

准分子激光对光学薄膜的损伤*

李仲伾 孙 旻 李成富

(中国科学院上海光机所, 上海 201800)

提要 本文报道了 XeCl 准分子激光对光学薄膜的损伤阈值、损伤形貌和多脉冲激光的损伤。研究了激光预辐照处理对薄膜损伤的影响。

关键词 准分子激光, 激光预辐照, 多脉冲激光损伤

Optical thin-film damage induced by excimer laser

LI Zhongyi, SUN Yang, LI Chengfu

(Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Academia Sinica, Shanghai 201800)

Abstract Laser damage thresholds, morphologies, and multiple pulse damage produced by XeCl excimer laser at 308nm on thin film optical coatings are reported. Effect of the pre-irradiation of the sample on damage threshold is investigated.

Key words excimer, laser pre-irradiation, multiple pulse laser damage

1 引 言

随着激光技术的发展, 激光波长向短波长方向开拓, 短波长激光对光学薄膜的损伤问题引起了人们的关注^[1,2]。短波长激光对光学薄膜的损伤所观察到的实验现象和结果, 与长波长激光损伤不尽相同。这可能是因为它们的损伤机理不同所致。对短波长激光损伤的研究将有助于加深对损伤机理的研究。

我们用准分子激光对光学薄膜进行了短波长激光损伤的研究。报道了 SiO₂, ZrO₂ 单层膜和 308 nm 高反多层膜的单脉冲损伤阈值和形貌。研究了 ZrO₂ 和高反膜的多脉冲损伤几率与激光能量和脉冲数之间的关系。激光预辐照对薄膜光谱性质和激光损伤的影响。

2 实验条件

准分子激光器为多模脉冲器件, 输出波长为 308 nm, 单次输出能量为 300 mJ, 脉宽为 45 ns。输出平均功率为 30 W。脉冲重复率 1~100 Hz 可调。实验示意图如图 1 所示。由光阑选

收稿日期: 1992 年 12 月 11 日; 收到修改稿日期: 1993 年 2 月 9 日。

* 国家高科技基金资助项目。

取中心部分的光束进行损伤实验,可以保证激光束的光束质量,有很好的均匀性和足够的强度。用石英透镜聚焦,其焦距为 200 mm。平均焦斑直径为 400 μm 。样品安置在三维可调的样品架上。能量计监测每次辐照到样品上的损伤能量。用显微镜观察和判定激光作用后样品的损伤情况。

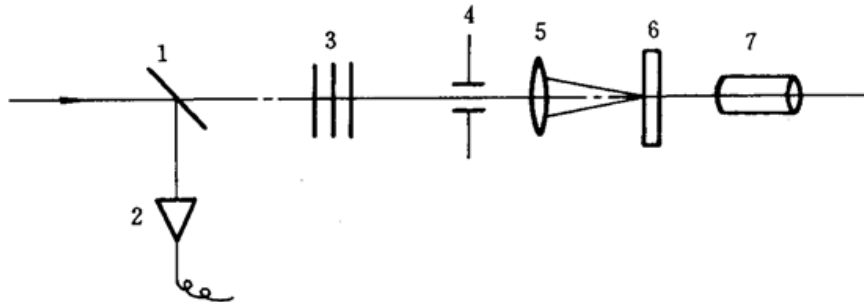


Fig. 1 Schematic diagram of laser damage experiment

1—beam splitter; 2—energy meter; 3—filter; 4—aperture; 5—lens; 6—sample; 7—microscope

实验方法:单脉冲损伤实验采用 1-on-1 方式进行,在样品的一个位置上只照射一次激光,不管这点是否遭到损伤。多脉冲损伤采用 N-on-1 方式,即以相同的激光能量在样品的一个位置上照射若干次,直到样品出现破坏为止。本文中的损伤几率,选择一个适当能量,任选 10 个位置,每个位置照射 10 次,根据样品损伤的次数算出该激光能量的损伤几率。

三种光学薄膜的底片均为 K_9 光学玻璃。实验样品分普通样品和用准分子激光进行预辐照处理过的样品。激光预辐照处理,在样品进行损伤实验前先用低于单脉冲损伤阈值的激光能量对样品表面进行多次辐照。辐照用的激光频率为 5 Hz,每次辐照能量为 25 mJ/cm^2 (功率为 $5.6 \cdot 10^5 \text{ W}/\text{cm}^2$)。辐照光斑的直径为 16 mm。

