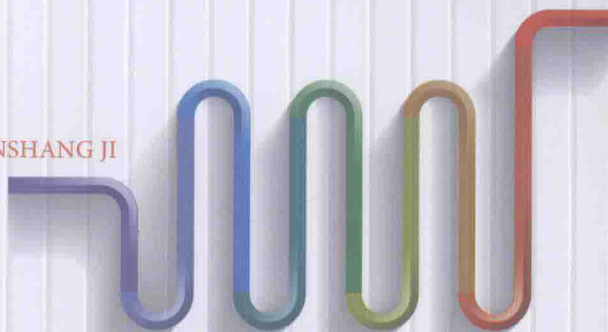


光学薄膜激光损伤及 激光预处理

李 笑 著

GUANGXUE BAOMO JIGUANG SUNSHANG JI
JIGUANG YUCHULI



北京邮电大学出版社
www.buptpress.com

光学薄膜激光损伤及 激光预处理

李 笑 著



北京邮电大学出版社
www.buptpress.com

内 容 简 介

本书较为详尽地介绍了光学薄膜激光损伤及激光预处理技术的研究进展,包括光学薄膜激光损伤机理、光学薄膜激光损伤测试系统、典型光学薄膜的损伤特性、激光预处理技术的基本原理及实现方法、典型光学薄膜激光预处理效应、激光预处理技术在研究光学薄膜中缺陷特征的应用,最后简要介绍了光学薄膜在飞秒脉冲激光作用下的损伤机理及损伤行为方面的研究成果。

本书可供从事光学薄膜相关领域的研究学者和学生参考使用。

图书在版编目(CIP)数据

光学薄膜激光损伤及激光预处理 / 李笑著. -- 北京: 北京邮电大学出版社, 2015. 12
ISBN 978-7-5635-4585-8

I. ①光… II. ①李… III. ①光学薄膜—激光损伤—预处理—研究 IV. ①TB43

中国版本图书馆 CIP 数据核字(2015)第 284532 号

书 名: 光学薄膜激光损伤及激光预处理

著作责任者: 李 笑 著

责任编辑: 刘春棠

出版发行: 北京邮电大学出版社

社 址: 北京市海淀区西土城路 10 号(邮编:100876)

发行部: 电话: 010-62282185 传真: 010-62283578

E-mail: publish@bupt.edu.cn

经 销: 各地新华书店

印 刷: 北京九州迅驰传媒文化有限公司

开 本: 720 mm×1 000 mm 1/16

印 张: 14

字 数: 271 千字

版 次: 2015 年 12 月第 1 版 2015 年 12 月第 1 次印刷

ISBN 978-7-5635-4585-8

定 价: 36.00 元

· 如有印装质量问题,请与北京邮电大学出版社发行部联系 ·

前 言

光学薄膜作为一种重要的光学元件,广泛地应用于光学工程、现代光学、光电子技术及与其相关的科学技术领域,特别是在激光的产生、传输、调制、能量分割与合成,其他能量与光能相互转换过程中具有重要的作用。随着国家点火工程(NIF)激光核聚变用激光器及民用激光加工的需要,现代激光器向高能量、大功率方向发展,要求激光功率和能量输出大幅度增大。这对作为激光器重要元件的光学薄膜的抗激光损伤能力的要求也大为提高。

要实现高损伤阈值激光薄膜的制备,首先必须弄清楚光学薄膜激光诱导损伤的机制,然后通过改进光学薄膜的制备工艺来提高光学薄膜的抗激光损伤能力;其次在现有制备光学薄膜的设备及技术基础上,通过薄膜后处理技术提高光学薄膜的损伤阈值,如高温退火、激光预处理等。

较早论述光学薄膜激光损伤及激光预处理的专著是 Roger M Wood 于 2003 年出版的 *Laser-Induced Damage of Optical Materials*。这本专著于 2011 年由西南交通大学出版社翻译出版为《光学材料的激光诱导损伤》。国内较早介绍激光损伤方面的专著是孙承纬等编著的《激光辐照效应》。这些著作系统论述了光学材料中的激光诱导损伤研究的知识基础、材料特性、损伤理论与模型、测量表征等方面的内容,总结了许多技术和方法、规律、数据、标准等研究成果的适用性。国际上在光学薄膜激光损伤领域学术会议方面,影响比较大的是“Optical Interference Coating Topical Meeting”,每三年举办一次,到 2015 年已经举办了 12 届。该专题会议的论文数量越来越大,并且学术水平也越来越高,涉及的范围也越来越广泛。在美国 Boulder 召开的“Laser-Induced Damage in Optical Materials”现在已经达到 47 届。该专题会议从 20 世纪 60 年代开始,极大地推动了激光材料激光损伤及其机制的发展。该专题会议还集中了大部分关于激光薄膜的激光预处理方面的研究成果。

