

文章编号: 0258-7025(2008)12-2026-05

355 nm 增透膜的设计、制备与性能

余 华^{1,2} 崔 云^{1,2} 申雁鸣^{1,2} 齐红基¹ 易 葵¹ 邵建达¹ 范正修¹

(¹ 中国科学院上海光学精密机械研究所, 上海 201800; ² 中国科学院研究生院, 北京 100039)

摘要 用热舟蒸发法结合修正挡板技术制备了 355 nm LaF₃/MgF₂ 增透膜, 并对部分样品进行了真空退火。采用 Lambda 900 光谱仪测试了增透膜的低反光谱和透射光谱, 并考察了其光谱稳定性; 使用脉冲 8 ns 的 355 nm 激光测试了增透膜的激光损伤阈值 (LIDT); 采用 Normarski 显微镜对增透膜的表面缺陷密度和破斑形貌进行了观察。实验结果表明, 制备得到的增透膜的剩余反射率较低, 光谱稳定性好; 真空退火对增透膜的激光损伤阈值没有改善; 增透膜的破斑形貌为散点形式, 结合破斑深度测试表明薄膜的破坏源于薄膜和基底界面的缺陷点。JGS1 熔石英基底由于有好的表面状况、固有的高激光损伤阈值和以其为基底的增透膜具有更低的表面场强, 使得其上的增透膜有更高的抗激光损伤能力。

关键词 薄膜; 增透膜; 热舟蒸发; 真空退火; 激光损伤阈值

中图分类号 O 484.1 文献标识码 A doi: 10.3788/CJL20083512.2026

Design, Preparation and Characterization of 355 nm Antireflection Coatings

Yu Hua^{1,2} Cui Yun^{1,2} Shen Yanming^{1,2}

Qi Hongji¹ Yi Kui¹ Shao Jianda¹ Fan Zhengxiu¹

(¹ Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China)

² Graduate University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100039, China

Abstract 355 nm LaF₃/MgF₂ antireflection coatings were prepared by thermal boat evaporation combining masking technology. Some of these coatings were annealed in vacuum. The reflectance and transmittance spectra of the antireflective coatings were measured by a spectrophotometer Lambda 900. Meanwhile, the spectrum stability is tested. Laser induce damage threshold (LIDT) was performed by a 355 nm laser system with 8 ns pulses. The results show that the prepared anti-reflective coatings have very low reflectance and good spectrum stability. The vacuum annealing has no effect upon the LIDT. The damage morphologies are shown as dispersive spots. Moreover, the deep analysis shows that the damage origins from the defect at the film-substrate interfaces. The JGS1 substrate has better surface condition and higher laser damage resistance, and the antireflection coatings upon it has lower surface electric-field intensity. These advantages make the antireflection coatings on these substrates have higher LIDT.

Key words thin films; antireflection coatings; thermal boat evaporation; vacuum annealing; laser induce damage threshold

1 引言

紫外激光由于具有波长短、易聚焦、能量集中、分辨率高等优点, 已在许多领域, 比如超大容量第四代高密度光盘、激光聚变能电站、激光微加工、光刻技术、医学诊断、光谱分析和科学研究等领域显示出广阔的应用前景^[1~4]。通常紫外激光器有准分子激

光器, N₂ 激光器及三、四倍频 Nd:YAG 全固态紫外激光器等。与其他紫外激光器相比, 全固态紫外激光器^[5~9]具有效率高、光束质量好、寿命长、性能可靠、小型紧凑等优点, 越来越受到重视。

为了降低全固态紫外激光器中各种光学元件表面的反射损耗, 提高转换效率, 增加紫外倍频光的功

收稿日期: 2008-01-08; 收到修改稿日期: 2008-04-21

基金项目: 国家自然科学基金 (60678004) 资助项目。

作者简介: 余 华 (1978—), 女, 湖北人, 博士研究生, 主要从事高损伤阈值三倍频激光薄膜的研究。

E-mail: yuhua5101@163.com

导师简介: 邵建达 (1964—), 男, 浙江人, 教授, 博士生导师, 主要从事光学薄膜方面的研究。E-mail: jdshao@opfilm.com

率输出,必须在光学元件表面镀制增透膜。这些紫外增透膜的光学性能和抗激光损伤能力将直接影响到紫外激光器的效率和使用寿命,所以研制高的光学性能、好的稳定性和抗激光损伤能力的紫外增透膜具有重要的意义。氟化物材料由于其优异的紫外性能而备受重视^[10,11]。本文通过采用挡板的简单方法设计制备了355 nm氟化物紫外增透膜,并对薄膜的性能进行了初步研究。

