

## 激光预处理中薄膜损伤形貌对预处理效果的影响

代 福, 杨李茗

(成都精密光学工程研究中心, 四川 成都 610041)

**摘 要:** 采用亚阈值激光能量对光学元件进行激光预处理后, 其损伤阈值可以提高两三倍。在激光预处理过程中, 不可避免地会使光学元件产生损伤, 若产生的损伤不影响光学元件的使用性能, 则原则上可以接受。首先介绍了  $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$  多层高反膜 S-on-1 损伤阈值测试方法, 实验研究了激光预处理过程中光学薄膜元件的损伤过程, 分析了预处理过程中薄膜损伤形貌对其光学性能及抗激光损伤阈值的影响。结果表明, 对膜系为  $G/(\text{HL})^{11}\text{H2L}/\text{A}$  的  $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$  多层高反膜进行激光预处理, 最外层  $\text{SiO}_2$  层的破坏不影响薄膜整个反射率曲线。相反, 由于消除了  $\text{HfO}_2$  层的节瘤缺陷, 薄膜的损伤阈值得到大幅度的提高。

**关键词:** 激光预处理; 缺陷; 损伤形貌; 高反射膜

中图分类号: TN249 文献标志码: A 文章编号: 1007-2276(2013)01-00190-05

## Effects of damaged appearance of coatings on its conditioning during laser conditioning

Dai Fu, Yang Liming

(Chengdu Fine Optical Engineering Research Center, Chengdu 610041, China)

**Abstract:** The damage threshold can increase 2-3 times through laser conditioning optical component using the subthreshold laser energy. In the process, it will make the optical component produce damage inevitably, if the damage does not affect the optical performance, which is acceptable in principle. In this paper, the S-on-1 LIDT of hafnia silica multilayer high reflective coatings was introduced firstly. Experimentally, the damage process of optical coatings during laser conditioning was studied. At the same time, the laser damage appearance that affected the optical capability and LIDT of coatings was analyzed. The result is, with the film system of  $G/(\text{HL})^{11}\text{H2L}/\text{A}$ , after laser conditioning for the  $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$  multilayer HR coatings, the destroyed of outermost  $\text{SiO}_2$  coating can not affect its spectrum performance. Reversely, the LIDT of coatings is enhanced sharply because removing the nodula in the next  $\text{HfO}_2$  coating.

**Key words:** laser-conditioning; defect; energy overlap; high reflective coating

收稿日期: 2012-05-07; 修订日期: 2012-06-13

基金项目: 国家高技术激光技术支持项目

作者简介: 代福(1977-), 男, 博士, 主要从事激光损伤、激光预处理技术及机理方面的研究。Email: ioe\_daif@126.com

## 0 引言

高功率激光系统中,光学薄膜的激光损伤阈值一直是限制激光输出功率提高的“瓶颈”。激光预处理技术采用亚阈值激光能量对光学元件进行多次辐照,以消除元件中的缺陷,提高元件抗激光损伤阈值。实践证明,对KDP晶体及光学薄膜元件激光预处理可以明显改善元件的抗激光损伤阈值<sup>[1-5]</sup>,对光学薄膜的激光预处理发现,效果最好的属于电子束蒸发制备的 $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ 多层介质膜<sup>[6]</sup>,经多步预处理后的介质膜损伤阈值最高可提高2倍以上。在ICF激光系统中,存在大口径(0.5~1.0 m)的偏振器及反射镜多达1600多件<sup>[7]</sup>,这些光学元件均采用电子束蒸发的方式在K9玻璃上镀制 $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ 介质薄膜。因此,研究 $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ 介质膜的激光预处理技术,对ICF系统的研制成功具有深刻的理论意义。文中就电子束蒸发 $\text{HfO}_2$ 制备的 $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ 多层高反膜进行了激光预处理研究,分析了预处理过程中,薄膜的损伤形貌对元件光谱性能及损伤阈值提高之间的关系。

