

文章编号: 1001-3806(2008)02-0163-03

纳米 Si/SiN_x 薄膜的制备及对 Nd:YAG 激光器的被动调 Q

吕 蓬, 郭亨群*, 王加贤*, 李立卫, 申继伟
(华侨大学 信息科学与工程学院, 泉州 362021)

摘要: 为了研究纳米硅镶嵌氮化硅薄膜材料的被动调 Q 特性, 采用射频磁控反应溅射法结合热退火处理在单晶硅衬底上制备该薄膜, 用该样品作为可饱和吸收体, 在凹-平腔中实现了氙灯抽运 Nd:YAG 激光器的被动调 Q 运转, 在抽运重复频率 1Hz 情况下获得脉宽最小可达 19ns 的调 Q 单脉冲输出。并且研究了该薄膜结构特性、激光器参数, 如抽运电压、腔长对调 Q 脉冲输出性能产生的影响。在此基础上, 对实验现象产生的原因做了分析讨论。结果表明, 纳米硅镶嵌氮化硅薄膜有一定的调 Q 效果, 具有潜在的研究及应用价值。

关键词: 激光技术; 射频磁控反应溅射; 纳米硅镶嵌氮化硅薄膜; Nd:YAG 激光器; 被动调 Q

中图分类号: TN 248.1; O484.4⁺1 **文献标识码:** A

Preparation of nano-Si/SiN_x film and its application in passive Q-switch of Nd:YAG laser

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

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

Abstract In order to study passive Q-switch character of the nanoscale-Si-particle embedded in silicon nitride (nano-Si/SiN_x) thin film, the film was prepared on single crystal silicon by means of radio frequency magnetron reaction sputtering technique and thermal annealing. In the experiment, these samples were inserted as saturable absorber into the resonator, concave-flat cavity was adopted and Nd:YAG was pumped by a xenon lamp and the Q-switched waveform of 19ns single pulse width was obtained at repetition rate of 1Hz. Furthermore, the influence of structural characteristic, pump voltage and cavity length on the properties of laser output was investigated. Then, these phenomena observed in the experiment was analyzed and discussed based on the theory of passive Q-switch. In conclusion, nano-Si/SiN_x film has potential value in research and applications because of its passive Q-switch character.

Key words laser technique; radio frequency magnetron reaction sputtering; nanoscale-Si-particle embedded in silicon nitride thin films; Nd:YAG laser; passively Q-switched

引 言

在固体被动调 Q 材料中, 各类掺 Cr³⁺ 可饱和吸收晶体得到人们充分的研究和发展^[1], 除此之外, 人们对半导体在这方面的研究也充满兴趣^[2-4]。特别是近几年, 对 GaAs 和半导体可饱和吸收镜 (semiconductor saturable absorber mirror, SESAM) 的研究比较活跃。利用激光二极管 (laser diode, LD) 和氙灯抽运都能实现 1.06μm 钕激光器的被动调 Q, 其中 GaAs 在 LD 连续

式抽运下输出激光脉宽可达到 15ns^[5]; 而采用 SESAM 器件输出的脉冲宽度最短为 37ps^[6], 这个是迄今为止固体激光器通过调 Q 技术获得的最短脉冲宽度。另外, 多数研究报道, 用氙灯抽运的情况下, 压缩的激光脉宽一般都为几十个纳秒^[7,8]。在众多材料中, 氮化硅是一种较典型的硅基材料, 人们已对它进行了多方面的研究, 但在光学非线性效应及其激光压缩调 Q 方面的研究鲜有报道。氮化硅做为包埋的母体材料, 对镶嵌在介质中的半导体颗粒有介质势垒的限制作用, 使其三阶非线性效应变大, 有可饱和吸收性。研究发现, 利用硅衬底上制备的纳米硅镶嵌氮化硅 (nanoscale-Si-particle embedded in silicon nitride thin films, nano-Si/SiN_x) 薄膜样品能实现在氙灯抽运的 Nd:YAG 激光器中的被动调 Q 运转, 得到的单脉冲调 Q 输出脉宽约 19ns, 相对于常见的 GaAs, SESAM 等半导体材料和器件在激光压缩脉宽方面具有相当的效果。

