

大尺寸 1064 nm 波段 HfO₂/SiO₂ 高损伤阈值 窄带滤光片的研制

吴晓鸣¹ 李 辛¹ 王一坚¹ 焦宏飞²

¹中国航空工业集团公司洛阳电光设备研究所, 河南 洛阳 471000

²同济大学精密光学工程技术研究所, 上海 200092

摘要 对大型固体激光装置中的关键器件—大尺寸 1064 nm 波段 HfO₂/SiO₂ 窄带滤光片进行了研究, 分析了监控波长对信噪比和光源稳定性的影响。通过优化监控参数, 设备监控精度可达到镀制窄带滤光片的需求。制备过程中的薄膜光谱分析表明: 随着蒸镀过程的进行, 氧化铪(HfO₂)的实际厚度会逐渐小于设计值, 而二氧化硅(SiO₂)的实际厚度则会逐渐大于设计值; 这种变化趋势导致的厚度误差会严重影响带通的波形; 另外掩模板造成的厚度误差也是影响带通波纹的重要因素之一。通过分析研究和优化以上因素, 制备了半峰全宽为 5 nm、通光口径达 200 mm×200 mm、在 1064 nm 处损伤阈值高于 19.5 J/cm²(3 ns) 的窄带滤光元件。

关键词 光学器件; 波动光学; 窄带滤光片; HfO₂/SiO₂ 薄膜

中图分类号 O436 **文献标识码** A

doi: 10.3788/LOP53.042302

Fabrication of Large Size 1064 nm HfO₂/SiO₂ Narrow-Band Filters with High Laser Damage Threshold

Wu Xiaoming¹ Li Xin¹ Wang Yijian¹ Jiao Hongfei²

¹Luoyang Institute of Electro-Optical Devices, Aviation Industry Corporation of China,
Luoyang, Henan 471000, China

²Institute of Precision Optical Engineering, Tongji University, Shanghai 200092, China

Abstract Narrowband filters with central wavelength 1064 nm are key optical elements used in the large scale solid state laser facility. In order to fabricate a filter with large size and high precision, the influence of monitoring wavelength on signal noise ratio and stability is investigated. Moreover, the monitoring strategy is optimized to satisfy the precision need for fabricating a narrowband filter. Film spectra analysis in fabrication process indicates that the actual thickness of HfO₂ will smaller than design value gradually, and the actual thickness of SiO₂ will greater than design value gradually, with the proceed of coating. The thickness error as a result of the different variation tendency for HfO₂ and SiO₂ in the evaporation process, and the mask plate induced error are key points of affecting the bandpass property. One 200 mm×200 mm size narrowband filter with 5 nm full width at half maximum (FWHM) and over 19.5 J/cm² (3 ns) laser damage threshold at 1064 nm is successfully fabricated.

Key words optical devices; wave optics; narrowband filter; HfO₂/SiO₂ coating

OCIS codes 230.7408; 120.2440; 220.4610; 310.6860

1 引言

随着强激光系统的不断发展, 激光装置中光学元器件, 除了需要具备优良的激光损伤特性, 还需要兼顾越来越严格的光谱特性要求^[1-2]。尤其是随着仪器小型化需求的不断增强, 激光系统中甚至提出了类似光通信中密集型波分复用(DWDM)^[1]滤光片的要求, 需要将波长分别为 1053 nm 和 1064 nm 的激光光束分离, 满足在 1053 nm 波段处高反射而在 1064 nm 处高透射。除此之外, 此元件需要具备良好的抗激光损伤特性: 损伤阈值优于 15 J/cm²(3 ns)。该指标对光学元器件的光谱特性和损伤特性都提出了极端的要求, 需要从薄膜

