

文章编号: 1001-4322(2008)09-1457-04

1 064 nm 与 532 nm 激光对电子束蒸发制备的 HfO₂/SiO₂ 高反膜损伤比较^{*}

李大伟^{1,2}, 陶春先^{1,2}, 李 笑^{1,2}, 赵元安¹, 邵建达¹

(1. 中国科学院 上海光学精密机械研究所 光学薄膜技术研究与发展中心, 上海 201800;

2. 中国科学院 研究生院, 北京 100039)

摘 要: 研究了电子束蒸发制备的 HfO₂/SiO₂ 高反膜在 1 064 nm 与 532 nm 激光辐照下的损伤行为。基频激光辐照时损伤形貌主要为节瘤缺陷喷溅留下的锥形坑, 当能量密度较大时出现分层剥落; 二倍频激光损伤主要是由电子缺陷引起的平底坑, 辐照脉冲能量密度稍高时也会产生吸收性缺陷引起的锥形坑, 但电子缺陷的损伤阈值更低; 随着辐照脉冲能量密度的增大分层剥落逐渐成为主要的损伤形貌。分析认为, 辐照激光波长的变化, 引起吸收机制的变化从而导致了损伤阈值及损伤机制的差异。

关键词: 光学薄膜; 激光损伤; 电子束蒸发; 电子缺陷

中图分类号: O484 **文献标志码:** A

光学薄膜是高效率激光系统中的重要元件, 同时也是最薄弱的环节之一。光学薄膜的抗激光能力直接影响到整个激光系统的性能^[1-2]。数十年来对光学薄膜的激光损伤进行了较多的研究并取得了长足发展, 提出了众多模型来解释损伤产生机制^[3-6]。但是, 激光对光学薄膜的损伤是一个复杂的过程, 其中涉及到薄膜材料及其制备手段、激光参数以及作用模式等众多因素, 因而破坏过程与损伤机理千差万别^[7-8], 并且在损伤过程中可能包含了多个过程或多种机制的耦合, 这也给损伤研究带来了很大难度。

为理解辐照激光波长对薄膜损伤的影响, 本文设计膜系制备双波长高反膜并进行损伤实验。其中用 HfO₂ 和 SiO₂ 作为高低折射率材料制备的光学薄膜得到了广泛应用^[9], 同时电子束蒸发也是一种较为成熟的薄膜制备手段, 因此本文采用了电子束蒸发制备 1 064 和 532 nm 双波长的 HfO₂/SiO₂ 高反膜, 以消除激光损伤过程中样品制备工艺、膜料以及不同杂质的影响。

1 损伤实验

1.1 样品制备

采用电子束蒸发制备 HfO₂/SiO₂ 高反膜, 膜系结构为 G|HL(H₂L)¹⁵|A, 其中 H 表示四分之一波长光学厚度的高折射率材料膜层, L 表示四分之一波长光学厚度的低折射率材料膜层, G 表示 K9 玻璃基底, A 表示入射介质(空气)。

1.2 实验装置

损伤测试装置按照 ISO-11254 标准建立。其中 Nd:YAG 激光器输出 1 064 nm(基频)以及 532 nm(二倍频)波长的激光, 脉宽分别为 12 ns 和 10 ns。由二分之一波片以及偏振片组成的能量调节系统可调节辐照样品的脉冲能量。光束经会聚透镜会聚后辐照样品表面, 其中基频激光辐照时使用的会聚透镜焦距为 950 mm, 二倍频激光辐照时透镜的焦距为 400 mm。脉冲的空间能量分布呈高斯型, 样品表面上的光斑直径(1/e²)分别为 700 μm(基频激光输出)和 450 μm(二倍频)。样品固定于 2 维步进电动机, 通过计算机控制用于选择不同的测试区域。另外由 CCD 以及透镜组组成的在线观测系统可对样品进行实时观测以判断损伤是否产生。

1.3 损伤检测

为了尽可能完全地反映样品的损伤行为, 在样品表面选取一定的区域使用相同能量密度的脉冲对样品表面进行光栅式扫描。扫描过程中通过在线观测系统观察样品表面的变化并记录损伤位置, 完成后更换扫描区域并提高脉冲能量密度。在脉冲能量密度较小时相邻脉冲之间的间隔取为光斑直径, 观察到破斑尺寸超过

* 收稿日期: 2007-11-02; 修订日期: 2008-03-18

作者简介: 李大伟(1978—), 男, 博士, 从事光学薄膜的激光损伤方向的相关研究; dawei_510@yahoo.com.cn.

