

文章编号: 0258-7025(2009)06-1545-05

电子束蒸发制备 $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ 高反膜的 1064 nm 激光预处理效应

刘晓凤 李大伟 李 笑 赵元安 邵建达

(中国科学院上海光学精密机械研究所, 上海 201800)

摘要 激光预处理是提高薄膜元件抗激光损伤阈值的重要手段。对电子束蒸发 $\text{HfO}_2, \text{SiO}_2$ 块状材料镀制的基频高反膜进行了 1-on-1 和 R-on-1 阈值测试, 比较分析了两种测试情况下出现的典型损伤形貌。实验发现, R-on-1 测试表现出明显的预处理效应, 其所测抗激光损伤阈值是 1-on-1 测试的 3 倍; 1-on-1 测试下的典型损伤形貌是围绕平底小坑的等离子烧蚀损伤, R-on-1 测试下的典型损伤形貌仅是表面等离子体烧蚀损伤; 表面轮廓测试的结果表明两种损伤形貌的烧蚀区域中心都是凸起的。两种典型损伤破坏形貌及其差异的研究说明吸收性缺陷是引起此样品损伤的主要诱因, 预处理对吸收性缺陷的力学稳定作用是此样品抗激光损伤阈值提高的宏观原因。

关键词 薄膜; 吸收性缺陷; 力学稳定; 损伤阈值测试; 激光预处理; 多层高反膜

中图分类号 O484.4 **文献标识码** A **doi**: 10.3788/CJL20093606.1545

1064 nm Laser Conditioning Effect of $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ High Reflectors Deposited by E-Beam

Liu Xiaofeng Li Dawei Li Xiao Zhao Yuan'an Shao Jianda

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

Abstract Laser conditioning is one of the important methods to improve the laser damage threshold of film optics. First, both 1-on-1 and R-on-1 test are done on the fundamental frequency high reflectors, which are evaporated from hafnia and silica by e-beam. Next, the typical damage morphologies occurred in the two measurements are compared and analyzed. Obvious laser conditioning effect is observed in the R-on-1 test, the damage threshold of which is three times larger than that of 1-on-1 test. The typical morphology in 1-on-1 test is plasma scalding with a central flat-bottom pit and the typical morphology in R-on-1 test is plasma scalding only. The results of surface profiler measurement show that all the centers of the plasma scalds that occurred in the above two typical damage morphologies are raised. The two different damage morphologies imply that absorbing defect is the inducement of the damage and the macroscopical reason for the improved laser damage threshold in R-on-1 test, is presented as the mechanic stability of absorbing defects.

Key words thin films; absorbing defect; mechanic stability; damage threshold measurement; laser conditioning; multilayer high reflectors

1 引 言

激光器输出能量的不断提升对光学薄膜元件的抗激光损伤能力提出了越来越高的要求。提升光学薄膜元件抗激光损伤能力有很多途径, 在现有的经费水平和工艺发展现状上, 很多途径都受到了限制, 而激光预处理由于其自身的优点而引起人们越来越

多的注意。虽然人们对光学薄膜激光预处理及其机理进行了大量的研究^[1~6], 提出了激光清洗^[1]、激光加热退火^[2]、电子杂质缺陷抑制^[3]、缺陷消除^[4]等理论机理, 但由于激光与薄膜作用的复杂性以及有效探测手段的缺乏, 到目前为止, 没有一种理论能够全面清楚地解释全部的现象, 对激光预处理还需要做

收稿日期: 2008-09-18; 收到修改稿日期: 2008-12-24

基金项目: 国家 863 计划(2006AA804908)资助项目。

作者简介: 刘晓凤(1982—), 女, 博士研究生, 主要从事强激光薄膜损伤的研究。E-mail: xiaofeng198225@163.com

导师简介: 邵建达(1964—), 男, 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

进一步的理论探索和实验研究。

为了研究激光预处理机理,寻求提升光学薄膜元件抗激光损伤性能的最佳途径,本文对使用最为普遍的电子束蒸发制备的 $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ 基高频高反膜进行了 1-on-1 与 R-on-1 激光损伤阈值测试,并采用扫描电子显微镜(SEM)、轮廓仪等多种手段对测试中出现的两种损伤形貌进行了分析与比较,以此来推断可能的损伤机制以及抗激光损伤阈值提高的原因。

