

# 离子束辅助及退火后处理对氦-镉激光器反射镜输出功率的影响

崔潇 陶春先 洪瑞金 张大伟

(上海理工大学光电信息与计算机工程学院, 上海市现代光学系统重点实验室, 上海 200093)

**摘要** 为了制备高输出功率的 441.6 nm 氦-镉激光反射镜,研究了氧离子束辅助工艺及退火后处理对  $ZrO_2$  单层膜及 441.6 nm 氦-镉激光器  $ZrO_2/SiO_2$  反射膜的影响。利用紫外-可见分光光度计测试了薄膜样品的反射光谱及吸收光谱;通过原子力显微镜测试了薄膜表面的粗糙度。测量及分析结果表明:氧离子束辅助沉积能够提高激光反射镜的反射率并形成致密的薄膜结构,但是由于引入的杂质缺陷提高了薄膜的吸收率从而使得激光的输出功率变小;退火处理消除了吸附于薄膜表面的杂质气体、水分,输出功率相比于退火前有了大幅度的提高。

**关键词** 薄膜; 激光反射镜; 输出功率; 离子束辅助; 退火

**中图分类号** O433.4 **文献标识码** A **doi**: 10.3788/CJL201340.1107001

## Influence of Ion-Beam Assistance and Annealing on Output Power of He-Cd Laser Reflector

Cui Xiao Tao Chunxian Hong Ruijin Zhang Dawei

(Shanghai Key Laboratory of Modern Optical System, School of Optical-Electrical and Computer Engineering, University of Shanghai for Science and Technology, Shanghai 200093, China)

**Abstract** Aiming to manufacture high output power of high reflective mirror, the influence of  $O_2$  ion-beam assistance and annealing treatment to  $ZrO_2$  films and  $ZrO_2/SiO_2$  high reflection films used for 441.6 nm He-Cd laser is studied. The effects of different deposition processes and post-treatment on the optical and roughness of the samples are characterized by ultraviolet-visible spectrophotometer and atomic force microscopy, respectively. The results show that  $O_2$  ion-beam assisted deposition increases the reflectivity and form a dense film structure, but the output power of laser is smaller due to the introduction of impurity defects to improve the absorption rate of film; the output power of annealed films has been improved significantly than films without annealing while impurity gas and water on film surface are eliminated.

**Key words** thin films; laser reflector; output power; ion-beam assistance; annealing

**OCIS codes** 310.6860; 310.3840; 310.6870

## 1 引言

氦-镉激光器具有丰富的激光波长,光谱覆盖区域广,从紫外区延伸到红外区;它既可以连续工作,又可以以脉冲方式工作,且性价比高,可用于物理

学、生物物理学、生物化学、医学、工业加工材料等研究领域<sup>[1]</sup>。输出功率则是激光器性能的关键指标之一<sup>[2-4]</sup>,通常采用的谐振腔由全反射镜和输出镜组成。反射镜的性能取决于镀膜材料、膜系结构以及

收稿日期: 2013-05-28; 收到修改稿日期: 2013-07-01

基金项目: 国家自然科学基金(61176085, 11105149)、国家科技支撑计划(2011BAF02804)、国家重大科学仪器设备开发专项(2011YQ15004003)、上海市教委曙光项目(11SG44)、上海市超精密光学加工与检测服务平台建设(11DZ2290301)、上海市重点学科建设项目(S30502)

作者简介: 崔潇(1989—),男,硕士研究生,主要从事光学薄膜方面的研究。E-mail: cuix1989@hotmail.com

导师简介: 陶春先(1981—),男,博士,讲师,主要从事功能性光学薄膜及其应用等方面的研究。

E-mail: tao@usst.edu.cn(通信联系人)

镀膜工艺等。常见的薄膜制备手段包括电子束热蒸发<sup>[5-7]</sup>、离子束反应溅射<sup>[8]</sup>、射频离子源辅助<sup>[9]</sup>等方式。不同的薄膜制备方式及后处理手段是影响薄膜性能的重要因素。

在高功率激光薄膜材料中,  $ZrO_2$ 、 $HfO_2$  具有很强的抗激光损伤阈值和非常宽的光谱透明范围<sup>[10]</sup>, 并且具有较高的折射率值以及很好的热稳定性、化学稳定性<sup>[11-12]</sup>, 在高功率激光反射镜薄膜制备中具有较高的研究和应用价值。

