

大功率 CO₂ 激光器窗口及减反射膜*

G. A. Atanassov** 顾培夫 刘旭 唐晋发
(浙江大学光电科仪系, 杭州 310027)

提 要

描述了评价窗口材料的标准, 并对 Ge, GaAs, ZnSe 和 KCl 四种材料作了比较, 发现 KCl 具有最佳的光学特性, 并设计制备了性能优良的减反射膜, 测量了它们的吸收和激光损伤阈值。

关键词 减反射膜, 激光损伤阈值。

1 引 言

用于红外 CO₂ 激光的窗口材料包括半导体材料(如 Ge, CdTe, GaAs 和 ZnSe)、电介质材料(如 KCl、NaCl)和红外玻璃(如 KRS-5)。对这些材料的研究, 至少已有 20 年的历史^[1~4]。1986 年, Miyata 指出, 由于 KCl 在 1.06 μm 具有非常低的吸收系数 ($7 \times 10^{-5} \text{ cm}^{-1}$) 和非常低的吸收温度系数 ($3.7 \times 10^{-6} / \text{cm}^\circ\text{C}$)^[6]。KCl 光学元件能成功地用作 5~20 kW 的大功率 CO₂ 激光的窗口, 而 ZnSe 和 GaAs 却因它们的热透镜效应, 只能用于小于 5 kW 功率的激光系统之中。

本文着重讨论研究了四种窗口材料: Ge, GaAs, ZnSe 和 KCl, 对它们的特性作了全面的对比分析, 以便找到一种能适合于 20 kW CW CO₂ 激光系统的材料。结果发现, 单晶 KCl 是大功率 CO₂ 激光系统的最佳窗口材料, 问题仅是需要提供一个抗潮性能和机械性能优良的减反射膜。进而设计并制备了一个用于 KCl 的三层减反射膜, 用 CO₂ 激光光热偏转技术测量了它们的吸收。得到了较高的损伤阈值。

2 理 论 依 据

当大功率激光束通过窗口材料时, 由于窗口材料吸收激光能量而升温导致热膨胀、热应力和折射率变化等, 即产生光热变形。对于实际应用来说, 必须有效地限制这些变化(更不能破裂), 以防光学特性恶化。

2.1 由于机械性质引起的破裂

窗口材料承受的应力包括机械应力和由温度梯度而引起热应力两部分。当窗口两边受到不同的压力时, 就会产生机械应力。设窗口的静压力为 P , 则为防止窗口破裂, 所需的厚度 l 为^[3]

$$l = 0.86\tau(P \cdot S_f / \sigma_0)^{1/2}, \quad (1)$$

收稿日期: 1991 年 10 月 24 日; 收到修改稿日期: 1992 年 1 月 27 日

* 国家教委优秀青年教师基金资助。

** 保加利亚访问学者。

式中 σ_c 为引起窗口不可逆变化的最小应力, S_f 为防止窗口破裂的安全因子, τ 为窗口半径. 对一个用于真空室中的窗口, 静压差常常是很大的. 这个静压差将导致窗口变形, 结果窗口的焦距 F_w 发生变化, 有^[3]

$$\left. \begin{aligned} F_w &= -\tau^2 / (n - n_0) l \cdot B^2, \\ B &= (3/4) [P(1 - \nu^2) / E] (\tau / l)^3, \end{aligned} \right\} \quad (2)$$

式中 n , n_0 分别为窗口材料和周围介质的折射率, τ , l 为窗口的半径和厚度, E 和 ν 为杨氏模量和泊松系数. 从光学畸变的角度考虑, 为了保证窗口的有效性, 其临界厚度 l_c 为^[3]

$$l_c = 1.68\tau [(n-1)(P/E)^2(2\tau/\lambda)]^{1/5}. \quad (3)$$

使方程(1)和(3)相等, 即使光学畸变与破裂效应具有相同的重要性, 解出 σ_c 便给出了材料的强度 σ_{c0} .

$$\sigma_{c0} = 0.26PS_f [(n-1)^{-1}(E/P)^2(\lambda/2\tau)]^{2/5}. \quad (4)$$

对强度较差的材料, $\sigma_c < \sigma_{c0}$, 窗口的最小厚度是由抗破裂因素确定的; 而对强度较高的材料, $\sigma_c > \sigma_{c0}$, 光学畸变将变成主要因素.