基金项目: 国家自然科学基金资助项目 (60678053)

作者简介: 吕 蓬 (1974-), 男, 硕士研究生, 现主要从事光电子材料与器件、固体激光技术的研究。

* 通讯联系人。E-mail: uohq@hqu.edu.cn; wangjk@hqu.edu.cn

收稿日期: 2007-02-15; 收到修改稿日期: 2007-05-09

1 nano-Si/SN_x 薄膜的制备和测试

采用射频磁控反应溅射法在 p 型 Si(100)衬底上沉积氮化硅薄膜。硅衬底厚 0.5mm,靶材为高纯度单晶 Si靶。本底真空度为 8.6×10^{-4} Pa,射频功率为 300W,工作气压为 1.2Pa,靶面到衬底间距离 6cm,溅射气体和反应气体分别为高纯度 Ar 气和 N₂ 气。气体流量比 $R [Ar(\text{scm})/N_2(\text{scm})]$ 分别取 40/20 和 80/20,衬底不加热,沉积厚度分别为 300nm,将样品分成若干块,都在退火炉中氮气保护下在 800°C 经 3h 的热退火处理以析出晶化的纳米硅颗粒。最后,把制备的这两类薄膜样品根据流量比 R 的不同,分成两种:40/20 的为样品 a,80/20 的为样品 b。

采用英国 Oxford 公司的 7021 型能谱仪对样品 a 和 b 上的薄膜成分元素种类与含量进行分析。分析可知,样品 a 和 b 的薄膜中硅氮原子数之比分别为 0.765 和 1.247,它们都比氮化硅 (Si₃N₄) 中的硅氮原子数之比 0.750 要大,说明随着气体流量比的增加,薄膜样品中硅含量也相应增加,薄膜样品 a 和 b 都呈现出富硅状态,从而通过退火有可能形成纳米硅颗粒。采用德国 Bruker 公司 D8 Advance 型 X 射线衍射仪对样品 a 和 b 上的薄膜进行 XRD (X-ray diffraction, XRD) 测试。由 XRD 谱图 1 可知,样品 a 和 b 的谱线都出现明

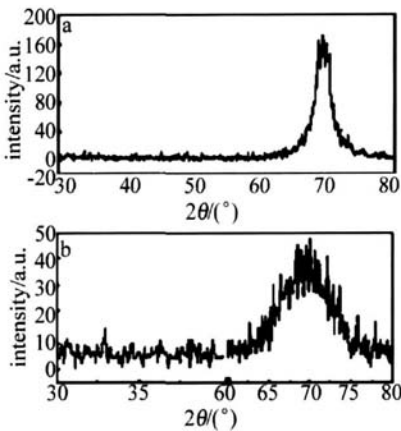


Fig 1 XRD spectrum of two nano-Si/SN_x film samples
a—sample a b—sample b

显宽化的衍射特征峰,其峰位对应于块体 Si 的金刚石结构的 (400) 面的衍射,可见此时硅在 SN_x 介质薄膜中形成了金刚石结构的纳米晶粒。根据 Scherrer 公式^[9] 计算得出样品 a 和 b 薄膜中纳米硅颗粒的粒径平均尺寸分别约为 3.7nm 和 1.7nm。测试说明硅衬底上形成了纳米硅颗粒镶嵌在氮化硅中的复合薄膜结构。

