

重复率激光对光学薄膜的破坏

范正修 吴周令 汤雪飞

(中国科学院上海光机所, 上海 201800)

摘要 实验研究了在不同波长、不同脉宽激光作用下, 光学薄膜破坏的重复率效应并结合理论分析和在破坏过程中的光热监测, 探讨了光学薄膜累积破坏的机理。

关键词 激光损伤, 光学薄膜, 重复频率

1 引言

光学薄膜在重复率激光作用下的破坏阈值比单脉冲低得多, 这一现象在激光薄膜的应用和研究中引起广泛关注^[1,2]。然而, 由于这个问题的复杂性和缺少有效的分析、监测手段, 对其机制至今仍缺乏满意的解释和系统的研究^[3]。本文用光热偏转技术对重复频率激光对薄膜的破坏进行了实时监测, 并以常见的几种薄膜材料为例, 实验研究了在确定条件下制备的单层膜及高反膜在不同波长、不同脉宽的重复频率激光作用下的破坏行为, 在此基础上, 探讨了光学薄膜的激光损伤机理。

2 实验方法

激光损伤实验装置如图 1 所示。图中激光系统包括三台激光器: 10 ns, 1.06 μm Nd : YAG 激光器; 40 ps, 1.06 μm Nd : YAG 激光器; 以及 45 ns, 308 nm XeCl 准分子激光器。

激光脉冲的时间波形, 对脉宽为纳秒量级的, 由示波器直接观察, 其脉冲宽度通过检测拍摄下来的波形照片获得。对脉宽为亚纳秒量级的, 则用高分辨率的条纹相机来实时测量。激光束空间波形一律用刀口扫描法检测。检测表面与样品表面重合, 光斑半径取检测面上 $I = (I/e^2)I_0$ 处的尺寸。

实验中通过增减衰减片来实现激光脉冲能

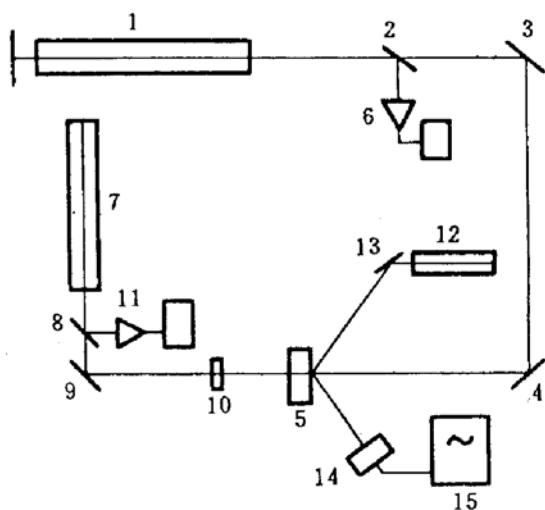


Fig. 1 Schematic of the experimental apparatus for study of laser induced damage to optical coatings
1: damage laser; 2, 8: division mirror; 3, 4, 9, 13: reflection mirror; 7: pump laser; 6, 11: power meter; 12: probe laser; 10: chopper; 14: detector; 15: analyser of photo thermal deflection

量的调整,而激光脉冲能量的检测则通过随机抽样测量后再取平均值的方式来进行。

损伤实验采用 N -on-1 方式,即在同一点用重复频率激光照射 N 次,然后再分析其损伤情况,损伤观察采用光学显微法,损伤阈值取 50% 损伤几率阈值。

3 实验结果

3.1 损伤阈值测试结果

表 1 所示的被测样品在不同脉宽及不同波长激光作用下的多脉冲损伤阈值如表 2 所示。表中 0 Hz 栏下所列数值为相应的单脉冲损伤阈值。这些结果如用曲线形式表达,则如图 2 所示。由表 2 及图 2 所示可以看出:

- 3.1.1 光学薄膜多脉冲损伤阈值普遍低于相应单脉冲损伤阈值;
- 3.1.2 在脉冲数目固定的情况下,光学薄膜的多脉冲损伤阈值具有明显的脉宽效应,其大致规律是多脉冲损伤阈值的降低幅度随脉宽的减小与波长的变短而变小;
- 3.1.3 在本文较低重复频率条件下,多脉冲损伤行为对重复率没有明显的依赖关系。

Table 1 Samples characteristics

Sample	Material	Coatig design	Deposition	Parameter
S1	TiO ₂	single layer	EB evap $T_s = 250^\circ\text{C}$ $P \sim 3 \times 10^{-3} \text{ Pa}$	$T_{\text{bake}} = 40^\circ\text{C}, 4 \text{ h}$
S2	ZrO ₂	$nd = \lambda_0/4$		
S3	SiO ₂	$\lambda_0 = 1.06 \mu\text{m}$		
S4	H : ZrO ₂ L : SiO ₂	(HL) ¹¹ H		$T_{\text{bake}} = 400^\circ\text{C}, 4 \text{ h}$

