

强激光对薄膜的损伤研究

吴周令 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)

评述了光学薄膜激光损伤的研究现状, 论述了光学薄膜激光损伤的基本问题, 介绍了中国科学院上海光学精密机械研究所近年来在该领域内的主要研究工作。文中引用的文献对激光损伤及薄膜光学工作者有重要的参考价值。

光学薄膜是激光系统中最易损伤的薄弱环节。在激光核聚变及激光防卫武器等强激光技术研究过程中, 薄膜损伤常常是限制激光器件规模和能量输出水平的一个主要因素。因此, 研究薄膜强激光损伤, 不断提高其抗激光强度, 对研制与发展战略防御武器, 改进强激光系统并扩展其在科研和生产中的应用, 具有非常重要的意义。

薄膜激光损伤是薄膜与强相干辐射相互作用的结果。在强相干辐射作用下, 薄膜具有许多新的行为, 这些行为通常难以用经典的薄膜光学理论来进行解释。因此, 研究薄膜激光损伤, 分析薄膜与强激光相互作用的过程及其结果, 将会促进强光材料科学, 强光薄膜科学等新学科的形成与完善, 具有重要的学术意义。

要认清薄膜的激光损伤机理, 必须准确把握薄膜与激光的特性, 欲提高薄膜的激光损伤阈值, 要具备适当的制备技术。因此, 开展薄膜激光损伤研究, 客观上将给光学测试技术及光学冷加工技术不断提出新的要求, 指明新的方向, 从而带动若干新技术的发展。

由于以上原因, 光学薄膜激光损伤研究自从 60 年代初最早在美国开展以来, 受到了愈来愈广泛的重视, 并在各国科学工作者的共同努力下, 取得了一系列重要进展^[1]。

然而, 光学薄膜激光损伤是一个十分复杂的现象^[2,3]。其复杂性首先来源于不明确/不统一的损伤及损伤阈值的概念, 即什么是损伤以及如何确定损伤阈值。

广义地讲, 光学元件的激光损伤可定义为元件由于激光的作用而发生了可观测的变化。根据这一定义, 损伤可分为器质性与功能性两类。器质性损伤指由于激光的作用, 元件局部或整体的结构/特性发生了可观测的变化。这类损伤通常是灾难性的、不可逆的, 如表 1 所示。

表 1 光学元件器质性损伤的几种典型形式

| (A) 局部损伤/表面薄膜损伤 | (B) 体损伤/结构性损伤 |
|-----------------|---------------|
| (a) 表面熔化 | (a) 软化/退火效应 |
| (b) 紫外消融 | (b) 产生裂纹/裂解 |
| (c) 波纹状损伤 | (c) 熔化 |
| (d) 缺陷增强(色心损伤) | (d) 爆炸性碎裂/熔化 |

与器质性损伤相对, 功能性损伤是指发生在器质性损伤之前的元件功能的变化, 它通常是瞬态的、可逆的。其危害在于它会严重地影响激光输出及传播特性, 可诱发器质性损伤的产生。功能性损伤的几种典型形式如表 2 所示。

光学薄膜的激光损伤一般是指器质性损伤。损伤的观察方法有多种^[4-12], 如表 3 所示。方法的多样性一方面有助于人们从不同侧面认识损伤现象, 另一方面又使大量的实验数据之间难以比较, 加深了问题的复杂性。

损伤阈值的定义, 目前较为通行的有两种。一种是传统的损伤阈值定义, 取不造成破坏的最大能量密度值与造成破坏的最小能量密度值的平均值为损伤阈值, 对应于 50% 的损伤几率

$$F_{th} = [F_{max}(ND) + F_{min}(D)]/2.$$

表 2 光学元件功能损伤的几种典型形式

| 形式 | 表现 |
|-----------------|--|
| (A) 一般热效应 | 元件表面位移及变形;光学图象畸变;热应力;元件光学性质的改变 ($\Delta n, \Delta k, \Delta R, \Delta T, \Delta A$); 薄膜厚度及折射率的改变 |
| (B) 反射光学元件功能性损伤 | 产生波形畸变;加强散射损耗;引起光束偏转;自聚焦/百散焦效应 |
| (C) 透射光学元件功能性损伤 | 梯度折射率效应;热透镜效应;双折射效应;非线性效应,如倍频效应等 |

