

真空环境下 光学薄膜的激光损伤

凌秀兰 ○ 著

Laser induced Damage of Optical
Thin Films in Vacuum Environments



北京理工大学出版社

BEIJING INSTITUTE OF TECHNOLOGY PRESS

中北大学

真空环境下光学 薄膜的激光损伤

凌秀兰 著



 **北京理工大学出版社**
BEIJING INSTITUTE OF TECHNOLOGY PRESS

版权专有 侵权必究

图书在版编目 (CIP) 数据

真空环境下光学薄膜的激光损伤 / 凌秀兰著. —北京: 北京理工大学出版社, 2018. 4

ISBN 978-7-5682-5523-3

I. ①真… II. ①凌… III. ①光学薄膜-激光损伤 IV. ①TB43

中国版本图书馆 CIP 数据核字 (2018) 第 071394 号

出版发行 / 北京理工大学出版社有限责任公司

社 址 / 北京市海淀区中关村南大街 5 号

邮 编 / 100081

电 话 / (010) 68914775 (总编室)

(010) 82562903 (教材售后服务热线)

(010) 68948351 (其他图书服务热线)

网 址 / <http://www.bitpress.com.cn>

经 销 / 全国各地新华书店

印 刷 / 保定市中画美凯印刷有限公司

开 本 / 710 毫米×1000 毫米 1/16

印 张 / 9.75

彩 插 / 2

字 数 / 159 千字

版 次 / 2018 年 4 月第 1 版 2018 年 4 月第 1 次印刷

定 价 / 49.00 元

责任编辑 / 杜春英

文案编辑 / 郭贵娟

责任校对 / 周瑞红

责任印制 / 王美丽

图书出现印装质量问题, 请拨打售后服务热线, 本社负责调换

长期以来，激光对光学薄膜的损伤是影响光学薄膜元件使用寿命的主要原因，也是制约激光系统向高功率、高能量发展的重要因素。在空间和真空环境中，光学薄膜元件抗激光损伤能力更是关系其运行性能和安全的 key 因素。相比于大气环境，真空环境下影响光学薄膜元件激光损伤的因素大大增加，并且呈现出复杂性和多样性的特点，使得真空环境下光学薄膜元件的激光损伤问题具有相当的特殊性，表现为损伤阈值降低、使用寿命缩短等抗激光损伤能力严重降级现象，影响到光学薄膜在真空环境中长期稳定有效地工作，成为限制激光技术在真空或空间领域应用的重要瓶颈。而且在真空或空间领域的实际应用中，光学薄膜元件的更替几乎是不可能的，所以保证光学薄膜元件的安全稳定对于整个应用过程而言都是至关重要的。

近几十年，各国的研究工作者对真空环境下光学薄膜激光损伤的现象和规律有了较为深刻的认识，取得了一些有价值的研究成果。然而，尚缺乏一本及时反映该方面研究发展的专著。希望本书能对该方面的研究起到一定的“抛砖引玉”作用。

本书试图在总结过去研究工作的基础上阐述光学薄膜在真空和空间环境中激光损伤特性及其损伤机理和改进技

术。本书共分为8章。第1章介绍了真空环境下光学薄膜激光损伤研究发展现状及存在的问题，是全书的铺垫。第2章介绍了真空环境下光学薄膜特性表征及损伤测试系统与测试方法，为科学、客观、深入地研究真空环境下光学薄膜的损伤规律及损伤机理奠定坚实的基础。第3章介绍了真空环境下常用光学薄膜的损伤特性和规律；真空环境下光学薄膜抗激光损伤能力的降低有本征因素，也有外在因素。在密闭真空或空间激光系统中由于封装材料的放气而产生的有机污染物分子是真空与空间环境中光学薄膜元件抗激光损伤能力降级的重要原因，因此第4章和第5章分别从内因和外因两个方面阐述了真空环境下光学薄膜的本征损伤机理和有机污染诱导光学薄膜的损伤机理。内容包括真空中光学薄膜在激光辐照下光、热、力耦合损伤过程，缺陷诱导损伤过程以及有机污染诱导光学薄膜的激光损伤过程，真空环境下光学薄膜的本征损伤机理以及有机污染诱导光学薄膜激光损伤的机理。第6章和第7章阐述了热退火和激光预处理两种后处理方法对真空环境下光学薄膜激光损伤的影响，介绍了几种改善真空中光学薄膜元件抗激光损伤降级的技术方法。第8章对全书内容做了总结，也提出后续研究工作的建议。