本书较为详尽地介绍了光学薄膜的损伤机理、国内外先进的光学薄膜损伤机制的测试技术、典型光学薄膜的损伤特性,并且重点介绍光学薄膜的激光预处理技术,包括激光预处理技术的基本原理、实现激光预处理的基本方法、典型光学薄膜的激光预处理以及激光预处理在光学薄膜中的应用,重点介绍激光预处理结合光斑效应提取光学薄膜中损伤缺陷的特征参数的方法。最后简要介绍了光学薄膜在飞秒脉冲激光作用下的损伤机理及损伤行为。

本书共分为6章。第1章介绍光学薄膜激光诱导激光损伤机理,包括薄膜的本征吸收和杂质吸收及由此导致的雪崩离化、多光子吸收等。同时介绍了电磁场分布理论、温度分布理论和杂质吸收理论等重要的分析激光损伤的理论模型。同时介绍了由这些理论模型分析激光损伤的热力学过程。

第2章介绍了光学薄膜激光损伤的测试方法。论述了损伤阈值的测试规范、测试程序及测试过程对测试系统的要求。

第3章详细介绍了典型光学薄膜的激光损伤行为。分析了纳秒脉冲激光辐照下光学薄膜损伤的效应。对高反射膜、减反射膜、偏振膜、三倍频膜及真空环境下光学薄膜的损伤行为及影响因素也作了详细的介绍。

第4章介绍光学薄膜激光预处理技术的发现、发展状况、实现方法及典型光学薄膜的激光预处理效应4种机制。对典型的光学薄膜的具体预处理过程及分析过程作了详细的分析。

第5章介绍了激光预处理技术在研究光学薄膜中缺陷的应用。包括应用此方法提取缺陷特征参数的原理、实现方法以及数据处理方法等。

第6章简要介绍了飞秒激光的产生、应用以及飞秒激光薄膜的损伤机理。

本书的主体内容来源于本书作者李笑的博士论文及博士后出站报告,以及文献资料,作者对博士及博士后期间给予帮助的各位老师、研究生同学等师友表示衷心的感谢。

编入本书的部分研究内容受到国家自然科学基金配套项目(项目号:19005518122)、北京工商大学青年教师启动基金项目(项目号:QNJJ2014-19)、国家自然科学基金(项目号:11174020)的资助。

由于作者水平有限,且光学薄膜损伤方面的研究也在飞速发展中,本书难免有不足之处,衷心希望得到同行和读者的批评指正。



2015年6月

目 录

| | |
|------------------------------|----|
| 第 1 章 光学薄膜激光诱导损伤机理 | 1 |
| 1.1 光学薄膜激光诱导损伤机理概述 | 1 |
| 1.1.1 光学薄膜的本征吸收 | 1 |
| 1.1.2 杂质吸收 | 2 |
| 1.1.3 雪崩离化 | 3 |
| 1.1.4 多光子吸收 | 4 |
| 1.1.5 热力耦合损伤模型 | 6 |
| 1.2 光学薄膜激光损伤的电磁场分布理论 | 7 |
| 1.2.1 光学薄膜中的电磁场分布理论 | 8 |
| 1.2.2 常用光学薄膜中的电场分布 | 9 |
| 1.3 光学薄膜激光损伤的温度场分布理论 | 12 |
| 1.3.1 光学薄膜激光损伤温度场理论模型 | 12 |
| 1.3.2 温度场理论的应用 | 14 |
| 1.4 光学薄膜激光损伤的杂质吸收理论 | 19 |
| 1.4.1 光学薄膜中的杂质缺陷 | 19 |
| 1.4.2 光学薄膜损伤的杂质吸收理论 | 20 |
| 1.4.3 杂质诱导的电场增强 | 22 |
| 1.5 杂质诱导光学薄膜激光损伤的热力学过程 | 23 |
| 1.5.1 受内压球壳模型 | 23 |
| 1.5.2 杂质诱导相变热力耦合损伤理论 | 25 |
| 参考文献 | 27 |
| 第 2 章 光学薄膜激光损伤测试方法 | 32 |
| 2.1 损伤阈值测试规范 | 32 |
| 2.1.1 损伤阈值测试的重要概念 | 33 |