表 3 光学元件激光损伤的一些典型探测方法

| | |
|------------------------|---------------------------|
| 肉眼观察法 ^[6] | 光学显微法 ^[4] |
| 扫描电镜法 ^[9] | 电子发射法 ^[6] |
| 表面能分析法 ^[7] | 光声法 ^[9] |
| 光热偏转法 ^[9] | 散射法 ^[10] |
| 可见光发射法 ^[11] | 拉曼光谱法 ^[11] |
| 质谱分析法 ^[12] | 表面二次谐波分析法 ^[11] |

同时定义损伤阈值扩展范围为

$$S = [F_{\max}(ND) - F_{\min}(D)]/F_{th}$$

用以表征损伤测试过程中的统计特性。另一种是新近提出的新的激光损伤阈值定义,它是在对测试结果进行统计分析的基础上,取对应于零损伤几率的能量密度值为损伤阈值,称为初始损伤阈值。初始损伤阈值的确定方法如下:(1)测出不同能量密度下样品的损伤几率;(2)由测得结果用曲线拟合法求出对应零损伤几率的能量密度值,此即为损伤阈值。

以上两种损伤阈值定义各有利弊,前者半定量地包含了损伤测试的统计特性,阈值扩展范围在一定程度上反映了样品的均匀性,故对用户更具有实用价值。后者表征样品损伤的临界行为,排除了实验过程中诸如样品不均匀、环境不稳定等偶然因素的影响,因而更有利于研究损伤机理。

影响薄膜损伤行为的因素很多,有薄膜方面的,也有激光方面的,还有实验环境方面的,等等,使光学薄膜激光损伤的机理变得很复杂。

目前已知的影响损伤行为的薄膜方面的因素如表 4 所示。这些因素大体上可分为局部特性与体特性两大类。局部特性主要是指存在于膜层表面、界面或体内的杂质、缺陷,这些杂质缺陷一般是在沉积过程中引入的,也可能来源于初始膜料或膜层的保存及使用环境。它们在

表 4 影响膜层损伤行为的薄膜方面的因素

| 局部特性/杂质、缺陷 | 体特性 |
|--------------------------------|--|
| (1) 较大尺度的: 裂纹、溅污、灰尘 | (1) 光学特性: 折射率、线性及非线性吸收 |
| (2) 较小尺度的: 杂质成分,晶界及微结构界面,色心,断键 | (2) 机械/力学特性: 应力/应变;弹性力学特性;密度/孔隙率;微结构;表面粗糙度 |
| | (3) 热学特性: 热导率、热容 |
| | (4) 化学特性: 化学计量比、化学组分 |
| | (5) 膜系结构: 电场分布;膜厚及膜层数 |

短脉冲激光损伤过程中常常是诱发损伤的主要起始因素^[13]。

薄膜的体特性主要是指薄膜的化学成分,膜系结构,光学、热学及力学性质等。体特性虽然一般不是诱发损伤的主要起始因素,但它却可能是确定损伤阈值的主要决定因素。一般地讲,具有合理的膜系结构、较低的折射率、较低的吸收、较低的散射以及较高的热导率的膜层,通常具有较高的损伤阈值。

影响光学薄膜损伤行为的激光方面的因素包括激光的能量密度、功率密度、波长、脉宽、光斑尺寸、重复频率、入射角、偏振态、模式、光束形状、脉冲形状等。这些激光参数对损伤行为的影响又常常和薄膜特性交织在一起(如表 5 所示),使问题变得更为复杂。

表 5

| 薄膜特性 | 激光参数 |
|-------|-----------|
| 杂质、缺陷 | 光斑尺寸 |
| 吸收 | 波长 |
| 热导率 | 脉宽 |
| 非线性特性 | 峰值功率、电场强度 |
| 应力/应变 | 能量密度、重复频率 |

由于以上原因,光学薄膜激光损伤研究虽

然已经开展了二十多年,并在各国科学家的共同努力下取得了许多重要进展,目前依然有很多问题有待进一步解决。这些问题主要包括:

1. 认清光学薄膜的激光损伤机理

多年来,在大量实验的基础上,人们对光学薄膜的激光损伤机理提出了种种假设,作了许多有益的探索^[4,15],然而至今尚未得出统一的结论^[46]。这一结果表明,可能存在多种损伤机制,这多种机制在薄膜与激光作用过程中相互竞争,竞争的结果依赖于激光参数与薄膜特性。

2. 进一步发展薄膜特性测试技术

一般地说,光学薄膜激光损伤阈值比相应的块状材料要低得多。而薄膜与相应块状材料的主要差别通常表现在杂质缺陷密度、光吸收、热物性以及力学性质等方面。因此,要真正认清光学薄膜损伤机理,必须发展相应的薄膜特性测试技术。这些技术,特别是薄膜杂质缺陷分析及热物性研究技术,在目前是相当缺乏的^[2]。

