

## 不同工艺制备的人工节瘤的损伤生长特性

马宏平<sup>1,2</sup>, 程鑫彬<sup>1,2\*</sup>, 张锦龙<sup>1,2</sup>, 王占山<sup>1,2</sup>, 唐永建<sup>3</sup>

- (1. 同济大学 先进微结构材料教育部重点实验室, 上海 200092;
2. 同济大学 物理科学与工程学院 精密光学工程技术研究所, 上海 200092;
3. 中国工程物理研究院激光聚变研究中心, 四川 绵阳 621900)

**摘要:** 在 高能激光系统中, 反射膜的损伤生长特性和初始损伤一样重要。对薄膜损伤生长特性的研究将有助于探究反射膜损伤机制, 从而进一步有效地提高其抗激光损伤能力。使用电子束蒸发(EB)和离子束辅助(IAD)两种工艺制备了 1064 nm 波长下的  $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$  反射膜, 利用四种尺寸的单分散的  $\text{SiO}_2$  小球形成人工节瘤, 来研究薄膜镀制工艺和节瘤尺寸对节瘤损伤生长特性的影响。激光损伤测试结果表明: 节瘤损伤生长阈值基本随节瘤尺寸的增加而减小。EB 工艺制备的反射膜中, 四种尺寸节瘤的损伤生长阈值都高于其初始损伤阈值, 而 IAD 工艺制备的反射膜中结果则相反。另外, IAD 工艺要比 EB 工艺制备的反射膜中的节瘤在发生初始损伤后更易于损伤生长, 说明薄膜镀制工艺对节瘤的损伤生长速度有一定的影响。

**关键词:** 人工节瘤; 激光损伤; 损伤生长; 镀制工艺

中图分类号: O484 文献标志码: A DOI: 10.3788/IRLA201746.0521001

## Damage growth characteristics of artificial nodules prepared by different processes

Ma Hongping<sup>1,2</sup>, Cheng Xinbin<sup>1,2\*</sup>, Zhang Jinlong<sup>1,2</sup>, Wang Zhanshan<sup>1,2</sup>, Tang Yongjian<sup>3</sup>

- (1. MOE Key Laboratory of Advanced Micro-Structured Materials, Tongji University, Shanghai 200092, China;
2. Institute of Precision Optical Engineering, School of Physics Science and Engineering, Tongji University, Shanghai 200092, China;
3. Research Center of Laser Fusion, China Academy of Engineering Physics, Mianyang 621900, China)

**Abstract:** Damage growth behaviors play an equal important role in limiting the laser resistance of high reflectors (HR) on high power laser systems as initial damage. In order to build damage mechanism and improve the laser resistance of coatings, it is necessary to obtain more information about damage growth behaviors. Thus a comparative experiment was designed to study the damage growth characteristics of different size of nodular defects in  $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$  high reflectors working at 1064 nm. Two kinds of  $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$  high reflectors were prepared by EB and IAD process, respectively, and four sizes of  $\text{SiO}_2$  microspheres were used to create artificial nodules in these films. Then the relationship between damage growth characteristics with nodule size and film deposition processes was studied. Laser damage test

收稿日期: 2016-09-10; 修订日期: 2016-10-20

基金项目: 国家自然科学基金(61522506, 61235011, 51475335)

作者简介: 马宏平(1988-)男, 博士生, 主要从事光学元件激光损伤机理方面的研究。Email: ma\_hongping@163.com

导师简介: 程鑫彬(1980-)男, 教授, 博士生导师, 博士, 主要从事光学薄膜和光学计量方面的研究。Email: chengxb@tongji.edu.cn

results showed that the damage growth threshold decreased with the increase of nodule size for all sizes of nodules in both EB and IAD coatings. The damage growth threshold were higher than the initial damage threshold for all four sizes of nodules in coatings prepared by EB process, however, the results were opposite for all four sizes of nodules in coatings prepared by IAD process. Besides, IAD nodules were more easily to grow than EB nodules, which indicated that the film deposition processes has some influence on the damage growth speed of nodules.

