

文章编号: 0258-7025(2002)Supplement-0473-04

氧化物薄膜的激光预处理效应研究

胡建平 傅雄鹰 邱服民 蒋晓东

(成都精密光学工程研究中心, 成都 610041)

摘要 对高功率激光薄膜常用的 $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ 、 $\text{ZrO}_2/\text{SiO}_2$ 、 $(\text{ZrO}_2 + \text{Y}_2\text{O}_3)/\text{SiO}_2$ 和 $\text{Ta}_2\text{O}_5/\text{SiO}_2$ 等膜料镀制的高反膜, 采用 $N\text{-on-1}$ 激光运行方式, 即对薄膜单点辐照的激光能量密度, 以薄膜损伤阈值的 60% 开始, 由小到大直到薄膜发生损伤, 进行激光预处理效应研究。实验表明, $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ 高反膜的激光预处理效果最好, 激光损伤阈值提高 3 倍以上, $\text{ZrO}_2/\text{SiO}_2$ 和 $(\text{ZrO}_2 + \text{Y}_2\text{O}_3)/\text{SiO}_2$ 次之, $\text{Ta}_2\text{O}_5/\text{SiO}_2$ 较差。对 $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ 薄膜激光预处理研究发现, 其效应有两种形式, 薄膜激光老化和薄膜表面缺陷低能量密度激光清除。薄膜激光损伤尺度和程度对光谱性能影响的实验表明, 薄膜激光损伤程度对光学性能的影响有较大的差异, 因而对于高反膜, 损伤阈值不应以单纯的激光损伤为判断依据, 应以不影响实际应用的激光操作阈值为依据。

关键词 激光预处理, 损伤阈值, 高反膜, 激光损伤

中图分类号 TN249; O484.4 文献标识码 A

Laser Conditioning Effect of Oxide Multilayer Coatings

HU Jian-ping FU Xiong-ying QIU Fu-min JIANG Xiao-dong

(Chengdu Fine Optics Engineer Research Center, Chengdu 610041)

Abstract In this paper, the coating samples are deposited by reactive electron-beam deposition using the materials of $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$, $\text{ZrO}_2/\text{SiO}_2$, $(\text{ZrO}_2 + \text{Y}_2\text{O}_3)/\text{SiO}_2$ and $\text{Ta}_2\text{O}_5/\text{SiO}_2$ respectively, for high power laser, the study of laser conditioning effect of oxide multilayer mirror was taken by using $N\text{-on-1}$ mode. The experiment results show that the different materials mirror have different laser conditioning effect. The $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ coating is best for improvement of damage threshold, up to 3 times. The $\text{ZrO}_2/\text{SiO}_2$ and $(\text{ZrO}_2 + \text{Y}_2\text{O}_3)/\text{SiO}_2$ is better, up to 1.5 times. But for $\text{Ta}_2\text{O}_5/\text{SiO}_2$, the laser conditioning has almostly not effect on threshold improvement. Especially for $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ mirror laser conditioning, the mechanisms are found to be two kinds of situation (state), laser annealing and laser clean of coating. The experiment of damage size and degree influencing on its spectrum shows that the damage of scald less than 200 μm and pit have almostly not influence on their reflectivity, for the damage diameter larger than 500 μm scald and delaminate, the reflectivity of coating drop less than 10%, so for HR coating it is better that the damage threshold is determined by practical application, not only by laser damage simply.

Key words laser conditioning, damage threshold, HR coating, laser damage

1 引言

光学薄膜在激光器构成中是重要而薄弱的环节,其抗激光损伤能力一直是影响激光器能量输出进一步提高的瓶颈因素^[1]。光学薄膜的抗激光损伤能力与多种因素有关,主要包括薄膜基片的制备、膜料的组合、膜系优化和薄膜镀制过程中引入的薄膜缺陷^[2]。提高薄膜抗激光损伤能力的方法多种多样,主要包括改进镀膜条件和技术,如采用超光滑基片、优化薄膜驻波电场和镀膜参数等^[3~7],但在现有

