

光学薄膜的损伤及其累积效应

施正荣 范正修 邓 和

(中国科学院上海光机所)

提要 TiO_2 和 ZrO_2 薄膜的激光损伤实验表明:随着薄膜吸收的减小,薄膜的单次和多次脉冲损伤阈值都单调提高,导致损伤的主要因素是由于薄膜的吸收(包括本征和杂质吸收)、多次脉冲破坏具有一定的微破坏累积效应。

Damage and its accumulation of optical coatings

Shi Zhengrong, Fan Zhengxiu, Deng He

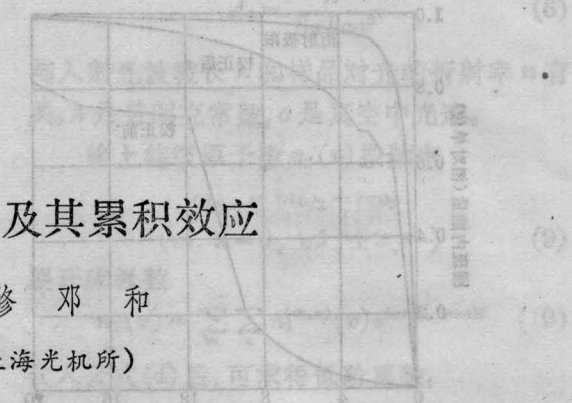
(Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Academia Sinica, Shanghai)

Abstract: Damage experiments on TiO_2 and ZrO_2 coatings show that the thresholds of coatings induced by single or multiple shots increase monotonically as absorption of the coatings decreased. The main factor for inducing damage of coatings is the absorption of the coatings, including inherent absorption and that created by the coating inhomogeneities. Damage of coatings induced by multiple shots shows some accumulative effect of micro-damages.

一、导 言

在激光系统中,尤其是在高能量和高功率的激光系统中,光学薄膜作为一种元件,通常是一重要而又薄弱的环节。它的抗激光损伤能力限制了激光器的输出水平。关于这一问题,人们已进行了很多探讨和研究^[1~5],研究结果表明:薄膜的损伤既与薄膜本身的吸收^[3]、散射、热扩散、折射率、比热、应力、附着力、结构以及薄膜内的杂质和缺陷等有关,也随激光的波长、脉冲宽度、焦斑大小的不同而变化。

薄膜中的吸收是不可避免的,于是在激



光作用下,薄膜内就有能量淀积并产生热能。若激光的能量很高,则薄膜内热的作用可导致薄膜的初始损伤。这里主要报道 TiO_2 和 ZrO_2 薄膜的单次和多次脉冲损伤实验,从薄膜吸收的角度出发,分析薄膜的激光破坏过程。

二、实验样品

我们镀制了光学厚度为 $\lambda/2$ ($\lambda=1.06 \mu m$) 的单层膜,以忽略薄膜内部电场分布的不均匀性。样品基底均为 K 。玻璃,它们的特性参数如表 1。

收稿日期:1986年10月6日。

表 1

样品序号	材料	膜厚 1.19 (μm)	吸收
S_1	ZrO ₂	445	1.7×10^{-4}
S_2	TiO ₂	412	1.43×10^{-3}
S_3	TiO ₂	430	3.2×10^{-3}
S_4	TiO ₂	350	2.6×10^{-2}

三、实验过程

图 1 是光学薄膜的激光损伤实验装置。Nd:YAG 固体重复频率振荡器, 工作于单模状态, 工作波长 $1.06 \mu\text{m}$, 脉冲宽度为 12 ns , 重复频率 2 pps 。入射激光束由焦距 180 mm 的会聚透镜会聚于样品表面, 光斑大小为 $20 \mu\text{m}$, 薄膜的损伤情况由置于其前的高倍显微镜观察判断。薄膜损伤阈值定义为两个极值的平均值, 即让薄膜破坏的最低能量和不能使薄膜破坏的最高能量两者的平均值。

