

宽带高阈值低色散镜的性能研究

张宇晖^{1,2,3}, 王胭脂^{1,3,4*}, 陈瑞溢^{1,2,3}, 王志皓^{1,2,3}, 赵娇玲^{1,3,4}, 李大伟^{1,3,4}, 赵元安^{1,3,4},
朱美萍^{1,3,4}, 易葵^{1,3,4}, 晋云霞^{1,3,4}, 贺洪波^{1,3,4**}, 冷雨欣^{4,5}, 邵建达^{1,3,4}

¹中国科学院上海光学精密机械研究所薄膜光学实验室, 上海 201800;

²中国科学院大学材料与光电研究中心, 北京 100049;

³中国科学院上海光学精密机械研究所强激光材料重点实验室, 上海 201800;

⁴中国科学院超强激光科学卓越创新中心, 上海 201800;

⁵中国科学院上海光学精密机械研究所强场激光物理国家重点实验室, 上海 201800

摘要 宽带高损伤阈值低色散镜是拍瓦激光系统中不可或缺的光学元件。系统性地研究了金属-介质镜、介质镜和组合介质镜的光学性能、色散特性、抗损伤特性以及损伤机理。介质膜能够提高金属膜的损伤阈值, 银-介质低色散镜的传输效率和损伤阈值比 Au、Al 更高; 在飞秒激光作用下, 金属-介质镜在近损伤阈值处为典型的鼓包形貌, 这是由于金属层吸收了能量而产生了热应力破坏。在组合介质镜中, 保护层 HfO₂ 的存在降低了 Ta₂O₅ 中的电场, 初始损伤层被转移至 HfO₂ 中, 且在不牺牲反射带宽和色散性能的前提下介质膜的损伤阈值得到了提升。

关键词 薄膜; 低色散镜; 反射膜; 损伤阈值; 拍瓦激光系统

中图分类号 O436

文献标志码 A

doi: 10.3788/CJL202047.1103001

Performance of Broadband Low Dispersion Mirrors with High Damage Threshold

Zhang Yuhui^{1,2,3}, Wang Yanzhi^{1,3,4*}, Chen Ruiyi^{1,2,3}, Wang Zhihao^{1,2,3}, Zhao Jiaoling^{1,3,4},
Li Dawei^{1,3,4}, Zhao Yuanan^{1,3,4}, Zhu Meiping^{1,3,4}, Yi Kui^{1,3,4}, Jin Yunxia^{1,3,4},
He Hongbo^{1,3,4**}, Leng Yuxin^{4,5}, Shao Jianda^{1,3,4}

¹Thin Film Optics Laboratory, Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics,
Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China;

²Center of Materials Science and Optoelectronics Engineering, University of Chinese Academy of Sciences,
Beijing 100049, China;

³Key Laboratory of High Power Laser Materials, Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics,
Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China;

⁴CAS Center for Excellence in Ultra-Intense Laser Science, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China;

⁵State Key Laboratory of High Field Laser Physics, Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics,
Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China

Abstract Low dispersion mirrors with broad bandwidth and high damage threshold are indispensable optical components in a petawatt (PW) laser system. Here, we systematically investigate the optical properties, dispersion characteristics, damage resistance characteristics and damage mechanisms of metal-dielectric mirrors, dielectric mirrors and ternary composite mirrors. The dielectric films can improve the damage thresholds of metal films. The transmission efficiency and damage threshold of silver-dielectric mirrors are higher than those of Au and Al. The typical damage morphology of near threshold metal-dielectric mirrors under the action of femtosecond lasers is

收稿日期: 2020-06-15; 修回日期: 2020-06-22; 录用日期: 2020-06-30

基金项目: 国家自然科学基金(11904376)、中意政府间合作项目(2018YFE0118000)、国家自然科学基金委员会与中国工程物理研究院联合基金(U1630140)、中国科学院青年创新促进会基金(2017289)、中国科学院战略性先导科技专项(B类)(XDB1603)

* E-mail: yanzhiwang@siom.ac.cn; ** E-mail: hbhe@siom.ac.cn

bulge, and the reason is that the metal layer absorbs a lot of energy and causes the thermal stress damage. In ternary composite mirrors, the existence of the protective HfO_2 layers makes the electric field in Ta_2O_5 decrease, the initial damage layer is transferred to HfO_2 , and the threshold increases without sacrificing reflection bandwidth and dispersion performance.