| | | |
|------------|--|-----------|
| 2.1.2 | 损伤阈值测试方式 | 34 |
| 2.1.3 | 损伤阈值的确定 | 36 |
| 2.2 | 光学薄膜激光损伤阈值测试系统 | 37 |
| 2.2.1 | 损伤测试原理及装置 | 37 |
| 2.2.2 | 对仪器的具体要求 | 38 |
| 2.3 | 光学薄膜激光损伤阈值测试过程 | 40 |
| 2.3.1 | 测试前的准备工作 | 40 |
| 2.3.2 | 1-on-1 损伤阈值测试过程 | 45 |
| 2.3.3 | S-on-1 损伤阈值测试过程 | 46 |
| | 参考文献 | 50 |
| 第3章 | 典型光学薄膜的激光损伤特性 | 53 |
| 3.1 | 光学薄膜损伤的几种不同效应 | 53 |
| 3.1.1 | 光斑尺寸效应 | 53 |
| 3.1.2 | 脉冲效应 | 55 |
| 3.1.3 | 脉宽效应 | 55 |
| 3.1.4 | 波长效应 | 57 |
| 3.2 | 高反射膜的激光损伤特性 | 57 |
| 3.3 | 减反射膜的激光损伤特性 | 66 |
| 3.4 | 偏振膜的激光损伤特性 | 74 |
| 3.5 | 三倍频膜的激光损伤特性 | 77 |
| 3.6 | 真空环境下的薄膜损伤简介 | 80 |
| | 参考文献 | 88 |
| 第4章 | 光学薄膜激光预处理技术 | 93 |
| 4.1 | 光学薄膜激光预处理技术概述 | 93 |
| 4.2 | 光学薄膜激光预处理机理 | 94 |
| 4.2.1 | 电子杂质缺陷模型 | 94 |
| 4.2.2 | 表面平滑模型 | 97 |
| 4.2.3 | 缺陷清除机制 | 98 |
| 4.2.4 | 激光加热退火模型 | 100 |
| 4.3 | 激光预处理的实现方法 | 100 |
| 4.4 | 典型光学薄膜的激光预处理 | 107 |
| 4.4.1 | HfO ₂ /SiO ₂ 多层膜的激光预处理 | 107 |

| | | |
|------------|--|------------|
| 4.4.2 | LaF ₃ /MgF ₂ 介质薄膜的激光预处理 | 119 |
| 4.4.3 | Y ₂ O ₃ /SiO ₂ 薄膜的激光预处理 | 126 |
| 4.4.4 | 熔石英的激光预处理 | 128 |
| 4.5 | CO ₂ 激光预处理光学薄膜 | 133 |
| 4.5.1 | CO ₂ 激光预处理 ZrO ₂ 单层膜 | 134 |
| 4.5.2 | CO ₂ 激光预处理 ZrO ₂ /SiO ₂ 多层膜 | 137 |
| 4.5.3 | CO ₂ 激光预处理 HfO ₂ /SiO ₂ 基频高反射膜 | 138 |
| 4.5.4 | CO ₂ 激光预处理 351 nm Y ₂ O ₃ /SiO ₂ 增透膜 | 140 |
| | 参考文献 | 145 |
| 第5章 | 光学薄膜激光预处理技术的应用 | 150 |
| 5.1 | 激光薄膜中缺陷的分类及分布模型 | 150 |
| 5.1.1 | 光学薄膜中缺陷的分类 | 150 |
| 5.1.2 | 缺陷均匀分布模型 | 152 |
| 5.1.3 | 缺陷概率分布模型 | 158 |
| 5.2 | 多光斑拟合与多光斑损伤测试方法 | 159 |
| 5.2.1 | 多光斑拟合方法 | 160 |
| 5.2.2 | 多光斑损伤测试方法 | 160 |
| 5.3 | 典型薄膜的光斑效应实验 | 161 |
| 5.3.1 | 单层膜的光斑效应 | 161 |
| 5.3.2 | 多层膜的光斑效应 | 161 |
| 5.4 | 光学薄膜中损伤缺陷的研究方法 | 164 |
| 5.4.1 | 利用全内反射显微镜研究缺陷 | 165 |
| 5.4.2 | 利用缺陷的特征参数研究缺陷 | 168 |
| 5.5 | 采用光斑效应和激光预处理结合研究缺陷 | 178 |
| 5.5.1 | HfO ₂ 单层膜中的缺陷 | 178 |
| 5.5.2 | SiO ₂ 单层膜中的缺陷 | 181 |
| 5.5.3 | HfO ₂ /SiO ₂ 高反射膜中的缺陷 | 185 |
| 5.5.4 | ZrO ₂ /SiO ₂ 高反射膜中的缺陷 | 186 |
| | 参考文献 | 188 |
| 第6章 | 飞秒脉冲激光诱导薄膜损伤简介 | 192 |
| 6.1 | 飞秒激光的产生 | 192 |
| 6.2 | 光学薄膜在飞秒激光器中的应用 | 196 |

| | |
|---------------------------------|-----|
| 6.3 飞秒激光在微加工中的应用 | 198 |
| 6.4 飞秒激光的损伤机理 | 199 |
| 6.4.1 飞秒激光与固体介质作用的物理过程 | 199 |
| 6.4.2 飞秒激光与固体作用的介质能量吸收与传导 | 202 |
| 6.4.3 飞秒脉冲激光作用下光学薄膜的损伤机理 | 204 |
| 6.4.4 飞秒脉冲激光作用下薄膜损伤阈值的特点 | 207 |
| 参考文献 | 210 |

