

Нелинейное поглощение оптических материалов на длине волны 193 нм

М.Ю.Артемов, В.М.Нестеров, А.П.Сергеев, П.Б.Сергеев

С использованием метода нелинейного пропускания в образцах высококчистых CaF_2 , BaF_2 и Al_2O_3 измерены коэффициенты двухфотонного поглощения излучения ArF-лазера с длительностью импульсов 30 нс (в CaF_2 – еще и 70 нс), равные 2.2 ± 0.8 , 2.3 ± 0.8 , 5.6 ± 2.2 см/ГВт соответственно. Определены пороги лазерного пробоя поверхности исследованных образцов.

Ключевые слова: оптические материалы, УФ лазерное излучение, нелинейное поглощение.

1. Введение

Энергия кванта излучения ArF-лазера с длиной волны 193 нм равна 6.4 эВ. Это значение превышает половину ширины запрещенной зоны практически всех оптических материалов, поэтому двухфотонное поглощение лазерного излучения становится доминирующим среди процессов, определяющих особенности взаимодействия лазерного излучения с оптическими материалами. Понимание данных процессов необходимо для определения перспектив не только ArF-, но и других коротковолновых лазеров ВУФ диапазона.

Обычная длительность импульсов излучения ArF-лазеров $\tau \approx 10 - 100$ нс. При таких длительностях коэффициент двухфотонного поглощения β в оптических материалах, как правило, существенно больше аналогичного коэффициента, измеряемого на пикосекундных импульсах. Причина этого кроется в добавочном поглощении лазерного излучения на короткоживущих электронных состояниях оптических материалов, успевающих сформироваться в процессе рекомбинации электронно-дырочных пар, которые генерируются за счет классической двухфотонной ионизации [1, 2]. При создании теоретических моделей этих процессов для лазерного излучения УФ и ВУФ диапазонов в конкретных оптических материалах экспериментальные результаты по определению β при разных τ и на разных длинах волн λ являются ключевыми. Это и делает актуальным измерение данных коэффициентов во всех возможных режимах.

Цель настоящей работы заключается в определении β на $\lambda = 193$ нм у высококчистых CaF_2 , BaF_2 и Al_2O_3 при $\tau = 30$ и 70 нс. Вследствие высокой устойчивости к действию лазерного излучения УФ и ВУФ диапазонов высококчистый флюорит привлекает к себе пристальное внимание исследователей [3–6]. Есть результаты и по нелинейному поглощению на 193 нм [7–10], но их пока явно

М.Ю.Артемов, В.М.Нестеров, А.П.Сергеев, П.Б.Сергеев Физический институт им. П.Н.Лебедева РАН, Россия, 119991 Москва, Ленинский просп., 53

Поступила в редакцию 20 июня 2003 г., после окончательного оформления – 11 августа 2003 г.

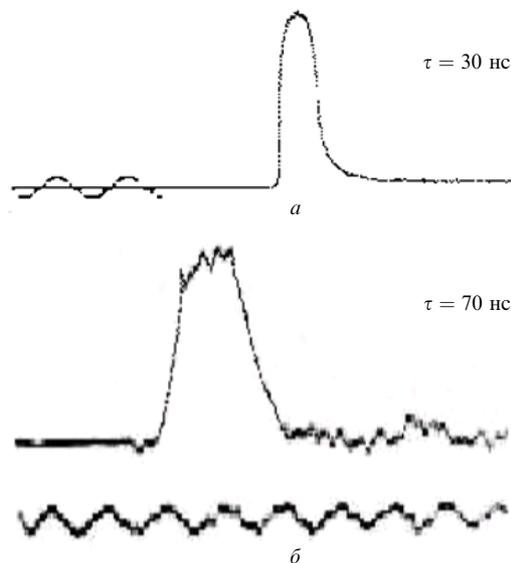


Рис.1. Формы импульса мощности излучения электроразрядного (а) и электронно-пучкового ArF-лазера (б). Метки времени показаны в виде синусоиды с периодом 50 нс.

недостаточно, особенно для получения зависимости $\beta(\tau)$ [10]. Ранее измерить β при $\tau \sim 70$ нс у BaF_2 и лейкосапфира нам не удавалось из-за низкой лучевой прочности поверхности образцов [11]. С новыми образцами и при $\tau = 30$ нс эти измерения оказались возможными.

