

# CO<sub>2</sub> 连续激光预处理基板对光学 薄膜损伤阈值的影响\*

吴周令 高 扬\*\* 范正修 王之江

(中国科学院上海光学精密机械研究所, 上海, 201800)

**摘要**——实验研究 CO<sub>2</sub> 激光预处理基板对光学薄膜损伤阈值的影响, 发现对单层膜及增透膜, 辐照预处理使阈值显著提高, 最高达未辐照处理的 5 倍; 而对高反膜, 辐照预处理无大的影响。用重复频率脉冲光热偏转技术实时研究了光吸收与损伤的对应关系, 用时间分辨脉冲光偏转技术确定了初始损伤在样品深度方向上发生的位置, 用连续调制光偏转技术, 结合 Nomarski 光学显微镜分析了损伤形貌, 得出了一些有意义的结论。

**关键词**——薄膜损伤, 光吸收, 光热偏转, CO<sub>2</sub> 激光预处理基板。

## 1. 引 言

基板表面质量对薄膜的光学特性有着重要影响。为降低薄膜的光学损耗, 提高其损伤阈值, 人们在基板制备及其预处理技术上做了许多努力, 包括发展新的抛光工艺<sup>[1~6]</sup>, 改进清洗技术<sup>[7~10]</sup>, 镀膜前真空中烘烤基板<sup>[11, 12]</sup>, 以及对基板进行激光辐照预处理<sup>[13~17]</sup>等。这些努力虽然在不同程度上改善了薄膜的光学质量, 但迄今为止, 人们尚未彻底认清基板制备工艺与膜层损伤阈值之间的对应规律及其机理。

本文以石英基底上镀制的 TiO<sub>2</sub>、SiO<sub>2</sub> 单层膜、增透膜及高反膜为例, 实验研究了 CO<sub>2</sub> 激光预处理基板对光学薄膜吸收损耗与损伤阈值的影响, 并结合损伤形貌分析及损伤过程的光偏法实时探测<sup>[18]</sup>, 对相关机理作了分析讨论, 得出了一些有意义的结论。

## 2. 实 验 方 法

样品一律镀制在石英玻璃基底上, 具体膜系结构及工艺条件如表 1 所示。用来进行辐照处理的 CO<sub>2</sub> 激光工作波长为 10.6 μm, 功率约为 120 W, 辐照光斑直径为 15 mm, 辐照时间为 180 s。对于在空气中进行辐照处理的基板, 处理后在空气中暴露 24 h, 然后再放入真

本文 1989 年 11 月 12 日收到。

\* 国家高技术基金资助课题。

\*\* 上海精密仪器研究所, 上海, 200233。

空中沉积薄膜;而对于在真空中进行辐照的基板,辐照后基板不与空气接触,在真空室中冷却然后直接沉积膜层。

表 1 实验样品及其制备工艺 ( $\lambda_0=1.06 \mu\text{m}$ )

Table. 1 Investigated samples and processing technologies ( $\lambda_0=1.06 \mu\text{m}$ ).

样品编号	膜系结构	基板预处理工艺	膜层沉积工艺
$S_{1a}$ $S_{1b}$ $S_{1c}$	$\text{TiO}_2$ 单层膜; $nd=\lambda_0/2$	常规处理 空气中激光辐照预处理 真空中激光辐照预处理	电子束热蒸发; 真空度 $(2\sim3) \times 10^{-5} \times 133.32$ Pa; 基板烘烤 $200^\circ\text{C}$ .
$S_{2a}$ $S_{2b}$ $S_{2c}$	$\text{SiO}_2$ 单层膜; $nd=\lambda_0/2$	常规处理 空气中激光辐照预处理 真空中激光辐照预处理	
$S_{3a}$ $S_{3b}$ $S_{3c}$	A(LH)G H: $\text{TiO}_2$ L: $\text{SiO}_2$	常规处理 空气中激光辐照预处理 真空中激光辐照预处理	
$S_{4a}$ $S_{4b}$ $S_{4c}$	A(HL) <sup>20</sup> HG H: $\text{TiO}_2$ L: $\text{SiO}_2$	常规处理 空气中激光辐照预处理 真空中激光辐照预处理	

