

光学薄膜激光损伤的光热偏转法实时研究*

吴周令 范正修 苏 星 王之江

(中国科学院上海光学精密机械研究所)

提 要

本文首次把调制与脉冲光热偏转技术同时置于激光损伤测试装置之中,用以进行光学薄膜激光损伤的实时研究。初步实验结果表明,该方法不仅有助于确定损伤阈值,也有助于分析损伤形貌和损伤过程,包括样品损伤前的行为及样品在重复频率激光作用下损伤的累积效应。

关键词: 光学薄膜, 激光损伤, 光热偏转法, 实时检测。

一、引 言

光学薄膜的激光损伤是一个十分复杂的现象,其机理从说纷云^[1,2]。此外,损伤阈值的测试目前在多数实验室中还是以光学显微观察法为主。这种方法虽然较为可靠并已被广泛接受,但在具体使用时却有劳动强度大,易受主观因素影响以及不便对损伤程度进行量化处理,不能观测损伤过程等一系列局限^[3]。显然,为了更方便地确定损伤阈值和更深入地认识损伤机理,有必要发展新损伤探测方法。

本文首次把调制^[4]及脉冲^[5]光偏转技术同时置入激光损伤测试系统中,用以进行光学薄膜激光损伤的实时研究。初步实验结果表明,该方法不仅有助于确定损伤阈值,也有助于分析损伤形貌和损伤过程,特别是样品损伤前的行为及损伤在重复频率条件下的累积效应,文章最后结合多层介质膜的部分实验结果,对时间分辨光偏转技术在薄膜亚表面缺陷探测,薄膜热物性及其各向异性分析等领域中的潜在应用作了初步的分析讨论。

二、基本原理及实验装置

1. 基本原理

光热偏转技术是80年代初发展起来的一门新型热波探测技术,它具有多种实施方案^[6]。本文采用光热位移偏转方案,基本原理如图1所示。样品受泵浦光束照射时,光吸收的存在将在样品内部产生热波,从而使其表面发生形变。当另一束激光(探测光)入射这一形变区域时,其反射方向将发生相应的偏转。使用位置探测器可探测这一偏转,分析所得结果即可获得关于样品的信息。

这里的泵浦光可以是强度调制的连续激光(称调制光热偏转技术,简记CW PDT),也可以是脉冲激光(称脉冲光热偏转技术,简记 Pulsed PDT)。对于CW PDT,其光热偏转信号可表示为^[4]:

$$\phi \propto \frac{\partial u_z}{\partial r}(r, 0) = f(\beta, R, H, D). \quad (1)$$

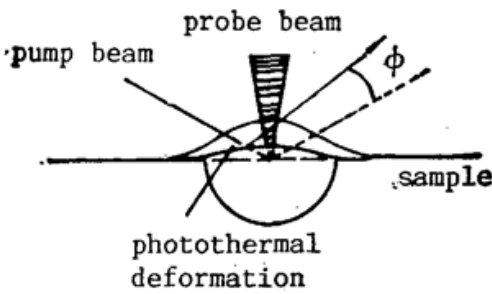


Fig. 1 Diagram of the physical principle of photothermal detection technique

式中 β 为样品的光吸收系数, R 为样品的热物性, H 为样品的力学特性, D 为实验条件, 如泵浦光能量, 光束尺寸以及样品厚度等。式(1)完全展开, 形式上较为复杂, 然而, 多数光学薄膜样品在调制频率较低 ($\omega \lesssim 1 \text{ kHz}$) 时属所谓热薄试样^[7], 此时式(1)简化为:

$$\phi \propto \beta l \alpha_{th} P (1 - R_0). \quad (2)$$

式中 l 为样品厚度, α_{th} 为样品热膨胀系数, P 为样品表面泵浦光入射能量, R_0 为样品表面反射率。

对于 Pulsed PDT, 其光热位移信号表达式相对较为简单^[5]:

$$h = \beta \alpha_{th} P (1 - R_0) / A \rho c. \quad (3)$$

式中 h 为光热位移量, A 为样品表面上的光斑面积, ρ, c 分别为样品的密度与比热。

2. 实验结果

实验装置如图 2 所示。输出脉宽为 10 ns (FWHM) 的 Nd:YAG 激光器经倍频晶体倍频及分光棱镜分光后可同时工作于三个波长 ($1.06 \mu\text{m}$, $0.5 \mu\text{m}$ 及 $0.35 \mu\text{m}$)。它们经调整后与强度调制的 He-Ne 泵浦激光束同轴^[8], 既充当损伤激光束, 又充当脉冲光偏转技术的泵浦激光束。1、2、3 为光束阻挡器, 用于选择工作波长。4 为衰减器, 用于改变脉冲激光束的能量。5 为能量/功率计, 用于实时监测有关激光束的能量/功率漂移。6、8、10 为聚焦透镜, 用于把相关激光束会聚至样品表面。7 为样品, 其光热变形通过 He-Ne 探测激光束及位置探测器来进行测量。探测器及能量/功率计前的滤波器与针孔主要用于消除杂散光的影响。