Key words thin films; low dispersion mirror; reflection film; damage threshold; PW laser system

OCIS codes 310.6860; 140.3330; 140.7090; 140.3440

1 引 言

拍瓦级超强激光器是目前世界上已知的具有最高光强的激光器,为人类提供了前所未有的极端实验条件^[1-4]。提升激光峰值功率的手段一般有两种,即提高激光输出能量和压缩脉冲宽度。随着激光输出能量的不断提高和输出脉宽的不断变窄,人们对超快激光薄膜的要求也逐渐提高。超强超短激光脉冲的传输取决于低色散反射镜的色散调控、工作带宽及抗激光损伤性能等,低色散反射镜是超强超短激光装置中数量最多且最关键的元器件之一。目前,能实现低色散高反射输出的光学薄膜元件的设计思想主要有两种:金属-介质反射镜^[5-10]和组合介质反射镜^[11-15]。

Csajbók 等^[9]研究了不同材料和不同设计方式对金属-介质低色散镜损伤阈值的影响,结果表明,采用宽带隙材料并结合改进的膜系设计,进一步提升了金属-介质低色散镜的损伤阈值。Schiltz 等^[15]针对 $\text{Ta}_2\text{O}_5/\text{SiO}_2$ 高反膜损伤阈值不高的问题,通过组合膜系使纳秒量级脉宽下的损伤阈值提升了 4 倍。Bellum 等^[12,14]使用 HfO_2 取代了 $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ 高反膜外部的 5 层 TiO_2 ,飞秒量级脉宽下损伤阈值约提升了 80%,且反射带宽的牺牲较小。Angelov 等^[16]通过调节规整膜系内部的电场提升了介质膜高反镜的损伤阈值,但是在电场调控的过程中,并没有考虑膜层厚度改变对色散的影响。罗切斯特大学的研究人员^[10]使用电子束蒸发技术配合离子束辅助沉积的方式,成功制备了 254 mm 口径的宽带低

色散镜,其中金属-介质低色散镜的带宽超过 176 nm,介质膜低色散镜的带宽超过 220 nm (s 光)。

目前,关于低色散镜的研究大部分集中在材料带隙、电场分布、膜系结构以及制备方式等对低色散镜抗损伤性能的影响方面,关于低色散镜的色散特性及更深层的损伤机理的研究鲜有报道。本文针对低色散镜在研究过程中存在的不足,系统性地研究了多种低色散镜(不同材料金属介质膜和组合介质膜)的光谱性能、色散性能、抗损伤性能,并对损伤机理进行了深入研究。最后基于光谱性能及色散性能,归纳总结了不同类型低色散镜的适用范围。

2 低色散镜的设计与制备

2.1 设计

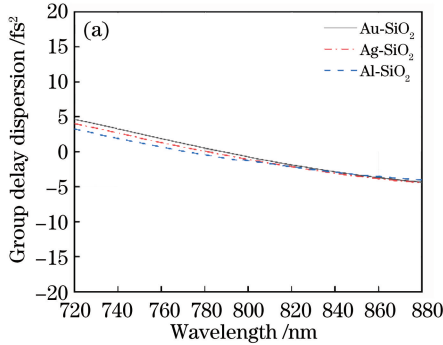
设计了多组低色散镜,包括金属-介质膜、介质膜和组合介质膜。所有样品的设计参数如表 1 所示,其中 H 代表具有四分之一光学厚度的高折射率材料 Ta_2O_5 ,L 代表具有四分之一光学厚度的低折射率材料 SiO_2 ,M 代表具有四分之一光学厚度的保护层材料 HfO_2 。采用不同的金属材料(金、银和铝)设计了三种金属镜和金属-介质低色散镜,金属膜的厚度为 150 nm,金属-介质低色散镜中介质膜材料均为宽带隙低折射率材料 SiO_2 , SiO_2 厚度为一个光学厚度(参考波长为 800 nm)。在介质膜和组合介质膜中,采用 Ta_2O_5 和 SiO_2 作为高、低折射率材料;在组合介质膜中,保护层材料为宽带隙高折射率材料 HfO_2 ,其周期数为 3。

