

文章编号: 1001-3806(2011)04-0477-04

## 脉宽 1ms 和 10ns 的激光损伤光学薄膜元件的比较分析

戴 罡, 陆 建\*, 王 斌, 刘 剑, 倪晓武

(南京理工大学 理学院, 南京 210094)

**摘要:** 为了研究脉宽为毫秒量级的激光对光学薄膜的损伤, 根据国际标准 ISO-11254 和国家标准 GB/T-16601 建立了光学薄膜损伤阈值测试装置。测量了脉宽 1ms 和 10ns、波长 1064nm 激光作用下 TiO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub> 增透膜的损伤阈值, 观测了损伤形貌, 测量了损伤厚度及损伤半径, 分析了毫秒量级激光损伤光学薄膜的损伤机理并与纳秒激光引起的损伤进行比较。脉宽 1ms 的激光致使光学薄膜损伤的能量密度阈值比脉宽 10ns 的激光高一个数量级, 功率密度阈值低 4 个数量级, 损伤半径大 180μm, 损伤厚度大 200μm。结果表明, 脉宽为毫秒量级的激光对光学薄膜的损伤更为剧烈, 不但损伤了光学薄膜的膜层, 而且对光学薄膜的基底也造成了毁灭性的损伤。该结果可供脉宽为毫秒量级的激光与光学薄膜相互作用的研究参考。

**关键词:** 薄膜; 长脉冲激光; 损伤阈值; 损伤机理; 基底损伤

**中图分类号:** O484.4\*1 **文献标识码:** A **doi:** 10.3969/j.issn.1001-3806.2011.04.010

### Analysis and comparison of coating damage induced by laser at 1ms and 10ns pulse-widths

DAI Gang, LU Jian, WANG Bin, LIU Jian, NI Xiao-wu

(College of Science, Nanjing University of Science and Technology, Nanjing 210094, China)

**Abstract:** In order to investigate the damage induced by ms laser, the experiment installation was established according to ISO-11254 and GB/T-16601. The 1064nm laser-induced damage thresholds of TiO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub> coatings at 1ms and 10ns pulse-widths were studied, and the damage photos, damage depth, damage radius and damage mechanisms were also investigated. The damage of the coatings induced by ms laser was compared with that induced by ns laser. The damage threshold of energy density induced by ms laser is one order of magnitude higher than that of 10ns laser, and the damage threshold of power density induced by ms laser is one ten-thousandth of that of 10ns laser. The damage radius induced by ms laser is 180μm longer than that induced by ns laser, and the damage depth is 200μm deeper. It could be concluded that 1ms laser induced damage of optical coatings is more severe, it not only damage the coating but also destroy the substrate of the coating. The results provide important references for the researches of damage induced laser with pulse duration at millisecond scale.

**Key words:** thin films; long pulse laser; damage threshold; damage mechanism; damage of substrate

## 引言

激光引起的光学介质膜的损伤问题已经被持续地研究了很多年<sup>[1-3]</sup>, 其中激光的波长和脉宽是两个影响激光损伤阈值(laser induced damage threshold, LIDT)的重要因素。YOSHIDA<sup>[4]</sup>报道了在 1064nm 至 533nm 的波长区间内, 损伤阈值和波长遵循  $LIDT \propto \lambda^{0.43}$  的关系, 当激光脉宽大于 10ps 时, 损伤阈值和脉宽遵循  $LIDT \propto \tau^{1/2}$  的关系。现有文献报道激光损伤薄膜的研究主要集中在脉宽小于纳秒量级的短脉冲激光作用区域。YAO<sup>[5-6]</sup>等人研究了短脉冲激

光作用下 TiO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub> 光学薄膜的损伤, 由 TiO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub> 组成的高反膜在脉宽 1ns、波长 1064nm 激光作用下的损伤阈值为 13.5J/cm<sup>2</sup>; 在脉宽 220ps、波长 800nm 激光作用下的损伤阈值为 1.1J/cm<sup>2</sup>; 在脉宽 50fs、波长 800nm 激光作用下的损伤阈值为 0.57J/cm<sup>2</sup>。