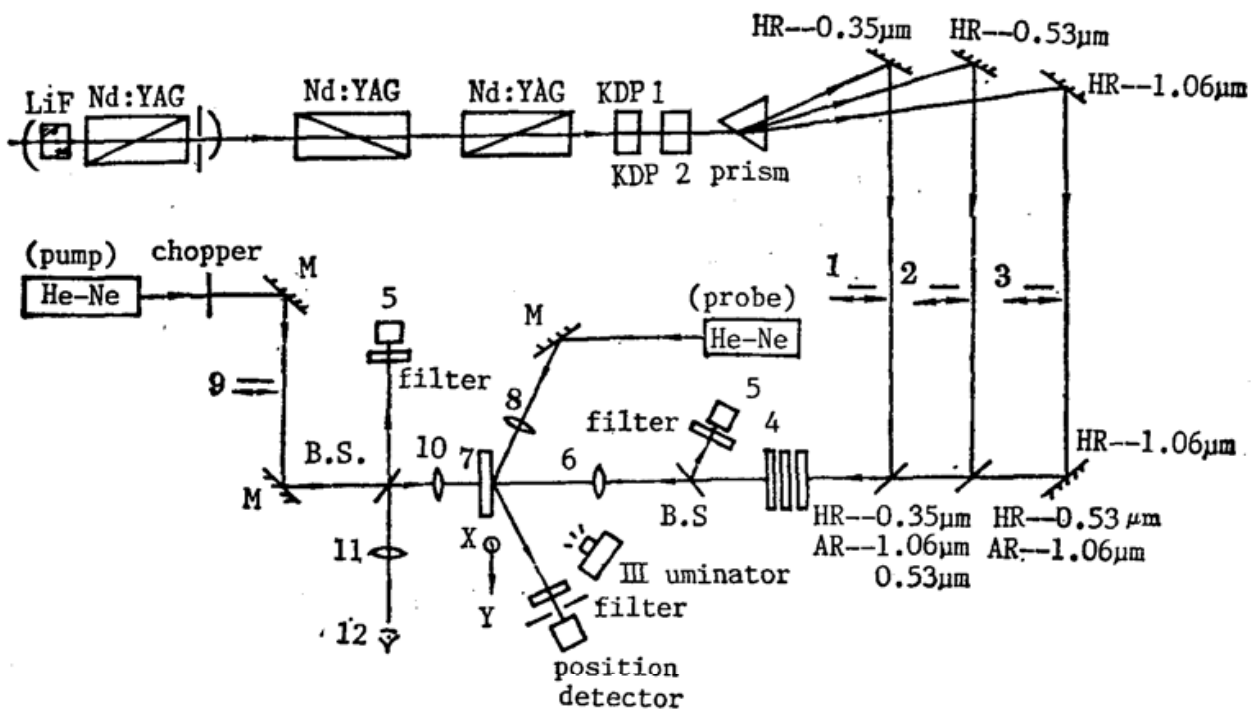


Fig. 2 Depiction of the experimental setup

1, 2, 3, 9. beamstops; 4. attenuator; 5. power detector; 6, 8, 10, 11. lenses; 7. sample; 12. visual observer

对于调制光偏转信号,利用锁相放大器进行相关检测。对于脉冲光偏转信号,在泵浦光能量远低于损伤阈值时由 Boxcar 积分器进行检测,在泵浦光能量接近或高于损伤阈值时则由示波器直接观察并用高锭数一次成像底片拍摄。

三、调制光热偏转技术的实验结果

1. 用调制光偏转法作为初始损伤的实观测手段

损伤实验采用 1-on-1 方式,即在样品表面上同一位置只照射一次,而不管这一点发生破坏与否。薄膜损伤阈值定义为二个极值的平均值,即使薄膜损伤的最低能量密度和不使薄膜破坏的最高能量密度两者的平均值。薄膜损伤定义为薄膜经激光辐照后发生了可观测的不可逆物理变化。本文中,用光学显微镜和调制光偏转技术同时观测损伤。对于前者,损伤意味着薄膜样品产生了永久性形变,对于后者,损伤的含义是薄膜的调制光偏转信号发生了不可逆的转变。

