

氧化物薄膜抗 1064 nm 脉冲 激光损伤的特性研究

胡建平¹⁾ 马 孜²⁾ 李 伟¹⁾ 付雄鹰¹⁾ 李瑞洁¹⁾

1) 成都精密光学工程研究中心, 成都 610041
2) 西南技术物理研究所, 成都 610041

摘 要 对几种氧化物介质膜料的单层膜、增透膜及高反膜的激光损伤特性进行了实验研究, 分别测试了单脉冲和多脉冲 1064 nm 激光的损伤阈值, 分析和讨论了实验的物理现象及其结果。研究表明 SiO₂、Gd₂O₃、Er₂O₃、Y₂O₃ 具有激光损伤阈值高、损伤程度轻的特点, 特别对 10 Hz 激光而言, 更是明显; 增透膜及高反膜加 $\lambda/2$ 层 SiO₂ 对其激光零损伤概率阈值影响不大, 但在能量密度大于损伤阈值的情况下, 可明显降低薄膜的激光损伤程度和损伤几率。

关键词 氧化物薄膜, 脉冲激光, 激光损伤阈值。

1 引 言

在高功率激光系统中, 光学薄膜作为激光器光学元件中的一个重要组成部分, 通常是重要而薄弱的环节。薄膜的损伤阈值是限制激光器提高输出功率及降低造价的主要因素, 特别对惯性约束聚变实验用的高能量高功率激光器来说更是如此。

光学薄膜抗激光损伤阈值与多种因素有关, 包括基片加工及清洗参数、镀膜工艺参数及镀膜材料等, 其中膜材料的选定是较重要的一环, 这方面的研究主要集中在 HfO₂、ZrO₂ 等高折射率材料上^[1], 其它氧化物膜料所镀膜系抗 1064 nm 激光损伤的特性报道少, 也不系统。为了弄清膜料耐激光诱导损伤的能力, 本文选定几种有潜力的膜材料进行下列激光损伤特性研究:

1) 材料单层膜激光诱导损伤试验; 2) 不同材料电子蒸发反应镀增透及高反膜的激光诱导损伤实验。

2 实验条件及准备

2.1 损伤测试系统及方法

薄膜损伤阈值测量系统是由 Nd:YAG 调 Q 激光器、He-Ne 准直光源、分光光楔、聚焦凸镜和可移动样品平台及能量计组成。XW-BB-001 型 Nd:YAG 脉冲激光器输出波长 1064 nm, 模式 TE₀₀, 脉宽(FWHM)为 9 ns, 最大脉冲能量为 1 J, 能量稳定度为 2%, 重复率分别为 1 Hz、5 Hz、10 Hz。样品平台可 X-Y-Z 三方向移动, 能保证测试光斑在薄膜不同区域进行

激光损伤测试。激光能量用美国 EM 500 大能量探头能量计测量, 测量精度 1%, 测试点光斑大小用刀口扫描法测量, 测得占能量 86.3% 的光斑直径为 0.9 mm。

目前, 薄膜的激光损伤阈值有两种定义方法^[2-3], 即零损伤概率阈值和 50% 损伤概率阈值。零损伤概率阈值表示激光能量密度等于或小于此值时, 薄膜不发生激光诱导损伤, 大于此值, 则发生一定概率的损伤现象; 50% 损伤概率阈值可用下式表示:

$$D_{th} = \frac{F_{\max(ND)} + F_{\min(D)}}{2}, \quad S = \frac{(F_{\max(ND)}) - F_{\min(D)}}{D_{th}}, \quad (1)$$

其中 D_{th} 为损伤阈值, S 为阈值的扩展范围, $F_{\max(ND)}$ 和 $F_{\min(D)}$ 分别为薄膜最高不损伤能量密度和最低损伤能量密度。现在, 人们倾向用零损伤概率阈值表征光学元件激光损伤阈值, 最近制定的阈值测量国际标准 ISO 11254, 采用的也是零损伤概率阈值, 故本实验所测阈值均用零损伤概率阈值表征。

薄膜损伤阈值用两组激光参数测量, 一种是小光斑单次单点测试, 得到所谓的 1:1 损伤阈值; 另一种是 10 Hz 脉冲激光 100 次单点测试, 得到所谓的 10:1 损伤阈值。薄膜激光诱导损伤的判定是一项比较困难的工作, 人为因素较大, 也不易准确确定。本文采用国际流行的等离子体火花观察法, 雾气及相衬显微镜观察等多种方法综合判定, 并以等离子体火花观察法为主, 尽量减少人为因素的干扰。