2 膜系设计

仅用一种低折射率材料制备的单层增透膜通常剩余反射较高,而且在制备时波长容易漂移,不便控制,导致制备的薄膜不容易达到使用要求。多层增透膜可以选用不同的材料和膜层厚度,达到较低的剩余反射,制备中也容易调控。

图1所示为用光学薄膜设计软件 Tfcalc 模拟的不同膜系增透膜的剩余反射理论光谱曲线,其中 H 表示 LaF_3 高折射率材料, L 表示 MgF_2 低折射率材料。膜系 $S|1.5L0.6H1.1L|air$ 可以在较大波长范围内达到更低的剩余反射率, S 表示 UBK7 玻璃基底,相对于 $S|LHL|air$ 膜系,前者膜层表面的强场稍小,增透膜堆内部的电场最大值也落在低折射率膜层内而不是界面上,如图2所示。这些都有利于提高薄膜的抗激光损伤能力。综合以上因素,选用 $S|1.5L0.6H1.1L|air$ 膜系进行增透膜的制备。

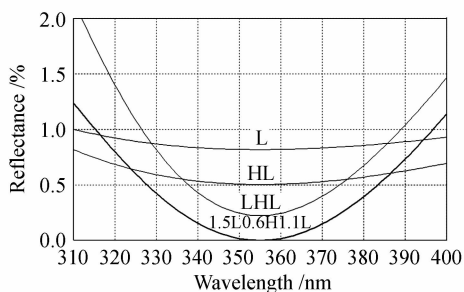


图1 不同膜系增透膜的理论剩余反射光谱曲线

Fig.1 Theory reflectance spectra of different coating designs

3 实验方法

3.1 膜厚监控

由于普通镀膜机的控制波长为可见光波段,光电倍增管在500~700 nm范围内比较灵敏,所以在制备紫外薄膜时受到限制。如果换用配有紫外光路的镀膜机,不仅费用昂贵,而且会降低设备的利用效

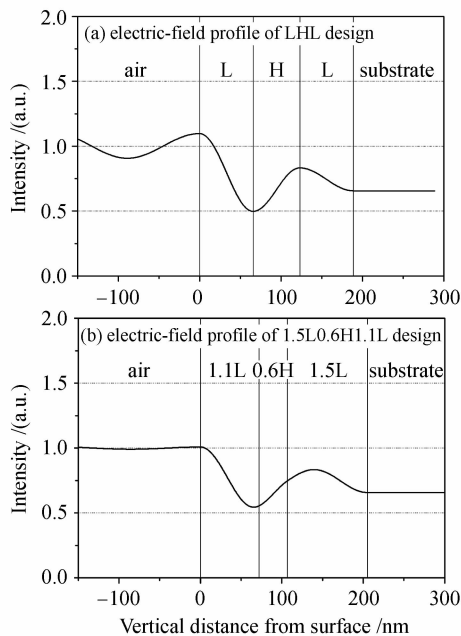


图2 UBK7 基底上两种膜系增透膜的电场分布
Fig.2 Electric-field profiles of the two designs at UBK7 substrates

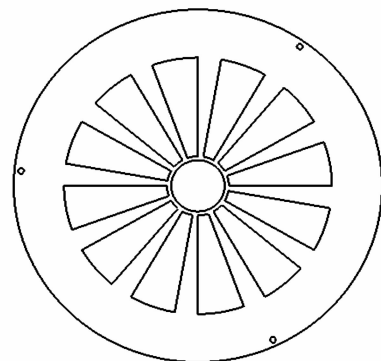


图3 圆形2/3膜厚修正挡板

Fig.3 2/3 circular mask for thickness correcting
率与使用性能。如果在普通镀膜机的基片与蒸发源之间使用膜厚修正挡板,可以方便地解决这个问题。图3是所使用的圆形2/3膜厚修正挡板,在制备355 nm的增透膜时,控制波长为500 nm。