2. Методика измерения

Определение коэффициентов двухфотонного поглощения β в образцах оптических материалов проводилось по стандартной методике нелинейного пропускания [12, 13]. В качестве источника излучения использовался электроразрядный ArF-лазер с энергией $E \sim 250$ мДж при $\tau = 30$ нс (рис.1,а). Колебания значения E от импульса к импульсу не превышали 10 % его среднего значения. Время между импульсами было равно примерно 3 мин. Размеры выходного сечения лазерного пучка составляли 2×1 см. С помощью полупрозрачного зеркала этот лазерный пучок разбивался на две части, одна из которых

заходила на первый калориметр ИМО-2, контролирувавший энергию лазерного излучения в каждом импульсе. Вторая часть пучка фокусировалась линзой из кварца КУ1 на образцы оптических материалов, за которыми находился второй калориметр ИМО-2. С его помощью измерялась энергия лазерного излучения, прошедшего по измерительному тракту.

Большая часть экспериментов была проведена с использованием линзы из кварца КУ1 с фокусным расстоянием 111 см. Вначале с помощью диафрагм, помещавшихся в фокальной плоскости, была измерена расходимость лазерного излучения θ . В двух взаимно перпендикулярных направлениях значения θ_1 и θ_2 по уровню 0.65 от полной энергии E составили соответственно 6×10^{-4} и 4×10^{-3} рад. Площадь фокального пятна S , в которой было сосредоточено до 65% полной энергии, равнялась при этом 3 мм². Длина каустики в сечении пучка по направлению с меньшей расходимостью превышала 3 см. Максимальная интенсивность лазерного излучения в каустике I определялась по формуле

$$I = \frac{E}{S\tau}. \quad (1)$$

Для измерения β на образцах СаF₂ использовался также ArF-лазер с электронно-пучковым возбуждением [14]. В этом случае длительность импульса лазерного излучения составляла около 70 нс (рис.1,б). В остальном эксперимент с этим лазером был таким же, как в [11], и почти не отличался от рассмотренного выше.

Для определения коэффициентов двухфотонного поглощения оптических материалов по методике нелинейного пропускания необходимо знать зависимость пропускания образцов T от интенсивности лазерного излучения. По наклону зависимости обратного пропускания $1/T$ от I вычисляется β . В нашем случае для измерения пропускания образцов использовалась калориметрическая методика, а T определялось так:

$$T = \frac{E_{\text{out}}}{E_{\text{in}}}, \quad (2)$$

где E_{out} и E_{in} – прошедшая и падающая на образец энергия лазерного излучения.

Практически величина T измерялась следующим образом. В одной серии измерений из 5–10 выстрелов образец в измерительном тракте отсутствовал. Было получено среднее значение отношения показаний первого (E_1) и второго (E_2) калориметров $q_0 = \langle (E_2/E_1)_0 \rangle$. Затем образец оптического материала помещался в фокус линзы, и после новой серии выстрелов мы получали $q_m = \langle (E_2/E_1)_m \rangle$. Образец при измерениях не смещался, если не наблюдалось пробоя. Отношение q_m/q_0 и есть пропускание T для данного среднего значения E_2 или для вычисленного по формуле (1) значения I .

Величина E_2 изменялась при введении в измерительный тракт и установке перед линзой фильтров – плоских полупрозрачных диэлектрических зеркал. С каждым фильтром процедура измерений T образца повторялась. Значения T при $I \sim 1$ МВт/см² получались при размещении образцов не в фокусе линзы, а прямо за ней, где площадь сечения лазерного пучка была около 2 см². Значения $T(0)$ определялись на спектрофотометре. Эта совокупность данных и давала зависимость $T(I)$.

В дополнительной серии экспериментов вместо линзы с $f = 111$ см использовалась линза с $f = 40$ см. В этом

случае удалось надежно установить порог лазерного пробоя поверхности образцов. Он определялся как максимальное значение интенсивности лазерного излучения, при которой не наблюдалось повреждения поверхности образца.

Из экспериментальной зависимости $T(I)$ значение β вычислялось следующим образом. Если линейное поглощение α в образце оптического материала мало, т.е. $\alpha l \ll 1$ (l – толщина образца), наклон получаемой зависимости $\Delta(1/T)/\Delta I$ связан с β соотношением [12]

$$\frac{\Delta(1/T)}{\Delta I} = \beta \frac{l}{(1-R)K}. \quad (3)$$

Отсюда

$$\beta = \frac{\Delta(1/T)}{\Delta I} \frac{(1-R)}{l} K, \quad (4)$$

где K – коэффициент, зависящий от формы импульса мощности и распределения интенсивности лазерного излучения по сечению каустики; R – коэффициент отражения на данной длине волны от грани образца. В случае прямоугольной во времени формы импульса излучения и равномерного распределения интенсивности лазерного излучения по радиусу каустики на поверхности образца (зависимость $I(r)$) коэффициент $K = 1$. Для гауссовых распределений $I(t)$ и $I(r)$ данный коэффициент равен $2^{3/2}$. Выражение (4) использовалось нами для вычислений двухфотонного поглощения β в СаF₂.