本文采用较高性价比的  $ZrO_2/SiO_2$  作为制备高反射膜的材料, 研究了氧离子束辅助电子束蒸发制备  $ZrO_2/SiO_2$  高反射膜及退火后处理对制备低损耗、高输出功率的反射薄膜的影响。

## 2 实 验

### 2.1 样品制备

实验制备氮-镉激光器反射镜的高反射膜采用 Sub|(HL)<sup>m</sup>|Air 膜堆结构, 高折射率材料为  $ZrO_2$ , 低折射率材料为  $SiO_2$ 。基底玻璃为抛光的

K9 玻璃, 先用乙醚与无水乙醇混合溶液擦拭去掉污染物, 然后用去离子水进行超声波清洗、氮气吹干以确保表面的洁净度。采用电子束蒸发镀膜 (Optoron, OTFC-900) 时, 分别考虑采用和不采用氧离子束辅助 (IBAD) 下的镀膜工艺。所用的离子源为光驰 OIS-Four 射频考夫曼离子源, 如图 1 所示。具体镀膜工艺参数及离子源能量参数如表 1、表 2 所示, 其中 sccm 为标准状况下 1 mL/min。

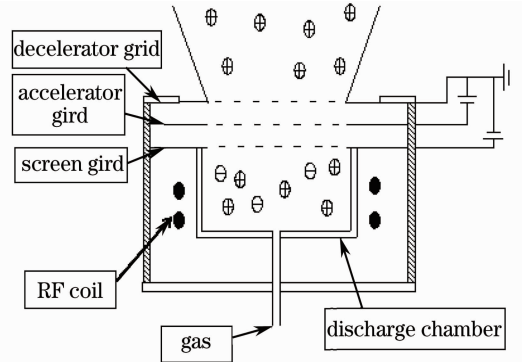


图 1 离子源示意图

Fig. 1 Sketch of ion source

表 1 镀膜工艺参数

Table 1 Coating process parameters

	Vacuum /Pa	Temperature /°C	Ion cleaning time /s	Rate ( $ZrO_2/SiO_2$ ) / (mm/s)	$O_2$ pressure /Pa
No IBAD	$1 \times 10^{-3}$	200	—	0.3/1	$1.5 \times 10^{-2}$
IBAD	$1 \times 10^{-3}$	200	300	0.3/1	$1.5 \times 10^{-2}$

表 2 离子源能量参数

Table 2 Energy parameters of ion source

Layer	Beam voltage /V	Beam currents /mA	Accelerated voltage /V	Ion gas ( $O_2$ )	Neutralizer gas ( $Ar$ ) (sccm)
$ZrO_2$	950	500	600	25	5
$SiO_2$	900	450	600	20	5

### 2.2 薄膜性能表征

为了考察制备的高反射镜的光学及热力学特性, 对  $ZrO_2$  薄膜及  $ZrO_2/SiO_2$  高反射镜的材料特性及光学特性进行了测试。基于紫外可见分光光度计 (Lambda1050, Perkin Elmer) 测量薄膜样品的透射光谱和反射光谱; 利用原子力显微镜 (XE-100, Park) 测量薄膜表面微观结构的粗糙度; 为分析  $ZrO_2$  的成膜特性和光学常数, 基于表面热透镜技术测量了  $ZrO_2$  单层膜的弱吸收。

和不采用离子束辅助制备的  $ZrO_2$  单层膜的透射光谱曲线如图 2 所示。拟合计算得到的两种镀膜工艺下的两组  $ZrO_2$  单层膜样品的折射率如图 3 所示。