表 1 低色散镜的设计参数

Table 1 Design parameters of low dispersion mirrors

Sample	Material	Layer system
Metal mirror	Au	150 nm Au
	Ag	150 nm Ag
	Al	150 nm Al
Metal-dielectric mirror	Au+ SiO_2	Au+4L SiO_2
	Ag+ SiO_2	Ag+4L SiO_2
	Al+ SiO_2	Al+4L SiO_2
Tradition mirror	$\text{Ta}_2\text{O}_5 + \text{SiO}_2$	(HL)·20H
Ternary composite mirror	$\text{Ta}_2\text{O}_5 + \text{HfO}_2 + \text{SiO}_2$	(HL)·18(ML)·2M

所有低色散镜的理论色散结果如图 1 所示。对于金属-介质镜,金属膜层的作用仅仅是提供宽带范围内的高反射,对色散不存在影响,所以如图 1(a)所示,三种金属-介质低色散镜的色散都控制在



$\pm 5 \text{ fs}^2$ 以内。对于介质膜,如图 1(b)所示,通过加入三个周期的宽带隙保护层,色散从 $\pm 75 \text{ fs}^2$ 上升到 $\pm 90 \text{ fs}^2$,但是色散仍能满足大部分激光系统的需求。

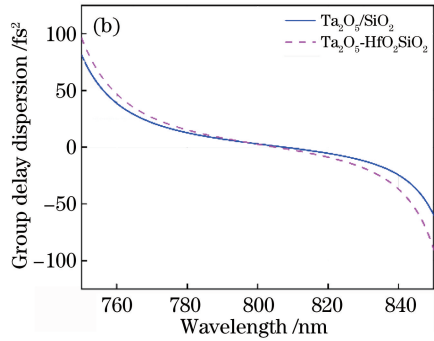


图 1 低色散镜的色散性能。(a)金属-介质镜;(b)介质镜

Fig. 1 Dispersion performance of low dispersion mirrors. (a) Metal-dielectric mirrors; (b) dielectric mirrors

2.2 制备与测试

金属介质膜采用电子束蒸发技术制备,介质膜及组合介质膜采用双离子束溅射技术制备。所有低色散镜的光谱性能由 Perkin-Elmer Lambda 1050 分光光度计测量得到。损伤测试系统为 800 nm 钛宝石飞秒激光器,脉冲宽度为 30 fs,入射角为 45° ,脉冲为 p 光,光斑面积为 0.221 mm^2 ,重复频率为 1 kHz。本文中的所有样品均采用 1-on-1 测试模式,该测试方法所得结果体现的是元件破坏的初始状态。在 1-on-1 测试中,每个测试点只接受一次激光辐照,不管损伤与否,样品都会移动至下一个损伤测试点。本实验中每个能量台阶下设置 10 个点。损伤形貌采用扫描电子显微镜(Zeiss)和光学轮廓仪(Veeco)进行表征。

Ag+SiO₂ 在 800 nm 附近的反射率最高,可达到 97.5% 以上,Au+SiO₂ 的反射率仅次于 Ag+SiO₂,反射率在 92.5% 以上,Al+SiO₂ 的反射率最低,整体的反射率低于 85%。所以从传输效率考虑,金属 Ag 较 Au 和 Al 更适合制备金属-介质低色散镜。介质低色散镜的反射光谱如图 2(b)所示,比较介质膜和组合介质膜的光谱,发现反射带宽和反射率基本保持一致,带宽均为 120 nm 左右,说明在 Ta₂O₅/SiO₂ 表层引入三个周期的 HfO₂ 保护层不会对反射率和反射带宽造成影响。对于金属介质膜和组合介质膜,金属介质膜的带宽大于组合介质膜,但是反射率相对更低。所以综合考虑色散和反射光谱,得到结论:金属-介质低色散镜适用于对带宽色散要求更高的激光系统,而组合介质低色散镜适用于需要极高传输效率的激光系统。