2.2 薄膜样品

镀膜基片为 $\phi 30 \text{ mm} \times 5 \text{ mm}$ 的 K₉ 光学玻璃, 表面粗糙度用美国 RSTPLUS 粗糙度仪测量, 平均为 5 nm(rms) 左右, 基片镀膜前用丙酮清洗。所有测试薄膜样品由美国进口的 C-36 镀膜机镀制, 它由 CT 1400 型冷凝泵抽高真空, 为无油高真空系统, 膜厚控制采用俄罗斯 AOS-3 宽光谱监控光学膜厚系统及石英晶振膜厚控制系统。

本实验选定了 8 种镀膜材料, 有常用的 TiO₂、HfO₂、ZrO₂、SiO₂、Y₂O₃, 也有 Gd₂O₃、Dy₂O₃、Er₂O₃ 种稀土金属氧化物, 材料纯度均为 4N 光谱纯。镀制了下列类型的薄膜试片(薄膜中心波长 1064 nm): 1) 半波长单层膜; 2) 增透膜; 3) 高反膜。其中, 各种膜的镀膜参数基本相同, 单层膜镀半波长厚度是为了减少和消除损伤过程中的光电驻波场效应, 增透和高反膜有一些试片分别在基片和膜堆之间、膜堆外层镀了 $\lambda/2$ 层 SiO₂。

3 实验结果与讨论

3.1 单层膜

用上述 8 种材料分别镀了 A、B、C、D 四灶 $\lambda/2$ 单层膜, 监控波长 1064 nm, 每灶 2 片, 其激光损伤阈值的测量结果如图 1、图 2 所示。从图可看出, 材料单层膜 A、B、C、D 灶的损伤阈值差别不大, 有些则基本相同, 说明在同一镀膜机、同一镀制工艺下, 薄膜的损伤阈值有一定重复性。另外, 薄膜激光单次单点(1:1)损伤阈值与 10 Hz 激光多次单点(10:1)损伤阈值相比, 明显要高, 其相差幅度与膜材料有关, TiO₂ 相差最大, 1:1 损伤阈值为 20 J/cm², 而 10:1 损伤阈值仅为 1.4 J/cm²; 稀土材料 Gd₂O₃、Dy₂O₃、Er₂O₃ 两种损伤阈值的差别较小, 其中 Er₂O₃ 相差最小。在重复频率激光脉冲照射下, 相对于单次单点辐照方式, 薄膜能量吸收累积效应明显, 其损伤阈值更易受材料的熔化温度、热传导率、热扩散率和吸收系数等性质的影响。

在进行损伤概率统计实验时, 发现各种材料的 10:1 损伤发生的物理现象也不尽相同, 当激光能量密度大于薄膜损伤阈值时, TiO₂ 膜层最易出现等离子体小火花, 并不间断地变成等

离子大火花,造成薄膜灾难性损伤。而 HfO_2 、 ZrO_2 、 Dy_2O_3 材料一般在几十次辐照后,出现等离子体小火花,然后逐渐累积成等离子体大火花。 SiO_2 、 Gd_2O_3 、 Er_2O_3 、 Y_2O_3 等材料,损伤点的损伤一般发生在数十次激光辐照之后,损伤过程有点特别,一般出现等离子体小火花闪几次,然后小火花消失,有时直到 100 次脉冲照完仍不出现等离子体闪光,有时则又会出现等离子体小闪光,只有少数损伤点累积成灾难性损伤,特别是 Er_2O_3 材料表现得尤为明显,在损伤概率为 80% 的激光能量照射下,损伤点大多数仍不发生等离子体大火花等灾难性损伤。

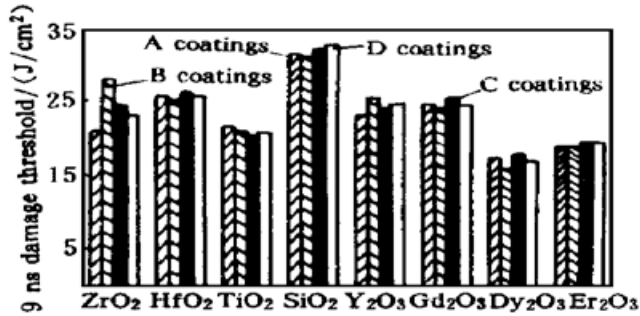


Fig. 1 Laser damage threshold measured at 1064 nm laser single shot with 9 ns pulse for $\lambda_{1.06\mu\text{m}}/4$ single layers of a few thin-film materials