技术条件下潜力已尽极限。另一种较实用的是薄膜的激光预处理技术,激光预处理作为大幅度提高薄膜抗激光损毁能力的手段,一直为世界各国相关实验室重点关注,特别是美国 LLNL 实验室,为了提高 NIF 用光学薄膜的抗激光损毁能力,进行了大量的实验机理研究,显示激光预处理技术对 $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ 高反膜等特别有效,幅度提高达 2~3 倍,并且效果是长期性的^[8~11]。

薄膜的抗激光损毁能力也制约着我国高功率激光器发展。为了大幅度提高薄膜的抗激光损毁能

力,本文初步开展了薄膜激光预处理提高损伤阈值的概念原理性研究,对激光器常用的 $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$, $\text{ZrO}_2/\text{SiO}_2$, $\text{ZrO}_2 + \text{Y}_2\text{O}_3/\text{SiO}_2$ 和 $\text{Ta}_2\text{O}_5/\text{SiO}_2$ 等膜料组合的高反膜,采用 N-on-1 方式进行激光预处理,实验显示,不同膜料组合的高反膜激光预处理效应差别很大,其中 $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ 的效果最为明显, $\text{ZrO}_2/\text{SiO}_2$ 和 $\text{ZrO}_2 + \text{Y}_2\text{O}_3/\text{SiO}_2$ 次之, $\text{Ta}_2\text{O}_5/\text{SiO}_2$ 基本无效。Normaski 和原子力显微镜(AFM)分析表明,激光预处理的机理之一是清除薄膜的激光损伤诱导源-缺陷,特别是节瘤缺陷。另外,激光预处理的效应主要表现在提高薄膜抗激光灾难性损毁的能力,而不是单纯提高薄膜的零概率激光损伤阈值。

2 实验条件和准备

2.1 薄膜样品

实验用的薄膜样品均镀制在 $\phi 40 \text{ mm} \times 5 \text{ mm}$ 的 K9 玻璃基片上,基片的均方根粗糙度为 $0.7 \sim 0.9 \text{ nm}$,薄膜样品为 1064 nm 激光高反膜,膜系设计为 $G/(\text{HL})^{11}\text{H}2\text{L}/\text{A}$,为规整膜系,其中 G 表示基片, H 表示高折射率膜料, L 表示低折射率材料, A 表示空气。

本实验选定下列几种膜料组合: $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$, $\text{ZrO}_2/\text{SiO}_2$, $\text{ZrO}_2 + \text{Y}_2\text{O}_3/\text{SiO}_2$ 和 $\text{Ta}_2\text{O}_5/\text{SiO}_2$, 在 APS1504 镀膜机上镀制 1064 nm 激光高反膜,镀膜参数基本相同,其中 $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ 膜料组合另外按 $G/(\text{HL})^{11}\text{H}/\text{A}$ 镀制了薄膜样片。

2.2 实验装置和方法

薄膜激光预处理实验系统由单纵模 Nd:YAG 调 Q 脉冲激光器、He-Ne 准直光源、分光光楔、3 m 聚焦凸镜、可移动样品平台及能量计和 CCD 光束分析仪组成。测试激光由 Nd:YAG 激光器输出,激光输出模式为单纵 TEM_{00} , 波长 1064 nm , 脉宽(FWHM)为 10 ns , 最大脉冲能量 1.5 J , 能量稳定性为 $\pm 5\%$, 重复频率分别为 1 Hz 、 5 Hz 、 10 Hz 。样品平台可 x, y, z 三方向移动,能保证测试光斑在薄膜不同区域进行激光预处理实验。激光能量用美国 EM500 大能量探头能量计测量,测量误差小于 $\pm 1\%$, 测试点光斑大小和有效面积用 CCD 光束分析仪测量,测得光斑平均等效面积为 1.045 mm^2 。

薄膜样品在激光预处理和损伤实验前,用酒精或丙酮清洗干净,然后测量薄膜的激光损伤阈值,本实验采用 N-ON-1 方法对薄膜进行激光预处理原理概念性效应研究,如图 1 所示,对薄膜某一点按薄膜