2 样品准备及其实验

2.1 样品准备

电子束沉积技术一直是激光约束聚变系统中薄膜元件沉积的主要技术。本实验样品是在 ZZSX-800F 真空镀膜机上采用电子束蒸发 HfO_2 、 SiO_2 块状材料的方法镀制而成,样品加有一定厚度的保护膜,其基片采用 $\phi 50$ mm 的 K9 玻璃。Lambda900 分光光度计测得实验样品在 1064 nm 处反射率大于 99.5%。

2.2 实验装置及参数

按照 ISO-11254^[7] 激光损伤阈值测试标准建立的测试系统如图 1 所示,Nd:YAG 激光器产生的激光,经反射镜调整后,由正透镜聚焦于被测样品表面。到达样品表面的激光能量大小由半波片和偏振片组成的衰减器来调节。分光劈板分出的两束低能量激光,一束由 EPM2000 的能量探头收集,用于对激光脉冲能量进行实时监控,一束由 Laser Cam HR 的 CMOS 探头收集,用于测量激光光斑的空间分布和光斑面积。测试所用激光参数为:波长 1064 nm,脉宽 9 ns,靶面光斑等效面积 0.9 mm^2 ,偏振态 S。损伤判断采用图像差分法和等离子体闪光法,只要其中一种诊断方法判定为损伤即认为该点破坏。

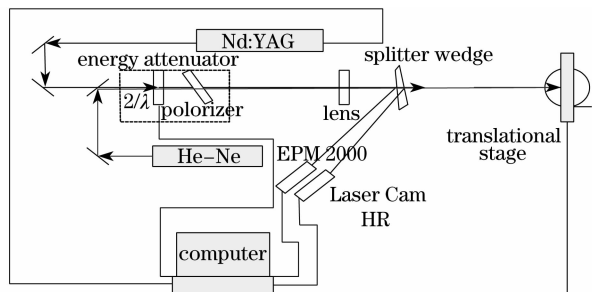


图 1 激光损伤阈值测试系统

Fig. 1 Facility of laser damage threshold test

2.3 实验过程

实验过程分为两步:首先对样品进行 1-on-1 测

试,然后取同批次制备的样品进行 R-on-1 测试。1-on-1 测试又称为单脉冲测试,每个测试点只接受一个激光脉冲辐照,不管出现损伤与否,样品移至下一个未辐照点。R-on-1 测试是对每个测试点进行能量密度以斜坡式渐增的多次辐照。在 R-on-1 测试过程中对每个测试点进行多个脉冲辐照,脉冲能量拾升如图 2 所示,每次拾升约 4 J/cm^2 ,该过程中出现破坏即停止能量的拾升进行下一点的辐照。

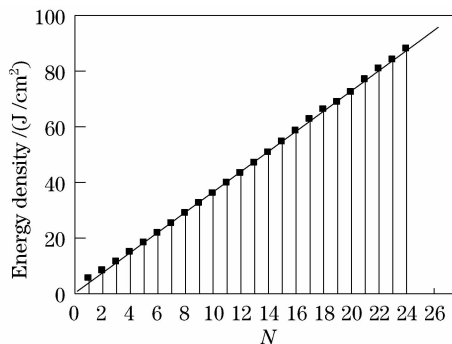


图 2 R-on-1 测试过程中的能量台阶分布

Fig. 2 Histogram of the energy steps for R-on-1

2.4 实验结果

实验所得数据如图 3 所示,利用直线拟合外推法所得的 1-on-1 测试激光损伤阈值为 9.6 J/cm^2 ,而在带有预处理效应的 R-on-1 测试中零几率损伤对应的能量台阶为 28.8 J/cm^2 ,是 1-on-1 测试的所得激光损伤阈值的 3 倍。

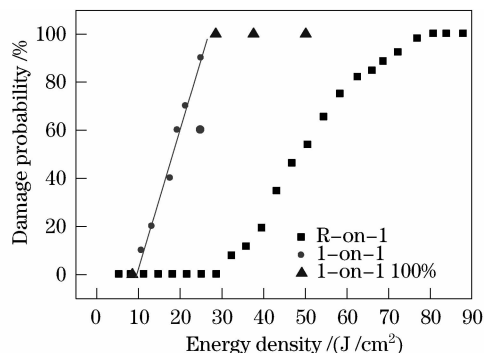


图 3 1-on-1 和 R-on-1 激光损伤阈值测试结果

Fig. 3 Results of laser damage threshold for 1-on-1 and R-on-1

3 典型损伤形貌分析

3.1 1-on-1 测试损伤形貌

激光辐照后,在偏光显微镜下观察 1-on-1 测试中出现的损伤区域,发现损伤与膜层缺陷密切相关,其典型的破坏形貌如图 4 所示。低能量密度下每个破坏区域有一个微米量级的小坑(如 Fig. 4(a)所

