

文章编号: 1001-3806(2022)05-0697-05

飞秒激光对多光谱滤波片的损伤阈值研究

王云萍¹, 侯军燕², 袁 春¹, 康文运¹, 陈安民³, 张鲁薇³

(1. 北京跟踪与通信技术研究所, 北京 100094; 2. 北京市遥感信息研究所, 北京 100192; 3. 中国科学院 长春光学精密机械与物理研究所 激光与物质相互作用国家重点实验室, 长春 130033)

摘要: 为了测量飞秒激光对多光谱滤波片的损伤阈值, 采用钛:蓝宝石飞秒脉冲激光(800nm, 50fs)对多光谱滤波片的前膜进行了激光损伤阈值的实验研究, 并使用显微镜观测了滤波片前膜的损伤形貌。结果表明, 薄膜在不同脉冲辐照次数(1, 2, 5 和 10)下, 前膜损伤阈值分别为 1.68J/cm², 1.56J/cm², 1.44J/cm² 和 1.42J/cm², 随着脉冲辐照次数的增加, 损伤阈值降低, 激光脉冲的重复辐射会对薄膜形成累积效应; 由于飞秒激光的宽度极短, 薄膜导带电子由多光子电离产生, 并迅速吸收激光能量, 当其能量大于材料的带隙能时, 会与价带电子发生碰撞产生另一个电子, 进而形成大量的自由电子, 对薄膜造成损伤; 在 1-on-1 和 2-on-1 测试方法下, 随着飞秒激光能量密度的增加, 前膜损伤区域的轮廓越来越清晰、规整, 并逐渐出现清晰的分层现象, 这归因于前膜干涉场的分布不同。该研究对多光谱滤波片膜在飞秒激光作用下的损伤效果提供了参考。

关键词: 薄膜; 激光损伤; 飞秒激光; 损伤阈值; 累积效应; 干涉场

中图分类号: O484.4⁺1 文献标志码: A doi:10.7510/jgjs.issn.1001-3806.2022.05.020

Damage threshold of multispectral filter induced by femtosecond laser

WANG Yunping¹, HOU Junyan², YUAN Chun¹, KANG Wenyun¹, CHEN Anmin³, ZHANG Luwei³

(1. Beijing Institute of Tracking and Communication Technology, Beijing 100094, China; 2. Beijing Institute of Remote Sensing Information, Beijing 100192, China; 3. State Key Laboratory of Laser Interaction with Matter, Changchun Institute of Optics, Fine Mechanics and Physics, Chinese Academy of Sciences, Changchun 130033, China)

Abstract: To measure the damage threshold of multispectral filter induced by femtosecond laser, the laser damage threshold of front film of the multispectral filter was experimentally studied by a Ti:sapphire femtosecond pulsed laser (800nm, 50fs), and the damage morphology of the front film of the filter was observed by a microscope. The results show that the damage thresholds of the front film under different pulse irradiation times (1, 2, 5, and 10) are 1.68J/cm², 1.56J/cm², 1.44J/cm², and 1.42J/cm², respectively. The damage threshold decreases with an increase in the pulse irradiation number. The repeated laser radiation will form a cumulative effect on the film. Because the width of the femtosecond laser is very short, the conduction band electrons in the film are produced by multiphoton ionization and quickly absorb the laser energy. When the electron energy is greater than the bandgap energy of the material, it will collide with the valence band electrons to produce another electron. A large number of free electrons are generated, resulting in film damage. Under the 1-on-1 and 2-on-1 test methods, the morphology of the damaged area of the front film becomes more apparent and regular with the increase of femtosecond laser fluence, and a clear layered structure gradually appears. The phenomenon is due to the different distribution of the interference field in the front film. This study provides a reference for the damage effect of multispectral filter film under femtosecond laser.