显然, 从抗破裂的角度出发考虑, 则要求窗口材料的热膨胀小, 光学吸收低, 而破裂模量大. Deutsch^[7] 提出了一个品质因数“FOM”, 用来描述一个边缘冷却的光学元件热所引起的破裂特性, 对只有体吸收的窗口为

$$\text{FOM}_{\text{TR}}^{\text{B}} = \sigma K / \alpha \cdot \beta_v \cdot E, \quad (5)$$

对只有表面吸收的窗口为

$$\text{FOM}_{\text{TR}}^{\text{S}} = \sigma K \tau / \alpha A_s E, \quad (6)$$

式中 σ 为破裂模量, K 为热导率, α 为热膨胀系数, β_v 为体吸收系数, A_s 为表面吸收率. 由于实际窗口总是同时存在体吸收和表面吸收, 故引入代替(6)式中 A_s 的有效吸收率 A_e ^[7] 为

$$A_e = (1-R)A_{c1} + (1-R)\beta_v l + A_{c2} + 2A'_s, \quad (7)$$

式中 R 为窗口的反射率, A_{c1} 和 A_{c2} 分别为二个界面上减反射膜的吸收率, A'_s 为窗口-膜层界面的吸收率. 对一个理想减反射膜, $R=0$. A'_s 随不同窗口材料而异, 在本文的计算中,

$$2A'_s = 1 \times 10^{-4}.$$

温度梯度所引起的应力 σ_{cr} 和窗口中心与边缘温度差的临界值有关系^[8]

$$\Delta T_c = 2\sigma_{cr} / \alpha E. \quad (8)$$

2.2 由于热性质导致光学特性畸变

当激光束均匀照明边缘冷却的窗口时, 或当窗口中心的入射能量远远大于边缘时, 窗口中心厚度增加, 产生正焦距(会聚作用). 对离子型晶体, 窗口中心的折射率将小于边缘, 即 $-dn/dT$, 因而得到负焦距(发散作用); 对共价键晶体, 恰好相反. 因此离子型晶体的净焦距可正或负, 甚至无穷大; 而共价键晶体总是正的, 这说明离子型晶体的净光学畸变一般要比共价键晶体小.

Sparus^[1] 和 Deutsch^[7] 给出了用来描述光学畸变的热畸变系数 χ

$$\chi = (dn/dT) + (1-\nu)\alpha(n-1) + (n^3/6)\alpha P_f, \quad (9)$$

式中 P_f 为光学弹性系数. (9)式中第一、二和三项分别对应于温度对折射率、热膨胀和应力的影响. 对本文所研究的材料, 第二项总是正的. χ 的大小直接反映了光学畸变的大小.

对一个能量为高斯分布的激光束, 窗口的温度分布随半径和时间的关系可通过解非稳

态热方程得到^[8]

$$c\rho \frac{\partial}{\partial t} [\Delta T(\tau, t)] = \dot{q}(\tau) + K\nabla^2 [\Delta T(\tau, t)], \quad (10)$$

式中 c 为比热; ρ 为窗口材料的密度. $\dot{q}(\tau)$ 是离窗口中心距离为 τ 的位置上单位时间内进入单位体积的能流.

透过窗口的激光强度变化可写成

$$\Delta I(\tau) = I_0(\tau) - I(\tau) \approx I_0(\tau) \beta_v \cdot l.$$

式中 $I_0(\tau)$ 和 $I(\tau)$ 分别为在窗口 τ 位置上入射和出射的能量. 由于 β_v 很小, 故有

$$\dot{q}(\tau) = [\Delta I(\tau)/l] = I_0(\tau) \beta_v, \quad (11)$$

对高斯分布的激光束, 输入强度为

$$I_0(\tau) = (0.48P_w/\pi\rho_0^2) \exp(-2\tau^2/\rho_0^2), \quad (12)$$

式中 P_w 为激光束功率, ρ_0 为其高斯半径, 即由 e^{-2} 所确定的光斑半径, 把(12)式代入(11)式, 便可得方程(10)的解为^[9]

$$\Delta T(\tau, t) = \frac{0.48P_w A_e}{\pi\rho_0^2 c} \int_0^t \frac{1}{[1+(2t'/t_0)]} \exp\left(\frac{-2\tau^2/\rho_0^2}{[1+(2t'/t_0)]}\right) dt', \quad (13)$$

