

纳秒激光和飞秒激光对透明电光陶瓷表面损伤研究

张学娇^{1,2} 叶青¹ 瞿荣辉¹ 蔡海文¹

(¹ 中国科学院上海光学精密机械研究所 上海市全固态激光器与应用技术重点实验室, 上海 201800)
² 中国科学院大学, 北京 100049)

摘要 通过对纳秒和飞秒高功率激光脉冲辐照下透明电光陶瓷掺镧钛酸铅(PLZT)的表面损伤形貌和物理形态的分析,调整辐照脉冲能量在线观测表面损伤几率,研究了不同能量等级的纳秒和飞秒高功率高斯光束辐照同一电光陶瓷表面的激光损伤,测得纳秒激光损伤阈值约为 485 MW/cm²。还分析了辐照损伤斑直径随辐照能量的变化,辐照损伤的损伤深度随损伤直径变化,以及材料中的缺陷引起的损伤形貌。对比分析了纳秒激光和飞秒激光辐照下 PLZT 电光陶瓷表面损伤形貌的不同,并给出了一些可能的理论解释。

关键词 材料;透明电光陶瓷;损伤阈值;损伤形貌

中图分类号 TN24 文献标识码 A doi: 10.3788/CJL201441.0706002

Research on Damage on Transparent Electro-Optic Ceramic Surface Induced by Nanosecond and Femtosecond Pulses

Zhang Xuejiao^{1,2} Ye Qing¹ Qu Ronghui¹ Cai Haiwen¹

(¹ Shanghai Key Laboratory of all Solid-State Laser and Applied Techniques, Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China
² University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

Abstract Damage morphologies on lanthanum doped lead zirconate titanate (PLZT) surface induced by nanosecond and femtosecond pulses irradiate. Different levels of the high power nanosecond and femtosecond pulses are irradiation on the surface of PLZT, where the pulses are near Gaussian beams. The damage probability is observed on line and the suitable powers of the pulses are adjusted. The nanosecond pulse induced damage threshold of PLZT is 485 MW/cm². The variations of the damage spot diameters versus the energy irradiation are analyzed. The variation of the damage depth versus the damage diameters and the damage morphology induced in the defect in the ceramic are also detected and recorded. The damage morphologies induced by nanosecond and femtosecond pulses are also contrasted. And some possible explanations due to the difference are given.

Key words materials; transparent electro-optic ceramic; damage threshold; damage morphology

OCIS codes 160.2100; 260.1180; 260.5740

1 引言

近年来,基于铌酸锂晶体的电光器件已经广泛地应用在工业技术中并取得了巨大的成功^[1],但铌酸锂晶体具有低一次电光系数、低激光损伤阈值和复杂的晶轴选择等特点^[2],使它们不适合在高功率激光系统中获得应用。磷酸二氢钾(KDP)晶体^[3]是一种理想的高功率激光系统的调制器件,损伤阈值高(小于 600

MW/cm²),但是容易潮解,使系统对周围的环境条件要求较高。透明电光陶瓷掺镧钛酸铅(PLZT)和铌镁酸铅钛酸铅(PMNT)^[4-11]是另外一种选择,其电光系数在室温下为铌酸锂的 10 倍和近百倍,并且具有高透射率(镀增透膜后每毫米的透射率大于 95%)、宽的光谱响应特性(约 400~10000 nm)、快速响应时间(约 100 ns)在光通信领域已经得到了广泛的应用。

收稿日期: 2013-11-15; 收到修改稿日期: 2014-01-13

基金项目: 国家自然科学基金(61137004)、上海市自然科学基金(11JC1413500)、中国科学院无机功能材料与器件重点实验室开放课题(KLIFMD201206)

作者简介: 张学娇(1987—),女,博士研究生,主要从事光电子器件方面的研究。E-mail: zxjhope@126.com

导师简介: 瞿荣辉(1972—),男,博士,研究员,主要从事光纤传感、光电子器件等方面的研究。E-mail: rhqu@siom.ac.cn

而更由于在大尺寸及成熟的热压工艺等方面的优势,使其在高功率激光系统中也有着广泛的应用前景^[12]。目前对于 PLZT 和 PMNT 电光透明陶瓷的性质如电光系数、热光系数、透射率、电光响应等已有了一系列的研究,然而对于其损伤阈值,没有实际测试报道。

