论文

颗粒污染诱导薄膜元件产生激光损伤

章春来^①, 姚春梅^②, 向霞^{③*}^① 西南民族大学电气信息工程学院, 成都 610041^② 西南民族大学药学院, 成都 610041^③ 电子科技大学物理电子学院, 成都 610054

* E-mail: xiaxiang@uestc.edu.cn

收稿日期: 2016-01-13; 接受日期: 2016-03-01; 网络出版日期: 2016-06-17

四川省教育厅资助科研项目(编号: 15ZA0394)和西南民族大学硕士点建设项目(编号: 2015XWD-S0805)资助

摘要 采用 Nd:YAG 单纵模调 Q 激光器, 研究了溶胶-凝胶 SiO₂ 薄膜表面颗粒污染对激光辐照损伤的影响. 实验表明当膜面存在颗粒时, 激光破坏阈值明显降低. 尤其是前表面颗粒, 最容易诱导损伤, 损伤斑中央处基底的烧蚀很严重, 且伴有环状变化. 从损伤形貌来看, 污染后的薄膜更容易出现场致损伤和基底破坏. 为了深入研究这一现象, 采用了电磁波时域有限差分 (FDTD) 法对减反射薄膜表面的颗粒污染进行了模拟研究. 结果表明, 前表面颗粒的调制强度要大得多. 颗粒污染诱导的调制最强区位于基底一侧一个波长内, 容易诱发损伤. 在元件体内, 光强呈衰减趋势, 在 3 倍波长深度后逐渐趋于稳定. 颗粒物诱导激光损伤问题的量化, 可为亚表面缺陷的检测和控制提供依据.

关键词 高功率激光, 熔石英, 颗粒污染, 减反射膜

1 引言

在强激光技术中, 激光诱导损伤极少发生在熔石英体内^[1,2], 改进元件表面的抗激光损伤能力已被广泛关注和研究^[3-5]. 由于低廉的制备成本和较高的激光损伤阈值, 溶胶-凝胶(sol-gel)薄膜已被广泛采用作为减反射膜^[6]. 此外, sol-gel SiO₂ 基薄膜的折射率和孔隙率具有连续可调谐性^[6,7], 对基底具有更柔性的适应性, 利于该技术的应用与推广. 由于膜面带有丰富的悬挂键, sol-gel 覆膜元件很容易被损伤点溅射到环境中的石英颗粒所污染^[8]. 在高功率激光系统中, 光学元件表面的颗粒污染物对其上、下游元件均可产

生不可预期的破坏作用^[1], Mainguy 等人^[9]对介质颗粒的研究表明, 克尔非线性效应可诱导光束产生自聚焦. sol-gel SiO₂ 基薄膜在改进合成技术、改善机械强度、调谐折射率及激光损伤机理等方面已获得广泛研究^[6,7,10]. 石英元件表面金属杂质(如 Al, Ti, Fe 等)诱导的损伤及其模拟也已有相关报道^[1,9,11]. 本文旨在研讨强激光作用下, sol-gel 减反射膜面的 SiO₂ 颗粒污染所诱导的损伤.

2 实验方法

将正硅酸乙酯、氨水、乙醇、水按体积比

引用格式: 章春来, 姚春梅, 向霞. 颗粒污染诱导薄膜元件产生激光损伤. 中国科学: 技术科学, 2016, 46: 970-974

Zhang C L, Yao C M, Xia X. Laser damage induced by contamination particles on coated optical components (in Chinese). Sci Sin Tech, 2016, 46: 970-974, doi: 10.1360/N092016-00029

25:1:250:5 混合, 磁力搅拌 3 h 并陈化 4 周, 制得 SiO_2 胶体 A. 取少量 A 蒸干溶剂, 研磨得 SiO_2 粉末 B. 将 B 与去离子水混合(1.0 wt%), 磁力搅拌并超声分散各 30 min 得浊液 C. 以熔石英为基底, A 为胶体提拉镀膜, 速度为 25 mm/min, 在空气中自然干燥后获样品 S1. 用胶头滴管吸取少量 C, 使用旋转镀膜机, 在 1200 rad/min 的转速下将 C 滴在 S1 表面得样品 S2. 将 S1 和 S2 于 150℃ 下烘烤 30 min 待用.