式中 t_0 为建立热透镜的时间常数. 且 $t_0 = (\rho_0^2 c \rho / 4K)$, 上述积分可以写成级数形式

$$\Delta T(\tau, t) = \frac{0.24P_w A_e}{4\pi k l} \left\{ \ln\left(1 + \frac{2t}{t_0}\right) + \sum_{m=1}^{\infty} \frac{(-2\tau^2/\rho_0^2)^m}{m m!} \left[1 - \left(\frac{1}{1+(2t/t_0)}\right)^m\right] \right\}, \quad (14)$$

式中 $m > 10$ 的项通常可以忽略. 对一个连续激光束, 当时间 $t > 120t_0$ 后, 温度分布达到平衡, 因此利用(14)式, 代入 $t/t_0 = 120$, 可以计算出窗口中心和边缘的温度差 ΔT . 遗憾的是, (14)式仅对 $(\tau/\rho_0) = 0 \sim 1$ 才是正确的, 否则计算结果将有很大偏差.

窗口上不均匀加热引起的中心与边缘的相位差 $\Delta\phi$ 可写成^[2]

$$\Delta\phi = (2\pi/\lambda) l \cdot \chi \cdot \Delta T \quad \text{或} \quad (\Delta\phi/2\pi) = (l/\lambda) \chi \cdot \Delta T, \quad (15)$$

对一边缘冷却的窗口, Deusch^[7] 提出了光学畸变的品质因子, 对体吸收和表面吸收的情况分别为

$$\text{FOM}_D^b = (\lambda \cdot K / \beta_v \chi \tau), \quad (16)$$

$$\text{FOM}_D^s = (\lambda \cdot K / A_s \chi). \quad (17)$$

同样, 可以用(7)式 A_s 来代替 A_s 计算 FOM_D .

3 特性比较

据上讨论, 就可对 Ge, GaAs, ZnSe 和 KCl 的特性作全面的分析、计算和比较. 表 1 列出了四种窗口材料的物理性质. 计算得到的热畸变系数 χ 列于表 2. 从表 2 可知, 这四种材料中, 唯有 KCl 具有负的热畸变系数, 而且数值很低, 因而热致光学畸变可望显著减小. 当激光通过这些材料时, KCl 窗口是以负透镜形式工作的, 而其它三种材料均为正透镜. 在正热畸变系数的三种材料中, ZnSe 具有较低的折射率温度系数, 热膨胀和热应力, 因而 χ 较低. GaAs 虽有负的热应力, 但其值远不能补偿 (dn/dT) . 而 Ge 是最差的一种.

窗口厚度和半径由(1)式和(3)式估算, 表 3 给出了各种参数的计算结果. 对 Ge, GaAs 和 ZnSe 三种材料, $\sigma_{\infty} \approx \sigma_0$, 光学畸变显然是主要矛盾. 实际要求的厚度应该比 l_0 大, 若取