Stuart 等^[13]以不同的辐照能量对熔融硅和氟化钙的损伤,提出了一个激光辐照损伤机制的模型:多光电离、焦耳热以及离子碰撞。损伤过程为:1) 脉冲光激发材料中的电子在激光的辐射下产生多光子电离,迅速产生很多自由电子并引起更多的电离和碰撞而发生雪崩效应;2) 导带中的电子从光场中获得能量远比将能量传给晶格的速度快,所以当光脉冲结束后才会产生损伤。目前,国际和国内对损伤阈值的测量方式和材料损伤的表征仍是研究的热点^[14]。由于两类电光陶瓷的结构相同,研究了以不

同能量等级的 1064 nm 波段的高功率高斯光束激光辐照陶瓷表面来测量相应波长下 PLZT 的损伤阈值、损伤形态及损伤机制,对 PLZT 等透明电光陶瓷在高功率激光系统中的应用具有重要意义。

2 材料准备及测量

利用 Bruker Nano Inc 公司生产的 Dimension 3100 原子力显微镜(AFM)观测 PLZT 材料抛光后的表面起伏情况来确定抛光的标准。材料尺寸为 $\Phi 50 \text{ mm} \times 5 \text{ mm}$ 。

随机选择几处表面进行材料表面粗糙度的测试,如图 1 所示。选用起伏尺度范围为 10 nm,图 1(b)为表面 45°方向的立体图示,图 1(c)为平面图。由图中高度分布以及立体图可知,除去个别瑕疵点外,材料表面的起伏度均在 10 nm 以内,满足损伤的光学抛光度要求。

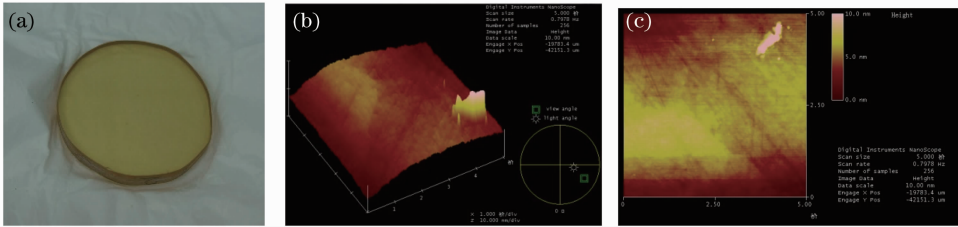


图 1 PLZT 样品及表面 AFM

Fig. 1 Sample and atomic force microscope (AFM) surface of lanthanum doped lead zirconate titanate (PLZT)

图 2(a)为双波长激光损伤阈值测量装置示意图^[15]。选取 1064 nm 的激光作为辐照源。脉冲 Nd:YAG激光器为总光源,用光探测器和示波器测得输出波长为 1064 nm 激光的半峰全宽为 12 ns,辐照在材料上的光斑面积相比于聚焦点的面积略小,

用刀口法测量,1064 nm 光束的 $1/e^2$ 聚焦点在 x 轴和 y 轴的直径分别为 $425 \mu\text{m}$ 和 $160 \mu\text{m}$ 。图 2(b)为焦平面处的光束图像,可以看出此脉冲光可近似为高斯光束,用一个装有放大器装置的 CCD 在线检测光束的变化。