收稿日期: 2015-09-13; 收到修改稿日期: 2015-11-02; 网络出版日期: 2016-03-21

作者简介: 吴晓鸣(1970—), 男, 硕士, 研究员, 主要从事精密/超精密制造与检测技术方面的研究。

E-mail: wxmly@263.net

制备手段、制备工艺及薄膜的损伤机制等方面开展研究。

满足该光谱要求的最理想的膜系结构是法布里-珀罗窄带滤光片结构。窄带滤光片的制备通常采用的是直接透射监控的膜厚监控方式^[2],该方式使膜层的光学厚度误差自动补偿;同时避免因新监控片与已镀膜基板间的成膜条件差异而导致的误差。但是大尺寸激光薄膜元件的制备,通常采用反射式间接监控模式。没有了透射式监控方式的厚度补偿效应,这对窄带滤光片的精确制备提出了更高的技术要求。所研制滤光片元件的尺寸为200 mm×200 mm,如何在如此大的尺寸范围内保证薄膜厚度分布的均匀性也是亟需重点解决的难题。

在激光薄膜制备领域,氧化铪(HfO₂)因具有较大的能带隙、良好的机械和热稳定性^[3-6],成为高损伤阈值薄膜中常用的高折射率材料^[7]。但HfO₂折射率相对偏低,在高温沉积或离子辅助蒸镀时容易结晶,导致制备出的薄膜折射率具有非均质性^[8],这增加了用HfO₂制备高陡度窄带滤光片的难度^[1]。

本文讨论了非均质性对反射式光学膜厚监控精度的影响,分析了监控波长对信噪比、光源稳定性的影响,研究了HfO₂/SiO₂窄带滤光片膜层厚度和在使用口径内膜层均匀性的精确控制问题,优化了监控参数,成功制备出通光口径达200 mm×200 mm,损伤阈值优于19.5 J/cm²(3 ns)的窄带滤光元件。

2 样品设计与制备

2.1 膜系设计

采用对称周期设计和主体参数寻优两种方法^[1],得到双腔滤光片的初始膜系结构:Subl(HL)⁵H2LH(LH)⁵3L(HL)⁵H2LH(LH)⁵LHL|Air,Sub是出射介质基底,Air是入射介质空气,H和L分别代表四分之一光学厚度的高低折射率材料。为了兼顾优良的激光损伤特性,本设计中高低折射率材料分别采用HfO₂和SiO₂。由于HfO₂薄膜具有非均质性^[9],在薄膜设计时需要重点考虑非均质性对薄膜光谱特性的影响。由上述双腔滤光片膜系结构计算得到的理论透射率曲线,如图1所示,红线叉线是当HfO₂的非均质性为-10%时薄膜的透射率曲线,而黑色实线是不考虑非均质性时的透射率曲线。对比分析发现:非均质性只会导致薄膜中心波长的微量漂移,不影响透过带的高低和波纹。

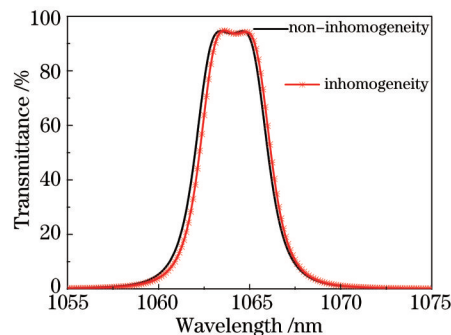


图1 非均质性对光谱的影响

Fig.1 Influence of inhomogeneity on the spectrum

2.2 光控参数优化

在大激光装置需求的推动下,目前制备激光薄膜常用间接反射式监控的膜层厚度控制单元和一个监控片监控一个HL膜层的厚度。相比直接监控,采用该方式制备的薄膜其物化特性与实际样品有差异,尤其是折射率特性差异。

为了保证监控的精度,须对监控片上的薄膜的折射率做修正,使之尽可能与样品薄膜的折射率一致。为图2所示的是不同条件下HfO₂折射率的色散曲线。Sample-320℃是样品上薄膜成膜温度为320℃时的色散曲线,monitor-310℃和monitor-350℃分别是监控片上薄膜沉积温度为310℃和350℃时的色散曲线。可以看出,当监控片的加热温度为350℃时,薄膜的色散曲线最接近样品成膜温度为320℃时的色散曲线。综合考虑,选择342℃为监控片的加热温度,比样品成膜的温度高22℃。经过实验验证,在该成膜条件下,监控片上得到薄膜的色散曲线和样品薄膜的色散曲线完全一致。