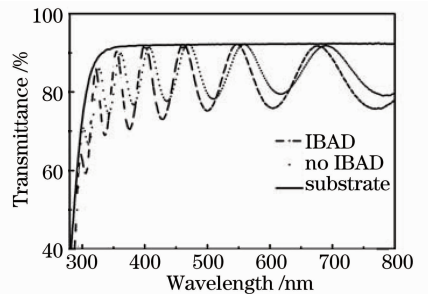


图 2  $ZrO_2$  透射光谱

Fig. 2 Transmittance of  $ZrO_2$  samples

## 3 实验结果与讨论

### 3.1 $ZrO_2$ 材料和光学特性

基于 K9 玻璃透射光谱和  $ZrO_2$  单层膜的透射谱线, 采用极值法<sup>[13]</sup> 拟合材料的光学常数。分别采用

从图 3 可以看出采用离子束辅助后  $ZrO_2$  薄膜在 350~400 nm 波段的折射率是 2.05~2.25, 而不

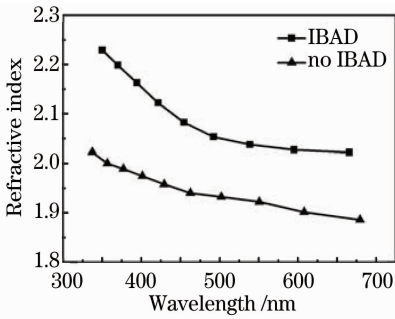


图 3 ZrO<sub>2</sub> 单层膜折射率

Fig. 3 Refractive index of ZrO<sub>2</sub> single layer film

采用离子束辅助的 ZrO<sub>2</sub> 薄膜在相同波段的折射率仅为 2.0~1.88。表明通过有氧离子束辅助沉积能

够明显提高所制备的 ZrO<sub>2</sub> 薄膜样品的折射率。这是因为在离子束辅助沉积下,沉积膜料的原子和分子以更大的动能附着在基板上,从而具有较高的堆积密度使得膜层致密,提高了薄膜的折射率。

图 4 为有无离子源辅助 ZrO<sub>2</sub> 薄膜的原子力测试的表面粗糙度图片。如图所示,因为沉积原子与氧离子束碰撞后携带更多的能量,在基板表面拥有较大的表面迁移率,这有利于薄膜结构的生长,从而形成致密的薄膜结构。经过氧离子束辅助沉积的薄膜表面均方根偏差值为 0.364 nm,相比于未经氧离子束辅助沉积的薄膜表面均方根偏差值(0.593 nm)要明显减小,此结论与上述薄膜折射率的提高论点相吻合。

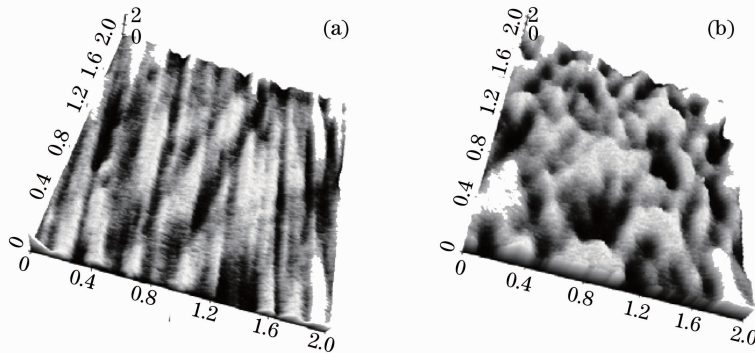


图 4 ZrO<sub>2</sub> 表面粗糙度(单位:微米)。(a) 离子束辅助;(b) 无离子束辅助

Fig. 4 Surface roughness of ZrO<sub>2</sub> (unit:  $\mu\text{m}$ ). (a) IBAD; (b) no IBAD

基于“表面热透镜”技术测量 ZrO<sub>2</sub> 薄膜的吸收,采用线扫描方式在样品中心区域间隔 20  $\mu\text{m}$  水平扫描 5 个点进行测量,结果如图 5 所示。采用离子束辅助沉积的薄膜吸收值在  $(46\sim62)\times 10^{-6}$ ,其中第 3 测量点吸收值偏高形成奇异点,从而可知引入的吸收性杂质的尺寸约为 40  $\mu\text{m}$ ;而未采用离子束辅助的薄膜吸收值在  $(26\sim32)\times 10^{-6}$ ,曲线平滑说明吸收较为均匀。对比两曲线表明采用离子束辅

助在获取高折射率的同时并不能降低材料的吸收值。而薄膜样品的吸收主要来自材料的本征吸收及对杂质的吸收,因为两种材料相同,两组样品的吸收差异则主要来自于杂质吸收。从图 5 中分析出的杂质尺寸可以得出采用氧离子束辅助沉积的薄膜吸收较高的原因是离子源发射的离子束轰击栅网上的吸附物对生长的薄膜造成污染;而离子束轰击也会导致夹具上的吸附物质产生溅射,同样会形成污染,这些引入的吸收性杂质则会成为严重的吸收点。