**Key words:** artificial nodules; laser damage; damage growth; deposition processes

## 0 引言

光学元件的抗激光损伤特性是限制高能激光系统发展的核心问题之一<sup>[1-6]</sup>。表征光学元件抗激光损伤能力的主要特性包括元件的初始损伤特性以及在后续激光辐照下的损伤生长特性，其中元件的损伤生长特性直接影响着其能否在光学系统中继续使用。目前对光学元件初始损伤的研究已经比较全面和深入，研究对象涵盖了块体材料、增透膜和高反膜<sup>[7-8]</sup>。对于损伤生长的研究更多地集中在块体材料如熔石英和晶体，而多层膜损伤生长的研究就相对较少且缺乏系统性和全面性

对于 1 064 nm 纳秒激光反射镜，节瘤缺陷已经被广泛认定为是引起反射膜初始损伤的主要缺陷<sup>[9-10]</sup>，这些节瘤缺陷主要是基板加工和清洗过程中的残留物、薄膜镀制过程中的膜料喷溅以及过多的氧气通量等真空室的污染造成的薄膜的结构缺陷。节瘤缺陷的存在大大地降低了反射膜的激光损伤阈值。已有研究提出节瘤的尺寸和在薄膜中的深度都会影响其激光损伤特性<sup>[11-12]</sup>，也有研究对节瘤的初始损伤机制建立了一些认识和理解<sup>[13-14]</sup>。然而对节瘤的损伤生长的研究还仅仅停留在起步阶段，虽然已经有研究人员发现了节瘤的损伤生长现象，但是关于节瘤的损伤生长特性以及其影响因素的系统研究仍然比较少。所以目前对于节瘤的损伤生长领域存在很多的疑问，最基本的疑问诸如下面两个：

(1) 节瘤缺陷的损伤生长特性与节瘤缺陷的尺寸是否有关系

(2) 节瘤缺陷的损伤生长特性与薄膜制备工艺是否有关系

为了寻找这两个问题的答案，达到对节瘤的损伤生长特性更加系统和深入分析的目的，笔者开展

了以下研究。利用 EB 和 IAD 两种工艺制备 1064nm 波长下的 HfO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub> 高反膜，在制备薄膜之前在基板上植入 0.5、1、1.5 和 2 μm 四种尺寸的单分散的 SiO<sub>2</sub> 小球来形成人工节瘤。通过激光损伤实验，对比损伤阈值、损伤生长阈值和损伤生长形貌，研究反射膜中节瘤的尺寸和薄膜制备工艺对节瘤损伤生长特性的影响，通过该实验的对比研究分析得到节瘤损伤生长的基本过程、规律和特征，从而促使笔者进一步认识和理解节瘤的损伤机制，为后续对反射膜损伤生长的研究提供更多的信息。

## 1 实验

### 1.1 薄膜制备

使用 0.5、1、1.5 和 2 μm 四种尺寸的非吸收性、单分散的 SiO<sub>2</sub> 种子源来形成人工节瘤，将这些种子源悬涂在 JGS1 基板表面，调节悬涂机器的转速使种子源在基板表面的分布密度为 30~70 个/mm<sup>2</sup>。利用 EB 和 IAD 两种工艺在其上镀制四分之一波长的 HfO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub> 高反膜，膜系是 [air:L(LH)<sup>13</sup>:Glass]。其中，H 代表四分之一波长的 HfO<sub>2</sub>，L 代表四分之一波长的 SiO<sub>2</sub>。两种工艺的薄膜的总厚度都是 4.3 μm 左右，在 1 064 nm 处的反射率都达到 99.95% 以上。同时对两种高反膜在正入射情况下对 1064 nm 光的吸收也进行了测定，EB 工艺制备的 HfO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub> 反射膜的吸收值为 4.5 ppm，而 IAD 工艺制备的 HfO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub> 反射膜的吸收则相对较高，为 70 ppm，结果如表 1 所示。