Table 2 Multishot damage threshold as a function of laser repetition rates (Hz)

Sample	0 (Hz)	1 (Hz)	5 (Hz)	10 (Hz)	50 (Hz)	100 (Hz)	Parameter
S1	19.7	4.8	4.6	$\lambda_0 = 1.06 \mu\text{m}, \tau = 10 \text{ ns}$, spot 44 μm 100-on-1			
S3	66.3	12.3	10.4				
S1	2.0	1.6	1.6	$\lambda_0 = 1.06 \mu\text{m}, \tau = 40 \text{ ps}$, spot 44 μm , 100-on-1			
S3	6.9	6.1	5.8				
S4	2.5	1.2		1.3	1.1	1.2	$\lambda_0 = 308 \mu\text{m}, \tau = 45 \text{ ns}$, 500-on-1

3.2 多脉冲损伤行为对单脉冲能量的关系

除测试损伤阈值外,还研究了薄膜在重复率激光作用下的多脉冲损伤行为对单脉冲能量的依赖关系。结果如图 3 所示。图中 $F_{\text{th}-m}/F_{\text{th}-s}$ 表示多次作用破坏阈值与单次破坏阈值之比。

由图 3 可以看出:1) 被测样品的多脉冲损伤几率随着单脉冲能量的增加而增加;2) 导致薄膜发生多脉冲损伤的脉冲数目一般随辐照激光束能量的降低而加大。但对每一种样品都存在一个临界能量。当辐照激光束单脉冲能量低于这个能量时,将不发生多脉冲损伤。

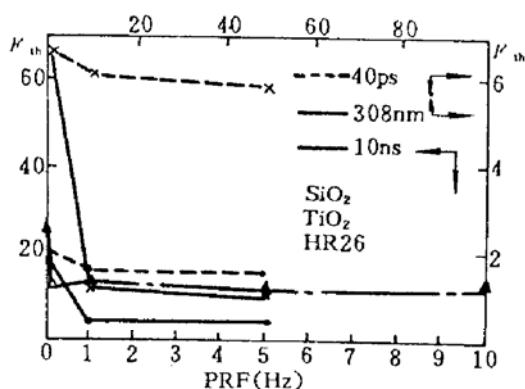


Fig. 2 Damage threshold (J/cm^2) as a function of laser pulse repetition rates

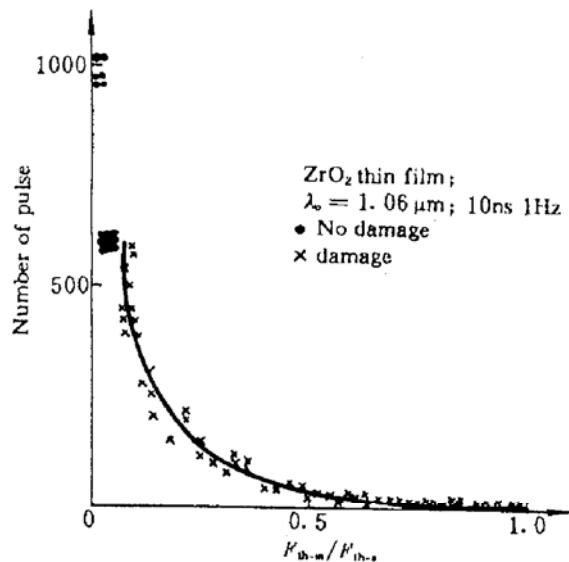


Fig. 3 Number of laser shots needed to cause optical coating damage vs laser fluence normalized to the single shot damage threshold $F_{th,s}$.
 $F_{th,m}$: fluence of multiple shot damage threshold;
 $F_{th,s}$: fluence of single shot damage threshold