3.2 样品制备

镀膜基底为 $\phi 30\text{ mm} \times 3\text{ mm}$ 的UBK7和JGS1熔石英光学玻璃,基底镀膜前在超净台上清洗干净。所有薄膜样品均在北京真空仪器厂生产的DMDE-450型光学镀膜机上制备,采用传统的钼舟热蒸发沉积技术。膜系为 $S|1.5L0.6H1.1L|air$,其中 H 为 CERAC 公司生产的纯度标定为99.9%的高折射率材料 LaF_3 , L 为北京巨波光电技术公司生产的低折射率材料 MgF_2 ,纯度为99.99%。本底真空为 $1.2 \times 10^{-3}\text{ Pa}$,薄膜的沉积温度为 $270\text{ }^\circ\text{C}$,采用光控

法进行薄膜厚度监控,监控波长为500 nm。对部分样品进行了退火实验,退火在真空为 1.2×10^{-3} Pa的条件下进行,以 $5 \text{ }^\circ\text{C}/\text{min}$ 的速率缓慢升温至 $300 \text{ }^\circ\text{C}$,保温30 min,然后真空下自然冷却至室温。退火在真空下进行是为了防止氟化物薄膜在高温下被氧化。

3.3 增透膜性能测试

薄膜的低反光谱和透射光谱由 Perkin Elmer 公司生产的 Lambda 900 光谱测试仪进行测量,测试的波长范围为 $300 \sim 400 \text{ nm}$,波长分辨率为 1 nm 。薄膜的表面缺陷密度用 Nomarski 显微镜在暗场下进行观察,放大倍数为 100 倍。薄膜的激光损伤阈值测试按照 ISO11254-1^[12,13] 国际标准,采用 1-ON-1 方式。损伤阈值测量装置是由 355 nm Nd:YAG 激光系统(脉宽 8 ns),He-Ne 准直光源,分光镜,聚焦凸透镜,二维可移动样品平台,CCD 和能量计等组成。用衰减片实现激光脉冲能量的调整,同时每次测量都利用激光能量计实时监测脉冲能量,以消除激光能量输出随机起伏的影响。整套系统用电脑进行控制^[14]。样品的损伤阈值取零损伤概率时的能量密度。这种方法表征了损伤的临界行为,排除了实验过程中样品不均匀性和环境不稳定等偶然因素的影响,实验结果更可靠。样品的激光破坏形貌用 Nomarski 显微镜观察。

4 实验结果和分析

制备得到的增透膜的低反光谱曲线和时效后的曲线如图 4 所示。增透膜的剩余反射率只有 0.07% ,远小于 0.5% ,满足了全固态激光器系统要求的光学性能指标^[15]。另外,从薄膜放置一个月后的光谱时效曲线可以看到,光谱漂移不大,剩余反射率变化也很小,说明所制备的薄膜光谱稳定性较好。图 5 是不同基底上增透膜的透射率光谱曲线。

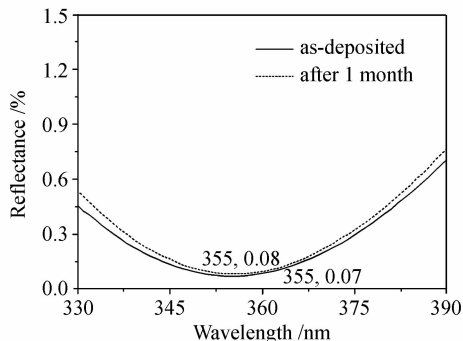


图 4 增透膜的低反光谱曲线

Fig. 4 Reflectance spectra of the antireflection coatings

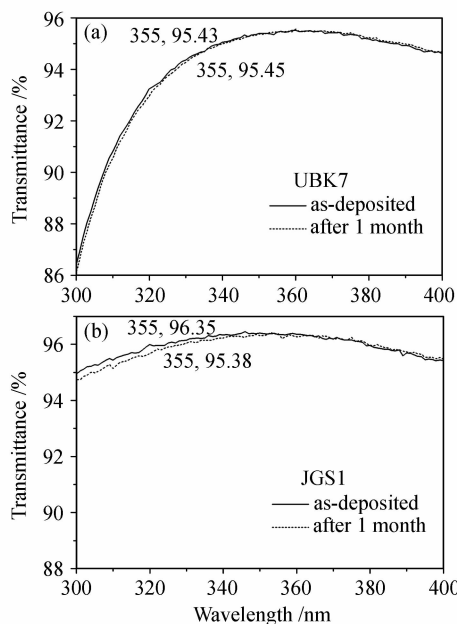


图 5 不同基底上增透膜的透射率光谱曲线

Fig. 5 Transmittance spectra of the antireflection coatings at different substrates