表 1 薄膜参数

Tab.1 Film parameter

Film	Process	Reflectance	Absorption/ppm
HfO <sub>2</sub> /SiO <sub>2</sub>	EB	>99.95%	4.5
HfO <sub>2</sub> /SiO <sub>2</sub>	IAD	>99.95%	70

### 1.2 激光损伤测试系统

激光损伤测试系统如图 1 所示, 激光器采用的是美国光谱物理公司的 Nd:YAG 调 Q 激光器, 它有 1064、532、355 nm 三种波长的激光输出。其中输出的 1064 nm 激光是 TEM<sub>00</sub> 模式, 脉宽为 10 ns, 脉冲频率是 10 Hz, 1/e<sup>2</sup> 光斑直径为 1000 μm 左右。当激光从激光器输出之后, 使用焦距为 5 m 的透镜将光束聚焦在一个装载测试样品的三维移动平台

上。该激光测试系统采用二分之一玻片结合偏振片来控制辐照在样品上的激光能量。在样品测试过程中, 使用绿激光作为探测光, 然后用一个放大倍数为 45 的 CCD 相机来捕捉探测光在样品上的散射光, CCD 相机与电脑相连, 通过电脑屏幕可以清晰地观测到样品表面的节瘤分布情况, 当进行激光辐照时, 从电脑屏幕也能实时地观测到节瘤的损伤情况。

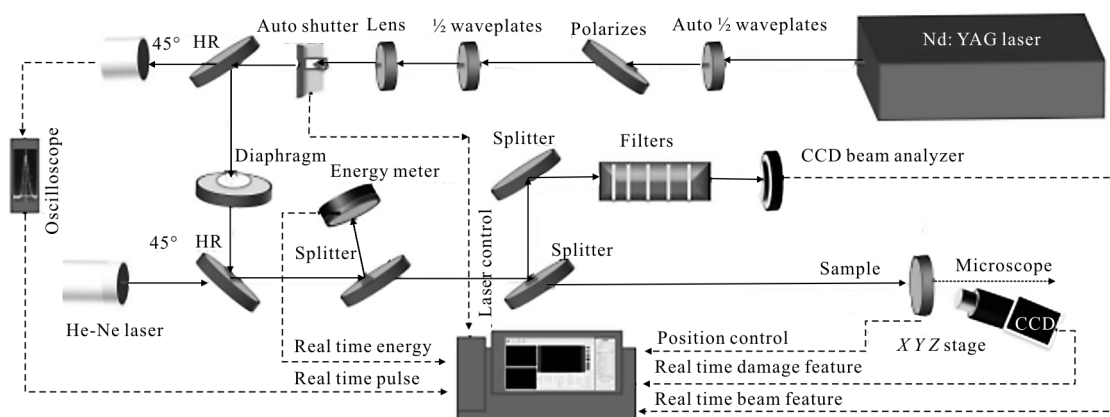


图 1 激光损伤阈值测试装置图

Fig.1 Experiment setup of the laser damage threshold test facility

### 1.3 损伤生长测试方法

#### (1) 节瘤初始损伤阈值测试方法

选择合适的能量以光栅扫描的方法在样品表面进行激光辐照, 扫描面积为 1 mm×1 mm。电脑屏幕可以实时观测到喷溅出来的节瘤, 然后将样品放在放大倍数为 200X 的光学显微镜上进行观察和计数, 统计扫描区域里总的节瘤个数和喷溅出来的节瘤个数, 由此计算出该能量下的损伤概率。改变激光能量继续扫描另外一个区域, 以相同的方法获得 0~100% 不同程度损伤概率所对应的激光能量, 绘制出损伤概率曲线, 得到 50% 的激光诱导节瘤初始损伤阈值。