### 3.2 ZrO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub> 高反射膜的反射率及吸收

ZrO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub> 高反射膜分别采用氧离子束辅助沉积及不采用离子束辅助进行制备并对样品进行退火后处理加以比较。薄膜的光学损耗由公式  $A=1-T-R$  确定。实验表明,在相同透射率的情况下,准确测试并降低薄膜材料的吸收值对提高激光器输出功率至关重要。

如图 6 和图 7 所示,经过氧离子束辅助沉积的样品在 441.6 nm 处的反射率为 99.71%,未经过氧离子束辅助的样品的反射率为 99.62%,两组样品的反射率十分相近,而测试的吸收率则相距甚远,未采用氧

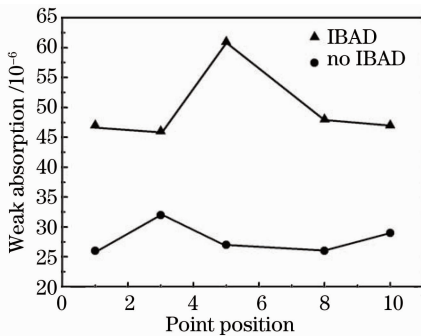


图 5 有无离子束辅助对样品弱吸收的影响

Fig. 5 Influence of weak absorption of samples with IBAD and without IBAD

离子束辅助沉积的高反射薄膜吸收率在0.35%左右,而采用氧离子束辅助沉积的高反射薄膜吸收率在0.75%,两者吸收率差值为0.4%。光学损耗包括了散射和吸收,散射有体内散射和表面散射两种,体内散射与薄膜内部生长结构有关,而表面散射则由表面微观粗糙度决定。对于氧离子束辅助沉积的薄膜因生长结构较为致密,抑制了柱状结构,同样其表面粗糙度也得到了降低。体内散射和表面散射占据光学损耗整体比例很小,故散射损耗十分微弱,经离子束辅助样品的结构具有良好的效果,但是图7表明其吸收率明显偏高,说明辅助沉积引入了高吸收性杂质,符合图5的分析结果。

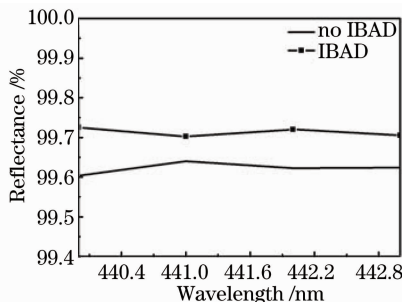


图6 441.6 nm高反射膜的反射率

Fig. 6 Reflectance of 441.6 nm high reflectance coatings

### 3.3 退火后处理的影响

考虑到离子束辅助对吸收的不利影响,对反射

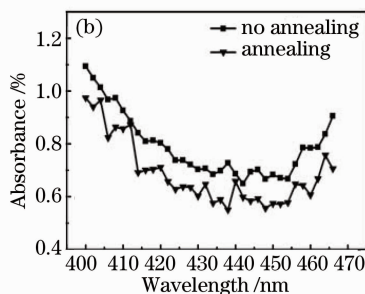
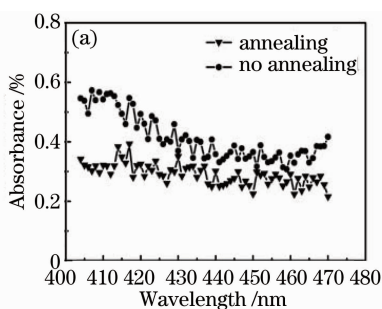


图8 退火处理对吸收率的影响。(a) 无离子束辅助;(b) 离子束辅助

Fig. 8 Influence of annealing on absorbance of high reflectance coatings. (a) no IBAD; (b) IBAD

