型)分析经退火处理的纳米 Si 镶嵌 SiN_x 薄膜,测量到的 X 射线衍射谱如图 1 所示。由图 1 可见,经过 800 °C 连续 3 h 的退火后,薄膜有一明显宽化的衍射峰,其峰位置 ($2\theta = 70^\circ$) 对应块体 Si 的金刚石结构的(400)面的衍射,可见此时 Si 在绝缘介质 SiN_x 中形成了金刚石结构的纳米晶粒。由谢乐(Scherrer)公式 $D = 0.9 \cdot \lambda / (\beta \cdot \cos\theta)$,把 X

射线波长 $\lambda = 0.154$ nm,衍射角 $\theta = 1.22$ rad,衍射峰的半峰全宽(FWHM) $\beta = 0.098$ rad 代入计算,得到纳米晶粒的平均尺寸约为 1.7 nm。实验中还发现,薄膜经 1000 °C 退火 3 h 后,薄膜中 Si 晶粒的平均尺寸增大。

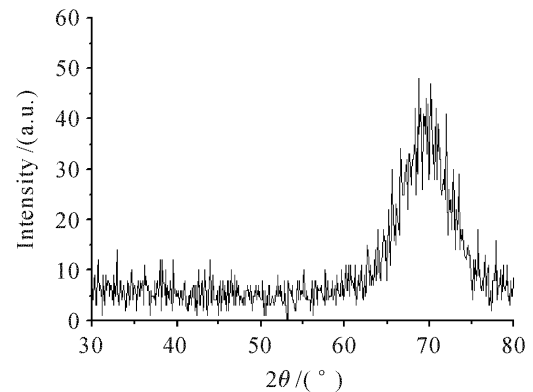


图 1 退火温度 800 °C 的纳米 Si 镶嵌 SiN_x 薄膜的 X 射线衍射谱

Fig. 1 XRD spectrum of nc-Si-SiN_x film annealed at 800 °C

3 被动锁模的实验研究

3.1 实验装置

纳米 Si 镶嵌 SiN_x 薄膜被动锁模的 Nd:YAG 激光器实验装置如图 2 所示。 M_1 为曲率半径 300 cm 的全反射凹面镜; M_2 为透射率 25% 的平面输出镜;A 为作为可饱和吸收体的纳米 Si 镶嵌 SiN_x 薄膜,靠近平面输出镜放置; $\phi 4$ mm × 60 mm 的 Nd:YAG 棒由单根脉冲氙灯抽运,工作重复频率为 1 Hz,氙灯的闪光时间(脉冲闪光波形的半宽度)约为 0.2 ms。棒的左端面与 M_1 镜的距离为 15 cm,右端面与 M_2 镜的距离在实验中调整。输出激光由响应时间 1 ns 的 PIN 硅光电二极管(D)接收并输入到 300 MHz 存储示波器(OSC.)上存储和观察脉冲波形,用非共线自相关二次谐波法测定脉冲宽度,用 PT-1 型激光能量计测量输出激光能量。

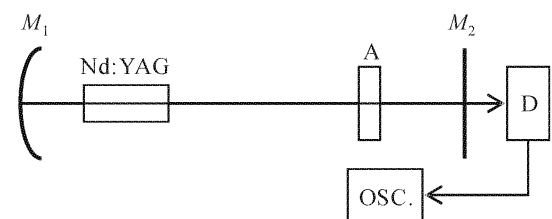


图 2 被动锁模 Nd:YAG 激光器实验装置示意图
Fig. 2 Experimental setup for passively mode-locked Nd:YAG laser