实验结果如表 1 所示。由表 1 可以看出:对所研究的三种样品,调制光偏转法测得的损伤阈值普遍低于光学显微镜法。这一结果表明,作为一种薄膜破坏的观测手段,调制光偏转法较光学显微法更为灵敏。光学显微法通常只能观察薄膜较为明显的机械的不可逆性变化,而调制光偏转法则可探测薄膜微小的光学或热学特性的不可逆性变化,这种变通常已足以影响薄膜的工作特性并将最终导致薄膜的宏观灾难性破坏。

Table 1 Damage thresholds (J/cm^2) of several optical thin films detected by different methods ($1.06\ \mu\text{m}$ -Nd:YAG laser with spot size $= 44\ \mu\text{m}$)

Thin Films (K_9 substrate)	Damage detection methods	
	CW PDT	optical microscope
ZrO_2	14.2 ± 2.0	28.9 ± 3.4
TiO_2	11.5 ± 2.3	17.8 ± 3.9
$\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ HR	10.3 ± 1.8	12.6 ± 3.5

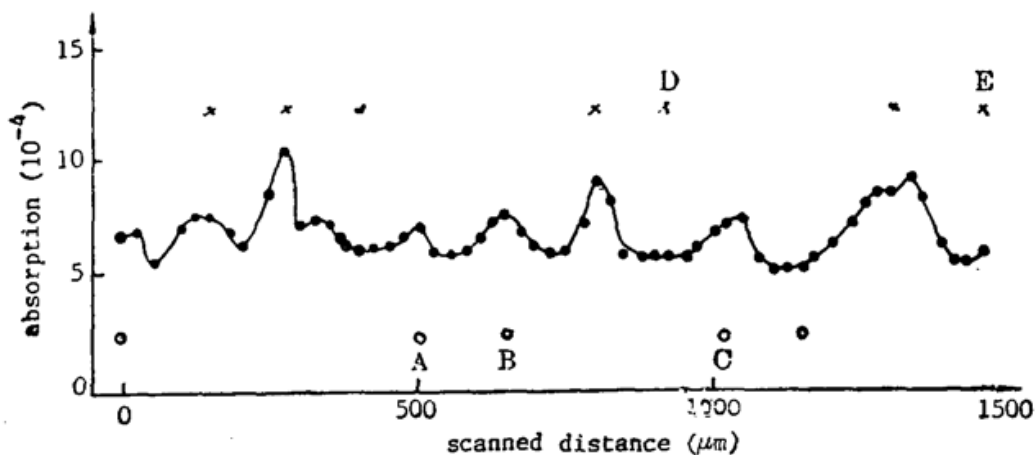


Fig. 3 In-situ laterally resolved absorption measured by CW PDT and its correlation with the $10\ \text{ns}$ - $1.06\ \mu\text{m}$ pulsed laser damage detection. The sample is a single layer TiO_2 thin film on K_9 substrate: X—damaged; O—not damaged

2. 用调制光偏法研究吸收分布与损伤的对应关系

我们以 K_9 玻璃基底上镀制的 TiO_2 单层膜为例, 实地研究了吸收分布与激光损伤的对应关系。具体实验方法如下: 对每一点都先用调制光偏法测吸收, 然后用阈值能量辐照并用光学显微镜观察损伤情况, 通过平移样品来实现逐点扫描。实验结果如图 3 所示。

由图 3 可以看出, 损伤与吸收有一定的对应关系——吸收大的点损伤概率大, 吸收小的点损伤概率小——然而这种对应关系并不十分明显, 例如点 A 、 B 、 C 有吸收峰但未损伤, 而点 D 、 E 无吸收峰却产生了损伤。产生这种现象的确切原因有待于进一步研究。

3. 用调制光偏法实时研究损伤形貌

光学薄膜的激光损伤形貌由于膜层材料与膜系结构的不同而有显著差别, 采用不同方法观测分析损伤形貌, 有助于认清损伤机理, 从而提高损伤阈值^[9]。

用调制光偏转技术对脉冲激光辐照过的损伤点进行了扫描测量, 实验样品为镀制在 K_9 玻璃基底上的 TiO_2/SiO_2 多层介质高反膜, 实验结果及其与光学显微照片的比较如图 4 所示。

