

文章编号: 1001-4322(2007)11-1771-04

短脉冲激光辐照下 SiO₂ 损伤微观机理简化模型^{*}

胡 鹏, 陈发良

(北京应用物理与计算数学研究所, 北京 100088)

摘 要: 从电子密度速率方程出发, 建立短脉冲激光辐照下 SiO₂ 材料中导带电子增长简化模型, 计算了 SiO₂ 中光致电离速率和电子雪崩速率, 得到 SiO₂ 激光损伤阈值与脉冲宽度的关系, 计算分析了光致电离和碰撞电离两种电离机制在导带电子累积过程中的不同作用。结果表明: 脉冲较长, 碰撞电离几乎能提供全部的导带电子, 激光损伤阈值与脉宽的 0.5 次方成正比; 脉冲较短时, 导带电子主要由碰撞电离产生, 光致电离提供碰撞电离的初始电子, 激光损伤阈值随着脉宽的减小, 先增加后减小。

关键词: 碰撞电离; 光致电离; 激光损伤; 阈值

中图分类号: TN244

文献标识码: A

激光对透明光学材料的微观损伤机理一直是激光技术领域研究的重点课题。随着激光技术的发展, 脉宽在皮秒、飞秒的短脉冲激光已经得到了大量应用, 在这个时间尺度下, 材料损伤机理与长脉冲、连续激光的情形有本质的不同。实验发现: 对于长脉冲激光, 光学材料激光损伤阈值与脉宽的 0.5 次方成正比; 而短脉冲, 特别是脉宽低于 10 ps 时, 激光损伤阈值随激光脉宽减小而增加^[1-3]。这是因为长脉冲激光对光学材料的破坏主要由于能量沉积引起的热-力破坏, 而皮秒、飞秒等短脉冲激光, 激光电场强度相当高, 电子吸收能量后来不及传递到晶格而是被激发, 在材料导带中瞬间积累大量电子, 形成高温等离子体, 使得对后续辐照激光有强烈吸收, 大量能量瞬间沉积导致材料的破坏。

金属材料中有大量的自由电子, 金属离子通过自由电子吸收激光能量, 文献[4-5]采用双温模型, 计算了皮秒激光对金属材料的加热、烧蚀。而透明光学材料, 如 SiO₂, 在激光辐照之前自由电子较少, 激光电场首先需把电子从价带激发到导带, 直到导带电子密度达到某个阈值, 能对后续激光有强烈的吸收而导致材料破坏, 这就使得材料破坏主要由价带电子被激发到导带的过程决定。文献[6]根据雪崩击穿模型, 计算飞秒激光对 SiO₂ 的烧蚀阈值、烧蚀深度和体积等, 但在飞秒时间尺度内, 激光能量还来不及沉积到晶格上, 材料烧蚀是在激光脉冲结束后的能量弛豫过程中发生, 在激光脉宽内与材料相互作用主要体现在激光电场对电子的激发, 因此, 分析各种机制对导带电子增长的贡献, 能更深刻地理解透明光学材料激光破坏机理。本文从电子密度速率方程出发, 建立短脉冲激光辐照下 SiO₂ 材料中导带电子密度增长简化模型, 探讨材料中导带电子增长机制, 研究激光损伤阈值与激光脉宽的关系, 确定短脉冲激光破坏机理。

1 理论模型

从价带电子到导带电子的转变途径主要有光致电离和碰撞电离(雪崩电离)两种。光致电离是指原子中束缚电子在吸收一定数目的光子后, 其自身能量大于电离所需要的能量, 或者大于禁带宽度, 从而跃迁到导带。碰撞电离是由 Yablonovitch^[7]和 Bloembergen^[8]从早期的直流电子雪崩击穿概念引进的, 材料中的自由电子被电场加速, 获得高能量后与其它原子发生碰撞并将它电离, 形成两个低动能的自由电子。这个过程不断重复, 最终导致自由电子密度急剧增大, 形成等离子体, 导致雪崩破坏。

常温下, SiO₂ 中电子-空穴复合的典型弛豫时间为 6 ps, 在辐照持续时间小于该时间时, 则电子-空穴复合对载流子密度的影响较小。电子能量沉积到晶格中的典型弛豫时间为 0.1 ns。在辐照时间小于 10 ps 以内的情形, 晶格温度升高的影响可以忽略。在本文考虑的时间尺度下, 忽略电子扩散和电子复合的影响。因此, 导带电子数密度速率方程可表示为

$$\frac{\partial n}{\partial t} = (E) + w_{pi}(E) \quad (1)$$

* 收稿日期: 2007-03-02; 修订日期: 2007-08-28
作者简介: 胡 鹏(1979—), 男, 硕士, 主要从事激光与材料相互作用研究; hu_peng@iapcm.ac.cn.

