

1.06 微米高效增透膜的研制

范瑞瑛 陆月妹

(中国科学院上海光机所)

提要: 本文对双层增透膜的误差进行了分析, 指出非 $\lambda/4$ 膜系的双层增透膜比 $\lambda/4$ 膜系的光学性质有更大的稳定性。用 Ta_2O_5 和 SiO_2 作膜料在 K_9 玻璃基底上制备双层增透膜, 其单面反射率小于0.03%, 激光破坏阈值大于7千兆瓦/厘米²(激光波长1.06微米, 脉冲宽度1毫微秒)。

Antireflective coating with high efficiency at 1.06 μm

Fan Reiyang, Lu Yuemei

(Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Academia Sinica)

Abstract. The error of the two-layer antireflective coating is analysed. It is shown that optical properties of the film composed of non-quarter wavelength stack is stabler than those of the film composed of quarter wavelength stack. The two-layer antireflective film has been made on K_9 substrate and Ta_2O_5 and SiO_2 used as coating material. Its reflectivity at one surface is lower than 0.03% and laser induced damage threshold is over 7 GW/cm² (at 1.06 μm and 1 ns).

一、引言

在激光系统中, 激光多级放大中的扩孔望远镜及各种透镜都需镀增透膜, 低的剩余反射一方面使激光输出光强大大增加, 另一方面可以防止透镜表面反射光引起光学元件被破坏。

单层膜的增透效果受膜料本身的限制不可能达到很高, 远远不能满足高功率激光系统的要求, 必须采用双层或多层增透膜系。由于只要求单一波长增透, 又考虑到工艺的简化和可能, 选择了双层增透膜系。为获得

较好的工艺重复性, 我们对正规 $\lambda/4$ 双层膜和非 $\lambda/4$ 双层膜进行了误差分析, 选择了光学厚度宽容量较大的非 $\lambda/4$ 双层膜系, 并对膜料进行了实验研究, 找到了能获得高效增透的工艺条件, 保证了制备的重复性。

二、膜系选择及误差分析

当光垂直入射到镀有双层膜的透明基底上时(如图1), 其反射率 R 可由下式决定:

收稿日期: 1983年12月28日。

$$R = \frac{\left\{ r_1^2 + r_2^2 + r_3^2 + r_1^2 r_2^2 r_3^2 + 2r_1 r_2 (1 + r_3^2) \cos 2\phi + 2r_2 r_3 (1 + r_1^2) \cos 2\psi \right\}}{\left\{ 1 + r_1^2 r_2^2 + r_1^2 r_3^2 + r_2^2 r_3^2 + 2r_1 r_2 (1 + r_3^2) \cos 2\phi + 2r_2 r_3 (1 + r_1^2) \cos 2\psi \right\}} + \frac{\left\{ 2r_1 r_3 \cos 2(\phi + \psi) + 2r_1 r_2 r_3 (\phi - \psi) \right\}}{\left\{ 1 + r_1^2 r_2^2 + r_1^2 r_3^2 + r_2^2 r_3^2 + 2r_1 r_2 (1 + r_3^2) \cos 2\phi + 2r_2 r_3 (1 + r_1^2) \cos 2\psi \right\}}$$

式中 r_1 、 r_2 、 r_3 为费涅尔系数:

$$r_1 = \frac{n_0 - n_1}{n_0 + n_1}, \quad r_2 = \frac{n_1 - n_2}{n_1 + n_2},$$

$$r_3 = \frac{n_2 - n_s}{n_2 + n_s},$$

ϕ 和 ψ 为各层的位相差,

$$\phi = \frac{2\pi n_1 d_1}{\lambda}, \quad \psi = \frac{2\pi n_2 d_2}{\lambda}.$$

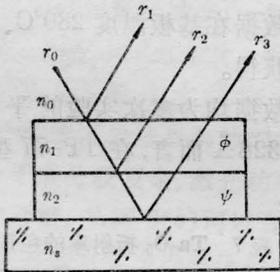


图1 双层膜的模型

在折射率确定的情况下, 只要调节两层的厚度, 即改变 ϕ 和 ψ 可以使膜系的反射率为零。在一般镀制过程中, 总是让接近基底的内层膜先用高折射率膜料 n_2 涂到某一反射率值 R_m , 使该层的位相厚度满足 ψ , 接着镀低折射率膜料 n_1 到一极值, 然后再返回到第二个极值。此时低折射率层的位相厚度为 ϕ , 因此涂完第一个极值的这层膜实际是由两种膜料组合而成。该层膜的折射率可以等效为某一单层膜的折射率 n_e (如图2所示), 为方便起见, 我们称它为等效层。