#### (2) 节瘤损伤生长阈值测试方法

使用 50% 的激光诱导节瘤初始损伤阈值对应的激光能量辐照样品表面使节瘤发生初始损伤喷溅出来。然后降低激光能量, 以很低的激光能量用 S-on-1 的方式辐照发生初始损伤的节瘤处, 如果节瘤不发生损伤生长, 则梯度式的增加激光能量继续进行辐照, 如图 2 所示, 直到损伤点开始出现

生长则停止辐照, 记录下此时的激光能量密度即为节瘤的损伤生长阈值。在此过程中要特别注意的是必须确认是发生了初始损伤的节瘤而不是其他完整的节瘤或者杂质缺陷发生了损伤生长, 所以在激光辐照前后都要用光学显微镜在同一个区域不断的拍照以观察与比对, 如图 3 所示。用这样的方法测试得到 20 个损伤生长阈值数据, 然后以这些数据的平均值作为该尺寸节瘤的损伤生长阈值。以此类推, 可以测出其他尺寸节瘤的损伤生长阈值。

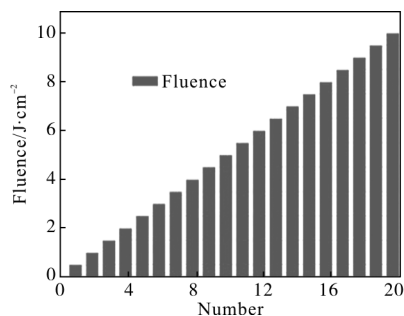


图 2 激光能量梯度式增加示意图

Fig.2 Diagram of increasing the laser energy gradiently

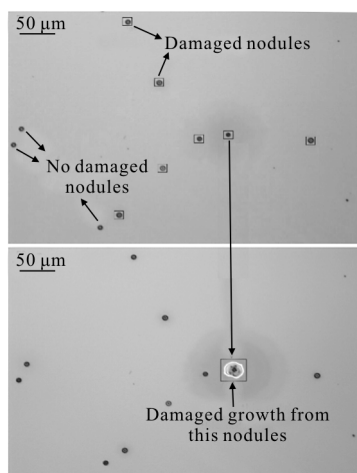


图 3 节瘤的损伤生长过程

Fig.3 Damage growth process of nodule

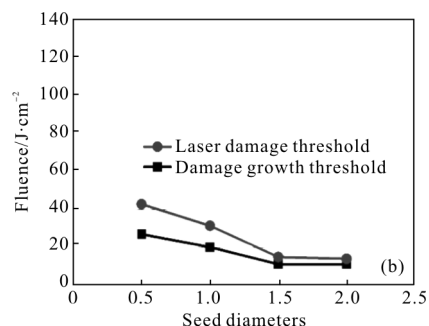


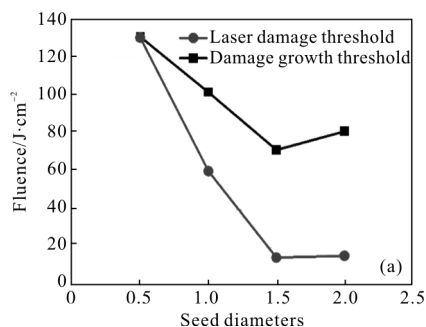
图 4 HfO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub> 高反膜节瘤初始损伤阈值和损伤生长阈值数据

Fig.4 Laser damage threshold and damage growth threshold of HfO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub> HR