2 调 Q 实验研究

2.1 实验装置

实验装置如图 2 所示, M₁ 为曲率半径 R = 3m 的

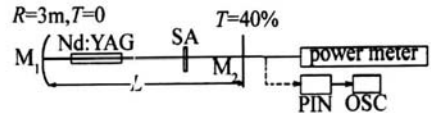


Fig 2 Schematic diagram of passive Q-switched laser

全反射凹透镜, M₂ 为透过率 T = 40% 的平面输出镜, M₁ 和 M₂ 构成凹-平稳定腔; Nd³⁺:YAG 棒的直径为 3.5mm,长度为 60mm,抽运源为工作频率为 1Hz 的单根脉冲氙灯, SA 为样品。输出激光由能量计测其能量,由 PIN 光电探测头接收并输入到 TDS3032B 型数字存储示波器观察其脉冲波形。

2.2 结果与分析

2.2.1 样品结构特性对调 Q 激光脉冲的影响 分别将样品 a、b 及没镀膜的硅片放在腔中所示位置,移动 M₂ 使得腔长 L = 30cm,其余参数均不变,测量调 Q 主脉冲的脉冲宽度,来研究该薄膜组分结构特性对调 Q 激光压缩脉冲的影响。实验结果发现,3 个样品基本都在抽运电压 V = 900V 情况下,得到对应的最窄单脉冲输出,硅片、样品 a、样品 b 的激光脉冲的宽度 τ 分别为 38ns、29ns、19ns,如图 3 所示。

实验证实一定厚度的硅片能实现氙灯抽运 Nd:YAG 激光器的被动调 Q 运转,而镀有 nano-Si/SN_x 薄膜的样品具有更好的调 Q 效果,其中,在激光重复频率 1Hz 情况下用样品 b 获得了脉宽最小可达 19ns 的调 Q 单脉冲输出。HUA 等人^[3] 曾利用硅片作为被动调 Q 器件在凸-凹非稳腔中实现对 Nd:YAG 激光调

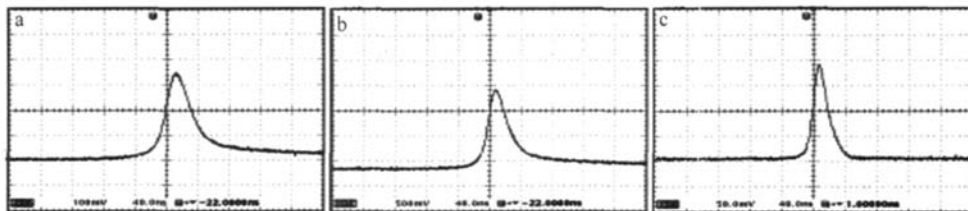


Fig 3 Three samples' typical wave profiles of the Q-switched pulse (horizontal scale 40ns/div)
a—sample a the pulse width is 38ns b—sample a the pulse width is 29ns c—sample b the pulse width is 19ns

Q 运转,并认为自聚焦效应是硅调 Q 的主要原因。对于该薄膜,研究发现,样品 a 和样品 b 上的薄膜在结构

上都是富硅的且都存在纳米硅颗粒,主要区别是样品 b 上薄膜的富硅量比样品 a 的多且有更小尺寸的纳米

硅颗粒,导致样品 b 具有更好得激光压缩效果。正是这一结构使得 nano-Si/SN_x 薄膜也体现了被动调 Q 作用。

由于纳米 Si 镶嵌在介质薄膜中存在大量的界面态和缺陷态,在 0.95 eV ~ 1.6 eV 之间存在着次带吸收,在 1.1 eV ~ 1.2 eV 之间存在着一个吸收峰^[10],所以可以应用于激光波长为 1.06 μm (光子能量 $h\nu = 1.17 \text{ eV}$) 的 Nd:YAG 激光器被动调 Q 运转。镶嵌在 SN_x 介质中的纳米硅颗粒越小越多,界面效应、小尺寸效应及量子限域效应表现得就越明显,使其三阶光学非线性效应得到极大增强,纳米 Si 中的电子由原来准连续的能带分裂成分立的能级,造成纳米 Si 的能隙能量 E_{nc} 变得越大,大于体硅的能隙能量。在本调 Q 实验中,入射光子能量满足 $E_{nc} < 2h\nu < 2E_{nc}$,属于非共振非线性的情况,光响应时间快,薄膜样品可能存在双光子吸收^[11]。由于纳米 Si/SN_x 薄膜的三阶非线性效应比较强,其受到光场的作用时,材料的吸收系数发生变化,折射率也发生变化,从而双光子吸收具有可饱和特性,在 1.06 μm 激光辐照下,样品将产生类似 GaAs 的可饱和吸收^[12]。因此,利用纳米 Si/SN_x 薄膜进行调 Q 实验,既是作为可饱和吸收体的一种应用,也是对其非线性光学特性的一种验证。