50 μm 时取为 3 倍光斑直径。起始能量密度分别取为 5 J/cm^2 (二倍频) 和 8 J/cm^2 (基频激光辐照), 考虑到实验准确性以及时间耗费, 每次能量密度提升约为 1 J/cm^2 。

2 损伤形貌

2.1 基频激光损伤形貌

以基频激光辐照样时, 最先出现的损伤形貌如图 1(a) 所示, 相应的脉冲能量密度为 17.9 J/cm^2 , 原子显微镜显示其为锥形坑, 深度变化较大, 浅者在 $0.4 \mu\text{m}$ 左右, 最深者可达 $1.2 \mu\text{m}$ 。随着辐照脉冲能量密度增大, 锥形坑的尺寸也增大, 在能量密度为 25.0 J/cm^2 时出现另一种损伤形貌, 表现为薄膜表层完全脱落, 同时内层一定区域内出现损伤, 剥落面积随脉冲能量密度的增加而增大。Leica 显微镜观察到的剥落损伤形貌结构如图 1(b) 所示, 剥落层边缘处比较粗糙, 力学破坏特征明显; 内层损伤区域中心有锥形坑以及熔化区域, 而周围部分则呈现力学破坏特征。深度分析表明最外两层完全剥落, 底部的坑状损伤深度变化极大且无规律。

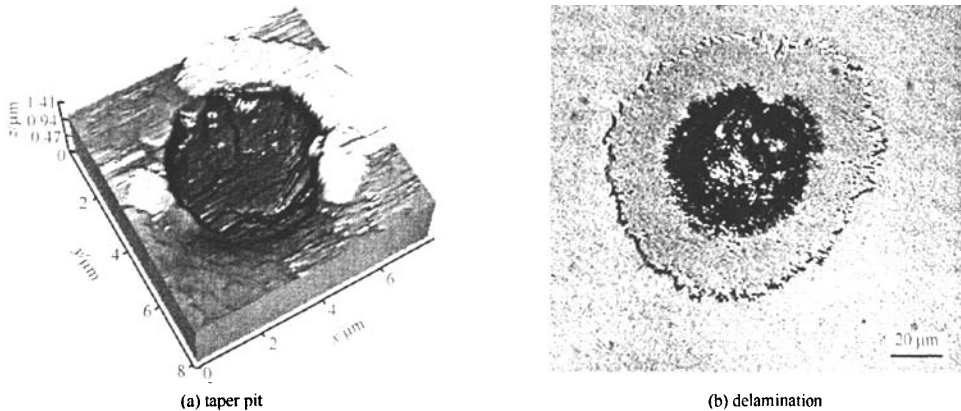


Fig. 1 Damage morphologies caused by 1ω laser pulses

图 1 基频激光脉冲辐照产生的损伤形貌

对于图 1(a) 所示的损伤形貌, 当前普遍认为由膜体内的节瘤缺陷引起^[10]。薄膜生长过程中基底表面的附着物以及真空室内的污染物被膜层覆盖后就可作为种子逐渐形成节瘤缺陷。激光辐照过程中, 由于缺陷附近电场强度的加强以及节瘤种子的强吸收致使该部分温度升高, 引起缺陷及其周围膜体的温升、熔化或者近于熔化, 在热力耦合作用下节瘤缺陷溅出留下锥形坑。本实验中辐照脉冲脉宽为 ns 量级, 辐照过程中有足够的时间供热量积累并传播使其周围的膜体熔化。图 1(a) 中锥形坑附近的薄膜颗粒界限已经比较模糊, 证明了温升、熔化过程的存在。

至于图 1(b) 所示的分层剥落, 本文认为产生的主要原因在于界面吸收以及界面两侧膜层热膨胀系数的差异。薄膜制备过程中, 由于高速生长带来的不均衡性以及不同材料交替镀制带来的膜体结构非连续性, 膜层界面处往往含有较多的缺陷和空隙, 薄膜置于大气中时吸附潮气和杂质使得该处的吸收系数远大于膜体, 同时这些空隙的存在使得相邻膜层之间仅靠部分区域的黏合而结合在一起, 因此从力学方面而言膜层界面也是最为脆弱的部分。激光脉冲辐照过程中界面处的吸收令附近区域产生温升, 而不同材料的热膨胀系数的差异导致膜层结合处的形变失配, 当温度比较高而膜层的结合强度较小时就会出现部分膜层剥离脱落, 形成分层剥落。