## 2 结果和讨论

### 2.1 激光损伤生长阈值 vs 初始损伤阈值

四种尺寸的节瘤的激光损伤阈值和损伤生长阈值的结果显示在图 4 中。首先从图 4 可以看出两种工艺制备的 HfO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub> 反射膜，节瘤的初始损伤阈值都随节瘤尺寸的增大而减小。这个实验结果与以前的研究成果一致<sup>[7,15]</sup>，大的节瘤电场增强大，边界连续性较差，容易发生喷溅，初始损伤阈值就比较小。这里需要说明的是，由于 1.5 μm 的 SiO<sub>2</sub> 种子源单分散性较差，容易形成团簇，所以该尺寸的种子形成节瘤的初始损伤阈值普遍偏低。除此之外，对比图 4(a)和(b)可以发现，IAD 工艺制备的节瘤其损伤阈值都低于 EB 工艺制备的节瘤，这主要是因为两种工艺的薄膜的吸收值不同，从表 1 薄膜的吸收数据可以看出，IAD 薄膜的吸收是 70 ppm，相比于 EB 薄膜 4.5 ppm 的吸收，高出了 15 倍左右，从而导致了 IAD 薄膜整体的损伤阈值要低于 EB 薄膜。



然后对比图 4(a)和(b)可以得到两种工艺的 HfO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub> 反射膜上四种尺寸节瘤的损伤生长阈值的基本规律。首先，两种工艺制备的反射膜中的节瘤，其损伤生长阈值都是随节瘤尺寸的增加而减小，这是和节瘤的初始损伤阈值随节瘤尺寸的变化规律一致。其次，EB 工艺制备的反射膜中节瘤的损伤生长阈值高于 IAD 工艺制备的反射膜中的节瘤，这个特征也是和两种工艺的反射膜中节瘤的初始损伤阈值的对比结果一致。然后需要特别指出的是，两种工艺的反射膜中节瘤的损伤生长阈值与其各自初始损伤阈值的对比结果是完全相反的：EB 工艺的反射膜中节瘤的损伤生长阈值高出其初始损伤阈值很多(除了 0.5 μm 的节瘤)，而 IAD 工艺的反射膜中的节瘤，损伤生长阈值都低于其初始损伤阈值。

### 2.2 损伤生长形貌特征

EB 和 IAD 工艺制备的 HfO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub> 反射膜中节瘤的损伤生长形貌特征有着明显区别。如图 5 所示，其差异主要体现在损伤生长的速度和形貌方面。从图 5(a)可以明显看到 EB 工艺的反射膜中节瘤的损伤生长速度很快，后续激光只辐照了一发，损伤坑尺寸就变的很大，辐照到 20 发时，损伤坑的宽度已经达到了 170 μm 左右。另外通过分析损伤形貌，可以看出 EB 工艺的反射膜中节瘤的损伤生长主要发生在薄膜表面，伴随两个主要的特征：烧蚀和表面膜层脱落。在损伤生长的初始阶段，主要表现为表面膜层脱落，随着激光辐照次数的增加，烧蚀现象越来越明显。



观察图 5(b),可以发现 IAD 工艺的反射膜中节瘤的损伤生长特征是与 EB 工艺的反射膜中的节瘤有比较大的区别,在生长速度上,IAD 工艺的反射膜中节瘤的损伤生长速度要慢很多,后续激光辐照 20 发后,损伤坑才生长到近 25  $\mu\text{m}$ ,仅是 EB 工艺反射膜中相同尺寸节瘤的损伤坑宽度的 1/7,激光辐照 120 发时的损伤坑尺寸才和 EB 节瘤在辐照 25 发时的损伤坑尺寸相近。此外,损伤坑的生长形貌也不同,IAD 薄膜中节瘤的损伤除了表面横向生长,同时也在纵向上不断生长,表现为随着激光辐照次数的增加,不仅仅是表面膜层脱落,损伤坑内的膜层都在逐层脱落。

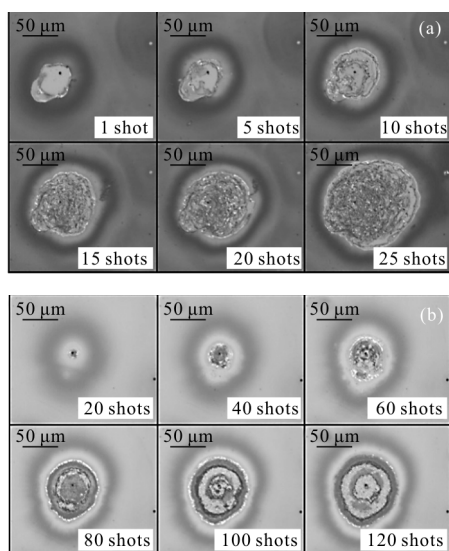


图 5 HfO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub> 高反膜节瘤损伤生长过程

Fig.5 Damage growth process of nodules in HfO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub> HR

