

# 飞秒脉冲激光入射单层光学薄膜的光场特性数值模拟

朱志武 程湘爱 司 磊 江厚满 刘泽金

(国防科学技术大学光电科学与工程学院, 湖南 长沙 410073)

**摘要** 飞秒脉冲激光入射光学薄膜形成瞬态光场分布是一个非稳态过程, 该过程不同于纳秒脉冲或连续波入射的情形, 不能直接采用求解薄膜特征矩阵的方法进行处理。采用多光束叠加的方法建立了超短脉冲入射单层膜的反射率和内部光强分布的理论模型, 并根据 ZnS 薄膜材料的参数和单层增反膜的特点进行了数值计算。结果表明, 对单层增反膜, 薄膜反射率与脉宽成正比, 并随脉宽增加逐渐趋近于连续波入射时的情形。在同一脉宽下, 膜层厚度增加, 反射率下降, 且反射脉冲形状也发生改变。膜层中的光强分布计算结果也明显不同于连续波辐照情形, 且薄膜厚度越大, 差异越显著, 表现为连续波入射时, 膜层内的光强分布呈等振幅的波动, 而超短脉冲入射时, 波动的振幅逐渐增大, 在膜层和玻璃分界面处达到最大值。

**关键词** 薄膜; 激光损伤; 飞秒激光脉冲; 光场特性; 数值模拟

**中图分类号** O484 **文献标识码** A **doi:** 10.3788/CJL201138.0102003

## Numerical Modelling of Optical Field Characteristic of Monolayer Film Irradiated by Femtosecond Laser Pulse

Zhu Zhiwu Cheng Xiang'ai Si Lei Jiang Houman Liu Zejin

(College of Optoelectronic Science and Engineering, National University of Defense Technology, Changsha, Hunan 410073, China)

**Abstract** Different from the light distribution along the propagation direction in optical thin-film induced by nanosecond pulse or continuous wave, the one irradiated by femtosecond laser pulse is an unsteady process, and can not be solved directly by characteristic matrix of coatings. The model is setup by means of multiple-beam interferometry in time domain, and simulated with the parameters of ZnS material after that. The result reveals that, to single layer reflecting film, the reflectance is proportional to the pulse width, and equals ultimately to what illuminated by continuous wave. Furthermore, under the same pulse width, the reflectance decreases with the increase of the film thickness. The distinction of light intensity distribution induced by ultrashort laser pulse and continuous wave is obviously, as well as the increase of the film thickness. In detail, the curve of intensity distribution in the film irradiated by continuous wave fluctuates with the fixed amplitude. However, it grows up gradually under the ultrashort laser pulse.

**Key words** thin films; laser damage; femtosecond laser pulse; optical field characteristic; numerical simulation

**OCIS codes** 260.0260; 310.0310; 320.0320

### 1 引 言

光学薄膜是构成激光器以及其他光电子器件的重要组成部分。一直以来, 研究激光对光学薄膜的损伤机理都是激光与物质相互作用研究领域的热点<sup>[1~7]</sup>, 尤其当超短脉冲激光器出现之后, 研究者迅速将其引入该领域, 并发现了一些不同于纳秒脉冲

或连续波激光与物质相互作用的现象和机理<sup>[3~7]</sup>。由于光学薄膜的规律性多层结构, 在激光辐照过程中会形成局域的场增强效应, 该效应将对薄膜的激光损伤特性产生重要影响。