2.2.2 抽运电压对调 Q 激光脉冲的影响 将样品 b 放在图 2 腔中所示位置,移动 M₂ 使得腔长 $L = 30 \text{ cm}$,其余参数均不变,测量了在不同抽运电压下调 Q 主脉冲的脉冲宽度,结果见表 1 所示。

Table 1 Pulse-width of main Q-switched pulses under pump voltages

| sequence number | 1 | 2 | 3 | 4 | 5 | 6 |
|---------------------|-----|-----|-----|-----|-----|------|
| pump voltages/V | 700 | 800 | 850 | 900 | 950 | 1000 |
| main pulse width/ns | 62 | 38 | 31 | 19 | 21 | 75 |

由实验结果看出,腔长一定的情况下,随着抽运电压的增加,激光的脉冲宽度将变窄。其原因是由于抽运电压的增加使激光输出能量变大,引起激发态粒子数集聚的速度增加,反转粒子数密度提高,腔内的净增益系数变大,则腔内光子数的增长及反转集聚数的衰减变得更迅速,从而脉冲的建立和熄灭过程也就越短,导致单脉冲的宽度变窄。

当电压高于 950V 后,随着抽运电压的增大,调 Q 主脉冲开始变宽,调 Q 现象基本截止,示波器上各个子脉冲波形之间开始变得杂乱,调 Q 峰值功率下降,主调 Q 脉冲变得不易区分。其原因是在过高的抽运电压下样品中的自由载流子和缺陷态能级上的电子或空穴的光子吸收对激光调 Q 的作用已不容忽略,位于导带内的自由电子和位于价带内的空穴可以直接吸收

光子跃迁到更高的能态上去,缺陷态能级上的电子或空穴吸收光子也能跃迁到更高的能态上去,出现调 Q “关门不紧”的现象,加之过高的抽运电压使上能级的粒子集聚数积累过多,每次不能及时彻底跃迁到低能级,出现“倒不空”的现象。于是在每次抽运期间出现众多子脉冲,消耗了一次激光抽运中的能量,使调 Q 主脉冲提取抽运能量的效率下降,从而使调 Q 主脉冲展宽。

2.2.3 激光器腔长 L 对调 Q 激光脉冲的影响 选择样品 b 做为被动调 Q 器件,移动输出镜 M₂,使得腔长 L 分别为 30 cm, 50 cm, 65 cm, 其余参数均不变。在抽运电压 $V = 900 \text{ V}$ 情况下,测得激光主脉冲的宽度分别为 19 ns, 32 ns, 40 ns, 输出激光脉冲的能量分别为 62.5 μJ, 54.7 μJ, 48.6 μJ。

由实验结果看出,随着腔长的增加,激光脉冲的能量减小,脉宽变大。这种现象是由于腔长与腔内光子寿命 τ_r 成正比关系,脉冲宽度又和 τ_r 成正比关系,所以腔长的增加将使得 τ_r 变大,从而脉冲宽度也变大。另外,对于凹-平腔而言,随着腔长的增加, Nd³⁺:YAG 棒内的模体积将会减小,则对该振荡有贡献的激发态粒子数就少,输出能量也就小。