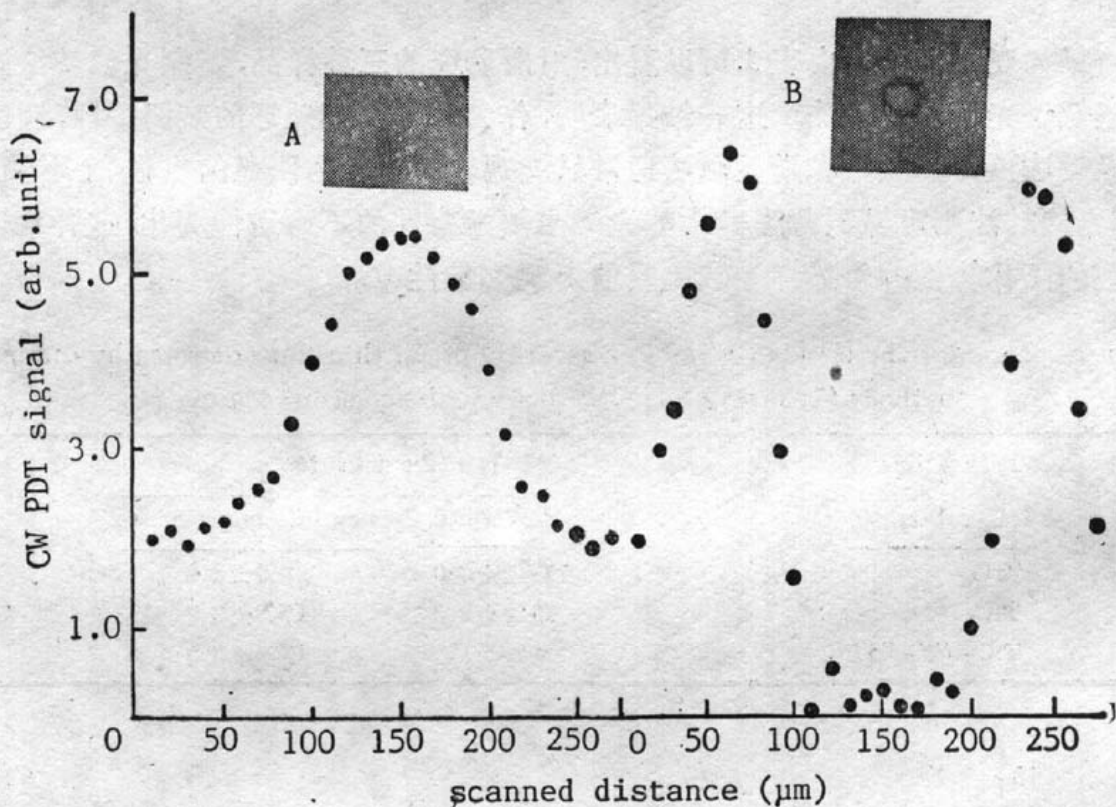


Fig. 4 Damage morphology of TiO_2/SiO_2 HR (K_9 substrate) under the 10ns-1.06 μm -Nd:YAG laser irradiation

由图 4 可以看出, 对点 A , 损伤的表现形式为吸收的加大。对点 B , 在损伤点中心光热信号极小(这是由于膜层已完全消失, 露出了基底), 而在损伤点周围残存的膜面区域, 光热信号则有较大幅度的上升, 表明该区域吸收显著加大。

4. 用调制光偏转法研究重复频率激光损伤的累积效应

在重复频率激光的作用下, 光学薄膜的损伤具有一定的累积效应。这种累积效应在重复频率很高时主要表现为热的累积, 而在重复频率较低时则主要表现为结构变化或特性变化的累积^[9]。定量观察累积效应的较有效方法是散射法^[3]。这种方法虽然有很多优点, 它的局限在于它仅适于研究薄膜表面已产生宏观破坏之后的累积效应, 而对研究薄膜在宏观破

坏之前的行为则无能为力。为弥补这一不足,我们提出用调制光偏法实时研究重复频率激光损伤的累积效应,初步实验结果如图 5 所示。

由图中可以看出,介质膜与金属膜损伤过程有着明显的差异。对于介质膜,损伤过程具有明显的累积效应——损伤的初始形式表现为光热信号的逐步加大(此时样品表面尚未发生永久性形变——参见图 4 中损伤点 A),之后突然下降(膜层已开始被烧蚀、熔化或剥落)并逐步趋于平稳(膜层已完全被烧蚀、熔化或剥落,露出了基板——参见图 4 中损伤点 B)。对于金属膜,损伤几乎没有累积效应——膜层一经辐照立即产生显著的破坏并很快露出基板,使光偏转信号趋于平稳。