文献[5]理论计算了激光场对薄膜材料介电常数的改变, 以及材料介电常数的改变对入射激光的

收稿日期: 2010-05-06; 收到修改稿日期: 2010-07-14

作者简介: 朱志武(1980—), 男, 博士研究生, 主要从事激光与物质相互作用方面的研究。E-mail: zhuzhi\_hust@hotmail.com

导师简介: 刘泽金(1963—), 男, 教授, 博士生导师, 主要从事高能激光技术方面的研究。E-mail: zejinliu@vip.sina.com

反射、透射和光强分布的影响,进一步计算了激光能量在膜层中的沉积。文献[6,7]研究了飞秒激光对光学薄膜的损伤规律,计算得出膜层内存在局部的场增强效应,且通过实验观察到飞秒激光对薄膜的损伤容易发生在场分布的最大值处。然而,对飞秒激光脉冲而言,由于脉冲持续时间极短,其空间尺度已达到与膜厚度相当,因此激光在膜层中尚未形成稳定的干涉,作用过程就已结束。上述文献在计算薄膜中激光强度分布时并未对这一问题进行深入分析,且有些采用 TFCalc 软件求解膜层中的稳态光强分布,两者显然是有一定差别的。此外,超短脉冲激光不是严格意义上的单色激光,计算膜层中的光强分布还必须考虑色散效应。

本文从多光束干涉理论出发,建立了单层薄膜反射率和光强分布的理论模型,并以飞秒脉冲激光入射 ZnS 单层增反膜为例,通过数值方法计算了薄膜对飞秒光脉冲的反射率以及非稳态过程中膜层介质经历的峰值光强分布。该模型限于处理单层薄膜被小信号飞秒激光脉冲辐照的情形并认为薄膜对激光完全透明,此外,为了在激光脉冲函数表达中使用缓变包络近似,本文只考虑脉宽大于一个光振动周期的情形<sup>[8,9]</sup>。

## 2 理论模型

### 2.1 激光脉冲函数

不失一般性,引入线偏振高斯脉冲<sup>[10]</sup>

$$E(t, z) = \sqrt{\frac{\Gamma(z)}{\pi}} \exp\left\{-\Gamma(z) \left[t - \frac{z}{v_g(\omega_0)}\right]^2\right\} \times \exp\left\{i\omega_0 \left[t - \frac{z}{v_\phi(\omega_0)}\right]\right\}, \quad (1)$$

式中右侧第一部分指数形式描述脉冲的慢变包络,第二部分为基频载波,  $\omega_0$  即为脉冲基频。相速度  $v_\phi = c/n(\omega)$ , 其中  $c$  为真空中光速,  $n(\omega)$  由被研究材料的色散特性决定。群速度  $v_g = \frac{d\omega}{dk} = \frac{1}{dk/d\omega}$ , 其中  $\frac{dk}{d\omega} = \frac{1}{c} \left[ n(\omega) + \omega \frac{dn(\omega)}{d\omega} \right]$ 。脉冲包络参数  $\Gamma(z) = \frac{\Gamma}{1 + \xi^2 z^2} - i \frac{\Gamma \xi z}{1 + \xi^2 z^2}$ , 其中  $\xi = 2\Gamma \left( \frac{d^2 k}{d\omega^2} \right)_{\omega_0}$ , 因  $z$  很小, 可近似取  $\Gamma(z) = \Gamma = 2 \ln 2 / \tau^2$ ,  $\tau$  为脉冲宽度(半峰全宽, FWHM)。薄膜中脉冲激光的相速度、群速度均可通过薄膜材料的色散方程求出。值得注意的是, 如果脉冲宽度小于一个光振动周期, 即  $\tau < \lambda/c$ , 则脉冲函数应使用复解析信号理论<sup>[8,9]</sup>, 这超出本文范围。

### 2.2 膜层反射率计算

图 1 为激光入射单层镀膜玻璃的情形, 膜层厚度为  $h$ , 不考虑玻璃后表面的反射。各界面的反射率、透射率分别为: 空气-薄膜为  $r_1, t_1$ ; 薄膜-空气为  $r_2, t_2$ ; 薄膜-玻璃为  $r_3, t_3$ ; 且有关系式  $r_2 = -r_1$  和  $t_1 t_2 = 1 - r_1^2$ 。考虑激光垂直入射, 则  $r = -(n-1)/(n+1)$ ,  $t = 2/(n+1)$ , 其中  $n = n_i/n_o$  为相对折射率。设入射点处  $z=0$ , 则根据(1)式可写出图 1 中诸反射光束分别为