Key words: thin films; laser damage; femtosecond laser; damage threshold; cumulative effect; interference field

引 言

强激光照射光学元件时能对光学元件造成不可逆

作者简介:王云萍(1975-),女,博士,副研究员,现主要从事光电对抗技术方面的研究。

E-mail:x13391538095@163.com

收稿日期:2021-07-15;收到修改稿日期:2021-09-10

的损伤,这个损伤是一个复杂物理的过程,激光特性和元件属性都对损伤的结果有直接的影响,不同特性(如波长和脉宽)的激光对同一元件的损伤结果不同,由于光学元件的制作过程、方法和条件等的不同也会使得元件破坏的结果不同。尽管激光参数和元件性质都相同,使用环境和条件也会影响元件的破坏效果。在光学元件的应用中,它的损伤和破坏有清晰的

评价规则,光学元件激光的毁伤阈值恰恰是对元件抗毁伤特性最直观的评估,它不仅是保证光学元件正常使用的参照标准,还是研究光学元件损伤机理的重要参数^[1-7]。光辐照光学元件时产生的毁伤涉及到光吸收反射、元件升温、激光特性、元件自身属性、多光子过程、激光场以及激光诱导等离子体等物理过程。对应的薄膜损伤机理主要可以分为:热效应和场效应,其中热效应主要存在于较长脉宽和连续照射中,而场效应主要存在于较短脉冲中^[8-9]。光照射光学元件时,光学元件的薄膜将吸收的光子能量并转变成热量,产生个别位置的高温以及高温度梯度,导致激光对薄膜的融化或由于热应力而导致薄膜破裂损伤,其主要由薄膜中存在杂质和缺陷导致的,因此是非本征的。而对于光场效应,主要探究光波传播过程中形成的驻波对光学薄膜进行的毁伤,在激光辐照期间,电子来不及将获得的能量转移到晶格时,毁伤机制主要是非线性的多光子吸收以及电子雪崩,其主要由材料的本身属性所决定,因此是本征的。

目前,国内外学者研究了光学薄膜的破坏与激光参量、照射光斑尺寸、光照累积次数等要素之间的联系。LI 等人采用输出波长为 1064nm 的纳秒脉冲激光对 HfO₂ 薄膜进行了毁伤测试^[10],发现 1-on-1 和 S-on-1 (S 为脉冲数) 两种测试下的损伤阈值分别为 15.75J/cm² 和 11.90J/cm²。S-on-1 条件下的毁伤阈值明显低于 1-on-1 的阈值,这体现了 S-on-1 测试方式的累积效应。PAN 等人采用 1064nm 波长的激光照射 HfO₂/SiO₂ 光学薄膜^[11],测量了 HfO₂/SiO₂ 的毁伤阈值,结果发现,毁伤阈值随缺陷的增加而下降,形貌表现为热效应。DENG 等人采用输出波长为 1064nm 和 532nm 的纳秒脉冲激光对 SiO₂、HfO₂ 和 TiO₂ 3 种单层薄膜样片进行了损伤测试^[12],结果表明,SiO₂、HfO₂ 和 TiO₂ 的毁伤阈值都随脉冲光频率的增加而减小。WANG 等人采用输出波长为 355nm 的纳秒脉冲激光以 1-on-1 和 S-on-1 两种测试方式下对 HfO₂/SiO₂ 薄膜进行了损伤测试^[13],发现 1-on-1 条件下的损伤阈值远高于 S-on-1 的损伤阈值。在多次辐射的模式下,影响损伤阈值的主要因素是不可逆的激光诱导缺陷和天然缺陷的累积。SHAN 等人采用波长为 1064nm 和 355nm 的纳秒脉冲激光对 HfO₂/SiO₂ 进行了毁伤测试^[14],发现 1064nm 波长的缺陷损伤阈值几乎与 532nm 波长的缺陷阈值相同。

