

1 064 nm 激光预处理对 $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ 反射膜损伤形态转化影响研究

刘志超, 郑轶, 潘峰, 王震, 王健, 许乔

(中国工程物理研究院 激光聚变研究中心, 四川 绵阳 621900)

摘要: 实验研究了不同激光预处理参数对于纳秒激光多脉冲作用下 $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ 反射膜损伤形态转化的影响。通过对比两类损伤扩张性和对薄膜功能性破坏机制, 提出激光预处理技术的重要意义在于抑制损伤形态转化过程。通过薄膜损伤形态分析揭示了激光预处理作用机制为节瘤缺陷的去除和亚表面吸收前驱体的形成两方面的综合作用。实验结果表明: 预处理后薄膜损伤形态转化特征曲线向更高通量和更多发次方向平移。针对现有工艺下的薄膜, 采用高通量、两台阶的预处理参数组合能够获得兼顾效率的最佳收益, 其零几率损伤形态转化阈值最高可以提升 140%。

关键词: 激光预处理; 反射膜; 损伤形态

中图分类号: O484.5 **文献标志码:** A **DOI:** 10.3788/IRLA201746.0606003

Effect of 1 064 nm laser conditioning on damage morphology change process on $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ reflective film

Liu Zhichao, Zheng Yi, Pan Feng, Wang Zhen, Wang Jian, Xu Qiao

(Research Center of Laser Fusion, China Academy of Engineering Physics, Mianyang 621900, China)

Abstract: The effects of varied laser conditioning parameters on the damage morphology change process of $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ reflective film under nanosecond pulse were experimentally studied in this paper. By comparing of damage expansion and the influence on spectra for two types of damage, the role of laser conditioning is illuminated to restrain the process of damage morphology change process. The two contrary impacts of laser conditioning on thin film, nodule clean up and absorbing precursor formation, were revealed by damage morphology analysis. The experiment result shows that the contours of damage morphology change thresholds will shift to higher laser fluence and more shots after laser conditioning. In addition, considering efficiency and profit of laser conditioning, the combination of higher laser fluence and two scanning steps could have the best choice in morphology changing elimination, and the morphology change threshold could increase to 140% in the best case.

Key words: laser conditioning; reflective film; damage morphology

收稿日期: 2016-10-08; 修订日期: 2016-11-05

基金项目: 国家自然科学基金(61505186); 科学挑战专题(JCKY2016212A506-0503)

作者简介: 刘志超(1984-), 男, 硕士, 从事高功率激光材料损伤方面的研究。Email: zcliu44@163.com

0 引言

高功率激光驱动器中薄膜光学元件的激光诱导损伤问题一直制约着激光器向更高功率方向的发展。随着薄膜制备技术进步,薄膜的抗激光损伤能力在得到不断加强的同时,其损伤问题也日益凸显,缺陷诱导损伤已经成为影响薄膜损伤阈值的首要因素。国际上主要的高功率薄膜研究机构均围绕着缺陷控制方面开展许多相关抑制技术的研究,其中激光预处理就是一种能大幅提高光学薄膜抗损伤能力的技术^[1-2]。激光预处理原理可以简述为:利用亚损伤阈值通量的激光光束以一定方式作用于元件表面,使得部分低阈值的表面缺陷(如节瘤缺陷)得到清除,从而降低了薄膜在后续较高通量辐照下时发生进一步损伤的概率,最终达到提升元件的抗损伤能力的目的。预处理技术率先被美国 LLNL 实验室运用到了 NIF 装置的薄膜元件生产流程中,通过离线小光斑的激光预处理,其薄膜元件的损伤阈值能获得 2~3 倍的提升^[3]。在国内,激光预处理技术也得到了大力发展^[4-7],不断有新的激光预处理装置建成,以满足激光驱动器日益增强的需求。在激光预处理技术得到全面应用的同时,其自身的一些科学问题也逐渐凸显——激光预处理对于薄膜损伤形态转化的影响就是其中之一。通常预处理扫描过后薄膜的节瘤缺陷得了有效去除,与此同时膜面也不可避免地产生一系列的微小损伤。因此,预处理后的元件在实际使用中处于一种“带伤”的状态运行。这些微小的损伤在后续激光脉冲辐照下将遵循怎样的发展规律,以及如何通过优化预处理参数来实现对损伤扩张的抑制,是薄膜激光预处理技术发展中所要面临的重要问题。文中围绕上述问题展开研究:首先从形态学角度将损伤进行了分类,对损伤形态转化临界状态进行了界定;然后利用 S-on-1 测试方法分析了预处理工艺参数对于损伤形态转化规律的影响,获得了最优化的预处理参数;最后讨论了预处理对于薄膜的缺陷去除和损伤诱发两方面的物理机制。