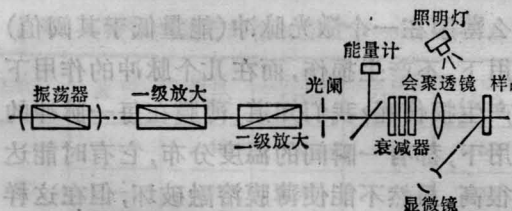


图 1 实验装置

四、单次脉冲损伤

单次脉冲损伤就是在单次激光脉冲的作用下, 薄膜的破坏情况。表 2 列出了 TiO₂ 和 ZrO₂ 薄膜的损伤阈值。结果表明, 同样的 TiO₂ 薄膜材料, 在不同的条件下镀制的薄膜, 损伤

表 2

样品	损伤阈值 (J/cm^2)	吸收系数
S_1	40	1.7134×10^{-4}
S_2	20	1.4304×10^{-3}
S_3	19	3.234×10^{-3}
S_4	3.5	2.613×10^{-3}

阈值有很大差异。随着它们的吸收由大到小, 损伤阈值单调增加, ZrO₂ 薄膜的吸收最小, 其损伤阈值也最高, 其损伤阈值为 $40 \text{ J}/\text{cm}^2$ 。

五、多次脉冲损伤

多次脉冲损伤即在能量比单次脉冲损伤

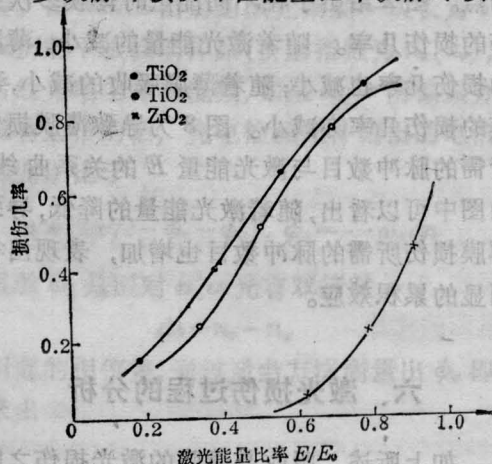


图 2 薄膜损伤几率与能量的关系

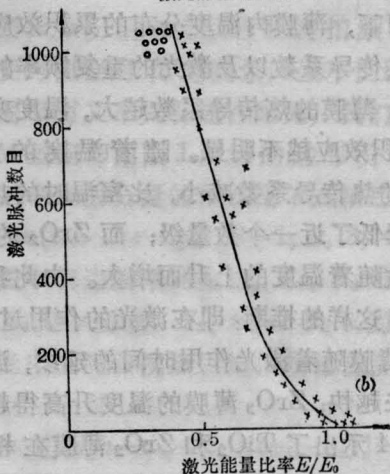
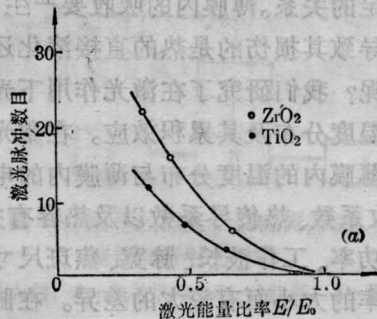


图 3 导致薄膜多脉冲损伤的脉冲数目与激光能量的关系

阈值低得多的多脉冲激光作用下,薄膜的损伤情况,它反映了薄膜抗重复频率的能力。实验发现,有些区域在连续几个激光脉冲的作用下就发生破坏;而另一些区域则在连续上千个激光脉冲作用也不发生破坏。我们把连续一千个脉冲作用不发生破坏的点称不损伤点。图2给出了在不同能量时薄膜多次损伤的损伤几率。随着激光能量的减小,薄膜的损伤几率也减小;随着薄膜吸收的减小,薄膜的损伤几率亦减小。图3为导致薄膜损伤所需的脉冲数目与激光能量 E 的关系曲线。由图中可以看出,随着激光能量的降低,导致薄膜损伤所需的脉冲数目也增加,表现出很明显的累积效应。

