

波长分离膜在 2 μm 飞秒激光作用下的损伤特性

刘 娜^{1,2} 王英剑¹ 井绪峰^{1,2} 周 明^{1,2} 王胭脂^{1,2} 崔 云¹ 晋云霞¹

(¹ 中国科学院上海光学精密机械研究所中国科学院强激光材料科学与技术重点实验室, 上海 201800)
² 中国科学院研究生院, 北京 100049)

摘要 用离子束溅射的方法在红外石英玻璃基底上制备了 Ta₂O₅/SiO₂ (1.064 μm 波长下高透, 2.128 μm 波长下高反) 波长分离膜, 利用飞秒激光系统 (输出波长为 2 μm , 脉宽为 80 fs) 测试了它的激光损伤情况, 同时用光学显微镜和扫描电镜观察了样品的损伤形貌, 根据不同能量作用下破斑面积与能量密度的关系拟合得到样品的损伤阈值。实验结果表明, 2 μm 飞秒激光作用在波长分离膜的损伤形貌为层状分布, 破斑边缘比较清晰, 没有热扩散和热传导现象, 属于本征损伤。利用基于导带电子数密度的理论模型, 并结合电场分布与带隙理论讨论了 2 μm 飞秒激光作用于光学薄膜的损伤机制, 确定了损伤起源于高低折射率界面处的窄带隙材料。

关键词 薄膜; 波长分离膜; 2 μm 飞秒激光; 损伤阈值; 损伤形貌

中图分类号 O484.5 文献标识码 A doi: 10.3788/CJL201138.0107003

2 μm Femtosecond-Laser Pulse Damage of the Wavelength Separation Multilayer

Liu Na^{1,2} Wang Yingjian¹ Jing Xufeng^{1,2} Zhou Ming^{1,2}

Wang Yanzhi^{1,2} Cui Yun¹ Jin Yunxia¹

(¹ Key Laboratory of Materials for High Power Laser, Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China)
² Graduate University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

Abstract Laser-induced damage test of the sample is performed in a femtosecond laser system with duration 80 fs, centre wavelength of 2 μm . A wavelength separation multilayer of Ta₂O₅/SiO₂ (HT at 1.064 μm & HR at 2.128 μm) serves as the target, which is prepared by ion beam sputtering (IBS) on infrared glass. Meanwhile, damage morphologies of the sample are observed by Leica optical microscopy and scanning electron microscope (SEM). The laser-induced damage thresholds (LIDT) of the sample is calculated through the relation between damage area and laser fluence. It is found that damage morphology of the sample is layered, clear edges are easily seen around the damage spot, and the damage crater has no obvious sign of heat diffusion and conductance which means the femtosecond LIDT is closely related to intrinsic characteristics of materials. A theoretical model based on conduction band electrons is applied to discuss the phenomenon. Combining with electric field distribution and band-gap of materials we consider that the damage of the sample under 2 μm femtosecond laser pulse irradiation will first occur in the narrow band-gap material at the interface between high-index and low-index layers.

Key words thin films; wavelength separation multilayer; 2 μm femtosecond laser; damage threshold; damage morphology

OCIS codes 310.6860; 140.3330; 320.2250

1 引 言

2 μm 激光位于水的强吸收带和人眼安全的波

长范围内, 被广泛应用于雷达、遥感、医疗诊断和治疗、光谱以及中红外激光光源^[1~5]。近年来, 随着激

收稿日期: 2010-05-07; 收到修改稿日期: 2010-05-21

作者简介: 刘 娜(1985—), 女, 硕士研究生, 主要从事 2 μm 光学薄膜方面的研究。E-mail: lntqyi@163.com

导师简介: 王英剑(1970—), 男, 博士, 研究员, 主要从事高功率激光光学薄膜方面的研究。

E-mail: huahan0001@yahoo.com.cn(通信联系人)

光技术的进步,激光系统越来越向超短超强的方向发展^[6~9]。光学薄膜是高能激光系统中不可缺少的基本元件,也是系统中最薄弱的环节之一^[10],因此,研究光学薄膜的抗激光损伤具有非常大的意义和实用价值。

近年来,人们对于 800 nm 飞秒激光与物质的相互作用进行了大量的实验和理论研究^[11~14],与纳秒脉冲激光基于杂质缺陷诱导薄膜损伤的机制不同,飞秒激光对薄膜的损伤主要基于材料的本征特性,杂质缺陷不起主导作用。