随着激光技术的发展,人们越来越关注飞秒激光与光学薄膜的损伤研究。YUAN 等人研究了飞秒激光

诱导 ZrO₂ 和 HfO₂ 的损伤阈值^[15],发现这两种薄膜的损伤形貌不同于纳秒激光的损伤形貌。NGUYEN 等人讨论了真空中介质氧化膜的飞秒脉冲损伤阈值^[16],发现环境气压不会影响单脉冲飞秒激光的损伤阈值,而多脉冲飞秒激光的损伤阈值随着气压的降低而减小。SHI 等人开展了飞秒激光照射 HfO₂/SiO₂ 薄膜的损伤实验^[17],在 1-on-1 下观测到了膜层剥落的现象。YUAN 等人比较了飞秒和纳秒激光诱导单层 HfO₂ 膜和 HfO₂/SiO₂ 高反膜的损伤^[18],对于纳秒激光,单层 HfO₂ 膜的损伤阈值低于高反膜的损伤阈值;而飞秒激光相反,单层 HfO₂ 膜的阈值高于高反膜的阈值。在纳秒范围内,杂质或缺陷以及热扩散对涂层的激光损伤起着重要作用。基于飞秒激光超快超强的特点,飞秒脉冲照射光学薄膜导致的破坏将不同于长脉冲激光导致的薄膜破坏损伤,强场电离起着重要的作用。

本文中采用钛:蓝宝石脉冲放大系统输出的飞秒激光作为光源,通过 S-on-1 的测试方法,对多光谱滤光片的前膜进行了激光毁伤阈值的测试,使用显微镜观测了滤光片前膜的损伤形貌,并对实验结果进行了分析,从脉冲累积以及光场效应对测量的结果进行了解释。

1 实验

1.1 样品定制

多光谱滤光片不同于传统滤光片,往往需要针对

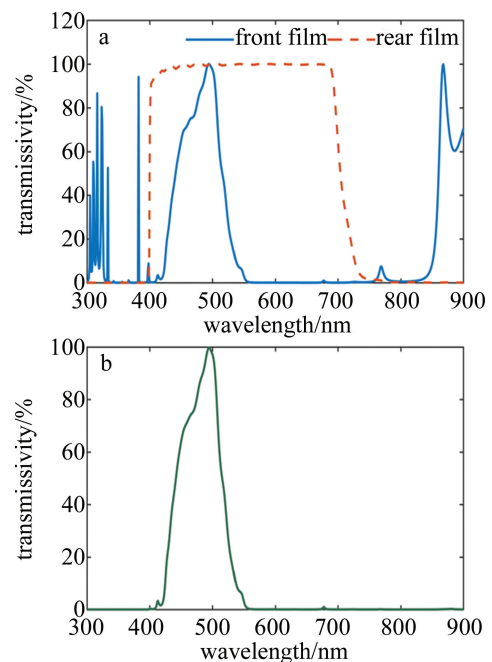


Fig. 1 Spectral curve of the filter
a—spectral curves of front and rear films b—spectral curve of front film and rear film combination

特定的应用场景进行特殊设计。本文中采用电子束蒸发工艺定制了一种基底材料为熔石英的滤光片,图 1 中给出了滤波片的光谱曲线。该滤光片由于其光谱要求比较特殊,膜层采用非规整结构层,基本的层结构是光学厚度不等的高低折射率材料(Ta_2O_5 和 SiO_2)交替叠加,前膜为主峰滤光膜,后膜为截止滤光膜,它们具有不同的膜层结构。前膜和后膜的透射光谱曲线如图 1a 所示,其组合的光谱曲线如图 1b 所示,光谱范围为 440nm~520nm。

1.2 实验装置

图 2 中给出了大气环境中飞秒激光对光学薄膜毁伤的实验装置图。实验中采用钛:蓝宝石脉冲放大系统输出飞秒激光,其波长、宽度分别为 800nm 和 50fs,偏振状态为线偏振。一个由计算机控制旋转的半波片和格兰棱镜对输出的脉冲能量进行调控,脉冲能量的波动低于 2%。使用一个平凸聚焦透镜(焦距为 10cm)将激光脉冲垂直汇聚到样品表面,通过刀片法测量在此处位置的光斑直径为 3 μ m。待测样品被固定在一个由计算机控制的电动 3 维平移台(Thorlabs, PT3/M-Z8,精度为 $\pm 1.5\mu$ m)上,平移台最小移动步长为 1 μ m。一个显微镜和相机用于实时观测飞秒脉冲对薄膜毁伤的实验过程,实验结束后使用更精密的显微镜细致观测前后膜的毁伤形貌。