我们在自己建立的实验装置<sup>[18]</sup>上进行阈值测试。激光系统由 Nd:YAG 振荡器和两级 Nd:YAG 放大器组成。振荡器采用 LiF 晶体调 Q, 小孔光栏选模, 输出波长为  $1.06 \mu\text{m}$ , 脉宽(FWHM)为 10 ns, 工作于单模状态。入射激光束由一消象差非球面透镜( $f \approx 80 \text{mm}$ )会聚于样品表面, 光斑直径( $I_0/e^2$ )为  $44 \mu\text{m}$ 。损伤实验采用 1-on-1 方式, 即在样品表面同一位置只照射一次激光, 而不管这一点发生破坏与否。薄膜损伤阈值定义为对应零损伤几率的初始损伤阈值<sup>[19, 20]</sup>; 与传统的对应 50% 损伤几率的阈值定义相比, 这一定义可排除损伤实验中光斑效应<sup>[21, 22]</sup>的影响, 具有明显的优越性。薄膜损伤定义为薄膜经激光辐照后发生了可观测的不可逆物理变化。本文中用连续调制光偏转技术观测损伤<sup>[18, 23]</sup>, 损伤的含义是薄膜的调制光偏转信号发生了不可逆的转变。

吸收测量采用重复频率脉冲光偏转技术<sup>[24, 25]</sup>, 其实验装置与损伤系统耦合在一起<sup>[18]</sup>, 可进行实时分析。

损伤过程则由时间分辨脉冲光偏转技术来进行研究。通过分析临界破坏时的脉冲光偏转信号峰值在时间轴上的位置, 可精确测定膜层表面、膜层内部及膜与基板界面损伤的位置<sup>[18]</sup>。

损伤形貌用连续调制光偏转技术与 Nomarski 光学显微镜进行对比分析, 前者可对损伤程度给出量的概念, 后者具有非常直观的特点。两者结合, 则有助于分析不同膜层的损伤行为及相关机理。

### 3. 实验结果与讨论

#### 3.1 样品吸收及损伤阈值测试

测试结果如表 2 所示。

表 2 样品吸收及损伤阈值测试结果( $\lambda_0=1.06\ \mu\text{m}$ )Table 2 Measured absorption and laser-induced damage thresholds of the samples investigated ( $\lambda_0=1.06\ \mu\text{m}$ ).

项 目	结 果	样 品					
		$S_{1a}$	$S_{1b}$	$S_{1c}$	$S_{2a}$	$S_{2b}$	$S_{2c}$
吸收率 $A(10^{-4})$		$1.25\pm 1.0$	$12.7\pm 1.2$	$3.9\pm 0.8$	$2.3\pm 0.2$	$2.1\pm 0.2$	$0.8\pm 0.1$
阈值 $F_{th}(J\text{cm}^{-2})$		$7.8\pm 1.2$	$7.8\pm 1.8$	$41.3\pm 5.4$	$18.3\pm 1.0$	$19.2\pm 1.5$	$67.3\pm 6.2$
		$S_{3a}$	$S_{3b}$	$S_{3c}$	$S_{4a}$	$S_{4b}$	$S_{4c}$
吸收率 $A(10^{-4})$		$11.3\pm 0.9$	$10.4\pm 1.1$	$4.2\pm 1.8$	$6.8\pm 1.3$	$6.6\pm 1.8$	$7.1\pm 1.5$
阈值 $F_{th}(J\text{cm}^{-2})$		$4.3\pm 1.8$	$4.4\pm 1.3$	$18.2\pm 5.7$	$8.8\pm 2.1$	$8.2\pm 3.1$	$8.6\pm 2.5$

由表 2 可以看出:

(1) 对于单层膜及增透膜, 真空中 CO<sub>2</sub> 激光预处理基板显著地提高了损伤阈值, 最高达未辐照处理的 5 倍. 而对高反膜, 辐照预处理基板对损伤阈值则无大的影响.