激光损伤阈值 60% 左右的能量密度开始激光预处理,后续激光脉冲能量密度每次按 $3 \text{ J}/\text{cm}^2$ 递增,直到辐照点区域的薄膜出现灾难性损伤,一块膜片实验 15~20 个点,取最低薄膜损毁的能量密度,与薄膜的激光损伤阈值比较,研究激光预处理效应。薄膜激光损伤的判断首先以实验过程中明显的物理变化如出现强等离子体闪光,He-Ne 散射光增大等判断,最终以 $100\times$ 的显微镜观察为准。

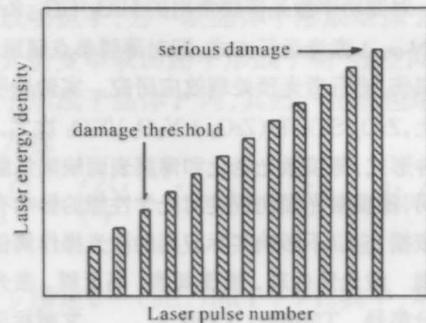


图 1 N-ON-1 方式激光预处理示意图

Fig. 1 Schematic diagram of the coatings laser conditioning by N-ON-1

3 实验结果与讨论

3.1 高反膜激光预处理效果及分析

薄膜的激光预处理效应如图 2 所示,可以看出, $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ 高反膜效果最为明显,幅度提高达 3 倍以上; $\text{ZrO}_2/\text{SiO}_2$, $\text{ZrO}_2 + \text{Y}_2\text{O}_3/\text{SiO}_2$ 次之;幅度提高在 1.5 倍左右, $\text{Ta}_2\text{O}_5/\text{SiO}_2$ 薄膜几乎没有激光预处理提高损伤阈值的效果。这主要是由镀膜材料的特性决定, HfO_2 , ZrO_2 , Y_2O_3 为高熔点材料,而 Ta_2O_5 为低熔点材料,因而激光预处理过程中的能量累积对薄膜烧蚀效应明显,激光预处理效果较差。

通过对 $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ 高反膜激光预处理效应的深入分析,发现薄膜的激光预处理效应有两种形式,没有缺陷的膜面激光损伤阈值在 $20 \text{ J}/\text{cm}^2$ 左右,而经激光预处理后最低达 $38 \text{ J}/\text{cm}^2$,有缺陷特别是节瘤缺陷的膜面,在激光预处理增加能量过程中,在节瘤缺陷激光损伤阈值 $12 \text{ J}/\text{cm}^2$ 附近,会发生薄膜轻微损伤,形成直径小于 $30 \mu\text{m}$ 的孔洞,损伤面在随后的能量增加的脉冲激光辐照下,最低到 $40 \text{ J}/\text{cm}^2$ 才发生进一步激光损伤,高者可达 $57 \text{ J}/\text{cm}^2$ 。另外,经激光预处理后, $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ 高反膜在相同激光能量密度下的损伤创面减小,而且,加镀 SiO_2 半波覆盖层的高反膜(图中以 HRO 表示)比没加镀 SiO_2 半波覆盖层的高反膜(图中

以 HR 表示)的损伤创面减小更为明显,在60 J/cm²的

激光照射下,损伤疤面一般小于 150 μm。

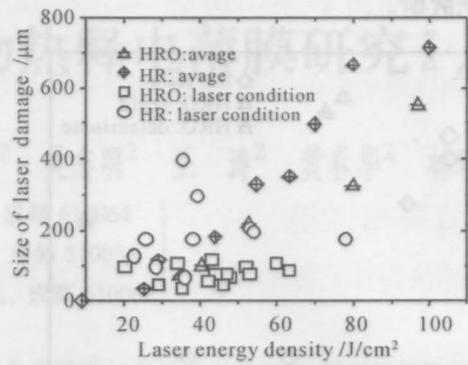
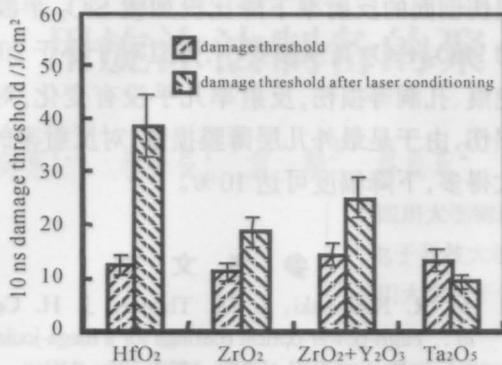