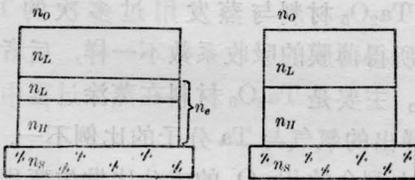


图2 $\lambda/4$ 和非 $\lambda/4$ 双层膜

由双层膜的计算公式可以得到: 当 $n_0 = 1$, $n_s = 1.506$, $n_L = 1.45$, $n_H = 2.04$ 时, 只要 $R_m = 10.7\%$ 就可以获得中心波长处的零反

射, 此时的 $n_e = 1.782$ 。用 $n_L = 1.45$, $n_H = n_e = 1.782$ 的 $\lambda/4$ 双层膜也可获得同样的结果。将此两种膜系进行误差分析比较如下。

首先考虑在这两种膜系中膜料折射率偏离获得零反射所对应的匹配值时的情形, 当它们具有相同的相对误差时, 它们对总的反射率光谱的影响如表1、2所示。

表1 当 n_H 偏离最佳值 $\pm 7.85\%$, $n_L = 1.45$ 不变时

非 $\lambda/4$ 双层膜			$\lambda/4$ 双层膜		
n_H	R_{\min}	g_{\min}	n_H	R_{\min}	g_{\min}
2.04	0	1.0	1.782	0	1.0
2.20	0.0069%	1.0	1.922	0.57%	1.0
1.88	0.016%	1.0	1.642	0.66%	1.0

表2 当 n_L 偏离最佳值 $\pm 6.9\%$, $n_H = 2.04$ 及 $n_e = 1.782$ 不变时

非 $\lambda/4$ 双层膜			$\lambda/4$ 双层膜		
n_L	R_{\min}	g_{\min}	n_L	R_{\min}	g_{\min}
1.45	0	1.0	1.45	0	1.0
1.55	0.28%	1.01	1.55	0.44%	1.0
1.35	0.35%	0.985	1.35	0.51%	1.0

注: $g_{\min} (= \lambda_0/\lambda_{\min})$ 为反射率极小值对应的相对波数。

由表1、2可以看出: 在非 $\lambda/4$ 双层膜中, 当膜料的折射率偏离匹配值时, 它们对反射率极小值的影响都比在双层 $\lambda/4$ 膜中小, 特别是高折射率膜料差异更为显著。

其次, 分析两种膜系的反射率控制误差 (在折射率不变的情况下, 它就反映了厚度误差) 对总的反射率光谱特性的影响, 发现厚度误差的影响与折射率误差的影响相比是微不足道的, 所以总的误差的影响主要是由膜料折射率引起的 (表3以非 $\lambda/4$ 双层膜为例分析了内外层分别具有相同的相对控制偏差时的情形)。因此可以断定非 $\lambda/4$ 双层膜系要比

$\lambda/4$ 双层膜系稳定, 而且非 $\lambda/4$ 膜系受膜料折射率的束缚小, 所以我们选择它作为实验膜系。具体膜系为: $A(\alpha_1 L, \alpha_2 H) G(\alpha_1, \alpha_2$ 为对 $\lambda/4$ 的相对厚度, $\alpha_2 < 1, \alpha_1 > 1$), 计算当 $n_0 = 1.0, n_S = 1.506, n_L = 1.45, n_H = 2.04$ 时两层的位相厚度为 $\delta_L = 1.9967$ (弧度), $\delta_H = 0.6059$ (弧度), 它的光谱曲线见图 3, 中心波长处 $R_{\min} = 0$ 。

表 3 非 $\lambda/4$ 双层膜的反射率控制偏差的影响

内层膜			外层膜		
$(\frac{\Delta R}{R})_H$	R_{\min}	g_{\min}	$(\frac{\Delta R}{R})_L$	R_{\min}	g_{\min}
$\frac{1}{220}$	0.00001%	1.0	$\frac{1}{220}$	0.005%	0.975
$\frac{1}{110}$	0.00007%	1.0	$\frac{1}{110}$	0.008%	0.965
$\frac{1}{55}$	0.00029%	1.0	$\frac{1}{55}$	0.019%	0.940

统观表 1~3 可见, 在非 $\lambda/4$ 双层膜中, 无论是折射率还是厚度的偏离带来的影响, 外层膜比内层膜都更为显著, 这就说明非 $\lambda/4$ 双层膜制备中严格控制外层膜的重要性。

三、制备工艺

1. 膜料的研究

(a) Ta_2O_5 膜料的特性

我们采用纯度为 99.95% 的白色 Ta_2O_5 粉料压块, 经 900°C 高温炉烧结 8 小时制成 Ta_2O_5 块料, 用 E 型枪蒸发技术, 研究了 Ta_2O_5 膜料的折射率随工艺条件的变化, 以及它的色散等情况。表 4~7 分别表明了折射率随工艺条件的变化及色散。

