

激光预处理对 HfO₂ 薄膜损伤特性的影响

杨利红 王 涛 苏俊宏 韩锦涛

(西安工业大学光电工程学院, 陕西 西安 710021)

摘要 研究了在 1-on-1 情况下, 采用不同激光能量对 HfO₂ 薄膜进行预处理后, 薄膜的光学特性、损伤阈值以及损伤形貌变化的机理。实验采用阈值能量的 10%、30%、50%、70% 对薄膜进行 1-on-1 预处理, 经过预处理后的薄膜表面粗糙度平均从 2.62 nm 降低到 2.41 nm。随着能量阶的提升, 激光预处理后薄膜在 1064 nm 处的透射率与预处理前相比均有所增大。激光损伤阈值先增后降, 30% 能量预处理的薄膜损伤阈值最高, 达到了 26.86 J/cm², 增幅为 56%。对比预处理前后的损伤形貌可知, 30% 能量预处理后薄膜在 140 mJ 能量下, 损伤深度由预处理前的 98 nm 减小到了 30 nm, 损伤斑个数由预处理前的 5 个减少到了预处理后的 1 个。实验结果表明: 膜内杂质缺陷是导致 HfO₂ 薄膜阈值降低的因素, 低能量的激光预处理薄膜有消除杂质缺陷, 平整、固化膜层的作用, 因而可以有效地提高薄膜的激光损伤阈值。

关键词 薄膜; 激光预处理; 杂质; 1-on-1; 粗糙度; 损伤斑

中图分类号 O484 文献标识码 A doi: 10.3788/AOS201333.1231001

Influence of Laser Conditioning on the Damage Properties of HfO₂ Thin Film

Yang Lihong Wang Tao Su Junhong Han Jintao

(School of Optoelectronics Engineering, Xi'an Technological University,
Xi'an, Shaanxi 710032, China)

Abstract The effects of different laser fluences on the optical properties of HfO₂ thin films mainly including damage threshold and damage morphology, are studied under 1-on-1 condition. In experiment, the energies of 10%, 30%, 50% and 70% of the threshold energy are used to condition the HfO₂ films in 1-on-1 mode. After conditioning, the surface roughness decreases from 2.62 nm to 2.41 nm. With the energy increasing, the transmittance at 1064 nm is enlarged with conditioning. The damage threshold is increased firstly, and then decreases. When the energy is 30% of the threshold energy, the damage threshold reaches the maximum value of 26.86 J/cm² and increases by 56%. Comparing the damage morphology between conditioning and without conditioning, after the film is conditioned with 30% of the threshold energy, the damage depth under 140 mJ laser irradiation decreases from 98 nm without conditioning to 30 nm and the damage spot number decreases from 5 to 1. The experiment result shows that inclusions are the main factors of threshold decrease and conditioning with low laser fluences has the effect of decreasing the defects and solidifying the film, thus it can improve the laser-damaged threshold of films.

Key words thin films; laser conditioning; inclusions; 1-on-1; roughness; damage spot

OCIS codes 310.6860; 310.6870; 310.4925

1 引 言

激光因其单色性好、亮度高、发散角小等优点, 近年来被广泛应用于航空航天及兵器工业领域。光学薄膜是光学系统中不可或缺的元件之一, 它在系

统中起着增透、分光以及保护层的作用。就增透膜和分光膜来说, 膜层本身是极其脆弱的, 这和激光的高强度是矛盾的。薄膜在强激光作用下会受到损伤, 这种损伤不仅降低激光的输出质量, 造成光束波

收稿日期: 2013-06-04; 收到修改稿日期: 2013-07-01

基金项目: 国家自然科学基金(61378050)、陕西省教育厅专项科研计划项目(12JK0996)、陕西省科学技术研究发展计划项目(2011KW-05)