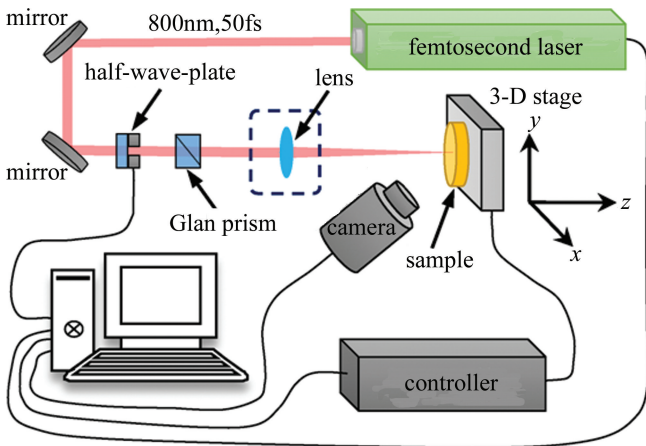


Fig. 2 Experimental setup for femtosecond laser damage to optical thin films

1.3 激光损伤阈值测试

采用国际标准 ISO11254“S-on-1”作用模式^[19],即多次辐照测试。实验过程中,脉冲能量密度逐步降低,直至样品没有被破坏,每个脉冲能量密度采样 30 个点,每两个脉冲照射点之间距离为 200 μ m,依次记录下每个激光能量密度下损伤的测试点占所有测试点的比例。并对激光辐照次数取不同的值(1,2,5 和 10),绘制出不同 S 值对应的破坏几率与脉冲能量密度的曲

线图。在降低能量密度过程中,当毁伤几率为零时候,即为相应的激光诱导损伤阈值(laser induced damage threshold, LIDT)^[20]。

2 结果与讨论

图 3 显示了不同 S 值(1,2,5 和 10)下毁伤几率随脉冲能量密度的变化以及 LIDT 与脉冲数的关系。根据图 3 可以得到 S 值分别为 1,2,5 和 10 时的损伤阈值分别为 1.68J/cm²、1.56J/cm²、1.44J/cm² 和 1.42J/cm²,随着激光照射个数的提高,LIDT 不断降低。这是因为激光脉冲的多次辐射将对光学膜产生累积效应,即使用能量密度低于 LIDT 的激光辐射样品,虽然这个能量密度下的脉冲不足以损伤样品,但对材料表面会产生一个微弱且不可逆的作用,紧接着后续的脉冲会加强这个微弱的作用,当脉冲数目到达一定程度时会对材料表面产生损坏。正是因为累积效应使得 S-on-1 测试下的 LIDT 低于 1-on-1 的 LIDT,且 S 值越大损伤阈值越低,这种现象可以通过显微镜拍摄的图像进行观测。图 4 是不同 S 值(1 和 2)下薄膜损伤形貌图。发现在 S=1 的情况下,激光能量密度为 1.73J/cm² 时照射的中心区域模糊不清;而在相同能量密度下,S=2 时光斑较清晰。YUAN 等人测试了 1-on-1 和 S-on-1 下激光对光学薄膜的 LIDT^[21],发现在 1000-on-1 方法下的 LIDT 比 1-on-1 方法下的 LIDT 低。WANG 等人^[13]在 1-on-1 和 S-on-1 两种模式下进行激光损伤