对于 2 μm 光学薄膜飞秒激光的损伤特性研究相关报道较少^[15,16]。本文利用 2 μm 波长的飞秒脉冲激光,采用 1000-on-1(激光重复频率为 1 kHz)测试方法,对红外石英玻璃基底上 Ta₂O₅/SiO₂(波长为 1.064 μm 时高透,波长为 2.128 μm 时高反)波长分离膜进行了损伤测试,对光学显微镜和扫描电镜下观察到的损伤形貌进行了分析,并利用导带电子数密度的理论模型计算了样品的电子数密度随时间的演化关系,结合材料带隙和场强分布分析了该波长分离膜在 2 μm 飞秒激光作用下的破坏源。

2 实 验

2.1 样品制备

采用红外石英玻璃作为基底,离子束溅射(IBS)镀制 Ta₂O₅/SiO₂ 波长分离膜。Ta₂O₅ 采用高纯度(质量分数为 99.999%)的 Ta 靶材溅射,本底真空 4.2×10^{-5} Pa,烘烤温度为 135 °C。膜系结构为 S|(1.6L2.15H 2.4L)(2H2L)11(0.15L0.6H3.2L)|Air,其中 S 代表红外石英玻璃基底材料,H 和 L 分别代表四分之一光学厚度的高折射率材料 Ta₂O₅ 和低折射率材料 SiO₂,参考波长 λ₀ 为 1.055 μm。图 1 为样品透射率曲线,在 1.064 μm 处,透射率为 98.3%,在 2.128 μm 处,反射率为 99.952%,样品的高反射带

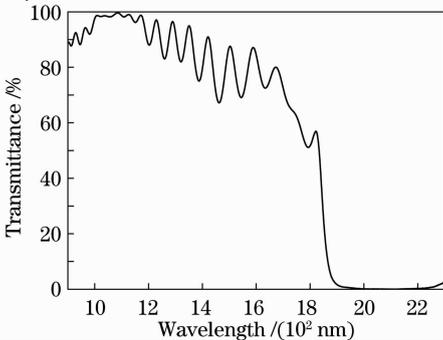


图 1 样品透射率曲线

Fig. 1 Transmittance spectrum of the sample

宽为 1.972~2.200 μm,对 2 μm 波长激光的反射率高达 99.86%。

2.2 飞秒激光损伤实验装置及参数

图 2 为 2 μm 飞秒激光损伤测试原理图。掺钛的蓝宝石飞秒激光系统输出激光的中心波长为 0.8 μm,脉宽 40 fs,重复频率 1 kHz,最大输出能量 6 mJ。经过光学参量放大器(OPA)产生 2 μm 波长的飞秒脉冲激光,脉宽为 80 fs,重复频率 1 kHz,脉冲最大能量 0.8 mJ。2 μm 激光经 15 cm 透镜聚焦于样品靶面,测量得知,靶面的光束强度分布符合高斯强度分布,靶面聚焦的光斑直径约为 194 μm。实验中通过增减衰减片实现激光脉冲能量的调整,并利用激光能量计实时测量脉冲能量。根据 ISO-11254-2^[17]光学薄膜测试标准,采用 1000-on-1 方法进行光学薄膜的损伤测试,入射光垂直于样品表面,利用 Leica 光学显微镜和扫描电子显微镜(SEM)观察样品表面损伤形貌。

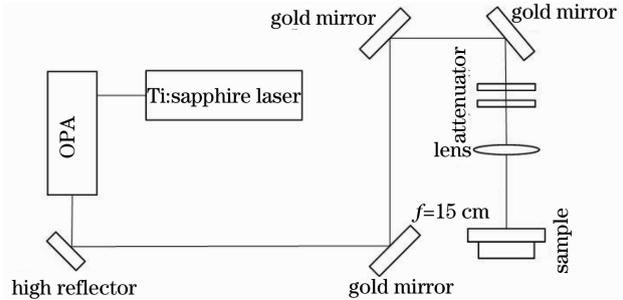


图 2 激光损伤实验装置原理图

Fig. 2 Experimental setup for the laser induced damage measurement

3 实验结果和讨论

3.1 损伤阈值

对于高斯激光入射光束,激光强度 $F(x)$ 分布符合关系式

$$F(x) = F_0 \exp(-2x^2/\omega^2), \quad (1)$$

式中 F_0 为峰值功率, ω 为激光束的束腰半径 ($1/e^2$), x 代表光束与光轴间的距离。损伤阈值 $F_{th} = F(x = D/2)$,用 Leica 显微镜测量样品的损伤破斑直径 D ,这样(1)式可写为