第 1 章 光学薄膜激光诱导损伤机理

1.1 光学薄膜激光诱导损伤机理概述

介质光学薄膜的激光损伤过程是一个极其复杂的过程,取决于两个方面:辐照激光的参数,包括激光的波长、脉冲宽度、偏振态、激光模式、光斑特性以及激光辐照方式等;光学薄膜本身的性质,包括薄膜的光学特性、薄膜的膜料、制备工艺、薄膜的结构以及制备过程中引入的杂质缺陷等^[1-3]。由此导致光学薄膜的损伤过程和损伤机理有很大差异,但最基本的过程是热过程,激光能量通过光学薄膜的本征吸收、杂质吸收、非线性吸收等吸收形式转化为热,由热熔融或者热力耦合作用最终导致薄膜的损伤。Bloembergen N. 和 Epifanov A. S. 等人提出了雪崩离化和多光子吸收,Hopper R. W. 和 Uhlmann D. R. 等人提出了杂质吸收和节瘤缺陷,Goldenberg H. 和 Tranter M. A. 等人提出了热爆炸损伤模型及热力耦合模型等损伤机理。

1.1.1 光学薄膜的本征吸收

从经典理论角度看,材料吸收激光能量的机制是共振吸收^[4,5],电磁理论把材料中的原子分子体系看成是谐振子,在电场作用下,由于阻尼因子的存在,材料在共振频率附近会出现强烈吸收。例如,介质材料在远红外区域的剩余吸收就是光波与材料晶格振动声子共振的吸收。从量子理论角度看,材料对光能量的吸收,是由于材料中的电子一次性吸收的光子能量大于材料带隙而跃迁到高能态造成的。从薄膜基体角度看,将薄膜材料自身的吸收看作薄膜的本征吸收,将薄膜中杂质以及其附近结构无序部分的吸收看作非本征吸收,或者称为杂质吸收。从杂质本身的角度看,杂质吸收实际上也可以看作是杂质材料本身的本征吸收。

对于一般的电介质材料,若其约束的电子数密度为 N_e ,则该电介质的介电常

数 ϵ 可以用一个复数来表示:

$$\epsilon = \epsilon_1 + i\epsilon_2 = \frac{1 + (N_e e^2 / m_e \epsilon_0) f_{osc} (\omega^2 - \omega_0^2 + i\Gamma\omega)}{(\omega^2 - \omega_0^2)^2 - \Gamma^2 \omega^2} \quad (1.1)$$

其中, ω 为光的角频率; ω_0 为共振吸收的共振频率; m_e 为电子质量; e 为电子的电荷量; f_{osc} 为振子长度, 可以用跃迁概率量度; Γ 为共振宽度, 由电子终态和初始状态的有效宽度计算。

对于一般电介质材料, 当光波频率等于共振频率时, 介电常数虚部为极大, 它与光频率和共振宽度的乘积成反比。当光波频率远离共振频率且共振宽度又很窄时, 介电常数的虚部很小, 但永不为零。

引入复折射率 N 来表示吸收性介质的折射率, 其表达式为^[6]

$$N = n - ik \quad (1.2)$$

则折射率和介电常数之间满足如下关系式:

$$N^2 = \epsilon_1 + i\epsilon_2 \quad (1.3)$$

显然, 由式(1.2)和式(1.3)可知,

$$n^2 = (\sqrt{\epsilon_1^2 + \epsilon_2^2} + \epsilon_1) / 2 \quad (1.4)$$

$$k^2 = (\sqrt{\epsilon_1^2 + \epsilon_2^2} - \epsilon_1) / 2 \quad (1.5)$$

设入射激光为高斯光束, 高斯半径为 a , 高斯光束的峰值功率密度和峰值能量密度分别为 I_0 和 J_0 。激光能量的表达式为^[7]

$$I = I_0 \exp(-r^2/a^2) \quad (1.6)$$

若薄膜材料的热扩散长度为 D_t , 吸收系数为 α , 则激光束入射到介质薄膜的瞬间, 薄膜中将产生温度响应 $T(r, z, t)$:

$$T(r, z, t) = \frac{\alpha J_0 a^2}{\rho c \sqrt{\pi D_t} (4D_t + a^2)} \exp\left(\frac{-x^2}{4D_t} - \frac{r^2}{4D_t + a^2}\right) \quad (1.7)$$

对于一般材料, 吸收系数 $\alpha = \frac{2\pi\kappa}{\lambda}$ 。通常情况下吸收系数较小, 光学薄膜的本征吸收很难引起损伤。