式中： E 为激光电场强度； $\alpha(E)$ 为碰撞电离系数； w_{pi} 为光电离率。 $\alpha(E)$ 采用 Thornber^[9] 碰撞电离系数

$$\alpha(E) = \frac{v_s e E}{E} \exp\left\{-\frac{E_i}{E[1 + E/(E_{phonon} + E_{kT})]}\right\} \quad (2)$$

式中： v_s 为饱和漂移速度，约 10^7 cm/s； e 是电子电荷； E_i 是禁带宽度； E_{phonon} ， E_{kT} 分别是载流子克服电离散射、光学声子和热散射效应所需要的电场强度。

光电离率 $w_{pi}(E)$ 采用 Keldysh^[10] 推导的具体形式

$$w_{pi}(E) = \frac{2}{9} \left(\frac{-m}{\sqrt{1}}\right)^{3/2} Q(\gamma, x) \exp\left[-\gamma x + 1 \frac{K(\gamma_1) - N(\gamma_2)}{N(\gamma_2)}\right] \quad (3)$$

式中： ω 为激光频率； $m = m_e m_h / (m_e + m_h)$ 为电子与空穴的约化质量， m_e ， m_h 分别是电子和空穴的质量； K ， N 分别是第一类和第二类完全椭圆积分； γ 表示 γ 的整数部分； $\gamma = \sqrt{m} / eE$ 是固体的 Keldysh 参数， $\gamma_1 = \gamma^2 / (1 + \gamma^2)$ ， $\gamma_2 = 1 - \gamma_1 = 1 / (1 + \gamma^2)$ ； $Q(\gamma, x)$ 表达式为

$$Q(\gamma, x) = \frac{1}{\sqrt{2} K(\gamma_2)} \sum_{n=0}^{\infty} \left[-n \frac{K(\gamma_2) - N(\gamma_2)}{N(\gamma_1)}\right] \left[\frac{-2}{2} \sqrt{\frac{2x+1-2x+n}{K(\gamma_2)N(\gamma_2)}}\right] \quad (4)$$

其中 $x = \frac{2}{h} \frac{\sqrt{1+\gamma^2}}{N(1+\gamma^2)}$ ； $\gamma(z) = \int_0^z \exp(y^2 - z^2) dy$ 。

2 计算结果与讨论

2.1 电离率

由式(2)，(3) 计算得到碰撞电离率和多光子电离率随电场强度的变化关系，如图 1 所示。可以看出，电场强度较弱时，碰撞电离率随电场强度增长迅速；随电场强度逐渐增强，碰撞电离率增加逐渐变缓，电场强度超过 200 MV/cm，碰撞电离率与电场强度近似成线性关系。多光子电离率随电场强度的变化趋势与碰撞电离率类似，但比碰撞电离率数值上要大得多。