$$D^2 = 2\omega^2 \ln(F_0/F_{th}). \quad (2)$$

由(2)式中 D^2 与 $\ln F_0$ 之间的线性关系,可知直线在水平轴上的截距即为样品的损伤阈值。如图 3 所示,拟合得到 Ta₂O₅/SiO₂ 波长分离膜在 2 μm 飞秒脉冲激光辐照下的激光损伤阈值为 $F_{th} = 0.171 \text{ J/cm}^2$ 。

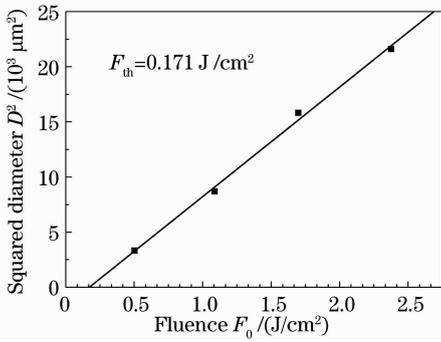


图 3 激光烧蚀斑面积与脉冲能量的依赖关系

Fig. 3 Squared diameters of the ablation spots as a function of laser fluence

3.2 损伤形貌

图 4 为样品在 Leica 光学显微镜下观察到的不同能量辐照下的损伤形貌图,可以看出在 $2\ \mu\text{m}$ 波长飞秒激光作用下,脉冲能量越大,破斑面积越大,

特别是破坏形貌中心点的损伤最为严重,这个中心即为高斯激光光束的峰值处,也即能量分布最集中的地方,这说明薄膜样品内激光场分布越强的地方,越容易受到破坏。此外,损伤呈现平底凹坑,底部光滑、规则。当激光能量很大时,数层膜会同时剥落;当激光能量较小时,膜是一层一层被烧掉的。同时破斑边缘比较清晰,没有明显的热扩散和热传导。图 5 为辐照脉冲峰值为 $3.39\ \text{J}/\text{cm}^2$ 时,扫描电镜观察到的样品损伤形貌,从图 5(a)可以看出薄膜的损伤形貌以中心点损伤最为严重,从细节图[图 5(b)]可以看出损伤形貌呈明显的层状分布,边缘清晰,损伤坑的周围没有由于热应力导致的裂纹,而是按照激光场能量分布的强弱表现出不同程度的离化特征。以上结果表明, $2\ \mu\text{m}$ 飞秒激光作用多层光学薄膜的破坏是一种本征破坏。