(2) 空气中激光预处理基板对膜层损伤阈值没有提高.

(3) 对同一种膜系结构, 损伤阈值与吸收具有明显的对应关系, 吸收大, 则阈值小.

我们对以上现象的解释是: 对于 TiO<sub>2</sub>、SiO<sub>2</sub> 单层膜及增透膜, 其膜层-基板界面处光场较强, 吸收较大<sup>[6]</sup>, 相对较容易发生损伤. 真空中 CO<sub>2</sub> 激光辐照预处理可除去基板表面吸附的水汽及其它杂质, 改善膜层-基板界面质量(如降低界面吸收等), 从而可提高单层膜及增透膜的损伤阈值. 对于高反膜, 由于在膜层-基板界面处的光场几乎为零, 故对基板辐照的处理一般不会提高其损伤阈值. 空气中激光预处理基板对膜层损伤阈值没有提高, 这可归因于基板在辐照处理后, 由于又暴露于大气之中而对水汽等杂质产生了再次吸附.

### 3.2 样品均匀性分析

由于预处理基板时 CO<sub>2</sub> 激光束光强分布的影响, 相关样品损伤阈值在整个辐照影响区域内呈明显的不均匀性, 如图 1 所示.

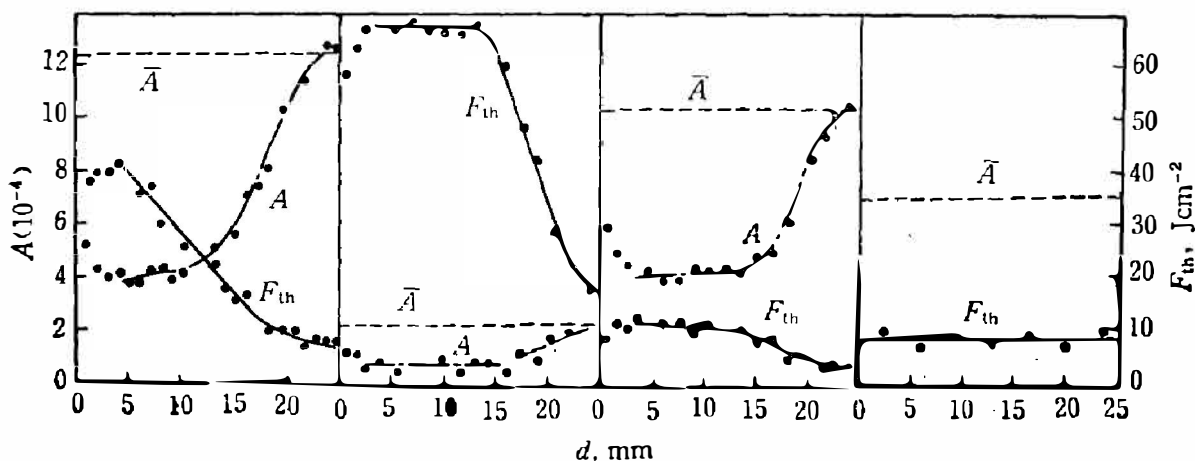


图 1 样品均匀性

Fig. 1 Uniformity of the samples investigated.

(1) 在 CO<sub>2</sub> 激光辐照中心附近的很小区域内, 样品吸收较大而阈值较低; 其原因为: 该区域基板表面在预处理过程中已经遭到了 CO<sub>2</sub> 激光的烧蚀破坏.