### 2.3 分析和讨论

结合 2.2 节中节瘤的损伤形貌特征,就可以分析和解释 2.1 节中节瘤的损伤生长阈值结果。EB 工艺制备的薄膜中节瘤与薄膜的边界连续性差,节瘤发生损伤时一般是从边界不连续的地方进行喷溅,形成的损伤坑比较完整,内部残留物比较少,吸收小,在激光继续辐照时不容易发生损伤生长。而 IAD 工艺制备的薄膜,因为离子束辅助增加了沉积原子的动能,薄膜中节瘤与薄膜边界的连续性得到了改善,机械稳定性提高了。在激光辐照时,节瘤在损伤时不容易从节瘤与薄膜边界处发生,节瘤喷溅形成的损伤坑不规则,坑内会有比较

多的残留缺陷。这些缺陷对后续激光会有比较高的吸收,所以在很低的激光能量进行辐照时,就会吸收激光能量出现损伤生长。

另外,因为 EB 工艺的反射膜中节瘤的初始损伤坑吸收小,损伤不容易从坑内生长,所以只有当激光能量很高时才会出现薄膜表层脱落,进一步的损伤生长都是在发生了膜层脱落的地方进行损伤生长,由于激光能量比较高,所以该工艺的反射膜中的节瘤很快就能生长为灾难性的损伤。而 IAD 工艺的反射膜中节瘤的初始损伤坑吸收比较大,在激光能量比较低的时候就开始缓慢地生长,随着激光辐照次数的增加,不断吸收激光能量,损伤坑不断增大,所以生长速度缓慢均匀,不会突然形成灾难性的损伤。

### 3 结论

文中主要研究了高反膜中节瘤的损伤生长阈值和损伤生长特征,以及节瘤尺寸和镀膜工艺对节瘤损伤生长特点的影响。激光损伤测试结果表明,节瘤损伤生长阈值基本随节瘤尺寸的增加而减小。IAD 工艺制备的 HfO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub> 反射膜,其节瘤的损伤生长阈值低于其初始损伤阈值,而 EB 工艺制备的 HfO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub> 反射膜,节瘤的损伤生长阈值高于其初始损伤阈值。

同时,对比了两种类型节瘤的损伤生长过程,结果显示 EB 工艺反射膜中的节瘤生长速度较快,损伤形貌主要是表层的薄膜脱落。而 IAD 工艺的反射膜中的节瘤,损伤主要发生在节瘤损伤坑内且损伤生长较慢,损伤坑的尺度随着激光辐照次数的增加而缓慢增大。这些规律说明薄膜的制备工艺对节瘤的损伤生长有着重要的影响。需要特别指出的是,研究发现了节瘤损伤生长阈值随节瘤尺寸的增大而减小的基本规律,该规律与节瘤的初始损伤阈值随节瘤尺寸的变化规律一致。

### 参考文献:

- [1] Bu Yikun, Zhao Li, Zheng Quan, et al. Design method of high damage threshold laser mirror [J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2006, 35(2): 183-186. (in Chinese)