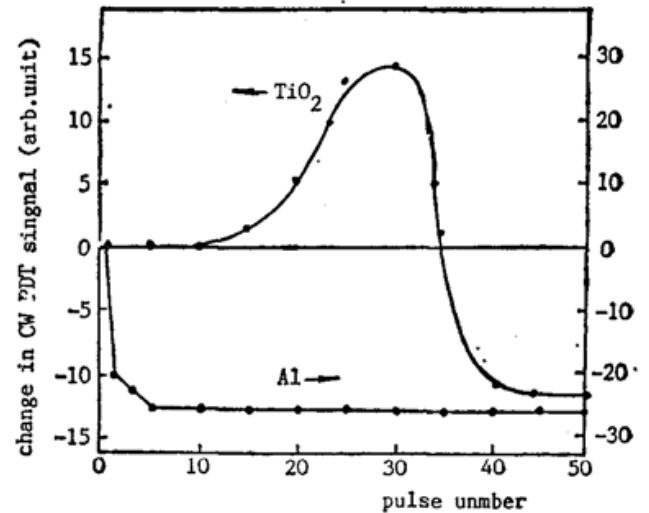


Fig. 5 Investigation of the accumulation effect in multipulse laser damage by CW PDT: the laser parameters— $1.06\mu\text{m}$ - 10ns - 1Hz ; the samples— TiO_2 and Al single layers on K_9 substrates

四、脉冲光偏转技术的实验结果

1. 光学薄膜在损伤阈值附近的临界行为

为进一步认清光学薄膜的损伤机理,更深入了解薄膜在强光作用下的行为,我们实验研究了多种单层及多层介质膜脉冲光偏转信号对泵浦光能量的依赖关系,典型实验结果如图 6 所示。

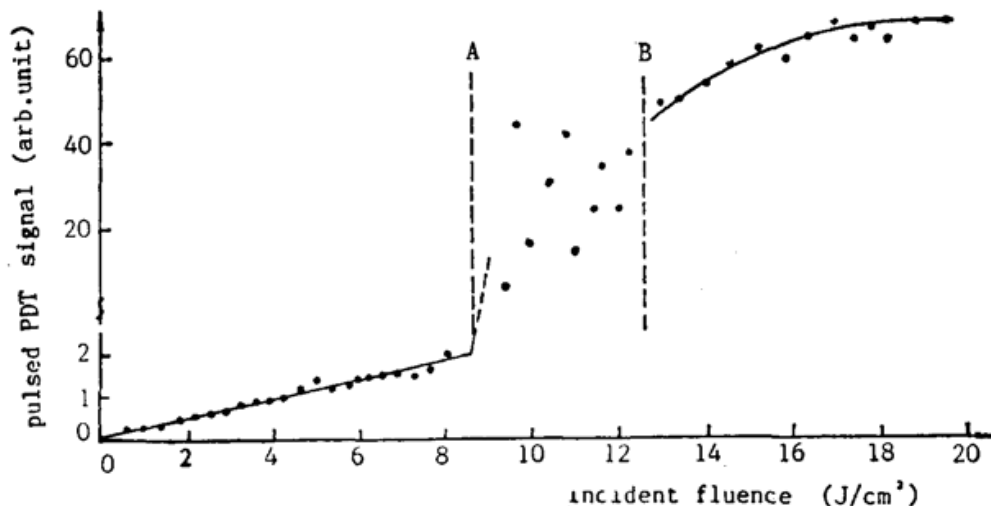


Fig. 6 The dependence of the pulsed PDI signal on the incident fluence of the $1.06\mu\text{m}$ - 10ns pump laser. The sample is a $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ HR on K_9 substrate

由图 6 可以看出,当泵浦光能量远低于样品损伤阈值时,光偏转信号与泵浦光能量成线性关系,与传统理论分析相一致[参见式(3)]。然后,当泵浦光能量达到某一阈值时,光偏转信号将产生一个非线性跃变——这种跃变通常是可逆的,因为在激光辐照后的样品上无论是用光学显微镜还是用调制光偏法都未能观察到显著的物理变化,亦即永久性破坏尚未发生。在跃变后的一段区域内,光偏转信号与泵浦光能量的关系呈复杂状态,如图中 AB 段所