使用 Nd:YAG 单纵模调 Q 激光器(355 nm/6.3 ns; 1064 nm/11.7 ns), 如图 1 所示, 光斑聚焦在前表面, 面积约 1 mm². 采用 EPM2000 加 J25 能量探头测量并记录脉冲激光能量. 待测元件置于可精密程控、分辨率为 10 μm 的二维移动平台. 整个光路由 He-Ne 激光进行准直. 按照“R:1”规范测试样品的激光损伤阈值^[12]: 每个薄膜设 12 个测试点, 在每个测试点, 激光辐照能量从 0 开始, 每步增加 1.5 mJ, 直至样品发生损伤. 损伤现象通过观察损伤时产生的等离子体闪光和对比 He-Ne 激光产生的光散射综合判定.

3 结果与讨论

颗粒的表面形貌由光学显微镜(Nikon ECLIPSE

图1 激光损伤阈值测试平台

图2 (网络版彩图)元件表面的颗粒形貌

E600)测试, 见图 2, 颗粒在元件表面分散良好, 粒径从几个微米到 50 μm 都有分布.

对于洁净样品 S1, 在 1064 nm 脉冲激光辐照下, 损伤形貌近似圆形, 四周出现了向外的卷皮剥落, 中间裸露出基底, 如图 3(a). 这是由基底处强烈的等离子体爆炸所导致, 损伤坑的周围有被等离子体烫伤所导致的变色区. 如果继续辐照, 会在基底中央出现熔融坑点, 对元件面形产生进一步破坏. 在 355 nm 的辐照下, 薄膜元件所表现出的损伤性质与石英基片是完全一样的, 即为热熔型的坑形烧蚀, 且伴有碎片与裂纹的产生, 如图 3(b), 因此, 元件的破坏阈值完全取决于基底的破坏阈值. 样品 S1 前表面发生初始损伤时, 在后表面未发现明显损伤.

对于单面污染的薄膜样品 S2, 当颗粒位于前表面时, 1064 nm 激光辐照下, 前表面出现了类似图 3(a)的热熔性损伤的同时, 后表面也出现了损伤, 如图 4 所示. 前表面的损伤是由熔融烧蚀引起的^[13]. 后表面损伤斑中央的基底出现了更为严重的熔融破坏, 表现为黑色的环形烧蚀斑. 中心区出现环形衍射斑纹, 当能量较大时, 会产生一定的应力脆裂, 如果持续辐照, 黑色斑纹将逐渐扩展. 在 355 nm 激光辐照下, 元件阈值也会进一步降低, 并出现类似的环形变化. Génin 等人^[1]将尺寸为 10~250 μm 厚为 1 μm 的 Ti 颗

图3 (网络版彩图)样品 S1 前表面损伤形貌
(a) 1064 nm; (b) 355 nm

图4 (网络版彩图)1064 nm 作用下样品 S2 后表面损伤形貌

粒沉积到石英基片上,采用 355 nm 的脉冲激光在前表面辐照时,后表面也出现热熔性破坏,损伤阈值降低了 23%,Fresnel 衍射理论模拟表明损伤情况与颗粒的尺寸、形状以及元件的厚度均相关.颗粒位于后表面时,采用相同的激光能量进行辐照,没出现类似的损伤现象,如果提高能量继续辐照,损伤点则容易出现在后表面.

两类样品的 R:1 激光损伤阈值如表 1 所示.在 1064 nm 激光辐照下,S1 类样品的损伤阈值最高,为 14.54 J/cm^2 .当颗粒位于前表面时最低,为 12.22 J/cm^2 ,比苗心向等人^[13]报道的 K9 表面的混合污染物的 1:1 阈值 14.6 J/cm^2 要略低.在 355 nm 激光辐照下,石英

基片的损伤阈值为 7.39 J/cm^2 ,与 Jiang 等人^[14]的报道相近.前表面颗粒诱导损伤的阈值最低,为 5.15 J/cm^2 .