为了获得良好的透过带峰形,必须严格保证间隔层两侧谐振腔厚度的对称性,这就要求成膜设备系统维持长期工作的稳定性。在光控系统中,不同波长处的信噪比和稳定性是不一样的。为了找到最佳的监控

波长, 兼顾优良的信噪比和稳定性, 对光控系统进行了光谱测试, 如图3所示。

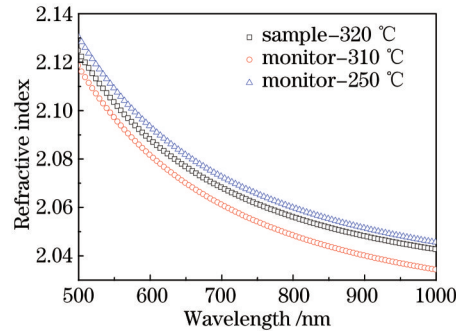


图2 不同条件下的HfO₂折射率色散曲线

Fig.2 Refractive index dispersion curves of HfO₂ under different conditions

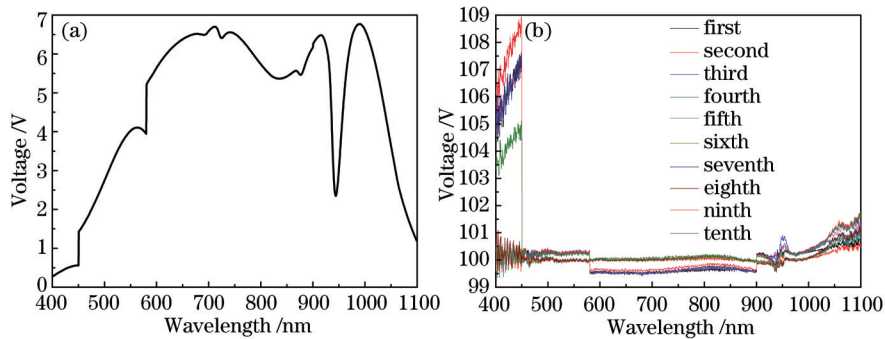


图3 光控系统光谱测试曲线(a)光强度分布和(b)能量稳定性分布

Fig.3 (a) Intensity distribution and (b) energy stabilization distribution of spectral measurement curves of optics-control systems

图3所示的是日本OPTORUN镀膜机OTFC-1300上配置的光控系统的光源的光谱强度曲线, 光谱扫描范围为400~1100 nm。纵轴代表光控信号的强弱, 电压值越大, 信号越强。图3(a)是刚开机时整个波长范围内光亮强度分布曲线, 图3(b)是光源工作300 min内前后10次扫描得到的光控光源信号的稳定性曲线, 是通过初始时的信号能量归一化得到。从图3可以看到, 600~890 nm波段信号较强, 且比较稳定。因此实际制备双腔窄带滤光片时, 监控波长可从这个波段选取。

2.3 厚度控制精度优化

除了上述系统维持长期工作的稳定性, 还要保证间隔层两侧谐振腔厚度的对称性和两个腔的反射率一致, 即薄膜的厚度要保持一致。但在实际镀膜中, 随着蒸镀过程的进行, 真空腔内的温度分布和氧气的充气量等都会发生变化, 这些变化都会导致材料的蒸发特性发生变化, 反映出来是工具因子的变化, 最终导致样品的实际厚度与设计值有偏差。

图4所示的是当工具因子固定不变时, 实际膜层厚度与设计值的偏差曲线。当实际厚度值和设计厚度值完全相等时定义为1, 采用膜系是设计部分给出的双腔结构, H代表高折射率材料HfO₂, L代表低折射率材

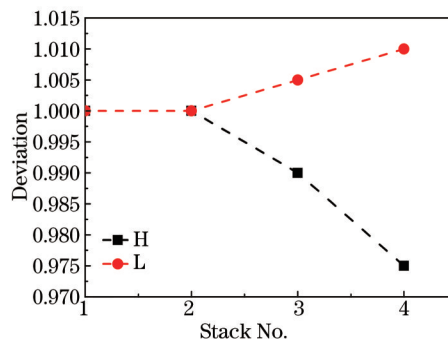


图4 随着镀膜进行实际膜厚与设计值的偏差曲线

Fig.4 Deviation of coating's real thickness from the designed one during depositing

