

文章编号: 0258-7025(2008)05-0764-04

# 1064 nm 激光脉冲致光学薄膜分层剥落损伤特性

李大伟<sup>1,2</sup> 许程<sup>1,2</sup> 赵元安<sup>1</sup> 邵建达<sup>1</sup> 范正修<sup>1</sup>

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

**摘要** 研究了 1064 nm 激光辐照致光学薄膜分层剥落的损伤特性及其抑制手段。从光学薄膜的界面结构出发分析了温升在分层剥落产生过程中的作用, 从理论上得出了剥落面积与辐照脉冲能量之间的关系式并通过实验进行验证, 间接证明了分层剥落的成因; 对分层剥落的抑制、改善方法进行了理论探讨与实验, 证明亚阈值能量脉冲辐照之后剥落面积明显减小, 并且在一定范围内预辐照脉冲的能量密度越高相应的效果越明显, 对作用机制给出了定性解释。

**关键词** 光学薄膜; 激光损伤; 分层剥落; 剥落阈值

**中图分类号** O 484 **文献标识码** A

## Delamination of Optical Thin Films Induced by 1064 nm Laser Pulse

Li Dawei<sup>1,2</sup> Xu Cheng<sup>1,2</sup> Zhao Yuan'an<sup>1</sup> Shao Jianda<sup>1</sup> Fan Zhengxiu<sup>1</sup>

(<sup>1</sup> Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China)  
(<sup>2</sup> Graduate University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100039, China)

**Abstract** The delamination characteristic of optical thin films induced by laser pulse at 1064 nm and its restraining method were studied. The process of delamination was analyzed and the relationship between the area of delamination and the energy of irradiating pulse was deduced theoretically and proved experimentally. Some theories probes to control delamination were done and it was found that irradiation with low energy density pulse could enhance the delaminating threshold and reduce the area of delamination. The effect was found more evident with higher pulse energy density in some range and the mechanism was presented.

**Key words** optical thin films; laser induced damage; delamination; delamination threshold

## 1 引 言

光学薄膜的损伤机制及其表现形式比较复杂<sup>[1~5]</sup>, 对于 Nd:YAG 基频激光(1064 nm)而言, 基本的机制是膜层中的各类缺陷或膜层界面处吸收热量产生温升致使膜层熔化甚至气化或者通过热力耦合形成破坏。在激光能量较低时, 首先引起破坏的是各种缺陷<sup>[5~7]</sup>。其中节瘤缺陷受热喷出形成锥形坑, 吸收性缺陷吸收热量产生温升致使本身或周围膜层融化甚至气化形成平底凹坑。此外, 由于膜层结构缺陷以及各种杂质带来的自由电子或者处于较浅裂谷态而被激发至自由态的电子, 吸收热量并

通过电子/声子作用将热量转移至晶格最终产生破坏<sup>[8]</sup>。目前对该类损伤的特性进行了较多的研究并提出了多种处理方法以消除损伤, 提高损伤阈值<sup>[9,10]</sup>。

辐照激光能量稍高时, 分层剥落成为主要的损伤形貌。关于分层剥落的产生机制已经进行了一些研究, 当前普遍认为界面两侧材料热物特性的差异导致了膜层内温度场的形成, 进一步产生应力使表层薄膜脱落形成损伤。激光辐照时光束在膜层界面处多次反射、叠加从而在膜层内部形成驻波场<sup>[11~13]</sup>, 由于膜体材料以及界面处的吸收在膜层中

收稿日期: 2007-07-03; 收到修改稿日期: 2007-11-27

基金项目: 国家自然科学基金(60608020)资助项目。

作者简介: 李大伟(1978—), 男, 山东人, 博士研究生, 主要从事光学薄膜激光损伤及其检测技术方面的研究。

E-mail: dawei\_510@yahoo.com.cn

导师简介: 邵建达(1964—), 男, 浙江人, 研究员, 博士生导师, 主要从事光学薄膜技术的相关研究。

E-mail: jdshao@opfilm.com

形成温度场,兼之不同膜层材料热膨胀系数之间的差异产生应力最终导致分层剥落。P. A. Temple<sup>[14]</sup>通过实验以及有限元模拟分析了带保护层的高反膜内应力场强度与分层剥落之间的联系,实验与模拟结果一致性较好;但也有一些例外,比如保护层厚度为  $\lambda/3$  时,虽然模拟得到的场强较大,实际实验却没有观察到分层剥落。本文分析了膜层界面结构在分层剥落的产生过程中的作用,通过实验间接地进行了证明,阐明了剥落面积与辐照脉冲能量之间的关系,并在抑制剥落损伤方面进行了理论与实验上的探索与研究。