图2 高反膜激光预处理后的效应

Fig. 2 The laser conditioning effect of HR coatings

3.2 激光预处理效应的显微分析

薄膜激光预处理后的原子力显微镜显微图貌如图3所示。

从图中可以看出,没有缺陷的膜面经激光预处理后,表面结构没有太大的变化。另外一种情况是薄膜缺陷特别是节瘤缺陷清除,节瘤缺陷由于吸收大,外型与聚焦凸透镜等效,其损伤阈值较低,为

12 J/cm²左右。显微图貌显示,在薄膜激光预处理过程中,随着脉冲激光能量增大到节瘤缺陷阈值附近,节瘤缺陷吸收能量形成等离子体喷溅,从而形成孔洞损伤,孔洞直径一般小于 30 μm。轻度孔洞创面的激光再次损伤能量密度大幅度提高,比原节瘤缺陷的损伤阈值高3倍以上。



图3 薄膜表面原子力显微图

Fig. 3 The AFM morphologies of coatings surface

薄膜激光预处理后,不仅损伤阈值大幅度提高,而且激光损伤创面的程度大大减轻。图4显示 HfO₂/SiO₂ 高反膜在 10 次激光脉冲辐照下的 Normaski 显微图片,可以看出,没有预处理的膜面,损伤程度严重,而预处理后的膜面损伤程度较轻,创

面较小。

3.3 高反膜激光损伤区域的光学性能

用激光透反仪研究测量膜面的激光损伤对高反膜反射率的影响,透反仪由一束弱的 1064 nm 探测激光、光阑、0.8 m 的聚焦透镜和光电探头及计算机数据采集系统组成,探测光在样品处的焦斑直径小于 10 μm。

薄膜样品的激光损伤程度有轻重差别,轻度损伤包括孔洞和小于 200 μm 的疤痕,严重损伤层裂和大于 500 μm 的疤痕,它们对高反膜反射率的影响如图5所示。可以看出,轻度损伤对反射率几乎没有影响,而严重损伤对反射率的影响也有限,一般降低不超过 10%。这是因为高反膜一般由 25 层规整膜堆组成,最外几层薄膜的损毁对反射率的影响较小,因而轻微激光损伤对薄膜反射率的影响几乎

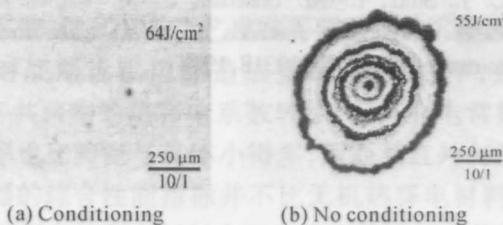


图4 HfO₂/SiO₂ 高反膜 10 个激光脉冲打击后的损伤显微图貌

Fig. 4 The Normaski morphologies of HfO₂/SiO₂ HR coatings damage with 10 pulse shots

可忽略,只是有些薄膜损伤会造成膜表面粗糙度增大,增加激光散射。

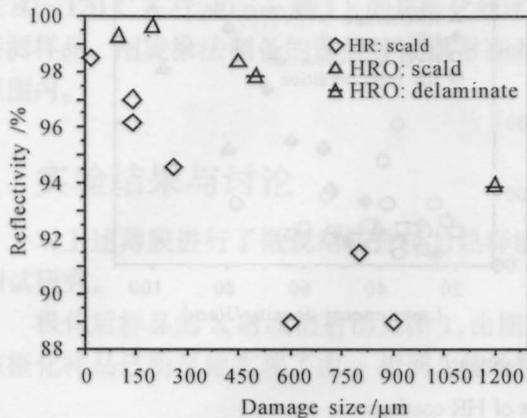


图5 $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ 高反膜损伤程度对反射率的影响

Fig. 5 The reflectivity vs damage size of $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ HR