料 SiO_2 。从图4可以看出： SiO_2 膜层相对于设计值偏差越镀越多，而 HfO_2 膜层越镀越少，且 $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ 膜堆的总厚度相对设计值是逐渐减少的。主要原因是在后期的镀膜过程中，镀膜机中真空腔内的充氧量和温度分布发生缓慢渐变，而 HfO_2 具有显著的折射率负非均质特性，容易造成 HfO_2 的少镀，而设备的监控方式采用的是 HfO_2 和 SiO_2 共用一个监控片的方式，先镀制 HfO_2 ，然后在 HfO_2 的上面镀制 SiO_2 ，该监控方式具有一定的光学厚度补偿效应， HfO_2 厚度偏小必然造成 SiO_2 厚度偏大。在后期双腔窄带滤光片的制备过程中采用的是渐变工具因子的监控方式，随着膜层总体厚度的增加，每种材料的工具因子都在有规律地变化。

2.4 均匀性修正

为了在 $200\text{ mm} \times 200\text{ mm}$ 的范围内保持良好的均匀性，并兼顾薄膜整体厚度的均匀性和高低折射率材料的膜厚配比的修正，设计了一种专门用来调整元件光谱均匀性的膜系： $\text{Glass|HL 1.5HL HL 1.5HL|Air}$ ，其透射率曲线如图5所示。

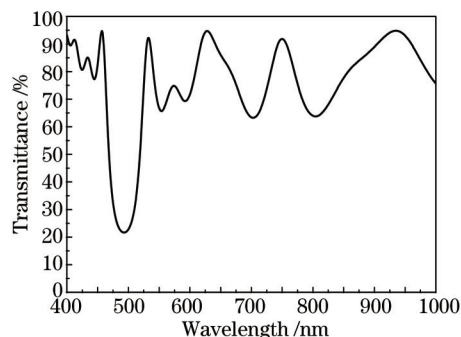


图5 膜系结构 $\text{Glass|HL 1.5HL HL 1.5HL|Air}$ 的透射率谱

Fig.5 Transmittance spectrum of stack $\text{Glass|HL 1.5HL HL 1.5HL|Air}$

由图5可看出，该膜系特征峰比较多，可用来表征大尺寸元件整体膜层厚度的均匀性和修正高低材料的膜厚配比分布。图5中 700 nm 和 800 nm 处的两个透射率极小值的相对大小表征着高低折射率材料的膜厚比例是否为 $1:1$ 。如果 H 和 L 搭配厚度比为 $1:1$ ，则两个极值的透射率相等；如果搭配失调，透射率就不会相等。根据此膜系可以很方便地判断并修正镀膜机内各处样品的膜厚搭配比例与整体厚度的分布。高低材料相对 1% 的失配，就会造成相对透射率 1% 的变化，此灵敏度为精确制备双腔滤光片和获得大尺寸元件提供了有力的技术保障。另外，该膜系对材料的非均质性不敏感，适用于 HfO_2 、氧化锆 (ZrO_2) 等激光薄膜的制备。

2.5 样品制备

通过对设备性能和双腔滤光片结构特征的综合研究，在 OPTORUN 生产的 OTFC-1300 上面制备了 $200\text{ mm} \times 200\text{ mm}$ 大口径、双腔窄带滤光元件。基板经超声清洗洁净，干燥氮气吹干，放入镀膜机工件架。镀膜的本底真空为 $1 \times 10^{-4}\text{ Pa}$ ，基板加热温度为 $320\text{ }^\circ\text{C}$ ，光控片加热温度为 $342\text{ }^\circ\text{C}$ ，Tooling 值(实际波膜厚度和理论膜厚之比)采用分膜层变化的方式， HfO_2 和 SiO_2 的蒸发速率分别为 0.5 nm/s 和 1 nm/s ，氧分压分别为 $2 \times 10^{-2}\text{ Pa}$ 和 $1 \times 10^{-3}\text{ Pa}$ 。