3 实验结果和分析

3.1 损伤阈值和形貌

样品 SiO_2 和 ZrO_2 单层膜的厚度为 $\lambda/4$ ($\lambda = 308 \text{ nm}$)。高反多层膜由 $\lambda/4$ ($\lambda = 308 \text{ nm}$) 的 $\text{ZrO}_2/\text{SiO}_2$ 膜交替镀制而成。308 nm 准分子激光对上述三种样品损伤实验的结果如表 1 所示。 SiO_2 膜的损伤阈值最高,比高反膜和 ZrO_2 膜约高 3~4 倍。 SiO_2 膜损伤阈值高的原因,一是因为 SiO_2 膜是无定形结构,呈微粒状态生长,结构细致均匀。二是 SiO_2 膜应力小,光吸收小,尤其是在紫外波段其光吸收系数只有 ZrO_2 膜的 1/3 左右^[3]。

Table 1 Laser damage threshold of optical thin film

Sample	HR	ZrO_2	SiO_2
Thickness ($\lambda = 308 \text{ nm}$)	$\text{ZrO}_2/\text{SiO}_2$ multi-layer	$\lambda/4$	$\lambda/4$
Damage thresholds (J/cm^2)	1.8 ± 0.3	1.4 ± 0.1	6.5 ± 0.7

这三种样品典型的损伤形貌如图 2 所示。多层膜损伤斑点比较大,外围颜色较浅是表面几层膜损伤所造成的,中心颜色深是由于烧蚀深度较深所致。 ZrO_2 单层膜的损伤斑点呈一片均匀的烧蚀破坏,因在损坏过程中膜层完全烧蚀掉所形成的。 SiO_2 膜损伤形貌的特点是损伤斑点很小,只有上述二种膜损伤斑点的 1/4,甚至更小。损伤斑点呈结晶形,在显微镜下可以观察到斑点的局部区域出现闪亮点。

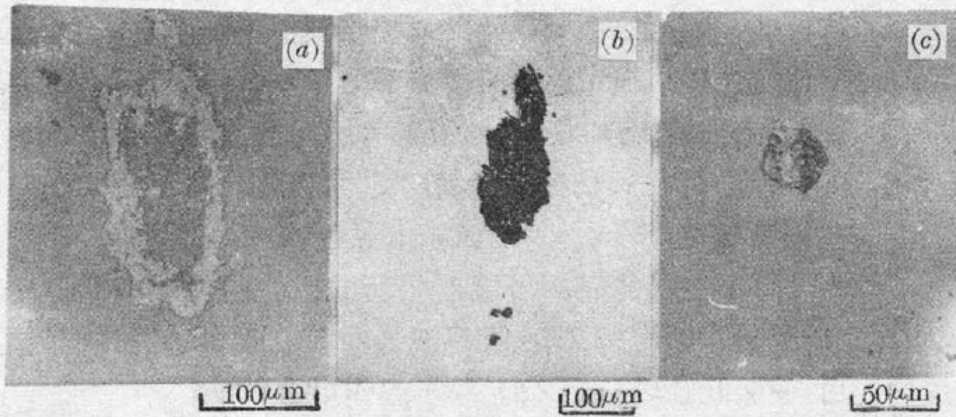


Fig. 2 Damage morphology

(a) HR multi-layer; (b) $ZrO_2, \lambda/4$; (c) $SiO_2, \lambda/4$

3.2 多脉冲激光损伤

ZrO_2 膜和高反膜多脉冲损伤实验的结果如图 3 所示。随着激光能量的增加损伤几率基本上成正比增加。由图 3 可以看出在相同的 (E/E_t) 情况下, ZrO_2 膜的损伤几率比高反膜小很多, 表明 ZrO_2 膜抗重复率激光损伤的性能较好。

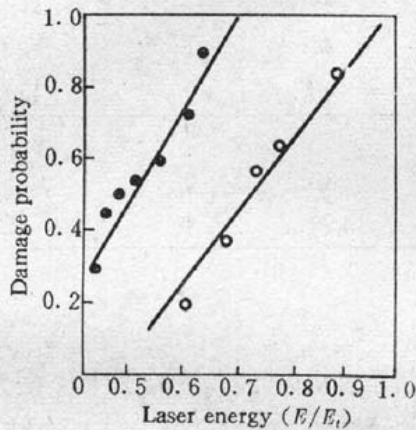


Fig. 3 Dependence of damage probability on laser energy

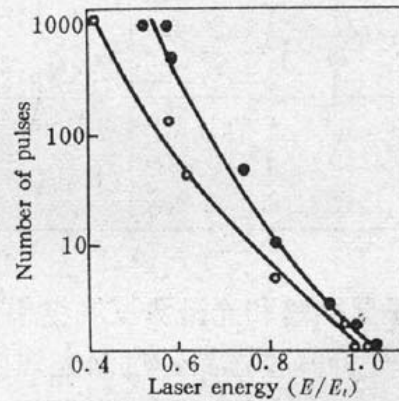
• — HR; o — ZrO_2 $(E_t - \text{damage threshold of single pulse})$ 