1 损伤形态分类与形态转化

多脉冲作用下的薄膜损伤形态可划分为等离子体烧蚀类损伤和分层剥落类损伤^[8],如图 1 所示。

等离子体烧蚀类损伤通常出现在激光辐照通量较低、发次较少时,此类损伤多表现为薄膜表层变色(图 1(a)),损伤机制以烧蚀热破坏为主^[9]。同时,一部分等离子体烧蚀类损伤中心区域还伴随着节瘤缺陷的喷溅。当激光辐照通量较大、发次较多时薄膜表面将出现分层剥落类损伤,此类损伤在形态上具有明显的多环断裂结构(图 1(b))。这种结构反映了损伤是由外层逐渐向内层发展的,而断裂特征则反映了明显的力学破坏作用过程^[10]。在后续激光作用下,两类损伤的扩张性存在巨大差异^[11]:等离子体烧蚀类损伤尺寸通常较为稳定,多数不随激光发次增多而扩张;而分层剥落类损伤尺寸会随着激光发次增大而呈指数扩张,直至扩张至辐照光束口径大小后才趋于稳定。两类损伤不仅在显微形态和成因机制上不同,在对薄膜元件的光学性能影响方面也同样具有显著差异:等离子体烧蚀类损伤由于烧蚀部位通常发生在反射膜的最外层,膜层的主体结构并无明显改变,因此对目标波长反射率的影响十分微小;相反,分层剥落类损伤由于多环特性破坏了膜层的结构,使得损伤区域失去了形成驻波场的功能,从而导致薄膜反射率的明显下降。综上所述,等离子体烧蚀类损伤属于轻微损伤,在一定密度和尺寸限定下对薄膜影响十分有限;分层剥落类损伤属于严重损伤,其对膜层的破坏性和自身的扩张性严重影响到光学元件的正常使用,是一种应在预处理过程中避免的损伤类型。

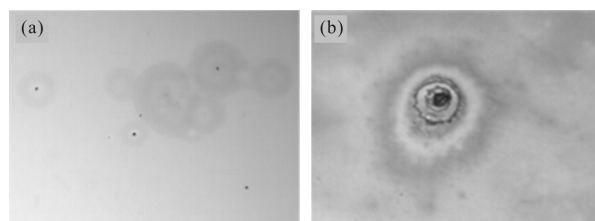


图 1 反射薄膜典型损伤形态:等离子体烧蚀类损伤和分层剥落类损伤

Fig.1 Typical damage morphology of reflective film: plasma ablation damage and delamination damage

随着脉冲发次增加或辐照通量增大,薄膜损伤形态将由等离子体烧蚀类向分层剥落类转化^[12]。等离子体烧蚀类损伤与分层剥落类损伤之间存在形态学上的临界状态,其损伤形态表现为单环结构,即初始分层剥落发生在薄膜的最外层。处于这一阶段的

损伤既具有等离子体烧蚀类损伤的烧蚀熔融特征,也具有分层剥落类损伤的单环断裂结构。一旦损伤发展跨越这一临界区域,则损伤迅速扩张至分层剥落类形态,发生灾难性的变化,此时损伤不再可控。由此可见,损伤形态转化是导致光学元件功能性破坏的起始状态,而对这种损伤起始状态的抑制则是激光预处理技术的意义所在——即通过较小能量密度的激光辐照,使得元件表面一些低阈值缺陷得到提前去除,使其在后续激光作用下(更多发次或更高通量)不发生损伤形态转化,从而强化了光学元件抗激光损伤能力。

2 实验条件

以 400 mm×400 mm 大口径的 45°P 光 1 064 nm 反射镜作为样品进行不同激光预处理参数下的多脉冲损伤形态转化规律测量实验。样品由电子束蒸发方式制备,其镀膜材料为 HfO₂ 和 SiO₂,反射膜采用的是 λ/4 的规整膜系 S/(HL)¹⁷/A,并根据光谱要求进行了优化。预处理及损伤测试实验是在小口径离轴激光预处理装置上进行的,装置主体由激光器模块、元件位移台模块、光束传输/诊断模块以及总控系统所构成,如图 2(a)所示。激光器的最大输出能量为 1.4 J,激光波长为 1 064 nm,脉冲宽度(FWHM)为