示),破坏区域以小坑为中心向外扩展,伴随着膜面颜色的变化,损伤边缘的颜色明显有别于中心颜色,这种膜面颜色的变化通常是高温等离子体与表面膜层相互作用的结果。高能密度激光辐照下,单个光斑范围内经常存在多个该类破斑(如 Fig. 4(b)所示),而且随机分布,并不局限于光斑中心能量密度较高的区域,由此可见缺陷是该类损伤产生的关键诱因。

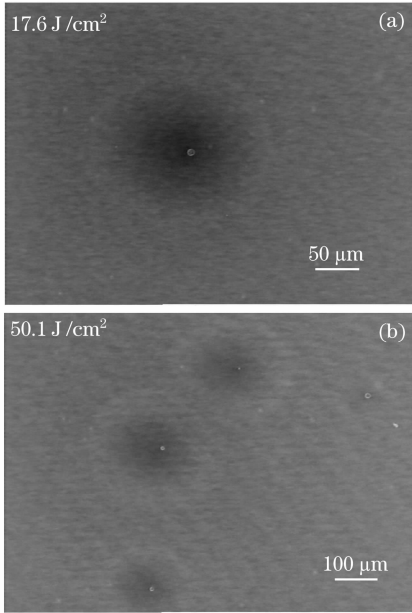


图 4 1-on-1 测试中典型的损伤形貌

Fig. 4 Typical laser damage morphologies of 1-on-1 test

从图 5(a)的扫描电镜图可以看到显微镜下颜色变化的区域存在波纹状损伤,这是激光辐照过程产生的热应力波在熔融的膜层表面传播,并最终固化在膜层表面形成的。实验发现辐照能量越大,这种波纹越明显。高倍 SEM 下观察到中心小坑的清晰形貌如图 5(b),小坑的底部是平的。先前的研究^[8]表明在电子束蒸发 HfO_2 材料镀制的薄膜中,平底坑是常见的损伤形貌,薄膜体内随机分布的吸收性缺陷是导致其出现的源头^[9]。

图 6 的轮廓测量结果表明图 5 的小坑深约 600 nm,小坑附近颜色变化的区域最高凸起约 350 nm,损伤边缘的凹陷最大约 150 nm,这种破坏形貌在以前的文献中没有报道过^[10~13]。SEM 图和轮廓信息比较证明波纹的起伏仅是几个纳米量级的,并不是引起上述凹凸的主要原因。

3.2 R-on-1 测试损伤形貌

偏光显微镜下观察,发现 R-on-1 测试中典型的损伤是与 1-on-1 测试中类似的等离子烧蚀损伤,但不同的是其中心没有出现小坑。图 7 的扫描电镜图

也没有看到小坑,破坏区域虽然有起伏,但是膜面是

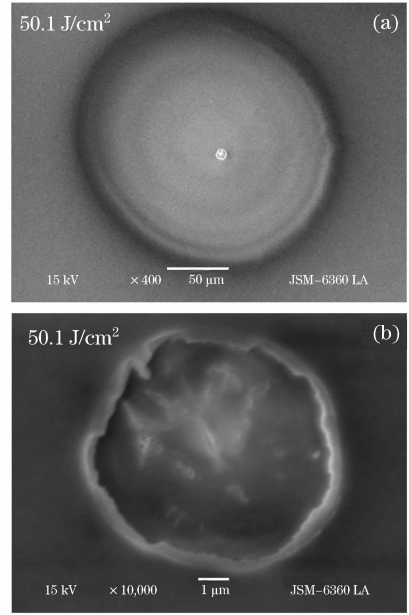


图 5 1-on-1 测试典型损伤的扫描电镜图。(a) 整个损伤区域形貌;(b)中心小坑的形貌

Fig. 5 SEM images of the typical damage after 1-on-1 test (a) morphology of the whole damage area; (b) morphology of the central pit

