

文章编号: 0258-7025(2004)Supplement-0468-03

高功率激光宽谱增透膜的研究

吕海兵, 魏芸, 蒋晓东, 黄祖鑫, 李珂

(中国工程物理研究院激光聚变研究中心, 四川 绵阳 621900)

摘要 为满足高功率激光抽运中氙灯及其防护隔板玻璃宽谱增透的要求, 采用提拉镀膜法在 K9 基片上通过溶胶-凝胶工艺镀制有机硅-SiO₂ 双层宽谱增透膜系。在实验的基础上讨论了有机硅-SiO₂ 双层膜系中膜厚的搭配以及膜系的宽谱增透特性。实验研究表明通过合理的膜层搭配和对镀膜参量的有效调控, 有机硅-SiO₂ 双层宽谱增透膜系在 376~927 nm 连续波段内具有透射率大于 98% 的增透效果, 激光损伤阈值大于 20 J/cm² (1064 nm, 4 ns), 且性能稳定, 完全满足氙灯及其防护隔板上宽谱增透膜的要求。

关键词 薄膜物理学; 宽谱增透膜; 溶胶-凝胶法; 高功率激光; 激光损伤阈值

中图分类号 O484.4

文献标识码 A

Study of Broadband Antireflective Coatings for High Power Lasers

LÜ Hai-bing, WEI Yun, JIANG Xiao-dong, HUAN Zu-xin, LI Ke

(Research Center of Laser Fusion, CAEP, Mianyang, Sichuan 621900, China)

Abstract A two-layer broadband antireflective (AR) film by sol-gel dip-coating process on K9 substrate for high power lasers was investigated which consists of a layer of methyl silicone polymer overcoated with porous silica. The performance of two-layer film was changed little by dip and spin coating. The experimental result showed, when the physical thicknesses of silicone film and SiO₂ AR film were suited and seemly, the two-layer AR film can be developed with transmission greater than 98% at the waveband range from 400 to 900 nm, of which damage threshold was over 20 J/cm² (1064 nm, 4 ns).

Key words thin film physics; broadband antireflective film; sol-gel; high power lasers; damage threshold

1 引言

溶胶-凝胶(sol-gel)工艺制备光学薄膜是 20 世纪 80 年代发展起来的, 因其工艺成本低、膜层抗激光损伤阈值高等许多优点而备受关注。特别是近年来随着惯性约束聚变的研究和大型高功率激光装置升级换代的需要, 许多溶胶-凝胶光学膜已经在部分激光器件中得到了初步应用, 但仍有一些光学性能要求较特殊的膜系还需进一步开发研究, 如为了提高高功率激光抽运效率, 要求在氙灯及防护隔板上镀制在 400~900 nm 范围内透射达 98% 以上的宽谱增透膜, 并能抗氙灯辐照(一般为 10 J/cm²)。国外几个高功率激光实验室早就着手用溶胶-凝胶法来研制这类膜系^[1-3], 国内这方面的研究还待加强。制备溶胶-凝胶光学膜通常有提拉法、旋转法和弯月面法等几种, 它们都有各自的优缺点^[4]。在氙灯和隔板玻璃上镀膜, 采用提拉法是最可行的。

2 膜层设计与膜料选择

为了实现宽谱增透一般可选择折射率梯度变化的膜层, 也可采用双层膜或多层膜。而双层膜在设计和制备工艺上相对简单些, 所以被普遍采用。综合 I. M. Thomas 等人研究双层膜系的成果^[5-8], 可见光谱区附近, 双层增透膜料可选用有机硅和 SiO₂ 搭配。另外两膜层除了要按照折射率高低由里向外排列外, 它们的光学厚度还应尽量相近^[1], 膜系结构为 substrate/H/L/Air。对于在 K9 基片上的有机硅-SiO₂ 双层膜系, 有机硅层折射率高为内层, 靠近基片, SiO₂ 层在外层。当两膜层光学厚度相近, 也就是两膜层的最大透射峰的位置接近时, 膜系应出现宽谱增透效果。膜系的膜料和构成选定后, 通过相关理论^[9]和模拟计算理论上膜层光学厚度在 145 nm 附近时可满足增透要求。