1.1.2 杂质吸收

对介质膜来讲, 膜层的基质材料具有非常低的消光系数, 一般的脉冲激光很难直接通过本征吸收进行破坏, 所以光学薄膜的损伤通常是通过杂质缺陷吸收和非线性吸收实现的。

该模型首先由 Hopper 和 Uhlmann^[8] 提出, 在多脉冲作用下尽管每个脉冲的能量是不足以达到破坏杂质的, 但是随着温度的升高、化学反应的速率增加, 材料特性逐步恶化。这种情况在含有吸收性缺陷的材料中是经常会发生的。Manenkov 等人^[9,10] 认为, 在被加热的杂质附近会产生热弹应力, 由于力学化学反应速率常数的逐

步增加,材料特性的逐步恶化是一个加速过程。

$$K \sim \exp\left(-\frac{U_0 - \gamma\sigma}{kT}\right) \quad (1.8)$$

其中, U_0 为动能; γ 为一个与结构有关的参数; σ 为剩余应力; k 为玻尔兹曼常数。Grigorev 等人^[11]探讨了热量从吸收杂质向周围介质热扩散的可能性,并认为在某些特殊情况下,热扩散可能导致对激光吸收的自增强。

Kolduno M. F. 等人^[12,13]把热爆炸过程引入重复率激光损伤,他们认为,重复率激光损伤是与吸收性杂质和缺陷紧密相关的,而这种吸收性杂质缺陷可以根据其吸收特性的不同分为强吸收和弱吸收两种。并且该理论假设最终的损伤是由光子离化过程导致的热爆炸引起的。对于包含吸收性杂质缺陷的破坏是由于激光加热杂质缺陷导致紫外热辐射,进而导致附近薄膜材料的光离化,最后导致热爆炸。

热爆炸所需的激光能量密度阈值为

$$I_{\text{ph}} = 4\pi R \chi_2 \left(\frac{d\sigma(T, R)}{dT} \right)_{T=T_{\text{ph}}}^{-1} \quad (1.9)$$

其中, T_{ph} 为热爆炸阈值温度; χ_2 为介质膜层的热导率; R 为杂质或缺陷的半径; $\sigma(T, R)$ 为吸收截面。当缺陷温度低于 T_{ph} 时,光离化过程尚不足以造成灾难性的破坏,但是由于动态和静态的剩余应力作用产生各种不同类型的点缺陷(在晶体和玻璃中产生色心,聚合物中产生“热基”),这些附加点缺陷在后续的重复率激光辐照下继续吸收能量,导致吸收区域的扩大。这个过程可以用动力学方程描述:

$$\frac{dR}{dt} = \frac{d}{\tau_r} \exp\left(-\frac{A}{T}\right) \quad (1.10)$$

其中, $R(t)$ 为吸收区域的有效区域; d 、 τ_r 、 A 分别为由于附加缺陷产生及其持续时间以及有效能量导致的吸收边界偏移量。

关于杂质吸收理论的内容将在 1.4 节进行详细的讨论。

1.1.3 雪崩离化

在杂质缺陷得到严格控制的条件下,激光与薄膜相互作用的非线性过程就成为薄膜损伤的主要诱因,雪崩击穿就是重要的非线性吸收过程^[14,15]。

多光子离化等多种过程,在薄膜内产生少量的初始电子,这些初始电子在被声子散射延迟的激光作用下,在导带中运动加速到阈值能量 ϵ_i ,迅速产生光离化,从薄膜材料的价带中激发次级电子进入导带底部,该电子交出相应的能量后,也下落到导带底部。位于导带底部的电子再从激光中获取能量,如此周而复始使电子密度雪崩式地增加,最终达到足够高的电子密度,通过焦耳热最终摧毁晶格。

导带中电子的加热碰撞离化由 Fokker-Planck 方程描述^[16]:

$$\frac{\partial f(\epsilon, t)}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial \epsilon} [V(\epsilon)f(\epsilon, t)] - D(\epsilon)\frac{\partial f(\epsilon, t)}{\partial t} = S(\epsilon, t) \quad (1.11)$$

其中, $V(\epsilon) = R_j(\epsilon, t) - E_p\gamma(\epsilon) = \frac{\sigma(\epsilon)E^2(t)}{3} - E_p\gamma(\epsilon)$; $D(\epsilon) = \frac{2}{3}\sigma(\epsilon)E^2\epsilon$; ϵ 为电子能量; $f(\epsilon, t)$ 为能量在 $\epsilon + d\epsilon, \tau$ 时间的电子数量密度; R_j 对应电子的焦耳热, 它借助于每个电子的传导来体现,

$$\sigma(\epsilon) = \frac{e^2\tau_m}{m^*(1 + \omega^2\tau_m^2)} \quad (1.12)$$

其中, $\gamma(\epsilon)$ 为电子能转移到晶格的速率; $1/\tau_m(\epsilon)$ 为动量散射速率; $D(\epsilon)$ 为能量扩散系数, 它正比于电子传导率 σ 与激光强度 E^2 的乘积, 式(1.11)右边最后一项表示能量源和电子势, 可表示为

$$S(\epsilon, t) = R_{\text{imp}}(\epsilon, t) + R_{\text{pi}}(\epsilon, t) \quad (1.13)$$