## 1 激光预处理实验方法

### 1.1 实验装置

激光预处理实验装置如图1所示。实验样品为采用电子束蒸发 $\text{HfO}_2$ 在厚4 mm,直径40 mm的K9

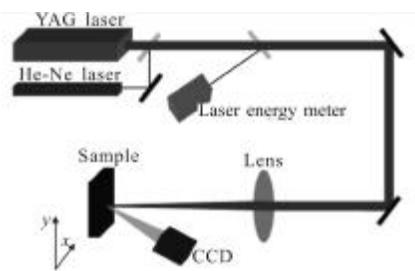


图1 激光预处理实验装置示意图

Fig.1 Schematic layout of laser conditioning facility

玻璃上制备的 $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ 多层高反膜,膜系为G/(HL)<sup>11</sup>H2L/A。镀膜过程中,真空度为 $1.2 \times 10^{-4}$  Pa,沉积速率为 $\text{SiO}_2$ :0.4 nm/s, $\text{HfO}_2$ :0.6 nm/s。图2为薄膜的表面形貌,从图中可以看出,初始物质 $\text{HfO}_2$ 制备的 $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ 多层高反膜,薄膜表面具有较多的几十微米以下的缺陷,这些缺陷有的表现凸起,是典型的节瘤特征。预处理激光为重复频率5 Hz,脉宽10 ns,

能量稳定性6%的高斯光束。作用在样品上的光斑直径为0.7 mm( $I_0/e^2$ ),预处理光斑扫描方式为光栅式扫描,扫描路径见参考文献[8]。实验过程中,预处理前后薄膜的损伤阈值采用S-on-1的测试方式。

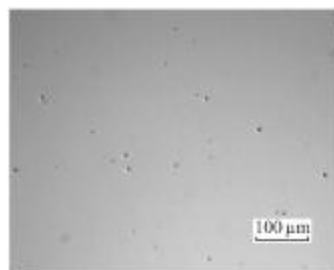


图2  $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ 多层高反膜表面形貌

Fig.2 Surface morphology of  $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$  multilayer HR coating

### 1.2 S-on-1 损伤测试方法

S-on-1激光损伤阈值检测是针对多脉冲激光对薄膜或光学元件的损伤而建立的,它意味着同样能量的多个脉冲在较短时间内作用于同一区域,脉冲个数的多少应根据具体情况约定,一般可定为100个。

S-on-1损伤测试方式的定义可从两方面考虑:

(1)从损伤本身的概念出发与1-on-1是一样的;(2)从元件的功能出发,在功能允许的范围内可容忍一定尺度的损伤斑痕。可允许的破斑大小由以下方法确定,假设反射率可允许的偏差为0.1%,激光光斑直径为 $r_0$ ,如果临界的破斑大小为 $a_0$ ,则:

$$\frac{a_0^2}{4r_0^2} < 0.1\% \quad (1)$$

在多脉冲作用下,薄膜的破斑不大于临界值 $a_0$ ,且在多脉冲激光作用下,破斑大小保持稳定,则定义相应作用区为不损伤区。S-on-1损伤激光为重复频率激光,脉冲之间的能量起伏及时空分布的要求与1-on-1相同。S-on-1阈值的测量方法、步骤及阈值确定方法与1-on-1相同,所测得的结果为零几率损伤阈值。鉴于辐照激光重复频率为5 Hz,即在低重频激光作用下,光学薄膜表面上几乎没有温度累积,光学薄膜的损伤机理在于微损伤累积效应<sup>[9]</sup>。一般而言,薄膜的损伤均发生在前面几个脉冲(或者是场效应的结果、或者是单脉冲的温升结果),如果前几个脉冲不能产生微损伤,那么再多的脉冲均不能使其损坏。所以,S-on-1损伤测试时,S取100,在低重频的情况下,足够能够得出薄膜的S-on-1损伤阈值及损

伤特性。在 NIF 的要求中,如果单个脉冲作用下损伤斑不大于  $280\ \mu\text{m}$ ,且在后续脉冲作用下,损伤斑不扩展,也认为可以接受,不影响光学元件的使用性能。

## 2 激光预处理实验

### 2.1 $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ 多层高反膜 S-on-1 功能性损伤阈值测试

按照 NIF 对传输反射镜的要求,反射镜是在 K9 基片上采用电子束蒸发方式镀制的  $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$  多层介质膜来实现,用以控制光束方向,使其沿激光光路精确入射到靶室内。为了保证光束在靶室中心的聚焦能力,要求这类光学元件引入的波前畸变 RMS 梯度值  $<7\ \text{nm}/\text{cm}$ ,并且这些元件还需要承受基频大于  $22\ \text{J}/\text{cm}^2$  (3 ns 脉宽)的单脉冲高通量辐照。同时,为了使传输损失达到最小,要求元件膜层反射率  $R > 99.5\%$ 。因此,理想镀膜情况下,反射率可允许的偏差按 0.5% 考虑,由公式(1)可得,单个直径  $0.7\ \text{mm}$  的光斑辐照下可允许的破斑大小为  $50\ \mu\text{m}$ 。S-on-1 损伤测试中只要损伤斑不大于  $50\ \mu\text{m}$ ,且在连续脉冲作用下,损伤斑不扩展,则认为不影响光学薄膜的使用性能。损伤斑大于该尺寸则认为损伤。由此,可以得出样品的 S-on-1 损伤阈值为  $7.35\ \text{J}/\text{cm}^2$ ,如图 3 所示。