(2) 离开辐照中心的大吸收区域后, 吸收随着测试点到辐照中心距离的增加先减小后增加, 直至稳定; 而阈值则先增加后减小, 最后也达到稳定. 阈值与损伤之间再一次显示了良好的对应关系, 说明在  $\text{TiO}_2$  及  $\text{SiO}_2$  膜层损伤过程中, 吸收起主导作用. 这一结论与我们前期实验结果<sup>[19]</sup>是一致的.

### 3.3 样品损伤过程研究

图 2 为  $\text{TiO}_2$  单层膜及  $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$  高反膜在临界破坏时的时间分辨光热偏转信号. 膜层光热偏转信号在临界破坏时产生跃变, 使时间分辨光热偏转信号中信号峰值的位置对应于膜层中损伤发生的位置<sup>[18]</sup>, 如图 3 所示.

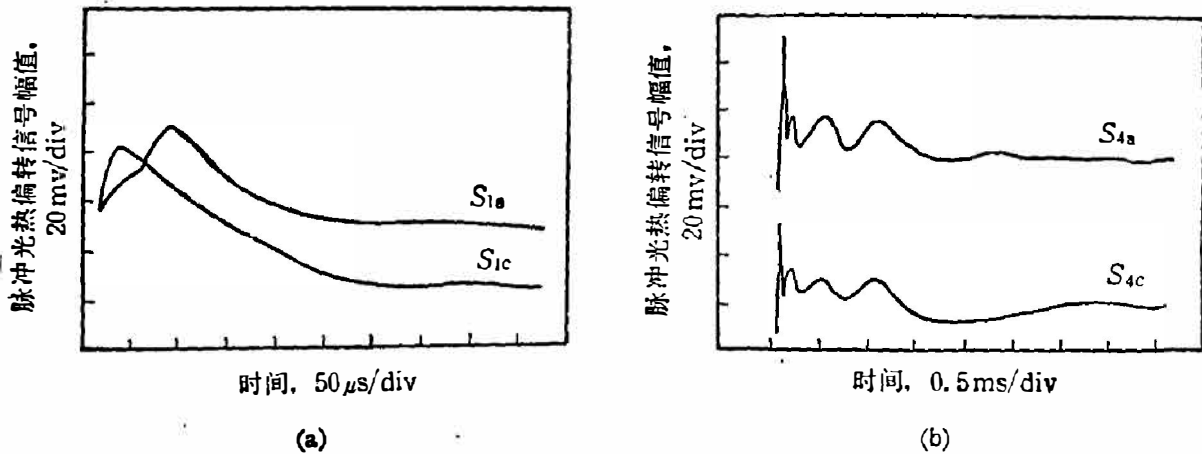


图 2 薄膜样品临界破坏时的时间分辨脉冲光热偏转信号;  
(a)  $\text{TiO}_2$  单层膜; (b)  $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$  高反膜

Fig. 2 Pulsed time-resolved photothermal deflection signal of  $\text{TiO}_2$  single layer (a) and  $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$  HR Coating (b).

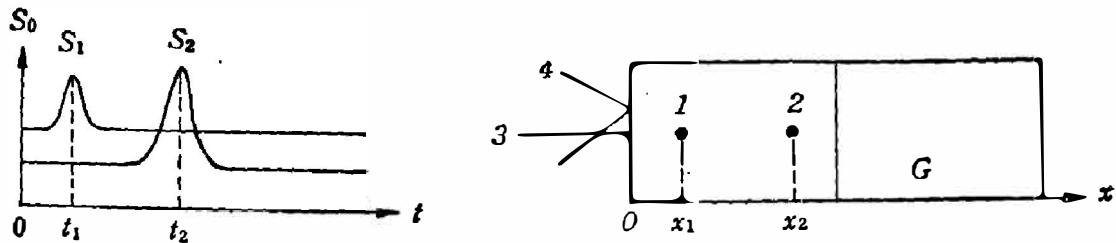


图 3 用时间分辨脉冲光热偏转技术探测损伤发生位置原理示意图

Fig. 3 An illustration of the principle of detection of the damage position by pulsed time-resolved photothermal deflection technique.