Когда линейным поглощением в образцах оптических материалов пренебречь нельзя, выражение для β принимает более сложный вид:

$$\beta = \frac{\Delta(1/T)}{\Delta I} \frac{\alpha e^{-\alpha l}}{(1 - e^{-\alpha l})} (1-R)K. \quad (5)$$

Оно использовалось при вычислении β по экспериментальным данным, полученным для образцов ВаF₂ и Al₂O₃.

3. Результаты измерений β

Измерения β проводились на образцах высокочистых СаF₂, ВаF₂ и Al₂O₃. Все эти материалы были произведены в ВНЦ «ГОИ им. С.И.Вавилова».

3.1. Результаты по СаF₂

Флюоритовые образцы представляли собой параллелепипеды с гранями $18 \times 20 \times 22$ мм, поверхности которых были отполированы по III классу чистоты. Для проверки качества кристаллов небольшие образцы, нарезанные из той же заготовки СаF₂, подвергались воздействию электронного пучка (установка ЭЛ-1, [14]). После ~ 1500 возбуждающих импульсов при энергии электронов ~ 280 кэВ и общей плотности энергии на поверхности ~ 2400 Дж/см² остаточное поглощение этих образцов не превышало 1% в максимуме полосы поглощения F-центров (390 нм). В области 193 нм прозрачность образцов после такого воздействия практически не изменялась. Это говорит о высоком качестве флюорита.

Экспериментальные значения зависимости $1/T$ от I при длительности импульсов ArF-лазера 30 нс представ-

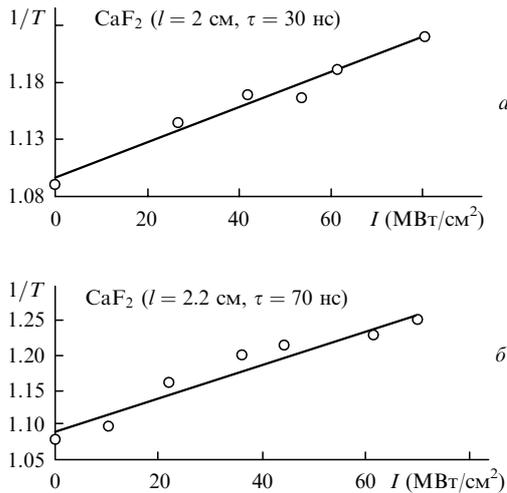


Рис.2. Зависимости обратного пропускания $1/T$ образцов CaF_2 толщиной 2 см с $\tau = 30$ нс (а) и 2.2 см с $\tau = 70$ нс (б) от интенсивности излучения AgF -лазера.

лены на рис.2,а точками. Отрезок прямой построен усреднением по данным точкам (линия тренда) по методу наименьших квадратов. С учетом наклона этой прямой из формулы (4) при $K = 2.8$ получено $\beta = 2.2$ см/ГВт.

На этом же образце флюорита были проведены аналогичные измерения при $\tau = 70$ нс. Одна из таких зависимостей показана на рис.2,б. Здесь при $K = 2.8$ значение β составило 2.7 см/ГВт.

Ошибка в определении β по используемой методике не превышает 40 % и обусловлена, в основном, неопределенностью коэффициента K , связанной с особенностями формы используемых импульсов (см. рис.1). Для длинного (близкого к прямоугольному) импульса с $\tau = 70$ нс значение K должно уменьшаться, т. к. интенсивность в области максимума значительное время практически постоянна. Ранее для аналогичных импульсов при расчете β мы брали $K = 2$ [7, 11]. При таком коэффициенте K значение β по экспериментальным данным рис.2,б составит 2 см/ГВт. С учетом этого для высококачественного флюорита при длительностях импульсов AgF -лазера 30 и 70 нс значения β можно считать практически одинаковыми и равными 2.2 ± 0.8 см/ГВт.

Порог пробоя поверхности образцов флюорита при $\tau = 30$ и 70 нс находился в области 90–100 МВт/см², площадь облучаемой поверхности составляла 3–4 мм². Этим и ограничивался диапазон интенсивностей, в котором получены результаты, представленные на рис.2.