3.2 实验结果

把薄膜样品插入谐振腔中靠近平面输出镜处(与输出镜的距离可以在较大范围内调整)。当腔长大于80 cm时,激光器可实现锁模运转。图3(a),(b)分别为腔长 $L = 90$ cm和120 cm时示波器上观察到的锁模脉冲波形。可以看出, $L = 90$ cm时,脉冲间隔约为6.6 ns,脉冲包络时间约为320 ns,而且出现次脉冲; $L = 120$ cm时,脉冲间隔约为8 ns,脉冲包络时间约为480 ns,调制深度接近100%,没有出现次脉冲。脉冲间隔时间都与光脉冲在腔内往返的渡越时间相符。对示波器上观察的结果分析,可知锁模脉冲的建立时间约为220 μ s。腔长较大时,没有出现次脉冲,锁模效果和锁模概率都比短腔好,脉冲包络也较宽,脉冲能量也比较大。当腔长 $L = 120$ cm时,用非共线自相关二次谐波法测得脉冲平均宽度为32 ps,用激光能量计测得单脉冲序列能量为25 mJ。自由运转(未锁模)时激光器的输出能量为125 mJ,如果把激光效率定义为相同抽运条件下锁模运转的输出能量与自由运转的输出能量之比,则激光效率为20%。

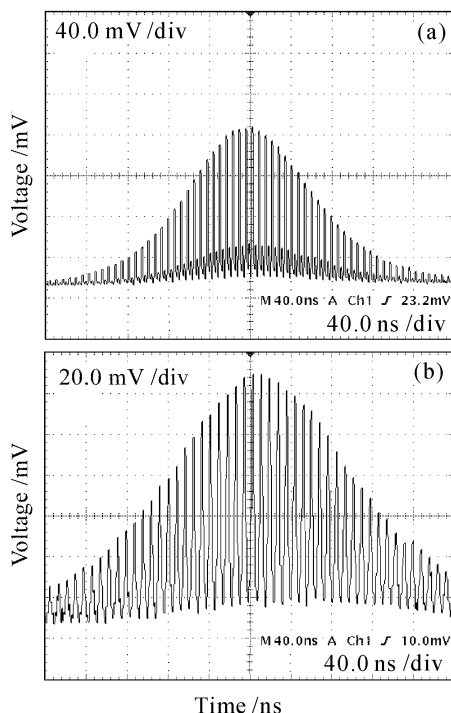


图3 Nd:YAG激光器输出的锁模激光脉冲

(a) 腔长 $L = 90$ cm; (b) 腔长 $L = 120$ cm

Fig. 3 Mode-locked laser pulses from Nd:YAG laser

(a) $L = 90$ cm; (b) $L = 120$ cm

4 被动锁模机制的理论分析

根据被动锁模的一般理论,纳米Si镶嵌 SiN_x

薄膜能够实现Nd:YAG激光器的被动锁模,必须具备两个基本条件,即对 $1.06 \mu\text{m}$ 激光具有可饱和吸收特性以及可饱和吸收的恢复时间应小于光脉冲在腔内往返的渡越时间(纳秒量级)。在闪光灯抽运的被动锁模激光器中,为了达到较好的锁模效果,作用在薄膜上的激光能量密度至少应是 mJ/cm^2 量级,调制深度不小于15%,非吸收损耗在5%以内,饱和吸收的恢复时间为几十到几百皮秒。华仁忠等^[8]采用厚度 $400 \mu\text{m}$ 的单晶硅实现Nd:YAG激光器的被动锁模,并把锁模机制归结为硅片对 $1.06 \mu\text{m}$ 激光的单光子吸收以及产生的瞬态载流子光栅对光脉冲的压缩作用。与此不同的是,镶嵌在 SiN_x 中的纳米Si的能隙宽度大于体硅材料的能隙宽度;纳米Si薄膜厚度(200 nm)远小于体硅材料的厚度;实验中对纳米Si薄膜在腔内的位置没有严格的要求,可以在很大范围内移动。实验中也用硅片代替薄膜,但在相同的条件下没有观察到锁模。因此,对纳米Si镶嵌 SiN_x 薄膜实现被动锁模的物理机制必须有新的解释。

镶嵌在 SiN_x 中的纳米Si有相当大的表面-体积比,界面原子排列和键的组态有较大的无规则性,有大量的界面态存在,而且纳米Si中的电子和其他元激发均受到介质势垒的三维限域作用,纳米Si颗粒表现出准零维的量子点特性,非线性特性得到增强,纳米Si中的电子由原来准连续的能带分裂成分立的能级。马智训等^[9]研究了纳米Si镶嵌 SiO_2 薄膜的吸收光谱和光致发光光谱,发现在 $1.0 \sim 1.5$ eV之间存在较弱的次带吸收,认为这种次带吸收来自纳米Si的表面态和(或)缺陷态的跃迁;在 $1.5 \sim 3.0$ eV之间存在较强的吸收,吸收系数随着入射光子能量的增加而指数增加,与体硅材料相似,这种吸收是纳米硅中的电子直接带间跃迁造成的。纳米Si镶嵌 SiN_x 薄膜的吸收谱也有类似的性质。