4 结 论

通过上述实验结果和分析,可知对于 1064 nm 的高反膜来说,激光预处理可显著提高薄膜的激光损伤阈值,效果与薄膜的膜料组合关系密切。实验证明, $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ 高反膜的效果最好,阈值提高幅度达 3 倍以上; $\text{ZrO}_2/\text{SiO}_2$ 、 $\text{ZrO}_2 + \text{Y}_2\text{O}_3/\text{SiO}_2$ 次之,为 1.5 倍左右;而 $\text{Ta}_2\text{O}_5/\text{SiO}_2$ 薄膜基本没有激光预处理效果。

对于 $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ 高反膜,激光预处理有两种作用形式,一是薄膜的激光老化效应,即没有缺陷的薄膜受到激光预处理后,损伤阈值大幅度提高,激光损伤时的损伤创面在相同能量密度的激光作用下,与未经激光预处理的膜面相比大幅度降低。另外一种则是薄膜缺陷,特别是节瘤缺陷的激光清除,薄膜激光预处理过程中,以损伤阈值能流密度附近的激光能量预损伤节瘤缺陷,使之形成小于 $30 \mu\text{m}$ 的孔洞等轻微创面,孔洞创面的激光再损伤能力与预处理效果与薄膜相似,避免了节瘤缺陷在远大于其损伤阈值的能量密度下造成的薄膜灾难性损毁,从而大幅度提高薄膜的抗激光损毁能力。

薄膜激光损伤程度与反射率变化关系的研究表

明, $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ 高反膜加镀 SiO_2 半波覆盖层后,相同损伤创面的反射率下降比没加镀 SiO_2 半波覆盖层的 $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ 高反膜要小,并且对于小于 $200 \mu\text{m}$ 的疤痕、孔洞等损伤,反射率几乎没有变化,对于层裂损伤,由于是最外几层薄膜损毁,对反射率的影响要大得多,下降幅度可达 10%。

参 考 文 献

- 1 M. R. Kozlowski, I. M. Thomas, J. H. Campbell *et al.*. High-power-optical coatings for a mega-joule class ICF laser. *Proc. SPIE*, 1992, **1782**:105~119
- 2 R. Chow, S. Falabella, G. E. Loomis *et al.*. Reactive evaporation of low-defect density hafnia. *Appl. Opt.*, 1993, **32**(28):5567~5573
- 3 L. Sheehan, M. Kozlowski, C. Stolz *et al.*. Large area damage testing of optics. UCRL-JC-122006, 1996
- 4 Fu Xiongying, Kong Mingdong, Hu Jianping *et al.*. Deposition of multilayer for pulse laser mirror with high laser induced damage threshold. *High Power Laser and Particle Beams* (强激光与离子束), 1999, **11**(4):413~417(in Chinese)
- 5 F. Y. Genin, C. J. Stolz, T. Reitter *et al.*. Effect of electric field distribution on the morphologies of laser induced in hafnia-silica multilayer polarizer. UCRL-JC-124873, 1997
- 6 Hu Jianping, Qiu Fumin, Fu Xiongming *et al.*. Effect of $\lambda/2$ silica overcoat on laser damage of $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ high reflecting coating. *High Power Laser and Particle Beams* (强激光与离子束), 2001, **13**(2):137~141(in Chinese)
- 7 Hu Jianping, Ma Zi, Li Wei *et al.*. 1064 nm pulse laser damage of oxide coatings. *Acta Optica Sinica* (光学学报), 2000, **20**(2):262~266(in Chinese)
- 8 C. R. Wolfe, M. R. Kozlowski, J. H. Campbell *et al.*. Laser conditioning of optical thin films. *proc. SPIE*, 1990, **1438**:360~375
- 9 M. R. Kozlowski, C. R. Wolfe, M. C. Staggs *et al.*. Large-area laser conditioning of dielectric thin film mirrors. *Proc. SPIE*, 1990, **1438**:376~390
- 10 L. Sheehan, M. R. Kozlowski, F. Rainer *et al.*. Large-area conditioning of optics for high-power laser systems. *Proc. SPIE*, 1994, **2114**:559~568
- 11 C. J. Stolz, L. M. Sheehan, S. M. Maricle *et al.*. Laser conditioning methods of hafnia silica multilayer mirrors. UCRL-JC-129318, 1998