## 2 理论分析

由于薄膜高速生长带来的不均衡性,膜层表面总是存在一定程度的起伏,在界面附近相邻膜层之间相互渗透形成啮合区域。图 1(a)所示为纵切面示意图。激光辐照过程中界面处的吸收导致温升,由于材料热膨胀系数的差异,并且不同位置材料所占的比例不同,界面上各点的膨胀程度存在差异,在温升足够高时就会使膨胀较小的部分区域内膜层分离使得膜层之间的结合强度降低,如图 1(b)所示。随着界面处的温度接近膜料的熔点,一方面膜层本身强度降低,另一方面界面处杂质以及部分材料的熔化、气化等带来的体积膨胀而对膜层产生压强,从而对表面膜层产生剪切应力并最终折断膜层形成剥落。

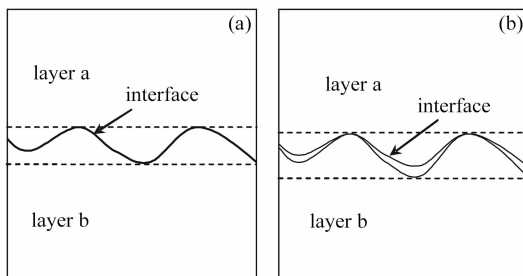


图 1 膜层界面处的温升膨胀导致相邻膜层的部分分离。  
(a) 温升前相邻膜层界面相互啮合;(b) 温升致部分区域的膜层分离

Fig.1 Part separation of adjacent layers caused by temperature rise near the interface. (a) surfaces of the layers embedded into each other; (b) mismatch caused by thermal expansion

激光辐照过程中产生的温升大小以及相邻膜层材料热膨胀系数的差异程度决定了剥落面积。为简单起见,假设样品界面的吸收系数在辐照区域内径向上是均匀的,并且忽略损伤过程中的热传播,这样

膜层界面处的温度场分布决定于光场强度分布。脉冲的空间能量分布呈高斯型,表示为

$$I_R = I_0 \exp\left(-\frac{2R^2}{w^2}\right), \quad (1)$$

式中  $I_0$  为脉冲的峰值能量密度, $w$  为脉冲的高斯半径, $R$  为偏离光斑中心的距离。

设  $I_T$  为剥落阈值,即当脉冲能量密度大于该值时产生剥落,则对应的剥落区域半径  $R_T$  有

$$I_T = I_0 \exp\left(-\frac{2R_T^2}{w^2}\right),$$

也即 
$$R_T^2 = \frac{w^2}{2} \ln\left(\frac{I_0}{I_T}\right). \quad (2)$$

对于高斯脉冲而言,其脉冲能量  $E$  与峰值能量密度  $I_0$  之间关系为

$$I_0 = \frac{2E}{\pi w^2}, \quad (3)$$

因此(2)式可以表示为

$$R_T^2 = \frac{w^2}{2} \ln\left(\frac{2E}{\pi w^2 I_T}\right). \quad (4)$$

令  $I = \frac{E}{\pi w^2}$  表示脉冲的平均能量密度,则(4)式变为

$$S_d = \frac{S_p}{2} \ln\left(\frac{2I}{I_T}\right), \quad (5)$$

式中  $S_d$  表示分层剥落面积, $S_p$  表示激光脉冲的等效面积( $e^{-2}$ )。(5)式表明辐照脉冲平均能量密度  $I$  与剥落阈值  $I_T$  以及剥落面积  $S_d$  之间的关系。

## 3 实验与讨论

### 3.1 实验

通过电子束蒸发制备 1064 nm 高反膜样品,膜系结构为 SHL(H2L)<sup>[15]</sup>M,其中 S 表示基底,这里采用的是 K9 玻璃;H 表示光学厚度为四分之一波长的高折射率材料(HfO<sub>2</sub>)层,L 表示光学厚度为四分之一波长的低折射率材料(SiO<sub>2</sub>)层;M 表示入射介质空气。