表 4 n 随基板温度的变化

$t(^{\circ}C)$	250	280	330
n	2.067	2.077	2.083

表 4 数据均在充氧压为 2×10^{-4} 托、淀积速率为 $7 \sim 8 \text{ \AA}/\text{秒}$ 条件下获得。

表 5 n 随氧压的变化

$P(\text{托})$	2×10^{-4}	3×10^{-4}	4×10^{-4}
n	2.071	2.058	2.048

表 5 数据均在基板温度 280°C、淀积速率 $7 \sim 8 \text{ \AA}/\text{秒}$ 、初始气压为 1×10^{-4} 托下获得。

表 6 n 随淀积速率的变化

$v(\text{ \AA}/\text{秒})$	4~5	9
n	2.060	2.065

表 6 数据在基板温度 280°C、气压为 3×10^{-4} 托下获得。

上述数据均为多次实验的平均值, n 值是对 $\lambda = 6328 \text{ \AA}$ 而言, 在 TP-77 型椭偏测厚仪上测定。

表 7 Ta_2O_5 折射率的色散

$\lambda(\text{微米})$	1.05	0.94	0.82	0.75	0.65	0.54	0.46
n	2.05	2.053	2.056	2.061	2.066	2.09	2.11

表 7 数据是在相同的基板温度 (300°C) 氧压 (1.6×10^{-4} 托)、淀积速率 ($8 \text{ \AA}/\text{秒}$) 下经多次实验的结果。

由上述实验可见 Ta_2O_5 材料的折射率在一定的温度、气压及淀积速率范围内变化不大。

测量 K_0 基板上单层 Ta_2O_5 薄膜在 6500 \AA 附近散射率的结果表明, 它的散射损耗与 ZrO_2 相当, 但吸收损耗是很小的。

实验发现在同样的淀积条件下, 蒸发新鲜的 Ta_2O_5 材料与蒸发用过多次的 Ta_2O_5 材料所得薄膜的吸收系数不一样, 后者明显增大。主要是 Ta_2O_5 材料在蒸涂过程中的分解, 释出的氧气与 Ta 分子的比例不一, 致使坩埚中剩余的 Ta_2O_5 的成分比发生变化。因此每次蒸涂都添加一些新鲜材料, 或加大充氧量予以弥补。

(b) SiO_2 膜料的特性

大量的实验已证明, SiO_2 膜料在空气中

的折射率再现性较好, 但它在真空中的情况是否也如此? 为此, 对 SiO_2 膜料也进行了一系列实验, 分别做了它在不同工艺条件下的 $\lambda/4$ 单层膜 ($\lambda = 6328 \text{ \AA}$), 观察它在真空中和大气中热处理前后 (烘烤温度均为 280°C) 的变化, 具体数据由表 8~10 列出。

表 8 n 与真空度的关系

气压 P (托)	3×10^{-4}	2×10^{-4}	$6 \sim 4 \times 10^{-5}$
n	1.359	1.372	1.40

表 8 数据在基板不加烘烤, 淀积速率基本维持在 $45 \text{ \AA}/\text{秒}$ 时获得。

表 9 n 与基底温度 T 的关系

环境气氛		$T(^{\circ}\text{C})$		
		室温 30°C	225°C	275°C
		n		
真空 2×10^{-4} 托		1.372	1.389	1.403
大气中	烘烤前	1.453	1.455	1.462
	烘烤后	1.447	1.448	1.449

表 9 样品制备过程中真空度维持在 2×10^{-4} 托, 淀积速率为 $\sim 45 \text{ \AA}/\text{秒}$ 。

表 10 n 与淀积速率 v 的关系

环境气氛		$v(\text{ \AA}/\text{秒})$		
		18	45	72
		n		
真空 (2×10^{-4} 托)		1.355	1.372	1.392
大气中	烘烤前	1.445	1.453	1.457
	烘烤后	1.441	1.447	1.447

表 10 样品制备过程中基板不加温, 真空度维持在 2×10^{-4} 托。

由表 8~10 可以看出: (1) SiO_2 的折射率是随基底温度、真空度和淀积速率的升高而增大的; (2) SiO_2 的折射率随淀积条件的变化在真空中比在大气中敏感; (3) SiO_2 的折射率从真空 \rightarrow 大气 \rightarrow 烘烤后的变化有一个可逆的过程, 即在真空中较低, 置于空气中就

明显上升, 而经烘烤后又略有下降。

2. 制备要点

该增透膜的制备没有采取什么特殊的工艺, 为获得好的制备重复性, 必须注意控制膜料淀积时的工艺条件, 如基底温度、氧压、淀积速率等 (特别是 SiO_2 膜料在真空中折射率变化较敏感, 而它对增透膜的影响又较大) 才能获得数值较稳定的折射率。同时必须注意到膜料折射率在真空中与大气中的差异, 找出真空中的 δ'_H 值 (它略小于设计的 δ_H 值), 才能使制备的增透膜获得与设计值较相符的光谱性能。