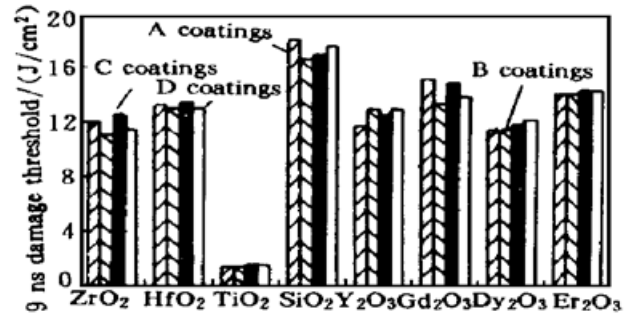


Fig. 2 Laser damage threshold measured at 1064 nm laser multi-shot with 9 ns and 10 Hz pulse for $\lambda_{1.06\mu\text{m}}/4$ single layers of a few thin-film materials

材料单层膜 10:1 激光损伤形貌如图 3 中照片所示,损伤形貌照片由暗场相衬显微镜拍

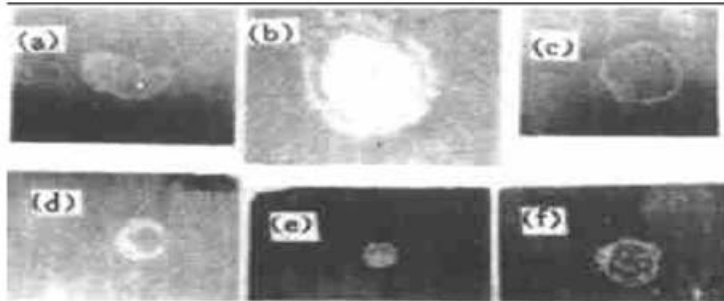


Fig. 3 Damage morphology from 1064 nm laser radiation with 10 Hz pulse to TiO_2 (a), Dy_2O_3 (b), ZrO_2 (c), HfO_2 (d), Er_2O_3 (e), Y_2O_3 (f)

得,放大倍率为 $64\times$ 。 TiO_2 和 Dy_2O_3 的损伤形貌相似,损伤图形边缘呈网状,中间发白。较特别的是, TiO_2 损伤轮廓为椭圆状。 ZrO_2 、 Y_2O_3 的损伤轮廓边缘为锯齿状,轮廓线以内膜层基本上完全剥离。 Er_2O_3 的损伤边界为清晰的圆环,基本是激光束斑图形,中间损伤形貌为网状。 HfO_2 损伤图形的部分边缘呈网状,与 Dy_2O_3 相似,而余下边缘光滑,与 Er_2O_3 相似,损伤图形中间这层完全剥离,与 ZrO_2 相似。

3.2 增透膜和高反膜

对 1064 nm 的增透膜、高反膜试片高折射率材料用 HfO_2 、 ZrO_2 、 Y_2O_3 、 Gd_2O_3 ,低折射率材料用 SiO_2 镀制,其中增透膜有一批试片在基片与膜堆之间加镀 $\lambda/2$ 层 SiO_2 ,高反膜有一些试片在膜堆外加镀 $\lambda/2$ 层 SiO_2 保护层。增透、高反膜系 1:1 和 10:1 的损伤阈值如图 4 所示,结果表明,增透膜试片 1:1 损伤阈值比 10:1 损伤阈值几乎要高一倍,表明在重复频率激光脉冲照射下,薄膜损伤可能主要由材料或其缺陷吸收并累积能量,造成薄膜等离子体喷溅和热熔而形成。高反膜的 1:1 损伤阈值与 10:1 损伤阈值相比,相差不大,但都比增透膜低 20% 左右,这可能是高反膜膜层较多,因而镀膜过程中,引入的缺陷密度较大的缘故。

增透膜和高反膜堆附加 $\lambda/2$ 层 SiO_2 保护层,实验表明对整个膜堆零损伤阈值的提高影响不大,这似乎与已报道的结论有点差异^[4-5],但在测试 HfO_2 增透膜及高反膜的损伤概率实验