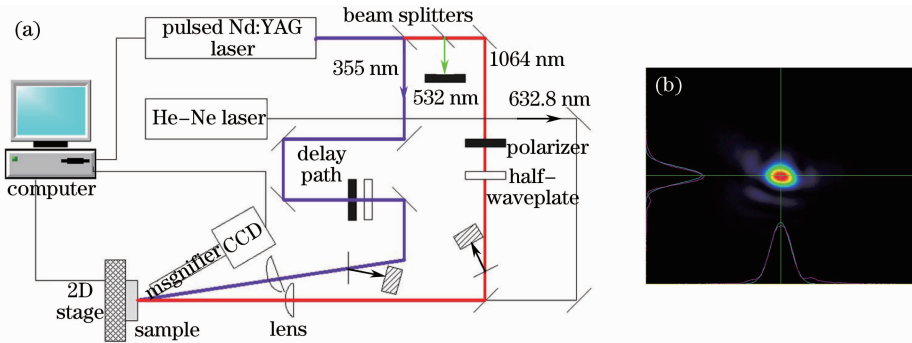


图 2 损伤测量系统及激光束腰位置能量图

Fig. 2 Damage test system and energy distribution at laser beam waist

进行损伤时,在 PLZT 表面按照一定的能量等级平行辐照损伤,每个能量等级辐照 20 个点,辐照 9 个能量等级。辐照能量对应的表面损伤情况使用

Keyence Corporation 公司生产的型号为 VHX-700F 的显微镜,以一定角度从上表面观测的结果如图 3 所示,放大倍数为 50 倍。

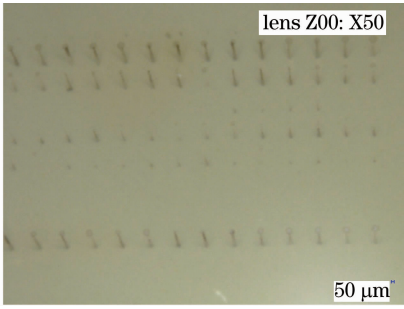


图 3 各能量等级损伤形貌

Fig. 3 Damage morphologies at different energy levels

3 实验测量及结果分析

3.1 激光损伤阈值的确定

总结各能量等级诱导的 PLZT 表面的损伤几率如表 1 所示。将得到相应功率密度下的 PLZT 表面的损伤几率进行线性拟合。如图 4 可知,由拟合直线和功率密度轴的交点得出 PLZT 在 1064 nm 波段下的激光损伤阈值为 485 MW/cm²。

表 1 各辐照能量等级的损伤情况

Table 1 Damage probability of PLZT at levels of energy

Energy level/(J/cm ²)	Damage probability / %
20.8	100
17.6	100
14.0	80
10.7	75
8.5	45
7.2	20
5.7	0
3.6	0
2.2	0

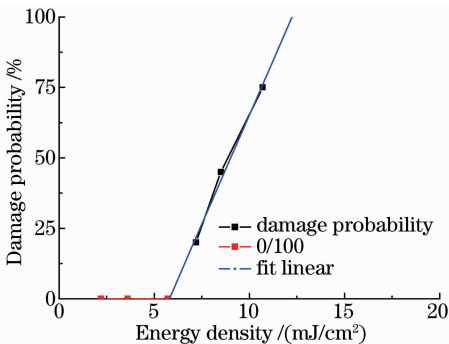


图 4 PLZT 激光损伤阈值

Fig. 4 Threshold of laser induced damage of PLZT

3.2 各能量等级的损伤状态

使用 Keyence Corporation 公司生产的高倍显微镜型号为 VK-X210 来观测和记录损伤点的形貌,并用其自带的测量软件测量损伤斑的大小及深度特征。

图 5(a)和(b)为能量密度为 20.8 J/cm²,放大 1000 倍下显微镜观测的损伤样貌,测得损伤半径约为 170.5 μm,图 5(c)和(d)为能量密度为 14.0 J/cm²的激光辐照,(c)为放大 1000 倍,(d)为放大 3000 倍的损伤斑图样。测得损伤半径约为 129.3 μm,图 5(e)为能量密度为 8.5 J/cm²,放大 3000 倍下显微镜观测的损伤样貌,测得损伤半径约为 81.8 μm,损伤深度约为 129 nm;图 5(f)为能量密度为 7.2 J/cm²,放大 3000 倍下显微镜观测的损伤样貌,测得损伤半径约为 41.5 μm,坑深度约为 108 nm。