现在激光技术朝着两个不同方向发展: 高峰值功率密度和大能量脉冲激光。其中脉宽为毫秒量级的大能量、长脉冲激光有很多潜在的应用前景。(1) 长脉冲激光和短脉冲(ns)、超短脉冲激光(ps或fs)相比在空气中传播时效率更高。皮秒和飞秒激光具有很高的峰值功率密度, 因而在空气中传输时易产生光学击穿<sup>[7-8]</sup>和自聚焦现象<sup>[9]</sup>, 长脉冲激光的功率密度远小于 10<sup>8</sup>W/cm<sup>2</sup>, 在空气传输的过程中吸收较小, 且不会使空气产生电离击穿, 也不会发生自聚焦

作者简介: 戴 罡(1984-), 男, 博士研究生, 从事激光与光学薄膜相互作用的研究。

\* 通讯联系人。E-mail: lj6805@163.com

收稿日期: 2010-11-03; 收到修改稿日期: 2010-11-17

现象,因而传输损耗远小于短脉冲激光;(2)在与材料相互作用过程中,长脉冲激光的能量耦合效率更高。当激光作用在目标上时,短脉冲激光能够使物体表面的温度瞬时上升到  $10^4\text{K}$  以上,并形成高温高密度的等离子体,该等离子体将屏蔽后续激光。而较低功率密度的长脉冲激光作用在物体上时几乎不形成等离子体,后续激光不受影响地作用在靶材上。(3)长脉冲激光的单脉冲能量要较短脉冲激光的单脉冲能量高数个量级,能起到更佳的破坏效果。相对连续激光而言,脉宽为毫秒量级的激光作用时间短,其耦合效率强于连续工作的激光。BOLEY<sup>[10]</sup>等人研究了脉宽为 0.5ms、单脉冲能量 125J、重复频率 200Hz 的激光作用在航空铝材上的效果,认为有强气流吹过时,航空铝材更容易被击穿。USOV<sup>[11]</sup>等人给出了脉宽 1ms ~ 20ms,单脉冲能量 20J ~ 40J,重复频率 1Hz ~ 20Hz 激光打孔,深熔焊和切割的最有效参量。DIENER<sup>[12]</sup>等人研究了脉宽为 3ms、功率 2000W 的脉冲激光对红外 Ge 透镜的损伤。关于长脉冲激光与光学薄膜相互作用过程及机理研究的报道并不多见,特别对其损伤情况及与短脉冲激光的比较研究少见报道,因此,有必要对长脉冲激光作用下光学薄膜的损伤过程进行研究。

本文中利用电子束溅射法制备增透膜,测量了脉宽 1ms 和 10ns 激光分别作用下光学薄膜的损伤阈值,对其损伤形貌进行观测,进而分析了各自的损伤机理,并将之与短脉冲激光造成的损伤进行比较和分析。

## 1 短脉冲激光损伤光学薄膜的实验研究

为了分析 1ms 和 10ns 两种不同脉宽激光作用下光学薄膜损伤差异,针对普通光学系统中(非激光系统,无抗激光损伤设计)常用的  $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$  进行研究。 $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$  增透膜是由电子束溅射法制备,基底材料为德国肖特的 B270 玻璃,折射率为 1.52,抛光光圈数  $N=3$ ,局部误差  $\Delta N=0.5$ ,  $\theta < 3\text{arcmin}$ ,光洁度  $B \leq \text{III}$ 。其中,  $\text{TiO}_2$  和  $\text{SiO}_2$  分别是高低折射率材料。镀制的膜系结构为 glass | 0.4526H1.2497L | air, 其中  $H(L)$  表示为高(低)折射率材料  $1/4$  波长的光学厚度,  $H(L)$  前面的数值表示膜层实际厚度与光学厚度  $H(L)$  之间的倍数。镀膜时的基底温度控制在  $250^\circ\text{C}$ ,氧分压为  $2 \times 10^{-2}\text{Pa}$ ,  $\text{TiO}_2$  和  $\text{SiO}_2$  的镀制速率分别为  $1.2\text{nm/s}$  和  $0.2\text{nm/s}$ 。

损伤测试装置按照国际标准 ISO-11254 和国家标准 GB/T-16601 建立<sup>[13]</sup>。实验测试光路装置示意图如图 1 所示。损伤的测定使用了相同的实验光路设计和不同脉宽的 YAG 激光器,其中长脉冲激光器脉宽从