3 分析与讨论

3.1 光谱性能

金属-介质镜的反射率测试结果如图 2(a)所示。

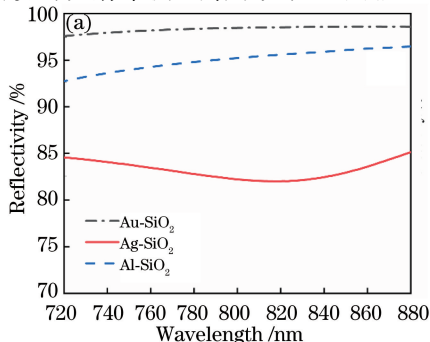


图 3(a)所示为金属-介质低色散镜的损伤阈值,全金属 Au 膜、Ag 膜和 Al 膜的损伤阈值分别为

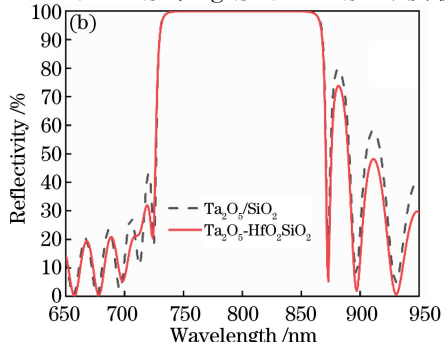


图 2 低色散镜的反射率。(a)金属-介质镜;(b)介质镜

Fig. 2 Reflectivity of low dispersion mirrors. (a) Metal-dielectric mirrors; (b) dielectric mirrors

0.17, 0.38, 0.25 J/cm², 表面沉积 SiO₂ 层后金属-介质膜的损伤阈值均有所提升, Al 膜的损伤阈值的提升幅度最大, 达到 80%, 但是损伤阈值最高的组合仍然是 Ag + SiO₂, 其损伤阈值为 0.56 J/cm². 所以从阈值角度考虑, 金属材料 Ag 同样更适合制

备金属-介质低色散镜。图 3(b) 为全介质低色散镜的损伤阈值, 其中 Ta₂O₅/SiO₂ 高反膜的损伤阈值约为 0.32 J/cm², 选择 HfO₂ 作为保护层, 损伤阈值能够提升到 0.39 J/cm².

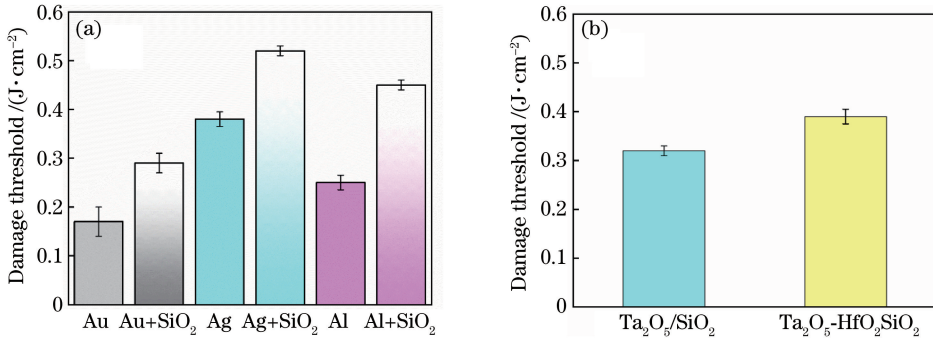


图 3 损伤阈值。(a) 金属膜和金属-介质镜; (b) 介质镜

Fig. 3 Damage thresholds. (a) Metal films and metal-dielectric mirrors; (b) dielectric mirrors