作者简介: 杨利红(1974—), 女, 博士, 副教授, 主要从事光电检测及激光损伤方面的研究。E-mail: 53751807@qq.com

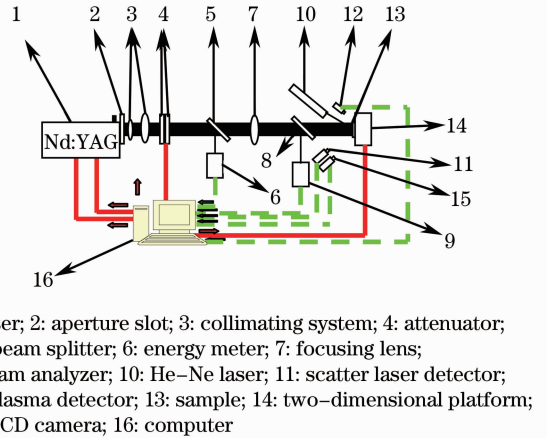
前和相位的畸变,而且调制激光光束,对激光器造成灾难性的破坏^[1]。

为了解决这种矛盾,必须提高薄膜的抗激光损伤能力。国内外学者对如何提高薄膜的抗激光损伤能力做了深入的研究^[2-6],主要有三种措施,分别是选择高阈值的薄膜材料,选择合适的制备工艺和激光预处理薄膜。国外有关研究证明,经过激光预处理的光学薄膜其损伤阈值最高可提高到处理前的2~3倍^[7]。HfO₂材料集众多优异的性质于一身,熔点、硬度及强度高,热稳定性和化学稳定性好,同时具有高的介电常数和击穿场强^[8]。另外,HfO₂材料带隙较宽,约为5.5 eV,因此具有很宽的透光范围,从紫外到红外都有很高的透射率。而且其在高折射率材料中具有最高的激光损伤阈值^[9]。本文采用激光预处理方式对电子束热蒸发镀制的单层HfO₂薄膜进行激光预处理,以期得到更高的损伤阈值。

2 实验装置及原理

本实验采用的装置是实验室自主研发的激光损伤阈值测试仪,此仪器不但可以测试薄膜激光损伤阈值,而且还可以对薄膜进行激光预处理。激光处理时间是由脉冲宽度和激光重复频率决定的,激光能量一定时,激光脉宽越窄对薄膜的损伤就越严重,重复频率越高对薄膜预处理时间就越长,薄膜材料表面累积能量就越大,对薄膜产生的损伤也就越严重。采用波长为1064 nm的Nd:YAG激光,其脉冲宽度为10 ns,重复频率为1 Hz。系统装置如图1所示,主要由光源、能量衰减系统、扩束准直系统、样品台、CCD图像采集系统等部分组成。其中抽运光源为1064 nm的Nd:YAG激光器,最大输出能量为200 mJ。精密步进电机的最小步距为0.1 mm。样品直径为25 mm。实验系统原理为激光器发光经由扩束准直系统扩束为直径20 mm的平行高斯光束,再经衰减器衰减、透镜会聚等到达样品表面,此时光束直径约为0.8 mm。3组衰减片组成的衰减系统有125种能量组合,通过不同衰减片组合控制作用于薄膜的激光能量。分束器将3%的抽运光能量分给能量计进行激光能量实时监控。采用的阈值测试方法为零几率损伤法,等间隔取10个能量阶,每个能量阶测试10个点,相邻点距离为1.5 mm,得到每个能量阶的损伤几率后拟合直线并且外推即可求得激光损伤阈值。预处理方式采用1-on-1的光栅扫描方式,所谓1-on-1是指每个处理点只接受一个脉

冲辐照,且所有点所接受的脉冲辐照能量均相等,相邻点间距为0.6 mm,当光斑沿 x 方向移动完成后下移一行沿 $-x$ 方向移动,这样不断循环往复直到走完程序所规定的点数,这同光谱仪里的光栅工作方式相似,故称其为光栅扫描方式。



1: laser; 2: aperture slot; 3: collimating system; 4: attenuator; 5,8: beam splitter; 6: energy meter; 7: focusing lens; 9: beam analyzer; 10: He-Ne laser; 11: scatter laser detector; 12: plasma detector; 13: sample; 14: two-dimensional platform; 15: CCD camera; 16: computer

图1 激光损伤阈值测试仪

Fig. 1 Laser damage threshold testing instrument

3 实验结果

HfO₂薄膜采用电子束热蒸发方式镀制。基底为K9玻璃,烘烤温度200℃,本底真空度 4×10^{-3} Pa,工作真空度 2×10^{-2} Pa,氧气流量3.2 sccm(sccm为标准状况下1 mL/min),束流200 mA。用白光干涉仪对制备的同一批薄膜进行厚度测试,其中最大厚度为140 nm,最小厚度为130 nm,14片平均厚度为135 nm。厚度偏差在4%以内,说明了电子束蒸发方式镀制的薄膜均匀性较好。