其中, $R_{\text{imp}}(\epsilon, t)$ 为碰撞离化, 它由等价的分配于两个结果电子之间的剩余动能组成:

$$R_{\text{imp}}(\epsilon, t) = -v_i(\epsilon)f(\epsilon) + 4v_i(2\epsilon + u_i)f(2\epsilon + u_i) \quad (1.14)$$

其中, v_i 为碰撞离化产生电子的速率因子, 电子产生的总速率表示为所有能量的积分:

$$\int v_i(\epsilon)f(\epsilon)d\epsilon \quad (1.15)$$

R_{pi} 为离化项, 当能量在带隙以上时离化速率快速增长, 碰撞离化源可由边界条件替代:

$$f(u_i, t) = 0, \quad J(0, t) = 2J(u_i, t) \quad (1.16)$$

式(1.13)表示电子倍增条件, 即电子达到可以通过碰撞离化产生次级电子的能量 u_i 时, 产生两个能量为 0 的电子。

1.1.4 多光子吸收

对于透明材料来说, 它的吸收可能是由多种过程引起的, 当激光电场足够高时, 多光子吸收可能是这些过程的主要因素之一^[17]。假设材料的带隙为 E_g , 入射光子能量为 $\hbar\omega$, v 级的光子吸收可以定义为 $v = \langle E_g / (\hbar\omega) + 1 \rangle$ (注: 尖括号表示数值取整数)。由多光子吸收引起的能量损耗由唯象的速率方程给出^[17, 18]:

$$\frac{dI}{dt} = -(\alpha_1 I^1 + \alpha_2 I^2 + \dots + \alpha_n I^n) = -\sum_{v=1}^n \alpha_v I^v \quad (1.17)$$

其中, α_v 为 v 级多光子吸收系数; I 为激光强度(单位: W/cm)。光流的衰减速率可表示为

$$\frac{dI}{dt} = -\frac{c}{\sqrt{\epsilon_{\infty}}} \sum_{v=1}^n \alpha_v I^v \quad (1.18)$$

其中, c 为光速; ϵ_{∞} 为材料的高频介电常数。在电介质材料中能流密度 I (单位: W/cm^2) 与电场强度振幅峰值 E_0 (单位: V/cm) 之间的关系为

$$I = \frac{1}{2} \frac{E_0^2 \sqrt{\epsilon_{\infty}}}{R_0} \quad (1.19)$$

其中, R_0 为真空阻抗 (377Ω), 如果光子密度为 N_{ph} (单位: $/cm^3$), 则

$$I = \frac{c}{\sqrt{\epsilon_{\infty}}} \hbar \omega N_{ph} \quad (1.20)$$

此时, 光子被吸收的速率为

$$\frac{dN_{ph}}{dt} = \frac{\alpha_v}{\hbar \omega} I^v = -v \frac{dN_c}{dt} \quad (1.21)$$

N_c 为被 v 级光子离化所产生的自由载流子密度; 方程右面的 v 反映了过程中的能量平衡条件, 即 v 级离化消耗光子速率必须比产生自由载流子的速率大 v 倍。定义光子的跃迁速率为 W , 令

$$\frac{dN_c}{dt} = W (E_0^{2v}) \quad (1.22)$$

则

$$\alpha_v = \frac{2v\hbar\omega (2R_0)^v W (E_0^{2v})}{\epsilon_{\infty}^{v/2} E_0^{2v}} \quad (1.23)$$

Keldysh 等人^[19,20]认为, 无论对个别原子的杂质能级还是对结晶态固体, 多光子吸收都与由激光的电磁场引起的时间相关隧道效应与电磁振荡的频率之间的关系密切相关。不论是在由强度很低的低频作用下引起的自动离化过程, 还是在高强度的高频光引起的多光子离化过程, 多光子跃迁速率都可以统一进行描述:

$$W = \frac{2}{9\pi} \omega \left(\frac{m^* \omega}{\hbar} \right) \Phi \left[2 \left(2 \langle \chi + 1 \rangle - 2\chi \right)^{\frac{1}{2}} \right] \left(\frac{e^2 E_0^2}{16m^* \omega^2 E_R} \right)^{\langle \chi + 1 \rangle} \times \exp \left[2 \langle \chi + 1 \rangle \left(1 - \frac{e^2 E_0^2}{4m^* \omega^2 E_R} \right) \right] \quad (1.24)$$