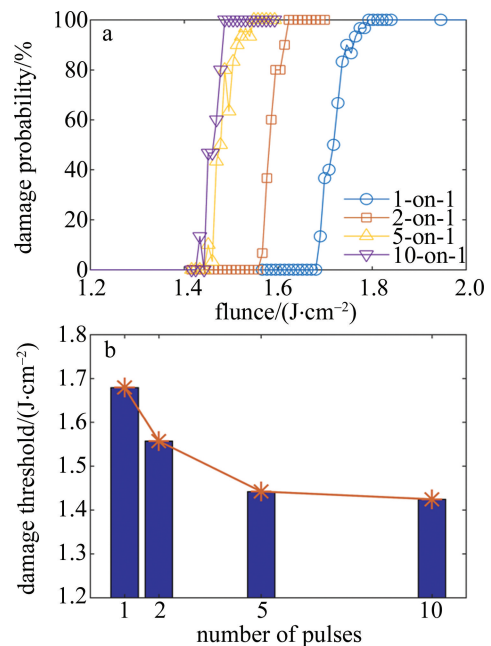


Fig. 3 Damage probability and threshold under different S values (1, 2, 5 and 10) for front film
a—damage probability b—damage threshold

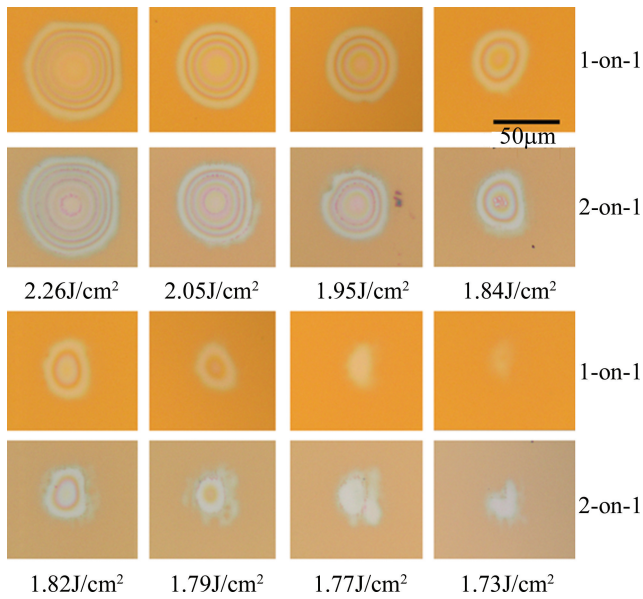


Fig. 4 Damage morphologies of front film under 1-on-1 and 2-on-1

探测,发现单次辐射激光诱导的 LIDT 远高于多次辐射的 LIDT。

飞秒激光具备的超短和超强性质,它对光学薄膜的毁伤机制主要为非线性的多光子电离、碰撞电离以及隧穿电离。一般认为,当飞秒脉冲的持续区间相对较长时,非线性的多光子电离、碰撞电离共同起作用;当脉宽较短时,由多光子电离形成的自由电子足以对薄膜造成损伤;当脉宽极短时,主要的机制是隧穿电离^[22-23]。实验过程中使用的脉宽为 50fs,所以只考虑多光子电离对光学薄膜的损伤作用。初始导带电子由多光子电离产生,随后导带电子迅速吸收激光能量,当其能量大于材料的带隙能时会与价带电子发生碰撞产生另一个电子,进而形成极多的自由电子,当它的浓度达到 10^{21} cm^{-3} 时便会造成薄膜的损伤^[22,24]。一般而言,由多光子电离产生的自由电子足够多,而由材料本身的杂质和缺陷产生的电子非常少以至于可以被忽略。所以,飞秒脉冲对光学膜的毁伤是本征的,由材料自身性质决定^[25]。薄膜中自由电子的激发过程取决于局部的场强分布,为此,作者计算了薄膜的电场分布。由于膜层为中心厚度不等的非规整膜系结构,因而呈现出与常规滤光片不同的电场分布特性,图 5 中给出了 800nm 波长的前膜电场分布。

由图 5 可以看出,多光谱滤光片前膜确实存在局部的场增强效应,只有前部分膜层有场分布。干涉场的强弱与薄膜驻留的激光能量多少相对应,这样特定的光学薄膜在激光场的辐照下,薄膜某一位置处的脉冲电场越高则 LIDT 越低^[26]。由此可知,前膜的损伤