$$E_1 = r_1 \sqrt{\frac{\Gamma}{\pi}} \exp(-\Gamma^2) \times \exp(i\omega_0 t), \quad (2)$$

$$E_2 = t_1 t_2 r_3 \sqrt{\frac{\Gamma}{\pi}} \exp\left\{-\Gamma \left[t + \frac{2h}{v_g(\omega_0)}\right]^2\right\} \times \exp\left\{i\omega_0 \left[t + \frac{2h}{v_\phi(\omega_0)}\right]\right\}, \quad (3)$$

$$E_3 = t_1 t_2 r_2 r_3^2 \sqrt{\frac{\Gamma}{\pi}} \exp\left\{-\Gamma \left[t + \frac{4h}{v_g(\omega_0)}\right]^2\right\} \times \exp\left\{i\omega_0 \left[t + \frac{4h}{v_\phi(\omega_0)}\right]\right\}, \quad (4)$$

以此类推。反射光强度

$$I_r = E \times E^* = \left( \sum_{i=1}^{\infty} E_i \right) \times \left( \sum_{i=1}^{\infty} E_i \right)^*. \quad (5)$$

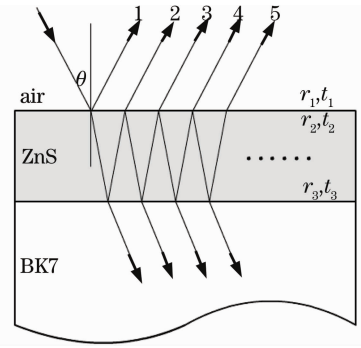


图 1 激光入射 ZnS 单层膜形成的多光束干涉  
Fig. 1 Multiple-beam interferometry of laser incidenting into ZnS single layer film

根据(2)~(5)式的特点, 反射光脉冲的强度分布可通过数值计算得出, 进而在整个脉冲持续时间内进行数值积分可得脉冲能量  $E_{nr}$ 。由(1)式容易求得入射光脉冲能量  $E_{ni}$ , 则脉冲能量反射率为

$$R = \frac{E_{nr}}{E_{ni}}. \quad (6)$$

### 2.3 膜层中光强分布的计算

超短脉冲入射光学薄膜并形成场分布是一个非稳态过程, 该过程中, 膜层中任一点的光强度是时间的函数。显然, 不能采用传统的薄膜特征矩阵的方法对该问题进行计算, TFCalc 膜系设计软件也将不

适用。另外，脉冲持续时间极短，因此只需考虑单脉冲的作用过程。膜层中的激光通过其上下表面透射减弱，考察距离膜层表面深度为  $s$  的一点，根据(1)式，膜层内诸反射光束经过该点时的场强依次为

$$E_{s1} = t_1 \sqrt{\frac{\Gamma}{\pi}} \exp\left\{-\Gamma\left[t - \frac{s}{v_g(\omega_0)}\right]^2\right\} \times \exp\left\{i\omega_0\left[t - \frac{s}{v_g(\omega_0)}\right]\right\}, \quad (7)$$

$$E_{s2} = t_1 r_3 \sqrt{\frac{\Gamma}{\pi}} \exp\left\{-\Gamma\left[t - \frac{2h-s}{v_g(\omega_0)}\right]^2\right\} \times \exp\left\{i\omega_0\left[t - \frac{2h-s}{v_g(\omega_0)}\right]\right\}, \quad (8)$$

$$E_{s3} = t_1 r_2 r_3 \sqrt{\frac{\Gamma}{\pi}} \exp\left\{-\Gamma\left[t - \frac{2h+s}{v_g(\omega_0)}\right]^2\right\} \times \exp\left\{i\omega_0\left[t - \frac{2h+s}{v_g(\omega_0)}\right]\right\}, \quad (9)$$

$$E_{s4} = t_1 r_2 r_3^2 \sqrt{\frac{\Gamma}{\pi}} \exp\left\{-\Gamma\left[t - \frac{4h-s}{v_g(\omega_0)}\right]^2\right\} \times \exp\left\{i\omega_0\left[t - \frac{4h-s}{v_g(\omega_0)}\right]\right\}, \quad (10)$$