比较图 2(a) 与图 2(b) 容易看出: 对  $\text{TiO}_2$  单层膜, 真空中激光预处理基板使初始损伤点的发生位置由薄膜-基板界面移向了膜层内部, 进一步说明辐照预处理改善了界面结构. 而对  $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$  高反膜, 由于光场在最外层高折射率介质层中最强, 故破坏总在该层内部发生, 与基板是否进行过辐照处理无关. 这些结论与上述 3.1 节的分析是一致的.

图 3 中, 1、2 为损伤位置; 3 为损伤激光束; 4 为探测激光束;  $S_0$  为光脉冲信号;  $S_1$  为对应于损伤位置 1 的光热偏转信号峰值;  $S_2$  为对应于损伤位置 2 的光热偏转信号峰值. 根据文献<sup>[18]</sup>,

$$t_2 : t_1 = x_2^2 : x_1^2.$$

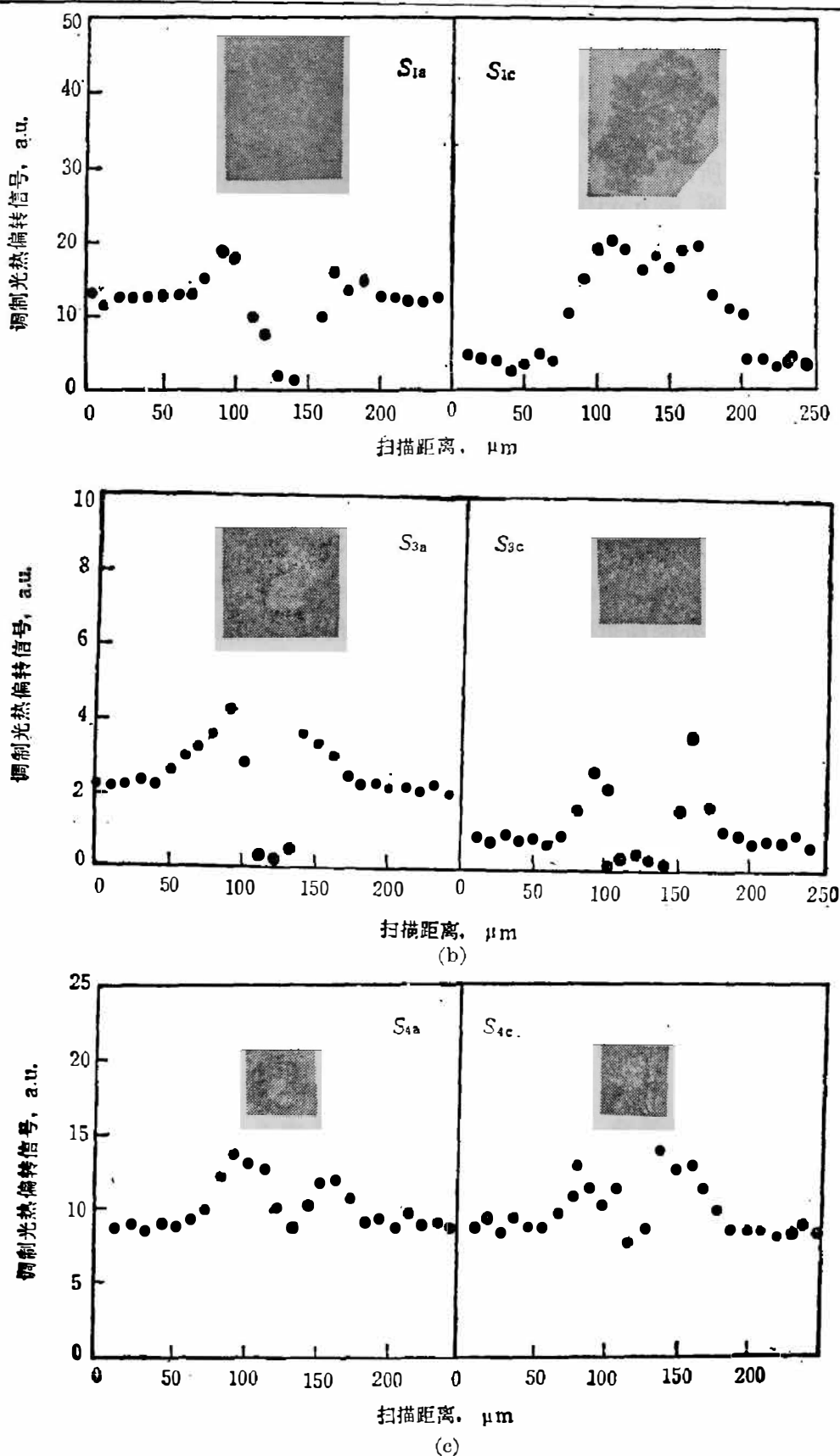


图 4 损伤形貌分析

(a) TiO<sub>2</sub> 单层膜; (b) SiO<sub>2</sub>/TiO<sub>2</sub> 增透膜; (c) TiO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub> 高反膜

Fig. 4 Analysis of the damage morphology.

(a) TiO<sub>2</sub> single layer; (b) SiO<sub>2</sub>/TiO<sub>2</sub> AR coating; (c) TiO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub> HR coating.