分层剥落产生的另一个原因是膜体中含有的吸收性杂质。激光脉冲辐照过程中该杂质吸收热量并传播导致本身及其周围的膜体熔化甚至气化, 从而对表面膜层产生压强最终导致分层剥落的产生。需要指出的是, 由于高低折射率材料热力特性的差异在分层剥落发生之前表面膜层与其相邻的膜层之间的结合强度即已很低甚至分离, 因此在损伤形貌中表面膜层的剥落面积通常大于内层的损伤区域。

2.2 二倍频激光损伤形貌

以二倍频激光扫描样品, 最先出现损伤时对应的能量密度为 9.1 J/cm^2 , 损伤形貌如图 2(a) 所示, 为圆形平底坑, 通常会有若干个连在一起, 深度 $0.2 \mu\text{m}$ 至 $1 \mu\text{m}$ 不等, 直径约为 $3 \mu\text{m}$, 并且在坑的底部可见较小的熔化区域。脉冲能量密度增大时同一个脉冲辐照范围内的平底坑个数增加, 同时逐渐连在一起形成如图 2(b) 所

示的损伤形貌,表现为外膜层的剥落并在内部出现锥形坑或平底坑,并且剥落发生在第二个高低折射率材料交界面。而在脉冲能量密度增加的过程中也观察到了锥形坑,相应的能量密度为 15.2 J/cm^2 ,其形状、大小以及深度分布同基频激光辐照时相同。

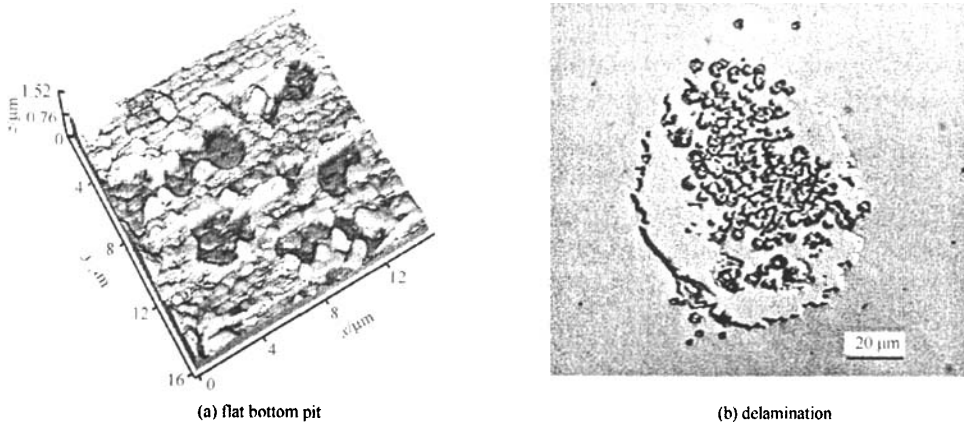


Fig. 2 Damage morphologies caused by 2ω laser pulses

图2 二倍频激光脉冲辐照产生的损伤形貌

对于图 2(a) 中所示平底坑, Dijon^[11] 等做过详细研究。他们使用基频(1 064 nm)激光辐照高反膜样品得到该损伤形貌,并且认为该损伤形貌的产生可以分为 4 个阶段:首先,由于较大的本征吸收杂质吸收能量温度迅速升高;然后处于高温的杂质以及薄膜材料发射电子,使得该区域自由电子密度增大;之后,由于自由电子的吸收致使更大范围以及更大幅度的温升;最后,由于热力耦合效应形成平底坑形貌。然而与 Dijon 的结果不同,本文的实验中只有二倍频激光辐照才产生平底坑状损伤形貌,而在基频激光辐照过程中并未发现。由此,本文认为导致该类损伤形貌的可能是电子缺陷^[12]而非吸收性杂质。薄膜制备过程中由于杂质的引入破坏了晶格的完整性,从而在介质材料的禁带与导带之间引入一些裂谷态,其中一些被电子占据,形成电子缺陷。激光辐照过程中这些电子吸收光子后可能被激发至导带。因此,即使辐照激光的光子能量未超过材料的禁带宽度,仍能够激发部分电子到导带。被激发电子吸收能量并进一步激发自由电子,最终通过热力作用形成损伤。

至于锥形坑及分层剥落,其形貌与基频辐照时基本一致,因此认为产生机制一致。

2.3 基频与二倍频激光损伤机制比较

由以上损伤形貌可以分析电子束蒸发制备的 $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ 高反膜在基频与二倍频激光辐照时损伤的异同。