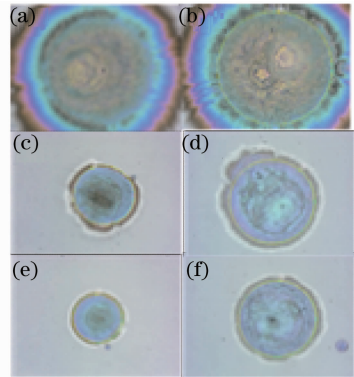


图 5 纳秒激光器辐照 PLZT 表面的损伤斑情况

Fig. 5 Damage morphology of PLZT induced by nanosecond (ns) pulses

若材料上存在缺陷,如图 6 所示有一斑点 A,这个缺陷所造成的损伤深度比较大,约为 1 μm。由于强光下损伤斑较大,测量尺寸较大,损伤造成的深度虽不明显,还是能看到在光斑中间高度略微降低的趋势。

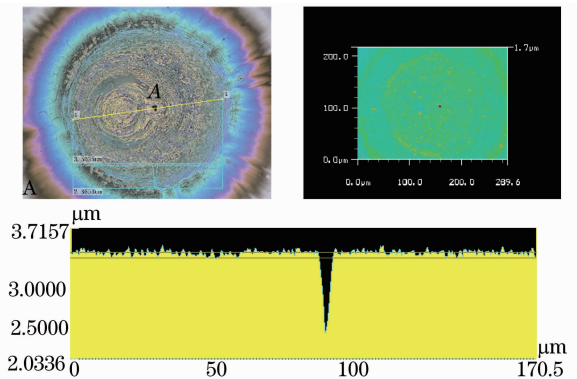


图 6 损伤形貌及缺陷损伤

Fig. 6 Damage and defect morphology

图 7(a)为能量密度为 8.5 J/cm²,放大 3000 倍下显微镜观测的损伤样貌,测得损伤半径约为 81.8 μm,损伤深度约为 129 nm;图 7(b)为能量密度为 7.2 J/cm²,放大 3000 倍下显微镜观测的损伤样貌,测得损伤半径约为 41.5 μm,坑深度约为 108 nm。