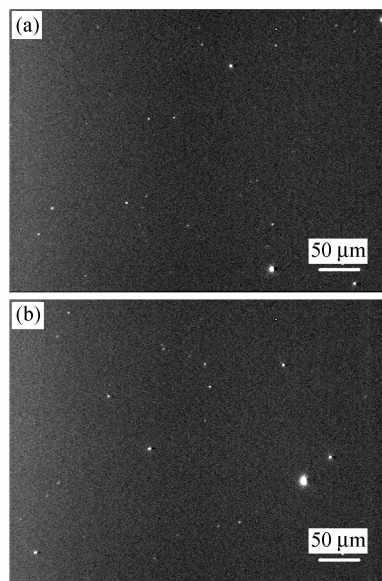


图 6 不同基底增透膜的表面缺陷密度

Fig. 6 Defect densities of the antireflection coatings at different substrates. (a) UBK7; (b) JGS1

图 6 为不同基底上增透膜的表面缺陷密度,可以看出薄膜表面的缺陷点较多,但不同基底上薄膜的表面缺陷密度基本相同。

样品在 355 nm 波长的激光损伤阈值(LIDT)如图 7 所示。真空退火对增透膜的激光损伤阈值没有改善,不同于真空退火明显提高 LaF_3 单层膜的阈值^[16]。不象单层膜是由一种材料连续沉积得到,增透膜是由两种材料交替沉积获得的,它不仅与基底

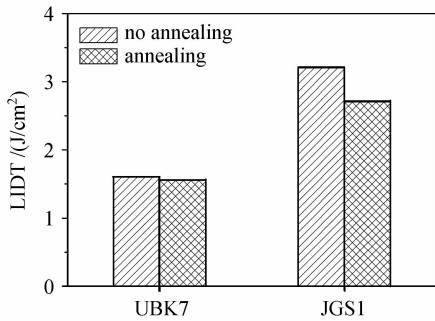


图 7 增透膜的激光损伤阈值

Fig. 7 LIDTs of the antireflection coatings

或空气之间存在界面,增透膜内部也存在多个界面。由图 2(b)还可以看到,这些界面处的电场均不为零,由于退火可能导致界面上缺陷或杂质数量和尺寸的增大,更多界面的存在使得在激光作用下,增透膜的阈值受到很大影响。不同基底上的增透膜抗激光损伤能力相差较大,JGS1 基底上的增透膜阈值明显高于 UBK7 基底上的增透膜阈值。

增透膜的破斑形貌如图 8 所示。不同基底增透膜的破斑均为散点形式,破斑的直径均在 $10\ \mu\text{m}$ 以下。仔细观察还可以发现,无论破斑大小,在其中心都有一个小的吸收中心。使用轮廓仪测试得到破斑深度约为增透膜的整个厚度,也就是说增透膜的破坏与单层膜的情况很相似^[17],是由于基底与膜的界面处缺陷点对辐照激光能量的吸收,而导致薄膜的剥落。在相同能量下,以 JGS1 为基底的增透膜破坏点数目远少于 UBK7 基底上的破坏点数目,这进一步说明 JGS1 基底上的增透膜具有更强的抗激光

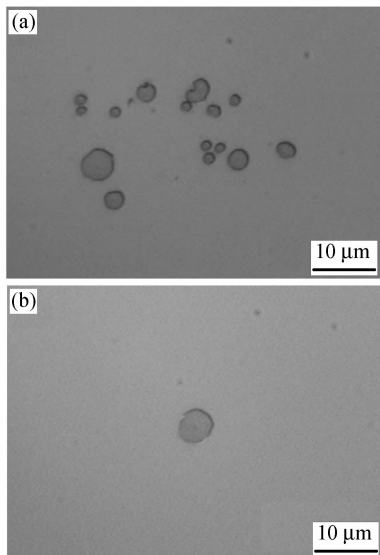


图 8 相同激光能量下不同基底增透膜的破斑形貌

Fig. 8 Damage morphologies of the antireflection coatings at different substrates. (a) UBK7; (b) JGS1