脉冲能量密度较小时损伤主要由各种缺陷引起。区别在于基频激光辐照时,损伤主要表现为节瘤缺陷的喷溅,更多的体现了激光的热作用;而在二倍频激光辐照时,虽然吸收性缺陷依然会导致损伤产生,但电子缺陷取而代之成为限制薄膜抗激光性能的因素。对于文中的样品而言,可能激发裂谷态电子所需的能量恰好介于基频与二倍频激光光子能量之间,从而杂质对基频激光只是本征吸收,温升有限不足以产生损伤;在二倍频激光辐照时由于被激发自由电子的强吸收而导致损伤。正是由于波长的变化引起吸收机制的变化从而导致损伤阈值及损伤形貌的差异。

辐照脉冲能量密度增大,基频以及二倍频激光辐照下均出现分层剥落损伤形貌。本文认为主要原因在于界面两侧膜料热力学特性的差异以及膜层界面处的各类杂质、缺陷。分层剥落损伤对薄膜元件的光学性能的影响远远大于缺陷导致的坑状损伤,但相对于针对各类缺陷导致损伤进行的大量研究,对分层剥落的形成原因及其抑制手段的研究较少。

3 结论

辐照激光波长的变化引起吸收机制的变化从而导致损伤机制及损伤阈值的变化。在脉冲能量密度较小时,基频激光辐照高反膜时的损伤主要由节瘤缺陷通过热力耦合作用引起,损伤形貌主要表现为锥形坑;而二倍频激光辐照时首先引起损伤的是膜层中的电子缺陷,表现为平底坑,当脉冲能量密度增大时损伤形貌主要表现为分层剥落,但剥落层内部的损伤形貌不同。长波长激光引发的损伤大多体现为热过程,表现为对样品的宏

观、整体的破坏,而短波长激光则更多的表现为对微观结构的破坏。

参考文献:

- [1] Walker T W, Guenther A H, Nielsen P E. Pulsed laser-induced damage to thin-film optical coatings[J]. *IEEE J Quantum Electron*, 1981, 17 (10), 2041-2065.
- [2] Kozlowski M R, Thomas I M, Campbell J H, et al. High-power optical coatings for a megajoule-class ICF laser[C]//Proc of SPIE. 1993, 1782, 105-121.
- [3] Epifanov A S, Manenkov A A, Prokhorov A M. Theory of avalanche ionization induced in transparent dielectrics by an electromagnetic field [J]. *Sov Phys JETP*, 1976, 43(2), 377-382.
- [4] Hopper R W, Uhlmann D R. Mechanism of inclusion damage in laser glass[J]. *Appl Phys*, 1970, 41(10): 4023-4037.
- [5] Christopher J S, Robert J T, Mark R K, et al. A comparison of nodular defect seed geometries from different deposition techniques[C]// Proc of SPIE. 1995, 2714: 374-382.
- [6] Koldunov M F, Manenkov A A, Pocolilo I L, et al. Theory of laser induced damage to optical coatings: Inclusion initiated thermal explosion mechanism[C]// Proc of SPIE. 1994, 2114: 469-487.
- [7] Stewart A F, Guenther A H. Laser damage test results on Balzers round-robin thin film samples[J]. *Appl Opt*, 1984, 23(21): 3774-3778.
- [8] Austin R R, Michaud R, Guenther A H. Effects of structure, composition, and stress on the laser damage threshold of homogeneous and inhomogeneous single films and multilayers[J]. *Appl Opt*, 1973, 12(4): 665-676.
- [9] Schildbach M A, Chase L L, Hanza A V, et al. Investigation of neutral atom and ion emission during laser conditioning of multilayer HfO₂-SiO₂ coatings[C]// Proc of SPIE. 1991, 1441: 53-59.
- [10] Guenther A H. Nodular defects in dielectric multilayers and thick single layers[J]. *Appl Opt*, 1981, 20: 1034-1038.
- [11] Dijon J, Ravel G, Andre B, et al. Thermo-mechanical model of mirror laser damage at 1.064 μm. part 2: flat bottom pits formation[C]// Proc of SPIE. 1999, 3578: 398-407.
- [12] Wolfe C R, Kozlowski M R, Campbell J H, et al. Laser conditioning of optical thin films[C]// Proc of SPIE. 1989, 1438: 360-375.