基金项目: 国家自然科学基金重点项目(2013304)和中国工程物理研究院预研基金(421020607)资助课题。

作者简介: 吕海兵(1973-), 男, 中国工程物理研究院激光聚变研究中心工程师, 主要从事化学镀膜方面的研究工作。

E-mail: lvhaibing@yahoo.com

3 实验

首先配制镀膜液,有机硅溶液由甲基三乙氧基硅烷(MTES)酸催化水解制备;SiO₂溶胶用正硅酸乙酯(TEOS)碱催化水解制备,同时添加适量的稳定剂,并陈化一定时间。镀膜时先将镀膜液用等体积的丁醇稀释,然后将洁净的K9平板基片($\phi 50$ mm)竖直浸润在镀膜液中,设定好速度后由步进电机牵引进行提拉镀膜。其中有机硅层在镀好后立即置于140℃的烘箱中热处理6 h,然后自然冷却。镀膜实验在100级洁净间内进行。膜样的透射谱线是由Perkin-Elmer Lambda 12 UV/VIS/NIR分光光度仪测定的,激光损伤阈值的测试是在自研的波长为1064 nm;脉宽4 ns的阈值测量装置上进行。

4 结果与讨论

4.1 膜厚与提拉速度的关系

对于单层增透膜,膜层的折射率 n 和厚度 d 分别影响着透射谱峰值大小和峰所在的位置。在实验中用同样的镀膜溶液以不同的提拉速度镀膜,得到一组折射率基本相同而膜厚不同的膜。以有机硅膜为例,表1列出了不同膜层透射峰值和峰值波长,并计算出相应的膜厚和折射率。

表中有有机硅膜层的折射率比理论上的1.41略大,可能是镀膜环境或者膜层热处理等因素引起的,但在计算上基本不影响前后的结论。可以看出膜层折射率随提拉速度的提高而稍有增大,这是因为镀膜时提拉速度愈快膜层愈厚,粒子在基片上的排列时间愈长,同时受剪切应力的作用也更强,使粒子排列更加有序化,而使孔隙率减小,折射率有增大趋势^[9,10]。另外通过简单的拟合计算,得到有机硅膜层物理厚度 d 和提拉速度 v 的关系符合 $d=k_1V^{0.43}$,故峰值波长在580 nm(光学厚度145 nm)的有机硅膜层提拉速度应为0.45 mm/s,实验中用0.48 mm/s的提拉速度制备有机硅膜层,其峰值波长为584 nm,这验证了我们所得到的拟合结果是较准确的。用同样的方法得

表1 提拉速度与单层有机硅膜的光学特性

Table 1 Transmission characters of single-layer silicone film at different dip speeds

Dip speed /(mm/s)	Peak value %	Wavelength at perk value/nm	Refractive index n	Physical thickness d /nm
0.32	95.9	507	1.423	89.1
0.64	95.8	682	1.425	119.6
1.20	95.8	879	1.425	154.2
1.60	95.7	1008	1.426	176.7

到SiO₂单层膜厚 d 和提拉速度 v 也符合关系式 $d=k_2v^{0.5}$,要得到峰值波长为580 nm的SiO₂膜层,提拉速度应为1.2 mm/s,实验中也采用了这一速度镀SiO₂膜,虽然在有机硅膜层和在K9基片上镀膜会有差别,但从最后制备的双层膜透射谱图来看,宽谱增透效果很明显,膜系透射特性基本达到了预期的要求,如图1。图中双层膜系透射率大于99%的范围为405~790 nm,大于98%的范围为376~927 nm,这说明膜系中两膜层的搭配是较合适的,膜厚与提拉速度的拟合关系也是较准确的。

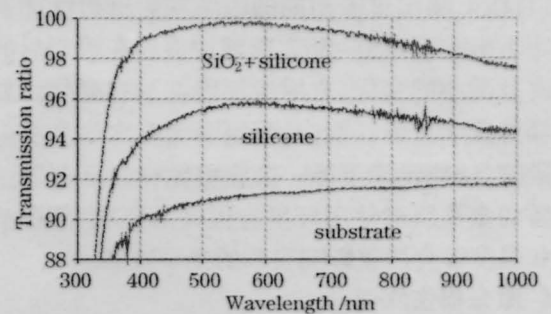


图1 K9基片上有有机硅-SiO₂双层膜的透射谱图

Fig.1 Transmission spectra of two-layer silicone-SiO₂ coatings on K9 substrates

4.2 双层膜的宽谱特性

严格按照双层宽谱增透膜制备的一些基本原则,我们制备了一系列有机硅-SiO₂双层宽谱增透膜,发现峰值透射波长与增透宽度有很密切的关系。在表2中列出了一组有机硅-SiO₂双层增透膜峰值透射波长及对应的增透(>99%)宽度。从表中可发现膜系增透宽度随峰值波长变长而变宽,这与膜系对不同波长的吸收和折射不同等有关。