Table 1 The physical properties of Ge, GaAs, ZnSe and KCl

Parameter	Symbol	Units	Ge	GaAs ^[10]	ZnSe ^[10]	KCl
Refractive index at 10.6 μm	n	—	4.00	3.275	2.403	1.457
Temperature dependence of n	$\frac{dn}{dT}$	/°C	277 ^[7]	149	64	-31.3 ^[11]
Thermal conductivity	K	W/cm·°C	0.59 ^[7]	0.48	0.18	0.0654 ^[7]
Expansion coefficient	α	$\times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$	6.1 ^[11]	5.7	7.6	36 ^[11]
Young's modulus	E	10 ⁶ PSI	14.9 ^[4]	12	9.7	4.3 ^[4]
Rupture modulus	σ	PSI	13500 ^[4]	20000	8000	640 ^[7]
Critical stress	σ_c	PSI	13500 ^[4]	20000 ^[5]	6100 ^[2]	330 ^[3]
Hardness	—	Knoop	850	750	120	7.2
Poisson's ratio	ν	—	0.34 ^[7]	0.31	0.28	0.36 ^[7]
Elasto-Optic coefficient	P_f	—	0.27 ^[7]	-0.143	0.105	0.21 ^[12]
Specific heat	c	J/g·°C	0.310 ^[11]	0.325	0.356	0.680 ^[11]

Table 2 The results from the calculation of the thermal distortion coefficient

Parameter	Units	Ge	GaAs	ZnSe	KCl
dn/dT	10 ⁻⁶ /°C	24.52	16.99	13.65	22.37
Thermal expansion (1+ ν) α ($n-1$)	10 ⁻⁶ /°C	17.57	-4.94	1.85	3.90
State of stress $n^3\alpha P_f/6$	10 ⁻⁶ /°C	277.	149.	64.	-31.3
Thermal distortion coefficient acc. to (9) χ	10 ⁻⁶ /°C	319.09	161.05	79.50	-5.03

$s_f=4$, 则实际厚度约为 1.5 cm. 对 KCl, $\sigma_{co} \gg \sigma_c$, 机械破裂是主要问题, 考虑到它是用作激光腔窗口的, 腔内的压力小于 1 Pa, 这表示窗口承受的静压力 $P > 15$ PSI, 因此其厚度取 2.5 cm. 窗口的半径是从实际需要考出发的, 由于 20 kW CW CO₂ 激光束的半径为 3.5~4.5 cm, 故半径取 6 cm.

对 Ge 和 GaAs, 除了高的吸收外, 窗口中心和边缘的位相差 $\Delta\phi$ 也是不可接受的, 即使是 ZnSe, 对一个 20 kW 功率的激光束也嫌太高, 唯有 KCl 的值很低, 且具有很高的光学畸变品质因子, 所以, 毫无疑问, 从光学畸变考虑, KCl 是一种非常满意的材料. 然而 KCl 的

Table 3 The calculated design parameters

Design parameter	Symbol	Units	Ge	GaAs	ZnSe	KCl
Required thickness acc. to (1)	l	cm	0.35	0.29	0.52	2.22
Critical thickness acc. to (3)	l_c	cm	0.33	0.34	0.33	0.37
Strength of equal importance	σ_{c0}	10^3 PSI	15.3	14.4	14.7	12.0
Chosen thickness	l	cm	1.5	1.5	1.5	2.5
Chosen radius	τ	cm	6	6	6	6
Volume absorption coefficient	β_v	cm^{-1}	2×10^{-2} [11]	7.4×10^{-3} [10]	5.7×10^{-4} [10]	1.8×10^{-4}
Absorptance for AR Coatings	$(1-R)A_{c1}+A_{c2}$	—	8×10^{-4}	8×10^{-4}	1.1×10^{-3}	3×10^{-4}
Effective absorptance	A_e	—	0.031	0.012	0.002	0.0009
Temperature difference	ΔT	$^{\circ}\text{C}$	40.1	19.1	8.5	6.3
Phase difference	$\Delta\phi$	rad	113.8	27.4	6.0	0.47
Distortion of a plane wave	$\frac{\Delta\phi}{2\pi}$	number of wavelengths	18.1	4.35	0.96	0.07
Critical temperature acc. to (8)	ΔT_c	$^{\circ}\text{C}$	297	585	165	8.3
FOM _{TF}	—	10^3 W	16.7	70.2	58.6	1.79
FOM _D	—	10^3 W	0.18	0.26	1.2	15.2

抗热破裂的品质因子太小, 临界温度也太低, 这些缺点需用一个冷却系统加以改善. KCl 晶体还有一个缺点是抗潮性差, 因此提供一个保护性能优良的减反射膜是必要的.

