

飞秒激光作用下全向高反膜破坏的激发过程^{*}

孙海轶[†] 贾天卿 李晓溪 徐世珍 冯东海
李成斌 王晓峰 徐至展

(中国科学院上海光学精密机械研究所强场激光物理国家重点实验室, 上海 201800)

(2005 年 2 月 4 日收到, 2005 年 3 月 28 日收到修改稿)

设计和制备了全向高反膜 $\text{SiO}_2/\text{TiO}_2$, 研究了它在不同脉冲宽度、不同脉冲能量的飞秒激光作用下的破坏阈值和烧蚀深度. 利用发展的抽运-探针方法, 研究了抽运脉冲作用下材料中导带电子的超快激发和能量沉积过程, 建立并求解了飞秒激光激发材料和材料的激发对抽运光自身反作用的耦合动力学模型. 模型较好地揭示了材料破坏的激发过程.

关键词: 飞秒激光, 全向高反膜, 激发过程, 破坏机制

PACC: 4255R, 4280X, 7750, 4255B

1. 引言

大量文献报道了超短脉冲激光作用下介质材料的破坏阈值, 烧蚀深度与脉冲宽度、激光波长、脉冲能量的依赖关系, 并建立了理论模型研究材料破坏的物理机制^[1-8]. 超短脉冲激光对介质材料的破坏可以描述为三个过程: 导带电子的产生, 导带电子的加热, 电子气中的能量传给晶格. 前两个激发过程是决定材料破坏的主要因素, 是研究后一个弛豫过程的基础. 然而, 在最近的文献报道中, 人们利用抽运-探针技术(抽运光和探针光的脉冲宽度相同), 主要研究了材料的弛豫过程, 没有给出较详细的激发过程信息^[5,9,10].

本文发展了抽运-探针实验方法, 将抽运光的脉宽展宽到 500fs, 而探针光的脉冲宽度为 70fs. 利用这种方法较详细地研究了全向高反膜 $\text{SiO}_2/\text{TiO}_2$ 的激发过程. 此外, 实验还研究了全向高反膜 $\text{SiO}_2/\text{TiO}_2$ 和金反射膜的破坏阈值和烧蚀深度. 我们建立了一个耦合动力学模型, 该模型不仅考虑了激光对材料的激发, 还考虑了材料的激发对抽运光自身的反作用. 这种反作用将会改变抽运光在材料中的传输、分布和反射特性. 我们求解了这个理论模型, 发现由于

材料中激发了大量的导带电子, 改变了材料的介电常数, 从而使激光在材料表面的光强下降到不足原来的五分之一. 计算得到的探针光反射率的演化和破坏阈值与脉冲宽度的依赖关系与实验符合得很好.

2. 实验装置与结果

本文的实验是在钛:蓝宝石激光器上完成的, 其输出的脉冲宽度为 50fs, 波长 800nm, 脉冲能量 600 μJ , 重复频率 1000Hz, 千赫兹和单赫兹可以相互调节. 为了了解材料的烧蚀特性, 我们首先利用 800nm 单脉冲激光测定了高反膜的烧蚀阈值与烧蚀深度. 测定时激光脉冲聚焦后垂直地打在靶的表面. 在抽运-探针实验中, 激光束首先经过一个 BBO 晶体倍频, 然后分成 400nm 的探针光和 800nm 的抽运光. 抽运光的脉冲宽度 τ 用非线性材料 ZF6 玻璃展宽到约 500fs, 经过延时线后与探针光共路. 共路后的两束激光以 15° 的入射角打到样品表面. 反射的探针光通过光栅光谱仪与抽运光分离, 并用增强制冷的 CCD 测量其反射率. 在实验过程中, 抽运光与探针光的强度比大于 50, 靶面上每点打一个脉冲.

全向高反膜 $\text{SiO}_2/\text{TiO}_2$ 的结构是 $(\text{LH})_{\lambda_1}(\text{LH})_{\lambda_2}$

^{*} 国家自然科学基金(批准号 60108002)资助的课题.