示。之后,随着泵浦激光束能量的进一步加大和永久性破坏的产生,光偏转信号逐步形成一定规律性并趋于类似于饱和的稳定状态。

对以上的实验结果,目前尚未找到很好的理论解释。然而这些结果表明,薄膜在高功率激光作用下具有显著的反常行为,这种反常行为是传统的薄膜光学理论难以解释的。

2. 时间分辨脉冲光偏转技术

图7为几种典型样品的实验结果。实验中泵浦光能量密度等于或略低于相应样品的损伤阈值。

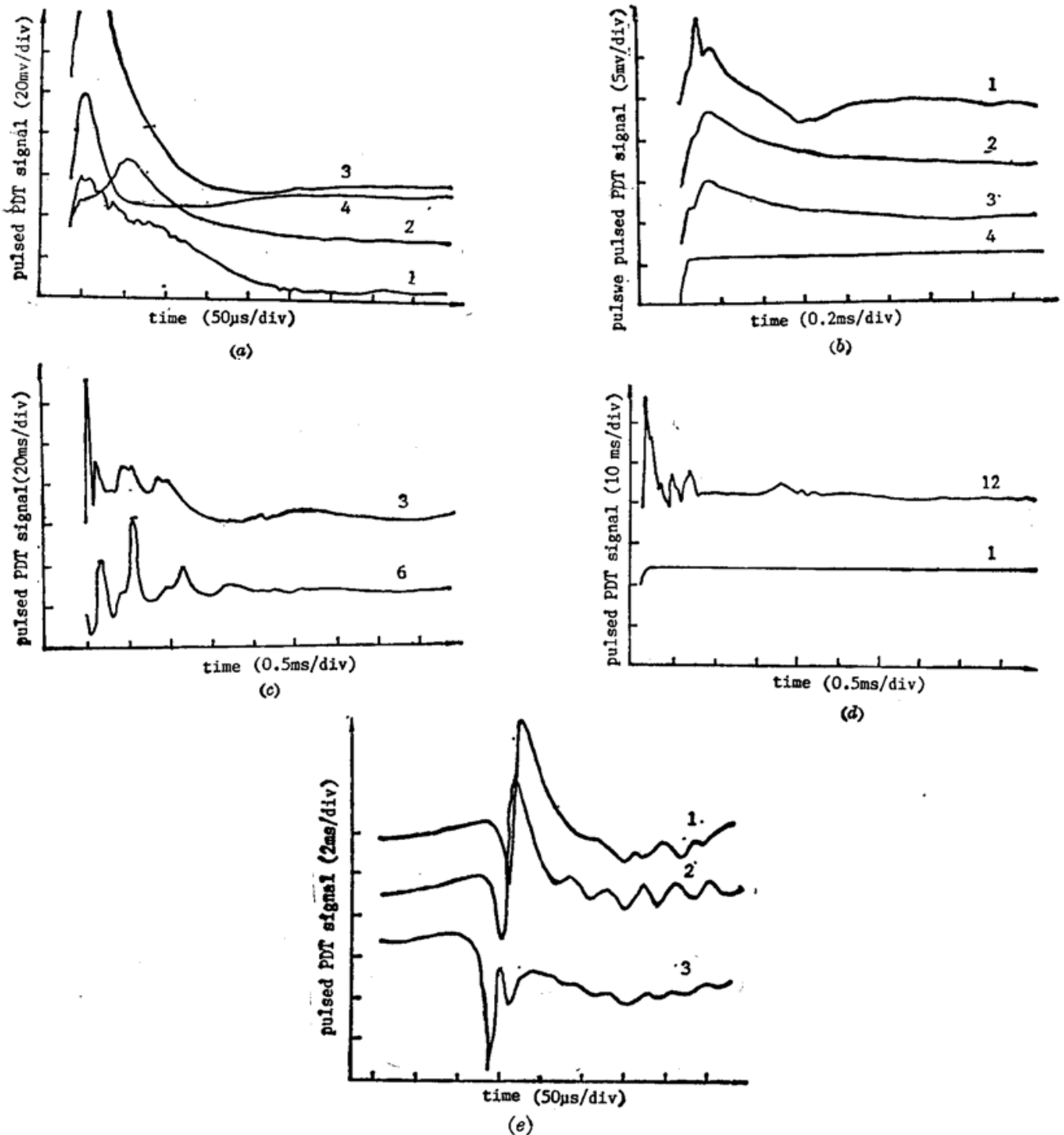


Fig. 7 Time-resolved pulse PDT to study the photothelmal dynamics of laser induced damage

(a) TiO_2 single layer; (b) Al single layer; (c) $\text{ZrO}_2/\text{SiO}_2$ HR;

(d) $(\text{ZrO}_2 + \text{Y}_2\text{O}_3)/\text{SiO}_2$ HR; (e) Al_2O_3 crystal.