由此可见,纳米Si镶嵌 SiN_x 薄膜对 $1.06 \mu\text{m}$ 激光(光子能量1.17 eV)存在较弱的单光子吸收和较强的双光子吸收。当入射光光强较小时,次带吸收是单光子吸收。由于量子限域效应使得纳米Si的能隙宽度大于体硅的能隙宽度,也大于 $1.06 \mu\text{m}$ 激光的光子能量,所以单光子吸收不能产生带间跃迁^[10]。当入射光光强较大时,两个光子的能量超过能隙宽度($2 \cdot h\nu > E$),纳米Si允许有双光子吸收,即价带中的电子可以吸收两个光子跃迁到导带,同时在价带和导带中产生大量的光生载流子^[11]。双光子吸收是一种重要的非共振非线性光学效应,它

使材料的复折射率发生变化,有许多重要的应用。双光子吸收使纳米硅中产生载流子,载流子跃迁到激发态,当激发态上的载流子大量积累时,薄膜就被“漂白”而变得透明。然后,激发态上的载流子先弛豫到较为稳定的表面态,再退激发到基态。根据黄仕华等^[12]的研究,用激光激发得到的光生载流子的能量弛豫时间大约为几个皮秒到100 ps。双光子吸收饱和是导致被动锁模的主要因素。判断双光子吸收的实验方法可采用开孔 Z 扫描测量薄膜的非线性吸收系数。G. Vijaya Prakash 等^[13]采用 Z 扫描方法分析纳米 Si 镶嵌 SiO₂-Si₃N₄ 复合薄膜的非线性光学特性,由开孔 Z 扫描的测量结果证明其非线性吸收多数来源于双光子吸收。

把纳米硅薄膜置于腔内,由 Nd:YAG 自发发射基础上发展起来的噪声光脉冲中的较弱光脉冲被吸收,而较强的光脉冲因饱和效应被吸收很少,这样就可以在噪声群中选出最大的光脉冲。同时,在强尖峰光脉冲多次经过薄膜和增益介质时,其前沿(如果光生载流子的能量弛豫时间大于光脉冲宽度,也包括后沿)因为被吸收,损耗大于增益而不断削弱;中间部分没有被吸收或吸收很少而不断增强;后沿因为被吸收或因为增益介质的增益饱和没有被放大也不断削弱,所以形成了周期 $2L/c$ 的脉冲序列。

5 结 论

采用射频磁控反应溅射法及热退火处理技术制备纳米 Si 镶嵌 SiN_x 薄膜,该薄膜作为可饱和吸收体实现了 Nd:YAG 激光器的被动锁模。当腔长为 120 cm 时,获得脉冲时间宽度 32 ps,能量为 25 mJ 的单脉冲序列。理论分析认为,由于纳米 Si 的能隙宽度大于 1.06 μm 光子能量,所以双光子饱和吸收和光生载流子的快速能量弛豫是导致激光器被动锁模的主要因素。纳米 Si 镶嵌 SiN_x 薄膜相对于半导体可饱和吸收镜制作简单,成本较低,而且可插入激光器腔内任一位置使用。该薄膜如果用于连续抽运(如激光二极管抽运)的 Nd:YAG 激光器的被动锁模,有望产生重复频率 100~200 MHz,平均功率几百毫瓦的稳定脉冲序列。