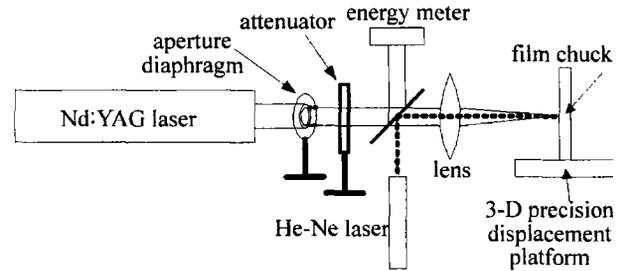


Fig. 1 Sketch map of the experimental installation

(Beamtech Optronics 公司生产,型号为 Melar-50)输出 0.5ms ~ 2.5ms 可调,重复频率 1Hz,单脉冲激光输出能量为 0.5J ~ 50J 可调,激光光束的发散角小于  $3\text{mrad}$ ,光斑直径为 18mm;短脉冲激光器(Continuum 公司生产,型号为 Surelite)输出能量从 20mJ 至 300mJ 可调,其脉宽随输出能量增加而稍有增加,输出激光脉宽范围为 10ns。图 1 中可调光阑用以抑制出射激光光斑边缘的光束,以提高作用光束的空间均匀性。He-Ne 激光器用于光路瞄准,能量计实时检测作用激光的脉冲能量,光学薄膜固定在 3 维精密位移平台上。

实验中使用国际标准和国家标准中规定的 1-on-1 法测试激光损伤阈值:初步确定膜层的零损伤能量密度以及 100% 损伤的能量密度,然后将两个能量密度之间区间划分为均匀 10 个能量台阶,并记录其损伤概率;用同一能量的单脉冲辐照薄膜上 10 个不同部位的点,每个点辐照 1 次,记下 10 个点中损伤的次数  $n$ ,得出这个能量下的损伤几率为  $n/10$ ;改变能量,测出不同激光能量下的损伤几率;测量多个能量点的损伤几率,包含损伤几率为 0% 和损伤几率为 100% 的能量点。然后以激光能量为横轴,以损伤几率为纵轴,得出损伤几率与激光能量点的分布,再用直线拟合并外推到零损伤几率,所对应的激光能量密度值即为损伤阈值。

## 2 实验结果

### 2.1 损伤阈值比较

测量短脉冲激光损伤光学薄膜的阈值时,将激光束聚焦在膜层表面,测得激光光斑半径为  $(125 \pm 5)\mu\text{m}$ ,激光脉宽为  $(9.6 \pm 0.5)\text{ns}$ 。首先粗略测得 0% 和 100% 损伤的能量密度分别为  $11.5\text{J}/\text{cm}^2$  和  $13.5\text{J}/\text{cm}^2$ ,然后将该区间分为 10 份,能量密度台阶的值为  $0.2\text{J}/\text{cm}^2$ ,通过调整衰减片来改变入射到光学薄膜上激光的能量。图 2 为脉宽为 10ns 的短脉冲激光作用下  $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$  增透膜的损伤概率,短脉冲作用下的光学薄膜在能量密度为  $12.1\text{J}/\text{cm}^2$  时开始出现损伤,薄膜 100% 损伤时激光的能量密度为  $13.3\text{J}/\text{cm}^2$ ,经过外推法得出的损伤阈值为  $(11.7 \pm 0.2)\text{J}/\text{cm}^2$ 。因为研究的对

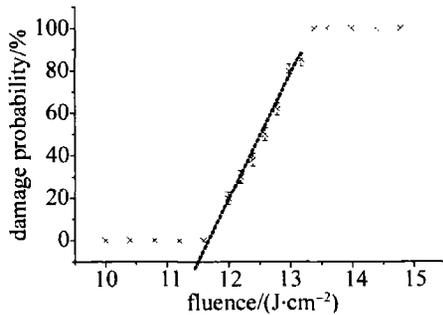


Fig. 2 Damage probability of 1064nm laser at 10ns pulse-width

象为普通光学系统中所使用的膜,薄膜的质量要比激光系统中所使用膜的要求低一些,所以其损伤阈值稍要小于 GALLAIS<sup>[14]</sup> 等人报道的为激光器设计光学薄膜的损伤阈值。