[†] E-mail: shy780327@163.com

..(LH)₆S 其中 S 代表石英玻璃基底 (LH)代表高低折射率材料 SiO₂/TiO₂, 每层的厚度为四分之一波长. 其中心波长 λ₁ 到 λ₆ 从 800nm 增加到 1100nm, 间隔 60nm. 样品采用真空热蒸发方法制备. 在 0—80 度的范围内我们测量了样品的透射谱、抽运光的反射率与入射角的依赖关系, 发现全向高反膜的全向带隙位于 787nm—851nm, 抽运激光的反射率高于 95%, 与理论计算的结果符合的很好.

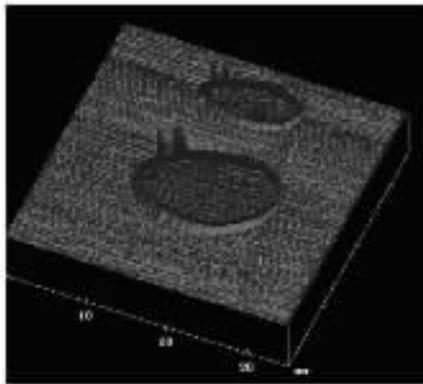


图 1 全向高反膜的原子力显微镜图片

图 1 是我们用原子力显微镜测量的烧蚀坑形貌. 图中一大一小的坑是用不同能量的激光脉冲烧蚀的, 尽管它们的烧蚀面积相差较大, 但烧蚀的深度却相同. 我们用扫描电镜测量的图片表明材料是被一层一层烧掉的, 这种现象与激光在多层膜中的传输特性有关.

我们测量了样品的烧蚀斑面积, 结果表明烧蚀斑面积 S 与激光能流密度 F 成对数关系. 通过测量 $S \sim F$ 的依赖关系可以确定激光的束腰半径和烧蚀阈值^[11]. 图 2 给出了全向高反膜 SiO₂/TiO₂(空心菱形)和金反射膜(实心正方形)的烧蚀阈值 F_{th} 与脉冲宽度的依赖关系. 随着脉冲宽度从 70fs 增加到 1500fs, 全向高反膜 SiO₂/TiO₂ 的烧蚀阈值从 0.56J/cm² 增加到 3.3J/cm², 比普通金反射膜的烧蚀阈值高 2—6 倍. 我们的测量误差小于 ± 10%. 图中给出的是激光束的中心强度, 它是平均强度的 2 倍. 金膜的破坏阈值与文献报道的结果基本一致^[11], 目前我们还没有见到关于全向高反膜破坏机制的研究报道. 随着激光技术的迅速发展, 超短脉冲的峰值功率已达到 100TW/cm² 以上. 实验中经常见到飞秒激光对各种分光镜, 尤其是金属反射镜的破坏. 我们设计的全向高反膜 SiO₂/TiO₂ 不仅满足了金属反射镜全向

高反的特性, 其烧蚀阈值也远高于金镜, 而且它是由介质膜组成, 不改变激光束的偏振特性, 可以在高功率激光系统中代替金属反射镜.

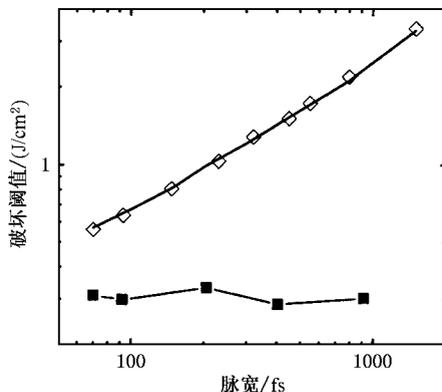


图 2 烧蚀阈值与脉宽的依赖关系

此外我们还测量了全向高反膜的烧蚀深度与激光能流密度间的依赖关系, 发现它们近似成对数关系, 该结果与石英玻璃等透明块体介质材料的情况很类似^[4]. 当激光强度略高于烧蚀阈值时, 材料很快被烧蚀到 SiO₂/TiO₂ 的界面附近. 这些特点说明高反膜表层材料的特性对烧蚀阈值具有特别重要的影响.