3.1 阈值测试及预处理

阈值测试和预处理共用薄膜样片9片,分别编号1~9。对1~4号样片进行阈值测试,如表1所示。其平均阈值为18.35 J/cm²。取平均阈值能量的10%、30%、50%、70%、90%分别对样片5~9进行1-on-1预处理。

表1 预处理前薄膜阈值测试

Table 1 Film threshold test before conditioning

Sample number	1	2	3	4
Threshold/(J/cm ²)	18.81	17.18	18.23	19.19

3.2 粗糙度测试

利用Veeco公司的Innova原子力显微镜(AFM)对5~9号样片进行粗糙度测试。激光预处理前,样片5中粗糙度最大为2.64 nm,最小为2.60 nm。预处理后,粗糙度最大为3.37 nm,最小为2.31 nm,剔

除 9 号样片数据,经计算平均粗糙度值从 2.62 nm 降低到 2.41 nm。粗糙度测量值如表 2 所示,走势如图 2 所示。取 5 号样片的 AFM 形貌图与预处理后的 5 个样片 AFM 形貌图进行对比,结果如图 3 所示。

表 2 预处理前后薄膜粗糙度测试

Table 2 Roughness test before and after conditioning

Sample number	5	6	7	8	9
Before conditioning /nm	2.60	2.63	2.62	2.64	2.62
After conditioning /nm	2.41	2.39	2.31	2.51	3.37