参 考 文 献

1 Wang Jiaxian, Zhang Wenzhen, Xing Qirong *et al.*

- Investigation of Cr⁴⁺:YAG passive mode-locking in a pulsed Nd:YAG laser [J]. *Optics & Laser Technology*, 1998, **30**(5):303~305
- 2 Renzhong Hua, Liejia Qian, Tingting Zhi *et al.*. Short pulse generation in a Nd:YAG laser by silicon [J]. *Opt. Commun.*, 1997, **143**(1):47~52
- 3 Zhuo Zhuang, Jiang Qichang, Wang Yonggang *et al.*. Study on the property of passively Q-switched mode-locked Nd:Gd_{0.42}Y_{0.58}VO₄ mixed crystal laser with GaAs absorber grown at low temperature [J]. *Acta Optica Sinica*, 2006, **26**(1):77~80
卓 壮,姜其畅,王勇刚等. 低温 GaAs 被动调 Q 锁模 Nd:Gd_{0.42}Y_{0.58}VO₄ 混晶激光器特性研究[J]. *光学学报*, 2006, **26**(1):77~80
- 4 G. J. Spuhler, T. Sudmeyer, R. Paschotta *et al.*. Passively mode-locked high-power Nd:YAG lasers with multiple laser heads [J]. *Appl. Phys. B*, 2000, **71**(1):19~25
- 5 Cai Zhiqiang, Wen Wuqi, Yao Jianquan *et al.*. Continuous-wave passively mode-locked diode end-pumped Nd:YVO₄ laser with a semiconductor saturable absorber mirror [J]. *Chinese J. Lasers*, 2005, **32**(6):734~738
蔡志强,温午麒,姚建铨等. 半导体可饱和吸收镜连续被动锁模端面抽运 Nd:YVO₄ 激光器[J]. *中国激光*, 2005, **32**(6):734~738
- 6 Chen Meng, Zhang Bingyuan, Li Gang *et al.*. Study on SESAM passively-mode-locked Nd:YAG laser [J]. *Chinese J. Lasers*, 2004, **31**(6):646~648
陈 檬,张丙元,李 港等. 半导体可饱和吸收镜被动锁模 Nd:YAG 激光器的研究[J]. *中国激光*, 2004, **31**(6):646~648
- 7 Zhiqiang Cai, Wuqi Wen, Yonggang Wang *et al.*. 5.3-W Nd:YVO₄ passively mode-locked laser by a novel semiconductor saturable absorber mirror [J]. *Chin. Opt. Lett.*, 2005, **3**(6):342~344
- 8 Hua Renzhong, Qian Liejia, Deng Ximing. Passive mode-locking of Nd:YAG laser by monocrystalline silicon [J]. *Acta Optica Sinica*, 1997, **17**(8):1083~1085
华仁忠,钱列加,邓锡铭. 用单晶硅在 Nd:YAG 激光器中实现被动锁模[J]. *光学学报*, 1997, **17**(8):1083~1085
- 9 Ma Zhixun, Liao Xianbo, Kong Guanglin *et al.*. Optical properties of nanocrystalline silicon embedded in SiO₂ [J]. *Science in China (Series A)*, 1999, **42**(9):995~1002
- 10 Guo Hengqun, Lin Shangxin, Wang Qiming. Photoluminescence and application of nonlinear optical property of nc-Si-SiO₂ films [J]. *Chinese Journal of Semiconductors*, 2006, **27**(2):345~349
郭亨群,林赏心,王启明. 纳米 Si 镶嵌 SiO₂ 薄膜的发光与非线性光学特性的应用[J]. *半导体学报*, 2006, **27**(2):345~349
- 11 Yao Weiguo, Yue Lanping, Qi Zhenzhong *et al.*. Visible photoluminescence of Ge nanocrystallites embedded in SiO₂ thin film [J]. *Journal of Functional Material*, 1997, **28**(5):477~488
姚伟国,岳兰平,戚震中等. 镶嵌在 SiO₂ 薄膜中的锗纳米晶粒的光致发光[J]. *功能材料*, 1997, **28**(5):477~488
- 12 Huang Shihua, Li Xi, Ling Yan *et al.*. Study of ultrafast process in semiconductor [J]. *J. Infrared Millim. Waves*, 2005, **24**(3):179~181
黄仕华,李 汐,凌 严等. 半导体中超快过程的研究[J]. *红外与毫米波学报*, 2005, **24**(3):179~181
- 13 G. Vijaya Prakash, M. Cazzanelli, Z. Gaburro *et al.*. Linear and nonlinear optical properties of plasma-enhanced chemical-vapour deposition grown silicon nanocrystals [J]. *Journal of Modern Optics*, 2002, **49**(5/6):719~730