损伤能力。

为了分析两种基底上损伤阈值差异的原因,首先模拟了 JGS1 基底上薄膜的电场分布,如图 9 所示。与图 2(b)相比,其表面场强更低;其次对 UBK7 和 JGS1 两种基底的表面缺陷密度进行了观察,并测试了损伤阈值。表面缺陷密度的观察发现,JGS1 基底的表面缺陷点明显相对较少,两种基底的损伤阈值结果分别为 $7.1\ \text{J}/\text{cm}^2$ 和 $12.8\ \text{J}/\text{cm}^2$ 。JGS1 基底上增透膜表面更低的电场强度有利于提高其抗激光损伤能力,同时 JGS1 基底相对较少的表面缺陷点,使所得到的增透膜的薄膜和基底界面缺陷点相对较少,减少了薄膜对激光辐照能量的大量吸收,从而降低了薄膜破坏的概率。另外 JGS1 基底较高的抗激光损伤能力也使得以其为基底的增透膜具有更高的激光损伤阈值。

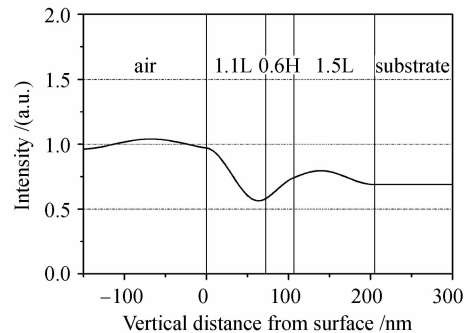


图 9 JGS1 基底上增透膜的电场分布

Fig. 9 Electric-field profiles of the antireflection coatings at JGS1 substrate

5 结 论

通过计算机模拟结合挡板技术设计制备了 355 nm 氟化物紫外增透膜,简化了紫外波段薄膜的镀制对镀膜机光控系统的要求,拓展了普通镀膜机的使用范围。制备得到的增透膜剩余反射率较低,光谱稳定性好。JGS1 基底由于自身好的表面状况,即少的表面缺陷点,以及固有的高抗激光损伤能力和其上增透膜更低的表面场强,使得以其为基底的增透膜具有相对较高的激光损伤阈值。薄膜的破坏是由薄膜和基底界面的缺陷点引起的,膜层表面的缺陷点也有一定的影响。由此可知,JGS1 基底是 355 nm 增透膜的优选基底材料,而进一步减少基底表面缺陷和控制镀膜过程中缺陷的产生,将有助于提高 355 nm 增透膜的抗激光损伤能力。

