

10.6 μm 激光对钛、锆光学薄膜的损伤*

李仲伢 邓 和 范正修

(中国科学院上海光机所)

1.06 μm laser-induced damage of Ti, Zr thin-film optical coating

Li Zhongya, Deng He, Fan Zhenxiu

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

提要: 本文报道了1.06 μm 激光对 TiO_2 、 ZrO_2 和 Ti_3O_5 的单层膜和多层膜的损伤阈值和损伤形貌。研究了损伤阈值与膜厚、缺陷和保护膜之间的关系。

关键词: 损伤, 光学薄膜, 缺陷

一、引 言

激光对光学薄膜的损伤限制了激光功率水平的进一步提高。近年来国内外对光学薄膜激光损伤的研究已取得较大进展^[1~4], 但激光与薄膜相互作用的物理过程和损伤机理等问题还有待进行深入的研究。

本文报道了 ZrO_2 、 TiO_2 和 Ti_3O_5 三种材料不同厚度的单层膜和多层膜的激光损伤阈值和损伤形貌。研究了膜厚和缺陷与损伤阈值的关系。工艺条件对损伤阈值的影响和保护膜的作用。

二、实验装置和方法

2.1 实验装置

进行光学薄膜激光损伤实验的装置如图1所示。激光系统由一级振荡和二级放大的YAG激光器组成。振荡器采用 LiF:F_2^{-1} 晶体调Q, 小孔光阑选模, 输出波长为1.06 μm ,

TEM₀₀ 模, 光斑直径44 μm , 脉宽为10 ns。振荡器输出的激光束经过放大, 由一消像差的非球面透镜 ($f=80.4\text{ mm}$) 会聚至样品膜上。样品安置在三维可调的精密调整架上, 这不仅可以在实验中方便地移动样品, 同时还可以利用这个装置, 用刀口扫描法精确测定焦斑的面积。He-Ne 激光调整得与主激光束同轴, 用它来调试整个光学系统。显微镜用来对样品的损伤进行仔细的观察诊断。

2.2 损伤阈值的赋值

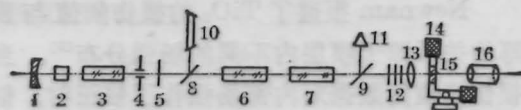


图1 实验装置示意图

1— $R=3\text{m}$ 的全反射镜; 2—LiF 晶体; 3—YAG 振荡器棒; 4—小孔光阑; 5—输出腔镜 $T=50\%$; 6,7—YAG 放大器棒; 8,9—分束镜; 10—He-Ne 激光器; 11—能量计; 12—波片; 13—非球面透镜; 14—样品架; 15—样品; 16—显微镜

收稿日期: 1988年4月19日。

* 本工作系国家自然科学基金资助。

损伤阈值测定值的赋值如下:

$$E_{th} = \frac{1}{2} \frac{[E_{max}(ND) + E_{min}(D)]}{A} \quad (1)$$

式中 $E_{max}(ND)$ 是不引起涂层损伤的最高能量, $E_{min}(D)$ 是引起涂层损伤的最低能量。A 为涂层上强度大于中心光强的 $1/e^2$ 的光斑面积。

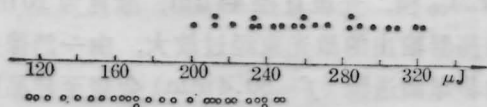
定义损伤阈值的扩展范围为

$$S = \frac{E_{max}(ND) - E_{min}(D)}{\frac{1}{2} [E_{max}(ND) + E_{min}(D)]} \quad (2)$$

S 常常作为损伤过程统计性质的半定量测量的判据。

损伤实验采用 1-on-1 的方式进行, 即在样品的一个位置上只照射一次激光, 不管这一点是否遭到损伤。薄膜样品典型的激光损伤随能量的分布如图 2 所示。图中

$$E_d = \frac{1}{2} [E_{max}(ND) + E_{min}(D)] \pm \frac{S}{2}$$



Ti₃O₅, $\frac{\lambda}{4}$ ($\lambda=632.8 \text{ nm}$), $E_d=224 \pm 23 \mu\text{J}$