本书的研究工作得到了国家自然科学基金（11774319）、山西省留学基金（2014-059）的资助，以及其他横向研究课题的支持，特此向支持和关心作者研究工作的所有单位和个人表示衷心的感谢。此外，还要感谢作者的老师、学长和同人的帮助和支持；感谢北京理工大学出版社的编辑为本书出版付出的辛勤劳动。书中有部分内容参考了有关单位和个人的研究成果，均已在参考文献中列出，在此一并致谢。

由于作者水平有限，书中难免存在一些缺点和错误，殷切希望广大读者批评指正。

目 录

CONTENTS

1 绪言	001
1.1 背景与意义	001
1.2 真空和空间环境下引起光学薄膜损伤的潜在因素	002
1.2.1 大气—真空效应对光学薄膜性能的影响	002
1.2.2 空间环境下高能辐射对光学薄膜性能的影响	008
1.2.3 真空和空间环境下放气污染对光学薄膜性能的影响	010
1.3 真空和空间环境下光学薄膜损伤研究的发展状况	013
1.3.1 真空环境下光学薄膜损伤测试装置	013
1.3.2 真空环境下光学薄膜的损伤特性研究	014
1.3.3 真空环境下光学薄膜的损伤机理研究	016
1.4 本章小结	022
2 真空环境下光学薄膜特性表征及损伤测试系统与测试方法	024
2.1 光学薄膜的制备及清洗方法	024
2.1.1 光学薄膜的制备方法	024
2.1.2 光学基底的加工及镀膜元件表面的清洗技术	025

2.2	光学薄膜特性的表征方法	029
2.2.1	光学薄膜光谱性能的表征	029
2.2.2	光学薄膜微弱吸收的测量	029
2.2.3	光学薄膜微结构的测试	030
2.3	真空环境下光学薄膜损伤测试系统	031
2.3.1	真空室中残余气体组分的测量	032
2.3.2	样品表面光斑大小的测量	034
2.4	真空环境下光学薄膜损伤测试方法	038
2.4.1	真空环境下光学薄膜损伤阈值的测试方法	038
2.4.2	真空环境下光学薄膜激光损伤的判定方法	042
2.4.3	真空环境下光学薄膜损伤形貌的分析方法	043
2.5	本章小结	045
3	真空环境和特殊气氛下光学薄膜的损伤	046
3.1	真空环境下电子束沉积制备的光学薄膜单脉冲损伤研究	046
3.1.1	真空环境下单层 SiO_2 薄膜和单层 ZrO_2 薄膜的 损伤研究	046
3.1.2	真空环境下 $\text{ZrO}_2/\text{SiO}_2$ 增透膜的损伤研究	048
3.1.3	真空环境下 $\text{ZrO}_2/\text{SiO}_2$ 高反射膜的损伤研究	050
3.1.4	结论	052
3.2	真空环境下光学薄膜的多脉冲损伤研究	054
3.2.1	真空环境下单层 HfO_2 薄膜的多脉冲损伤研究	054
3.2.2	真空环境下 $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ 多层膜的多脉冲损伤研究	056
3.3	环境气氛和气压对真空环境下光学薄膜损伤的影响	058
3.3.1	真空环境下充入氧气、氮气和氦气后对薄膜损伤 阈值的影响	058
3.3.2	真空环境下充入氧气、氮气和氦气后对光学薄膜 损伤形貌的影响	060
3.3.3	真空环境下充入氧气、氮气和氦气后对光学薄膜	

损伤深度的影响·····	062
3.3.4 结论·····	063
3.4 本章小结·····	063
4 真空环境下光学薄膜的本征损伤机制·····	065
4.1 引言·····	065
4.2 气体热传导的影响·····	065
4.3 多孔薄膜堆积密度与材料热导率的变化关系·····	068
4.4 大气—真空效应对电子束沉积制备的多孔薄膜损伤的影响·····	071
4.4.1 热力损伤过程·····	073
4.4.2 敏感缺陷诱导的热力损伤过程·····	076
4.5 激光辐照诱导再生缺陷的损伤过程·····	079
4.6 真空环境下激光辐照诱导等离子体及对材料的离化·····	081
4.7 真空环境下激光辐照诱导的非化学计量比缺陷的影响·····	082
4.8 本章小结·····	083
5 真空环境下有机污染诱导光学薄膜的损伤·····	084
5.1 引言·····	084
5.2 真空环境下液相有机污染诱导光学薄膜的损伤·····	084
5.2.1 样品制备和实验过程·····	084
5.2.2 实验结果·····	086
5.2.3 分析与讨论·····	088
5.2.4 结论·····	091
5.3 两种有机污染模式对真空环境下光学薄膜激光损伤的影响·····	091
5.3.1 实验过程·····	091
5.3.2 真空环境下液相有机污染对反射膜激光损伤的影响·····	092
5.3.3 真空环境下气相有机污染对反射膜激光损伤的影响·····	094