m^* 为电子空穴的约化有效质量, $\frac{1}{m^*} = \frac{1}{m_c^*} + \frac{1}{m_v^*}$ (电子质量单位); E_R 为带隙 (单位: eV), 电场为 E_0 (单位: MV/m), $\Phi(z)$ 为 Dawson 积分:

$$\Phi(z) = e^{-z^2} \int_0^z e^{y^2} dy \quad (1.25)$$

$$\chi = \frac{4m^* \omega^2 E_R^2}{\hbar \omega (1 + e^2 E_0^2)} \quad (1.26)$$

1.1.5 热力耦合损伤模型

单纯由热作用导致薄膜损伤的情况并不多见,热作用主导损伤过程主要出现在表面杂质诱导薄膜损伤、材料熔点很低但机械强度不太差等情况下。然而光学薄膜损伤往往更多是由力学因素主导的,是热和力的耦合作用的结果^[21]。热力过程可由热力耦合方程描述^[22]:

$$\begin{cases} \rho_k c_k \frac{\partial T(r,t)}{\partial t} = \frac{\chi_k}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 \frac{\partial T(r,t)}{\partial r} \right) + Q \\ \frac{\partial}{\partial r} \left[\frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} (\kappa^2 u_r) \right] = \alpha_k \frac{1 + \gamma_k}{1 - \gamma_k} \frac{\partial \theta(r,t)}{\partial r} \end{cases} \quad (1.27)$$

这里 u_r 表示位移量; α_k 为热膨胀系数; γ_k 为泊松比; T 为温度; Q 为热源项; ρ_k 为材料密度; c_k 为材料的比热容; r 表示半径方向。求解式(1.27)可以得到薄膜中应力和温度分布的完整图像,当温度和应力达到导致破坏的标准时便可以发生薄膜损伤。

对于热应力破坏,有以下判据:

$$\alpha_k T_{cr} \geq \epsilon_s^{th} \quad (1.28)$$

ϵ_s^{th} 为薄膜的极限强度; T_{cr} 为达到极限压力时的温度极值。若破坏是由杂质引起的,可以分为热爆炸模型和热弹性模型,两种模型情况下薄膜的极限强度 ϵ_s^{th} 具有不同的表现形式^[23,24]。

对于热爆炸模型,有

$$\epsilon_s^{th} = 0.3(1 - \gamma_b) \frac{E_i}{E_h} \quad (1.29)$$

对于热弹性模型,有

$$\epsilon_s^{th} = 0.6(1 - \gamma_b) \frac{E_i}{E_h} \quad (1.30)$$

E 为杨氏模量; γ 为泊松比,下标 i 和 h 分别代表杂质和薄膜基质。而对于内破坏机制,有

$$\epsilon_s^{th} = 0.3(1 - \gamma_b) \quad (1.31)$$

除了热力耦合过程之外,薄膜热过程的发展还会导致薄膜热物参数、光学吸收乃至离化参数的变化。热非线性过程将使激光损伤的实际过程更加复杂。

上述热力过程仅仅涉及温度梯度和膨胀系数差别引起的狭义概念上的热应力。实际上,材料相变引起的相变应力也是相关的热应力,并且作用非常剧烈,常常伴随弧光出现,造成等离子体爆炸冲击波。

强激光作用下,由多光子吸收电离、雪崩电离产生的大量自由电子和离子短时间内在薄膜内局部形成等离子体。这类等离子体处于高温状态,难以稳定存在,加

上高温自由电子扩散离开等离子体区域,稠密的局部等离子体会产生极高的压力。压力主要有两种类型,一种类型是与等离子体所含热能相关的,由于这个过程是在极其短时间内发生的,在这期间,电子吸收的激光能量还没有来得及传输给晶格,所以可以认为这个压力 P_e 完全由电子热运动造成的。 P_e 可以表示为^[23]

$$P_e = n_e k T_e \quad (1.32)$$

其中, n_e 为电子密度; k 是玻尔兹曼常数; T_e 是电子温度。另一种类型是与等离子体所带的净载荷量 Q 相关的,由电子扩散量决定,其压力值为

$$P_{\text{Coul}} = \frac{Q^2 e^2}{8\pi r^4} \quad (1.33)$$

其中, e 为基本电量; r 为等离子体区域半径。

等离子体膨胀而使物质粒子离开薄膜表面的喷溅,会使得薄膜感受到喷溅所产生的反冲作用,在圆柱坐标下,可以将产生的应力(等离子体冲击波应力)分布表达为

$$\begin{cases} \sigma_{\theta\theta} = \frac{\nu}{1-\nu} \sigma_{zz} \\ \sigma_{zz} = \frac{\rho_v k_B T(r, z=0, t)}{M_{\text{molecular}}} \left(1 + \frac{n_e}{n} + \frac{1.665^2}{2\pi} \left(\frac{\rho_l}{\rho_v} - 1 \right) \right) \end{cases} \quad (1.34)$$