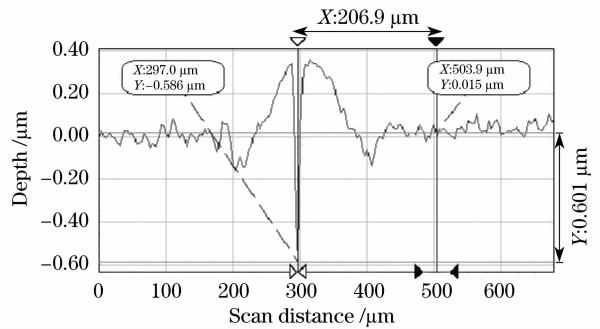


图 6 图 5 损伤区域的轮廓测量信息

Fig. 6 Profiler information of the damage region in Fig. 5 连续的,犹如一个小丘,破坏区域仍然存在波纹状损伤。图 8 轮廓测量的信息证明破坏区域的中心是完全凸起的,边缘是凹陷的。M. C. Staggs 等^[14]曾用原子力显微镜(AFM)观测到薄膜表面存在一些直径约 200 nm,高度约 10 nm 的小丘,发现能量逐步拾升辐照后小丘的表面变得光滑,尺寸增大为原来的 5~10 倍,围绕小丘出现波纹或者由微小空洞形成的同心圆,但并没有对其现象以及原因做出详细的解释。

3.3 实验结果讨论

SEM 下观察破坏区域,发现破坏中心的小坑大部分都是平底坑,这表明吸收性缺陷是诱导此样品破坏的主要原因。实际制备薄膜的过程中,由于膜

料中的杂质或者是化学计量比失衡^[15]等原因都可能在膜体内形成一些亚微米量级的吸收性缺陷。一方面该类缺陷自身的吸收系数较大,另一方面缺陷与膜体物理性质的差异会导致其周围电场衍射、干涉^[16]形成强电场区,所以缺陷及其附近的位置在激光辐照的过程中会吸收大量的热,产生较高的温升,首先出现破坏。表面轮廓仪测得的平底坑深约 600 nm,此位置恰好是如图 9 所示的第 2 层材料(高折射率材料 HfO₂)和第 3 层材料(低折射率材料 SiO₂)的交界处。这与 J. Dijon 等^[9]研究的吸收性缺陷如果位于靠近膜层表面或者是高低折射率材料的交界处等一些电场较高的位置,就会更容易响应激光,引起破坏的实验结果相吻合。