测量长脉冲激光损伤光学薄膜的阈值时,将激光束聚焦在膜层表面,因而属于离焦测试,对应的膜层表面测得光斑半径为  $(440 \pm 10) \mu\text{m}$ , 激光脉宽为  $(1.03 \pm 0.05) \text{ms}$ 。同样先粗略测得 0% 和 100% 损伤的能量密度分别为  $280 \text{J}/\text{cm}^2$  和  $310 \text{J}/\text{cm}^2$ , 然后确定能量密度台阶的值为  $3 \text{J}/\text{cm}^2$ , 通过调节衰减片来改变入射到光学薄膜的激光能量。

图 3 为脉宽为 1ms 的长脉冲激光作用下  $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$  增透膜的损伤概率,长脉冲激光作用下薄膜在能量密度  $286 \text{J}/\text{cm}^2$  时开始出现损伤;100% 损伤时激光最小能量密度为  $304 \text{J}/\text{cm}^2$ ; 经外推计算,得到该膜层在脉宽为 1ms 的激光作用下的损伤阈值为  $(283 \pm 3) \text{J}/\text{cm}^2$ 。

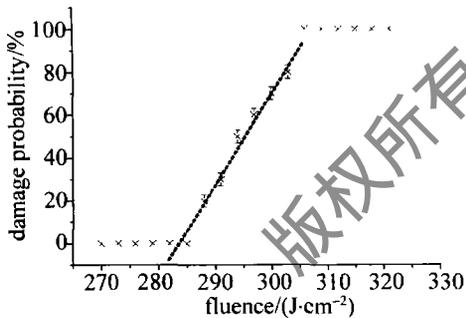


Fig. 3 Damage probability of 1064nm laser at 1ms pulse-width

## 2.2 损伤形貌比较

使用金相显微镜观察损伤后增透膜的形貌,放大倍数为  $100\times$ 。图 4 为不同能量密度短脉冲(10ns)激光作用下增透膜的损伤形貌。图 4a 为能量密度  $12.8 \text{J}/\text{cm}^2$  时的损伤形貌,在激光辐照区域,出现了直径  $30 \mu\text{m}$  的损伤斑点,斑点直径远小于光斑直径,可以认为这是由于激光光斑的能量密度分布不均造成的;当能量密度增加到  $14.5 \text{J}/\text{cm}^2$  时,损伤形貌如图 4b 所示,在激光辐照区域出现了两个分离的损伤光斑且光斑的面积较大,同样认为是由光斑能量密度分布不均造成的;当能量密度增加至  $16.5 \text{J}/\text{cm}^2$  时,损伤形貌如图 4c 所示,激光辐照区域的光学薄膜均被损伤,且激

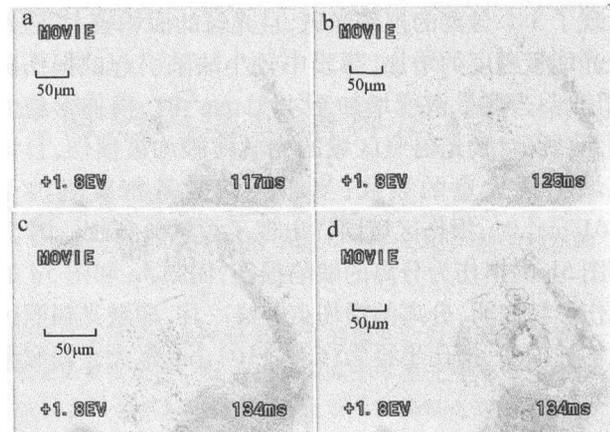


Fig. 4 Damage photos induced by 10ns, 1064nm laser at different energy densities

a— $12.8 \text{J}/\text{cm}^2$  b— $14.5 \text{J}/\text{cm}^2$  c— $16.5 \text{J}/\text{cm}^2$  d— $17.9 \text{J}/\text{cm}^2$

激光光斑中心处出现了系列点状损伤斑痕;当激光的能量密度增加至  $17.9 \text{J}/\text{cm}^2$  时,损伤区域出现了若干同心圆。作者认为图 4a~图 4c 的损伤只是引起了第 1 层膜的损伤,而图 4d 的损伤形貌表明,由于作用激光能量密度的增加,不仅损伤了第 1 层膜,也使得第 2 层膜被损伤。