3 结 论

用射频磁控反应溅射技术和热退火方法在单晶硅片上制备 nano-Si/SN_x 薄膜材料。利用该样品在凹-平稳定腔中实现了氙灯抽运 Nd:YAG 激光器的被动调 Q 运转,获得脉宽最小可达 19 ns 的调 Q 单脉冲输出。实验表明,该薄膜的纳米硅结构特性、抽运电压、腔长对调 Q 脉冲输出性能产生很大影响。在调 Q 机制上,可认为硅片的自聚焦效应和 nano-Si/SN_x 薄膜的双光子饱和吸收是导致该激光器实现被动调 Q 的主要因素。如果对该样品材料进行更优化地设计、制备,选择更佳的激光器和谐振腔参量,可望得到更好的实验结果。由于 nano-Si/SN_x 薄膜相对于 SESAM 器件制作简单,成本较低,并且可通过制备中对纳米硅颗粒的大小、分布密度的调整来实现调 Q 脉宽的可控压缩,这是一般半导体调 Q 材料不容易具备的,因此具有潜在的应用价值。

参 考 文 献

- [1] JIA F Q, ZHENG Q, XUE Q H, *et al*. C²⁺:YAG passively Q-switched extra-cavity third-harmonic laser [J]. *Laser Technology* 2005, 29 (6): 629-631 (in Chinese).
- [2] LID G, WANG Y G, MA X Y, *et al*. The development of semiconductor saturable absorption mirror as passive Q-switching absorber [J]. *Journal of Applied Optics* 2005, 26 (2): 7-9 (in Chinese).

- [17] LAI J J CHEN X Q, ZHOU H, *et al* Investigation of infrared laser heating and bonding of plastics chips [J]. *Infrared Technology* 2004 26(2): 68-71(in Chinese).
- [18] YUAN H, LAI J J HE Y G. Experimental study on laser welding of thermoplastics [J]. *Optics & Optoelectronic Technology* 2005, 3(1): 18-21(in Chinese).
- [19] WANG Y L, CUI Y, WANG J Ch *et al* Technology of laser welding plastic [J]. *Applied Laser* 2006 26(2): 93-96(in Chinese).
- [20] HILTON P A, JONES I A, KENNISH Y. Transmission laser welding of plastics [J]. *SPE*, 2003 4831: 44-52
- [21] COELHO J P, IOBATO M, ABREU M A, *et al* Influence of laser spot shape on welding of thin thermoplastics [C] // *Proceedings of the Laser Materials Processing Conference ICALEO 2000 Orlando Laser Institute America* 2000: 73-81
- [22] HOULT A P, BURRELL M. The effect of diode laser wavelength on the Cleanweld(TM) welding process [C] // *CALEO 2002 21st International Congress on Applications of Laser Institute America Orlando Laser Institute America* 2002: 1799-1807
- [23] GREWELL D A, ROONEY P, KAGAN V A. Relationship between optical properties and optimized processing parameters for through-transmission laser welding of thermoplastics [J]. *Journal of Reinforced Plastics and Composites* 2004 23(3): 239-247
- [24] KAGAN V A, PINHO G P. Laser transmission welding of semicrystalline thermoplastics——Part ②: Analysis of mechanical performance of welded nylon [J]. *Journal of Reinforced Plastics and Composites* 2004 23(1): 95-107
- [25] HABERSTROH E, LUTZELER R. Influence of carbon black pigmentation on the laser beam welding of plastics micro parts [J]. *Journal of Polymer Engineering* 2001, 21(2/3): 119-130.
- [26] ANON J Additives aid laser welding [J]. *Plastics Additives and Compounding* 2005 7(1): 34-35.
- [27] POTENTE H, FIEGLER G. Laser transmission welding of thermoplastics—Modelling of flows and temperature profiles [C] // *Annual Technical Conference——ANTEC Conference Proceedings Brookfield United States Society of Plastics Engineers* 2004: 1193-1199
- [28] CHO SK, YANG Y S, SON K J *et al* Fatigue strength in laser welding of the lap joint [J]. *Finite Elements in Analysis and Design* 2004 40(9/10): 1059-1070
- [29] COELHO JM P, ABREU M A, RODRIGUES F C. Influence of thermal stresses in modelling the lap welding of thermoplastic films [C] // *2005 Conference on Lasers and Electro-Optics Europe Piscataway IEEE* 2005 658.
- [30] FARGAS M, von BU SSE A, BUNTE J Flow field analysis during quasi-simultaneous welding of thermoplastics [C] // *Annual Technical Conference——ANTEC, Conference Proceedings Brookfield United States Society of Plastics Engineers* 2005: 196-200.
- [31] DONGHUN N, AVRAHARN B. Analysis of heat transfer in combined socket and butt through transmission infrared welding of plastic pipes [C] // *Annual Technical Conference——ANTEC, Conference Proceedings Brookfield, United States Society of Plastics Engineers* 2005 186-190
- [32] HOULT A P. Laser welding of polymer micro-fluidic devices using novel diode laser sources [C] // *Proceedings of SPIE-The International Society for Optical Engineering Bellingham, United States The International Society for Optical Engineering* 2003 308-313
- [33] CHEN JW, ZHUKO J, CLEMENTS J. Diode laser bonding of planar MEMS/MEMS & microfluidic devices [C] // *Micro- and Nanosystems Materials and Devices Symposium. Warrendale Materials Research Society* 2005 309-314
- [34] HABERSTROH E, LUTZELER R. 3-D laser transmission welding [C] // *Annual Technical Conference——ANTEC, Conference Proceedings Brookfield, United States Society of Plastics Engineers* 2003 1099-1104.
- [35] DONGHUN N. A study of the combined socket and butt welding of plastic pipes using through transmission infrared welding [EB/OL]. [2007-01-15]. <http://gradworks.umj.com/31/60/3160813.html>