### 3.4 激光输出功率

采用上述不同镀膜工艺及后处理的  $ZrO_2/SiO_2$  高反射膜样品在 He-Cd 激光器上的输出功率如图9所示。从退火角度发现,经退火处理的样品输出功率高于未退火的样品输出功率,这说明吸附在薄膜上的杂质气体、水分是影响输出功率的因素之一,干燥的薄膜结构有助于输出功率的提高;从离子束辅助角度发现,离子辅助样品的输出功率小于未用离子辅助样品的输出功率,这说明辅助过程中引入的

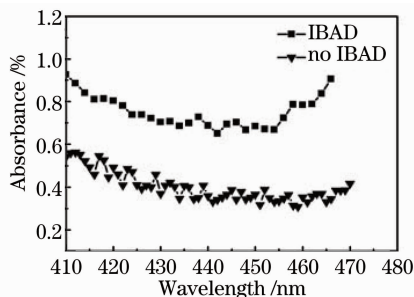


图7 441.6 nm高反射膜的吸收率

Fig. 7 Absorbance of 441.6 nm high reflectance coatings 镜进行退火后处理。退火工艺为在空气中 200 °C 烘烤,退火 2 h 自然冷却。根据 3.2 节所述的吸收计算方法,退火前后的样品吸收光谱如图 8 所示。

从图8中可以看出,无离子束辅助样品退火后的吸收率平均值为0.3%,而退火前的吸收率平均值为0.4%,数据表明通过退火将样品的吸收率降低了0.1%;离子束辅助样品退火后的吸收率平均值为0.63%,退火前的吸收率平均值为0.75%,退火使吸收降低了0.1%。这是因为在低温退火下吸附在薄膜上的水分及杂质气体被去除,从而降低了薄膜的吸收率。数据说明退火能够降低薄膜的吸收,但是经离子束辅助的样品吸收明显大于未经辅助样品的吸收,这表明退火可以消除杂质气体、水分,但是杂质的引入仍然会使吸收增大,故杂质污染起主导作用。

杂质污染也是影响输出功率的因素,杂质的引入增大了吸收,导致输出功率的下降,不利于输出功率的提高。从综合情况看,辅助与未辅助的退火样品输出功率相差很大,说明杂质污染是影响输出功率的主要因素,占据主导作用。

## 4 结 论

通过不同沉积工艺及后处理制备的 He-Cd 激光反射镜输出功率的研究,发现如下特性:利用氧离

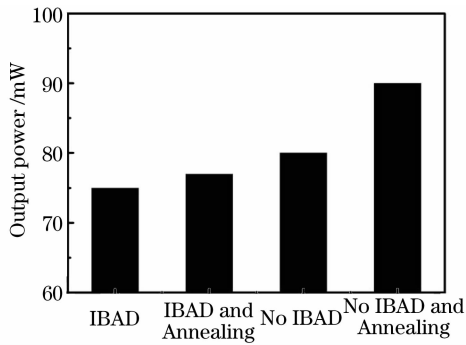


图9 高反射膜样品的输出功率

Fig. 9 Output power of high reflectance coatings

子束辅助沉积的高反射薄膜具有致密的薄膜结构，而且粗糙度有了明显的减小，但是其反射率与未经过氧离子束辅助沉积的薄膜相比差别微乎其微；氧离子束辅助沉积反而会给薄膜带来更多的杂质从而增大吸收率，降低了反射镜的输出功率，所以氧离子束辅助沉积不利于高激光反射镜输出功率的获取；而低温退火会有效降低薄膜的吸收，从而得到最大的反射镜输出功率。

## 参 考 文 献

- Lou Qihong, Cong Zheng, Luo Shan. The development status of gas laser[J]. Laser & Optoelectronics Progress, 1996, 33(3): 5-7.  
楼祺洪, 从 征, 罗 山. 气体激光器的发展近况[J]. 激光与光电子学进展, 1996, 33(3): 5-7.
- Fan Zhengxiu, Hu Haiyang, Fan Ruiying, *et al.*. Study and preparation of the high power laser coatings[J]. High Power Laser and Particle Beams, 1999, 11(2): 195-200.  
范正修, 胡海洋, 范瑞英, 等. 高强度激光薄膜的研制[J]. 强激光与粒子束, 1999, 11(2): 195-200.
- Xiong Feng, Qiao Xueliang, Chen Jianguo, *et al.*. Progress in research on dielectric multilayer coating highly reflective of laser resonator[J]. Laser Journal, 2002, 23(1): 1-4.  
熊 锋, 乔学亮, 陈建国, 等. 激光器谐振腔全介质高反膜的研究进展[J]. 激光杂志, 2002, 23(1): 1-4.
- Li Xiaoguang, Shen Jun. Research progress in laser induced damage on optical films[J]. High Power Laser and Particle Beams, 2010, 22(10): 2237-2243.  
李晓光, 沈 军. 光学薄膜的激光损伤研究进展[J]. 强激光与粒子束, 2010, 22(10): 2237-2243.