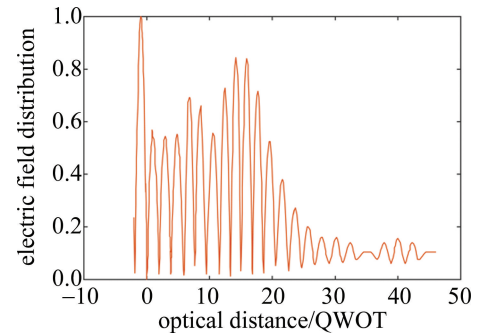


Fig. 5 Electric field distribution of front film for 800nm wavelength
形貌出现逐层剥离的现象,图 4 验证了这一结论。另外,前膜电场随膜层分布较规律,存在随着薄膜厚度(图 5 中, QWOT 是 1/4 的波长光学厚度(quarter wavelength optical thickness))的增加,电场强度逐渐下降的趋势。因此,在 1-on-1 和 2-on-1 测试方法下,随着飞秒激光能量密度的增加,前膜损伤区域的轮廓越来越清晰、规整,并逐渐出现清晰的分层现象,如图 4 所示。因此,当前实验条件下,薄膜的损伤机制主要是场效应。

3 结论

利用飞秒激光脉冲对多光谱滤光片的前后膜进行了激光损伤阈值测试,并使用显微镜观测滤光片前后膜的损伤形貌。发现随着照射次数的增加损伤阈值逐渐降低,这主要是由于激光的多次辐射会对光学薄膜产生累积效应所引起的。由于飞秒激光的宽度极短,薄膜导带电子由多光子电离产生,随后导带电子迅速吸收激光能量,当其能量大于材料的带隙能时会与价带电子发生碰撞产生另一个电子,进而形成大量的自由电子,从而对薄膜造成损伤。其次,在 1-on-1 和 2-on-1 测试方法下,滤光片前膜损伤区域出现清晰的分层现象。计算的薄膜电场分布表明,电场随着膜层数的增加而下降,电场的分布是薄膜分层损伤的主要原因。

参考文献

- [1] SCHAFFER C B, BRODEUR A, MAZUR E. Laser-induced breakdown and damage in bulk transparent materials induced by tightly focused femtosecond laser pulses [J]. *Measurement Science and Technology*, 2001, 12(11): 1784-1794.
- [2] NEAUPORT J, LAVASTRE E, RAZÉ G, *et al.* Effect of electric field on laser induced damage threshold of multilayer dielectric gratings [J]. *Optics Express*, 2007, 15(19): 12508-12522.
- [3] BONOD N, NÉAUPORT J. Optical performance and laser induced damage threshold improvement of diffraction gratings used as compressors in ultra high intensity lasers [J]. *Optics Communications*, 2006, 260(2): 649-655.