### 3.4 样品损伤形貌分析

为进一步分析基板激光预处理对光学薄膜损伤行为的影响,以TiO<sub>2</sub>单层膜、SiO<sub>2</sub>/TiO<sub>2</sub>增透膜及TiO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub>高反膜为例,用调制光热偏转技术及Nomarski光学显微镜分析了损伤形貌,结果如图4所示。图4中的虚线(点)是离散的取样点。

(1) 在图4(a)中,对TiO<sub>2</sub>单层膜,基板未经辐照处理的样品,其损伤发生在膜与基板界面,损伤表现形式为基板及界面膜层被烧蚀进而导致整个膜层剥落,使调制光热偏转信号在损伤点中心几乎下降为零。基板经辐照处理的样品,其损伤发生在膜层内部,损伤表现形式为调制光热偏转信号的加大,表明损伤区残留膜层吸收显著增强。

(2) 在图4(b)中,对SiO<sub>2</sub>/TiO<sub>2</sub>增透膜,两种样品的损伤都发生在膜与基板界面,表明:即使基板经过了真空中激光辐照预处理,增透膜的膜与基板界面也依然是最易损伤的薄弱环节。

仔细比较两种样品的损伤形貌还可以看出:在同样的脉冲激光作用下,基板未经辐照处理的样品损伤斑点相对较大,而且基板也有轻微破坏。这是由于其界面质量相对较差。

(3) 在图4(c)中对TiO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub>高反膜,两种样品损伤形貌完全相同,表明高反膜的初始损伤主要发生在最外层高折射率介质层,样品损伤行为受膜层-基板界面的影响不大。

## 4. 结 论

(1) 真空中CO<sub>2</sub>激光预处理基板可除去基板表面的水吸附等杂质,从而改善薄膜样品的膜层-基板界面质量。这种界面质量的改善对高反膜无甚影响,对单层膜及增透膜则可降低吸收损耗,提高损伤阈值。