The substrates are K_9 glass for all the coatings and the laser parameters are the same as those in Fig. 5. The numbers in the figure indicates the pulse order

(1) 单层介质膜与单层金属膜实验结果的比较

比较图 7(a) 及 (b) 容易看出: (1) 临界破坏时二者的光偏转信号波形存在很大差别, 表明二者破坏机理很不相同, (2) 二者光偏转信号随辐照激光脉冲数的变化表明, 损伤在二种情况下都有一定的累积效应, 但这种累积效应在介质膜中要比在金属膜中明显得多。这一结论与前述的调制光偏法实验结果是一致的, 参见图 5。

(2) 多层介质膜实验结果分析

比较图 7(c) 与图 7(a) 容易看出, 多层介质膜的时间分辨光热信号波形与单层膜的具有显著差异。造成这种差异的原因, 是由于在激光辐照下, 多层介质膜内部具有强度与位置都不相同的多层热源, 如图 8 所示。热波由这些热源传播到样品表面需花费一定的时间, 这个时间与热源到探测点之间距离的平方成正比^[10]:

$$t \propto (d^2 + a_0^2) / (4\alpha). \quad (4)$$

式中 d 为热源到样品表面的距离, a_0 为样品表面上探测光与泵浦上的距离, α 为样品的热扩散系数。于是, 对来自于膜层中不同热源的热波, 其到达样品表面探测点所需的时间之间满足如下关系:

$$\Delta t_1 : \Delta t_2 : \Delta t_3 : \Delta t_4 : \dots = d_1^2 : d_2^2 : d_3^2 : d_4^2 : \dots. \quad (5)$$

这与我们的实验结果是一致的——分析图 7(c) 不难看出:

$$\Delta t_1 : \Delta t_2 : \Delta t_3 : \Delta t_4 \approx 1 : 4 : 9 : 16 = 1^2 : 2^2 : 3^2 : 4^2,$$

满足(5)式。

进一步分析图 7(c) 还可以看出: 当第 6 个激光脉冲辐照到样品表面时, 多层介质膜的最外层高折射率层已基本被完全剥落。这一实验结果直接证明了如下结论, 即: 多层介质高反膜的激光损伤最先由最外层开始, 然后逐步发展到膜层内部。

图 7(d) 为另一块多层介质高反膜的实验结果。这块高反膜的高折射率膜料为 $(\text{ZrO}_2 + \text{Y}_2\text{O}_3)$ 混合膜料。比较图 7(d) 与图 7(c) 容易看出, 前者光热偏转信号相邻两峰之间的时间延迟较后者小得多。我们对这一现象的解释是: ZrO_2 掺 Y_2O_3 后热物性——主要是热导率——得到了较大的改善。而热导率的这种改善, 源于 ZrO_2 掺杂后形成了稳定的立方相固溶体结构^[11]。

(3) 白宝石晶体损伤动力学

图 7(e) 为白宝石晶体在重复频率激光作用下的损伤动力学实验结果, 由图中可以看出, 损伤先在靠近出射表面的地方产生, 然后, 在激光的进一步作用下, 损伤点逐步向入射表面移动。这一结果与目前已有的报道是一致的, 进一步说明了利用时间分辨光偏转技术研究损伤行为的可行性。

3. 脉冲光偏转技术小结

综合上述脉冲光偏转技术实验结果, 可得出如下结论:

(1) 通过分析脉冲光偏转信号幅值的跃变, 可精确测定损伤发生的时间和损伤的程度。

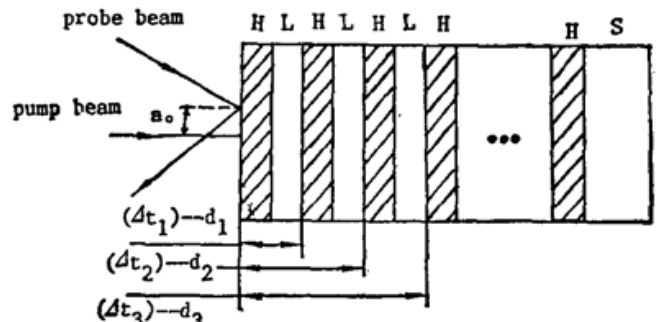


Fig. 8 Under laser irradiation there are multiple thermal sources inside a multi-layer dielectric coatings