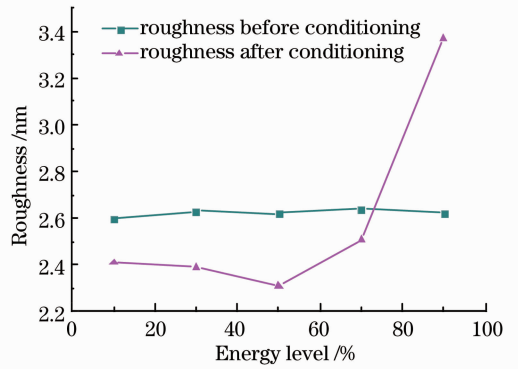


图 2 预处理前后粗糙度走势

Fig. 2 Roughness trend before and after conditioning

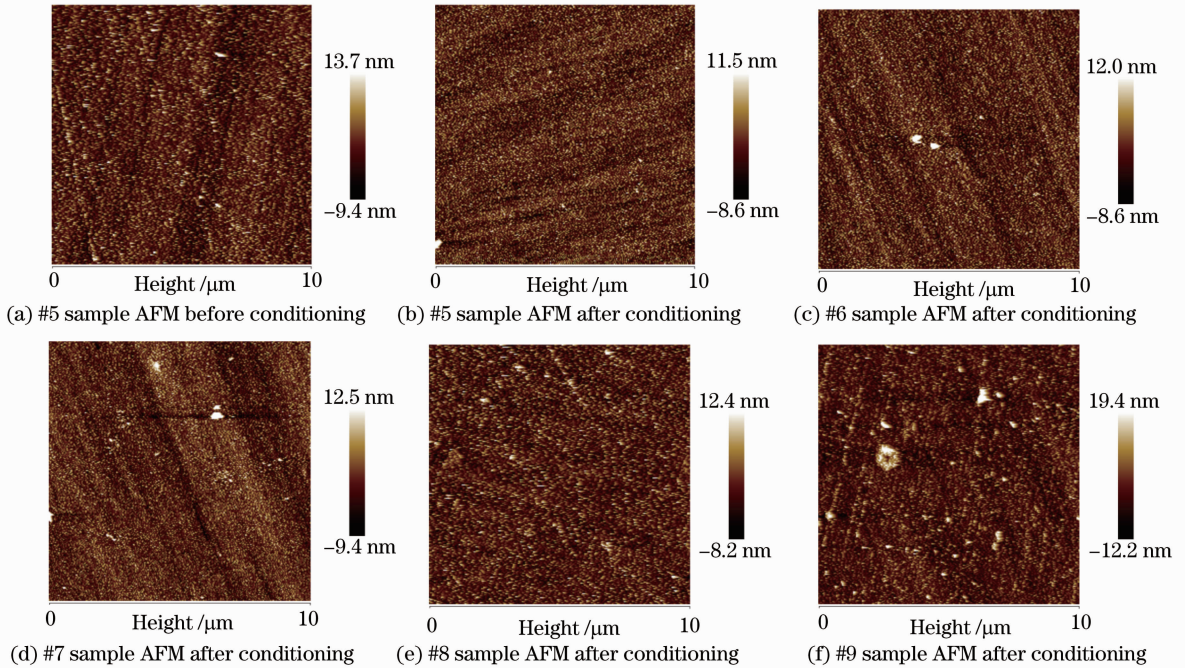


图 3 预处理前后 AFM 对比图

Fig. 3 AFM comparison before and after conditioning

3.3 透射率测试

由图 2 和图 3 可知,阈值 90% 的能量阶对薄膜进行预处理后反而使薄膜表面粗糙度增大,损伤加剧,故在测量透射率时将其剔除。激光预处理前后,利用 U-3501 分光光度计对 5~8 号样片进行透射率测试,测试结果如图 4 所示。

3.4 预处理后阈值测试

对预处理后的 5~9 号薄膜样片进行阈值测试,剔除 9 号样片数据后,其平均阈值为 24.95 J/cm²。阈值测试结果如表 3 所示,走势图如图 5 所示。

3.5 损伤形貌测试

图 6 是 10 号样品在 140 mJ 能量下由 Taylor

Surf CCI 2000 白光干涉仪所测得的损伤斑和损伤深度图。用 10%、30%、50%、70% 能量阶预处理 11~14 号样片并用 140 mJ 的能量进行测试,利用白光干涉仪对测试后的损伤形貌进行检测,图 7、图 8 分别是在不同能量阶预处理下对应的损伤斑和损伤深度图。

表 3 预处理后薄膜阈值测试

Table 3 Film threshold test after conditioning

Sample number	5	6	7	8	9
Conditioning energy /mJ	9.22	27.66	46.10	64.53	82.97
Threshold / (J/cm ²)	24.13	26.86	25.38	23.44	13.52

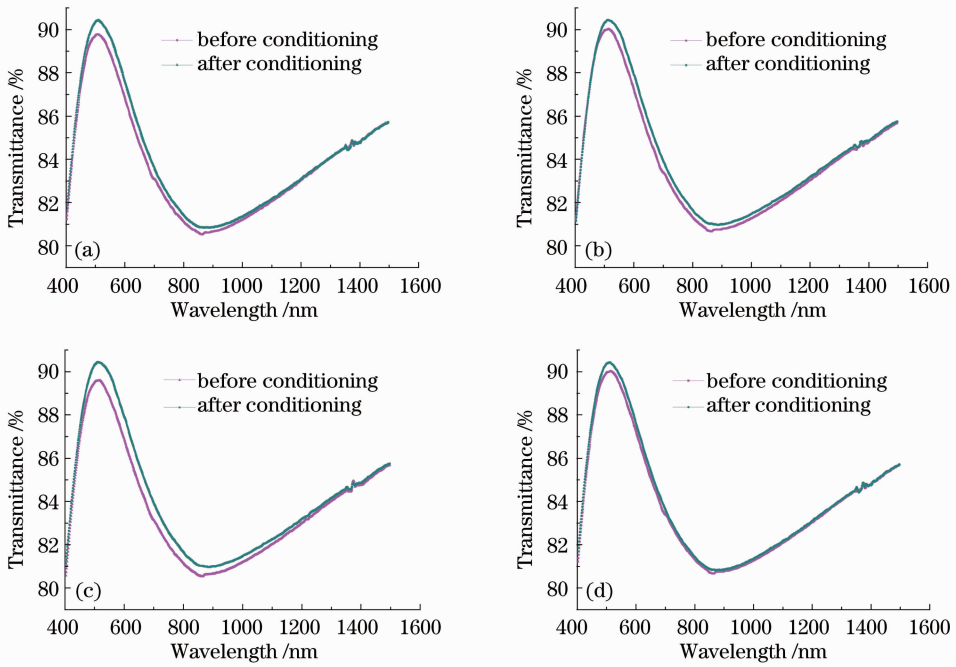


图 4 预处理前后透射率对比图。(a) #5; (b) #6; (c) #7; (d) #8

Fig. 4 Transmittance comparison before and after conditioning. (a) #5; (b) #6; (c) #7; (d) #8