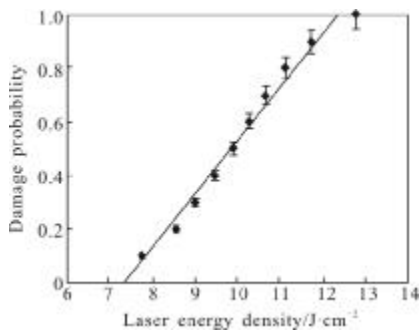


图 3  $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$  多层高反膜 S-on-1 损伤阈值测试

Fig.3 S-on-1 LIDT of hafnia silica multilayer HR coating

### 2.2 激光预处理过程中薄膜损伤形貌观测

实验过程中采用 CCD 记录激光辐照时薄膜表面产生的等离子体闪光现象,结合在显微镜下观察表面发生的变化,从而判定哪种闪光为薄膜损伤,以更好地利用高能量密度激光进行预处理,消除更多的缺陷。对薄膜进行 R-on-1 损伤测试发现,激光能量较低时,在薄膜表面会产生轻微闪光,闪光之后的薄膜在放大 100 倍的显微镜下仍观察不到有任何变

化,如图 4 所示。



图 4 激光能量密度  $5.14\ \text{J}/\text{cm}^2$  时薄膜表面的闪光及闪光后的薄膜表面

Fig.4 Surface of coating during and after laser irradiation with fluence of  $5.14\ \text{J}/\text{cm}^2$

从图中可以看出,激光能量密度为  $5.14\ \text{J}/\text{cm}^2$  时,在光斑作用区域内,有少数不同程度闪光,闪光之后的薄膜表面观察不到任何薄膜损伤现象,其作用机理可能是薄膜内部原子离子缺陷的去除<sup>[10]</sup>,进一步提高激光能量,闪光强度有所增加,如图 5 所示。闪光后在薄膜表面有轻微印记,在显微镜下观察

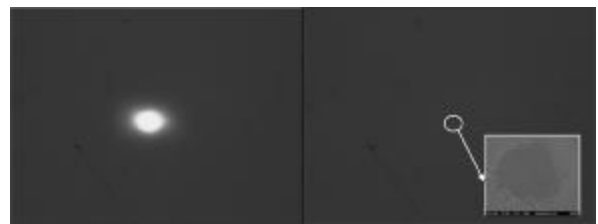


图 5 激光能量密度  $8.21\ \text{J}/\text{cm}^2$  时薄膜表面的闪光及闪光后的薄膜表面

Fig.5 Surface of coating during and after laser irradiation with fluence of  $8.21\ \text{J}/\text{cm}^2$

有膜层脱落,在相同激光能量辐照下损伤斑不扩展。当激光能量继续增加时,薄膜表面产生强度更大的闪光,闪光之后的薄膜呈典型的损伤形貌,且损伤区域在后续脉冲作用下还会不断扩大,如图 6 所示。预处理过程中,如果出现图 6 所示的损伤形貌肯定不

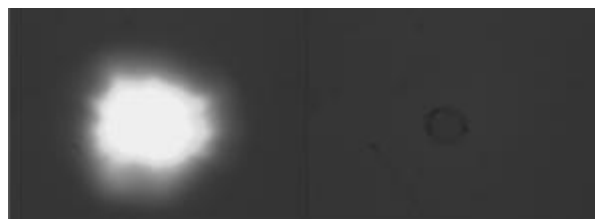


图 6 激光能量密度  $15.14\ \text{J}/\text{cm}^2$  时薄膜表面的闪光及闪光后的薄膜表面

Fig.6 Surface of coating during and after laser irradiation with fluence of  $15.14\ \text{J}/\text{cm}^2$