3.3 损伤形貌

图 4(a) 所示为 Ag + SiO₂ 在近损伤阈值 (0.58 J/cm²) 下的损伤形貌, 损伤形貌呈现鼓包状, 鼓包直径为 53.44 μm。对鼓包结构边缘处的截面形貌进行表征, 结果如图 4(b) 所示, 可以观察到鼓包结构位于金属层。由于金属材料的吸收系

数比较大, 在 30 fs 激光脉冲的作用下, 银膜层大量吸收入射的飞秒激光的能量, 能量主要分布在银表层, 损伤从银膜层开始。随着能量的传递, 整个银膜表层从十几纳米处开始发生撕裂, 上层介质层受到力的作用产生突起剥离现象, 形成鼓包结构。

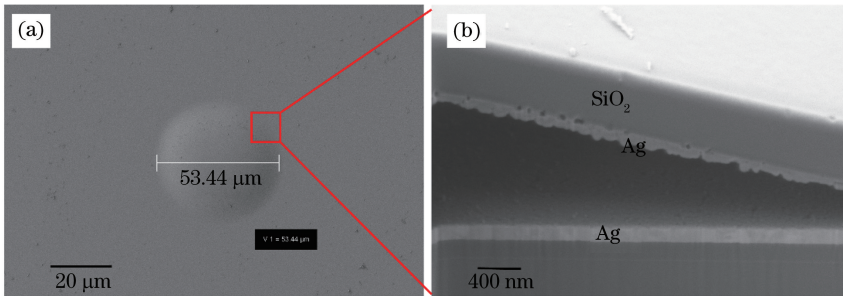


图 4 Ag+SiO₂ 的损伤形貌。(a) 表面形貌; (b) 截面形貌

Fig. 4 Damage morphology of Ag+SiO₂. (a) Surface morphology; (b) cross-sectional morphology

图 5(a) 所示为组合介质膜 Ta₂O₅-HfO₂/SiO₂ 的飞秒损伤形貌, 可以看出损伤中心区发生了剥落,

剥落区没有明显的热烧蚀痕迹。图 5(b) 为损伤边缘的局部放大图, 可以观察到损伤边缘清晰, 说明整

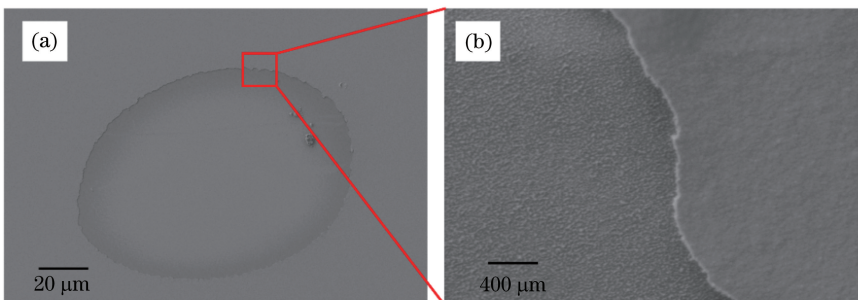


图 5 Ta₂O₅-HfO₂/SiO₂ 的损伤形貌。(a) 表面形貌; (b) 损伤边缘的局部放大

Fig. 5 Damage morphology of Ta₂O₅-HfO₂/SiO₂. (a) Surface morphology; (b) local enlargement of damage edge

个损伤过程为应力破坏。使用光学轮廓仪对损伤坑的深度进行测量,测量结果如图 6 所示,损伤坑为平底坑,深度为 380 nm 左右,此深度刚好对应前三层膜的厚度。图 7 为介质镜的归一化电场的分布,其中 E_z 为归一化电场。图 7(a)所示为 Ta_2O_5/SiO_2 介质镜的电场分布,从图 7(b)所示的组合介质镜的电场分布图可以发现前三层为电场峰值区域。对比 Ta_2O_5/SiO_2 介质镜的电场分布,发现窄带隙材料 Ta_2O_5 中的电场由于保护层 HfO_2 的存在从 0.83 降低至 0.23。由此得出结论:三个周期的 HfO_2 保护层能够降低 Ta_2O_5 层中的电场,使保护层 HfO_2 先于窄带隙膜层 Ta_2O_5 损伤,从而达到提升损伤阈