以此类推，考察点光场  $E_s = \sum_{i=1}^{\infty} E_{si}$ ，强度  $I_s = E_s \times E_s^*$ ，具体结果可由数值计算得出。

## 3 计算结果及讨论

### 3.1 参数选择与模型验证

飞秒脉冲激光不是严格的单色光，故应考虑 ZnS 镀膜材料的色散效应<sup>[11]</sup>。根据镀膜材料 ZnS 的折射率数据，利用最小二乘法拟合得到的色散方程为

$$n(\lambda) = 2.1848 + \frac{0.0473}{\lambda - 0.2638}, \quad (11)$$

式中波长  $\lambda$  的单位为  $\mu\text{m}$ 。计算过程中，不考虑入射光场对材料介电常数的影响，即小信号情形，并且只

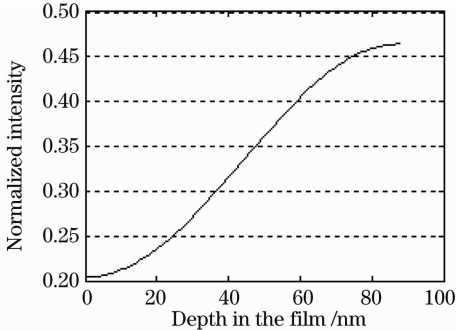


图2 本文方法计算 ZnS 单层膜中的归一化光强分布  
Fig. 2 Normalized intensity distribution of ZnS monofilm calculated with our method

关心膜层纵向的光强分布。其他计算参数选择为：中心光波长  $\lambda_0 = 800 \text{ nm}$ ，玻璃折射率  $n_G(\lambda_0) = 1.505$  (BK7 玻璃)，膜层折射率  $n_f(\lambda_0) = 2.273$ 。

若去掉脉冲方程(7)~(10)式中所有含参数  $\Gamma$  的项，则脉冲变为连续波，干涉场也将变为稳态，此时，计算得出，当膜层厚度为  $\lambda/4$  时，膜层内的归一化光强分布如图2所示，图3为 TFCalc 软件计算的结果，横坐标对应为膜层中的位置。可以看出它们基本吻合，验证了该计算过程的正确性。

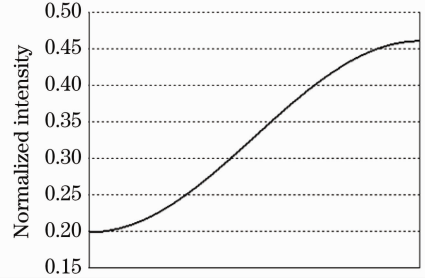


图3 TFCalc 软件计算 ZnS 单层膜中归一化光强分布  
Fig. 3 Normalized intensity distribution of ZnS monofilm calculated by TFCalc

### 3.2 薄膜反射率与脉宽

当膜层厚度为  $\lambda/4$  时，TFCalc 软件计算得到波长 800 nm 单色光的反射率为  $R = 30.40\%$ ，根据本文物理模型计算薄膜反射率与激光脉宽的关系如图4所示。可以看出，随着脉宽的增加，薄膜反射率升高并逐渐趋于定值 30.12%，该极限值与软件计算结果基本吻合。可以认为，由于脉宽极短，在薄膜上下表面的反射光不能有效干涉相长，因而反射率下降，这意味着将有更多能量透过薄膜光学元件。进一步分析发现，当脉宽大于 10 fs 后，反射率趋于稳定，此时，脉冲在真空中的几何长度远远大于薄膜的光学厚度(这里计算结果为 15 倍)，因此可以认为，该条件可用来区分稳态和非稳态分析方法的适用范围。