Ранее на образцах CaF_2 (худшего, чем в настоящей работе, качества) на $\lambda = 193$ нм и при $\tau = 60$ нс измеренное по использованной здесь методике значение β составляло 3.2 см/ГВт [7]. Согласно [9, 10] для импульсов излучения AgF -лазеров с $\tau \sim 10$ нс коэффициент β , измеренный разными методами, варьируется в пределах 1–4 см/ГВт. В сильной степени значение β зависит от чистоты образцов флюорита [7, 10], возрастая с увеличением количества примесей. Для пикосекундных импульсов AgF -лазера $\beta \approx 0.3$ см/ГВт [8].

В [10] на основе анализа результатов различных работ делается вывод о линейной зависимости $\beta(\tau)$ при изменении τ от $\sim 10^{-12}$ до $\sim 10^{-7}$ с. Наши данные показывают, что для наносекундных импульсов значения β на $\lambda = 193$ нм если и меняются, то очень слабо. Причина же резкого повышения экспериментального значения β у

флюорита при переходе от пикосекундных импульсов к наносекундным детально анализируется в работах [1, 2], и здесь мы на этом вопросе останавливаться не будем.

3.2. Результаты по BaF_2

Образцы BaF_2 , использовавшиеся для измерения β на $\lambda = 193$ нм, также имели высокую чистоту, о чем свидетельствует их высокая радиационная прочность. После такого же облучения электронным пучком, как и образцов флюорита, у пластинок BaF_2 толщиной 2 мм наведенное поглощение в УФ области не превышало 1 %.

Измерение зависимости $T(I)$ на длине волны 193 нм проводилось на образцах BaF_2 толщиной 17.5 мм при длительностях лазерного излучения 30 нс. Полученные экспериментальные результаты представлены на рис.3 точками с проведенной по ним линией усреднения. Данные для $I < 100$ МВт/см² получены при использовании линзы с $f = 111$ см. Большая интенсивность лазерного излучения достигалась при $f = 40$ см.

Порог пробоя поверхности в этих экспериментах составлял около 90 МВт/см². На рис.3 все точки при интенсивностях, превышающих 100 МВт/см², были получены при наличии лазерного пробоя поверхности. Несмотря на это вся совокупность точек отлично ложится на одну прямую, показанную линией усреднения. Объяснить этот интересный факт можно тем, что либо поглощение излучения в области пробоя очень мало на фоне общего поглощения, либо разрушение поверхности происходит после лазерного импульса. Однако для детального ответа на этот вопрос требуются дополнительные эксперименты.

Исходя из того, что экспериментальное значение $T(0) = 0.685$, а $R = 0.05$, из выражения $T(0) = (1 - R)^2 e^{-\alpha l}$ получаем $\alpha = 0.156$ см⁻¹. Подставляя эти значения, а также величину наклона прямой $[\Delta(1/T)/\Delta I]$ (рис.3) и $K = 2.8$ в формулу (5), получаем, что на длине волны 193 нм при длительности импульсов 30 нс значение β для BaF_2 равно 2.3 см/ГВт. Ошибка в его определении не превышает 40 %.

Об измерении β для BaF_2 на $\lambda = 193$ нм сообщалось в [8, 10]. Согласно [10] для импульсов длительностью 14 нс $\beta = 1.2$ см/ГВт. При этом линейное поглощение испытываемых образцов составляло 0.0193 см⁻¹, что на порядок меньше, чем в наших экспериментах. Для коротких ($\tau = 0.8$ пс) импульсов согласно [8] $\beta \approx 0.4$ см/ГВт. Представленная совокупность результатов и в данном случае указывает на существенное различие в значениях β для пикосекундных и наносекундных импульсов.

3.3. Результаты по Al_2O_3

Измерения нелинейного поглощения в Al_2O_3 проводились на диске диаметром 60 и толщиной 11 мм. Это

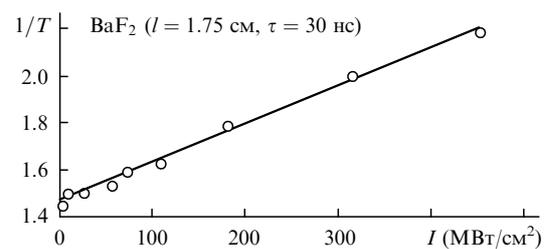


Рис.3. Зависимость обратного пропускания $1/T$ образца BaF_2 толщиной 1.75 см от интенсивности излучения AgF -лазера с $\tau = 30$ нс.