图 2 激光损伤的分布

• — 损伤, ○ — 不损伤

三、实验结果和讨论

3.1 损伤阈值与膜厚的关系

Newnam 报道了 TiO₂ 的损伤阈值与膜厚的关系源于膜层内不同的场强分布^[5]。当损伤阈值的数据对内部场强作了修正时, 似乎支持了 Newnam 的结论。然而文献[1]中不同材料膜的大多数实验数据在对内场作了修正后, 仍然存在着破坏阈值与膜厚的关系。但是, Walker 等人认为对 ZrO₂、HfO₂ 和 TiO₂ 基本上不存在破坏阈值与膜厚的关系。他们的结论是损伤阈值与膜厚的关系不能完全用内部电磁场来解释。

我们对 TiO₂、ZrO₂ 和 Ti₃O₅ 三种材料不同厚度的膜进行激光损伤实验, 结果如表 1 所示, 这三种材料的膜其损伤阈值与膜厚均有明显对应的关系。所有 $\frac{\lambda}{4}$ 厚度的膜均比 $\frac{\lambda}{2}$ 膜的损伤阈值高, 约高一倍左右。

表 1 损伤阈值与膜厚的关系

材 料	膜 厚 ($\lambda=1.06 \mu\text{m}$)	损伤阈值 (J/cm ²)	扩 展
ZrO ₂	$\frac{\lambda}{4}$	37.3±5.3	±14%
	$\frac{\lambda}{2}$	15.3±2.6	±17%
TiO ₂	$\frac{\lambda}{4}$	31.7±5.7	±18%
	$\frac{\lambda}{2}$	17.6±2.6	±14%
Ti ₃ O ₅	$\frac{\lambda}{4}$	21.9±3.3	±15%
	$\frac{\lambda}{2}$	11.4±1.8	±16%

损伤阈值与膜厚关系的机理问题比较复杂, 除了前面提到内部电磁场的作用外, 缺陷和杂质的因素可能更为重要。对于脉宽为 0~10 ns 的脉冲最主要的损伤机理是亚微米直径杂质的吸收。在薄膜的情况下, 由于杂质的大小受到膜厚的限制。当薄膜的厚度减小时, 因排除了相当一部分最容易产生破坏的杂质尺寸, 因此损伤几率减小, 破坏阈值提高。当膜的厚度增加时, 缺陷和杂质相应增加, 同时膜的光吸收和内应力也增加, 因此厚膜较容易产生破坏, 所以大部分膜的损伤阈值随着厚度的增加而下降。

3.2 保护膜提高了偏振膜的损伤阈值

偏振膜 6-1 和 6-29 的主膜系结构和工艺条件基本相同, 样品 6-1 加了 $\frac{\lambda}{2}$ SiO₂ 保护膜 ($\lambda=1.06 \mu\text{m}$), 损伤阈值为 54.7 J/cm²。样品 6-29 未加保护膜, 损伤阈值为 15.8 J/cm²。有保护膜样品的损伤阈值比无保护膜的提高了 2.5 倍。

从薄膜的结构分析^[6]中知道 SiO₂ 膜是

无定形结构,呈现均匀的颗粒状态,颗粒尺寸约为 25nm。SiO₂膜应力较小,膜吸收小,因此它具有承受激光破坏能力强的特点。普通的偏振膜最外层是 TiO₂ 或 ZrO₂, 它们是结晶型结构,处于张应力,容易破坏。在偏振膜上加了一层 SiO₂ 后,改善了膜的表面结构,因此大大提高了偏振膜的激光损伤阈值。