实验装置按照 ISO-11254<sup>[15]</sup> 标准建立。Nd:YAG 激光器输出脉冲波长为 1064 nm,脉宽为 12 ns。光束经能量调节系统以及会聚透镜后辐照样品表面,样品固定在二维步进电机上并放置于光束焦点前。脉冲能量的空间分布呈高斯型,刀口法测量得到靶面光斑面积( $e^{-2}$ )为  $1.6 \times 10^{-3} \text{ cm}^2$ 。能量调节系统以及步进电机均由计算机控制。另外可通过放大 200 倍的在线观测系统实时监测样品的损伤情况。

损伤流程按照 1-on-1<sup>[15]</sup> 测试标准, 样品表面每点辐照一个脉冲后即移至下一点, 同一能量台阶的脉冲测试 20 点, 并通观在线观测系统观察样品的损伤情况以调节脉冲的能量密度, 尽量使测试点出现分层剥落。完成后离线测量剥落面积, 并对每一能量台阶求平均作为对应的剥落尺寸。

### 3.2 结果及讨论

实验得到的剥落面积以及使用(5)式进行拟合得到的结果如图 2 所示, 其中拟合得到的剥落阈值为  $14.4 \text{ J/cm}^2$ , 辐照脉冲的光斑面积为  $5.9 \times 10^{-3} \text{ cm}^2 (e^{-2})$ 。

图 2 在一定程度上证明了关于分层剥落的解释。但拟合的辐照光斑面积大于刀口法测量的结果, 说明有一定的误差存在。分析认为, 产生误差的主要原因在于前面的模型中假设激光脉冲辐照过程中不存在热传播, 实际纳秒激光脉冲热量的传播对结果影响较大。另外, 脉冲辐照范围内的缺陷也会影响最终的剥落面积。

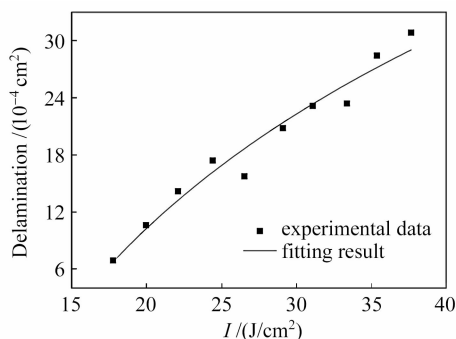


图 2 分层剥落面积与辐照脉冲能量的关系曲线

Fig. 2 Curve of delamination area versus pulse energy

## 4 亚阈值脉冲辐照抑制分层剥落

决定剥落尺寸的两个因素为界面处的温升幅度以及界面两侧材料热膨胀系数的差异。因此, 选择热膨胀系数比较接近的高低折射率材料可以在一定程度上抑制分层剥落; 膜系设计中也可以使电场峰值偏离界面以降低界面附近的温升幅度。

实验发现以亚阈值能量脉冲预辐照可以在一定程度上抑制甚至消除分层剥落。在同一样品表面选取三组点以较低能量密度的脉冲进行预辐照, 然后再以较高能量密度(平均能量密度为  $21.0 \text{ J/cm}^2$ ) 的脉冲辐照并测量剥落区域尺寸。该过程中通过在线观测系统观察样品表面并确保预辐照产生的损伤直径不超过  $20 \mu\text{m}$ 。表 1 所示为最后结果, 可见预辐照后剥落区域尺寸缩小, 并且预辐照使用脉冲的能量

密度越大效果越明显。

表 1 预辐照对剥落尺寸的影响

Table 1 Delamination after pre-irradiating by pulses with different energy densities

Average energy density of conditioning pulses $/( \text{J/cm}^2 )$	Diameters of delamination area $/ \mu\text{m}$
10.1	150.0
7.7	158.3
4.9	174.6
0	193.0

分析认为, 预辐照过程中膜层界面处产生的温升虽然不足以产生剥落, 但能够促进原子团的运动, 增加两种材料之间的相互渗透。这样一方面增加相邻膜层间的结合面积, 加大了结合强度, 另一方面也使得界面处的光学特性以及热膨胀系数变化趋缓, 从而在一定程度上抑制了高能量脉冲的破坏作用。