4 重复率激光对光学薄膜的损伤过程

重复率激光对薄膜的损伤过程比单脉冲激光更为复杂。为了探讨重复率激光对薄膜的破坏机理, 我们对这个过程进行了理论分析和实验研究。图 4 给出考虑了热传导过程之后, 具有不同吸收的薄膜在重复率激光作用下温度的累积情况。可以看出, 如果仅考虑薄膜的线性吸收, 在激光的重复率不是很高(小于 1000 Hz)时, 多脉冲在薄膜中引起的温度累积很小, 这说明, 薄膜破坏的累积效应不是由线性吸收而是由薄膜的非线性过程或热不稳定性引起的。这个过程既包含薄膜内微缺陷吸收激光后引起的爆炸和发展, 也包含光化学、热化学、热力学、力化学、光离化等复杂过程所引起的附加缺陷。这些附加缺陷在多脉冲激光作用下逐步发生和发展, 最终导致薄膜灾难性的破坏。图 5 示出用光热偏转术实时研究重复率激光对薄膜破坏的实验结果。在最初若干激光脉冲的作用下, 薄膜的热性质几乎没什么变化。但当脉冲数增加到一定程度, 薄膜的光热信号开始增加并很快变大而达到饱和。这种状况与薄膜的灾难性破坏相对应。而光热信号的变化过程恰好反应了薄膜吸收的非线性发展和薄膜在重复率激光作用下的热不稳定过程。激光对薄膜破坏光热偏转信号的时间谱研究发现, 在灾难性破坏之前, 薄膜的热不稳定的发展, 既可能是永久的也可能是可逆的, 对于可逆的热发展, 在激光作用过若干时间以后, 还会恢复到原来的水平, 可逆的热发展又叫瞬时破坏, 在瞬时破坏的弛豫时间内另外激光脉冲的作用, 会促使薄膜破坏的进一步发展, 在弛豫时间外激光脉冲的作用则与单脉冲激光作用相同。重复率激光多数为每秒一次到千次, 其作用周期少至数秒, 多达几小时, 其累积效应完全对应于不可逆损伤的过程。图 6 给出在激光作用前后薄膜表面形貌的电镜照片。图 7 给出在重复率激光作用下薄膜破斑的发展。可以看出, 在灾难性破坏发生以前, 薄膜的微结构就已经发生了变化, 在以后的激光作用下, 薄膜逐渐出现微破坏, 最后发展成大的破斑。

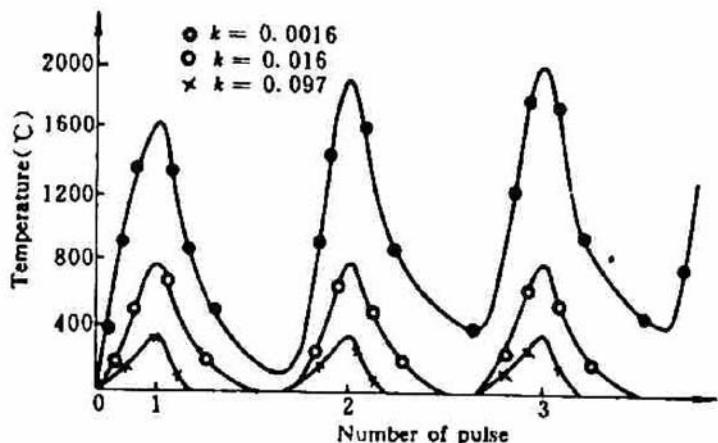


Fig. 4 Shows the repetitive laser induced temperature accumulation effect

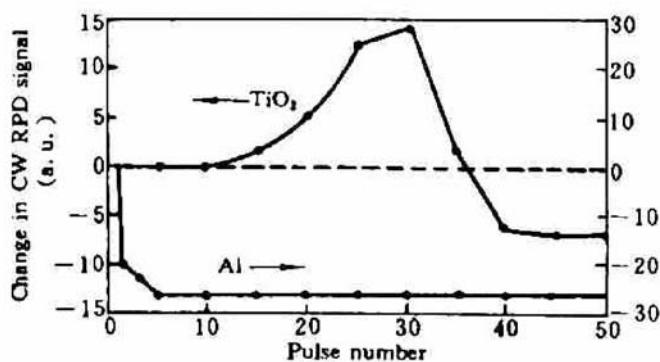


Fig. 5 Comparison of cuumulative damage evolution in metalic and dielectric single layers: $\lambda_0 = 1.06 \mu\text{m}$, $\tau = 10 \text{ ns}$, PRF = 2 Hz, spot diameter = 44 μm

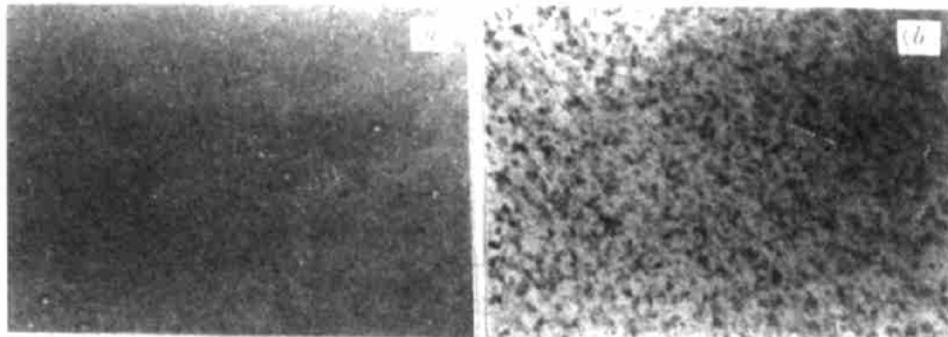


Fig. 6 A surface morphology change shows the irreversible catastrophic damage in TiO_2 single layer probed by TEM ($25000\times$): (a) unirradiated; (b) irradiated with 25 pulses of the $1.06\mu\text{m}$ - 10 ns -2 Hz laser, the laser spot diameter is $44 \mu\text{m}$