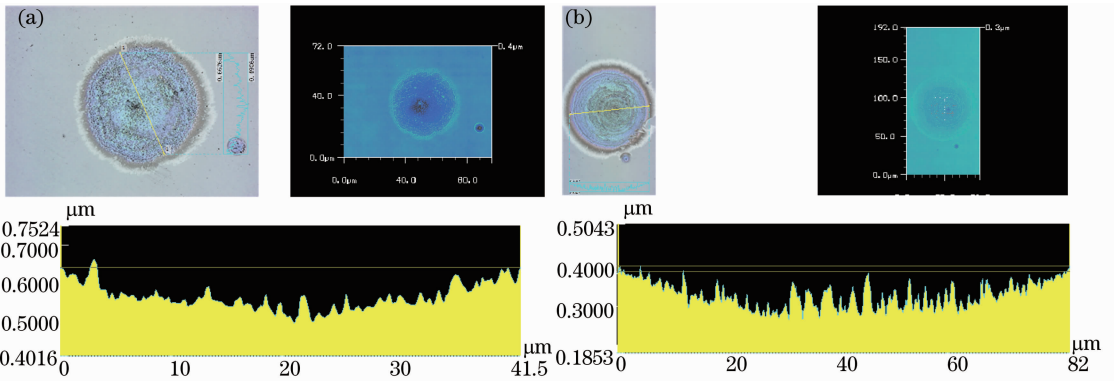


图 7 损伤深度在损伤直径上的变化

Fig. 7 Damage depths along damage diameter

选取一较小的损伤点用 AFM 观测辐照在 PLZT 表面的坑的形状。用 AFM 精确测量结果如图 8 所示。损伤直径约为 200 nm 时, 损伤深度仍有

90 nm。如图 8(b) 所示, 损伤坑沿直径方向深度成类高斯变化, 基本与光斑能量分布一致。

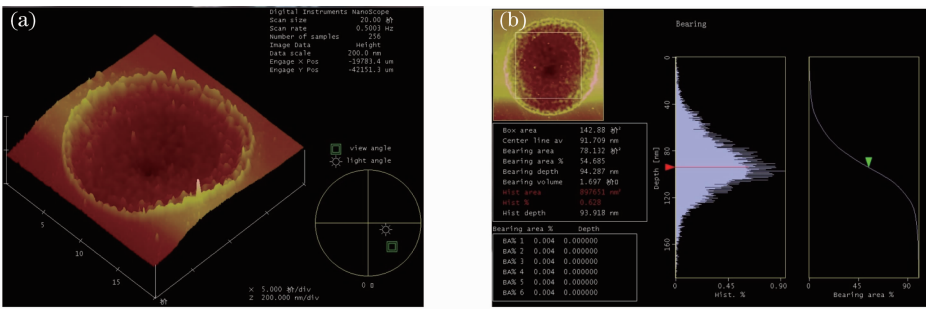


图 8 AFM 下损伤坑的立体形貌

Fig. 8 AFM of damage stereoscopic morphology

如图 9 所示为不同辐照能量密度下引起的不同损伤直径和对应损伤斑深度的关系图, 由图可知, 不同损伤深度随损伤斑直径成线性趋势增加, 但增加量较小。

较少依赖于物质中的缺陷, 因此飞秒激光辐照具有更好的确定性^[13]。

采用波长为 800 nm, 重复频率为 1 kHz, 脉宽约为 40 fs, 聚焦后光斑直径为几百微米的 Ti:sapphire 飞秒激光器^[16] 对同一材料表面进行辐照, 从上至下辐照功率分别为 4、0.8、2 W。每个损伤斑经过多于千次脉冲的辐照, 辐照后的表面损伤使用 Keyence Corporation 公司生产的型号为 VHX-700F 的显微

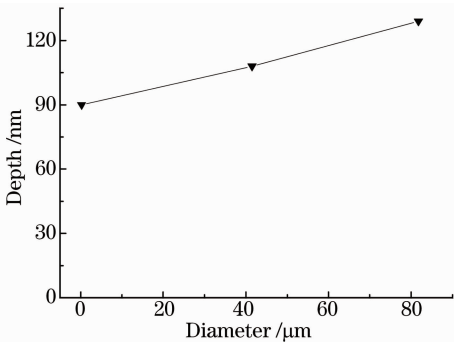


图 9 不同损伤直径的损伤斑深度

Fig. 9 Damage depths versus damage diameter

4 飞秒激光测量 PLZT 表面损伤

与纳秒脉冲激光相比, 由于飞秒激光脉冲前沿导致的光电离为激光脉冲后续部分产生的雪崩电离提供了种子电子, 使得飞秒脉冲激光对物质的作用

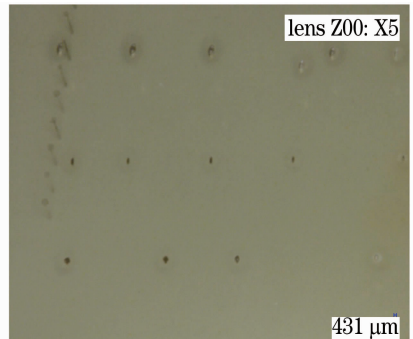


图 10 飞秒激光诱导 PLZT 表面损伤

Fig. 10 Damage morphology of PLZT induced by femtosecond pulses

镜,以一定角度从上表面观测的结果如图 10 所示,放大倍数为 50 倍。对比图 3 纳秒损伤的结果,飞秒激光损伤为表面损伤,体内损伤较少。而纳秒激光脉冲辐照时会引起一定程度的体内热损伤而导致物理形貌的改变,但损伤较快消失并不会形成损伤坑。用 AFM 和高倍显微镜测量纳秒损伤时,探测体内损伤坑的深度。