图 3 中的实心圆点给出了抽运光照射全向高反膜 SiO₂/TiO₂ 的过程中探针光反射率 R_{ef} 的演化. 在 -300fs 附近探针光的反射率从 57% 开始下降, 在 0fs 附近样品的反射率下降到最小值, 约 34%. 然后随着抽运光对样品的进一步激发, 反射率开始缓慢上升到 37%. 而在以前的文献中, 抽运光和探针光的脉冲宽度相同, 实验结果基本都是探针光的反射

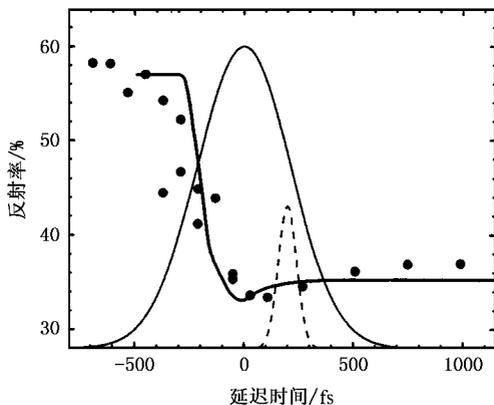


图 3 探针光反射率的演化, 抽运光: 300nm, 500fs, 90μJ, 探针光: 400nm, 70fs. 高斯脉冲状的实线和虚线分别代表抽运光与探针光脉冲

率或透射率在抽运光照射样品前后发生跳跃,然后随弛豫时间的增加开始演化^[5,10],它不能给出时间分辨的激发过程的信息.由于我们使用的抽运光的脉冲宽度远大于探针光的脉宽,这样可以较详细地测出材料的激发过程.

3. 理论计算

实验结果首次清楚地表明,在抽运光照射材料的过程中,样品的光学特性和电学特性发生了很大的变化,导致抽运光本身在材料中的反射、透射和光强分布都发生很大的变化.为了研究飞秒激光对材料的激发过程和破坏机制,我们不仅要研究激光的激发对材料的光电特性的改变,还必须研究材料光电特性的改变对抽运光在材料中的反射、透射和光强分布的影响.这是一个耦合的、动力学问题.在飞秒激光照射下,材料中的价电子通过光电离和碰撞电离被激发到导带成为导带电子^[3].导带电子数密度 n_e 的演化方程为

$$\frac{\partial n_e}{\partial t} = (R_{PI} + R_{II} \cdot n_e(t)) \left(1 - \frac{n_e}{N_0}\right), \quad (1)$$

这里光电离速率 R_{PI} 利用 Keldysh 理论^[12]计算.导带电子吸收激光能量的速率用量子方法和经典近似两种方法计算^[13,14],进而根据 flux-doubling 模型计算碰撞电离速率 R_{II} ^[3].由于材料的二次电离能远高于一次电离能,我们认为每个分子中只有一个价电子被激发到导带,从而引入了因子 $1 - n_e/N_0$. SiO_2 和 TiO_2 中的分子数密度 N_0 分别为 $2.2 \times 10^{22} \text{ cm}^{-3}$ 、 3.2

$\times 10^{22} \text{ cm}^{-3}$.

在抽运光照射下材料中会被激发出大量的导带电子.材料的介电常数 ϵ^* 与导带电子数密度 n_e 的依赖关系为^[15]

$$\epsilon^*(\hbar\omega) = 1 + (\epsilon(\hbar\omega) - 1) \frac{N_0 - n_e}{N_0} - \frac{e^2 n_e}{\epsilon_0 m_{opt} m_e \omega^2} \times \frac{1}{1 + i(\gamma/\omega)}, \quad (2)$$

这里 $\epsilon(\hbar\omega)$ 是材料未被激发时的介电常数.导带电子的有效质量 m_{opt}^* 取为自由电子的质量 m_e ,电子-声子碰撞频率 γ 近似为 2 fs^{-1} .材料介电常数与光在材料中的反射、透射和光强分布间的关系利用矩阵光学中的理论计算.