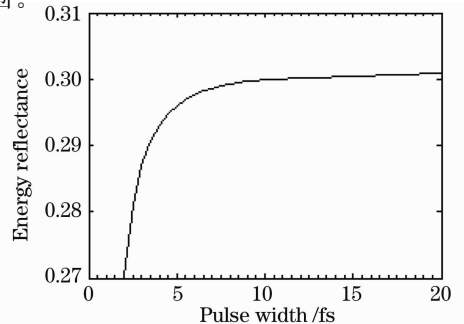


图4 脉冲能量反射率与脉宽的关系  
Fig. 4 Relation between pulse energy reflectance and pulse width

### 3.3 薄膜反射率与薄膜厚度

容易理解,增加薄膜厚度与缩短脉冲宽度对反射率的影响是类似的。当薄膜厚度在 $\lambda/4$ 基础上再增加 $\lambda/2$ 整数倍时,对连续波入射仍具有增反效果,但对超短脉冲,情况将会不同。脉宽分别为10 fs和50 fs的超短脉冲入射单层ZnS增反膜时,不同厚度对应的脉冲能量反射率数值如表1所示。

表1 不同膜层光学厚度对应的脉冲能量反射率  
Table 1 Pulse energy reflectance under different coating thicknesses

Optical thickness( $\lambda/4$ )	10 fs	50 fs
1	0.30	0.30
5	0.27	0.30
9	0.22	0.30
13	0.19	0.29
17	0.18	0.29
21	0.18	0.28
25	0.18	0.27
29	0.18	0.26
33	0.18	0.25

可以看出,膜层厚度增加,反射率降低,即使对脉宽50 fs的超短脉冲,当膜厚达到一定程度时也将对反射率产生显著影响。当膜厚度继续增加时,反射率也将趋于定值,本文计算条件下为0.18,该极限值与50 fs脉冲入射时相同(表格中未列出)。此时,在膜层上表面出射的多个脉冲在空间上已经完全分开,类似于厚平板上下表面对入射飞秒脉冲的反射情形。

值得注意的是,膜层厚度的增加不光改变激光的反射率,对脉冲形状也有显著的影响。图5为脉宽10 fs的超短脉冲入射 $9\lambda/4$ 厚度的ZnS单层膜情况下的入射脉冲和反射脉冲形状。入射脉冲为高斯形,反射脉冲则明显偏离高斯分布,尤其脉冲后沿变形更明显。该现象是由于光脉冲经薄膜上下表面的多次反射延迟造成的。参考图1,反射光束2滞后于光束1,光束3滞后于光束2,依此类推。当光脉冲足够短时,后一光束(也是以脉冲形式)将叠加在前一脉冲上,但是峰值有一定延迟,于是出现图5所示的结果,并且如果进一步增加膜厚与脉宽比例,出射脉冲1,2,3等将明显分开,只是最后一脉冲幅度远小于前一脉冲。

### 3.4 薄膜中的光场分布

超短脉冲激光辐照光学材料的行为以雪崩电离、多光子电离以及隧道电离为主,损伤过程具有明显阈值特性,因此需要准确求解激光辐照过程中材料内形成的光场分布<sup>[12,13]</sup>。超短脉冲入射光学薄

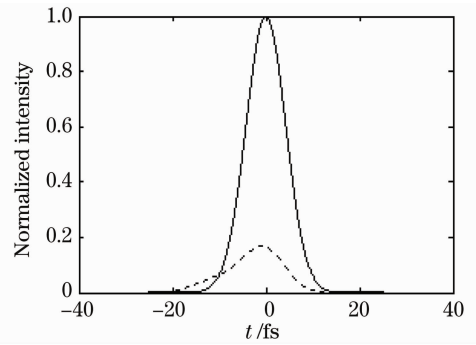


图5 反射脉冲(虚线)、入射脉冲(实线)形状对比  
Fig. 5 Comparison between reflected (dash line) and incident (solid line) pulse shape