图 11(a)所示为脉冲功率为 4 mW,放大 400 倍下显微镜观测的损伤样貌,因为有多次脉冲辐照,损

伤斑为多个椭圆的叠加,测得损伤坑表面短边长度为 122 μm ,长边为 345 μm ;底部椭圆的短边长度为 40 μm ,长边为 96 μm ;深度为 50 μm 。图 11(b)为脉冲功率为 2 W,放大 400 倍下显微镜观测的损伤样貌,测得损伤坑表面短边长度为 328 μm ,长边为 632 μm ;底部椭圆的短边长度为 97 μm ,长边为 149 μm ;深度为 43 μm 。与纳秒脉冲辐照相比,同样的,辐照能量的增加对损伤深度的影响并不明显。

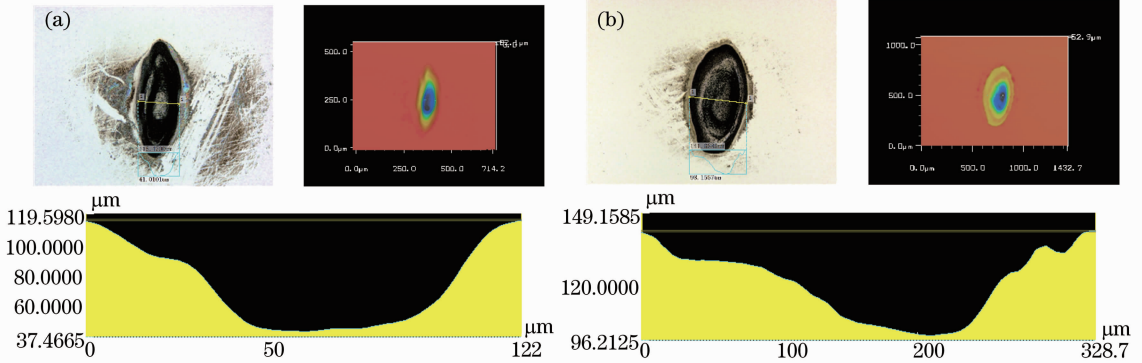


图 11 飞秒激光脉冲辐照多次 PLZT 表面损伤特征

Fig. 11 Damage characters of PLZT induced by fs pulses

研究分析了透明陶瓷中的晶界及气孔对光透射的影响。采用两步烧结法,可以消除残余气孔,提高致密度及透射率,获得纯相的钙钛矿结构。La 掺杂有利于提高陶瓷的光学透射率,尤其在可见光波段,La 掺杂摩尔分数达到 10% 后会导致焦绿石相而影响透射率,所以 La 掺杂必须控制适当比例。电畴尺寸是引起透射率和电光性能差异的重要原因,也可以通过调整 PT、La 的成分和烧结工艺调控。因此接下来可以通过调控 PT、La 的成分比例和烧结工艺来得到良好的电光性能并同时使陶瓷的损伤阈值得到进一步提高。

5 结 论

研究了高功率激光辐照下 PLZT 的表面损伤。以不同能量等级高功率纳秒和飞秒激光辐照 PLZT 表面,测得纳秒激光诱导 PLZT 的损伤阈值为 485 MW/cm^2 。测量得出辐照损伤的损伤深度随损伤直径呈类高斯型变化;随着辐照能量的增加,损伤半径增加,并且增加率慢慢减小;损伤深度和损伤面积成线性趋势增加。由于纳秒辐照更容易产生缺陷引起的热损伤,相比之下,飞秒激光辐照引起的损伤更趋于表面。接下来将调控 PT、La 的成分比例和烧结工艺来得到良好的电光性能并同时使陶瓷的损

伤阈值得到进一步提高。

致谢 感谢上海硅酸盐所李国荣老师、何夕云老师和上海光学精密机械研究所赵元安老师!