Fig. 4 Dependence of number of pulses on laser energy

o — HR; • — ZrO_2 $(E_t - \text{damage threshold of single pulse})$

损伤积累效应的实验结果如图 4 所示。随着激光能量的减小, 导致薄膜损伤所需的脉冲数迅速增加。表明这二种膜在 308 nm 准分子激光的多脉冲损伤时有明显的损伤积累效应。

3.3 准分子激光损伤的特点

308 nm 紫外激光对光学薄膜的损伤所观察到的实验现象和结果与 1.06 μm 激光损伤不尽相同, 1.06 μm 激光对光学薄膜损伤的过程中, 出现很强的等离子体闪光。308 nm 激光对光学薄膜损伤时等离子体闪光明显减少, 几乎看不到。这二种激光对光学薄膜的损伤形貌也不一样, 当激光能量超过损伤阈值时, 1.06 μm 激光损伤斑点呈熔融状态^[4], 无论是单层膜或多层膜均如此。308 nm 激光损伤则看不到熔融状态的现象。出现上述情况的主要原因是由于它们的损伤机理不同所造成的。1.06 μm 激光的损伤热因素起了很重要的作用, 因而在能量高于损伤阈值时常常会出现熔融状态的破坏。准分子激光损伤的主要机理是电离效应^[5]和多光子吸收^[6], 因此看不到熔融状态的破坏。短波长激光的损伤, 由于其光子能量大, 电离效应和多光子吸收较强烈, 一般只需要较低的激光能量就能使薄膜产生破坏, 因此不会产生大量等离子体。

准分子激光损伤的另一个特点是多脉冲损伤的积累效应比 1.06 μm 更明显。

3.4 激光预辐照处理

ZrO₂, SiO₂ 单层膜和 HR 多层膜。激光预辐照对损伤阈值影响的实验结果如表 2 所示。从表中可以看出预辐照对这三种样品损伤阈值的影响不尽相同。预辐照可以使高反膜的损伤阈值提高 60% 以上, 随着辐照次数的增加, 损伤阈值也有所增加。预辐照对 ZrO₂ 膜的损伤阈值几乎没有影响。SiO₂ 膜预辐照 80 次损伤阈值提高约 50%, 辐照 160 次只提高 10% 左右。出现损伤阈值下降的情况是因为辐照 160 次, 单位面积上总的辐照能量为 4 J/cm², 已接近 SiO₂ 膜单脉冲的损伤阈值, 因辐照过度膜的表面可能产生新的微缺陷使损伤阈值下降。预辐照对 ZrO₂ 膜的损伤阈值没有提高的原因是 ZrO₂ 膜短波长的吸收很大, 光吸收对损伤阈值的影响大于激光预辐照的作用, 使激光预辐照对 ZrO₂ 膜不起作用。

Table 2 Laser damage thresholds of optical thin film by laser pre-irradiation

Sample	Thickness ($\lambda = 308 \text{ nm}$)	Irradiation condition			Total energy (J/cm ²)	Threshold (J/cm ²)
		Irradiation	Power level (10 ⁵ W/cm ²)	Times		
HR	ZrO ₂ /SiO ₂	not	—	—	—	1.8±0.3
	$\lambda/4$ multi -layer	XeCl	5.6	40	1	2.6±0.3
		XeCl	5.6	80	2	2.9±0.7
ZrO ₂	$\lambda/4$	not	—	—	—	1.4±0.1
		XeCl	5.6	40	1	1.3±0.4
		XeCl	5.6	80	2	1.1±0.3
SiO ₂	$\lambda/4$	not	—	—	—	6.5±0.7
		XeCl	5.6	80	2	9.5±1.7
		XeCl	5.6	160	4	7.2±1.6