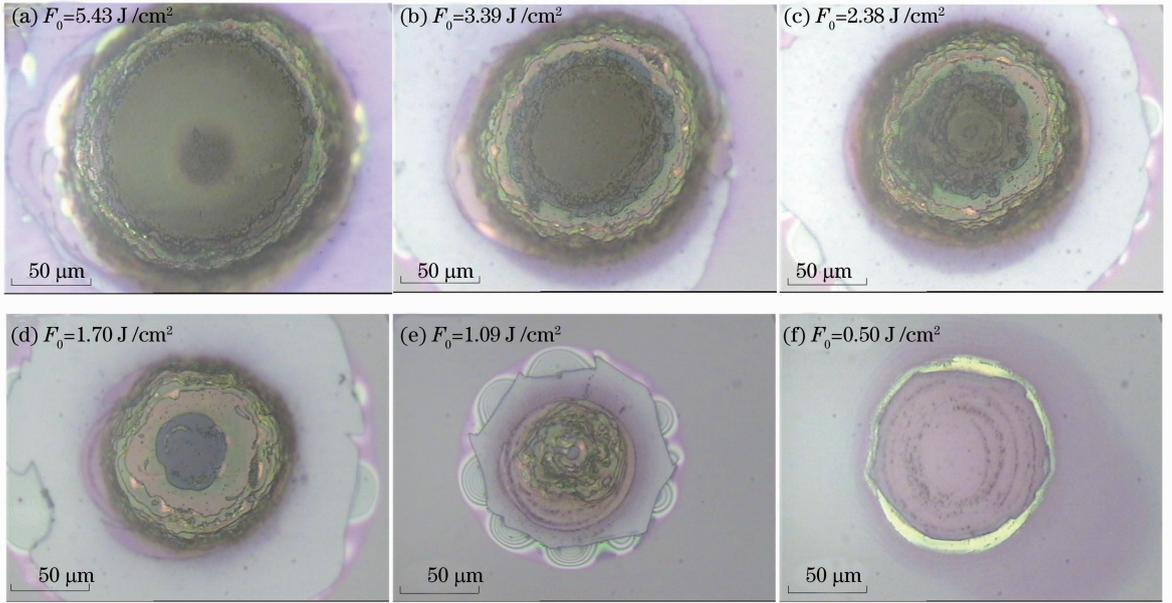


图 4 样品在不同激光能量密度下的损伤形貌的光学显微镜图

Fig. 4 Optical microscope images of laser-induced damage sites under different influences on the sample

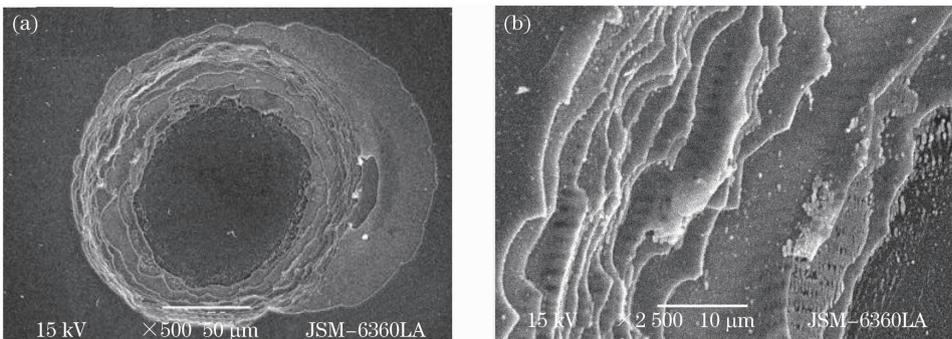


图 5 样品损伤形貌的扫描电镜图。(a)全貌图,(b)细节图

Fig. 5 SEM images of a laser-induced damage site on the sample. (a) close-up view, (b) detail of (a)

图 6 为膜系设计软件计算的 $\text{Ta}_2\text{O}_5/\text{SiO}_2$ 波长分离膜在 $2\ \mu\text{m}$ 波长处的场分布情况。可以看出,场分布最大值(3.25)出现在 SiO_2 膜层内,在 Ta_2O_5 与 SiO_2 界面处的最大场强为 2.0。

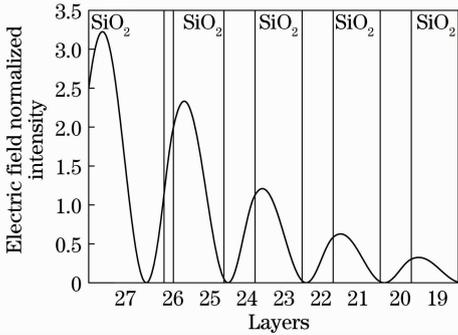


图 6 $2\ \mu\text{m}$ 处 $\text{Ta}_2\text{O}_5/\text{SiO}_2$ 膜内的归一化场强分布
Fig. 6 Normalized laser intensity profiles for $\text{Ta}_2\text{O}_5/\text{SiO}_2$ coating at the wavelength of $2\ \mu\text{m}$

3.3 理论计算

分析飞秒脉冲激光辐照光学薄膜的损伤都是从导带自由电子数密度出发,一般认为,飞秒脉冲激光作用下光学薄膜的损伤为电子从价带到导带的非线性激发过程^[18,19],主要包括光致离化和碰撞离化,同时考虑了自由电子从导带到价带的衰变过程。电子数密度随时间的演化可表示为

$$\frac{\partial n_e(t)}{\partial t} = W_{\text{multpt}}[I(t)] + W_{\text{impact}}[I(t)] \cdot n_e(t) - W_{\text{rel}}[n(t), t], \quad (3)$$