3.3 制膜工艺对损伤阈值的影响

我们对一组膜厚为 $\frac{\lambda}{4}$ ($\lambda=632.8\text{nm}$) 的 Ti₃O₅ 单层膜样品进行了实验。首先在 GFS 高反仪上测定了薄膜在 1.06 μm 波长上的透过率和反射率。计算出薄膜的光损耗(包括吸收和散射损耗等)。结果见表 2, 尤其是不充氧对损伤阈值的影响很严重, 比较样品 A 和 B, A 未充氧, B 充氧, 其他工艺条件均相同, A 的光损耗比 B 高 25 倍, 而损伤阈值 A 大约只有 B 的二十分之一。原因是因样品在镀膜过程中未充氧气, Ti₃O₅ 没有充分氧化成 TiO₂。电镜分析的结果表明膜层中含有较多的 Ti₃O₅, 由于 Ti₃O₅ 的强烈吸收, 使样品 A 的光损耗特别大。其损伤阈值要比普通样品低几十倍。样品 C 和 D 因烘烤温度不同, 其他工艺条件均相同, 则它们的光损耗也有成倍的相差。表 2 的结果表明制膜工艺

表 2 工艺条件对损伤阈值的影响

样品	工艺条件	光损耗	损伤阈值 (J/cm ²)
A	基板, 300°C 烘烤 3h, 不 充 O ₂	1.75×10^{-1}	0.51 ± 0.18
B	基板, 300°C 烘烤 3h, 充 O ₂	6.8×10^{-3}	9.9 ± 1.1
C	基板, 250°C 烘烤 2h, 充 O ₂	4.2×10^{-3}	14.7 ± 1.5
D	基板, 200°C 烘烤 2h, 充 O ₂	2.2×10^{-3}	15.3 ± 2.1

对膜的光损耗和损伤阈值有很大的影响。且损伤阈值随着光损耗的增加而下降。

3.4 缺陷密度与损伤阈值的关系

薄膜中缺陷的分布常常是随机的和均匀的, 因此很难对缺陷密度作精确的定量计算。国内外对此问题的研究尚不多^[7]。我们用下面的方法测定了薄膜的缺陷密度。在样品上随机的选择一个位置, 用 Nomarski 显微镜拍下放大 700 倍的光学显微照片, 缺陷清楚地被记录在照片上, 然后计算出缺陷密度 d (缺陷数/mm²)。对 4 块厚度为 $\lambda/2$ ($\lambda=1.06 \mu\text{m}$) 的 ZrO₂ 单层膜进行了损伤实验, 结果如图 3 所示, 损伤阈值与缺陷密度的倒数成正比, 随着缺陷密度的减少损伤阈值线性增加。实验中发现, 缺陷多的样品其损伤阈值的扩展范围较宽大约有 30~40%, 而膜层质量较好的样品其扩展范围一般在 15% 左右。

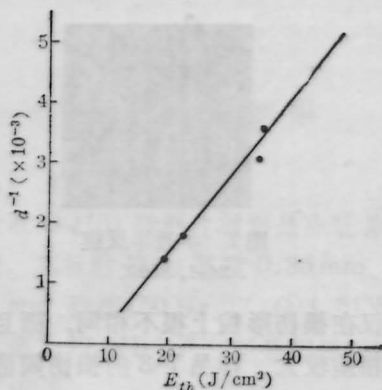


图 3 损伤阈值与缺陷密度的关系

3.5 损伤形貌

(1) 图 4 是 $\lambda/2$ 和 $\lambda/4$ 厚的 ZrO₂ 膜的损伤形貌, 图 4(a) 和 (b) 二个样品的材料和厚度均相同, 而它们的损伤形貌很不一样, 样品 7-3 的损伤形貌为剥层型, 损伤斑点较大, 斑点的外围极不规则。图 3 中 4 块样品的损伤均系此类型; 样品 4 损伤斑点的中心有很多大小不等的小坑, 这一类型的样品做了 2 块, 损伤形貌均如此, 系烧蚀型。这二种

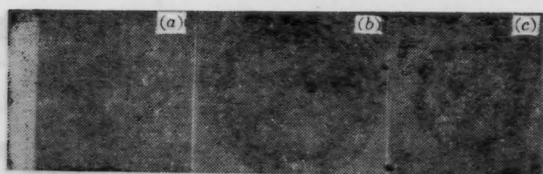


图4 ZrO_2 膜

(a) 7-3, $\lambda/2$, 1000 \times ; (b) 4, $\lambda/2$, 3200 \times ;
(c) 2, $\lambda/4$, 2800 \times