4 减反射膜

以反射特性和电场强度作为评价标准, 设计了如下三层减反射膜

$$\text{KCl} \left| 0.759 \frac{\lambda}{4} \text{ZnSe} - 0.538 \frac{\lambda}{4} \text{PbF}_2 - 0.388 \frac{\lambda}{4} \text{ZnSe} \right| \text{Air}$$

其中 $\lambda = 10.6 \mu\text{m}$; ZnSe 和 PbF_2 在 $10.6 \mu\text{m}$ 的光学常数分别为 $2.35 - 0.0001i$ 和 $1.55 - 0.0003i$. 设计的反射率为 $R = 0.00\%$, 吸收率为 $A_e = 0.03\%$,

减反射膜制备的工艺要素包括: (1) 采用新抛光的 KCl 作为基板; (2) 用热辐射源蒸发 ZnSe 和 PbF_2 , 坩埚为石英, 加热为钨丝; (3) 引入氩离子辅助技术.

为了研究减反射膜的吸收, 将样品制成阶梯状, 每层膜均有两个阶梯, 第一个阶梯的厚度极薄, 以便分析表面吸收的影响. 每层膜的二个阶梯蒸发不间断. 然后用一个 $10.6 \mu\text{m}$ 的光热偏转测试装置测量各阶梯上的吸收, 并采用已知吸收率的 KCl 基板定标. 测试结果列于表 4. 由表 4 可知, 1) 虽然测量样品的表面吸收与实际使用的样品有所不同, 但薄膜界面吸收比体吸收大; 2) 低能离子辅助 (40 eV) 样品的吸收要比常规工艺小得多, 主要原因是潮汽吸附减小, 水的吸收降低. 但较高能量的离子辅助轰击 (270 eV) 吸收显著增大, 其原因是膜层化学计量的变化; 3) 膜层的吸收相对于 KCl 基板要大得多, 而且随着层数增加, 吸收增大.

Table 4 Comparisons of absorptance between interface and volume of layers with different processes

Process	Coating	Absorptance, %
	Bare KCl Substrate	0.003
Conventional resistive evaporation	KCl 20 nm ZnSe Air	0.011
	KCl 0.759 $\frac{\lambda}{4}$ ZnSe Air	0.014
	KCl 0.759 $\frac{\lambda}{4}$ ZnSe-30 nm PbF ₂ Air	0.022
	KCl 0.759 $\frac{\lambda}{4}$ ZnSe-0.538 $\frac{\lambda}{4}$ PbF ₂ Air	0.025
	KCl 0.759 $\frac{\lambda}{4}$ ZnSe-0.538 $\frac{\lambda}{4}$ PbF ₂ -20 nm ZnSe Air	0.025
	KCl 0.759 $\frac{\lambda}{4}$ ZnSe-0.538 $\frac{\lambda}{4}$ PbF ₂ -0.388 $\frac{\lambda}{4}$ ZnSe Air	0.044
Ion-assisted resistive evaporation with Ar ⁺ -ion energy of 40 eV	KCl 20 nm ZnSe Air	0.007
	KCl 0.759 $\frac{\lambda}{4}$ ZnSe Air	0.008
	KCl 0.759 $\frac{\lambda}{4}$ ZnSe-30 nm PbF ₂ Air	0.011
	KCl 0.759 $\frac{\lambda}{4}$ ZnSe-0.538 $\frac{\lambda}{4}$ PbF ₂ Air	0.014
	KCl 0.759 $\frac{\lambda}{4}$ ZnSe-0.538 $\frac{\lambda}{4}$ PbF ₂ -20 nm ZnSe Air	0.022
	KCl 0.759 $\frac{\lambda}{4}$ ZnSe-0.538 $\frac{\lambda}{4}$ PbF ₂ -0.388 $\frac{\lambda}{4}$ ZnSe Air	0.027
Ion-assisted resistive evaporation with Ar ⁺ -ion energy of 270 eV	KCl 20 nm ZnSe Air	0.013
	KCl 0.759 $\frac{\lambda}{4}$ ZnSe Air	0.041
	KCl 0.759 $\frac{\lambda}{4}$ ZnSe-30 nm PbF ₂ Air	0.042
	KCl 0.759 $\frac{\lambda}{4}$ ZnSe-0.538 $\frac{\lambda}{4}$ PbF ₂ Air	0.044
	KCl 0.759 $\frac{\lambda}{4}$ ZnSe-0.538 $\frac{\lambda}{4}$ PbF ₂ -20 nm ZnSe Air	0.047
	KCl 0.759 $\frac{\lambda}{4}$ ZnSe-0.538 $\frac{\lambda}{4}$ PbF ₂ -0.388 $\frac{\lambda}{4}$ ZnSe Air	0.051