膜时,薄膜中的光场分布严格依赖时间,因此讨论膜层中的某点所经历的光强最大值将更有意义。图6为激光脉宽分别为10,5和3 fs,膜厚度 $\lambda/4$ 时,膜层内的峰值光强分布曲线。可以看出,脉宽越窄,峰值光强越高,但总体而言差异不是很明显。对比图6,3,在这一膜厚度和脉宽下,超短脉冲入射导致的峰值光强分布和连续波入射情况下的差异也不明显。

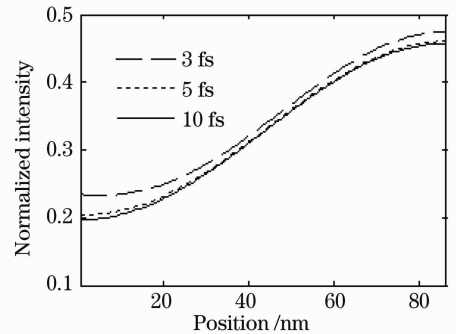


图6 不同脉宽激光入射下的薄膜内峰值光强分布  
Fig. 6 Normalized peak intensity distribution in the film irradiated by ultrashort laser pulse with different widths

还计算了膜厚度分别为 $5\lambda/4$ , $9\lambda/4$ ,激光脉宽为10 fs时,膜层中的光强分布,计算结果分别如图7(a),(b)所示。曲线表明,连续波入射时,膜层中光强分布呈等幅振荡形式,在空气-薄膜界面处强度极小,在薄膜-玻璃界面处强度极大。飞秒脉冲入射时,强度分布呈幅度逐渐增大的振荡形式,且随着膜层厚度增加,这一趋势更加明显。

## 4 结 论

超短脉冲入射光学薄膜时,膜层的反射特性和内部的光强分布不同于连续波入射的情形,一些文献没有分开处理这一问题<sup>[5~7]</sup>。为分析该非稳态过程,以超短脉冲入射单层膜为例,采用多光束叠加的方法建立了薄膜的反射率和膜层中光场分布的理论

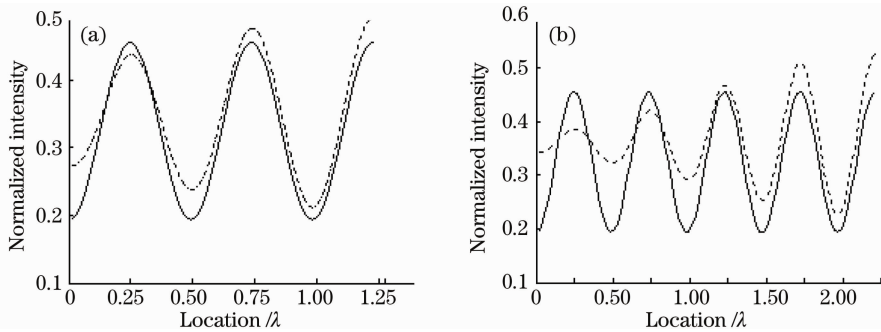


图7 连续波(实线)和超短脉冲(虚线)入射(a)  $5\lambda/4$  和(b)  $9\lambda/4$  厚度薄膜时的光强分布

Fig. 7 Normalized peak intensity distribution of (a)  $5\lambda/4$  and (b)  $9\lambda/4$  thickness film illuminated by continuous wave (solid line) and ultrashort pulse (dash line)

模型,并根据 ZnS 薄膜参数进行了数值计算。在验证模型准确性的基础上,计算了膜层的反射特性以及膜层内的峰值光强分布。通过对比发现,超短脉冲入射光学薄膜的问题不能直接采用薄膜特征矩阵等处理稳态过程的方法,分析计算结果进一步提出,稳态和非稳态过程的区分条件为脉冲几何长度与薄膜光学厚度之比大于 15。此外,还计算了不同膜厚对脉冲反射率和脉冲形状的影响。该方法可为研究超短脉冲激光与光学薄膜材料相互作用提供一定参考,但同时,该方法在分析多层薄膜时困难较大,需要进一步的深入研究和实验验证。