六、激光损伤过程的分析

如上所述,吸收与薄膜的激光损伤之间存在一定的关系。薄膜内的吸收要产生热,那么最终导致其损伤的是热的直接溶化还是热的作用呢?我们研究了在激光作用下光学薄膜内的温度分布及其累积效应。在激光作用下光学薄膜内的温度分布与薄膜内的电场分布、吸收系数、热传导系数以及热容有关;也随激光功率、工作波长、脉宽、焦斑尺寸以及重复频率的大小而有较大的差异。在脉冲激光作用下,薄膜内温度分布的累积效应与薄膜的热传导系数以及激光的重复频率的关系甚大。薄膜的热传导系数越大,温度变化越快,累积效应越不明显。随着温度的上升, TiO_2 的热传导系数减小,比室温时的热传导系数降低了近一个数量级;而 ZrO_2 的热传导系数随着温度的上升而增大。由此我们不难得出这样的推断:即在激光的作用过程中, TiO_2 薄膜随着激光作用时间的延续,温度升高越来越快; ZrO_2 薄膜的温度升高得越来越慢。图4示出了 TiO_2 和 ZrO_2 薄膜在相同能量的单次脉冲作用下的温度分布情况(理论计算值)。在相同的能量和作用时间内, ZrO_2

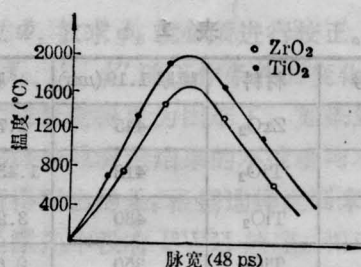


图4 单脉冲作用下的温度分布

的温度分布明显地比 TiO_2 低得多。由于 ZrO_2 的温升速率比 TiO_2 慢,且其熔点比 TiO_2 的高,于是由熔融导致的 ZrO_2 薄膜损伤的阈值能量比 TiO_2 的高。

同样,我们也研究了在多次脉冲作用下,薄膜内的温度分布情况,设在整个焦斑区域里均匀吸收和加热,局部区域内的温度可达 $2 \times 10^3 \text{ K}$ 。但是由于热扩散和热损耗的影响,温度能在小于 $1 \mu\text{s}$ 的时间内降下。所以,在两个脉冲的间隙内(不小于 100 ms),受热区域具有足够的时间冷却。即薄膜的多脉冲不由于热的累积而造成的熔融破坏。那么为什么薄膜在一个激光脉冲(能量低于其阈值)作用下,不产生损伤,而在几个脉冲的作用下则产生损伤呢?我们知道,薄膜在每一脉冲的作用下,都有一瞬间的温度分布,它有时能达到很高。虽然不能使薄膜熔融破坏,但在这样的温度下,薄膜原有的特性发生了变化,其中有些变化是带有破坏性质的。这些变化中,有些是可逆的,即在激光停止作用时,能够还原,而有些是不可逆的。于是这些不可逆的变化在后来脉冲的作用下,破坏程度不断加剧。当这样的微损伤区域达到一定浓度时,摧毁性的、可见的损伤就发生了。

七、形貌分析

图5为 ZrO_2 薄膜的TEM照片,其颗粒度大小为 200 nm 左右,在成膜过程中掺有杂质颗粒。图6为 TiO_2 薄膜的TEM照片,其表面颗粒度比 ZrO_2 薄膜的小得多,几乎看不出来,它的表面也存在着杂质颗粒和气

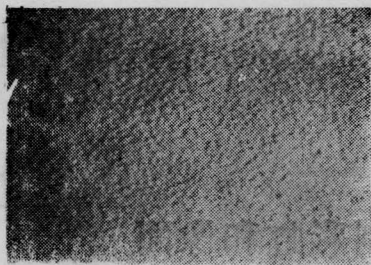


图5 ZrO_2 薄膜表面的 TEM 照片(25000 \times)