## 5 结 论

激光脉冲辐照时光学薄膜膜层界面处吸收热量产生温升, 由于不同材料热膨胀系数的差异引起热应变失配致使相邻膜层部分分离, 降低膜层间的结合强度; 温升同时使界面处的部分膜料熔化甚至气化从而对膜层产生压强并随着温度升高而增加, 最终使表面膜层剥落形成损伤。剥落区域与辐照脉冲能力之间满足一定的关系式。以亚阈值能量脉冲预辐照可以在一定程度上提高剥落阈值, 缩小剥落面积。

## 参 考 文 献

- 1 B. C. Stuart, M. D. Feit, A. M. Rubenchik *et al.*. Optical ablation by high-power short-pulse lasers [J]. *J. Opt. Soc. Am. B*, 1996, **13**(2):459~468
- 2 Nicolaas Bloembergen. Laser induced electric breakdown in solid [J]. *IEEE. J. Quantum Electron.*, 1974, **QE-10**:375~386
- 3 R. W. Hopper, D. R. Uhlmann. Mechanism of inclusion damage in laser glass [J]. *Appl. Phys.*, 1970, **41**(10):4023~4037
- 4 Christopher J. Stolz, Robert J. Tech, Mark R. Kozlowski *et al.*. A comparison of nodular defect seed geometries from different deposition techniques [C]. *SPIE*, 1996, **2714**:374~382
- 5 M. F. Koldunov, A. A. Manenkov, I. L. Pocotilo. Theory of laser induced damage to optical coatings; Inclusion initiated thermal explosion mechanism [C]. *SPIE*, 1996, **2714**:731~745
- 6 J. Dijon, G. Ravel, B. André. Thermomechanical model of mirror laser damage at  $1.06 \mu\text{m}$  [C]. *SPIE*, 1999, **3578**:387~396
- 7 S. C. Weakley, C. J. Stolz, Z. L. Wu *et al.*. Role of starting material composition in interfacial damage morphology of hafnia silica multilayer coatings [C]. *SPIE*, 1999, **3578**:137~143

- 8 C. R. Wolfe, M. R. Kozlowski, J. H. Campbell *et al.*. Laser conditioning of optical thin films [C]. *SPIE*, 1989, **1438**:360~375
- 9 Cui Yun, Zhao Yuan'an, Jin Yunxia *et al.*. Laser damage characteristic of third harmonic separator at 1064 nm [J]. *Acta Optica Sinica*, 2007, **27**(6):1129~1134  
崔云, 赵元安, 晋云霞 等. 三倍频分光膜在 1064 nm 的破斑特性研究[J]. *光学学报*, 2007, **27**(6):1129~1134
- 10 Wang Congjuan, Jin Yunxia, Wang Yingjian *et al.*. High laser-induced damage threshold antireflection coatings of 1053 nm deposited by ion assisted deposition [J]. *Chinese J. Lasers*, 2006, **33**(5):683~686  
王聪娟, 晋云霞, 王英剑 等. 粒子束辅助技术获得高损伤阈值的增透膜[J]. *中国激光*, 2006, **33**(5):683~686
- 11 C. J. Stolz, F. Y. Génin, N. Molau *et al.*. Effect of SiO<sub>2</sub> overcoat thickness on laser damage morphology of HfO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub> Brewster's angle polarizers at 1064 nm [C]. *SPIE*, 1997, **2966**:265~272
- 12 Masud Mansuripur, G. A. Neville Connell, Joseph W. Goodman. Laser induced local heating of multilayers [J]. *Appl. Opt.*, 1982, **21**(6):1106~1114
- 13 H. Bennett, D. K. Burge. Simple expressions for predicting the effect of volume and interface absorption and of scattering in high-reflectance multilayer coatings [J]. *J. Opt. Soc. Am.*, 1980, **70**(3):268~276
- 14 P. A. Temple. Measurement of thin-film optical absorption at the air-film interface within the film and at the film and at the film-substrate interface [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 1979, **34**(10):677~679
- 15 Laser and laser-related equipment-determination of laser-induced damage threshold of optical surfaces [S]. ISO/OIS 11254-1, 1995