5.4 真空环境下长期的有机放气污染对光学薄膜损伤的影响	097
5.4.1 污染实验和真空环境下激光损伤测试	097
5.4.2 分析与讨论	100
5.5 本章小结	102
6 真空环境下光学薄膜抗损伤能力改善技术——后处理技术	104
6.1 引言	104
6.2 退火效应对真空环境下光学薄膜激光损伤的影响	104
6.2.1 样品制备和实验过程	104
6.2.2 退火效应对真空环境下 ZrO_2 薄膜激光损伤的影响	105
6.2.3 退火效应对 ZrO_2 薄膜光学特性、结构特性及缺陷特性的影响	106
6.2.4 结论	110
6.3 激光预处理对真空环境下光学薄膜激光损伤的影响	110
6.3.1 大气环境与真空环境下激光预处理对比实验研究	112
6.3.2 大气环境下激光预处理对增透膜真空环境下损伤的影响	117
6.4 本章小结	118
7 真空环境下光学薄膜抗损伤能力改善方法——薄膜制备方法	120
方法及沉积参数	120
7.1 电子束蒸发和离子束溅射制备的光学薄膜损伤特性比较	120
7.1.1 样品制备和实验过程	120
7.1.2 激光损伤测试	121
7.1.3 结论	122

7.2 氧分压对真空环境下光学薄膜激光损伤的影响	123
7.2.1 样品制备及实验过程	123
7.2.2 氧偏压对薄膜特性的影响	124
7.2.3 不同氧偏压下 ZrO_2 薄膜的激光诱导损伤	128
7.2.4 分析与总结	129
7.3 本章小结	130
8 总结	131
8.1 主要内容总结	131
8.2 创新点	132
8.3 对今后工作的建议	133
参考文献	134

1 绪 言

1.1 背景与意义

空间技术的发展使得激光技术在真空和空间领域得到了越来越广泛的应用,包括通信、测距、测高、光侦察等。目前国际上正在使用和研制的激光高度计有:空间技术实验激光雷达(Lidar In-space Technology Experiment, LI-TE)、火星轨道激光高度计(Mars Orbiter Laser Altimeter, MOLA)、地球激光高度计系统(Geosciences Laser Altimeter System, GLAS)、航天卫星高度计、大气激光多普勒仪(Atmosphere Laser Doppler Instrument, ALADIN)、月球卫星高度计以及云层浮质雷达观测系统和红外卫星观测系统等。这样,就有大量光学薄膜作为激光系统中的关键部件使用在真空环境或者特殊气氛下。光学薄膜是激光系统中非常重要但又最易损伤的薄弱环节,长期以来,激光对光学薄膜的破坏是影响光学薄膜使用寿命的主要原因,也是影响激光系统向高功率、高能量发展的瓶颈。所以,在真空和空间环境中光学薄膜的抗激光破坏能力是关系光学薄膜运行性能和安全的因素。研究表明,光学薄膜处于真空或空间环境时,其抗激光损伤能力会极大地降低^[1~3]。而在空间领域的实际应用中,更替光学薄膜几乎是不可能的,所以保证光学薄膜的安全、稳定对于整个应用过程而言都是至关重要的。过去,几种空间激光系统(如MOLA和GLAS)已经出现了其在运行一段时间后反常地性能丧失或失效的现象^[4,5]。另外,地面上一些大型的激光系统为了传输高功率的激光,其一些关键光学薄膜元件也需要在真空环境中工作,如美国NIF系统的终端光学系统和法国兆焦耳激光系统(Laser Mega Joule, LMJ)。这些系统在真空环境下工作时,其性能都出现了严重的退化,大大影响了系统的正常运行。因此,为了减轻长期运作的危险性,各国都在搭建地面真空测试系统以模拟空间使用情况。

相比于大气环境,真空环境下光学薄膜的激光破坏问题具有相当的特殊性,如真空系统中材料的放气过程、激光辐照材料分解过程、游离粒子的附着过程等,这使得影响光学薄膜激光损伤的因素大大增加。正是这些特殊过程的存在导致光学薄膜的激光损伤行为有别于在大气环境下的激光损伤行为,表现为损伤阈值降低、光学薄膜使用寿命缩短等现象,而这些都已经成为限制激光技术在空间领域应用的重要瓶颈。对真空环境下光学薄膜激光损伤的研究有助于改善光学薄膜的抗激光破坏能力,并可以为光学薄膜在真空和空间环境中的使用提供指导,从而推动激光技术在真空和空间领域的应用能力。

因此,探索光学薄膜在真空环境下的激光损伤机理,提高光学薄膜在真空环境下的激光负载能力,显得尤为重要。为了提高光学薄膜在真空环境下的抗损伤能力,必须深入研究用于真空系统的各类光学薄膜的激光损伤行为,分析真空环境中各类因素对光学薄膜激光损伤特性的影响,在保证光学薄膜光学性能的基础上,通过有效的手段抑制影响损伤阈值降低的因素,提高光学薄膜在真空下的抗激光损伤阈值和使用寿命。

1.2 真空和空间环境下引起光学薄膜损伤的潜在因素

1.2.1 大气—真空效应对光学薄膜性能的影响

目前激光系统在真空和空间环境得到广泛应用,这些在大气环境下组装而用在真空或空间环境下的激光系统会经历环境条件的改变。光学薄膜作为激光系统中的关键元件,不可避免地经历大气—真空效应。大气—真空效应对光学薄膜性能的影响一般表现在3个方面:光谱移动、应力变化和损伤阈值的降低。

1.2.1.1 大气—真空效应对光学薄膜光谱性能的影响

当光学薄膜从大气环境到真空环境时,对于电子束沉积的致密度低的多孔柱状薄膜,其透射或反射光谱会向短波方向漂移。这是由于电子束沉积的多孔柱状薄膜的柱状微结构之间存在大量的空隙,而大气—真空效应会促使空隙在大气环境中吸附的水分在真空环境中解析。水分的解析降低了膜层的折射率和光学厚度,从而导致该薄膜的光谱向短波方向移动。

C. J. Stolz 等人^[6]的研究显示,对于传统电子束沉积的氧化物薄膜,大气—真空效应引起的光谱移动可达 3%,如图 1-1 所示。但对于离子束溅射沉积的氧化物薄膜,其在不同压力环境中的光谱漂移均小于 0.02%。W. Riede 等人^[7]研究了大气—真空效应对电子束沉积和离子辅助沉积制备的 Ta₂O₅/SiO₂ 薄膜的光谱响应,结果如图 1-2 和图 1-3 所示。研究结果显示,大气—真空效应引起电子束沉积制备的 Ta₂O₅/SiO₂ 薄膜的光谱向短波方向漂移约 2%;而大气—真空效应对离子辅助沉积制备的 Ta₂O₅/SiO₂ 薄膜的光谱基本没有影响。

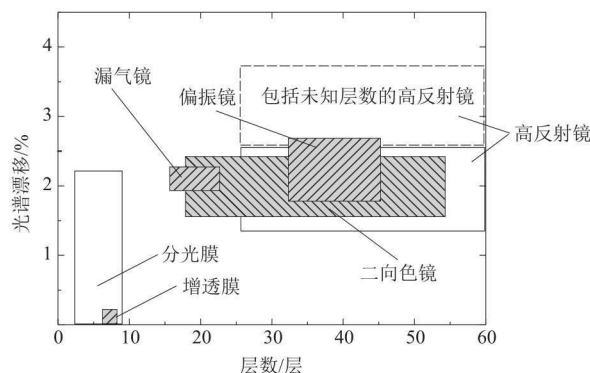


图 1-1 不同层数电子束沉积的薄膜在 10^{-7} Torr^①, 120 °C 真空环境下的光谱漂移

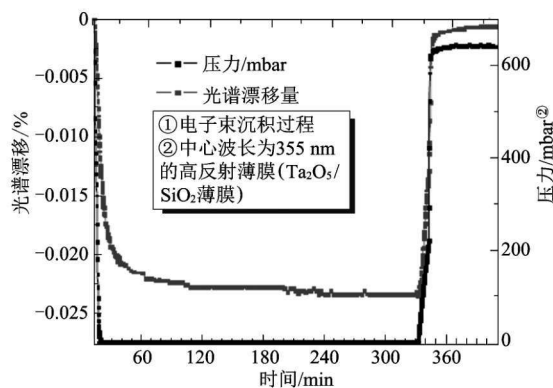


图 1-2 电子束沉积制备的 Ta₂O₅/SiO₂ 薄膜在真空过程下及又存入空气后的光谱漂移 (见彩插)

① 1 Torr = 133.322 Pa。

② 1 mbar = 100 Pa。

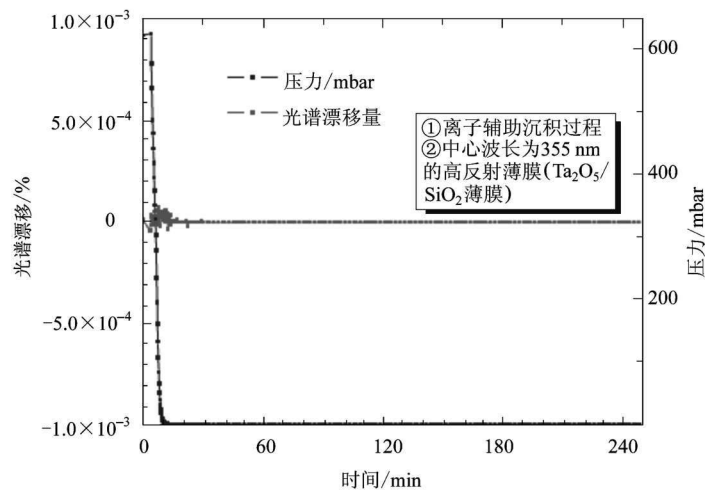


图 1-3 离子辅助沉积制备的 Ta₂O₅/SiO₂ 薄膜在真空过程下及又存入空气后的光谱漂移（见彩插）

1.2.1.2 大气—真空效应对光学薄膜残余应力的影响

大气—真空效应对光学薄膜的残余应力有较大的影响，且与光学薄膜的制备技术有关。C. J. Stolz 等人^[6]研究了大气—真空效应对电子束沉积、离子辅助沉积以及离子束溅射沉积制备的光学薄膜残余应力的影响，如表 1-1 所示。

表 1-1 大气—真空效应对光学薄膜反射波前的影响

样品 (真空暴露前 大气环境下的 反射波前 $P-V$ 值)		样品 (72 h 真空暴露 后的反射波前 $P-V$ 值)	样品 (反射波前 $P-V$ 值变化量)	镀膜过程	应力控制 方式
C	0.024cc	0.011cc	+0.013	离子束溅射	退化处理
C	0.212cc	0.217cx	+0.005	离子束溅射	无退化处理
A	0.054cc	0.156cc	-0.102	电子束蒸发	退化处理
B	0.293ex	0.188cc	-0.105	电子束蒸发	无退化处理

续表

样品 (真空暴露前 大气环境下的 反射波前 $P-V$ 值)		样品 (72 h 真空暴露 后的反射波前 $P-V$ 值)	样品 (反射波前 $P-V$ 值变化量)	镀膜过程	应力控制 方式
A	0.181cx	0.040cx	-0.141	电子束蒸发	无退化处理
B	0.016cc	0.175cc	-0.159	离子辅助蒸发	无退化处理
B	0.228cx	0.024cx	-0.204	电子束蒸发	背面退火处理
A	0.151cx	0.062cc	-0.213	电子束蒸发	无退化处理
B	0.250cx	0.027cx	-0.223	电子束蒸发	无退化处理
B	0.118cc	0.341cc	-0.223	电子束蒸发	O ₂
B	0.044cc	0.270cc	-0.226	电子束蒸发	O ₂
B	0.165cx	0.145cc	-0.350	电子束蒸发	无退化处理

研究结果显示,大气—真空效应可使电子束沉积的光学薄膜反射波前 $P-V$ 值的变化达 0.350,且所有经电子束沉积制备的光学薄膜都表现为张应力的增大;离子束溅射沉积制备的光学薄膜从大气环境到真空环境时表现为较小的压应力,反射波前 $P-V$ 值的变化小于 0.013;离子辅助沉积制备的光学薄膜也表现为张应力,大气—真空效应可使其反射波前 $P-V$ 值的变化达 0.159。分析认为,对于电子束沉积制备的多孔柱状微结构薄膜,其中的水汽能够降低柱状微结构之间的表面张力,同时水汽较低的表面会导致薄膜张应力的降低。因此对于多孔柱状微结构薄膜,当环境条件从大气环境变化到真空环境时,水分的解析会使薄膜张应力增大。

1.2.1.3 大气—真空效应对光学薄膜损伤阈值的影响

激光系统在空间环境的广泛应用使得光学薄膜得以迅速发展以便长期稳定、可靠地工作在真空环境中。德国空间中心对 ESA-ALADIN 空间激光系统中光学薄膜在真空环境下的激光损伤进行了研究。研究结果显示,电子束

沉积制备的光学薄膜在真空环境下都表现为抗激光损伤能力的降低,并且这种降低不依赖于激光波长、光学薄膜种类及其他参数。而致密的光学薄膜(如离子辅助沉积和离子束溅射沉积制备的光学薄膜)不会显示出这种效应。结果如表 1-2 和表 1-3 所示^[8]。

表 1-2 大气与真空环境下电子束沉积制备的光学薄膜损伤阈值比较

样品	环境	薄膜类型	真空暴露 时间/h	激光损伤 阈值/ ($\text{J} \cdot \text{cm}^{-2}$)	基底	薄膜材料
1	大气	AR0 1064		7.4	BK7	
	真空		>12	5.9		
2	大气	AR0 1064		5.5	BK7	
	真空		>12	4.5		
3	大气	HR45 355		3.50	熔石英	$\text{ZrO}_2/\text{SiO}_2$
	真空		21	1.00		
4	大气	AR0 355		1.90	石英晶体	$\text{Ta}_2\text{O}_5/\text{SiO}_2$
	真空		72	0.60		
5	大气	AR0 355		3.09	熔石英	$\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$
	真空		>12	1.72		
6	大气	AR0 355		0.84	透明石英	$\text{Ta}_2\text{O}_5/\text{SiO}_2$
	真空		16	0.62		
7	大气	HR45 355		1.56	合成熔石英	
	真空		24	0.26		
8	大气	HR0 355		2.54	合成熔石英	
	真空		60	1.37		

表 1-3 大气与真空环境下离子辅助与离子束溅射沉积制备的薄膜损伤阈值比较

样品	环境	薄膜类型	真空暴露 时间/h	激光损伤阈值/ ($\text{J} \cdot \text{cm}^{-2}$)	基底	薄膜材料
9	真空	PR0 1064		0.38	BK7	$\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$
	大气		65	0.45		
10	大气	AR0 355		1.8	石英晶体	$\text{Ta}_2\text{O}_5/\text{SiO}_2$
	真空		18	1.9		
11	大气	AR0 355		1.7	透明石英	$\text{Ta}_2\text{O}_5/\text{SiO}_2$
	真空		72	1.85		
12	大气	AR0		2.3		$\text{Nb}_2\text{O}_3/\text{SiO}_2$
	真空		120	2.4		
13	大气	AR0 355		2.79	熔石英	$\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$
	真空		65	3.14		

图 1-4 和图 1-5 分别为电子束沉积和离子辅助沉积制备的光学薄膜在大气与真空环境下的多脉冲损伤测试结果。结果显示,对于电子束沉积制备的光学薄膜,其真空环境下的损伤阈值低于大气环境下的损伤阈值,并且在脉冲数大于 100 的情况下,真空环境下的损伤阈值相对于大气环境来说约降低到原来的 $1/3$,而对于离子辅助沉积制备的光学薄膜,大气环境与真空环境下的损伤没有明显差异。

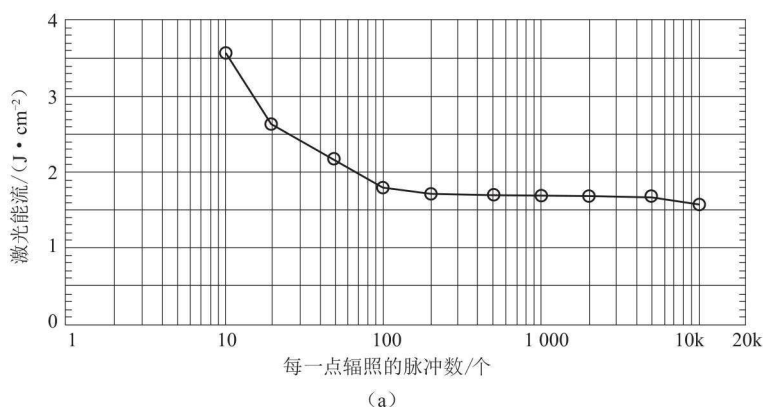


图 1-4 在大气环境和真空环境中电子束沉积制备的光学薄膜的多脉冲损伤曲线

(a) 真空环境