10 ns(图 2(b)),重复频率为 30 Hz。通过整形单元和聚焦系统后在元件表面汇聚成有效直径 780 μm 的高斯型光斑(图 2(c))。预处理扫描方式采用常规的 S 型扫描,光斑以 90%能量覆盖方式进行相互重叠,光斑间隔约为 360 μm,扫描速率为 11 mm/s,光束入射角度为 45°。

在实验中将样品表面划分为 12 个 100 mm×100 mm 子区域,每个子区域采取不同的激光能量和扫描台阶对其进行激光预处理扫描。扫描后的子区域采用 S-on-1 的方式^[13-14]对其损伤形态转化几率曲线和形态转化阈值进行测量,具体方式如下:根据子区域的实际情况选择合适的激光能量密度上/下限,并将其分为至多 8 段,每个能量密度间隔段内至少包含 50 个测试点。每个测试点以某一固定激光能量密度辐照至多 300 发次(30Hz,10s)。若在重复辐照过程中发生损伤形态转化,则通过高速快门立即阻断激光停止辐照,并记录下当前的损伤状态、激光能量和已辐照的发次。通过统计不同激光能量和辐照发次下发生损伤形态转化事件的概率,就可以获得损伤形态转化几率曲线和阈值。值得注意的是,在实验中采用快速光电探头对测试点的等离子闪光强度进行探测,以闪光强度的突增作为损伤形态转化发生的判据。图 3 示意了在 85 J/cm² 激光重复辐照过程中损伤由等离子体烧蚀类向分层

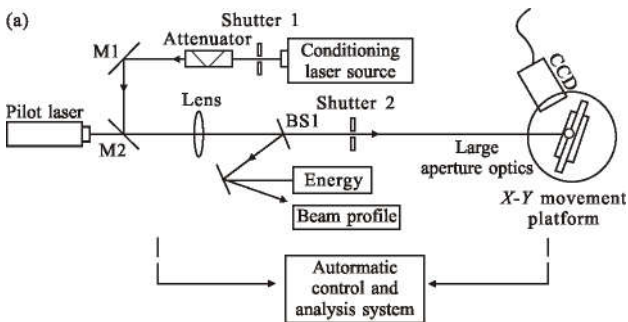


图 2 激光预处理装置构成与激光光束时间/空间分布

Fig.2 Schematic diagram of laser conditioning device and beam temporal/spatial distribution

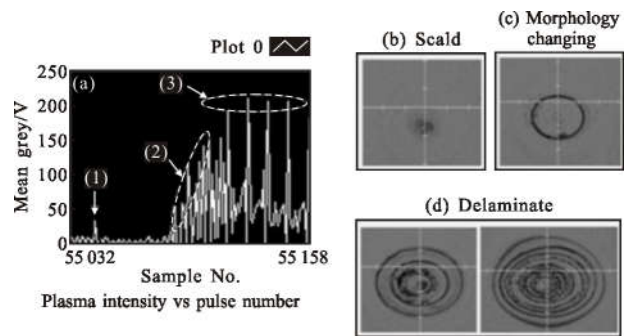


图 3 损伤形态转化过程信号探测

Fig.3 Signal detection procedure of damage morphology change process

剥落类转化的全过程:等离子体烧蚀类损伤出现在图 3 中的位置 1(图(b)),此时膜面发生等离子体烧蚀并伴随较小强度闪光,对应于光电探测信号中的小尖峰。在后续激光继续作用数十发次后闪光强度突然开始陡增,此时损伤形态开始发生转化,见图图中的位置 2(图(c))。当闪光信号趋于稳定且强度保持在

较高水平时,此时损伤形态已转化为分层剥落类型,其损伤面积持续扩张至测试光束口径尺寸,见图中的位置 3(图(d))。

3 结果与讨论

3.1 激光预处理参数对损伤形态转化影响

下面定量研究预处理参数对于损伤形态转化的影响。首先,对样品的各个子区域内采取不同激光能量和扫描步数进行预处理扫描,其具体参数如表 1 所示。

表 1 子测试区域激光预处理参数汇总

Tab.1 List of laser conditioning parameters for each sub-region

Number of sub-region	Conditioning energy/ $J \cdot cm^{-2}$ and scanning step
1#	17
2#	35
3#	70
4#	90
5#	17/35
6#	35/70
7#	17/35/70
8#	12/24/35/44/59/70
9#	35/90
10#	35/55/90
11#	17/35/70/90
12#	12/1/24/35/55/70/90