- Ren Shuxi, Ma Hongliang, Xu Guoqing, *et al.*. Preparation and character measurement of ZrO<sub>2</sub> films[J]. High Power Laser and Particle Beams, 2005, (2): 222-224.  
任树喜, 马洪良, 徐国庆, 等. 二氧化锆薄膜制备及其特性测量[J]. 强激光与粒子束, 2005, (2): 222-224.
- Wu Shigang. Phase transition model analysis of ZrO<sub>2</sub> thin film deposited by electron-beam evaporation[J]. High Power Laser and Particle Beams, 2008, 20(10): 1724-1726.  
吴师岗. 电子束蒸发法制备 ZrO<sub>2</sub> 薄膜的相变模型分析[J]. 强激光与粒子束, 2008, 20(10): 1724-1726.
- Hou Haihong, Sun Xilian, Shen Yanming, *et al.*. Roughness and light scattering properties of ZrO<sub>2</sub> thin films deposited by electron beam evaporation [J]. Acta Physics Sinica, 2006, 55(6): 3124-3127.  
侯海虹, 孙喜莲, 申雁鸣, 等. 电子束蒸发氧化锆薄膜的粗糙度和光散射特性[J]. 物理学报, 2006, 55(6): 3124-3127.
- Chang Yanhe, Jin Chunshui, Li Chun, *et al.*. Optical properties of oxide thin films for deep ultraviolet[J]. Chinese J Lasers, 2011, 38(12): 1207004.  
常艳贺, 金春水, 李 春, 等. 深紫外氧化物薄膜的光学特性[J]. 中国激光, 2011, 38(12): 1207004.
- Zhang Dawei, He Hongbo, Shao Jianda, *et al.*. Preparation of high power laser films based on ion-beam assisted deposition[J]. Laser Technology, 2008, 32(1): 57-60.  
张大伟, 贺洪波, 邵建达, 等. 离子束辅助沉积制备高功率激光薄膜的研究[J]. 激光技术, 2008, 32(1): 57-60.
- Ma Ping, Chen Songlin, Hu Jianping, *et al.*. Studies on the micro-structure and laser damage threshold of ZrO<sub>2</sub> thin films deposited at different parameters[J]. Acta Optica Sinica, 2005, 25(7): 994-998.  
马 平, 陈松林, 胡建平. 不同沉积参量下 ZrO<sub>2</sub> 薄膜的微结构和激光损伤阈值[J]. 光学学报, 2005, 25(7): 994-998.
- Li Dan, Zhu Ziqiang, Fu Xiongying, *et al.*. Relations between the laser induced damage to optical thin film and the material band-gap [J]. Opto-Electronic Engineering, 1999, 26(4): 58-62.  
李 丹, 朱自强, 付雄鹰, 等. 光学薄膜的激光诱导损伤与材料带隙的关系[J]. 光电工程, 1999, 26(4): 58-62.
- Qi Hongji, Cheng Chuanfu, Yuan Jingmei, *et al.*. Morphology analysis and growth mechanism of zirconium dioxide thin films [J]. Acta Optica Sinica, 2003, 23(8): 974-979.  
齐红基, 程传福, 袁景梅, 等. 沉积工艺对二氧化锆薄膜生长特性影响的研究[J]. 光学学报, 2003, 23(8): 974-979.
- Wang Yanzhi, Zhang Weili, Fan Zhengxiu, *et al.*. Analysis for accurately fitting the refractive index of SiO<sub>2</sub> thin film [J]. Chinese J Lasers, 2008, 35(5): 760-763.  
王胭脂, 张伟丽, 范正修, 等. SiO<sub>2</sub> 薄膜折射率的准确拟合分析[J]. 中国激光, 2008, 35(5): 760-763.

栏目编辑: 韩 峰