(2) 通过分析脉冲光偏转信号峰值在时间轴上的位置, 可精确测定损伤发生的部位——是在膜层表面, 在膜层内部, 还是在膜与膜或膜与基板的界面。

(3) 脉冲光偏转技术不仅可以探测光学薄膜的损伤过程——包括重复频率激光损伤的累积效应, 也可以探测光学薄膜在强光作用下的非损伤行为, 这对认识和建立强光薄膜光学理论是极有益的。

(4) 由式(4)及图8可以看出, 时间分辨脉冲光偏转技术可用于薄膜热打散系数的精确测量及其各向异性的分析。考虑到式(4)中 t 、 d 、 α_0 等量均可测得非常精确, 此法可望获得其它方法难以获得的精确度。此外, 通过改变泵浦光能量, 不难获得样品热扩散系数对温度的依赖关系, 而通过改变样品的膜系结构, 则可以了解界面对薄膜热学性能的影响。时间分辨脉冲光偏转技术的这些潜在的应用, 将有益于光学薄膜激光损伤的研究^[12,13]。

(5) 时间分辨脉冲光偏转技术的另一潜在应用是薄膜杂质缺陷的三维空间高分辨显微测量。这里, 横向分辨率主要通过聚焦泵浦光束和扫描样品来实现, 而纵向分辨率则是在了解薄膜热物性的基础上, 通过测量峰值光偏转信号在时间轴上的位置来获得。由于时间测量可以非常精确, 这种方法用于亚表面缺陷探测可望达到其他方法难以达到的极高的分辨率——这是许多薄膜激光损伤工作者梦寐以求的事^[1,2,14]。

六、结 束 语

本文首次把调制与脉冲光热偏转技术同时置入激光损伤测试装置之中, 用以进行光学薄膜激光损伤的实时研究, 获得了一些初步的实验结果。目前正致力于进一步认识这些实验结果并努力开发光热偏转技术, 特别是时间分辨脉冲光偏转技术的潜在应用, 以期对光学薄膜在强光下的行为及其激光损伤机理获得更深刻的认识。

作者感谢史珺, 孙旻同志在本文实验过程中给予的有益帮助和讨论。感谢周九林、唐晋发两位教授在本文早期工作及论文写作过程中给予的许多有益的讨论。

参 考 文 献

- [1] H. E. Bennet *et al.*; *NIST(USA) Spec. Publ.*, 1988, **752**, 1 and bibliography therein.
- [2] M. J. Soileau; *Photonics Spectra*, 1986, **20**, No. 11 (Nov), 109.
- [3] S. C. Seitel; *Lasers & Optronics*, 1987, **6**, No. 10 (Oct), 68.
- [4] M. A. Olmstead *et al.*; *Appl. Phys. A*, 1983, **32**, No. 2 (Feb), 141.
- [5] C. Karner *et al.*; *Appl. Phys. A*, 1985, **38**, No. 1 (Jan), 19.
- [6] A. C. Tam; *Rev. Mod. Phys.*, 1986, **58**, No. 2 (Feb), 381.
- [7] J. C. Murphy *et al.*; *J. Appl. Phys.*, 1980, **5**, No. 9 (Sep), 4580.
- [8] 吴周令;《中国激光》, 1989, **16**, No. 7 (Jul), 426.
- [9] 施正荣等;《中国激光》, 1988, **15**, No. 1 (Jan), 22.
- [10] J. F. Power *et al.*; *Appl. Opt.*, 1988, **27**, No. 16 (Aug) 3408.
- [11] 钟钦;私人通讯。
- [12] J. K. McIver *et al.*; *Optical Coatings*, (Proceedings of International Symposium 23~25 May 1989, Shanghai, China), 245.
- [13] A. H. Guenther; Private Communication.
- [14] C. K. Carniglia; *Proc. SPIE*, 1986, **652**, 202.

In-situ investigation of laser-induced damage in optical coatings by photothermal deflection technique

WU ZHOULING, FAN ZHENGXIU, SU XING AND WANG ZHIJIANG

(Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Academia Sinica, Shanghai, China)

(Received 27 June 1989; revised 30 August 1989)

Abstract

Photothermal deflection technique (PDT) is employed to make in-situ investigation of laser-induced damage in optical coatings. Primary experimental results show that the technique is capable of providing a lot of new information not only about the damage thresholds but also about the damage morphology and the damage process, of which of particular interest are the predamage behavior of optical coatings and the cumulative effect of the damage.

Key words: in-situ investigation; photothermal deflection; laser damage; optical coating.