在制备有机硅-SiO₂双层增透膜时,两层膜的光学厚度基本相同,它们的峰值透射波长应与双层膜的相近,在一定范围内,提拉速度决定了双层膜增透(>99%)宽度的大小,速度越快,膜层越厚,双层膜增透(>99%)宽度越宽。这对制备理想的有机硅-SiO₂双层增透膜有一定的参考意义。

表 2 双层膜峰值透射波长与增透(>99%)宽度的关系
Table 2 Relation of the wavelength at peak transmission and the width in AR region

Wavelength at peak value/nm	550	700	850	930	1100
Width with transmission above 99%/nm	371	420	481	604	750

4.3 膜系稳定性

将制备好的样件放在室温下较封闭的洁净环境中(百级),膜层过了初期的收缩期后透射性能基本稳定下来,有机硅-SiO₂双层增透膜在镀制后的半月内有微小的变化,之后半年内都没有变化。如果将样件置于自然环境中,膜层会吸收水汽和灰尘等污染物,性能迅速下降。由此可见,溶胶-凝胶工艺制备的多孔膜对使用环境有很高的要求,环境洁净度和温度等会严重影响膜系的光学性能。

4.4 激光损伤阈值

在自研的激光损伤阈值测量装置上以 1-ON-1 的方式测试提拉法制备的有机硅-SiO₂双层宽谱增透膜,结果表明膜层激光损伤阈值大于 20 J/cm²(激光波长为 1064 nm,脉宽 4 ns)。

5 结 论

利用溶胶-凝胶工艺在 K9 基片上以提拉法制备有机硅-SiO₂双层增透膜,膜系中有机硅膜层和 SiO₂膜层的厚度与提拉速度符合拟合的公式,当两膜层光学厚度为 580 nm 左右时,双层膜系透射率大 98%的波段范围为 376~927 nm,激光损伤阈值大于 20 J/cm²(1064 nm,4 ns),满足了高功率激光抽运

中氙灯和隔板玻璃上宽谱增透膜的性能要求。实验研究,在一定范围内,有机硅-SiO₂双层膜增透峰向长波方向移动时,膜系增透宽度变宽;膜系在洁净的环境下性能较稳定。

参 考 文 献

- 1 I. M. Thomas, A two layer broadband antireflective coating prepared from a methyl silicone and porous silica[R]. UCRL-JC-126335, 1997
 - 2 P. F. Belleville, H. G. Floch et al., Ammonia-hardening of porous silica antireflective coatings[C]. *SPIE*, 1994, **2288**(Sol-Gel Opt III):25-32
 - 3 I. M. Thomas, Method for the preparation of porous silica antireflection coatings varying in reflective index from 1.22 to 1.44[J]. *Appl. Opt.*, 1992, **31**:6415-6418
 - 4 I. M. Thomas, Optical Coating Fabrication[R]. UCRL-JC-111948, 1992
 - 5 B. E. Yoldas, Formation of broadband antireflective coatings on fused silica for high power laser application [J]. *Thin Solid Film*, 1985, **129**:1-14
 - 6 I. M. Thomas, Process for the elimination of fogging on KDP crystal prior to and during use in laser systems[C]. *SPIE*, 1991, **1624**: 137-148
 - 7 C. Jagdish, Monga, Double-layer broadband antireflection coatings for grazing incidence angles[J]. *Appl. Opt.*, 1992, **31**(4): 546-553
 - 8 P. G. Verly, J. A. Dobrowlshi, R. R. Willey, Fourier-transform method for the design of wideband antireflection coatings [J]. *Appl. Opt.*, 1992, **31**(19): 3836-3846
 - 9 C. J. Brinker, G. W. Scherer. Sol-Gel Science [M]. London: Academic Press, 1990
 - 10 Liu Xiaolin, Zhang Weiqing, Tang Yongxing et al., Preparation of silica antireflective coatings by raise process [J]. *Acta Photonica Sinica*, 1998, **27**(1):29-33
- 刘晓林,张伟清,唐永兴等. 溶胶-凝胶工艺提拉法制备二氧化硅增透膜[J]. 光子学报, 1998, **27**(1):29-33