3. 发展新的激光损伤诊断技术

对于新的诊断技术,一方面,人们希望它能实时研究薄膜损伤的动力学过程^[9,11],以便了解薄膜在强光下的行为,揭示薄膜的损伤机理。另一方面,人们希望它能定量地反映出损伤的程度及特征,以利于阈值测试的自动化与标准化^[17]。

4. 进一步改进传统沉积工艺,同时努力发展新的制备技术

光学薄膜激光损伤研究的主要目的之一是研制出优质的抗激光损伤元件。因此,研究沉积工艺对光学薄膜特性的影响,并在此基础上改进传统的薄膜技术,发展新的制备工艺,一直是各国科学工作者的研究热点^[48]。

我国对光学薄膜激光损伤的研究开展得比较早。有关方面的工作,大体上可分为两个阶段。

第一阶段主要是研究大能量自由脉冲激光束对光学薄膜的损伤。这一阶段的激光束是多尖峰的长脉冲,脉冲能量的时间波形与空间分布都是不均匀和不稳定的,光学质量得不到可靠的保证。因此,这一阶段的实验虽然也揭示

了一些规律,解决了一些问题,总的来说,数据重复性较差,与国外结果的可比性也较差。

第二阶段是从70年代后期开始,主要开展了大功率激光束对光学薄膜的损伤研究,内容有以下几方面:

(1)建立了大功率激光损伤测试系统以及薄膜吸收、散射等光学性能测试装置,可以对薄膜的有关性能进行综合测试。

(2)通过研究薄膜在不同脉冲宽度及不同重复频率激光作用下的损伤行为,以及分析、计算薄膜内部的激光能量沉积与温度场分布,指出了累积效应、吸收、杂质缺陷在薄膜损伤中的作用,探讨了光学薄膜的激光损伤机理。

(3)在膜系设计、膜料制备及沉积工艺等方面作了大量研究工作。设计和研制成功具有较高抗激光损伤强度的高反膜、增透膜,倍频膜及大型偏振膜,保证了激光12#装置(神光系统)的正常运转。

这一阶段由于较好地控制了激光束质量及实验条件,数据和结果比较可靠,在一定程度上可与国外相比拟,标志着我国在该领域内的研究工作已逐步走进国际行列。

然而从整体上看,一方面,由于各种原因,我们过去的研究工作主要局限于解决实际应用中的具体问题,系统性不强;另一方面,由于缺乏合适的弱吸收测量,杂质、缺陷探测,热物性分析以及损伤过程的实时诊断等重要技术,我国在损伤机理的研究方面,基础显得尤为薄弱。

近年来,在国家高技术基金的支持下,我们又重新组织力量对光学薄膜激光损伤进行了较为系统的实验研究与理论分析,主要工作如下:

(1)建立了一套光热偏转光谱术实验装置,对薄膜的光热偏转技术进行了详细的理论分析与实验研究。在此基础上,首次把光热偏转光谱术的几种不同方案耦合在一起,实现了光学薄膜弱吸收损耗的高精度测量,区分了薄膜的体内吸收与界面吸收,分析了薄膜的杂质缺陷,研究了薄膜的热导率及热膨胀系数。

(2)把调制及脉冲光热偏转技术同时植入光学薄膜激光损伤测试系统之中,用以实时研

究光学薄膜的激光损伤过程及薄膜在强光作用下的瞬态行为, 得出许多有意义的结论^[9,19]。相关实验方法及实验结果不仅有助于认识光学薄膜的激光损伤机理, 也有助于认识薄膜在强光作用下的非线性行为, 为建立与发展强光薄膜光学打下了实验基础。

(3) 详细地研究了基板、膜厚、膜系结构、保护膜与衬底膜以及光学损耗等薄膜方面的诸因素对光学薄膜损伤阈值的影响, 获得了较为系统的参考数据。在此基础上, 通过改进膜系结构与制备工艺, 使光学薄膜的激光损伤阈值得到了大幅度的提高, 接近或达到了国际同类膜层的抗激光损伤能力^[20]。

(4) 详细地研究了波长、脉宽、重复频率以及光斑直径等激光参数对光学薄膜激光损伤阈值的影响。在此基础上, 对光学薄膜的激光损伤机理进行了分析讨论, 指出了国际上流行的杂质、缺陷损伤模型的局限性, 提出了损伤机理随激光参数的变化而逐渐转变的假说, 在较好地解释了现有实验现象, 为进一步提高光学薄膜激光损伤阈值指出了努力的方向。