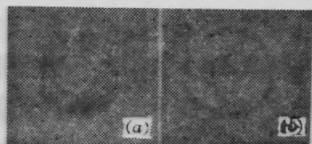


图5 TiO_2 膜

(a) 5, $\lambda/2$, 2000 \times ; (b) 6, $\lambda/4$, 2400 \times

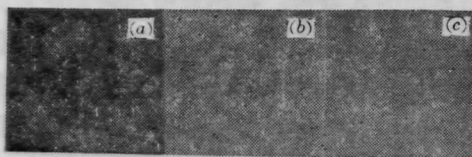


图6 Ti_3O_5 膜

(a) 11, $\lambda/2$, 2000 \times ; (b) 11, $\lambda/2$, 1700 \times ;
(c) 9, $\lambda/4$, 1500 \times

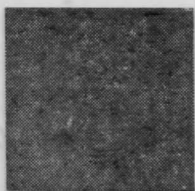


图7 半透半反膜

24-1, 850 \times

膜不仅在损伤形貌上很不相同,而且损伤阈值也相差较大,样品7-3的损伤阈值比样品4高40%以上,其原因我们认为主要是工艺条件不同所致。这二种膜是在二台不同的镀膜机上制成的,样品7-3的烘烤温度为 $150^{\circ}C$ 时间2h,充氧 1×10^{-4} Torr。样品4烘烤温度为 $250^{\circ}C$ 时间2.5h,充氧 2×10^{-4} Torr。可见工艺对膜的损伤阈值和形貌均有很大影响。因此严格控制制膜的工艺条件,对改进 ZrO_2 膜的质量和提提高抗激光损伤的水平有很重要的意义。

图4(c)为 $\lambda/4$ 厚度的 ZrO_2 膜的损伤形貌,斑点较小,呈一片均匀的烧蚀损伤。

(2)图5为不同厚度 TiO_2 膜的损伤形貌。图5(a)和(b)的形貌基本相似呈一圈一圈烧蚀损伤。当作用在膜上的激光能量高于损伤阈值一倍以上时,斑点的外圈出现溅射现象。

(3)图6为不同厚度 Ti_3O_5 膜的损伤形貌,图6(a)和(c)的激光能量略高于损伤阈值,损伤斑点为烧蚀型。图6(b)的激光能量高于损伤阈值2倍左右,斑点呈明显的熔融状态。

(4)图7为三层 TiO_2/SiO_2 的半透半反膜,最外层加了 $\lambda/2$ 的 SiO_2 保护膜。损伤斑点的中心为熔融态,最外面一层 SiO_2 膜呈破裂状。前面已经提到因为 SiO_2 膜吸收小,而且具有承受激光破坏能力强的特点,当内部的 TiO_2 膜受激光辐照熔化时产生很大的冲击力使 SiO_2 膜破坏。故产生表面不规则的破裂破坏。

所有的膜在进行损伤实验的过程中,膜层发生破坏时均伴有浅蓝色的等离子体闪光出现。

郭聚平同志也参加了此实验工作。部分薄膜样品是由范瑞瑛等同志提供的,在此表示感谢。

参 考 文 献

- 1 T. W. Walker *et al.*, *IEEE J. Quant. Electr.*, **QE-17**(10), 2041(1981)
- 2 W. H. Lowdermilk, D. Milam, *IEEE J. Quant. Electr.*, **QE-17**(9), 1888(1981)
- 3 K. H. Guenther *et al.*, *Appl. Opt.*, **23**(21), 3743(1984)
- 4 F. Rainer *et al.*, *Appl. Opt.*, **24**(4), 496(1985)
- 5 B. E. Newnam *et al.*, (NBS Special Publication 435, 1975), 254
- 6 上海光机所研究报告集,第三集,1976, p. 146
- 7 M. E. Innocenzi *et al.*, *Appl. Opt.*, **25**(5), 658(1986)