过程中,发现加 $\lambda/2$ 层 SiO_2 保护膜的增透膜及高反膜,在一定的激光能量密度下,发生损伤的概率明显较普通增透高反膜小,因而可提高膜堆的 50% 损伤概率阈值。另外它可大大降低膜堆灾难性损伤发生的几率。例如,对于 HfO_2 高反膜来说,试片# 863 没加 $\lambda/2$ 层 SiO_2 保护膜,其损伤阈值为 11.83 J/cm^2 ,对于能量密度 14 J/cm^2 激光,可观察到灾难性损伤发生,而试片# 866 加入 $\lambda/2$ 层 SiO_2 保护膜,其损伤阈值与# 863 试片相差不大,为 11.72 J/cm^2 ,但对于 80% 损伤概率的激光能量密度 22 J/cm^2 ,膜堆的损伤也只是等离子小火火花不连续闪几次,没有发展成灾难性损伤,损伤点用 $64\times$ 相衬显微镜不易观察。至于 HfO_2 增透膜,加 $\lambda/2$ 层 SiO_2 的结果与高反膜相似,例如试片# 852 加镀 $\lambda/2$ 层 SiO_2 ,其损伤阈值为 15 J/cm^2 ,而用损伤概率 87% 的能量密度 21 J/cm^2 照射时,膜堆没有发生等离子大火花等灾难性损伤。



Fig. 5 Damage morphology from 1064 nm laser radiation with 10 Hz pulse to AR of $\text{Y}_2\text{O}_3/\text{SiO}_2$ (a), AR with $\lambda/2$ layer SiO_2 of $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ (b), HR of $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ (c)

863 为 HfO_2 高反膜,损伤形貌表现为膜层剥离,可清晰看到多层膜的损伤界面。试片# 852 为 HfO_2 增透膜,并镀 $\lambda/2$ 层 SiO_2 保护膜,其损伤形貌特点是在光斑大小区域内,形成许多针孔状损伤,这种损伤形貌特点有可能是 $\lambda/2$ 层 SiO_2 膜的影响所至。

3.3 损伤阈值的测量误差

薄膜损伤阈值的测量误差是由损伤阈值测量系统的固有误差和损伤现象判定的不确定性所引起,测量系统的误差主要由能量计误差、光楔分光比误差等组成,样品测试点光斑测量误差,特别是光斑面积误差对损伤阈值大小影响最大,光斑大小采用刀口扫描测量,测三次,测得直径为 0.9 mm ,误差不大于 $\pm 3\%$ 。分光光楔的能量分光比也测三组数据,每组取 600 次脉冲的平均能量,算出能量分光比,误差不大于 $\pm 2\%$,能量计的固有误差为 $\pm 1\%$ 。对阈值计算公式求微分可得:

$$|\Delta D_{th}/D_{th}| \leq |\Delta E/E| + |\Delta A/A| + 2|\Delta d/d|, \quad (2)$$

式中 E 、 A 分别表示能量计的能量读数和分光光楔的能量分比, d 为测试束斑的直径。因而,薄膜阈值的计算误差不大于 $\pm 9\%$ 。

薄膜激光损伤现象的判定所引起的阈值误差不确定性较大,判定的方法也很多。在本次实验中,主要以薄膜受激光照射后,出现等离子闪光为损伤判定依据,再助以雾气法及相衬显微镜观察。由于有些损伤点等离子体闪光较小,用雾气法及显微镜均观察不到任何变化,但我们也判为损伤发生,因而,从损伤判定的角度来看,薄膜损伤阈值的大小基本上是保守的。

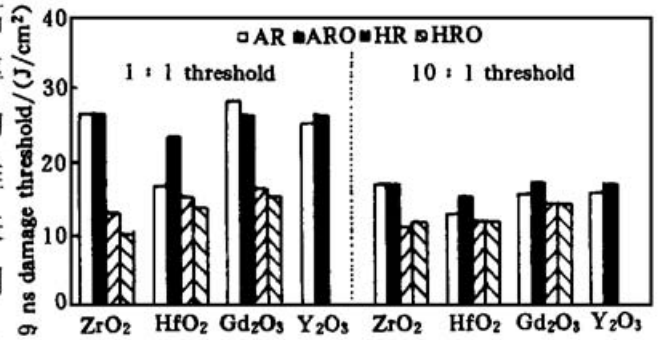


Fig. 4 Laser damage thresholds measured at 1064 nm laser single shot and multi-shot with 9 ns and 10 Hz pulse for AR and HR coatings of some thin-film materials