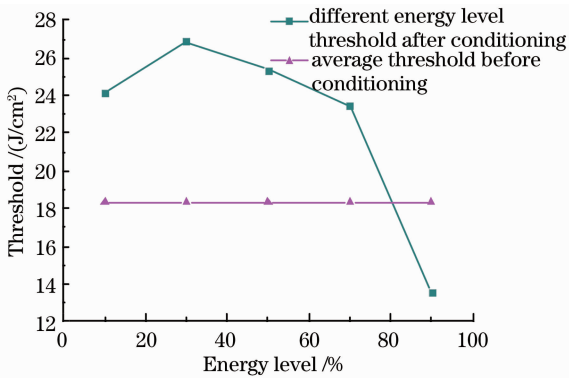


图 5 预处理后阈值走势

Fig. 5 Threshold trend after conditioning

4 结果分析

由图 2 可知,预处理后除了 9 号样片以外,其余的 4 个样片的粗糙度均有所降低,这表明激光预处理有平整薄膜表面的作用。其中 50% 的能量阶预处理的 7 号样片粗糙度降低幅度最大,这说明了此能量对表面的平整作用最强。由图 3 的 AFM 形貌图可知,预处理前的样片表面较粗糙,预处理后的 5 号、6 号、7 号样片表面变得细腻、光滑,但在 6 号、7 号样片表面出现了损伤斑,这种损伤斑是激光清除薄膜内部杂质时留下的,8 号样片表面的粗糙程度和预处理前样片表面粗糙程度相近,9 号样片表面形貌明显变差,这是由于预处理能量接近薄膜损伤阈值所造成的。在激光预处理薄膜过程中,薄膜表

面吸附的杂质颗粒、灰尘以及薄膜内部杂质缺陷会被激光打飞,薄膜表面吸附的杂质颗粒、灰尘以及内部缺陷被打飞的这一现象可以通过实验中显微 CCD 的实时监控观察到。内部缺陷被打飞是由于杂质缺陷吸收激光能量首先气化,甚至高度离化,产生等离子体,缺陷的气化以及等离子体的向外膨胀都对缺陷顶部的膜层产生向上的冲力所致。预处理后薄膜表面粗糙度降低说明了激光具有清除其表面吸附的杂质颗粒和灰尘的作用,而薄膜表面出现损伤斑是激光清除其内部杂质的一种宏观体现。

为了验证激光预处理对薄膜表面的平整作用,对预处理后的薄膜进行透射率测试,图 4 是预处理前后样片的透射率曲线图。从预处理后的透射率可以看出透射率均有微小上升,这是由于薄膜表面预处理后粗糙度降低,散射损耗减小引起的。其中 50% 能量阶预处理的 7 号样片上升幅度最大,说明此能量下的薄膜损耗最小。透射率增大间接证明了激光预处理具有平整薄膜表面的作用。虽然预处理后透射率有微小变化,但在大多数情况下这种微小变化不会影响光学系统正常工作,因此激光预处理对薄膜透射率的影响可以忽略。

由图 5 可以看出,经过预处理的样片和未经预处理的样片阈值差别很大,样片经过不同的能量阶处理其阈值也是不同的。实验结果表明,预处理的能量由低到高时,样片的阈值先增大后减小,在 30%