泡,且分布不均匀。很多工作表明^[4]:随着膜层颗粒度的减小,薄膜的损伤阈值提高。但在我们的实验里,颗粒度大的 ZrO_2 薄膜的损伤阈值反而比颗粒度小的 TiO_2 薄膜的损伤阈值高,这是因为 ZrO_2 薄膜的吸收远比 TiO_2 薄膜的吸收小。进一步说明了吸收在损伤过程中所起的主导作用。

图7示出了在单次和多次脉冲作用下薄膜的损伤形貌。由图中可以看出,单次损伤形貌呈现出明显的热喷溅状。这可能是在损伤的最后阶段,等离子体的强烈吸收导致对薄膜的加热,以致薄膜的温度上升很高足以使其溶化和重新结晶。多脉冲的损伤程度较单次脉冲的损伤程度轻,且表现出一定的累积效应,导致其最后损伤的也不尽是等离子体的加热破坏,而表现出其他性质的破坏,如图7(a)表现出明显的应力破坏。这一事实也说明了我们上述的推断;即在多脉冲作用下,导致薄膜损伤的不一定是直接的熔融破坏而是在热的作用下,薄膜的特性发生了不可逆的破坏变化,于是在后来脉冲的作用下,破坏因素不断增加,直接导致它的最后损伤。

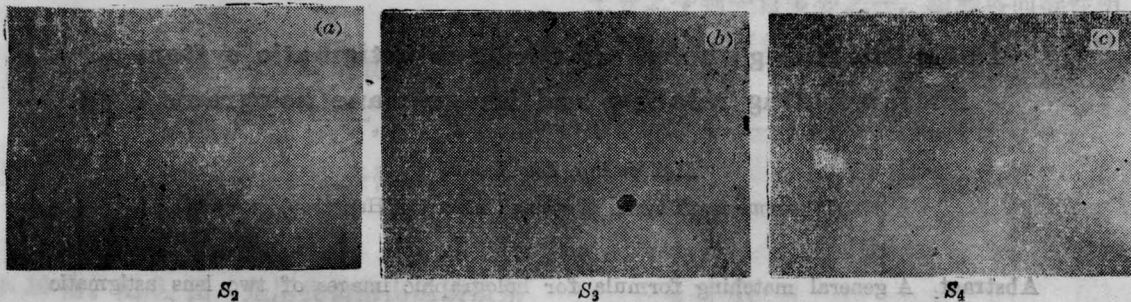


图6 TiO_2 薄膜表面的 TEM 照片(25000 \times)