Comparison of laser induced damage at 1 064 nm and 532 nm to high-reflective film fabricated by electron beam evaporation

LI Da-wei^{1,2}, TAO Chun-xian^{1,2}, LI Xiao^{1,2}, ZHAO Yuan-an¹, SHAO Jian-da¹

(1. Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China;

2. Graduate University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100039, China)

Abstract: The damage behaviors of HfO₂/SiO₂ high reflective optical thin film fabricated by electron beam evaporation (EBE) illuminated using 1 064 nm laser and 532 nm laser showed some difference. It was found that the damage was usually caused by absorptive defects and absorption near the interfaces under the irradiation of 1 064 nm laser, and the damage was caused by electronic defects and absorptive ones under irradiation of 532 nm laser and the former had lower damage threshold. Therefore, the key point to enhance the laser resistance of optical thin films at 1 064 nm was to prevent the presence of the absorptive defects, and to those at 532 nm was to eliminate the electronic defects.

Key words: Optical thin films; Laser induced damage; Electron beam evaporation; Electronic defects

损伤比较

作者: [李大伟](#), [陶春先](#), [李笑](#), [赵元安](#), [邵建达](#), [LI Da-wei](#), [TAO Chun-xian](#), [LI Xiao](#), [ZHAO Yuan-an](#), [SHAO Jian-da](#)

作者单位: [李大伟,陶春先,李笑,LI Da-wei,TAO Chun-xian,LI Xiao\(中国科学院,上海光学精密机械研究所,光学薄膜技术研究与发展中心,上海201800;中国科学院研究生院,北京,100039\)](#), [赵元安,邵建达,ZHAO Yuan-an,SHAO Jian-da\(中国科学院,上海光学精密机械研究所,光学薄膜技术研究与发展中心,上海201800\)](#)

刊名: [强激光与粒子束](#) **ISTIC EI PKU**

英文刊名: [HIGH POWER LASER AND PARTICLE BEAMS](#)

年,卷(期): 2008,20(9)

被引用次数: 3次

参考文献(12条)

- [Dijon J;Ravel G;Andre B Thermo-mechanical model of mirror laser damage at 1.064 μ m. part 2:flat bottom pits formation](#)[外文期刊] 1999
- [Guenther A H Nodular defects in dielectric multilayers and thick single layers](#) 1981
- [Walker T W;Guenther A H;Nielsen P E Pulsed laser-induced damage to thin-film optical coatings](#)[外文期刊] 1981(10)
- [Schildbach M A;Chase L L;Hanza A V Investigation of neutral atom and ion emission during laser conditioning of multilayer HfO₂-SiO₂ coatings](#) 1991
- [Austin R R;Michaod R;Guenther A H Effects of structure, composition, and stress on the laser damage threshold of homogeneous and inhomogeneous single films and multilayers](#)[外文期刊] 1973(04)
- [Stewart A F;Guenther A H Laser damage test results on Balzers round-robin thin film samples](#)[外文期刊] 1984(21)
- [Koldunov M F;Manenkov A A;Pocotilo I L Theory of laser induced damage to optical coatings:Inclusion initiated thermal explosion mechanism](#)[外文期刊] 1994
- [Christopher J S;Robert J T;Mark R K A comparison of nodular defect seed geometries from different deposition techniques](#) 1995
- [Hopper R W;Uhlmann D R Mechanism of inclusion damage in laser glass](#) 1970(10)
- [Epifanov A S;Manenkov A A;Prokhorov A M Theory of avalanche ionization induced in transparent dielectrics by an electromagnetic field](#) 1976(02)
- [Kozlowski M R;Thomas I M;Campbell J H High-power optical coatings for a megajoule-class ICF laser](#)[外文期刊] 1993
- [Wolfe C R;Kozlowski M R;Campbell J H Laser conditioning of optical thin films](#) 1989

引证文献(3条)

- [潘峰,陈松林,李海波,马平,王震 HfO₂/SiO₂双色膜在1064nm和532nm激光辐照下的损伤特性](#)[期刊论文]-[强激光与粒子束](#) 2011(1)
- [金扬利,赵华,祖成奎,韩滨 CAB玻璃基底不同方法制备的SiO₂膜层性能研究](#)[期刊论文]-[真空](#) 2011(1)
- [赵华,金扬利,祖成奎,韩滨 退火和老化气氛对铝酸钙玻璃上SiO₂薄膜性能影响](#)[期刊论文]-[硅酸盐通报](#) 2010(1)

本文链接: http://d.g.wanfangdata.com.cn/Periodical_qjgylzs200809011.aspx