- [4] UTEZA O, BUSSIÈREAB B, CANOVA F, *et al.* Laser-induced damage threshold of sapphire in nanosecond, picosecond and femtosecond regimes [J]. *Applied Surface Science*, 2007, 254(4): 799-803.
- [5] DAI G, LU J, WANG B, *et al.* Analysis and comparison of coating damage induced by laser at 1ms and 10ns pulse-widths [J]. *Laser Technology*, 2011, 35(4): 477-480(in Chinese).
- [6] ZHENG Y L, HU Y H, ZHAO N X, *et al.* Analysis of the influence of pulse width and repetition frequency on damage threshold of HgCdTe detector [J]. *Laser Technology*, 2018, 42(2): 265-270(in Chinese).
- [7] LÜ X M, LI Z W, ZHANG J M, *et al.* Surface damage study of silicon induced by combined millisecond and nanosecond laser with different delays [J]. *Laser Technology*, 2020, 44(6): 695-699(in Chinese).
- [8] WANG B, YUAN Q, NI X, *et al.* Effect of defects on long-pulse laser-induced damage of two kinds of optical thin films [J]. *Applied Optics*, 2010, 49(29): 5537-5544.
- [9] WANG B, ZHANG H, YUAN Q, *et al.* Temperature field analysis of single layer TiO₂ film components induced by long-pulse and short-pulse lasers [J]. *Applied Optics*, 2011, 50(20): 3435-3441.
- [10] LI Y Y, ZHANG W Y, LIU Zh, *et al.* Cumulative effect of thin film laser damage under S-on-1 measurement mode [J]. *Laser Technology*, 2018, 42(1): 39-42(in Chinese).
- [11] PAN Sh M, WEI Y W, AN Ch H, *et al.* Electric field enhancement effect and damage characteristics of nodular defect in 45° high-reflection coating [J]. *High Power Laser and Particle Beams*, 2020, 32(7): 71006(in Chinese).
- [12] DENG X H, SU J H. Influence of different wavelengths on damage threshold of dielectric films [J]. *Optics & Optoelectronic Technology*, 2020, 18(4): 96-105(in Chinese).
- [13] WANG Y, ZHAO Y, SHAO J, *et al.* Effect of native defects and laser-induced defects on multi-shot laser-induced damage in multilayer mirrors [J]. *Chinese Optics Letters*, 2011, 9(9): 093102-093105.
- [14] SHAN C, ZHAO X, GAO Y, *et al.* Multi-wavelength coupling effect of laser-induced defect damage in beam splitter films captured by a three-dimensional spatially and temporally resolved method [J]. *Optics & Laser Technology*, 2020, 130: 106368.
- [15] YUAN L, ZHAO Y A, HE H, *et al.* Femtosecond laser induced damage of optical coatings [J]. *Chinese Optics Letters*, 2007, 5(s1): S257-S259.
- [16] NGUYEN D N, EMMERT L A, SCHWOEBEL P, *et al.* Femtosecond pulse damage thresholds of dielectric coatings in vacuum [J]. *Optics Express*, 2011, 19(6): 5690-5697.
- [17] SHI F, ZHU Zh W, CHENG X A, *et al.* The evolution of coating threshold damage to peeling off under femtosecond laser irradiation [J]. *Journal of Infrared & Millimeter Waves*, 2017, 36(3): 361-366(in Chinese).
- [18] YUAN L, ZHAO Y, SHANG G, *et al.* Comparison of femtosecond and nanosecond laser-induced damage in HfO₂ single-layer film and HfO₂-SiO₂ high reflector [J]. *Journal of the Optical Society of America*, 2007, B24(3): 538-543.
- [19] BECHER J, BERNHARDT A. ISO 11254: An international standard for the determination of the laser-induced damage threshold [J]. *Proceedings of the SPIE*, 1994, 2114: 703-713.
- [20] WU S J, SHI W, SU J H. Using an external electric field to reduce laser damage of DLC films [J]. *International Journal of Materials and Product Technology*, 2013, 45(1/4): 74-82.
- [21] YUAN L, ZHAO Y A, HE H B, *et al.* Single-pulse and multi-pulse femtosecond laser damage of optical single films [J]. *High Power Laser and Particle Beams*, 2006, 18(4): 595-598(in Chinese).
- [22] KAISER A, RETHFELD B, VICANEK M, *et al.* Microscopic processes in dielectrics under irradiation by subpicosecond laser pulses [J]. *Physical Review*, 2000, B61(17): 11437-11450.
- [23] CHIMIER B, UTÉZA O, SANNER N, *et al.* Damage and ablation thresholds of fused-silica in femtosecond regime [J]. *Physical Review*, 2011, B 84(9): 094104.
- [24] MERO M, LIU J, RUDOLPH W, *et al.* Scaling laws of femtosecond laser pulse induced breakdown in oxide films [J]. *Physical Review*, 2005, B71(11): 115109.
- [25] JASAPARA J, NAMPOOTHIRI A V V, RUDOLPH W, *et al.* Femtosecond laser pulse induced breakdown in dielectric thin films [J]. *Physical Review*, 2001, B63(4): 045117.
- [26] ZHU Zh W, CHENG X A, WANG D, *et al.* Damage and its mechanism to the visible wavelength filter irradiated by femtosecond laser [J]. *Journal of Infrared & Millimeter Waves*, 2012, 31(4): 330-335(in Chinese).