(2) 真空中CO<sub>2</sub>激光预处理基板对膜层均匀性有较大影响。因此,要使这种技术真正实用化,需进一步改进辐照激光束质量及辐照方式。

(3) 在介质膜损伤(10 ns-1.06 μm-Nd:YAG激光)过程中,吸收起主导作用,由局部吸收而引起的热破坏是损伤的主要表现形式。

致谢——作者感谢史瑛、孙畅、苏星、李成富、李仲伢、范瑞英、陆月妹等同志在本文实验过程中给予的有益帮助和讨论。

## 参 考 文 献

- [1] Temple P. A. et al., *NBS Spec. Publ.*, **669** (1984), 130.
- [2] Namba Y. et al., *NBS Spec. Publ.*, **669** (1984), 138.
- [3] Vora. H. et al., *NBS Spec. Publ.*, **669** (1984), 146.
- [4] Nose Y. et al., *NBS Spec. Publ.*, **752** (1988), 259.
- [5] Yoshida, K. et al., *NBS Spec. Publ.*, **752** (1988), 271.
- [6] Stewart A. F. et al., *Laser Induced Damage in Optical Materials: 1988*, NIST Spec. Publ., to be published.
- [7] Hoffman. R. A. *NBS Spec. Publ.*, **435** (1975), 14.
- [8] Talim, S. P., *Opt. Acta*, **28** (1981), 1401.
- [9] Swain, J. E. et al., *NBS Spec. Publ.*, **669** (1984), 292.
- [10] Yoshida, K., et al., *Laser Induced Damage in Optical Materials: 1988*, NIST Spec. Publ., to be published.

- [11] Narasimha, K. et al., *NBS Spec. Publ.*, **746** (1988), 429.
- [12] 吴周令等, *中国激光*, **16** (1989), 8: 470.
- [13] Lowdermilk, W. H. et al., *IEEE J. Quant. Electron.*, **QE-17**(1981), 1883.
- [14] Temple, P. A. et al., *Appl. Opt.*, **21** (1982), 3249.
- [15] Frauns, B. et al., *Thin Solid Films*, **138** (1986), 157.
- [16] Wolf, R. et al., *Thin Solid Films*, **162** (1988), 127.
- [17] Tilak Raj et al., *Laser Induced Damage in Optical Materials: 1988*, NIST Spec. Publ., to be published.
- [18] 吴周令等, *光学学报*, **10** (1990), 3: 245.
- [19] Foltyn, S. R., *NBS Spec. Publ.* **669** (1984), 368.
- [20] Portus, J. O. et al., *Appl. Opt.*, **23** (1984), 3769.
- [21] Deshazer, L. G. et al., *NBS Spec. Publ.*, 387(1973), 114.
- [22] 吴周令等, *激光与红外*, **19** (1989), 3: 23.
- [23] Olmstead, M. A. et al., *Appl. Phys. A*, **32**(1983), 141.
- [24] Karner C. et al., *Appl. Phys. A*, **33** (1985), 19.
- [25] Balageas, D. L. *J. Appl. Phys.*, **59** (1986), 2: 348.
- [26] Wu Zhouling et al., *Laser Induced Damage in Optical Materials: 1988*, NIST Spec. Publ., to be published.

## EFFECT OF CO<sub>2</sub> LASER IRRADIATED SUBSTRATES ON DAMAGE THRESHOLD OF OPTICAL COATINGS\*

WU ZHOULING, GAO YANG\*\* FAN ZHENXU, WANG ZHILIANG

(*Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Academia Sinica, Shanghai, 201800, China*)

### ABSTRACT

The effect of CO<sub>2</sub> laser irradiated fused silica substrates on the damage resistance of optical coatings is investigated with a 10 ns-1.06 μm-Nd:YAG laser. For TiO<sub>2</sub> (SiO<sub>2</sub>) single layer and SiO<sub>2</sub>/TiO<sub>2</sub> AR coating, an increase in the damage threshold by a factor of up to 5 is observed, which however could not be observed with SiO<sub>2</sub>/TiO<sub>2</sub> HR coatings. Three other experiments, i. e. in-situ investigation of the relationship between the absorption and the damage resistance by pulsed photothermal deflection technique (pulsed PDT), real-time detection of the damage process by time resolved PDT and analysis of the damage morphology by modulated CW PDT and Nomarski microscope are carried out. Some meaningful conclusions are obtained.

---

\* Project supported by the Chinese National Fund of High Technique.

\*\* *Shanghai Precision Instruments Institute, 200233, Shanghai, China.*