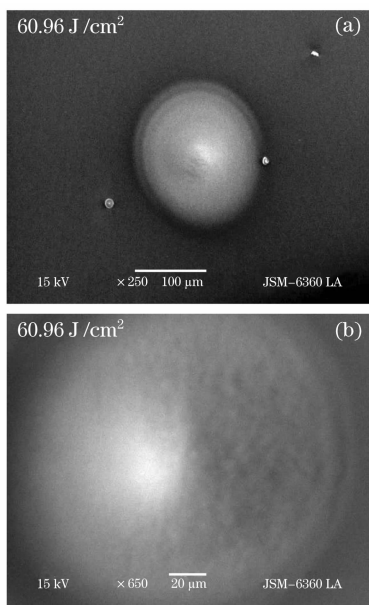


图 7 R-on-1 测试中典型破坏的 SEM 图

Fig. 7 SEM images of the typical damage after R-on-1 test

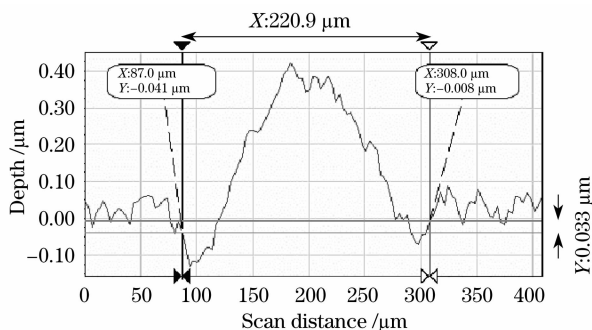


图 8 图 7 损伤区域的轮廓测量信息

Fig. 8 Profile information of the damage area in Fig. 7

烧蚀区域的凸起是缺陷受热对周围膜层力学作用^[17]的宏观体现。在激光辐照过程中,界面处的缺陷迅速升温导致膜体内缺陷首先气化,甚至高度离

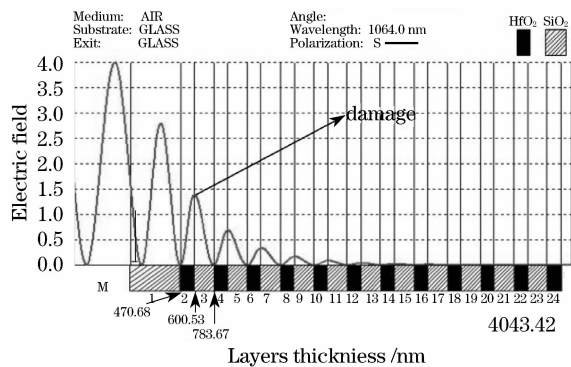


图 9 破坏的初始位置对应的膜层厚度以及电场强度
Fig. 9 Layer thickness and electric field corresponding to the initial location of damage

化,产生等离子体,缺陷的气化以及等离子体的向外膨胀,都对缺陷顶部的膜层产生向上的压力,同时热量向周围传播引起附近膜层升温,令周围膜层软化,减轻了其对缺陷的束缚。占主导地位的向上压力导致膜层发生形变,出现了宏观上所看到的凸起。如果吸收的热量足够多,产生的向上压力足以突破表面膜层的限制时,气化的缺陷以及紧靠缺陷位置气化的膜料就会向外喷溅^[18],出现类似 1-on-1 测试中所见到的损伤形貌。但在 R-on-1 测试过程中,辐照脉冲能量由低到高不但引起膜层与缺陷物理特性的变化,有效地抑制了缺陷周围区域强电场的形成,减少了膜层表面^[19]以及缺陷的吸收^[15],还促进了缺陷与周围膜料相互熔合成较大的结构,从力学上稳定了缺陷。这些改变使得缺陷气化产生的压力和等离子体膨胀的冲击力不容易超过膜层的结合力,无法冲破表面的膜层,激光作用过后由于外层介质的塑性变形和气化物质的快速冷凝,就形成了小丘。加有一定厚度的 SiO₂ 保护膜的高反膜不容易引起薄层的剥落^[20],损伤外围的凹陷应该不是薄层出现剥落的边界,可能是由于膜层凸起的过程中带动熔融的膜料向中心运动的结果。

相对于 1-on-1 测试中的损伤特性,R-on-1 测试中即使较高能量下的损伤仍然没有出现中心的小坑破坏,从宏观上讲,这表明预处理改善了吸收性缺陷与周围膜体应力,从力学上稳定或者是改变了缺陷。能量的逐步抬升,使吸收性缺陷和周围膜体相互融合,彼此的结合力增强,所以缺陷需要吸收更多的能量,才能使气化和等离子体膨胀产生的压力突破表面膜层的束缚。

4 结 论

激光预处理可以提升电子束蒸发制备 HfO₂/

SiO_2 高反膜的抗激光损伤阈值。1-on-1 测试后损伤中心小坑的形貌并没有观测到常见的结瘤喷溅的形貌,测试的小坑大部分都是平底坑,可以将引起该类破坏的缺陷归为吸收性缺陷。1-on-1 损伤阈值测试中产生的损伤形貌表现为围绕小坑的等离子体烧蚀区域,烧蚀的区域存在波纹状损伤,轮廓仪测得靠近小坑的烧蚀区域是凸起的,外围的烧蚀区域是凹陷的,而激光预处理之后产生的损伤形貌并没有中心的小坑,这从宏观上证明了预处理对吸收性缺陷的力学稳定作用。