可取,但如果只出现图5所示的小斑,对光学薄膜的性能影响又如何?为此,在光学薄膜上进行了低能量和较高能量辐照的激光预处理实验。光斑移动距离0.162 mm,即前后两光斑交界处光强为峰值光强的90%。预处理激光能量为 $4.75 \text{ J/cm}^2$ ,预处理区域为 $4 \text{ cm}^2$ ,预处理过程中在薄膜表面观察到100多次不同程度的闪光,但总的来说,闪光相对较弱,预处理完成后在薄膜表面没有产生形貌上的变化。预处理后的薄膜 S-on-1 激光损伤阈值为 $9.04 \text{ J/cm}^2$ ,如图7所示。

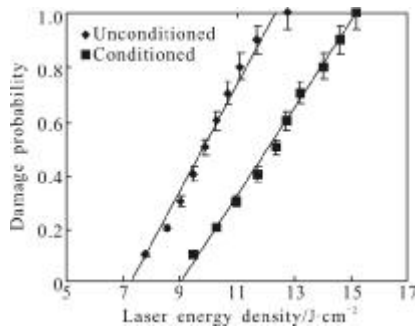


图7 预处理激光能量为 $4.75 \text{ J/cm}^2$ 时薄膜的损伤几率曲线

Fig.7 Damage probability of unconditioned coating and conditioned coating with conditioning fluence of  $4.75 \text{ J/cm}^2$

如果薄膜表面只产生图4所示的闪光,即在预处理之后在薄膜表面观察不到任何变化,预处理激光能量相对较低( $<90\% E_{s0}$ ),此时,预处理后薄膜的损伤阈值提高幅度为26%,如果将预处理能量密度进一步提高即 $110\% E_{s0}$ ,则在薄膜表面上会出现图8



图8 激光能量密度 $8.08 \text{ J/cm}^2$ 预处理后的薄膜表面

Fig.8 Surface morphology of coating after laser conditioning with laser fluence of  $8.08 \text{ J/cm}^2$

所示的小斑,单个光斑作用下,这种小斑尺寸在 $20\sim 40 \mu\text{m}$ ,但预处理之后整个薄膜表面却形成较密的小斑,如图8所示,但奇怪的是这种小斑产生后薄膜却能承受更高的激光能量辐照,且损伤斑不再扩展。经

测试,预处理后 S-on-1 损伤阈值达到 $13.2 \text{ J/cm}^2$ ,提高幅度达79.6%。采用 $\lambda 900$ 分光光谱仪对预处理前后薄膜的光谱曲线进行了测试,结果如图9所示。

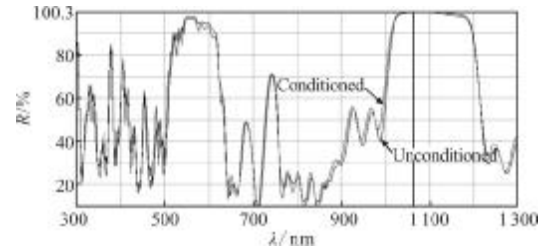


图9 激光能量密度 $8.08 \text{ J/cm}^2$ 预处理前后薄膜光谱曲线

Fig.9 Spectrum of coating before and after laser conditioning with laser fluence of  $8.08 \text{ J/cm}^2$

从图中可以看出,虽然产生了如图8所示的薄膜损伤形貌,但测得预处理后的光谱曲线却几乎没有什么变化。由此推断,薄膜表面产生的损伤斑可能仅仅只是对最外层 $\lambda/2$ 二氧化硅膜层的破坏。因此并没有影响到光学薄膜的膜系结构,所以光谱曲线没有什么变化。 $\lambda/2$ 二氧化硅膜层本来对 $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ 多层膜起保护作用,对光谱特性没有影响。在 $\lambda/2$ 二氧化硅膜层下面的 $\text{HfO}_2$ 膜层,由于在镀膜过程中引入了较多的缺陷,因此,在较高能量密度激光辐照下,这类缺陷首先得到引爆,冲破外层 $\text{SiO}_2$ 保护层,所以在预处理过程中观察到较多的闪光出现,预处理之后,由于这类缺陷得到了提前消除,所以损伤阈值得到了较大幅度的提高。如果只是采用较低能量密度去除 $\text{Hf}$ 、 $\text{Si}$ 、 $\text{O}$ 原子离子缺陷<sup>[10]</sup>,而不将藏在 $\text{SiO}_2$ 保护层内的节瘤缺陷消除,则预处理之后损伤阈值虽有提高,但并不明显。