### 参 考 文 献

- Hu Haiyang, Fan Zhengxiu, Liu Ye *et al.*. Effect of impurities on laser induced damage to  $1.06 \mu\text{m}$  optical coatings[J]. *Chinese J. Lasers*, 1999, **A26**(6): 489~492.  
胡海洋, 范正修, 刘 晔 等. 杂质对光学薄膜激光损伤阈值的影响[J]. 中国激光, 1999, **A26**(6): 489~492
- Jianke Yao, Zhengxiu Fan, Hongbo He *et al.*. Influence of coating material on laser damage threshold of  $\text{TiO}_2$  films[J]. *Chin. Opt. Lett.*, 2007, **5**(9): 556~558
- Mark Mero, Jianhua Liu, Ali J. Sabbah *et al.*. Femtosecond pulse laser damage in thin films [C]. OSA Technical Digest, 2007, Paper FB1
- J. Jasapara, A. V. V. Nampoothiri, W. Rudolph *et al.*. Femtosecond laser pulse induced breakdown in dielectric thin films[J]. *Phys. Rev. B*, 2001, **63**(4): 045117

- Sun Haiyi, Jia Tianqing, Li Xiaoxi *et al.*. Ultrafast electronic dynamics during femtosecond laser-induced damage in omnidirectional reflector [J]. *Acta Physica Sinica*, 2005, **54**(10): 4736~4740  
孙海轶, 贾天卿, 李晓溪 等. 飞秒激光作用下全向高反膜破坏的激发过程[J]. 物理学报, 2005, **54**(10): 4736~4740
- Li Chengbin, Jia Tianqing, Sun Haiyi *et al.*. Femtosecond laser-induced damage and ultrafast dynamics in high reflection coating [J]. *Acta Optica Sinica*, 2006, **26**(3): 458~462  
李成斌, 贾天卿, 孙海轶 等. 飞秒激光对高反膜的破坏及其超快动力学过程[J]. 光学学报, 2006, **26**(3): 458~462
- Yuan Lei, Zhao Yuan'an, He Hongbo *et al.*. Femtosecond single pulse laser induced damage of single layer and high-reflective coating[J]. *Acta Photonica Sinica*, 2008, **37**(3): 417~420  
袁 磊, 赵元安, 贺洪波 等. 单脉冲飞秒脉冲激光对单层和高反光学薄膜的损伤[J]. 光子学报, 2008, **37**(3): 417~420
- Yang Zhenfeng, Yang Zhenjun, Zhang Shumin. Coparison of two kinds of pulse width of ultrashort hyperbolic secant pulses[J]. *Acta Photonica Sinica*, 2008, **37**(9): 1722~1725  
杨振峰, 杨振军, 张书敏. 超短双曲正割脉冲的两种脉冲宽度比较[J]. 光子学报, 2008, **37**(9): 1722~1725
- Miguel A. Porras. Ultrashort pulsed Gaussian light beams[J]. *Phys. Rev. E*, 1998, **58**(1): 1086~1093
- C. Rullière. Femtosecond Laser Pulses Principles and Experiments[M]. Beijing: Science Press, 2005. 29~35
- H. H. Li. Refractive index of ZnS, ZnSe, and ZnTe and its wavelength and temperature derivatives[J]. *J. Phys. Chem. Ref. Data*, 1984, **13**(1): 103~150
- Caihua Huang, Yiyu Xue, Zhilin Xia *et al.*. Damage induced by femtosecond laser in optical dielectric films [J]. *Chin. Opt. Lett.*, 2009, **7**(1): 49~51
- Tengfei Wu, Changhe Zhou, Enwen Dai *et al.*. Experimental study of the time-resolved reflectivity of chromium film[J]. *Chin. Opt. Lett.*, 2009, **7**(7): 653~655