脉宽为 10ns 短脉冲激光产生的损伤结果表明,损伤只是对膜层浅层次的损伤,损伤深度为  $10^2 \text{nm}$  量级,对膜层的基片几乎无影响。其原因在于,短脉冲激光的作用时间极短,膜层吸收激光的能量在如此短的时间内向周围介质传递的能量可以忽略。该结果与 RISTA<sup>[15]</sup> 等人研究短脉冲激光损伤光学薄膜的结果一致。

图 5 为不同能量密度长脉冲(1ms)激光作用下增透膜的损伤形貌。图 5a 为能量密度  $350 \text{J}/\text{cm}^2$  时的损伤形貌,在激光辐照区域,出现了直径  $150 \mu\text{m}$  左右的损伤斑,该损伤斑的直径要小于光斑直径。由于辐照光斑较大,因而认为这是由于激光辐照区域内的薄膜存在较大的杂质或缺陷造成的;当能量密度增加到  $411 \text{J}/\text{cm}^2$  时,损伤形貌如图 5b 所示,在激光辐照区域

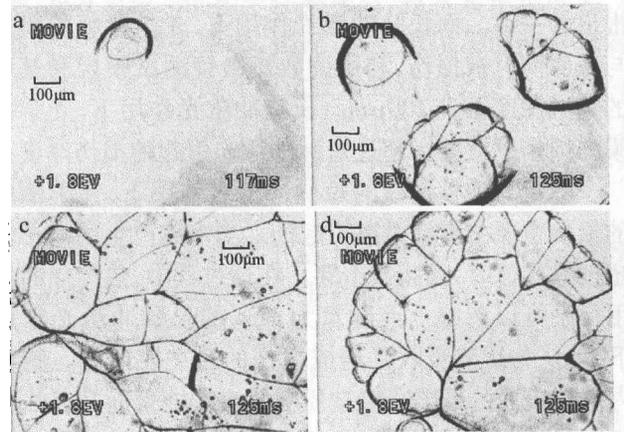


Fig. 5 Damage photos induced by 1ms, 1064nm laser at different energy densities

a— $350 \text{J}/\text{cm}^2$  b— $411 \text{J}/\text{cm}^2$  c— $485 \text{J}/\text{cm}^2$  d— $586 \text{J}/\text{cm}^2$

出现了3个分离的损伤光斑,且光斑的面积较大,随着激光能量密度的增加,薄膜中较小缺陷引起的损伤随之出现;当能量密度增加至 $485\text{J}/\text{cm}^2$ 时,损伤形貌如图5c所示,激光辐照区域的光学薄膜均被损伤,且该区域出现大量的裂纹;当激光的能量密度增加至 $586\text{J}/\text{cm}^2$ 时,损伤区域同样出现了大量的裂纹。图5a和图5b的损伤为分离的缺陷损伤,而图5c和图5d的损伤形貌表明,分离的损伤点连成一片,即激光辐照区域均被损伤,损伤半径为 $(630 \pm 10)\mu\text{m}$ ,远大于辐照激光光斑半径。

### 3 分析和讨论

脉宽为10ns激光作用下, $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ 增透膜的损伤阈值能量密度为 $(11.7 \pm 0.2)\text{J}/\text{cm}^2$ ,而脉宽为1ms的长脉冲激光作用下,其损伤阈值能量密度为 $(283 \pm 3)\text{J}/\text{cm}^2$ 。两者的值相差近两个数量级,因而可知,长脉冲激光作用下,损伤光学薄膜所需要的能量更多。但对应的脉宽1ms以及10ns激光作用下损伤阈值的功率密度分别为 $2.8 \times 10^5\text{W}/\text{cm}^2$ 和 $1.17 \times 10^9\text{W}/\text{cm}^2$ ,即在长脉冲激光作用下,损伤光学薄膜所需要的功率密度更小。

短脉冲激光作用下,损伤区域的半径与激光辐照的光斑半径大小相当,甚至略小于辐照激光光斑半径,这是由于激光的光斑空间分布为高斯型的,光斑边缘的能量分布较小导致的。如图5d所示,长脉冲激光作用下薄膜的损伤半径为 $(630 \pm 10)\mu\text{m}$ ,辐照激光的光斑半径为 $(450 \pm 10)\mu\text{m}$ ,两者相比,损伤半径比激光辐照半径大 $180\mu\text{m}$ 左右。这说明脉宽毫秒量级的激光作用下,光学薄膜的损伤半径要大于脉宽10ns的激光作用下的损伤半径。