4 颗粒污染诱导光增强的模拟

设石英基片上镀有单层 sol-gel 减反射薄膜.在纳秒激光($\lambda=355 \text{ nm}$)入射下,基底与薄膜折射率取为 1.475^[15]和 1.214,膜厚取 73 nm.采用 FDTD 模拟污染颗粒位于前、后表面对光场分布的影响.网格尺寸为 $\lambda/12$,使用完全匹配层吸收性边界条件,入射波电场幅值取 1.0 V/m .

设污染颗粒为球状石英.图 5 是相同辐照条件下,电场峰值随亚表面深度的关系.当颗粒位于前表面时,每条曲线的最强峰值位于薄膜与基底的界面附近,随着深度增加,调制逐渐减弱(图 5(a)).图 6 为电场峰值与颗粒尺寸的关系,当颗粒直径 $d>6\lambda$ 时,前表面颗粒的调制峰值趋于平稳,最大值达 8.8 V/m .当颗粒位于后表面时,最强峰值位于最表面层,调制强度随颗粒尺寸增加也呈略微增大趋势(图 5(b)),但其强度比前表面颗粒要弱得多,甚至不到一半(图 6).由图 5 可知,前、后表面的污染颗粒在亚表面 3λ 的厚度内调制强度较大.因此,在近表面附近最容易诱导损伤,尤其是前表面颗粒.

表 1 两类样品的激光损伤阈值

激光辐照	S1 (J/cm^2)	S2 前表面颗粒(J/cm^2)	S2 后表面颗粒(J/cm^2)
1064 nm	14.54 ± 0.50	12.22 ± 2.16	12.62 ± 1.33
355 nm	7.39 ± 0.36	5.15 ± 0.72	6.16 ± 0.45

图5 (网络版彩图)电场峰值随亚表面深度关系
(a) 颗粒在前表面; (b) 颗粒在后表面

图6 (网络版彩图)电场峰值与颗粒直径的函数关系

图7是两类情况的电场分布截面图, 激光沿+z方向入射, 实线为空气与覆膜元件的界面。在前表面, 颗粒作为光密介质使入射束产生折射, 折射光相互叠加形成强区; 在后表面, 颗粒的散射波与入射波的叠加形成调制强区。最强电场距离膜面为 0.5λ , 由于膜厚约 0.2λ , 故调制最强区位于基底一侧约 0.3λ , 因此基底亚表面容易成为损伤起始点(图7(a))。在相同辐照条件下, 后表面的颗粒导致的增强区域非常短, 相比于前表面, 产生的调制强度也弱得多(图7(b)), 其最强区位于后表面上。

图7 (网络版彩图)电场分布截面图

(a) $d=4.5\lambda$ 的前表面颗粒; (b) $d=8.0\lambda$ 的后表面颗粒

5 结论

采用了 Nd:YAG 激光器对 sol-gel SiO_2 薄膜表面的石英颗粒污染进行了实验研究, 并结合 FDTD 对不同位置 and 不同尺寸的颗粒进行了模拟。得出如下结论。

(1) 在 1064 nm 激光辐照下, 洁净膜面表现为等离子体爆炸所产生的坑性损伤, 膜层有卷曲剥落现象。当颗粒位于前表面时, 损伤阈值迅速降低, 且伴随有后表面的损伤, 损伤中心出现衍射光斑, 发生烧

蚀并伴有应力断裂。当颗粒位于后表面时, 也有降低阈值的作用。在 355 nm 辐照下, 主要表现为基底的热熔性破坏以及颗粒所诱导的场致损伤。

(2) FDTD 研究表明前表面的颗粒可产生更大的光场增强, 最大的调制位于基底侧一个波长。在元件体内, 光强呈衰减趋势, 在 3λ 深度后逐渐趋于稳定。随着颗粒直径大于 6λ 后, 调制强度趋于稳定。相对于前表面, 后表面颗粒的调制强度不到一半。

致谢 感谢中国工程物理研究院激光聚变研究中心对本实验的测试提供的支持。

参考文献

- Génin F Y, Feit M D, Kozlowski M R, et al. Rear-surface laser damage on 355-nm silica optics owing to Fresnel diffraction on front-surface contamination particles. *Appl Opt*, 2000, 39: 3654–3663
- Génin F Y, Salleo A, Pistor T V, et al. Role of light intensification by cracks in optical breakdown on surfaces. *J Opt Soc Am A*, 2001, 18: 2607–2616
- Dai W, Xiang X, Jiang Y, et al. Surface evolution and laser damage resistance of CO_2 laser irradiated area of fused silica. *Opt Laser Eng*, 2011, 49: 273–280