以 800 nm (70 fs , 0.65 J/cm^2) 抽运脉冲激发材料为例,我们数值求解了耦合方程(1)和(2),得到了光强分布 I 、导带电子数密度 n_e 、材料的折射系数 n 、消光系数 k 和抽运光反射率 Ref 的演化,结果如图 4 (a)和(b)所示. I_0 代表初始的入射光强度,入为 80 nm .在 -10 fs 附近,材料表面的导带电子数密度达到 $10^{20} / \text{cm}^3$,此时 SiO_2 的折射系数开始下降,消光系数开始明显上升.样品的反射率开始下降,激光在样品中的分布也开始发生变化.当照射时间为 0 fs 附近时,导带电子数密度达到 $10^{22} / \text{cm}^3$,消光系数上升到 1,折射系数和反射率下降到极小值,分别为 0.87 和 0.28.激光在样品表面的强度下降到最初的一半.随着照射时间的增加,导带电子数密度达到 $2 \times 10^{22} \text{ cm}^{-3}$,这时消光系数增加到 2.5,折射系数和反射率缓慢上升到 1.08 和 0.4.表面附近的激光强度

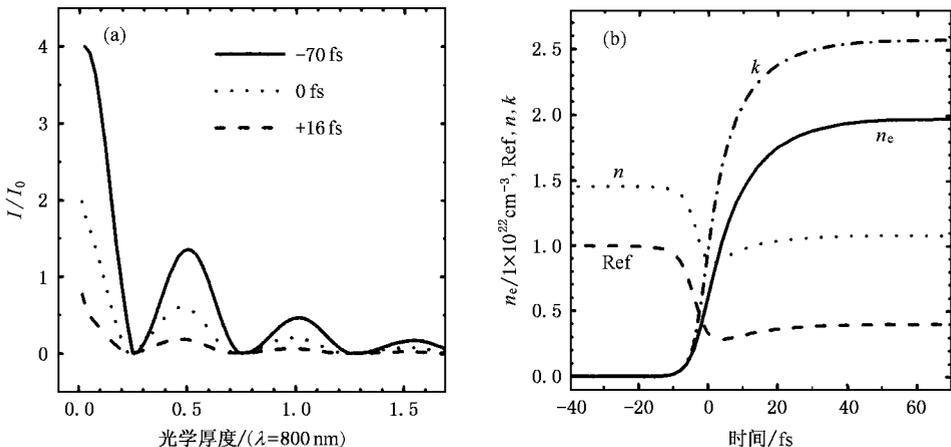


图 4 (a) 激光强度在全向高反膜中分布的演化 (b) 反射率 Ref 、表面 SiO_2 层中导带电子数密度 n_e 、折射率 n 、消光系数 k 的演化

下降到原来的五分之一.图 3 中的实线给出了我们计算的探针光反射率的变化.探针光的光谱范围为 397nm—405nm.我们的计算结果与实验值符合得很好.这些理论计算表明,在抽运光作用下,导带电子数密度迅速增加,导致材料的折射系数和消光系数显著改变.抽运光的反射率和光强分布也随着显著变化.导带电子数密度随时间的演化改变了抽运光在材料中的分布,与此同时也改变了自身的演化过程.我们的计算表明,激光能量主要沉积在材料表面约 60nm 的深度范围内,沉积在 TiO₂ 层中的激光能量密度比表面低 3 个数量级.这就说明为什么当激光能量密度略高于阈值时只有表面的 SiO₂ 层被烧蚀.此外,我们以沉积到材料表面层中的能量达到 54kJ/cm³ 为薄膜破坏的标准,计算得到的破坏阈值与脉冲宽度的依赖如图 2 中的实线所示,理论与实验符合得很好.

4. 结 论

本文发展了抽运-探针方法,实验研究了全向高反膜 SiO₂/TiO₂ 在抽运光照射下的激发过程和破坏机制.我们的结果表明,当脉冲宽度从 70fs 增加到 1500fs 时,全向高反膜 SiO₂/TiO₂ 的破坏阈值从 0.56J/cm² 增加到 3.3J/cm²,比金膜的破坏阈值高约 3 倍.在抽运光的照射过程中,在 -300fs 附近探针光的反射率从 57% 开始下降,在 0fs 附近样品的反射率下降到 34%,然后缓慢上升到 37%.这些实验结果清楚地表明有必要建立飞秒激光激发材料和材料的激发对抽运激光自身反作用的耦合动力学模型.我们建立并求解了这个模型,揭示了材料破坏的物理机制.