(上接第 165 页)

- [3] HUA R Zh, QIAN L J, ZHIT T, *et al*. Short pulse generation in a Nd:YAG laser by silicon [J]. *Opt Commun*, 1997, 143 47-52.
- [4] GUO H Q, LIN Sh X, WANG Q M. Photoluminescence and application of nonlinear optical property of ne-SiS₂ films [J]. *Chinese Journal of Semiconductors* 2006 27(2): 345-349(in Chinese).
- [5] JIANG Q Ch, ZHUO Zh, WANG Y G, *et al* Study on the characteristics of Q-switching Nd:YVO₄ laser with GaAs grown at low temperature [J]. *Acta Optica Sinica* 2006, 35(8): 1133-1136(in Chinese).
- [6] SPUHLER G J, PASCHOTTA R, FLUCK R, *et al* Experimentally confirmed design guidelines for passively Q-switched microchip lasers using semiconductor saturable absorbers [J]. *JOSA*, 1999 B16(3): 376-388.
- [7] WANG Y G, LI Ch Y, MA X Y, *et al* Passive Q-switching in a flashlamp pumped Nd:YAG laser with ion-implanted GaAs wafer [J]. *Chinese Journal of Semiconductors* 2004, 25(2): 148-151(in Chinese).
- [8] WANG JX, ZHUANG X W. Passive Q-switching and mode-locking in a flashlamp-pumped Nd:YAG laser with semiconductor saturable absorption mirror [J]. *Optics and Precision Engineering* 2006 14(4): 585-588(in Chinese).
- [9] ZANG L D, MOU Q Zh. Nano-material and nano-structure [M]. Beijing: Science Press 2001: 147-148
- [10] MA Zh X, LIAO X B, KONG G L. Optical properties of nanocrystalline silicon [J]. *Science in China (Series A)*, 1999 29(7): 625-631(in Chinese).
- [11] YAO W G, YUE L P, QI Zh Zh, *et al* Visible photoluminescence of Ga nanocrystallites embedded in SiO₂ thin film [J]. *Journal of Functional Material* 1997, 28(5): 477-478(in Chinese).
- [12] LI P, WANG Q P, GAO D, *et al* Study of a passively Q-switched Nd:YAG laser with GaAs [J]. *Acta Optica Sinica* 2000 20(6): 774-749(in Chinese).