### 3 结论

电子束蒸发 $\text{HfO}_2$ 制备的 $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ 多层高反膜,由于镀膜过程中不可避免地引入了较多的 $\text{Hf}$ 、 $\text{Si}$ 、 $\text{O}$ 等原子离子及 $\text{HfO}_2$ 、 $\text{SiO}_2$ 节瘤缺陷,使得薄膜的损伤阈值相对较低。激光预处理技术采用亚阈值激光能量对光学薄膜进行多次辐照,实验证明是一种镀膜后提高光学薄膜损伤阈值的可行方法。通过对 $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ 多层高反膜进行激光预处理发现,预处理过程中在薄膜表面产生一定尺寸的损伤斑,只要不影响薄膜的整个光谱性能,且在连续脉冲激光作用下,损伤斑不扩展,则认为是可行的。对膜系为

G/(HL)<sup>11</sup>H<sub>2</sub>L/A 的 HfO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub> 多层高反膜进行预处理,薄膜表面虽有分布较密的小尺寸损伤斑,但光谱性能并没有什么变化,小尺寸损伤斑的产生可能是激光辐照下 HfO<sub>2</sub> 膜层上的缺陷引爆冲破最外层 SiO<sub>2</sub> 保护层所致,经预处理后的光学薄膜损伤阈值提高幅度达到 79%。

#### 参考文献:

- [1] Bertussi B, Damiani D, Pommies M, et al. Laser conditioning of KDP crystals using excimer and Nd:YAG lasers [C]// SPIE, 2006, 6403: 457-463.
- [2] Damiani D, Piombini H, Plessis D, et al. Excimer laser conditioning of KDP: influence of the laser parameters and crystal orientation on the laser damage threshold [C]//SPIE, 2005, 5647: 290-298.
- [3] Kozlowski M R, Wolfe C R, Staggs M C, et al. Large area laser conditioning of dielectric thin film mirrors [C]//SPIE, 1989, 1438: 376-390.
- [4] Stolz C J, Sheehan L M, Maricle S M, et al. A study of laser conditioning methods of hafnia silica multilayer mirrors [C]//SPIE, 1998, 3264: 105-112.
- [5] Wolfe C R, Kozlowski M R, Campbell J H, et al. Laser conditioning of optical thin films [C]//SPIE, 1989, 1438: 360-375.
- [6] Zhao Qiang, Qiu Hong, Liu Ye, et al. Study of laser conditioning of optical coatings with small spot scanning [J]. Acta Optica Sinica, 1999, 19(8): 1105-1109. (in Chinese)  
赵强, 袁弘, 刘晔, 等. 光学薄膜的小光斑扫描激光预处理研究 [J]. 光学学报, 1999, 19(8): 1105-1109.
- [7] Campbell J H, Hawley-Fedder R A, Stolz C J. NIF optical materials and fabrication technologies: An overview [C]// SPIE, 2004, 5341: 84-101.
- [8] Dai Fu, Yang Liming. Study on laser energy that irradiate the defect during laser conditioning process [J]. High Power Laser and Particle Beams, 2012, 24(6): 1385-1390. (in Chinese)  
代福, 杨李茗. 激光预处理中缺陷的激光能量覆盖研究 [J]. 强激光与粒子束, 2012, 24(6): 1385-1390.
- [9] Fan Zhengxiu, Wu Zhouling, Tang Xuefei. Repeat-rate-laser induced damage in optical coatings [J]. Chinese Journal of Lasers, 1994, 21(9): 734-738. (in Chinese)  
范正修, 吴周令, 汤雪飞. 重复率激光对光学薄膜的破坏 [J]. 中国激光, 1994, 21(9): 734-738.
- [10] Schildbach M, Chase L L, Hamza A V. Investigation of neutral atom and ion emission during laser conditioning of multilayer HfO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub> coatings [C]//SPIE, 1990, 1441: 287-293.

#### 下期预览

## 环形腔中背向散射特性的理论研究

汪之国, 龙兴武, 王 飞, 谭中奇

(国防科学技术大学 光电科学与工程学院 光电工程系, 湖南 长沙 410073)

**摘要:** 研究了连续激光注入时无源环形腔的背向散射特性。首先, 分析了注入光与无源腔频率完全匹配时, 正向光和背散光振幅的稳态解, 以及充光和快速关断过程中正向光和背散光振幅随时间的演化。其次, 推导了无源腔中正向光和背向散射光的峰值半宽。最后, 讨论了正向光和背散光随注入光频率扫描速度的变化。发现在环形腔中, 总背向散射光强要比单圈背向散射光强大, 背向散射光的峰值半宽为正向光的 0.64 倍。这些发现对背向散射精密测量、扫频法测腔损具有一定的参考作用。