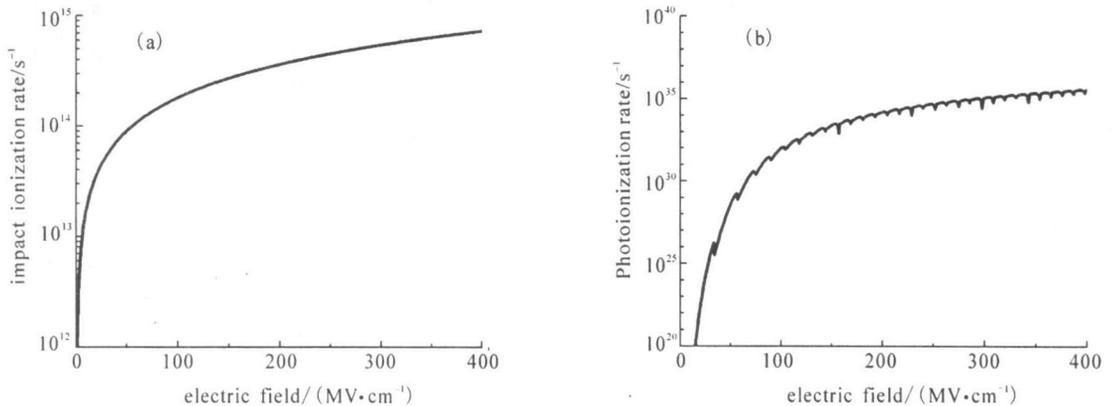


Fig. 1 Variation of impact ionization and photoionization rate with electric field

图 1 碰撞电离率和多光子电离率随电场强度的变化

2.2 激光损伤阈值

计算中脉冲激光波长选用 1.064 μm，时间波形上采用高斯分布

$$I(t) = I_0 \exp[-(t - t_0)^2 / \tau^2] \ln 2 \quad (5)$$

式中： I_0 为激光脉冲峰值强度； τ 为脉冲宽度。以激光电场频率与电子等离子体频率相等时的电子密度作为 SiO₂ 损伤的电子密度阈值。本文中电子密度阈值 $n_{cr} = 1.0 \times 10^{21}$ cm⁻³。

求解式(1)，(2)和(3)，得到激光脉宽 $\tau = 0.1$ ps， $I_0 = 14.7$ TW 时，激光波形和电子密度随时间的关系如图 2 所示。在激光脉冲的上沿，电子密度迅速增加；在激光脉冲的下沿，电子密度增长逐渐变缓；在脉冲结束时，导带电子密度超过 1.0×10^{21} cm⁻³。若增加激光强度或辐照时间，则会引起后续破坏效应，导致宏观破坏，因此判定此时的激光强度为 SiO₂ 损伤阈值。

取电子密度达到 1.0×10^{21} cm⁻³ 为损伤阈值判据，计算不同脉冲宽度激光辐照下 SiO₂ 的损伤能量密度阈值，如图 3 所示。当脉宽在 100 ps ~ 10 ns 时，损伤阈值随脉宽增加逐渐升高，近似满足与 $\tau^{0.5}$ 成正比的关系；脉宽在 0.1 ~ 50 ps 之间，损伤阈值随脉宽增加而减小，在脉宽为 50 ps 时，损伤阈值达到最小值，仅 0.11 J/cm²；

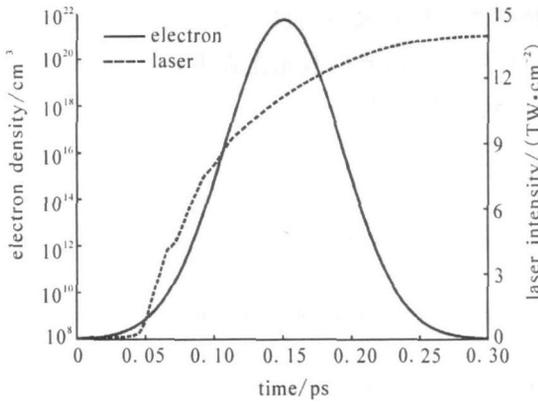


Fig. 2 Laser pulse shape and variation of electron density with time
图 2 激光波形和电子密度随时间的变化

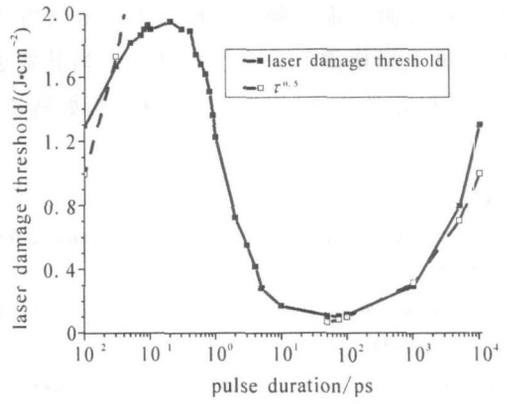


Fig. 3 Laser damage thresholds in terms of energy density of SiO₂ vs pulse duration
图 3 SiO₂ 激光损伤阈值与脉宽的关系