- 4 Suratwala T I, Miller P E, Bude J D, et al. HF-based etching processes for improving laser damage resistance of fused silica optical surfaces. *J Am Ceram Soc*, 2011, 94: 416–428
- 5 Salleo A, Taylor S T, Martin M C, et al. Laser-driven formation of a high-pressure phase in amorphous silica. *Nat Mater*, 2003, 2: 796–800
- 6 Guo Y J, Zu X T, Jiang X D, et al. Laser-induced damage mechanism of the sol-gel single-layer SiO₂ acid and base thin films. *Nucl Instrum Meth Phys Res B*, 2008, 266: 3190–3194
- 7 Yoshida K, Yabe T, Yoshida H, et al. Mechanism of damage formation in antireflection coatings. *J Appl Phys*, 1986, 60: 1545–1550
- 8 Zhang C L, Li X B, Wang Z G, et al. Laser cleaning techniques for removing surface particulate contaminants on sol-gel SiO₂ films. *Chin Phys Lett*, 2011, 28: 074205
- 9 Mainguy S, Tovenca-Pécault I, Le Garrec B. Propagation of LIL/LMJ beams under the interaction with contamination particles. *Proc SPIE*, 2005, 5991: 59910G
- 10 Xu Y, Zhang L, Wu D, et al. Abrasion-resistant sol-gel antireflective films with a high laser-induced damage threshold for inertial confinement fusion. *J Opt Soc Am B*, 2005, 22: 1899–1910
- 11 Palmier S, Rullier J L, Capoulade J, et al. Effect of laser irradiation on silica substrate contaminated by aluminum particles. *Appl Opt*, 2008, 47: 1164–1170
- 12 章春来, 郭袁俊, 吕海兵, 等. 单层 SiO₂ 和 ZrO₂ 薄膜激光辐照损伤的对比. *压电与声光*, 2011, 33: 115–118
- 13 苗心向, 袁晓东, 吕海兵, 等. 激光装置污染物诱导光学元件表面损伤实验研究. *中国激光*, 2015, 42: 0602001
- 14 Jiang Y, Xiang X, Liu C M, et al. Effect of residual stress on laser-induced damage characterization of mitigated damage sites in fused silica. *J Non-Cryst Solids*, 2015, 410: 88–95
- 15 Zhang C L, Yao C M, Wang C D. Laser intensification induced by air bubbles below nonideal repaired damage site. *Optik*, 2016, 127: 3105–3108

Laser damage induced by contamination particles on coated optical components

ZHANG ChunLai¹, YAO ChunMei² & XIANG Xia³

¹ College of Electrical and Information Engineering, Southwest University for Nationalities, Chengdu 610041, China;

² College of Pharmacy, Southwest University for Nationalities, Chengdu 610041, China;

³ School of Physical Electronics, University of Electronic Science and Technology of China, Chengdu 610054, China

We studied the laser radiation damage of sol-gel SiO₂ film induced by surface contamination particles. Experiments were performed on a Q-switched single-longitudinal-mode Nd:YAG laser. Particles do reduce the laser-induced damage threshold (LIDT). Especially when they are located on the front surface, the LIDT is the lowest of all. Severe erosion and diffraction rings are found in the center of the substrate. We focus on the damage morphology, contaminated samples are more prone to start up the field damage and substrate damage. In order to study this phenomenon, finite-difference time-domain (FDTD) method was employed to simulate the light intensification induced by the contamination. Results show that the modulation strength of the front-surface particles is much larger. The largest modulation area induced by the front-surface particles is located within λ substrate subsurface, which is easy to induce damage initiation. Inside, the light intensity was attenuated trend after 3λ depth stabilized. The quantization of laser damage induced by particles, can provide the basis for the detection and control of sub-surface defects.

high-power laser, fused silica, particulate contaminants, anti-reflective film

doi: 10.1360/N092016-00029