其次,对每个子区域进行多脉冲辐照下的损伤形态转化阈值测试。测试采用 S-on-1 方法,其中损伤判定以达到损伤形态转化临界点为准。实验结果如图 4 所示,其中横坐标代表的是发生损伤形态转化时所需的激光能量密度,纵坐标代表的是发生损伤形态转化时所需的辐照发次。图 4 中的每个测试点为一定发次下的零几率损伤形态转化阈值。将这些测试点连接起来形成的曲线反映了等离子体烧蚀类损伤向分层剥落类损伤转化的临界条件。不同深度的曲线组为各种激光预处理参数下的损伤形态转化特征曲线,而 a、b 曲线则是没有经过激光预处理的对照组损伤形态转化特征曲线。从结果中可以看

出,无论是否通过激光预处理,薄膜的损伤形态转化阈值均随脉冲发次的增加而递减。脉冲发次越多,薄膜发生损伤形态转化时所需要的激光辐照能量密度越低;或者激光辐照能量密度越大,薄膜发生损伤形态转化时所需要的脉冲发次越少。这种递减规律与多脉冲下分层剥落类损伤阈值衰减规律是一致的^[11]。总体上讲,激光预处理后的损伤形态转化阈值特征曲线向更高激光通量、更多发次方向平移。这就是所谓的激光预处理收益,通过预处理以后薄膜发生损伤形态转化的条件发生了改变,即:相同发次下,预处理后所能承受的激光辐照通量更大;或者相同激光辐照通量下,预处理后能承受的发次更多。另外,不同的激光预处理后的曲线平移量存在明显的差异:1# 区域的预处理效果较差,而 9#~12# 区域的预处理效果较好。由此可见预处理参数的合理选择对于损伤形态转化的抑制具有重要影响。

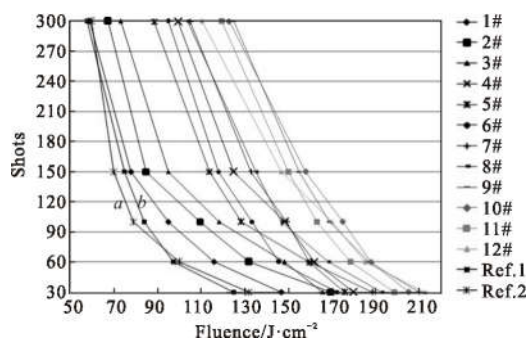


图 4 不同预处理参数下的多脉冲损伤形态转化阈值曲线
Fig.4 Contour of damage morphology change thresholds under multi-pulse with varied laser conditioning parameters

一般在进行损伤特性分析时,除了需要获得零几率损伤阈值,同时还需对损伤概率曲线进行比较。图 5 对比显示了不同激光预处理参数作用后,150-on-1 测试条件下的损伤形态转化几率曲线。同样,图中的横坐标代表的是损伤测试中激光辐照能量密度,纵坐标为在发生损伤形态转化的概率。c、d 曲线为未经过激光预处理的对照组测试结果;而不同深度曲线组为采取不同激光预处理参数处理后的损伤形态转化几率曲线。激光预处理后损伤几率曲线整体向高能量区域方向平移,而线型未见明显改变。不同参数激光预处理后零几率损伤形态转化阈值提升 15%~138%,50%几率损伤形态转化阈值提升 10%~52%,100%几率损伤形态转化阈值提升约为 5%~

31%。由此可见,虽然采用了不同的激光预处理参数,但是去除效果最好的总是对低阈值缺陷,其次是中等阈值缺陷,而效果最差的是高阈值缺陷。以现有的预处理技术手段而言,仅仅通过增加激光辐照通量来对高阈值缺陷进行去除,其效果比较有限。其原因之一在于损伤形态转化往往就在高通量预处理过程中发生,这限制了扫描能量密度的进一步提升。