脉宽在 0.01 ~ 0.1 ps 之间,损伤阈值随脉宽增加逐渐升高,但在此区域不满足与 $\tau^{-0.5}$ 成正比的关系。

在不同脉宽、强度的激光辐照下,碰撞电离与多光子电离起的作用不同。图 4 给出了不同脉宽、激光强度下,导带电子密度在不同电离机制下的增长曲线。当激光脉宽为 0.1 ps,峰值强度为 14.7 TW 时,由于激光损伤阈值高,激光电场强度高,多光子电离在辐照初始是主要电离机制,由于多光子电离强烈依赖电场强度,在激光电场达到峰值后,多光子电离产生的电子数趋于稳定;在此基础上,仅需要少量碰撞电离,就使得电子密度达到阈值,如图 4(a) 所示。当脉宽为 1 ps,峰值强度为 0.95 TW 时,激光损伤阈值小,电场强度相对较弱,因此多光子电离作用小,电子数密度依靠碰撞电离即能达到阈值,如图 4(b) 所示(图中实线与点虚线重合)。

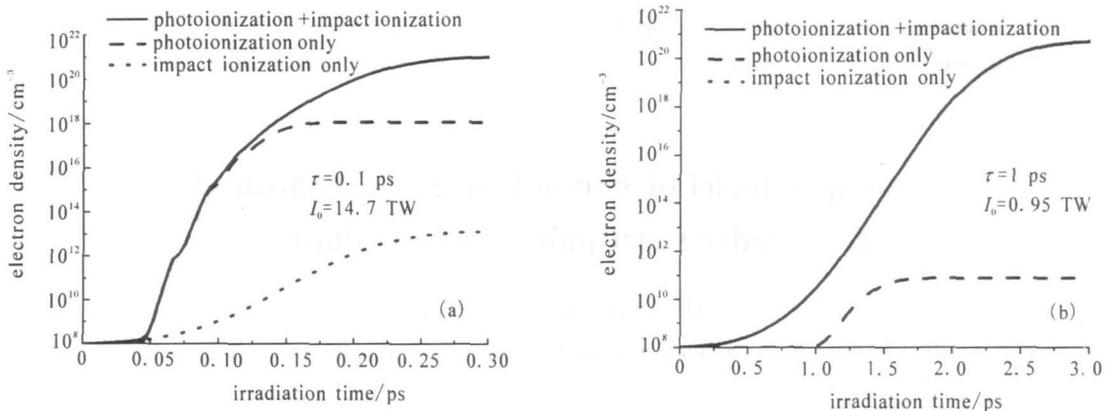


Fig. 4 Variation of electron density with time by different ionization mechanisms
图 4 不同激光脉冲辐照下,不同电离机制下电子密度随时间的变化

2.3 初始电子密度的影响

若不考虑碰撞电离率、多光子电离率随电场强度的变化,则方程(1)可解析求得解为

$$n(t) = \left[\frac{w_{pi}}{w_{pi} + w_0} + w_0 \right] \exp(-t) - \frac{w_{pi}}{w_{pi} + w_0} \quad (6)$$

式中: w_0 为初始电子密度。从式(6)看到,当 $w_{pi} \gg w_0$,初始电子密度的影响可以忽略。脉宽越短,激光损伤阈值电场强度就越高,如脉宽 0.1 ps 的激光损伤阈值电场强度高达 88 MV/cm, $w_{pi} = 1.7 \times 10^{17}$,初始电子密度的变化对激光损伤阈值影响甚微;脉宽 1 ps 的激光损伤阈值电场强度为 22 MV/cm, $w_{pi} = 4.2 \times 10^9$,则初始电子密度的变化对激光损伤阈值会有较大影响。可以推断,脉宽越长,初始电子密度的影响就越大。实际上,当脉宽在 1 ns 以上,应当考虑载流子扩散与复合,以及电子能量沉积到晶格,使晶格温度升高带来的影响。