3.5 电子显微镜和光谱测试的结果

为了分析薄膜样品经过激光辐照处理后损伤阈值提高的机理, 我们做了 HR 多层膜剖面膜层结构的透射电镜 (TEM) 的分析实验, 用离子减薄的方法制备 TEM 试样。实验结果如图 5 所示, 从中可以看出 SiO₂ 膜辐照前后的结构未发生变化, 均为无定型结构。辐照前的 ZrO₂ 膜层为精细的柱状结构, 辐照后的 ZrO₂ 膜层中柱状结构明显减少, 大部分已转变成无定型结构。由于无定型结构比柱状结构细密, 均匀性好。因此辐照后的多层膜的损伤阈值有很大提高。

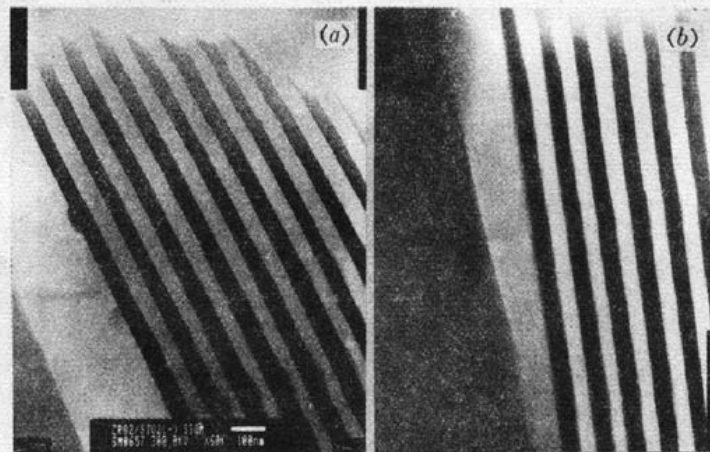


Fig. 5 TEM photographs of HR multilayer film black stripe : ZrO₂, white stripe : SiO₂
(a) Before irradiation; (b) After irradiation

用 Lambda-9 型分光光度计测试样品辐照前后的光谱曲线, 如图 6 所示, SiO₂ 和 ZrO₂ 光谱

曲线辐照前后变化不大,只有高反膜的透射曲线变化较大,最具特征的变化是在反射带内 283 nm 处出现一个透射峰,这说明 HR 膜经激光辐照处理后膜的结构和折射率发生了变化。根据多层膜的反射率公式为

$$R_{2N+1} = \left[\frac{1 - n_H^2/n_g(n_H/n_L)^{2N}}{1 + n_H^2/n_g(n_H/n_L)^{2N}} \right]^2 \quad (1)$$

式中 $N = 1, 2, 3, \dots$, n_g, n_L 和 n_H 分别为基底、低折射率和高折射率材料的折射率。由(1)式可知膜的反射率发生变化是由材料折射率的变化所引起的。折射率的变化是由膜的微观结构变化所致。这已由 TEM 的分析结果所证实。另一个变化是预辐照后,透射光谱区的反射峰幅度变小,带宽变窄。

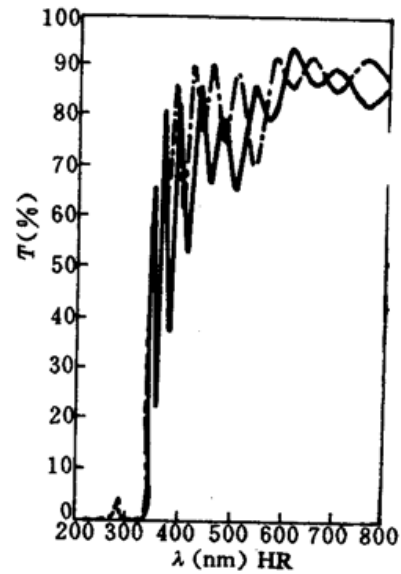


Fig. 6 Sample transmitted spectrogram

— : before irradiation; - - - : after irradiation

参 考 文 献

- 1 S. R. Foltyn *et al.*, *NBS Spec. Publ.*, **620**, 265(1980)
- 2 F. Rainer *et al.*, *Appl. Opt.*, **24**(4), 496(1985)
- 3 T. W. Walker *et al.*, *IEEE J. Quant. Electr.*, **QE-17**(10), 2041(1981)
- 4 李仲伢 *et al.*, *光学学报*, **11**(3), 264(1991)
- 5 R. F. Haglund *et al.*, *NBS Spec. Publ.*, **746**, 497(1985)
- 6 N. Masour *et al.*, *NBS Spec. Publ.*, **752**, 657(1986)