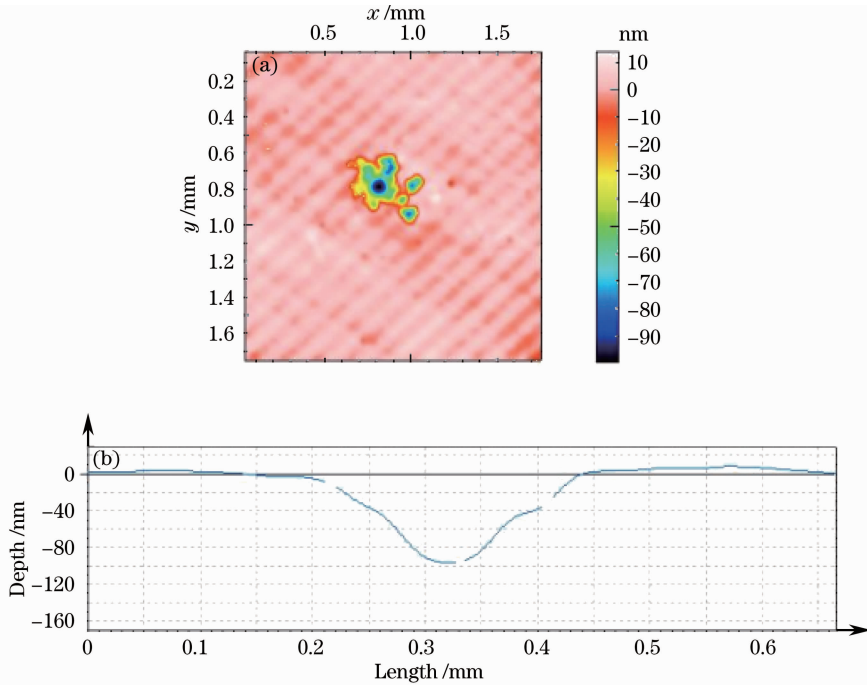


图 6 预处理前 140 mJ 能量作用下(a)损伤斑及(b)深度图

Fig. 6 (a) Damage spots and (b) damage depth under 140 mJ energy before conditioning

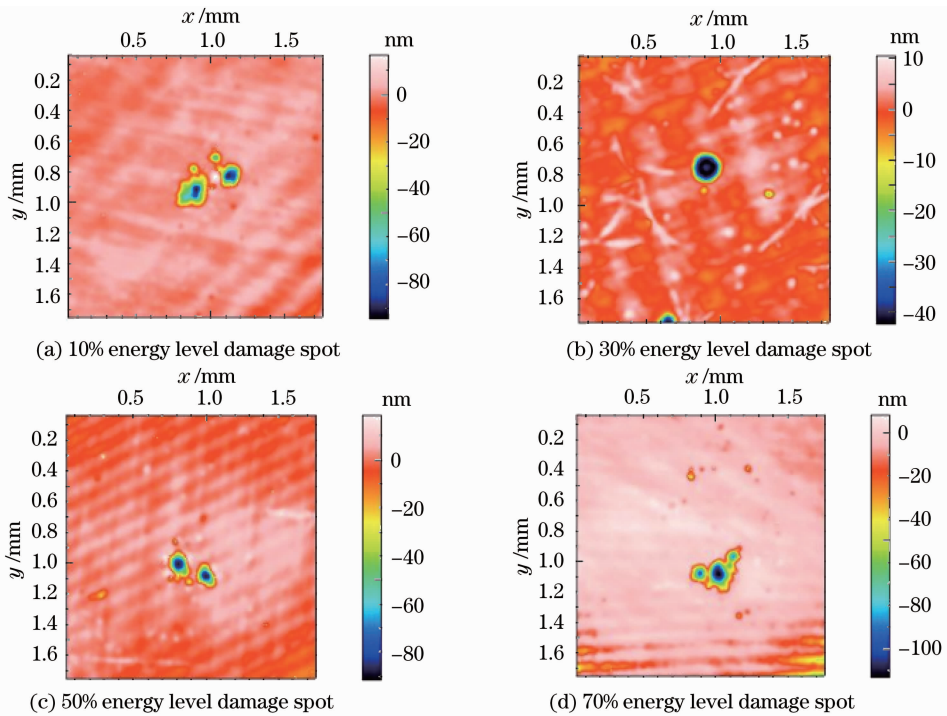


图 7 不同能量阶预处理后 140 mJ 能量作用下的损伤斑图

Fig. 7 Damage spots under 140 mJ energy after conditioning with different energy levels

能量阶预处理后,损伤阈值达到了最大值。

图 6 和图 7 中的大损伤斑是薄膜的本征损伤,小损伤斑是薄膜的缺陷损伤。根据李笑等^[10-11]的论述,所谓本征损伤是指薄膜材料在不含缺陷杂质时,受激光照射所产生的损伤,这种损伤斑的面积较

大,发生这种损伤往往需要较大的能量,这种能量所对应的阈值称为本征阈值。所谓缺陷损伤是指薄膜材料内部的杂质缺陷在吸收激光能量的情况下引起的薄膜损伤,这种损伤斑的面积较小,发生这种损伤往往需要较小的能量,这种能量所对应的阈值称为