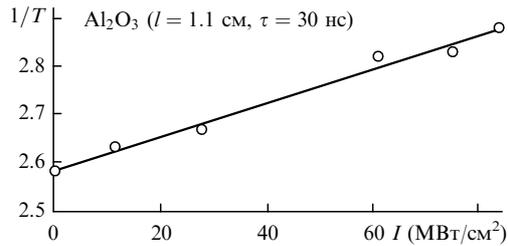


Рис.4. Зависимость обратного пропускания $1/T$ образца Al_2O_3 толщиной 1.1 см от интенсивности излучения AgF-лазера с $\tau = 30$ нс.

был наилучший образец по пропусканию в УФ области спектра из той пары, на которой ранее измерялось β на длине волны Krf-лазера 248 нм [11]. На длине волны 193 нм его пропускание $T(0) = 39\%$.

Измерения $T(I)$ образца Al_2O_3 осуществлялось с использованием AgF-лазера с длительностью импульсов 30 нс. Экспериментальные результаты с проведенной по ним линией усреднения показаны на рис.4. Пробой поверхности исследованного образца наблюдался при интенсивностях лазерного излучения ~ 100 МВт/см². При наличии пробоя пропускание образца резко падало; эти экспериментальные точки на рис.4 не приводятся.

Расчет β проводился так же, как и в случае с BaF_2 . При этом принималось, что $R = 0.1$, а коэффициент поглощения $\alpha = 0.64$ см⁻¹. С учетом наклона прямой (рис.4) по формуле (5) при $K = 2.8$ имеем, что для Al_2O_3 на $\lambda = 193$ нм при длительности импульса AgF-лазера 30 нс коэффициент $\beta = 5.6$ см/ГВт. Ошибка определения β , как и ранее, не превышает 40%.

Другие данные по нелинейному поглощению кристаллических образцов лейкосапфира на длине волны 193 нм нам пока не известны. Для понимания особенностей взаимодействия излучения AgF-лазера с таким интересным во многих отношениях оптическим материалом, как лейкосапфир, измерения β для импульсов пикосекундной и наносекундной длительности будут очень полезны.

4. Заключение

В работе экспериментально с использованием метода нелинейного пропускания измерены коэффициенты двухфотонного поглощения излучения AgF-лазера в высокочистом CaF_2 при длительностях импульсов 30 и 70 нс. В образцах высокочистых BaF_2 и Al_2O_3 значения β были определены при $\tau = 30$ нс. Полученные результаты для CaF_2 и BaF_2 дополняют и расширяют имеющуюся базу данных по зависимости $\beta(\tau)$ на $\lambda = 193$ нм для кристаллов разного качества. При этом отмечено существенное различие в значениях β , измеренных для пикосекундных и наносекундных импульсов. Результаты для лейкосапфира на этой длине волны получены, по-видимому, впервые. Для исследованных образцов оптических материалов были определены также пороги пробоя поверхности излучением AgF-лазера с $\tau = 30$ и 70 нс.

Авторы выражают благодарность И.А.Мионову и В.М.Рейтерову за предоставление образцов высокочистого флюорита и BaF_2 . Работа выполнена при поддержке Министерства промышленности, науки и технологии РФ (контракт № 40.020.1.1.1157).

1. Курбасов С.В., Сергеев П.Б. *Квантовая электроника*, **30**, 703 (2000).
2. Сергеев П.Б. *Квантовая электроника*, **32**, 344 (2002).
3. Webb J. *Laser Focus World*, **36**, (9), 87 (2000).
4. Harbison R.S. *Proc. III Intern. UV Laser Symposium for 157 nm* (Fort Lauderdale, 2000); <http://www.lambdaphysik.com/157Invite/proceedings>.
5. Speit B., Engel A., et al. *Ibid.*
6. Mayolet A., Pell M. *Ibid.*
7. Barabanov V.S., et al. *J. Sov. Laser Research*, **14**, 294 (1993).
8. Kittelmann O., Ringling J. *Opt. Lett.*, **19**, 2053 (1994).
9. Mann K., ApeI O., Eva E. *Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Eng.*, **3578**, 614 (1999).
10. Gorling C., Leinhos U., Mann K. *Appl. Phys. B*, **74**, 259 (2002).
11. Морозов Н.В., Рейтеров В.М., Сергеев П.Б. *Квантовая электроника*, **29**, 141 (1999).
12. Liu P., Smith W.L., et al. *Phys. Rev. B*, **17**, 4620 (1978).
13. Nathan V., Guenther A.H., Mitra S.S. *J. Opt. Soc. Am.*, **B2**, 294 (1985).
14. Sergeev P.B. *J. Sov. Laser Research*, **14**, 237 (1993).