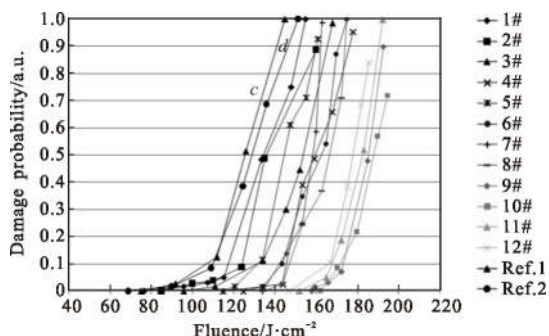


图 5 不同预处理参数下的 150 发次损伤形态转化几率曲线
Fig.5 Curves of damage morphology change probability under 150 pulse with varied laser conditioning parameters

不同预处理参数下的损伤形态转化几率曲线存在较大差异,有的预处理参数组合对损伤形态转化临界值提升比较有效,而有的则能大幅提升完全损伤形态转化阈值。合理选择预处理参数可在效率和效果两方面取得最大收益。下面将针对扫描能量密度和扫描台阶数两个重要的预处理参数定量分析其对损伤形态转化抑制效果的影响,结果如图 6 所示。其中图 6(a)为采用不同能量密度下单次(或单步)预处理扫描后的损伤形态转化几率曲线对比。随着扫描能量密度的增加,其损伤形态转化曲线向高能量密度方向移动,可见采用较高激光能量预处理(90 J/cm²)对于损伤形态转化过程的抑制效果要明显好于较低能量预处理(15、35、70 J/cm²)。在进行单步预处理时,由于薄膜表面存在高/低阈值的缺陷,若采取较低辐照通量,则仅能将低阈值缺陷清除,而无法将高阈值缺陷去除;相反若采取较高辐照通量,则既能去除高阈值缺陷,同时也能去除低阈值缺陷,从而更好地抑制损伤形态转化。在确保高通量激光辐照的同时,进一步将扫描台阶细分,获得不同的预处理效果。以 90 J/cm² 作为末次扫描能量,采取多步能量台阶进行预处理扫描后损伤形态转化几率曲线如图 6 (b)所示。从结果可以看出:采用两步或三步台阶预

处理的效果要明显好于采用单步预处理,特别是对于中等或者较低阈值缺陷具有明显的去除效果。多步预处理由于其能量台阶上的细分,使得各种阈值缺陷都能得到有效的去除。另外,值得注意的是当采用四步或六步台阶进行预处理后,其损伤形态转化抑制效果并未出现进一步的加强,反而出现了一定程度的下降。造成这种现象的原因则可能与预处理机制中的负面影响因素相关,关于预处理机制将在下节中讨论。综上所述,在兼顾预处理效率的同时,实际预处理过程中采取较高能量的两步台阶预处理能最有效地抑制损伤形态转化。

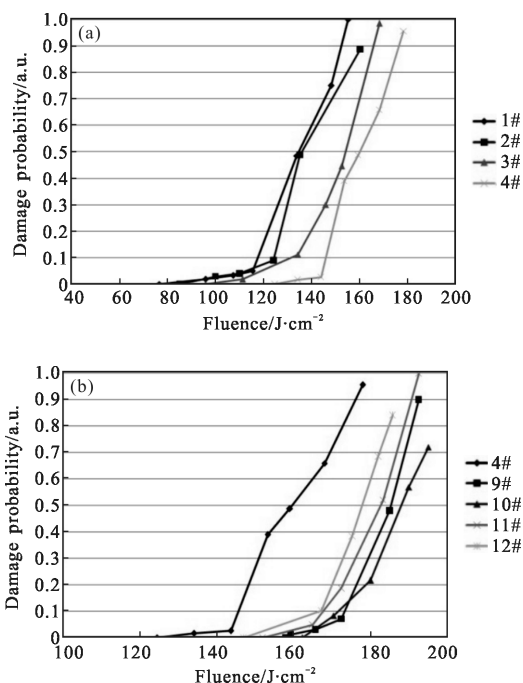


图 6 扫描激光能量密度和扫描台阶对损伤形态转化几率曲线影响
Fig.6 Impact of laser fluence and scanning steps on damage morphology change probability curves

3.2 激光预处理机制

激光预处理扫描对于薄膜具有正面和负面两方面的影响机制。其中正面影响为:通过亚阈值的激光扫描,薄膜表面的缺陷,尤其是节瘤缺陷得到了清除,光热弱吸收扫描测试结果很好地支持了这一论点,如图 7 所示。光热弱吸收测量利用了薄膜的热透镜效应。在泵浦激光的辐照作用下,薄膜吸收激光能量后发生形变,产生类似透镜的发散作用,致使探测光反射方向发生漂移。在一定范围内探测光漂移量与薄膜热形变(即光热吸收强度)成正比。通过小孔