值的目。

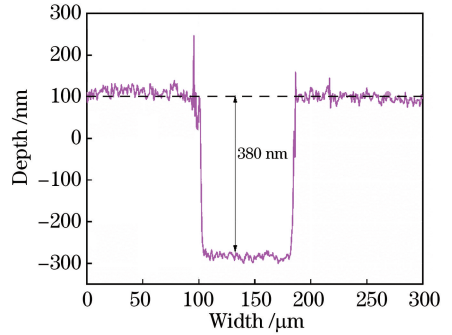


图 6 $Ta_2O_5-HfO_2/SiO_2$ 损伤坑深度
Fig. 6 Damage pit depth of $Ta_2O_5-HfO_2/SiO_2$

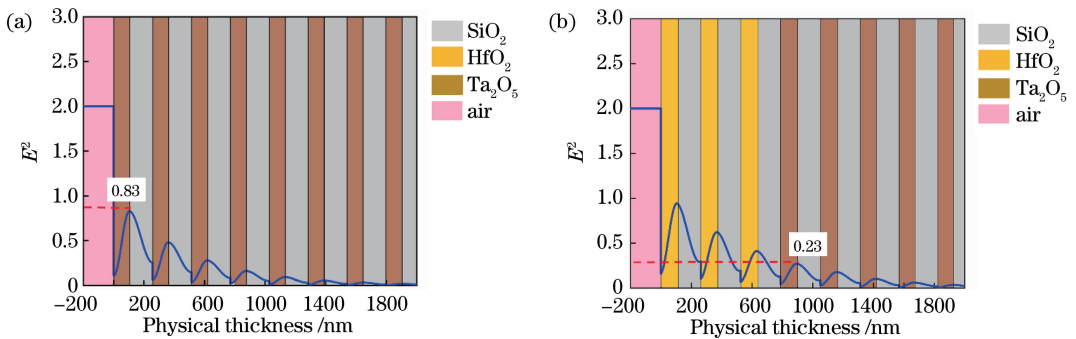


图 7 介质镜的归一化电场分布。(a) Ta_2O_5/SiO_2 介质镜;(b) $Ta_2O_5-HfO_2/SiO_2$ 组合介质镜
Fig. 7 Normalized electric field distributions of dielectric mirrors. (a) Ta_2O_5/SiO_2 dielectric mirror;
(b) $Ta_2O_5-HfO_2/SiO_2$ ternary composite dielectric mirror

4 结 论

系统地研究了多种低色散镜(金属介质膜和组合介质膜)的光谱特性、色散特性、抗损伤性能及损伤机理。金属介质膜的损伤阈值较金属膜有大幅度的提升,且银-介质膜的传输效率和损伤阈值比金-介质和铝-介质都更高,所以银更适合制备金属介质膜。金属介质膜在飞秒激光的作用下,金属层吸收大量能量,金属表层发生机械式损伤,形成鼓包结构。对于 $Ta_2O_5-HfO_2/SiO_2$ 组合介质膜,三个周期的保护层能够在不牺牲反射率和带宽的前提下,将损伤阈值提升到新的高度。对损伤形貌进行了分析,由于保护层的存在, Ta_2O_5 中的电场降低,损伤发生部位转移至宽带隙材料 HfO_2 中,进而阈值得到提升。根据各类低色散镜的性质,金属介质膜和组合介质膜较金属膜和介质膜更适用于高功率激光系统。金属-介质低色散镜的反射带宽更宽,色散更小,但是反射率比较低。组合介质膜具有着极高的传输效率,但是反射带宽受到限制,色散较金属介质膜更为严重。高阈值宽带低色散镜的研究对超短超

强等高峰值功率激光系统具有重要的意义和应用价值。

参 考 文 献

[1] Zhou W M, Yu M H, Zhang T K, et al. High-resolution X-ray backlight radiography using picosecond petawatt laser [J]. Chinese Journal of Lasers, 2020, 47(5): 0500010.
周维民, 于明海, 张天奎, 等. 基于皮秒拍瓦激光的高分辨 X 射线背光照相研究 [J]. 中国激光, 2020, 47(5): 0500010.