光学薄膜激光损伤研究方兴未艾。我们目前正在进行和准备进行的研究工作包括:

(1) 进一步完善现有的激光损伤测试系统及相应的诊断技术, 以实现损伤阈值测试的自动化与标准化。

(2) 进一步发展杂质、缺陷探测及热物性分析技术, 区分杂质、缺陷类型, 研究工艺—结构—物性(特别是热物性)—损伤阈值之间的内在联系, 以早日认清光学薄膜的激光损伤机理。

(3) 继续深入研究薄膜在强光作用下的瞬态行为, 为建立与发展强光薄膜光学作出贡献。

(4) 发展磁控溅射、离子溅射、离子辅助及化学镀等新型成膜技术, 以进一步改善薄膜的

光学质量, 提高其损伤阈值。

作者感谢西南技术物理研究所周九林教授、浙江大学唐晋发教授以及美国 Los Alamos 国家实验室 A. H. Guenther 的有益帮助与讨论。此外, 汤雪飞同志与居逸群女士协助作者进行了文献调研, 一并致谢。

- [1] The Proc. of Boulder Damage Symposia Laser-Induced Damage in Optical Materials: Year, Published as NIST (former NBS) Spec. Publ. : 1970, 341 (1970); 1971, 356(1971); 1972, 372(1972); 1973, 387(1973), 1974, 414(1974); 1975, 435(1975); 1976, 462(1976); 1977, 509(1977); 1978, 541(1978); 1979, 568(1980); 1980, 620(1981); 1981, 638(1983); 1982, 669(1984); 1983, 668(1985), 1984, 727(1986); 1985, 746(1988); 1986, 752(1988); 1987—1989, to be published.
- [2] C. K. Carniglia, *Proc. SPIE*, 652(1986), 202.
- [3] K. H. Guenther, *Proc. SPIE*, 801(1987), 200.
- [4] D. Milam, *Proc. SPIE*, 140(1978), 52.
- [5] L. F. Johnson et al., *Nat. Bur. Stand. (U. S.) Special Publication*, 727(1986), 356.
- [6] M. F. Becker et al., *Nat. Bur. Stand. (U. S.) Special Publication*, 688(1985), 429.
- [7] M. F. Becker et al., *Nat. Bur. Stand. (U. S.) Special Publication*, 727, 116.
- [8] A. Rosecwaig et al., *Appl. Phys. Lett.*, 36-7(1980), 667.
- [9] Z. L. Wu et al., *Optical Coatings—Proc. of International Symposium 23—25 May 1989, Shanghai*, 上海科学技术出版社, (1989), 266
- [10] J. B. Franck et al., *Nat. Bur. Stand. (U. S.) Special Publication*, 727(1986), 71.
- [11] P. M. Fauchet et al., *Proc. SPIE*, 895(1988), 211.
- [12] R. C. Estler et al., *Nat. Bur. Stand. (U. S.) Special Publication*, 746(1988), 61.
- [13] T. W. Walker et al., *IEEE J. Quant. Electr.*, QE-17-10(1981), 2041.
- [14] T. W. Walker et al., *IEEE J. Quant. Electr.*, QE-17-10(1981), 2053.
- [15] M. R. Lange et al., *NIST (U. S.) Special Publication*, 752(1988), 611.
- [16] M. F. Koldunov et al., *Proc. SPIE*, 1047(1989), 284.
- [17] S. C. Seitel, *Lasers & Optronics*, 6-10(1987), 67.
- [18] H. A. Macleod, *Proc. SPIE*, 652(1986), 222.
- [19] 吴周令等, *光学学报*, 10-3(1990), 待发表.
- [20] Z. X. Fan, *Optical Coatings—Proc. of International Symposium 23—25 May 1989, Shanghai*, 上海科学技术出版社, (1989), 343.

(上接第88页)

织, 象生命那样高效率地利用太阳能, 象生命那样进行巧妙的能量和物质转换, 象生命那样适应环境和进行自我修复、自我增殖, 象生命那样地进行动作和行为控制, 实现高效小型的动力系统, 象生命那样地进行学习、记忆和感知,

进行极其复杂的信息加工。现代科学技术规模庞大, 它建立在高温、高压、高速、高能耗的基础上。向生命学习有可能使现代科学技术根本改观, 使人类社会与自然环境更加互相协调。在未来科学技术的大旗上书写的口号将不是“征服自然”, 而是“人和自然、社会的协调发展”。