四、实验结果

1. 光谱性能

镀制样品在低反射率测量仪作反射率点测及在 UV-360 光谱仪上作扫描测量的结果列于表 11 及图 3 中。结果表明, 该增透膜在波长 1.06 微米附近, K_0 基板的单面反射率 $R \leq 0.03\%$ 。

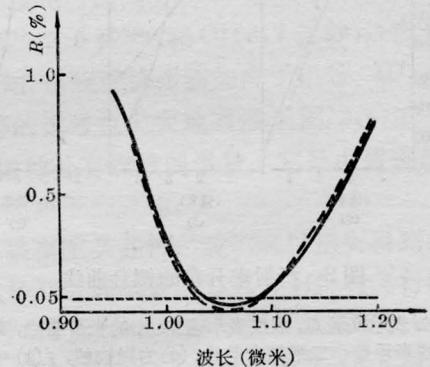


图 3 实验结果与理论计算比较

——实测曲线 ——理论曲线

用散射测量装置测定了 $\lambda = 0.65$ 微米的增透膜的散射率为 $1 \sim 1.5 \times 10^{-4}$, 比单层的 Ta_2O_5 膜的散射还低些。

2. 激光破坏阈值

用 1.06 微米脉宽为 1 毫微秒脉冲激光

表 11 增透膜的低反射率测量数据

样 品 号	λ (微米)		
	1.065	1.061	1.055
R (%)			
1	0.017	0.016	0.015
2	0.021	0.016	0.010
3	0.024	0.019	0.018
4	0.013	0.015	0.018
5	0.013	0.014	0.013
6	0.020	0.012	0.010
7	0.010	0.010	0.011
8	0.016	0.011	0.010
9	0.010	0.011	0.012
10	0.026	0.018	0.020

测定了该增透膜的破坏阈值为 7~8 千兆瓦/厘米²。能满足高功率激光系统的要求。

交大黄木贞老师在低反射率光谱测量方面给了大力支持,在此顺致感谢。



(上接第 692 页)

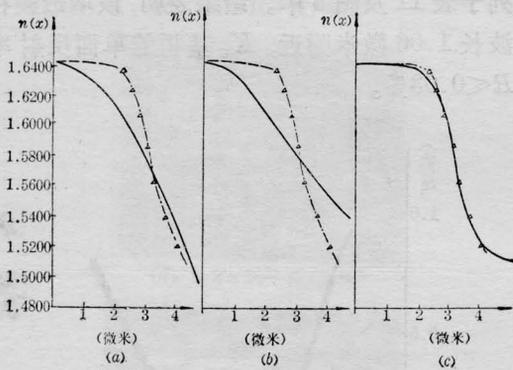


图 2 折射率分布的拟合曲线

Δ 表示实验点,虚线表示连接 Δ 的光滑曲线,实线表示最小二乘拟合曲线,(a)为抛物线, $f(x) = 1 - (x/d)^2$, $d=4.48$ 微米, $\epsilon=0.0022$; (b)为高斯函数, $f(x) = e^{-(x/d)^2}$, $d=3.83$ 微米, $\epsilon=0.0044$; (c)为费米函数, $f(x) = (1 - e^{-d/a} + e^{-(x-d)/a})^{-1}$, $d=3.17$ 微米, $a=0.35$ 微米, $\epsilon=0.8 \times 10^{-4}$

式中 a 是表示折射率形状的参数, d 是表示波导厚度的参数。

我们的实验波导 a 为 0.35 微米,其折射

率接近阶跃型,由图 2(c) 也能看到这一点。这个结果不同于 $AgNO_3$ 离子交换波导,也比文献 [1] 的描述更精确, (文献 [1] 用抛物线分布描述 Tl_2SO_4 离子交换波导的折射率)。 Tl_2SO_4 离子交换波导之所以有这种接近阶跃的折射率分布,可能是由于 Tl_2SO_4 离子交换温度较高(500°C),在此温度下玻璃表面一定深度内的钠等轻金属离子能充分被 Tl^{++} 离子交换取代,使该深度内形成较平缓的折射率,直至更深的层才逐渐变成渐变折射率。这有待进一步验证。

参 考 文 献

- [1] 小泉健等;特许公报,昭 56~18924, p. 19~30.
- [2] G. Stewart et al.; *IEEE Trans. Electr.*, 1977, **QE-13**, No. 4, 192.
- [3] J. M. White, P. F. Heidrich; *Appl. Opt.*, 1976, **15**, No. 1, 151.
- [4] 冯康等著;“数值计算方法”,国防工业出版社,1978.