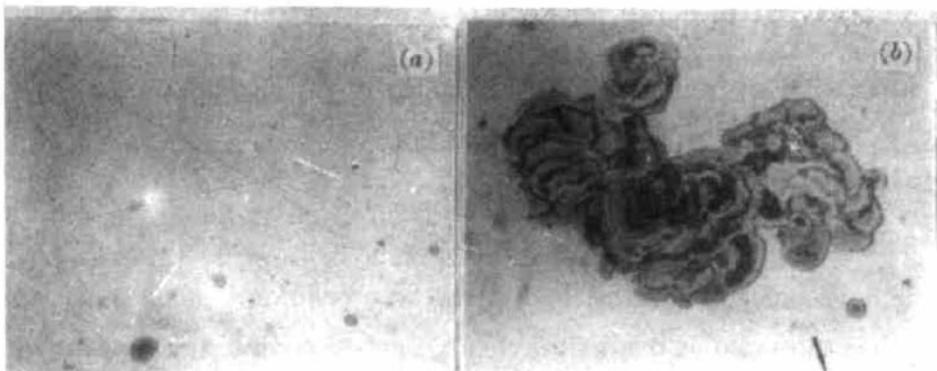


Fig. 7 Damage morphology of optical coating
(a) original damage; (b) occurred damage

5 重复率激光薄膜抗激光强度的改进

在重复频率激光作用下,非线性缺陷的形成可分为三个步骤:初始、发展、破坏。揭露其中的任何一步,抑制其发展,都能减少或消除薄膜破坏的累积效应。根据以往的经验可知:非线性缺陷的形成往往是和薄膜的原有缺陷相联系的,所以,改进薄膜累积效应的重要途径之一就是通过改进薄膜结构等措施,减少薄膜的固有缺陷。为此,我们采用两个措施,第一,用离子溅射制膜技术替代普通的电子束蒸发技术;第二,改进薄膜膜系结构,采用保护膜,抑制薄膜表面

缺陷。表 3 给出实验结果,脉冲宽度为 10 ns,照射时间为 10 s。

Table 3 Laser damage threshold of $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ reflecting coatings deposited by various techniques

Coatings	EB	Ion sputtering	Over coating
Damage threshold (J/cm^2)	23 ± 2	25 ± 0	79 ± 32

由实验结果可以看出,保护膜可以大大提高多层反射膜的破坏阈值,但是离子溅射膜的实验结果却是很有意思的。一方面,它没有想象的那样使薄膜破坏阈值明显的提高,另一方面它却大大改进薄膜破坏的一致性。对其他薄膜来讲,不同位置抗激光强度的起伏很大,但对离子束溅射的薄膜来讲,达到破坏的能量密度却几乎是一样的。这说明,离子束溅射技术对消除薄膜的大吸收缺陷是有效的。然而缺陷的消除、致密性的提高都没有使薄膜的抗激光强度得以突破。如果单从最大的不破坏强度来说,离子束溅射膜的破坏强度显然是降低了。这个问题我们将进一步深入研究。

除了制膜工艺外,通过薄膜的退火处理和激光处理也可以有效地消除薄膜的杂质缺陷和结构缺陷。我们将在另外的工作中仔细讨论。

参 考 文 献

- 1 A. F. Stemart, A. H. Guerther. Laser induced damage: an introduction. *Appl. Opt.*, 1994, 23(21) : 3741~3742
- 2 施正荣, 范正修, 邓 和. 光学薄膜的损伤及其累积效应. 中国激光, 1988, 15(1) : 22~25
- 3 A. A. Manenkov, V. S. Nechitailo. Physics of multishot laser damage to optical materials. SPIE Laser induced damage in optical materials, 1990, 1441 : 392~404

Repeat-rate-laser Induced Damage in Optical Coatings

Fan Zhengxiu Wu Zhouling Tang Xuefei

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

Abstract The accumulation effect of repeat-rate-laser induced damage in optical coatings is experimentally investigated. The mechanism of accumulation damage is discussed. Steps to enhance damage threshold of the optical coatings are taken and some experimental results are shown.

Key words laser induced damage, optical coatings, repeat rate