参 考 文 献

- 1 Xu Zuyan. Optoelectronic crystals, all-solid-state lasers and

- their applications [J]. *Engineering Science*, 1999, **1**(2):72~77
- 许祖彦. 光电子晶体与全固态激光器及其应用[J]. 中国工程科学, 1999, **1**(2):72~77
- 2 李光晓. 紫外固体激光器在微加工中展现出高精度和可靠性[J]. 光电子技术与信息, 2002, **15**(2):31~32
 - 3 Su Yanli, He Jingliang, Jiang Qichang *et al.*. Efficient 213 nm radiation fifth harmonic generation of a laser diode-pumped Nd:YVO₄ laser [J]. *Chinese J. Lasers*, 2006, **33**(12):1590~1592
 - 苏艳丽, 何京良, 姜其畅 等. 激光二极管抽运 Nd:YVO₄ 晶体五倍频 213 nm 深紫外激光器[J]. 中国激光, 2006, **33**(12):1590~1592
 - 4 Lü Yanfei, Zhang Xihe, Yao Zhihai *et al.*. Laser-diode pumped all-solid-state continuous-wave ultraviolet laser at 355 nm [J]. *Chinese J. Lasers*, 2007, **34**(8):1048~1050
 - 吕彦飞, 张喜和, 姚治海 等. 激光二极管抽运全固态 355 nm 连续波紫外激光器 [J]. 中国激光, 2007, **34**(8):1048~1050
 - 5 Cheng Guanghua, Yu Lianjun, Wang Yishang *et al.*. Experimental study of all-solid-state second harmonic and fourth harmonic generation in Ti:sapphire laser [J]. *Acta Optica Sinica*, 2003, **23**(3):330~334
 - 程光华, 于连君, 王屹山 等. 高效全固化紫外二倍频和四倍频掺钛蓝宝石激光器的研究[J]. 光学学报, 2003, **23**(3):330~334
 - 6 H. Kouta, Y. Kuwano. Attaining 186 nm light generation in cooled β -BaB₂O₄ crystal [J]. *Opt. Lett.*, 1999, **24**(17):1230~1232
 - 7 G. Feugnet, C. Bussac, C. Larat *et al.*. High efficiency intracavity doubled Diode-end-pumped Nd:YVO₄ laser [C]. *SPIE*, 1996, **2698**:105~114
 - 8 Shi Zhaohui, Fan Zhongwei, Zhang Ying *et al.*. High efficiency and high power all-solid-state ultraviolet laser [J]. *Chinese J. Lasers*, 2007, **34**(1):29~32
 - 石朝辉, 樊仲维, 张 瑛 等. 高效率大功率全固态紫外激光器 [J]. 中国激光, 2007, **34**(1):29~32
 - 9 Tan Tianya, Huang Jianbing, Zhan Meiqiong *et al.*. Design of 1064 nm, 532 nm, 355 nm frequency-tripled antireflection coating for LBO [J]. *Acta Optica Sinica*, 2007, **27**(7):1327~1332
 - 谭天亚, 黄建兵, 占美琼 等. 三硼酸锂晶体上 1064 nm, 532 nm, 355 nm 三倍频增透膜的设计[J]. 光学学报, 2007, **27**(7):1327~1332
 - 10 T. Izawa, N. Yamamura, R. Uchimura. Damage threshold of fluoride HR coatings at 352 nm [C]. *SPIE*, 1992, **1848**:322~329
 - 11 E. Eva, K. Mann, N. Kaise. Laser conditioning of LaF₃/MgF₂ dielectric coatings at 248 nm [J]. *Appl. Opt.*, 1996, **35**(28):5613~5619
 - 12 ISO 11254-1: 2000, Lasers and laser-related equipment-determination of laser-induced damage threshold of optical surfaces. Part 1: 1-on-1 test, International Organization for Standardization, Geneva, Switzerland, 2000
 - 13 Laser-induced damage threshold and certification procedure for optical materials, NASA Reference Publication, 1997
 - 14 Zhan Meiqiong, Huang Jianbing, Shang Shuzheng *et al.*. Effects of vacuum annealing on the performance of 355 nm Al₂O₃/MgF₂ high reflectance coatings [J]. *High Power Laser and Particle Beams*, 2004, **16**(11):1389~1392
 - 占美琼, 黄建兵, 尚淑珍 等. 真空退火对 355 nm Al₂O₃/MgF₂ 高反射薄膜性能的影响[J]. 强激光与粒子束, 2004, **16**(11):1389~1392
 - 15 Ma Xiaofeng. Design preparation and property study of optical coatings for all solid state lasers [D]. Shanghai: Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, 2005. 37
 - 马小凤. 全固态激光器用光学薄膜的设计制备与性能研究[D]. 上海:中国科学院上海光学精密机械研究所, 2005. 37
 - 16 Yu Hua, Cui Yun, Shen Yanming *et al.*. Deposition rate's effects on the properties of LaF₃ films prepared by thermal boat evaporation [J]. *Chinese J. Lasers*, 2007, **34**(11):1557~1561
 - 余 华, 崔 云, 申雁鸣 等. 沉积速率对热舟蒸发 LaF₃ 薄膜性能影响的研究[J]. 中国激光, 2007, **34**(11):1557~1561
 - 17 H. Yu, H. G. Qi, Y. Cui *et al.*. Influence of substrate temperature on properties of MgF₂ coatings [J]. *Appl. Surf. Sci.*, 2007, **253**(14):6113~6117