参 考 文 献

- Hideki Hirori, Koichiro Tanaka. Single-cycle terahertz pulses with amplitudes exceeding 1 MV/cm generated by optical rectification in LiNbO_3 and applications to nonlinear optics[C]. SPIE, 2012, 8240: 82400B.
- Zhou Yujie, Feng Liqun, Sun Junqiang. Etching characteristics of MgO doped lithium niobate in inductively coupled plasma[J]. Chinese J Lasers, 2012, 39(9): 0906001. 周钰杰, 冯力群, 孙 军. 强掺镁铌酸锂晶体的 ICP 刻蚀性能[J]. 中国激光, 2012, 39(9): 0906001.
- Guohang Hu, Yuanan Zhao, Dawei Li, *et al.*. Wavelength dependence of laser-induced bulk damage morphology in KDP crystal: determination of the damage formation mechanism[J]. Chinese Physics Letters, 2012, 29(3): 037801.
- Goldring D, Zalevsky Z, Goldenberg E, *et al.*. Optical characteristics of the compound PLZT[J]. Appl Opt, 2003, 42(32): 6536~6543.
- Lei Qiao, Qing Ye, Junlin Gan, *et al.*. Optical characteristics of transparent PMNT ceramic and its application at high speed electro-optic switch[J]. Opt Commun, 2011, 284(16): 3886-3890.
- Qing Ye, Lei Qiao, Jiulin Gan, *et al.*. Fiber Sagnac π -shifted interferometer for polarization independent PMNT high speed electro-optic switch[J]. Opt Lett, 2010, 35(24): 4187-4189.
- K K Li, Yalin Lu, Qingwu Wang, *et al.*. Electro-optic ceramic material and device; U. S. Patent 6890 874[P]. 2005-05-10.
- J Y Cheng, Qishui Chen. An ultrafast phase modulator for 3D

- imaging[C]. SPIE, 2006, 6068; 60680L.
- 9 H Jiang, Y K Zou, Q Chen, *et al.*. Transparent electro-optic ceramics and devices[C]. SPIE, 2005, 5644; 380–394.
- 10 Qing Ye, Xuejiao Zhang, Haiwen Cai, *et al.*. Analysis and implementation of reflection-type electro-optic phase diffraction grating[J]. J Lightwave technology, 2012, 30(17): 2796–2802.
- 11 Xuejiao Zhang, Qing Ye, Ronghui Qu, *et al.*. Polarization-independent electro-optic modulator based on PMNT electrically-controlled birefringence effect and Sagnac interferometer [J]. Optics & Laser Technology, 2014, 57: 5–8.
- 12 Zhang Xuejiao, Ye Qing, Cai Haiwen, *et al.*. Fabry-Perot resonant technique for measuring the electro-optic coefficients of PMNT ceramic and its application in diffraction grating [J]. Chinese J Lasers, 2013, 40(7): 0708004.
张学娇, 叶青, 蔡海文, 等. 法布里-珀罗谐振技术测量 PMNT 的电光系数及在衍射光栅中的应用[J]. 中国激光, 2013, 40(7): 0708004.
- 13 B C Stuart, M D Feit, A M Rubenchik, *et al.*. Laser-induced damage in dielectrics with nanosecond to subpicosecond pulses [J]. Physical Review Letters, 1995, 74(12): 2248–2251.
- 14 Yuan Xiaodong, Li Xuping, Zheng Wanguo, *et al.*. Ripple damage mechanism of SiO₂ film induced by 1.064 μm pulsed laser [J]. High Power Laser and Particle Beams, 2008, 20(3): 509–512.
袁晓东, 李绪平, 郑万国, 等. 1.064 μm 脉冲激光作用下 SiO₂ 薄膜纹波损伤的模拟[J]. 强激光与粒子束, 2008, 20(3): 509–512.
- 15 L Yan, C Y Wei, D W Li, *et al.*. Coupling effect of multi-wavelength lasers in damage performance of beam splitters at 355 nm and 1064 nm [J]. Applied Optics, 2012, 51(16): 3243–3249.
- 16 Y Liao, J Xu, Y Cheng, *et al.*. Electro-optic integration of embedded electrodes and waveguides in LiNbO₃ using a femtosecond laser [J]. Opt Lett, 2008, 33(19): 2281–2283.

栏目编辑:张浩佳