3 结果与分析

3.1 光谱特性

用 VARIAN 公司的 Cary5000 对制备的样品进行光谱测试，测量步长为 0.25 nm ，狭缝宽度为 0.2 nm ，最终样品的透射率曲线如图6所示。最高点 1064 nm 处的透射率为 92.3% ， 1053 nm 处的透射率为 0.1% ，透射率 50% 对应的带宽为 5 nm 。在通光口径 $200\text{ mm} \times 200\text{ mm}$ 范围内，在整个通光口径内的均匀性优于 0.3% ，完全实现了波长分别为 1053 nm 和 1064 nm 的激光光束分离。

3.2 损伤特性

由于测试平台激光器基频输出波长为 1064 nm ，且通常情况下在基频激光作用下，反射元件的损伤阈值会远远高于透射元件的损伤阈值^[10-11]。因此，测试了窄带滤光元件在 1064 nm 处透射光的损伤阈值。测试平台所用激光器 (Spectra Physics) 是单纵模、单横模 YAG 激光器，最大输出能量为 2 J ；测试光路所用透镜焦距为 5000 mm ，测试光斑半径(高斯光束能量峰值 $1/e^2$ 处)为 $987.6\text{ }\mu\text{m}$ ；测试采用的是 S-on-1 的

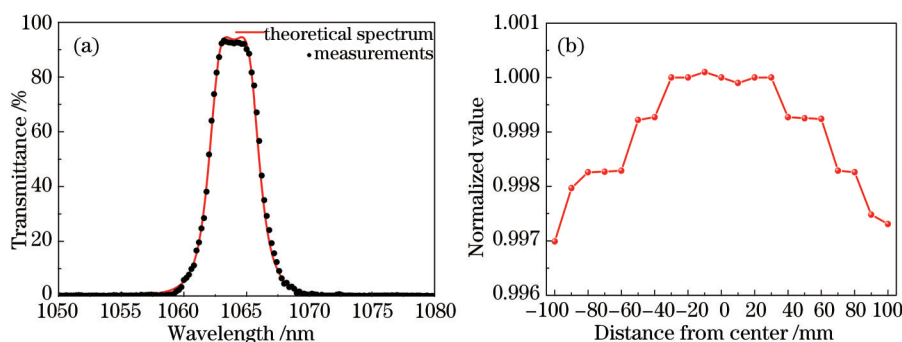


图6 (a) 滤光片的透射率光谱; (b) 整个通光口径内光谱均匀性

Fig.6 (a) Transmittance spectrum of filters; (b) spectral uniformity within the whole window

模式。通过对损伤概率的拟合得到此元件在 1064 nm 处的损伤阈值为 $19.5 \text{ J/cm}^2(3 \text{ ns})$ 。在 1053 nm 处反射情况下,损伤阈值则远大于 $19.5 \text{ J/cm}^2(3 \text{ ns})$ 。

由于薄膜内特殊的谐振电场强度分布,激光辐照下的损伤主要发生在膜层内部,而不像普通的减反膜发生在薄膜与基板接触的界面处^[12-13]。上述窄带滤光元件采用的是双腔结构。双腔谐振电场的存在,使得损伤特性变得更加复杂。下面从损伤形貌和电场分布情况两方面来解释双腔窄带滤光元件的损伤机制和损伤过程。

对于薄膜界面损伤,可以通过测定损伤形貌剖面信息来确定损伤源的位置^[14]。为了充分确定损伤的初始点,采用略高于零几率损伤的脉冲辐照薄膜。选取 30 个破斑面积较小的损伤点,采用 BRUKER 光学轮廓仪测量并统计损伤点的深度信息,以此获得损伤源在薄膜中位置的统计数据。统计结果显示损伤点的深度全部分布在 $2.0 \mu\text{m}$ 和 $2.7 \mu\text{m}$ 附近。图 7 所示是典型的一个破斑处剖面轮廓图,深度大约为 $2.0 \mu\text{m}$ 。