式中 $n_e(t)$ 为导带自由电子数。

根据 Keldysh 理论^[20],在低场强高频率的实验条件下,即 $\gamma = \omega \sqrt{m^* E_g} / (eE) \gg 1$ 时,其中 E_g 为材料的带隙, E 为激光的电场强度分布,光致离化以多光子吸收为主,多光子吸收速率 $W_{\text{multpt}}[I(t)]$ 可计算为

$$W_{\text{multpt}}[I(t)] = \frac{2\omega}{9\pi} \left(\frac{m^* \omega}{\hbar} \right)^{3/2} \times \Phi \left[\sqrt{2 \langle E'_g / (\hbar\omega) + 1 \rangle - 2E'_g / (\hbar\omega)} \right] \times \exp \left[2 \langle E'_g / (\hbar\omega) + 1 \rangle \left(1 - \frac{1}{4\gamma^2} \right) \right] \left(\frac{1}{16\gamma^2} \right)^{\langle E'_g / (\hbar\omega) + 1 \rangle}, \quad (4)$$

式中 γ 为激光频率与隧穿频率的比值, ω 为入射激光频率, $m^* = m_e m_h / (m_e + m_h)$ 为电子空穴对的约化有效质量,其中 m_e 和 m_h 分别为电子和空穴的有效质量, $\langle E'_g / (\hbar\omega) + 1 \rangle$ 表示从价带到导带激发一个电子所吸收的光子数, $E'_g = E_g \{1 + [1/(2\gamma^2)]\}$ 表示在激光照射下材料的有效带隙,函数 $\langle \rangle$ 表示对变量取整, Φ 为

Dawson 积分函数 $\Phi(z) = \exp(-z^2) \int_0^z \exp(y^2) dy$ 。

碰撞离化速率 $W_{\text{impact}}[I(t)]$ 可以根据 Drude 模型计算^[21,22]

$$W_{\text{impact}}[I(t)] = \frac{\sigma}{E_g} \cdot I(t), \quad (5)$$

式中 $\sigma = e^2 \tau / [c \epsilon_0 n_0 m^* (1 + \omega^2 \tau^2)]$ 为吸收截面, $\tau = \frac{16\pi \epsilon_0^2 \sqrt{m^*} (0.1 E_g)^3}{\sqrt{2} e^4 n_c(t)}$ 为电子相互碰撞时间, e 为电子电荷, c 为真空光速, ϵ_0 为真空介电常数, n_0 为材料折射率,高斯光束入射光强分布可表示为 $I(t) = I_0 \exp[-4 \ln(2)(t/\tau_p)^2]$, I_0 和 τ_p 分别是高斯光束的峰值强度和脉宽。

由于自陷激发过程,导带自由电子很可能会重新回到价带,有研究表明,弛豫时间仅需要 $100\ \text{fs}$ ^[23],这就导致了多光子吸收和碰撞离化产生的导带自由电子数密度的衰减,其衰减速率可表示为

$$W_{\text{rel}} = \frac{n_e(t)}{\tau_r}, \quad (6)$$

式中 τ_r 为电子有效弛豫时间,一般取 $100\ \text{fs}$ 。

理论计算中所需的参数如表 1 所示,其中 m^* , m_e , m_h 参量值来源于文献[24], m_0 为自由电子质量。根据文献[21]中给出的判定标准公式,通过计算得到 $2\ \mu\text{m}$ 波长处,当导带电子数达到临界值 $n_{\text{cr}} = 1.7 \times 10^{20}\ \text{cm}^{-3}$ 时,薄膜发生永久性破坏。图 7 给出了 $2\ \mu\text{m}$ 波长处 SiO_2 膜层(场强 3.25)和 Ta_2O_5 膜层(场强 2.0)导带电子数随时间的演化关系。从图中可以看出,在相同的激光条件下,当 Ta_2O_5 膜层内导带电子数达到临界值($1.7 \times 10^{20}\ \text{cm}^{-3}$)时, SiO_2 膜层内的导带电子数约低于 $10^{18}\ \text{cm}^{-3}$,远远低于薄膜发生破坏的临界值,也就是说,波长分离膜的破坏首先发生在高低折射率界面处的窄带隙 Ta_2O_5 材料膜层内。即使 SiO_2 膜层内的场强大于 Ta_2O_5 膜层内的场强,但并不能抵消由 Ta_2O_5 窄带隙带来的阈值的减小。因此,断定对于 $2\ \mu\text{m}$ 飞秒激光作用下的波