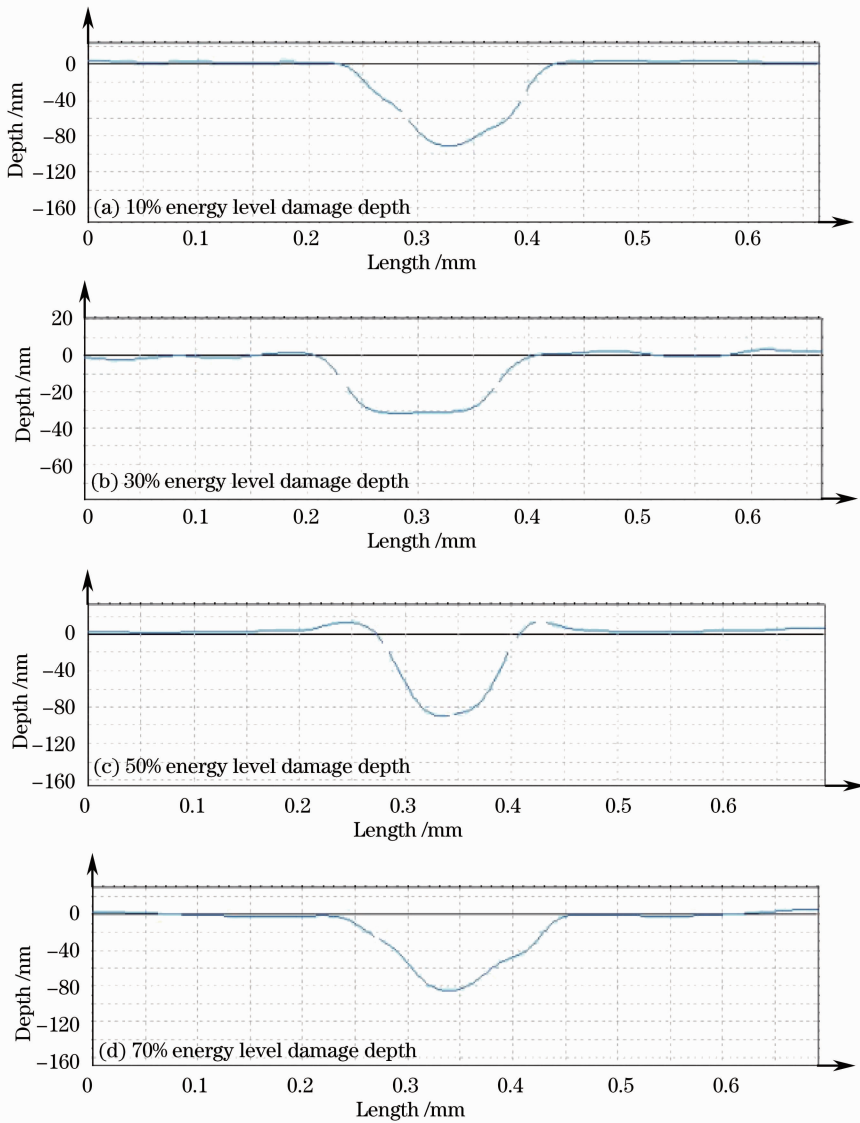


图 8 不同能量阶预处理后 140 mJ 能量作用下的损伤深度图

Fig. 8 Damage depth under 140 mJ energy after conditioning with different energy levels

缺陷阈值。当激光能量超过本征阈值但又不是很大时,本征损伤斑的面积小于光斑面积,且缺陷损伤和本征损伤是同时存在的。图 6 和图 8 中的损伤深度和直径也是针对大损伤斑而言的。未预处理时,在 140 mJ 能量的作用下,薄膜损伤深度为 98 nm,损伤直径为 0.25 mm。不同能量激光预处理后损伤深度均有所减小,10%、30%、50%、70%能量阶预处理后的损伤深度分别为 90、30、90、85 nm。损伤直径也有所减小,10%、30%、50%、70%能量阶预处理后的损伤直径分别为 0.2、0.18、0.18、0.22 mm。30%能量阶所对应的损伤深度和损伤直径最小说明了此能量的预处理效果最佳。处理后损伤深度和损伤直径的减小是因为激光预处理使得原本疏松的膜层变得致密、牢固所致。由图 7 可见,激光预处理后

损伤斑个数减少,这是因为预处理清除了薄膜内部部分杂质所致,虽然清除杂质后会留下直径约为 $0.5 \mu\text{m}$ 的损伤斑,但这种斑在较高能量下不会发生扩展。没被清除的杂质会在后续高能激光作用下产生较大损伤斑,损伤斑最小直径约为 0.5 mm。