- 卜轶坤, 赵丽, 郑权, 等. 高损伤阈值激光反射镜的设计方法[J]. 红外与激光工程, 2006, 35(2): 183-186.
- [2] Abudusalamu Tuniyazi, Cheng Xinbin, Bao Ganghua, et al. Laser induced damage characteristics of nodules in thin-film polarizers [EB/OL].[2014-02-21] <http://www.paper.edu.cn/releasepaper/content/201402-377>.  
阿卜杜萨拉木·图尼亚孜, 程鑫彬, 鲍刚华, 等. 偏振分光膜中节瘤缺陷的损伤特性研[EB/OL].[2014-02-21].<http://www.paper.edu.cn/releasepaper/content/201402-377>.
- [3] Huang Wei, Zhang Yundong. Study of damage mechanism and thermal distortion of optical coating components under CW high power laser radiation [J]. *Optics and Precision Engineering*, 1996, 4(5): 61-66. (in Chinese)  
黄伟, 张云洞. 连续波强激光辐照下光学薄膜元件损伤机理和热畸变研究[J]. 光学精密工程, 1996, 4(5): 61-66.
- [4] Han Jinghua, He Changtao, Zhang Qihui, et al. Morphological analysis of laser induced glass bulk damage by marker controlling watershed algorithm [J]. *Optics and Precision Engineering*, 2010, 18(6): 1387-1395.(in Chinese)  
韩敬华, 何长涛, 张秋慧, 等. 应用标记控制分水岭分割算法研究激光诱导玻璃体损伤形貌 [J]. 光学精密工程, 2010, 18(6): 1387-1395.
- [5] Wu Xiaoye, Zhang Lichao, Shi Guang, et al. Optical thermal and optical-acoustics detecting techniques applied for the characterization of high performance optical thin films[J]. *Chinese Optics*, 2014, 7(5): 701-711. (in Chinese)  
武潇野, 张立超, 时光, 等. 应用于高性能光学薄膜表征的光热光声检测技术[J]. 中国光学, 2014, 7(5): 701-711.
- [6] Tang Wei, Ji Tongbo, Guo Jin, et al. Numerical analysis of HgCdTe crystal damaged by high repetition frequency CO<sub>2</sub> laser [J]. *Chinese Optics*, 2013, 6(5): 736-742. (in Chinese)  
汤伟, 吉桐伯, 郭劲, 等. 高重频 CO<sub>2</sub> 激光损伤 HgCdTe 晶体的数值分析[J]. 中国光学, 2013, 6(5): 736-742.
- [7] Cheng X, Zhang J, Ding T, et al. The effect of an electric field on the thermomechanical damage of nodular defects in dielectric multilayer coatings irradiated by nanosecond laser pulses[J]. *Light*, 2013, 2(6): e80.
- [8] Stolz C J, Tench R J, Kozlowski M R, et al. Comparison of nodular defect seed geometries from different deposition techniques [C]//*Laser-Induced Damage in Optical Materials*, 1996: 374-382.
- [9] Cheng X, Wang Z. Defect-related properties of optical coatings [J]. *Advanced Optical Technologies*, 2014, 3(1): 65-90.
- [10] Wang J. Laser-induced damage threshold prediction of dielectric enhanced mirrors at 1 064 nm [C]//*SPIE*, 2015, 94530: 94530S.
- [11] Stolz C J, Wolfe J E, Adams J J, et al. High laser-resistant multilayer mirrors by nodular defect planarization [Invited] [J]. *Applied Optics*, 2014, 53(4): A291-296.
- [12] Tench R J, Chow R, Kozlowski M R. Characterization of defect geometries in multilayer optical coatings [J]. *Journal of Vacuum Science & Technology A*, 1994, 12(5): 2808-2813.
- [13] Stolz C J, Genin F Y, Pistor T V. Electric-field enhancement by nodular defects in multilayer coatings irradiated at normal and 45 incidence [C]//*XXXV Annual Symposium on Optical Materials for High Power Lasers: Boulder Damage Symposium*, 2004: 41-49.
- [14] Cheng X, Tuniyazi A, Wei Z, et al. Physical insight toward electric field enhancement at nodular defects in optical coatings[J]. *Optics Express*, 2015, 23(7): 8609-8619.
- [15] Cheng X, Ding T, He W, et al. Using engineered nodules to study laser-induced damage in optical thin films with nanosecond pulses[C]//*SPIE*, 2011, 8190: 819002.