增透高反膜典型的损伤形貌如图 5 所示,由 $64\times$ 相衬显微镜拍得,膜损伤由 10 Hz 激光脉冲造成。从图中可以看出,在重复频率激光脉冲照射下,增透高反等多层膜的损伤特性基本表现为激光热熔而导致膜层剥离,例如试片# 840 为 Y_2O_3 镀制的增透膜,损伤形貌为膜剥离状,可清晰看到两层膜的损伤情况。试片# 863 为 HfO_2 高反膜,损伤形貌表现为膜层剥离,可清晰看到多层膜的损伤界面。试片# 852 为 HfO_2 增透膜,并镀 $\lambda/2$ 层 SiO_2 保护膜,其损伤形貌特点是在光斑大小区域内,形成许多针孔状损伤,这种损伤形貌特点有可能是 $\lambda/2$ 层 SiO_2 膜的影响所至。

结 论

1) 在相同的镀膜工艺条件下, 同种膜料所镀薄膜的激光损伤阈值有一定重复性。

2) 从膜材料的损伤特性来判断, Gd_2O_3 、 Er_2O_3 、 Y_2O_3 激光损伤程度小, 特别对重复频率激光脉冲来说, 不易发生灾难性严重损伤, 薄膜能量累积效应小, 耐损伤能力强; HfO_2 、 ZrO_2 等材料熔点高, 有较强的耐单次激光损伤的能力, 但因其热导率小, 有一定的能量累积效应, 对重复率激光易产生严重损伤; TiO_2 实验表明不宜制作强激光薄膜。

3) 从损伤形貌及过程判断, 薄膜在高重复频率激光下的损伤可能主要由热效应造成, 薄膜的耐激光损伤能力与薄膜材料的热学性质有关。

4) 增透膜和高反膜加镀 $\lambda/2$ 层 SiO_2 膜, 对其零损伤概率阈值的提高帮助不大, 但对大于损伤阈值的高能量密度激光来说, 能降低薄膜损伤概率, 减小损伤程度, 因而能显著提高薄膜 50% 损伤概率阈值。

参 考 文 献

- [1] Fournet C, Pinot B, Geenen B *et al.* . . High damage threshold mirror and polarizers in the ZrO_2/SiO_2 and HfO_2/SiO_2 dielectrics systems. *Proc. SPIE*, 1991, **1624**: 282~ 293
- [2] Guenther K H. 1064 nm laser damage of thin film optical coatings: A round robin experiment. *Appl. Opt.*, 1984, **23**(21): 3743~ 3752
- [3] Becker J, Bernhardt A. ISO11254, an international standard for the determination of the laser induced damage threshold. *Proc. SPIE*, 1994, **2114**: 703~ 713
- [4] Carniglia C K, Aptel J H, Carrier G B *et al.* . . The investigation of effects of a barrier layer on damage to 1.064 AR coatings. *Laser-Induced Damage in Optical Material*, Nat. Bur. Std(U. S. A), Spec. Publ. 1978, **541**: 218~ 225
- [5] Carniglia C K, Hart T T, Staggs M C. Effect of overcoats on 355 nm reflector. *Laser-Induced Damage in Optical Material*, Nat. Bur. Std(U. S. A), Spec. Publ. 1984, **727**: 285~ 290

1064 nm Pulse Laser Damage of Oxide Coatings

Hu Jianping¹⁾ Ma Zi²⁾ Li Wei¹⁾ Fu Xiongying¹⁾ Li ruijie¹⁾

1) Chengdu Fine Optical Engineering Research Centre, Chengdu 610041
2) South-West Institute of Technical Physics, Chengdu 610041

(Received 13 April 1998; revised 9 November 1998)

Abstract The laser-induced damage of several kinds of dielectric thin-film materials in $\lambda/2$ thin-films forms, AR and HR coatings has been studied. The damage threshold has been measured by the 1064 nm laser with single shot and 10 Hz pulse multishot respectively. The data and damage morphologies are discussed in details and some conclusion are drawn concerning pulsed laser-induced damage of the coatings: a) optical materials Er_2O_3 , Y_2O_3 , Gd_2O_3 etc. have high damage threshold with 1064 nm laser at single shot and multishot, specially to 10 Hz laser irradiation, the damage size is smaller than other materials. b) the $\lambda/2$ layer SiO_2 of AR and HR coating has no influence on the onset threshold, but can obviously drop the possibility and level of the damage.

Key words oxide coatings, pulse laser, laser damage threshold.