由图4可以看出,短脉冲激光作用下,光学薄膜的膜层被破坏,其损伤的深度仅为 $10^2\text{nm}$ 量级,与文献报道的一致。而长脉冲激光作用下,光学薄膜的膜层与基底同时被损伤,利用读数显微镜测试膜层和基底的熔融深度至少 $200\mu\text{m}$ 。长脉冲激光作用下,光学薄膜的损伤厚度要远超过短脉冲激光引起的损伤厚度。

脉宽为纳秒量级的短脉冲激光作用下,光学薄膜的损伤主要由雪崩电离引起的。当电离产生的电子数超过临界值时,薄膜被击穿。在这过程中,热传导的作用几乎可以忽略。而脉宽为1ms的长脉冲激光作用下,可认为缺陷吸收是造成损伤的最主要原因。膜层内部和表面的缺陷或者杂质吸收激光能量而升至临界温度,从而形成热融损伤,热传导在损伤的过程中起重要作用。

损伤阈值、损伤面积以及损伤深度的差异都可以由不同的损伤机理来解释。长脉冲激光作用下,热传导将膜层或缺陷吸收的热量向周围传递,因而薄膜到达阈值温度所需要的能量就更多,损伤阈值更大;且由于热传导的热量同时向轴向和径向方向传递,因而导致的损伤深度和损伤面积均比短脉冲激光大。从实验结果看,长脉冲激光作用下,光学薄膜损伤厚度以及损伤半径均比短脉冲激光作用下厚 $200\mu\text{m}$ 以及大 $180\mu\text{m}$ 左右。

### 4 结论

研究了长脉冲激光作用下光学薄膜的损伤问题,并将损伤阈值、损伤厚度以及损伤深度与短脉冲进行了比较,分析了其损伤机理。通过损伤机理的分析,解释了造成这种差异的原因,得出以下结论:(1)长脉冲激光作用下,光学薄膜的损伤阈值要比短脉冲激光作用下的能量阈值大两个数量级,即长脉冲激光损伤光学薄膜需要更大的能量,但所需要的功率密度更小;(2)长脉冲激光引起的损伤厚度以及损伤半径均比短脉冲激光大,实验结果表明,脉宽为1ms和10ns的激光相比,损伤厚度厚 $200\mu\text{m}$ ,损伤半径大 $180\mu\text{m}$ ;(3)缺陷吸收和热传导是脉宽为1ms激光与光学薄膜相互作用的主要机制,也是形成上述差异的主要原因。

### 参考文献

- [1] ALVISI M, GIULIO M D, MARRONE S, *et al.*  $\text{HfO}_2$  films with high laser damage threshold[J]. *Thin Solid Films*, 2000, 358(1/2): 250-258.
- [2] XU Y, ZHANG B, FAN W H, *et al.* Sol-gel broadband anti-reflective single-layer silica films with high laser damage threshold[J]. *Thin Solid Films*, 2003, 440(1/2): 180-183.
- [3] ZHOU W J, YUAN Y H, GU I Y Z. Simple time measurement of  $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$  film damaged by laser[J]. *Laser Technology*, 2007, 31(4): 381-383 (in Chinese).
- [4] YOSHIDA K, UMEMURA N. Wavelength dependence of laser induced damage in fused silica and fused quartz[J]. *Proceedings of SPIE*, 1998, 3244: 164.
- [5] YAO J K, FAN Z X, JIN Y, *et al.* Investigation of damage threshold to  $\text{TiO}_2$  coatings at different laser wavelength and pulse duration[J]. *Thin Solid Films*, 2008, 516(6): 1237-1241.
- [6] YAO J K, SHAO J D, HE H B, *et al.* Effects of annealing on laser-induced damage threshold of  $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$  high reflectors[J]. *Applied Surface Science*, 2007, 253(22): 8911-8914.
- [7] SIRCAR A, DWIVEDI R K, THAREJA R K. Laser induced breakdown of Ar,  $\text{N}_2$  and  $\text{O}_2$  gases using 1.064, 0.532, 0.355 and 0.266  $\mu\text{m}$  radiation[J]. *Applied Physics*, 1996, B63(6): 623-627.
- [8] SPRANGLE P, PENANO J R, HAFIZ B. Propagation of intense short laser pulses in the atmosphere[J]. *Physical Review*, 2002, E66(4): 046418.

(下转第542页)