3 结 论

短脉冲激光辐照光学材料 SiO₂ 引起破坏的微观实质,主要是由于导带电子在短时间内迅速累积到一个临界密度,使得材料对后续辐照激光有强烈吸收所致。导带电子的累积方式主要有光电离和碰撞电离两种:脉冲较短时,导带电子主要由碰撞电离产生,光电离提供碰撞电离的初始电子;脉冲较长时,碰撞电离几乎能提供全部的导带电子。由于这两种不同的电子电离机制,导致激光损伤能量密度阈值与脉冲宽度的依赖关系也

不相同:长脉冲激光损伤阈值与脉宽的 0.5 次方成正比;短脉冲激光损伤阈值与脉宽的关系比较复杂,随着脉宽的减小,激光损伤阈值先增加后减小。当脉宽更短时,要使材料损伤需要的激光光强更高,即激光电场更高,这将导致材料能带变化,其它的损伤机制,如隧道击穿等,将起到重要作用。

参考文献:

- [1] Stuart B C, Feit M D, Herman S, et al. Nanosecond-to-femtosecond laser-induced breakdown in dielectrics[J]. *Phys Rev B*, 1996, **53**(4): 1749-1761.
- [2] Mann K, Gerhardt H, Pfeifer G, et al. Influence of the laser pulse length and shape on the damage threshold of UV optics[C]// Proc of SPIE. 1992, **1624**: 436-444.
- [3] Du D, Liu X, Korn G, et al. Laser-induced breakdown by impact ionization in SiO₂ with pulse widths from 7 ns to 150 fs[J]. *Appl Phys Lett*, 1994, **64**(23): 3071-3073.
- [4] Chimier B, Tikhonchuk V T, Hallo L. Heating model for metals irradiated by a subpicosecond laser pulse[J]. *Phys Rev B*, 2007, **75**: 195124.
- [5] 郝秋龙,齐文宗,刘全喜,等. 超短脉冲激光辐照金属薄膜升温效应的模拟研究[J]. 强激光与粒子束, 2006, **18**(6): 908-911. (Hao Q L, Qi W Z, Liu Q X, et al. Simulation study on thermal effect on metal films irradiated by ultra-short pulse laser. *High Power Laser and Particle Beams*, 2006, **18**(6): 908-911)
- [6] 邓蕴沛,贾天卿,冷雨欣,等. 飞秒激光烧蚀石英玻璃的实验与理论研究[J]. 物理学报, 2004, **53**(7): 2216-2220. (Deng Y P, Jia T Q, Leng Y X, et al. Experimental and theoretical study on the ablation of fused silica by femtosecond laser. *Acta Physica Sinica*, 2004, **53**(7): 2216-2220)
- [7] Yablonovitch E. Optical dielectric strength of alkali-halide crystals obtained by laser-induced breakdown[J]. *Appl Phys Lett*, 1971, **19**(11): 495-497.
- [8] Bloembergen N. Laser-induced electric breakdown in solid[J]. *IEEE J Quantum Electron*, 1974, **10**(3): 375-386.
- [9] Thornber K K. Applications of scaling to problems in high-field electron transport[J]. *J Appl Phys*, 1981, **52**(1): 279-290.
- [10] Keldysh L V. Ionization in the field of a strong electromagnetic wave[J]. *Sov Phys JETP*, 1965, **20**(5): 1307-1314.

A simple model of micro-damage mechanism of SiO₂ under short pulse laser irradiation

HU Peng, CHEN Far-liang

(Institute of Applied Physics and Computational Mathematics, P. O. Box 8009-11, Beijing 100088, China)

Abstract: Based on the rate equation of electron generation, a simple model of evolution of conduction electron under short pulse laser irradiation is employed to predict the laser damage thresholds of SiO₂. The rates of impact ionization and photoionization are calculated and compared with each other. The threshold energy densities are obtained as function of pulse duration from 0.1 ps to 10 ns. The results show that for long pulse, the damage is dominated by impact ionization, and the thresholds are in proportion to the square root of pulse duration. While in the cases of short pulse, the damage is also governed by impact ionization but with photoionization supplying the seed electrons, and with decreasing pulse duration, the threshold first rises, then drops.

Key words: Impact ionization; Photoionization; Laser damage; Threshold