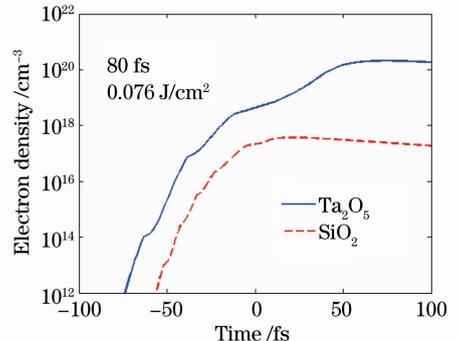


图 7 膜层内的电子数密度随时间的演化关系
Fig. 7 Evolution of conduction-band electron density

长分离膜, 损伤首先发生在高低折射率界面处, 并且损伤阈值主要由窄带隙材料决定。

表 1 理论计算中用到的薄膜材料的参量值

Table 1 Parameters of coatings used in theoretical calculation

Material	E_g/eV	n_0	E	$m_e = m_b(m_0)$	$m^*(m_0)$
Ta ₂ O ₅	4.6	2.01	2.0	1.0	0.635
SiO ₂	7.8	1.44	3.25	1.0	0.635

4 结 论

利用 2 μm 多脉冲飞秒激光对 Ta₂O₅/SiO₂ 波长分离膜进行了损伤测试, 拟合得到样品的损伤阈值为 $F_{\text{th}} = 0.171 \text{ J}/\text{cm}^2$ 。结合光学显微镜和扫描电子显微镜的损伤形貌分析发现, 2 μm 飞秒激光作用下多层薄膜的损伤形貌呈现层状分布, 其破坏是一种本征破坏。利用导带电子数密度的理论模型并结合场分布与带隙理论分析了样品的损伤破坏源。结果表明, 2 μm 飞秒激光作用下的波长分离膜, 即使 SiO₂ 膜层内的场强大于 Ta₂O₅ 膜层内的场强, 但不能抵消由 Ta₂O₅ 窄带隙带来的阈值的减小, 损伤首先发生在高低折射率界面处的窄带隙材料中。

参 考 文 献

- 1 J. I. Mackenzie, S. C. Mitchell, R. J. Beach *et al.*. 15 W diode-pumped Tm:YAG wavelength laser at 2 μm [J]. *IEEE J. Electron. Lett.*, 2001, **37**(14): 898~899
- 2 Ashraf F. El-Sherif, Terence A. King. Analysis and optimization of Q-switched operation of a Tm³⁺-doped silica fiber laser operating at 2 μm [J]. *IEEE J. Quantum Electron.*, 2003, **39**(6): 759~765
- 3 Yu Chunlei, He Dongbing, Wang Guonian *et al.*. The effects of Yb³⁺/Tm³⁺/Ho³⁺ doping concentration on 2 μm wavelength luminescence in germanium glasses [J]. *Acta Optica Sinica*, 2009, **29**(11): 3143~3147
于春雷, 何冬兵, 汪国年等. 镨酸盐玻璃中 Yb³⁺/Tm³⁺/Ho³⁺ 掺杂浓度对 2 μm 发光的影响 [J]. *光学学报*, 2009, **29**(11): 3143~3147
- 4 Wang Zhenguo, Ju Youlun, Li Yufeng *et al.*. Injection-locking 2 μm solid-state laser [J]. *Chinese J. Lasers*, 2008, **35**(s1): 17~20
王振国, 鞠有伦, 李玉峰等. 2 μm 固体激光器的注入锁定 [J]. *中国激光*, 2008, **35**(s1): 17~20
- 5 Zhu Yachen, Lan Ge, Li Tong *et al.*. 2 μm KTiOAsO₄ optical parametric oscillator [J]. *Acta Optica Sinica*, 2007, **27**(11): 2059~2063
朱雅琛, 兰 戈, 李 彤等. 脉冲式 2 μm KTiOAsO₄ 光参变振荡器 [J]. *光学学报*, 2007, **27**(11): 2059~2063
- 6 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
- 7 Q. Wang, J. Geng, T. Luo *et al.*. Mode-locked 2 μm laser with