参 考 文 献

- 1 S. D. Allen, J. O. Porteus, W. N. Faith. Infrared laser-induced desorption of H_2O and hydrocarbons from optical surfaces [J]. *App. Phys. Lett.*, 1982, **41**(5):416~418
- 2 A. Stewart, A. H. Guenther, F. E. Domann. The properties of laser annealed dielectric films [C]. *SPIE*, 1988, **756**:369~387
- 3 C. R. Wolfe, M. R. Kozlowski, J. H. Campbell *et al.*. Laser conditioning of optical thin films [C]. *SPIE*, 1989, **1438**:360~375
- 4 A. Fournier, C. Cordillot, D. Ausserre *et al.*. Laser conditioning of optical coatings; some issues in the characterization by atomic force microscopy [C]. *SPIE*, 1994, **2114**:355~365
- 5 Hu Haiyang, Fan Ruiying, Tang Zhaosheng *et al.*. Study of the technology of small spot scanning for laser conditioning of optical coatings at 532 nm [J]. *Chinese J. Lasers*, 1999, **A26**(8):763~767
胡海洋, 范瑞瑛, 汤兆胜等. 0.532 μm 激光小光斑扫描预处理光学薄膜的研究[J]. *中国激光*, 1999, **A26**(8):763~767
- 6 Zhao Qiang, Qiu Hong, Liu Ye *et al.*. Study of laser conditioning of optical coatings with small laser spot scanning [J]. *Acta Optica Sinica*, 1999, **19**(8):1105~1109
赵强, 裘弘, 刘晔等. 光学薄膜的小光斑扫描激光预处理研究[J]. *光学学报*, 1999, **19**(8):1105~1109
- 7 Laser and laser related equipment determination of laser induced damage threshold of optical surface [S]. ISO 11254-1, 1995
- 8 S. C. Weakley, C. J. Stolz, L. Z. Wu *et al.*. Role of starting material composition in interfacial damage morphology of hafnia silica multilayer coatings [C]. *SPIE*, 1999, **3578**:137~143
- 9 J. Dijon, G. Ravel, B. André. Thermomechanical model of mirror laser damage at 1.06 μm . Part 2: flat bottom pits formation [C]. *SPIE*, 1998, **3578**:398~407
- 10 A. A. Tesar, M. Balooch, K. W. Shotts *et al.*. Morphology and laser damage studies by atomic force microscopy of e-beam evaporation deposited AR and HR coatings [C]. *SPIE*, 1991, **1441**:228~236
- 11 F. Y. Génin, C. J. Stolz. Morphologies of laser-induced damage in hafnia-silica multilayer mirror and polarizer coatings [C]. *SPIE*, 1996, **2870**:439~448
- 12 M. Poulingue, J. Dijon, P. Garrec *et al.*. 1.06 μm laser irradiation on high reflection coatings inside a scanning electron microscope [C]. *SPIE*, 1999, **3578**:188~195
- 13 M. R. Kozlowski, M. Staggs, M. Balooch *et al.*. The surface morphology of as-deposited and laser-damaged dielectric mirror coatings studied in situ by atomic force microscopy [C]. *SPIE*, 1992, **1556**:68~78
- 14 M. C. Staggs, M. Balooch, M. R. Kozlowski *et al.*. In situ atomic force microscopy of laser-conditioned and laser-damaged $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ dielectric mirror coatings [C]. *SPIE*, 1992, **1624**:375~385
- 15 Z. L. Wu, Z. X. Fan, D. Schaer. In-situ investigation of laser conditioning of optical coatings [C]. *SPIE*, 1992, **1624**:362~374
- 16 N. Bloembergen. Role of cracks pores, absorbing inclusions on laser induced damage threshold at surfaces of transparent dielectrics [J]. *Appl. Opt.*, 1973, **12**(4):661~664
- 17 Hu Haiyang. Study of laser induced damage of optical thin film coatings [D]. Shanghai: Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, 2004
胡海洋. 光学薄膜激光热力耦合损伤研究[D]. 上海:中国科学院上海光学精密机械研究所, 2004
- 18 Wei Chaoyang, He Hongbo, Shao Jianda *et al.*. Thermodynamics damage of optical coatings induced by absorbing inclusion thermal irradiation [J]. *Acta Optica Sinica*, 2008, **28**(4):809~812
魏朝阳, 贺洪波, 邵建达等. 吸收杂质热辐射诱导光学薄膜破坏的热力机制[J]. *光学学报*, 2008, **28**(4):809~812
- 19 A. B. Papandrew, C. J. Stolz, Z. L. Wu *et al.*. Laser conditioning characterization and damage threshold prediction of hafnia/silica multilayer mirrors by photothermal microscopy [C]. *SPIE*, 2001, **4347**:53~61
- 20 C. J. Stolz, F. Y. Génin, T. A. Reitter *et al.*. Effect of SiO_2 overcoat thickness on laser damage morphology of $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ Brewster's angle polarizers at 1064 nm [C]. *SPIE*, 1997, **2988**:255~272