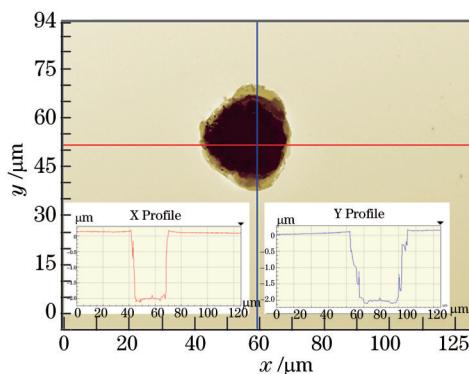


图7 光学轮廓仪测得的损伤形貌剖面图

Fig.7 Cross-section of damage morphology measured by profilometer

双腔结构的窄带滤色片,具有两个并列的单腔谐振电场。在严格的正入射情况下,两个谐振腔电场分布几乎一样;实际使用中,薄膜通常会有一定的倾斜角度,此时电场分布会发生变化,如图 8 所示。用 TFCalc 软件模拟入射角为 3° 的情况,相比垂直入射的电场,靠近基板侧的腔(内腔)内电场几乎不变,而靠近空气侧的腔(外腔)内的电场明显变大了。对比图 7,可以发现 $2.0 \mu\text{m}$ 和 $2.7 \mu\text{m}$ 刚好对应图 8 中红色圈对应的电场极大,即位于靠近空气侧的腔(外腔)内的薄膜界面处。多层膜界面处的损伤概率远远大于膜层内部,这主要是由于薄膜界面处是薄膜生长过程中材料交替区,是纳米吸收中心的富集区,也是电场强度峰值存在的地方^[15],电场和纳米吸收中心的共同作用直接诱使此处激光损伤的发生并产生等离子体,在热应力的作用下由于机械破坏导致膜层的脱裂而形成损伤坑。由此,可以推断诱发初始损伤的诱导源主要分布在距离薄膜表面深度 $2.0 \mu\text{m}$ 和 $2.7 \mu\text{m}$ 的地方。图 7 中轮廓仪的测试结果证实了该解释。在损伤测试过程中没有发现深度明显大于 $2.7 \mu\text{m}$ 的损伤坑,这表明实际测试时薄膜表面相对入射激光并非严格垂直,使得靠近空气侧的腔(外腔)内的电场大于内腔。因此损伤主要发生在外腔。

从光谱测试和损伤测试的结果可知制备出的滤光元件满足激光装置的需求,即成功分离了 1064 nm 和 1053 nm 波长的激光,且满足系统抗激光损伤阈值优于 $15 \text{ J/cm}^2(3 \text{ ns})$ 的要求。

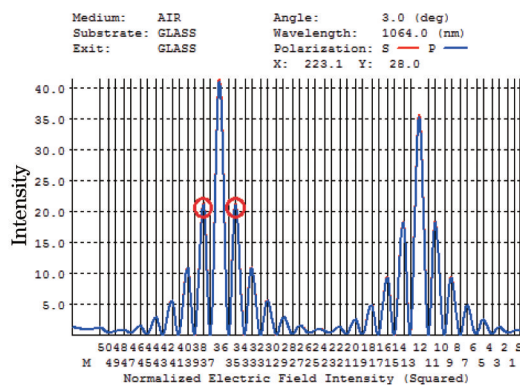


图8 薄膜内的谐振电场分布图

Fig.8 Electric field distribution in the film

4 结 论

对大型固体激光系统中的大尺寸 1064 nm 波段 $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ 窄带滤光片的研制进行了研究。讨论了非均质性对反射式光学膜厚监控精度的影响,分析了监控波长对信噪比、光源稳定性的影响,在此基础上优化了监控参数,使得监控精度达到了镀制窄带滤光片的需求。研究了高低折射率材料的工具因子在镀膜过程中的演变规律,制备出了通光口径可达 $200\text{ mm}\times 200\text{ mm}$,带宽 5 nm,通光口径内光谱均匀性优于 0.3% 的双腔窄带滤光片,成功实现了 1064 nm 和 1053 nm 波长激光的分离,通过损伤阈值测试,验证了该滤光片损伤阈值优于 15 J/cm^2 (3 ns) 的需求,初步解释了双腔窄带滤光元件的损伤机制和损伤过程。