- highly thulium-doped silicate fiber [J]. *Opt. Lett.*, 2009, **34**(23): 3616~3618
- 8 Li Yuhua, Ma Fajun, Dai Nengli *et al.*. Ultra-short pulsed laser-induced damage in inorganic silicon materials [J]. *Chinese J. Lasers*, 2007, **34**(7): 1009~1013
李玉华, 马法君, 戴能利等. 超短脉冲激光对无机硅材料的损伤 [J]. *中国激光*, 2007, **34**(7): 1009~1013
- 9 Zhou Qinling, Liu Liying, Xu Lei *et al.*. Femtosecond laser induced darkening and refractive index change in K9 glass [J]. *Chinese J. Lasers*, 2005, **32**(1): 119~122
周秦岭, 刘丽英, 徐 雷等. 飞秒激光辐照 K9 玻璃引起的暗化和折射率变化 [J]. *中国激光*, 2005, **32**(1): 119~122
- 10 H. A. Abdeldayem, E. Dowdye. Contamination and radiation effects on spaceflight laser systems [C]. *SPIE*, 2005, **5897**: 589705
- 11 J. Bonse, S. Baudach, W. Kautek *et al.*. Femtosecond laser damage of a high reflecting mirror [J]. *Thin Solid Films*, 2002, **408**(1-2): 297~301
- 12 M. Mero, J. Liu, W. Rudolph. Scaling laws of femtosecond laser pulse induced breakdown in oxide films [J]. *Phys. Rev. B*, 2005, **71**(11): 115109
- 13 J. Jasapara, A. V. V. Nampoothiri, W. Rudolph. Femtosecond laser pulse induced breakdown in dielectric thin films [J]. *Phys. Rev. B*, 2001, **63**(4): 045117
- 14 Lei Yuan, Yuanan Zhao, Guangqiang Shang *et al.*. Comparison of femtosecond and nanosecond laser-induced damage in HfO₂ single-layer film and HfO₂-SiO₂ high reflector [J]. *J. Opt. Soc. Am. B*, 2007, **24**(3): 538~543
- 15 Helene Krol, Laurent Gallais, Jean-Yves Natoli *et al.*. Development of 2- μm laser damage test facility [C]. *SPIE*, 2005, **5991**: 599129
- 16 Jin Yunxia, Fan Ruiying, Shao Jianda *et al.*. Optical coatings on laser crystal emitting at 2 μm wavelength region [J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2006, **43**(10): 59~63
晋云霞, 范瑞瑛, 邵建达等. 2 μm 波段激光薄膜的研制 [J]. *激光与光电子学进展*, 2006, **43**(10): 59~63
- 17 Test methods for laser induced damage threshold of optical surface. Part 2: S on 1-test, ISO/DIS 11254[S]. 1997
- 18 B. C. Stuart, M. D. Feit, S. Herman *et al.*. Nanosecond-to-femtosecond laser-induced breakdown in dielectrics [J]. *Phys. Rev. B*, 1996, **53**(4): 1749~1761
- 19 S. Guizard, A. Semerok, J. Gaudin *et al.*. Femtosecond laser ablation of transparent dielectrics: measurement and modelisation of crater profiles [J]. *Appl. Surf. Sci.*, 2002, **186**(1-4): 364~368
- 20 L. V. Keldysh. Ionization in the field of a strong electromagnetic wave [J]. *Sov. Phys. JETP*, 1965, **20**(5): 1307~1314
- 21 K. Starke, D. Ristau, H. Welling *et al.*. Investigations in the nonlinear behavior of dielectrics by using ultrashort pulses [C]. *SPIE*, 2004, **5273**: 501~514
- 22 Marco Jupé, Lars Jensen, Andrius Melninkaitis *et al.*. Calculations and experimental demonstration of multi-photon absorption governing fs laser-induced damage in titania [J]. *Opt. Express*, 2009, **17**(15): 12269~12278
- 23 Ming Li, Saipriya Menon, John P. Nibarger *et al.*. Ultrafast electron dynamics in femtosecond optical breakdown of dielectrics [J]. *Phys. Rev. Lett.*, 1999, **82**(11): 2394~2397
- 24 L. Sudrie, A. Couairon, M. Franco *et al.*. Femtosecond laser-induced damage and filamentary propagation in fused silica [J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2002, **89**(18): 186601