式中, $M_{\text{molecular}}$ 为分子质量; n 为原子密度; ρ_l 、 ρ_v 分别为材料的液体和气体密度。该应力表达式是基于圆柱坐标的,适用于等离子体在薄膜表面形成的情况,对于内部杂质强吸收而形成的等离子体,该表达式不适用,此时球坐标是最佳选择。

从以上损伤机理概述可知,薄膜中的电磁场分布、温度分布以及薄膜中的杂质缺陷在薄膜损伤过程中具有重要的作用,因此本章将从三个方面更加详细地介绍光学薄膜的损伤机理:电磁场分布理论、温度场分布理论和杂质吸收理论。

1.2 光学薄膜激光损伤的电磁场分布理论

包括透明介质在内的任何物质均存在对入射激光的吸收现象。激光入射到介质材料时,其一部分能量用来激发束缚电荷产生受迫振荡,这些能量的一部分会以次波的形式与入射波产生干涉叠加形成折射光束射出材料。而受迫振荡能量一部分会由于临近分子(原子)的作用转变成分子(原子)热运动的动能,从而使介质材料产生加热现象。激光入射到金属材料时,入射激光的电场分量加速金属中的自由电子,这些加速了的自由电子通过电子—声子相互作用,把能量转移到晶格,形成晶格—电磁波振荡,产生焦耳热。所以研究光学薄膜中的激光场即其电磁场分布对光学薄膜激光损伤机理的研究具有重要意义。

1.2.1 光学薄膜中的电磁场分布理论

当激光辐照到多层介质光学薄膜表面时,其形式如图 1.1 所示。其中入射激光束为高斯光束,介质薄膜为 N 层结构^[25,26]。

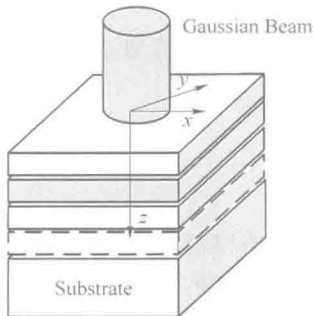


图 1.1 高斯光束辐照多层薄膜的示意图

引入复折射率 N 来表示吸收性介质的折射率,其表达式为

$$N = n - ik \quad (1.35)$$

其中, N 的实部 n 表示吸收性介质的折射率,由吸收性介质中光波的传播速度决定; N 的虚部 k 表示吸收性介质的消光系数或吸收系数,由吸收性介质中光波传播时的衰减(光能的吸收)决定,表征材料对入射激光束吸收能力的大小。理论上任何材料的消光系数 $k \neq 0$ ^[27,28]。

设入射激光的波长为 λ ,第 m 层薄膜的厚度为 z_m ,复折射率为 $N_m = n_m - ik_m$,比热和热传导系数分别为 C_m 、 K_m 。由麦克斯韦方程可知^[29-31]:

$$\begin{cases} \left[\frac{d^2}{dz^2} + \left(\frac{2\pi n^m}{\lambda} \right)^2 \right] E_m(z) = 0 \\ \frac{d(E_m(z))}{dz} + i \frac{2\pi}{\lambda} H_z(m) = 0 \end{cases} \quad (1.36)$$

其解为

$$\begin{cases} E_m(z) = A_1^m \left\{ \exp \left[-i \frac{2\pi n^m}{\lambda} \left(z - \sum_{j=m+1}^{N+1} z_j \right) \right] + A_2^m \exp \left[i \frac{2\pi n^m}{\lambda} \left(z - \sum_{j=m+1}^{N+1} z_j \right) \right] \right\} \\ H_m(z) = n^m A_1^m \left\{ \exp \left[-i \frac{2\pi n^m}{\lambda} \left(z - \sum_{j=m+1}^{N+1} z_j \right) \right] + A_2^m \exp \left[i \frac{2\pi n^m}{\lambda} \left(z - \sum_{j=m+1}^{N+1} z_j \right) \right] \right\} \end{cases} \quad (1.37)$$

其中, $z_{N+1} = 0$, A_1 、 A_2 为待定系数,由介质中界面处的电场和磁场强度比值 $\frac{H}{E}$ 的连续性条件决定。

$$A_2^m = \frac{(n^m - n^{m-1}) / (n^m + n^{m-1}) + A_2^{m-1}}{1 + [(n^m - n^{m-1}) / (n^m + n^{m-1})] A_2^{m-1}} \exp[-i(4\pi n^m / \lambda) z_m] \quad (2 \leq m \leq N+1) \quad (1.38)$$

基底的反射率为零,所以 $A_2^1 = 0$,所有的 A_2 均可由此计算出来。这里必须注意, A_2^{N+1} 是表面膜层的表面反射振幅, n_{N+1} 是入射介质的折射率。 A_1 可由电场连续条件得到: