

METALŲ OKSIDŲ IR JŲ MIŠINIŲ PANAUDOJIMAS KINTAMO LŪŽIO RODIKLIO
OPTINĖMS DANGOMS FORMUOTIKęstutis Juškevičius¹, Simonas Kičas, Tomas Tolenis, Rytis Buzelis, Ramutis Drazdys*Fizinių ir technologijos mokslų centras, Optinių dangų laboratorija
El. paštas ¹antariss@yahoo.com*

Santrauka. Šiame darbe tiriamas jonapluoščio dulkinimo technologija dengtų ZrO_2/SiO_2 ir jų mišinių optinių savybių pritaikymas kintamo lūžio rodiklio (*Rugate* tipo) optinėms interferencinėms dangoms formuoti. Mišiniuose naudojant mažą ZrO_2 frakciją, buvo išplėstas šios medžiagos pritaikymas UV srityje. Remiantis gautais rezultatais, suformuotos didelio atspindžio (HR) ir skaidrinančios (AR) dangos esant $\lambda = 355$ nm bangos ilgio spinduliutei, taip pat teoriškai sumodeliuotos ir suformuotos daugiabangio skaidrinimo (AR@ 355+532+ 064) *Rugate* tipo dangos ant LBO (LiB_3O_5) netiesinių kristalų. Palygintos šių dangų optinės savybės su tomis dangomis, kuriose panaudoti gryni metalo oksidai (fiksauto lūžio rodiklio). Atliktas *Rugate* tipo dangų, pasižymintį siaura didelio ($R > 99,9\%$) atspindžio zona ties 532 nm ir pralaidumu likusioje spektro dalyje, teorinis modeliavimas ir eksperimentinis garinimas.

Reikšminiai žodžiai: *Rugate* tipo dangos, metalų oksidai ir jų mišiniai, LBO kristalai, *notch* filtrai, jonapluoštis dulkinimas.

Įvadas

Tipinė optinių interferencinių dangų struktūra yra $l_0/4$ optinio storio didelio n_H ir mažo n_L lūžio rodiklio sluoksnių poros. Tokia periodinė struktūra suformuoja didelio atspindžio zonas ties l_0 (Lorenzo *et al.* 2006) ir nelyginėmis harmonikomis – $l_0/3$, $l_0/5$. Minėtos dangos tinka fundamentinių harmonikų atspindžiui, pralaidumui valdyti ar paprastiems spektro dalikliams formuoti. Tačiau sparti lazerinių technologijų plėtra reikalauja daug sudėtingesnių optinių dangų su itin mažais optinės sklaidos nuostoliais, kontroliuojama dispersija, dideliu atsparumu lazerinei spinduliutei. Iki šiol plačiai naudojamos tradicinės mažų energijų garinimo technologijos riboja sudėtingų konstrukcijų dangų gamybos galimybes. Tačiau ženklus pastarųjų metų progresas, plėtojant didelių energijų dulkinimo jonų pluošteliais ar plazmoje technologijas, atvėrė naujas galimybes ir optinių dangų technologijose. Viena iš tokių galimybių – tai medžiagų mišinių plonų sluoksnių formavimas. Praktiškai naudojant jie pasižymi didesniu atsparumu lazerinei spinduliutei, mažesniais vidiniais įtempimais ir sklaidos nuostoliais. Naujos mišinių optinės savybės gerokai praplečia galimybes projektuoti sudėtingų konstrukcijų optines dangas. Tokių konstrukcijų pavyzdys yra *Rugate* tipo optinės dangos, kuriose formuojami kelių nanometrų storio sluoksniai, kurių lūžio rodiklis auginant dangą yra keičiamas tam tikru periodiškumu (Bartzsch *et al.* 2004). Tokių dangų projektavimas ir gamyba yra sudėtingas technologinis uždavinys, reikalaujantis itin didelio procesų parametrų tikslumo, laiko sąnaudų ir tikslaus naudojamų mišinių optinių ir fizinių parametrų nustatymo.

Metallų oksidų Al_2O_3 , SiO_2 , TiO_2 , Nb_2O_5 , Ta_2O_5 , ZrO_2 ir jų kintamo lūžio rodiklio mišinių sluoksniai gali būti dengiami joninio dulkinimo būdu naudojant metalinius taikinius ir vakuuminėje kameroje palaikant aktyvių dujų (O_2) atmosferą. Esant tam tikrai konfiguracijai tai yra vienas iš svarbiausių šios technologijos privalumų, leidžiančių įvairiais santykiais maišyti metallų oksidus, gaunant įvairių lūžio rodiklių bei kitų optinių ir fizinių savybių medžiagas.

Viena iš mūsų pasirinktų šių metallo oksido mišinių sluoksnių tyrimų rezultatų pritaikymo kryptį – skaidrinančių optinių dangų AR@532+1064, AR@355 ir AR@355+532+1064 ant LBO netiesinių kristalų formavimas. Skaidrinančių dangų kokybė ir atsparumas iki šiol yra aktuali problema, tiesiogiai susijusi su lazerių, kuriems naudojami šie kristalai, ilgaamžiškumu (Tianya1 *et al.* 2009).

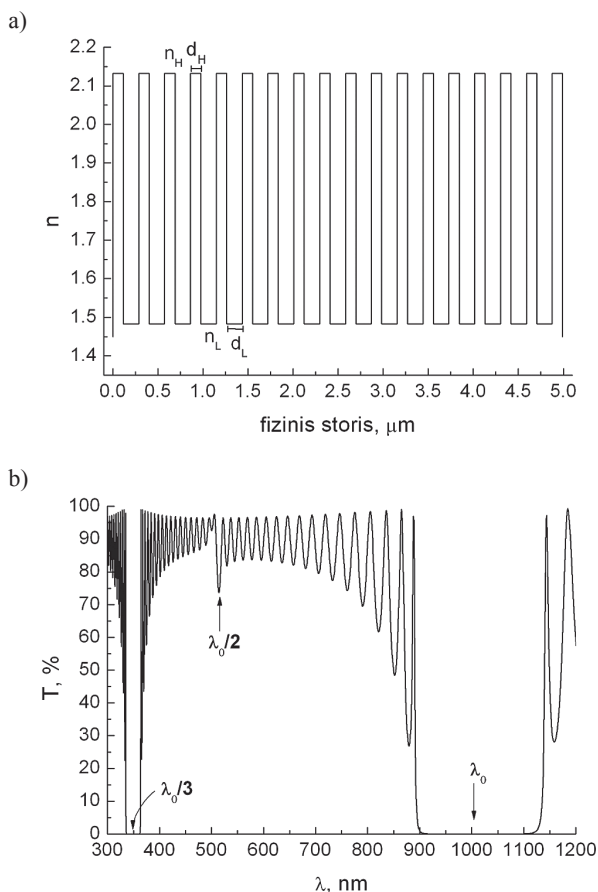
Šiame darbe pateikta sumodeliuotos ir užaugintos įvairių konstrukcijų skaidrinančios dangos, naudojant Al_2O_3 ir ZrO_2 mišinius su SiO_2 . Taip pat buvo atlikti eksperimentai naudojant ZrO_2 ir Al_2O_3 mišinius su SiO_2 didelio atspindžio dangoms formuoti. Pagrindinis šių tyrimų tikslas – praplėsti ZrO_2/SiO_2 mišinių naudojimo galimybes formuojant dangas, skirtas 266 nm ir 355 nm spinduliutei, ir padidinti optinio pažeidimo slenkstį UV srityje (Lappschies *et al.* 2007, 2005). Ant lydyto kvarco (FS) padėklų buvo suformuotos trijų konstrukcijų didelio atspindžio dangos esant 266 nm ir 355 nm bangų ilgio spinduliutei ir palygintos jų spektrinės charakteristikos bei atsparumas esant 266 nm spinduliutei.

Kita metalų oksidų mišinių taikymo kryptis – itin sudėtingų konstrukcijų kintamo lūžio rodiklio optinių dangų formavimas. Tai *Rugate* tipo dangos, kuriose lūžio rodiklis periodiškai keičiamas augant dangai.

Optinių dangų teorinis pagrindimas

Paskirstyto atspindžio veidrodžiai (Distributed Bragg reflectors DBR)

Paskirstyto Brego atspindžio veidrodžiai – tai tokios optinių sluoksnių struktūros, kuriose didelio n_H ir mažo n_L lūžio rodiklio poros, periodiškai auginamos ant skaidraus padėklo, suformuoja mažo pralaidumo zoną ties centriniu bangos ilgiu $l_0 = 2(n_H d_H + n_L d_L)$ ir aukštesnėmis harmonikomis l_0/m , kur $m > 1$. Jei tenkinama sąlyga $n_H d_H = n_L d_L$ ($l_0/4$ optinio storio sluoksnių poros), bus suformuotas efektyviausias veidrodis ties l_0 ir visomis nelyginėmis harmonikomis $l_0/3, l_0/5...$ Tačiau net ir nedidelis ($<1\%$) $l_0/4$ optinio storio neatitikimas sukelia silpną spektro iškraipymą ties antrąja harmonika $l_0/2$ (1 pav.).



1 pav. Didelio atspindžio $l_0/4$ optinio storio lūžio rodiklio dangos profilis (a); pralaidumo spektras su aukštesnės eilės harmonikomis (b)

Fig. 1. A refractive index profile versus physical depth and calculated transmission spectrum with higher order harmonics of quarter-wave stack high reflection coating

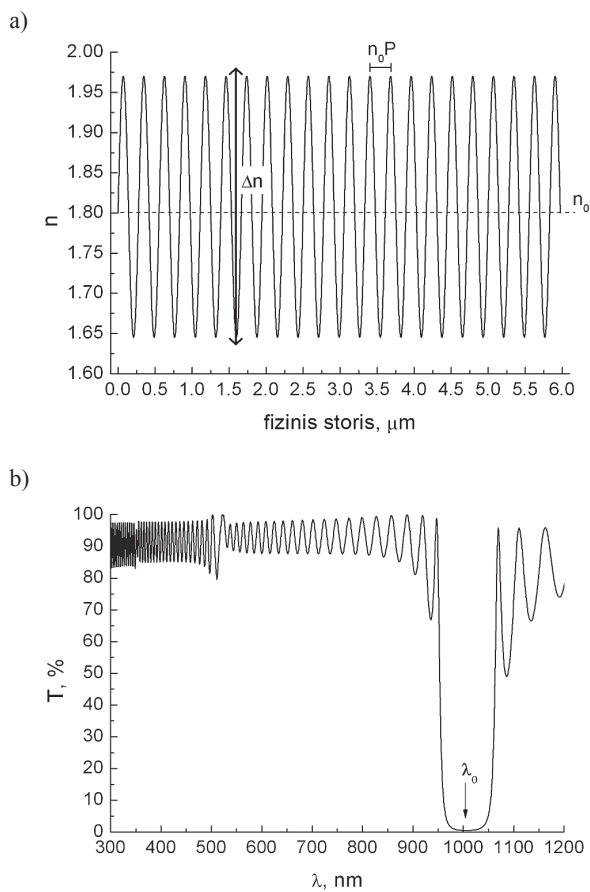
Rugate tipo dangos

Optinės dangos, kuriose lūžio rodiklis periodiškai keičiamas augant dangai, vadinamos *Rugate* tipo dangomis. Šis periodinis kitimas, analogiškas ketvirčio bangos ilgio sluoksnių porų periodiškumui, taip pat suformuoja mažo pralaidumo zoną ties centriniu bangos ilgiu, kuri yra $\pi/4$ kartų siauresnė negu DBR veidrodžių atveju. Tačiau pagrindinis šių dangų skirtumas – aukštesnių eilių harmonikų eliminavimas spektre (2 pav.) (Southwell 1983). Periodinį lūžio rodiklio kitimą galime užrašyti sinuso dėsnio (1), kur galutinis dangos spektras lemiamas trimis pagrindiniais parametrais: n_0 – vidutiniu lūžio rodikliu, $\Delta n = n_H - n_L$, l_0 – centrinis bangos ilgis.

$$n(d) = n_0 + \frac{\Delta n}{2} \sin\left(\frac{4\pi d}{\lambda_0}\right) \quad (1)$$

$$\lambda_0 = 2n_0 P, \quad (2)$$

čia P – *Rugate* periodo fizinis storis, d – dangos storio parametras. Lūžio rodiklio kontrastas Δn lemia veidrodžio plotį.



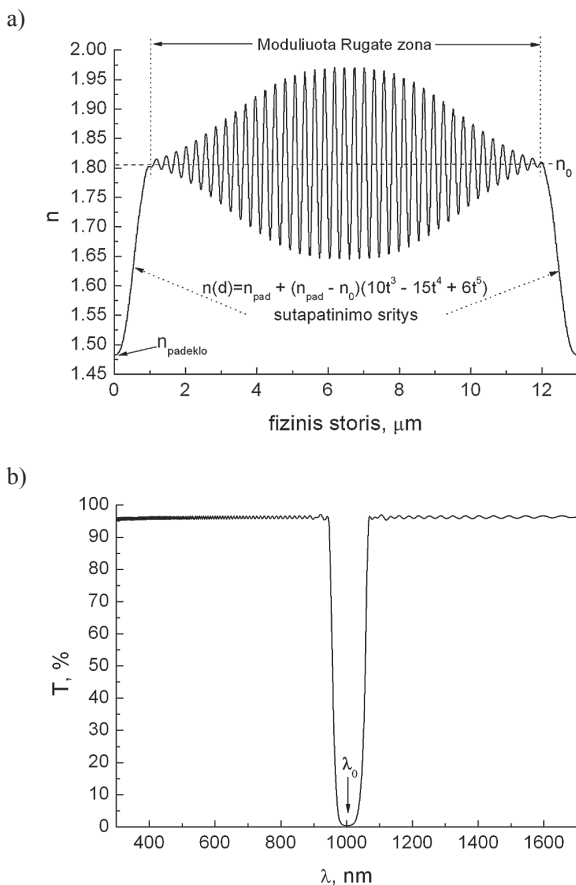
2 pav. *Rugate* dangos lūžio rodiklio profilis (a); būdingas pralaidumo spektras (b)

Fig. 2. A nominal refractive index profile versus physical depth and calculated transmission spectrum of rugate coating

Daugeliu atvejų dangos išorinė aplinka yra padėklas ir oras, kurių lūžio rodikliai nesutampa su pirmais ir paskutiniiais dangos sluoksniais (1, 2 pav.), todėl spektre stebimos interferencinės bangelės (smailės) dėl daugkartinių atspindžių tarp sandūrų danga–oras / danga–padėklas. Siekiant sumažinti šį efektą į dangos konstrukciją įterpiami dangos ir išorinės aplinkos sutapatinimo sluoksniai (angl. *index-matching layers*), t. y. tam tikras skaičius sluoksnių, kurių lūžio rodiklis kinta nustatytu dėsniu, kol galiausiai sutampa su *Rugate* dangos vidutiniu lūžio rodikliu n_0 (3 pav.). Sutapatinimo sluoksnių kitimo dėsnis gali būti įvairus (tiesinis, kubinis ar kt.), tačiau optimaliausias, labiausiai gesinantis bangeles yra penktojo laipsnio „quintic“ polinomas (3) (Southwell, Hall 1989).

$$n(d) = n_{pad} + (n_{pad} - n_0)(10t^3 - 15t^4 + 6t^5), \quad (3)$$

čia n_{pad} ir n_0 – atitinkamai padėklo ir *Rugate* dangos vidutinis lūžio rodikliai, t – normuotas sluoksnio storis.



3 pav. *Rugate* danga: a) moduluotas lūžio rodiklio profilis su „quintic“ sutapatinimo sluoksniais; b) būdingas pralaidumo spektras
Fig. 3. *Rugate* coating: a) an apodized refractive index profile with quintic matching layers; b) calculated transmission spectrum of rugate coating

$$t = d / T, \quad (4)$$

$$0 \leq t \leq 1,$$

čia T – sluoksnio storis.

Optimaliausias pralaidumas suformuojamas, kai sutapatinimo sluoksnių bendras optinis storis yra ne mažesnis nei centrinis bangos ilgis, ties kuriuo formuojamas veidrodis.

Suprantama, kad sutapatinti *Rugate* dangos vidutinį lūžio rodiklį su oru nėra paprasta, todėl dažniausiai baidiant formuoti dangą, jos lūžio rodiklis analogišku dėsniu vėl sutapatinamas su padėklo lūžio rodikliu (3 pav.). Šis metodas gali būti taikomas plačiaujustėms skaidrinančioms dangoms formuoti.

Itin didelio pralaidumo ($T \sim 97-99\%$) formuoti naudojama *Rugate* srities apodizacija (tam tikra funkcija moduluotas lūžio rodiklio profilio kitimas) (5). Tai leidžia dar labiau sumažinti abipus mažo pralaidumo srities esančias interferencines bangeles (3 pav.).

$$n(d) = n_0 + \frac{\Delta n}{2} f(Apod) * \sin\left(\frac{4\pi d}{\lambda_0}\right). \quad (5)$$

Pasirinkimas, koku dėsniu moduluoti lūžio rodiklio profilį, priklauso nuo būsimos *Rugate* dangos taikymo sričių ir kitų aplinkybių. Dažniausiai taikomos funkcijos yra Gauso, sinuso, eksponentinė-sinusinė, arba jų ir kitų funkcijų kombinacijos.

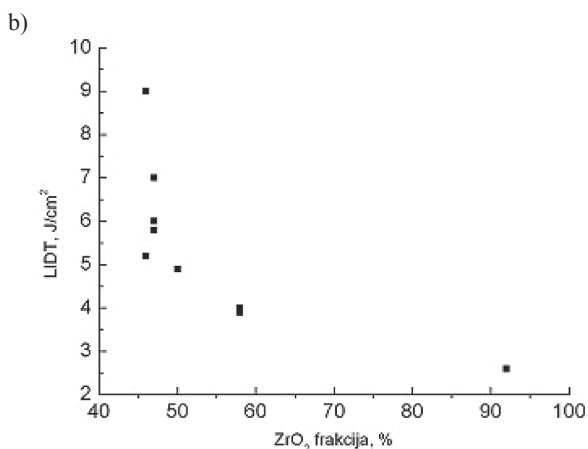
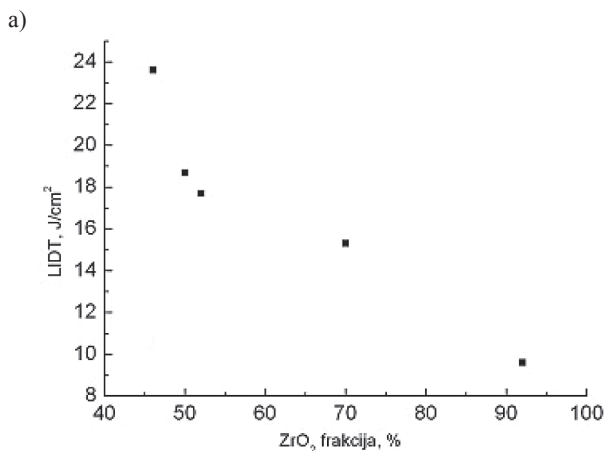
Pagrindiniai rezultatai ir jų aptarimas

Skaidrinančios dangos ant LBO kristalų

Optimaliausioms konstrukcijoms atrinkti AR dangos buvo dengiamos ant FS padėklų ir tik vėliau ant LBO kristalų. Vertinimo kriterijai buvo atspindžio vertės ties minėtais bangų ilgiais ($< 0,1\%$) ir optinio pažeidimo slenkstis (LIDT), kai didžiausias impulsų skaičius yra 1000 (vadinamasis 1000 į 1 matavimas). Pažeidimo slenkščiui nustatyti buvo naudojamas nanosekundinis lazeris su 10 Hz impulsų pasikartojimo dažniu.

Nustatyta, kad dėl sugerties ir šilumos akumuliacijos ties 532 nm ir ypač 355 nm pažeidimo slenkstį mažina didelio lūžio rodiklio (šiuo atveju ZrO_2) medžiaga, todėl buvo stengiamasi naudoti kuo mažesnės ZrO_2 frakcijos ZrO_2/SiO_2 mišinius (4 pav.).

Realiose lazerinėse sistemose LBO kristalai, padengti AR dangomis, dažnai naudojami esant kiloherciniam impulsų pasikartojimo dažniui, todėl pažeidimo slenkščio matavimai buvo atlikti naudojant 20 kHz dažnio lazerį. Matavimai parodė, kad mažesnės pažeidimo slenkščių vertės gaunamos esant 20 kHz impulso pasikartojimo dažniui, kurias galima paaiškinti stipria šilumos akumuliacija dangoje.



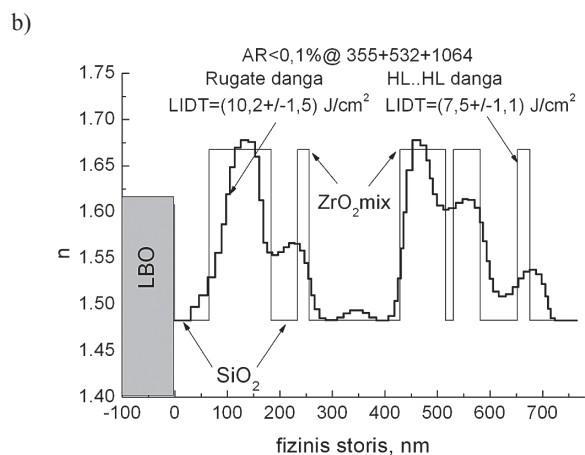
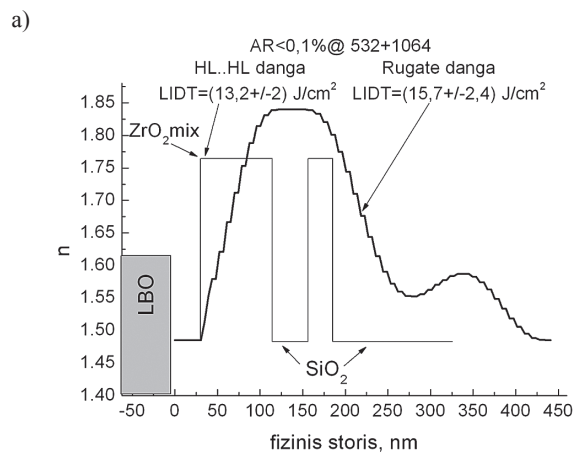
4 pav. AR@532+1064 dangų pažeidimo slenksčio priklausomybė nuo ZrO_2 frakcijos, kai impulsų pasikartojimo dažnis: a) 10 Hz; b) 20 kHz

Fig. 4. LIDT of AR@532+1064 coating versus ZrO_2 fraction at laser repetition rates of a) 10 Hz; b) 20 kHz

Atlikus įvairių konstrukcijų AR@532+1064, AR@355 ir AR@355+532+1064 ant LBO kristalų LIDT matavimus pastebėta, kad daugeliu atvejų didesnį pažeidimo slenksčių turėjo *Rugate* tipo dangos (5 pav.). Remiantis atliktais spektrinių charakteristikų ir atsparumo lazerinei spinduliuotei matavimais buvo pasirinktos kelios perspektyviausios *Rugate* tipo ir kelių sluoksnių diskretinio lūžio rodiklio dangų konstrukcijos, kurios buvo suformuotos ant LBO kristalų testuoti realiose lazerinėse sistemose.

UV veidrodžiai

Didelio atspindžio UV dangoms (266 nm ir 355 nm bangų ilgis) naudojant ZrO_2/SiO_2 mišinius buvo pasirinktos dviejų tipų dangų konstrukcijos: klasikinė, ketvirčio bangos ilgio sluoksnių porų ir mažėjančio lūžio rodiklio porų struktūra (angl. *Rised concept*) (Starke et al. 2000) (6, 7 pav.). Dėl sugerties UV diapazone ZrO_2 netaikoma šioje srityje, tačiau naudojant ZrO_2/SiO_2 mišinius su maža ZrO_2 frakcija šią medžiagą galima sėkmingai taikyti ultravioletinio



5 pav. Dvibangio AR@532+1064 ir tribangio AR@355+532+1064 skaidrinimų lūžio rodiklių profiliai ir LIDT@355 vertės esant 10 Hz impulsų pasikartojimo dažniui

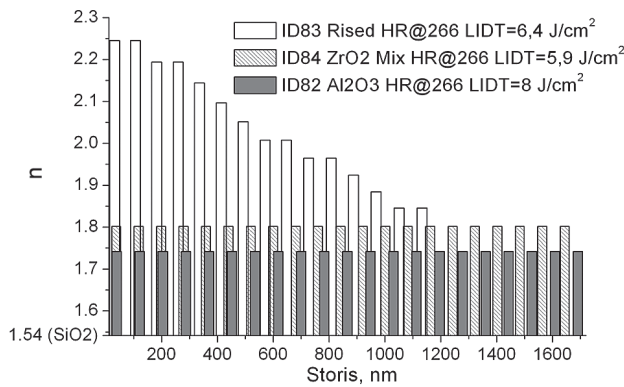
Fig. 5. Refractive index profiles of double AR@532+1064 and triple AR@355+532+1064 antireflective coatings with the values of LIDT@355 at 10 Hz

diapazono dangoms dengti. Veidrodžių optinio pažeidimo slenksstis naudojant mišinius buvo didesnis negu dažniausiai naudojamos šios srities medžiagoms – Al_2O_3/SiO_2 . Be to, dėl didesnio lūžio rodiklių kontrasto „Rised-concept“ dangos spektro plotis gaunamas ~ 2 kartus didesnis, o jos storis mažesnis nei klasikinės $l_0/4$ konstrukcijos (7 pav.).

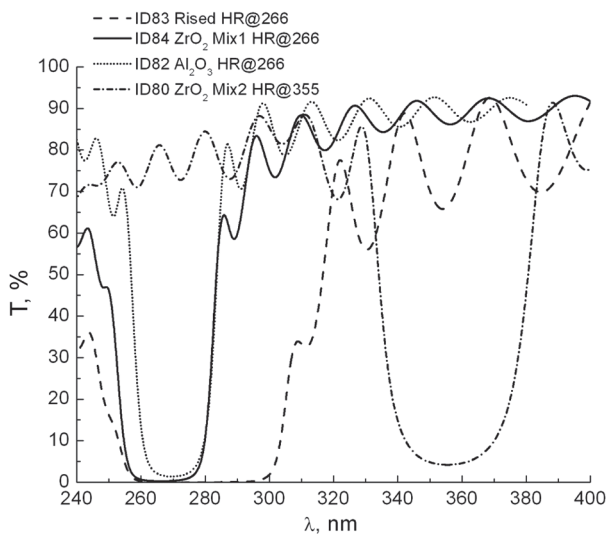
Tai papildomas privalumas, trumpinantis dangos dengimo laiką, kuris savo ruožtu sumažina kitus žalingus faktorius (pvz., defektų koncentraciją), kurie taip pat turi įtakos pažeidimo slenksčiui.

Rugate filtras

Naudojant ZrO_2/SiO_2 mišinius jonapluoščio dulkinimo būdu suformuotas 5 μm storio ir ~ 30 nm spektrinio pločio *Rugate* filtras, kurio $n_0 = 1,93$, $\Delta n = 0,31$, $l_0 = 427$ nm. Šios dangos lūžio rodiklio profilis ir pralaidumo spektras pateiktas 8 pav. Matome, kad susiformavo ~ 20 % platesnė didelio atspindžio sritis dėl netiksliai įvertintų ZrO_2/SiO_2



6 pav. HR@266 įvairių konstrukcijų dangų lūžio rodiklių profiliai
Fig. 6. A refractive index profile of HR@266 coatings



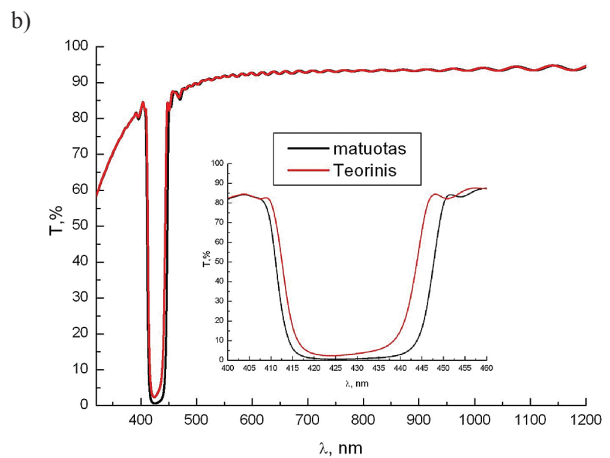
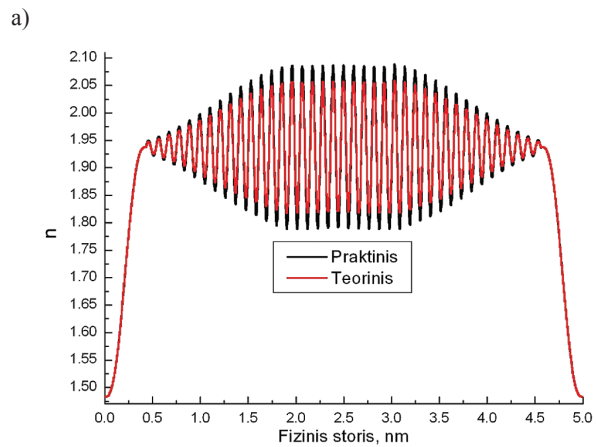
7 pav. HR@266 įvairių konstrukcijų pralaidumo spektrai
Fig. 7. The measured transission specrum of HR@266 coatings

mišinių lūžio rodiklių. Tai labai svarbu formuojant tikslius filtrus ir įvairius spektro daliklius, todėl būtina kuo tiksliau nustatyti įvairių medžiagų ir jų mišinių optines konstantas, apibūdinti jų fizikines savybes.

Išvados

Nustatyta, kad dėl sugerties ir šilumos akumuliacijos pažeidimo slenkstį ties 532 nm ir ypač 355 nm riboja didelio lūžio rodiklio (šiuo atveju ZrO_2) medžiagos sugertis. Parodyta, kad naudojant mažesnę ZrO_2 frakciją ZrO_2/SiO_2 mišiniuose šią įtaką galima gerokai sumažinti.

Įvertinus įvairių konstrukcijų AR@532+1064, AR@355 ir AR@355+532+1064 ant LBO kristalų pažeidimo slenkščius pastebėta, kad daugeliu atvejų atsparesnės buvo *Rugate* tipo dangos.



8 pav. *Rugate* filtras: a) teoriškai sumodeliuoto ir suformuoto lūžio rodiklio profiliai; b) pralaidumo spektrai

Fig. 8. *Rugate* filter: a) real and modeled refractive index profiles versus physical thickness; b) modeled and measured transission specrum

Nustatyta, kad ZrO_2 mišinių su SiO_2 plonuose sluoksniuose optinės sugerties kraštas pasislenka į trumpesnių bangos ilgių pusę, todėl, naudojant mažos ZrO_2 frakcijos (< 20 %) mišinius, šią medžiagą galima sėkmingai taikyti ultravioletinės srities HR/AR dangoms dengti.

Eksperimentinės *Rugate* filtro dangos tyrimas rodo, kad sudėtingų spektrinių charakteristikų optinėms dangoms formuoti būtina kuo tiksliau nustatyti naudojamų gryną metalų oksidų ir jų mišinių charakteristikas.

Literatūra

- Bartzsch, H.; Lange, S.; Frach, P.; Goedicke, K. 2004. Graded refractive index layer systems for antireflective coatings and rugate filters deposited by reactive pulse magnetron sputtering, *Surface and Coatings Technology* 180–181, 616–620. doi:10.1016/j.surfcoat.2003.10.105
- Lappschies, M.; Görtz, B.; Ristau, D. 2005. Optical Monitoring of rugate filters, in *Proc. of SPIE, Optical Design and Engineering II* 5963, 1Z1–1Z9.

- Lappschies, M.; Jupé, M.; Ristau, D. 2007. *Extension of Ion Beam Sputtered Oxide Mixtures into the UV Spectral Range*, *Opt. Interfer. Coatings, OSA Technical Digest*, TuA7 p.
- Lorenzo, E.; Oton, C. J.; Capuj, N. E.; Ghulinyan, M.; Navarro-Urrios, D.; Gaburro, Z.; Pavesi, L. 2006. Porous silicon-based rugate filters, *Applied Optics* 44(26): 5415–5421. doi:10.1364/AO.44.005415
- Southwell, W. H. 1983. Gradient-index antireflection coatings, *Optics Letters* 8(11): 584–586. doi:10.1364/OL.8.000584
- Southwell, W. H.; Hall, R. L. 1989. Rugate filter sidelobe suppression using quintic and rugated quintic matching layers, *Applied Optics* 28(14): 2949–29451. doi:10.1364/AO.28.002949
- Starke, K.; Groß, T.; Ristau, D. 2000, Rapid prototyping of optical thin film filters, in *Conference Optical and Infrared Thin Films. SPIE* 4094: 83–92.
- Tianya1, T.; Jing, S.; Wei, W.; Yongxin, G. 2009. Employing SiO₂ buffer layer to improve adhesion of the frequency-doubled antireflection coating on LBO, *Journal of Wuhan University of Technology, Material Science Edition* 24: 849–851.

OPTICAL COATINGS FORMED BY GRADIENT REFRACTIVE INDEX MATERIALS

K. Juškevičius, S. Kičas, T. Tolenis, R. Buzelis, R. Drazdys

Abstract

Recent advances in ion beam sputtering technology enabled efficient deposition of different oxide mixture coatings. In the present investigation, coating materials ZrO₂ and SiO₂ were utilized for the synthesis of different mixtures. The goal of the conducted investigation was to explore the potential of ZrO₂/SiO₂ mixtures, especially for applications in the range of the UV spectral. Deposited dielectric mirrors having classical quarter-wave and “rised” design with ZrO₂/SiO₂ mixture for 266 nm and 355 nm showed good resistance to laser radiation.

We also investigated the “fatigue” behavior of LIDT’s in LBO crystals with single, dual and triple wavelength anti-reflective coatings (AR@355, AR@532+1064 and AR@355+532+1064) in order to optimize design and layer materials. The influence of gradient refractive index profiles on damage resistance is of a special interest. We selected a few designs of antireflective coatings which demonstrated the best resistance to laser radiation. An experimental study on *rugate* filter coatings showed the need for a more accurate characterization of optical properties of metal oxides and their corresponding mixtures.

Keywords: *rugate* coatings, metal oxides and their mixtures, LBP crystals, *notch* filters.