[2] Cui Z R, Kang J, Xie X L, et al. Compensation for chromatic aberration in femtosecond petawatt laser systems based on zoom image transfer [J]. Chinese Journal of Lasers, 2019, 46(9): 0905001.
崔自若, 康俊, 谢兴龙, 等. 基于变焦像传递的飞秒拍瓦激光系统色差补偿 [J]. 中国激光, 2019, 46(9): 0905001.

[3] Li W Q, Gan Z B, Yu L H, et al. 339 J high-energy Ti:sapphire chirped-pulse amplifier for 10 PW laser facility [J]. Optics Letters, 2018, 43(22): 5681-5684.

- [4] Liang X, Xie X L, Kang J, et al. Design and experimental demonstration of a high conversion efficiency OPCPA pre-amplifier for petawatt laser facility [J]. High Power Laser Science and Engineering, 2018, 6: e58.
- [5] Zhang H, Jin Y X, Kong F Y, et al. Influence of annealing on interface diffusion and anti-chemical-cleaning property of metal-dielectric multilayer films [J]. Chinese Journal of Lasers, 2016, 43(10): 1003002.
张洪, 晋云霞, 孔钊宇, 等. 退火对金属介质多层膜的界面扩散及抗化学清洗性能的影响[J]. 中国激光, 2016, 43(10): 1003002.
- [6] Chen R Y, Wang Y Z, Guo K S, et al. Design, fabrication and laser damage comparisons of low-dispersive mirrors [J]. Proceedings of SPIE, 2019, 1106: 110630F.
- [7] Škoda V, Vanda J. A study of metal-dielectric mirrors technology with regard to the laser-induced damage threshold [J]. Proceedings of SPIE, 2016, 1001: 1001424.
- [8] Škoda V, Vanda J, Uxa Š. A comparison of LIDT behavior of metal-dielectric mirrors in ns and ps pulse regime at 1030 nm with regard to the coating technology [J]. Proceedings of SPIE, 2017, 1044: 1044729.
- [9] Csajbók V, Szikszai L, Nagy B J, et al. Femtosecond damage resistance of femtosecond multilayer and hybrid mirrors [J]. Optics Letters, 2016, 41(15): 3527.
- [10] Oliver J B, Bromage J, Smith C, et al. Plasma-ion-assisted coatings for 15 femtosecond laser systems [J]. Applied Optics, 2014, 53(4): A221.
- [11] Zhang J L, Bu X Q, Jiao H F, et al. Laser damage properties of broadband low-dispersion mirrors in sub-nanosecond laser pulse [J]. Optics Express, 2017, 25(1): 305-312.
- [12] Bellum J C, Winstone T B, Field E S, et al. Broad bandwidth high reflection coatings for petawatt class lasers: femtosecond pulse laser damage tests, and measurement of group delay dispersion [J]. Proceedings of SPIE, 2017, 1008: 100840J.
- [13] Patel D, Schiltz D, Langton P F, et al. Improvements in the laser damage behavior of Ta₂O₅/SiO₂ interference coatings by modification of the top layer design [J]. Proceedings of SPIE, 2013, 8885: 888522.
- [14] Bellum J C, Field E S, Winstone T B, et al. Low group delay dispersion optical coating for broad bandwidth high reflection at 45° incidence, P polarization of femtosecond pulses with 900 nm center wavelength [J]. The Coatings, 2016, 6(1): 11.
- [15] Schiltz D, Patel D, Baumgarten C, et al. Strategies to increase laser damage performance of Ta₂O₅/SiO₂ mirrors by modifications of the top layer design [J]. Applied Optics, 2017, 56(4): C136.
- [16] Angelov I B, von Pechmann M, Trubetskov M K, et al. Optical breakdown of multilayer thin-films induced by ultrashort pulses at MHz repetition rates [J]. Optics Express, 2013, 21(25): 31453-31461.