作者感谢同济大学的吴永刚、陈 鸿在样品制备等方面的帮助和有益讨论.

- [1] Stuart B C , Feit M D , Herman S , Rubenchik A M , Shore B W and Perry M D 1996 *Phys. Rev. B* **53** 1749
- [2] Du D , Liu X , Korn G , Squier J and Mourou G 1994 *Appl. Phys. Lett.* **64** 3071
- [3] Jia T Q , Xu Z Z , Li X X *et al* 2003 *Appl. Phys. Lett.* **82** 4823
Jia T Q , Xu Z Z , Li R X *et al* 2004 *J. Appl. Phys.* **95** 5166
- [4] Lenzner M , Krüger J , Sartania S *et al* 1998 *Phys. Rev. Lett.* **80** 4076
- [5] Li M , Menon S , Nibarger J P and Gibson G N 1999 *Phys. Rev. Lett.* **82** 2394
- [6] Li X X , Jia T Q , Feng D H and Xu Z Z 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 2154 (in Chinese) 李晓溪、贾天卿、冯东海、徐至展 2004 *物理学报* **53** 2154]
- [7] Jia T Q , Chen H and Wu X 2000 *Acta Phys. Sin.* **49** 1277 (in Chinese) 贾天卿、陈 鸿、吴 翔 2000 *物理学报* **49** 1277]
- [8] Wang Y Y , Xu L J and Qi S S 1998 *Journal of Ocean University of Qingdao* **28** 89 (in Chinese) 王永玉、许龙江、戚诒让 1998 *青岛海洋大学学报* **28** 89]
- [9] Yang H , Zhang T Q , Wang S F and Gong Q H 2000 *Acta Phys. Sin.* **49** 1292 (in Chinese) 杨 宏、张铁桥、王树峰、龚旗煌 2000 *物理学报* **49** 1292]
- [10] Mao X , Mao S S and Russo R E 2003 *Appl. Phys. Lett.* **82** 697
- [11] Wang X C , Lim G C , Zheng H Y , Ng F L , Liu W and Chua S J 2004 *Applied Surface Science* **228** 221
- [12] Tien A C , Backus S , Kapteyn H , Murmane M and Mourou G 1999 *Phys. Rev. Lett.* **82** 3883
- [13] Jia T Q , Chen H and Zhang Y M 2000 *Phys. Rev. B* **61** 16522 ;
Jia T Q , Li R X , Liu Z and Xu Z Z 2002 *Appl. Surf. Sci.* **189** 78
- [14] Stuart B C , Feit M D , Herman S , Rubenchik A M , Shore B W and Perry M D 1996 *J. Opt. Soc. Am. B* **13** 459
- [15] Sokolowski-Tinten K and von der Linde D 2000 *Phys. Rev. B* **61** 2643

Ultrafast electronic dynamics during femtosecond laser-induced damage in omnidirectional reflector^{*}

Sun Hai-Yi[†] Jia Tian-Qing Li Xiao-Xi Xu Shi-Zhen Feng Dong-Hai

Li Cheng-Bin Wang Xiao-Feng Xu Zhi-Zhan

(*State Key Laboratory of High Field Laser Physics, Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China*)

(Received 4 February 2005; revised manuscript received 28 March 2005)

Abstract

The omnidirectional reflector $\text{SiO}_2/\text{TiO}_2$ is prepared and its threshold fluences and ablation depths at different pulse durations and fluences is studied. In addition a new pump and probe experiment system is developed. The probe pulse is kept as short as possible, while, the pump pulse is stretched and its duration is much longer than that of the probe pulse. Time-resolved excitation processes and damage mechanisms in omnidirectional reflector $\text{SiO}_2/\text{TiO}_2$ is studied. A coupled dynamic model, not only considering the excitation of the material by the laser, but also the counteraction of this excitation to the laser, is employed to study the damage mechanisms. This model well explains the excitation processes during the damage of omnidirectional reflector.

Keywords : femtosecond laser, omnidirectional reflector, excitation processes, damage mechanisms

PACC : 4255R, 4280X, 7750, 4255B

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 60108002).

[†] E-mail : shy780327@163.com