遮光单元后,探测光漂移量被转化光强信号,最终被锁相放大器检出。因此,通过对比锁相放大器的信号电压幅值就可以间接地获得预处理前后薄膜光热吸收强度的变化趋势。实验中采用的泵浦光为最大功率 20 W 的连续激光,波长为 1 064 nm,经斩波器调制后频率为 20 Hz;探测光为 He-Ne 激光器。热吸收探测扫描区域为 20 mm×20 mm。4# 区域预处理前后的光热吸收扫描测试结果如图 7 所示。图中的热吸收强度用经归一化后的锁相放大器探测信号电压幅值来间接表示。从图中可以看出未经过预处理的薄膜表面有许多热吸收缺陷(图 7(a))。激光预处理扫描后,超过 99% 的热缺陷点得到了去除(图 7(b))。离线显微观察发现这些热缺陷中的一部分源于节瘤缺

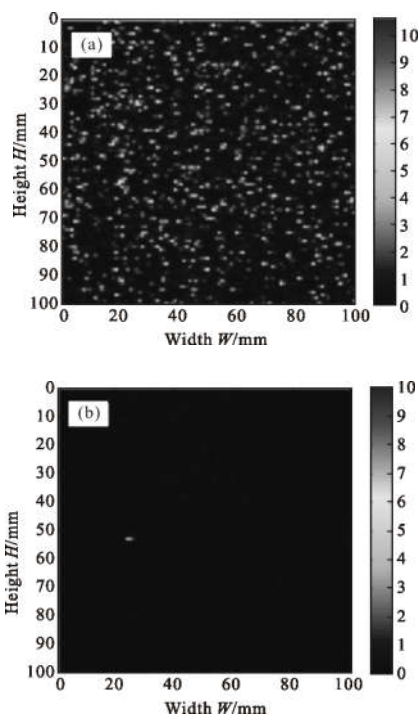


图 7 预处理对于薄膜的正面影响

Fig.7 Positive impact of laser conditioning on thin film

陷。通常情况下节瘤缺陷对于激光具有强烈的吸收,是导致薄膜损伤的重要诱因。通过激光预处理以后热缺陷点密度有了明显的下降,从而提高薄膜抗激光损伤能力,这是激光预处理技术的正面影响所在。另一方面,在节瘤喷溅的同时,部分缺陷位置会留下等离子体烧蚀类损伤(图 8(a))。将等离子体烧蚀类损伤在双束电镜下切开观察其剖面,发现薄膜内部靠近外层区域处存在大量纳米尺度的团簇体(图 8(b)),甚

至在某些节瘤喷溅坑(图 8(c))的附近会观察到纳米尺度的微裂纹(图 8(d))。一旦这些团簇体和微裂纹的密度或者尺度上超过一定量值,就有可能成为新的吸收中心,从而在后续激光辐照下起到促进损伤形态转化的作用。事实上,在以往的多脉冲损伤实验中已经观察到了这种促进形态转化的现象^[8],这就是激光预处理的负面作用。

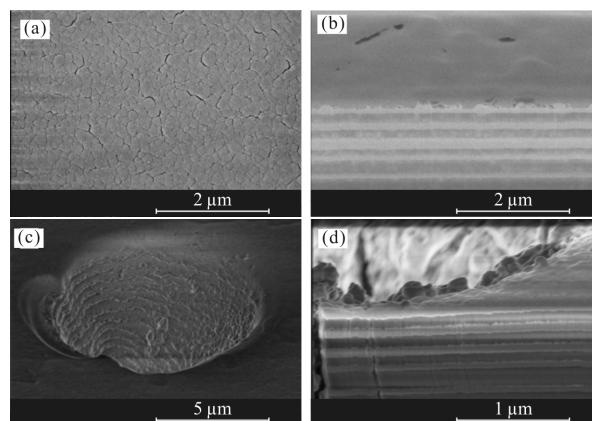


图 8 预处理对于薄膜的负面影响

Fig.8 Negative impact of laser conditioning on thin film

由此可见,激光预处理对于薄膜的抗激光损伤能力提升效果来取决于这两种影响之间的综合作用结果:当正面影响大于负面影响时,薄膜表面原有的缺陷(如节瘤缺陷)得到有效去除,抑制了损伤形态转化过程,薄膜抗损伤能力随之提升;而当负面影响大于正面影响时,在去除缺陷的同时也造成了膜层内部破坏,促进了新的吸收前驱体形成,加速了损伤形态转化过程。