样品的透射率用 Nicolet DX 傅里叶光谱仪测量, 双面镀膜样品的透射率可达 99%。

用功率为 4 W, 高斯半径(1/e²)约为 0.1 mm CW CO₂ 激光器作破坏试验, 膜层无损伤, 这说明其损伤阈值至少优于 10⁴ W/cm²。当然, 窗口破坏不仅与功率密度相关, 还与总功率相关, 由于 20 kW 激光器受到限制, 此实验尚未进行。

结论 用 KCl 晶体作为基板, 两面镀上 ZnSe-PbF₂-ZnSe 三层减反射膜, 用于 20 kW CO₂ 激光器窗口看来是可行的。

参 考 文 献

- [1] M. Sparus, Optical Distortion by Heated Window in High-Power Laser Systems. *J. Appl. Phys.*, 1971, **42** (12): 5029~5046
- [2] M. Mousler, High-Power Optics. *Opt. Eng.*, 1976, **15** (2): 158~165
- [3] M. Sparus, M. Cottis, Pressure-Induce Optical Distortion in Laser Windows. *J. Appl. Phys.*, 1973, **44** (2): 789~794
- [4] G. H. Shorman, G. Fraizier, Transmissive Optics for High Power CO₂ Laser: Practical Consideration. *Opt. Eng.* 1978, **17** (3): 225~231
- [5] A. Gasser, E. W. Kreutz, K. Wissenbach, Physical Aspects of Surface Processing with Laser Radiation. *Proc. SPIE*, 1988, **1**: 1020, 70~95
- [6] T. Miyata, R & D of optics for high power CO₂ lasers. in *Japanese National Program, SPIE*, 1986, **620**: 131~140
- [7] T. F. Deutsch, Laser Window Materials an Overview. *J. Electr. Material*, 1975, **4** (4): 663~717
- [8] S. J. Sheiden, L. V. Knight, J. M. Thorne, Laser-Induced Thermal Lens Effect: A New Theoretical Model. *Appl. Opt.*, 1982, **21** (9): 1663~1669
- [9] J. R. Whinnery, Laser Measuerment of Optical Absorption in Liquids. *Acc. Chem. Res.*, 1974, **7**: 225~230
- [10] H. E. Reedy, G. L. Herit, Comparison of GaAs and ZnSe for High Power CO₂ Laser Optics. *Proc. SPIE*, 1988, **1020**: 180~191
- [11] J. A. Snage, *Infrared Optical Materials & Their Anti-reflection Coatings*. 1th ed. Adam. H. Hilger Ltd., Bristol, 1985: 50~73
- [12] A. Feldman, D. Horowitz, T. Mijata *et al.*, Photoelastic Constants of Potassion Chloride at 10.6 μm . *Appl. Opt.*, 1977, **16**(11): 2925~2930

High power CO₂ laser window materials and their antireflection coatings

G. A. ATANASSOV GU PEIFU LIU XU TANG JINFA
 (Department of Optical-electric Scientific Instrumentation Engineering,
 Zhejiang University, Hang zhou 310027)

(Received 10 December 1991; revised 16 March 1992)

Abstract

Appropriate figure of merit for describing a material used for a high power laser window has been presented. And characteristics comparisons of four materials including Ge, GaAs, ZnSe and KCl have been made. The optical element made from the single crystals of KCl turned out to have good performance. An antireflection coating with low absorptance and high laser damage threshold has been designed and prepared.

Key words antireflection coatings, laser damage threshold.