参 考 文 献

- 1 Wang Juntao, Wang Xiaojun, Zhou Tangjian, *et al.*. Design of end-pumped double cladding Nd:YAG planar waveguide laser amplifier[J]. Chinese J Lasers, 2015, 42(1): 0102009.
王君涛,王小军,周唐建,等.端面抽运双包层Nd:YAG平面波导激光放大器设计[J].中国激光,2015,42(1):0102009.
- 2 Gu Peifu, Bai Shengyuan, Li Haifeng, *et al.*. Design of DWDM thin-film interference filters[J]. Acta Optica Sinica, 2002, 22(7): 794-797.
顾培夫,白胜元,李海峰,等.密集型波分复用薄膜干涉滤光片的设计[J].光学学报,2002,22(7):794-797.
- 3 H A Macleod. Thin-Film Optical Filters[M]. Beijing: National Defense Industry Press, 1974: 318-345.
麦克劳德.薄膜光学滤光片[M].北京:国防工业出版社,1974:318-345.
- 4 R Chow, S Falabella, G E Loomis, *et al.*. Reactive evaporation of low-defect density hafnia[J]. Applied Optics, 1993, 32(18): 5567-5574.
- 5 Hongfei Jiao, Xinbin Cheng, Yongli Liu, *et al.*. Effects of substrate temperatures on the structure and properties of hafnium dioxide films[J]. Applied Optics, 2011, 50(9): C309-15.
- 6 J M Khoshman, A Khan, M E Kordesch. Amorphous hafnium oxide thin films for antireflection optical coatings[J]. Surface & Coatings Technology, 2008, 202(11): 2500-2502.
- 7 M Alvisi, F De Tomasi, M R Perrone, *et al.*. Laser damage dependence on structural and optical properties of ion-assisted HfO_2 thin films[J]. Thin Solid Films, 2001, 396(1-2): 44-52.
- 8 J Khoshman, M Kordesch. Optical properties of a- HfO_2 thin films[J]. Surface & Coatings Technology, 2006, 201(6): 3530-3535.
- 9 J P Lehan, Y Mao, B G Bovard, *et al.*. Optical and micro-structural properties of hafnium dioxide thin films[J]. Thin Solid Films, 1991, 203(2): 227-250.
- 10 Hongfei Jiao, Xinbin Cheng, Ganghua Bao, *et al.*. Study of the $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ dichroic laser mirrors having refractive index inhomogeneity[J]. Applied Optics, 2014, 53(4): A56-A61.
- 11 Christopher J Stolz, Michael D Thomas, Andrew J Griffin. BDS thin film damage competition[C]. SPIE, 2008, 7132: 71320C.
- 12 Christopher J Stolz, Mark Caputo, Andrew J Griffin, *et al.*. 1064-nm Fabry-Perot transmission filter laser damage competition [C]. SPIE, 2014, 9237: 92370N.
- 13 Haiyang Hu, Zhengxiu Fan, Fu Luo. Laser-induced damage of a 1064-nm ZnS/MgF₂ narrow-band interference filter[J].

- Applied Optics, 2001, 40(12): 1950–1956.
- 14 Hongfei Jiao, Tao Ding, Xinbin Cheng, *et al.*. Study of a narrowband reflection filter with multi-channels[J]. Chinese Optics Letters, 2010, 8(11): 1102–1105.
- 15 S C Weakley, Christopher J Stolz, Zhouling Wu, *et al.*. Role of starting material composition in interfacial damage morphology of hafnia-silica multilayer coatings[C]. SPIE, 1998, 3578: 137.
- 16 Wang Zhanshan, Bao Ganghua, Jiao Hongfei, *et al.*. Interfacial damage in a Ta₂O₅/SiO₂ double cavity filter irradiated by 1064 nm nanosecond laser pulses[J]. Applied Optics, 2013, 21(25): 30623–30632.

栏目编辑: 韩 峰