4 结 论

文中实验研究了 1 064 nm 激光预处理对于多脉冲(S-on-1)作用下 HfO₂/SiO₂ 高反射介质膜损伤形态转化规律。首先,基于形态学分类将多脉冲下高反射薄膜的损伤形态分为等离子体烧蚀和分层剥落两类,从对薄膜光谱影响和损伤扩张性角度阐明了分层剥落类损伤是导致薄膜功能性破坏的主要原因。其次,定量测试了激光预处理前后薄膜损伤形态转化特征曲线,提出激光预处理能够有效地抑制或延缓损伤形态转化过程,预处理后的损伤形态转化曲线表现出了向更高通量或更多发次方向平移的有益变化,使得薄膜元件在分层剥落类损伤产生前承受

更多发次或者更高通量。然后,通过对预处理机制的分析得出激光预处理对于薄膜的改性作用存在正反两个方面影响的结论:去除薄膜表面原有的节瘤缺陷和促进形成新的亚表面吸收前躯体。选择合适的激光预处理参数是有效抑制损伤形态转化的关键。最后,通过对比实验发现采用高通量、两阶段的预处理参数组合能够具有兼顾效率的最佳收益,其零几率损伤形态转化阈值最高可以提升140%。

参考文献:

- [1] Bercegol H. What is laser conditioning: a review focused on dielectric multilayers[C]//SPIE, 1998, 3578: 421-426.
- [2] Stolz C J, Sheehan L M, Maricle S M, et al. A study of laser conditioning methods of hafnia silica multilayer mirrors [C]//SPIE, 1999, 3578: 144-153.
- [3] Sheehan L, Kozlowski M, Tench B. Full aperture laser conditioning of multilayer mirrors and polarizers [C]//SPIE, 1997, 2633: 457-463.
- [4] Zhao Yuanan, Shao Jianda, He Hongbo, et al. Laser conditioning of high-reflective and anti-reflective coatings at 1 064 nm [C]//SPIE, 2005, 5991: 599117.
- [5] Liu Xiaofeng, Li Dawei, Li Xiao, et al. 1 064 nm laser conditioning effect of HfO₂/SiO₂ high reflectors deposited by E-beam[J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2009, 36(6): 1545-1549. (in Chinese)
- [6] Zheng Yi, Liu Zhichao, Ma Ping, et al. Laser conditioning technique of mid-size laser spot [J]. *High Power Laser and Particle Beams*, 2013, 25(12): 3180-3184. (in Chinese)
- [7] Liu Jie, Zhang Weili, Zhu Meiping. Laser conditioning effect of HfO₂/SiO₂ high reflectors at 532 nm [J]. *High Power Laser and Particle Beams*, 2015, 27(3): 032034. (in Chinese)
- [8] Liu Zhichao, Luo Jin, Zheng Yi, et al. Damage morphology change condition and thermal accumulation effect on high-reflection coatings at 1 064 nm [J]. *Optics Express*, 2014, 22(9): 10151-10156.
- [9] Liu Xiaofeng, Zhao Yuan'an, Li Dawei, et al. Characteristics of plasma scalds in multilayer dielectric films [J]. *Applied Optics*, 2011, 50(21): 4226-4231.
- [10] Liu X, Zhao Y, Gao Y, et al. Investigations on the catastrophic damage in multilayer dielectric films[J]. *Applied Optics*, 2013 52(10): 2194-2199.
- [11] Liu Zhichao, Chen Songlin, Luo Jin, et al. Studies of multipulse laser induced damage of HfO₂/SiO₂ multilayer at 1 064 nm [J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2012, 41(5): 1191-1194.
- [12] Génin F Y, Stolz C J, Kozlowski M R. Growth of laser-induced damage during repetitive illumination of HfO₂-SiO₂ multilayer mirror and polarizer coatings [C]//SPIE, 1997, 2966: 273-282.
- [13] International Organization for Standardization. International Standard ISO 21254: lasers and laser-related equipment test methods for laser-induced damage threshold. part2: Threshold determination[S]. 2008.
- [14] Ciapponi A, Allenspacher P, Riede W, et al. S-on-1 testing of AR and HR designs at 1064nm[C]//SPIE, 2010, 7842: 78420J.