5 结 论

30%能量阶预处理的 6 号样片的损伤斑个数最少,为 1 个,损伤阈值最高,为 26.86 J/cm^2 ,损伤斑个数减少、损伤阈值提高说明了杂质缺陷是影响 HfO_2 薄膜损伤阈值的因素。预处理后,薄膜的粗糙度降低、透射率增大、损伤深度和半径较预处理前均有所减小说明了激光预处理具有平整薄膜表面、固化膜层的作用。因此能量合适的激光预处理可以

清除膜内杂质,提高薄膜损伤阈值,减小膜层的损伤程度。

参 考 文 献

- 1 M R Kozlowski, I M Thomas, J H Campbell, *et al.*. High-power optical coatings for a mega-joule class ICF laser [C]. SPIE, 1992, 1782: 105–119.
- 2 Andrius Melninkaitis, Arturas Vaninas, Julius Mirauskas, *et al.*. Laser conditioning of high reflectivity mirrors used in OPOs by 266 and 355 nm nanosecond pulses [C]. SPIE, 2009, 7504: 750408.
- 3 Zhan Meiqiong. Enhancement of the LIDT of optical coatings [J]. J Shanghai Second Polytechnic University, 2010, 27(4): 304–308.
占美琼. 提高光学薄膜激光损伤阈值的途径[J]. 上海第二工业大学学报, 2010, 27(4): 304–308.
- 4 Wei Chaoyang, Zhao Yuan'an, He Hongbo, *et al.*. Laser conditioning on optical thin film components [J]. Laser & Optoelectronics Progress, 2005, 42(5): 51–55.
魏朝阳, 赵元安, 贺洪波, 等. 光学薄膜元件的激光预处理技术 [J]. 激光与光电子学进展, 2005, 42(5): 51–55.
- 5 Bu Yikun, Zhao Li, Zheng Quan, *et al.*. Design method of high damage threshold laser mirror [J]. Infrared and Laser Engineering, 2006, 35(2): 183–186.
卜轶坤, 赵 丽, 郑 权, 等. 高损伤阈值激光反射镜的设计方法[J]. 红外与激光工程, 2006, 35(2): 183–186.
- 6 Liu Xiaofeng, Li Dawei, Li Xiao, *et al.*. 1064 nm laser conditioning effect of $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ high reflectors deposited by e-beam [J]. Chinese J Lasers, 2009, 36(6): 1545–1549.
刘晓凤, 李大伟, 李 笑, 等. 电子束蒸发制备 $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ 高反射膜的 1064 nm 激光预处理效应 [J]. 中国激光, 2009, 36(6): 1545–1549.
- 7 C R Wolfe, M R Kozlowski, J H Campbell, *et al.*. Laser conditioning of optical thin films [C]. SPIE, 1989, 1438: 360–375.
- 8 Jebreel M Khoshman, Martin E Kordesch. Optical properties of a- HfO_2 thin films [J]. Surface and Coatings Technology, 2006, 201(6): 3530–3535.
- 9 Robert Chow, Steve Falabella, Gray E Loomis, *et al.*. Reactive evaporation of low-defect density hafnia [J]. Appl Opt, 1993, 32(28): 5567–5574.
- 10 Li Xiao, Liu Xiaofeng, Shan Yongguang, *et al.*. Mechanism of laser-conditioning $\text{ZrO}_2\text{-SiO}_2$ high reflective thin film at 1064 nm [J]. Acta Optica Sinica, 2010, 30(8): 2284–2289.
李 笑, 刘晓凤, 单永光, 等. 激光预处理 $\text{ZrO}_2\text{-SiO}_2$ 1064 nm 高反射膜的机理 [J]. 光学学报, 2010, 30(8): 2284–2289.
- 11 Li Xiao, Liu Xiaofeng, Zhao Yuan'an, *et al.*. Influence of laser-conditioning on defects of SiO_2 mono-layer films [J]. Chinese J Lasers, 2010, 37(6): 1626–1630.
李 笑, 刘晓凤, 赵元安, 等. 激光预处理对 SiO_2 单层膜中缺陷的影响 [J]. 中国激光, 2010, 37(6): 1626–1630.

栏目编辑: 韩 峰