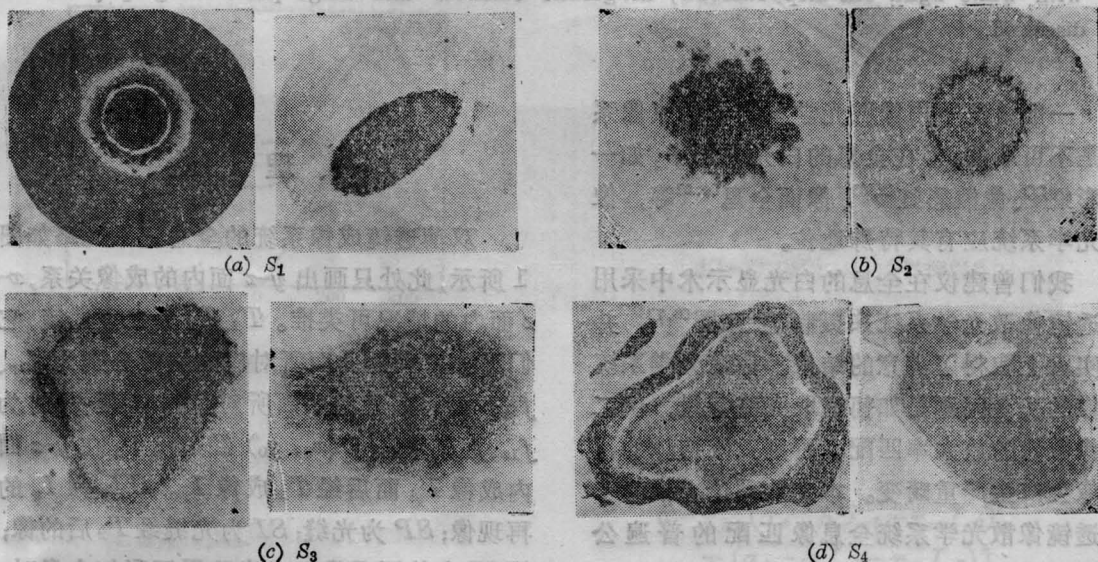


图7 薄膜的激光损伤形貌

(下转第62页)

表1 疏通效果与激光能量的关系

疏通效果	激光能量 (J)										总计(%)
	1	1.5	2	2.5	3	6	7	8.4	10	14	
全通				1	1	2	2	1	4	1	12 } (85%)
部分通		1	1	1			1		1	5	
未通	1	1						1 (5 cm 机化紫)			3
损伤					1 (断帽)		1		4	1	8 (40%)
损伤数/疏通数							1/3	1/2	4/5	1/1	

图5为血管被激光经裸露光纤疏通后的横切面。管腔内血栓大部分气化，管腔周边留有残余炭化物和碎片，血管损伤累及中膜浅层，可见空泡样改变。图6为用激光经热帽光纤疏通的管腔，管壁无损，覆有薄层炭化物。由于受热刺激而收缩，管腔不规则。利用激光疏通20条血管，总计疏通率为85%。其中完全疏通率为60%，部分疏通率为25%。血管损伤率为40%

激光能量不同，效果也各异，详见表1。

四、讨论分析

1. 激光功率和时间选择问题。根据本组实验，激光能量要控制在一定安全范围。从表1可以看出：能量大于6J，开始损伤血管，而能量在2J以下，难以疏通血管。比较合适的能量为2.5至6J。

照射时必须注意光束与管壁平行。如果光束向着管壁照射，即使能量在2J以下也会损伤管壁。

2. 光纤选择问题：光纤要求柔韧光滑，可以随小血管弯曲而不易折断。外径小于0.9mm，石英心

径为400~500μm比较合适。我组开始采用裸露光纤，光纤端易被血液污染，管壁也易损伤，气化后残余物明显，不光滑的管腔壁容易引起再闭合。后改用热帽光纤，光纤端封于金属帽内，不易被血液污染，气化后残余物少，管壁也较光滑，金属帽也可按血管径酌换，在X光透视下可显示金属帽的方位，无激光散射和偏离影响，但偶有断帽和粘连的问题尚待解决。

3. 激光加热与电阻加热的热帽选择问题。热帽光纤的优点是：(1)通过激光作用的金属帽，光能迅速转变为热能，气化较为完全。(2)与电阻加热相比，激光加热和冷却非常迅速，热端与组织粘连较少。(3)电阻加热灼化面较激光气化面粗糙。(4)靠近心脏采用电阻加热，容易引起心律失常。

本实验得到赵华月教授的指导，并在戴植本教授指导下进行手术，在石秀眉技师协助下进行血管造影，在此深表感谢。

(收稿日期：1986年7月22日)

(上接第25页)

在此，向七室李成富、张美珍、郭聚平同志在实验工作中给予的协助表示谢意，向十室镀膜组的陆月妹、何绍玲同志在实验样品的制备和测试过程中给予的协助表示感谢。

参考文献

[1] Glass A J, Guenther A H. *Appl. Opt.*, 1972; 11

(4): 832

2 Bennett H, Guenther AH. *Appl. Opt.*, 1986; 25(2): 258
 3 “激光对介质薄膜的破坏”，中国科学院上海光机所研究报告集，第三集，1976: 120
 4 Guenther H. Laser induced damage in optical materials, NBS, Spec-Publ. 1981: 3~50
 5 Bennett H E, Guenther A H. *et al.* Laser-induced damage in optical materials, 15 ASTM Symposium. *Appl. Opt.*, 1986; 25(2): 258-275