

偏振分光膜中节瘤的激光损伤特性

阿卜杜萨拉木·图尼亚孜^{1,2}, 程鑫彬^{1,2}, 鲍刚华^{1,2}, 焦宏飞^{1,2}, 王占山^{1,2}

- (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)

摘要: 研究了 1 064 nm $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ 偏振分光膜中节瘤的损伤特性。为了研究偏振分光膜中节瘤缺陷种子源粒径大小与损伤阈值之间的关系, 在熔石英基板上植入了尺寸和密度可控的单分散性的 SiO_2 小球, 并采用电子束蒸发技术在熔石英基板上制备了 1 064 nm $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ 偏振分光膜。为了便于损伤测试, 节瘤缺陷密度控制在 20~40 mm^2 左右, 并采取旋涂的措施防止了 SiO_2 小球团聚的现象。为了获得人工节瘤损伤能量的统计值, 用脉宽为 10 ns 的 1 064 nm 脉冲激光进行了光栅扫描式损伤测试。实验结果表明在偏振分光膜中节瘤缺陷的损伤阈值随着种子源粒径的增大而单调下降。

关键词: 激光损伤; 偏振分光膜; 节瘤缺陷; 人工节瘤

中图分类号: O484 **文献标志码:** A **文章编号:** 1007-2276(2015)08-2461-06

Laser induced damage characteristics of nodules in thin-film polarizers

Tuniyazi Abudusalamu^{1,2}, Cheng Xinbin^{1,2}, Bao Ganghua^{1,2}, Jiao Hongfei^{1,2}, Wang Zhanshan^{1,2}

- (1. Key Laboratory of Advanced Microstructure Materials, Ministry of Education, Tongji University, Shanghai 200092, China;
2. Institute of Precision Optical Engineering, School of Physics Science and Engineering, Tongji University, Shanghai 200092, China)

Abstract: In this paper the laser damage characteristics of nodule defects in 1 064 nm $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ polarizers was discussed. To find the correlation between the seed diameter and the damage threshold of nodular defects in thin-film polarizers, monodisperse SiO_2 microspheres were implanted on quartz substrates, and 1 064 nm $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ polarizers were fabricated on quartz substrates by using electron beam evaporation deposition technique. The defect density of nodules that were created from SiO_2 microspheres was purposely controlled to be around 20–40 mm^2 and spin coating was taken to minimize clusters of SiO_2 microspheres. To get the statistical value of ejection fluences of these engineered nodules, a raster scan damage test was used with a pulse width of 10 ns 1 064 nm laser. Laser damage test results showed that in thin-film polarizers the ejection fluences of nodules monotonically decrease with the increase of silica microsphere diameter.

Key words: laser induced damage; thin-film polarizers; nodular defects; engineered nodules

收稿日期: 2014-12-12; 修订日期: 2015-01-03

基金项目: 国家自然科学基金(61235011); 高等学校博士学科点专项科研基金(20100072120037)

作者简介: 阿卜杜萨拉木·图尼亚孜(1988-), 男, 硕士生, 主要从事强激光薄膜方面的研究。Email: salam5673@hotmail.com

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

0 引言

惯性约束核聚变(ICF)激光系统,比如美国的国家点火装置(NIF),我国的神光和法国的巨型激光装置 Mega-Joule,在军事、能源、高能物理等领域应用非常广泛。在这些高功率激光系统中,需要用到大量的激光薄膜,比如反射镜、透射镜和偏振分光膜等。偏振分光膜(PBS)是高功率激光系统中不可缺少的光学元件,其损伤阈值的高低对整个激光系统的造价有重要的影响,同时限制着整个系统的输出能量和使用寿命。偏振分光膜是指在工作波长区域能分离 P 偏振光与 S 偏振光的多层膜。对 S 偏振光来说,在偏振波长处偏振分光膜相当于一个高反射膜,对 P 偏振分光膜来说,偏振分光膜相当于一个增透膜。由于 P 偏振光几乎全部通过偏振膜层,P 偏振分量容易损伤。但是在激光聚变装置中,偏振分光膜 P 偏振光的通量远小于 S 偏振光的通量,因此文中主要讨论偏振分光膜 S 偏振光的损伤特性。

对于近红外高反射膜来说,节瘤是导致损伤的最主要的因素^[1-2]。节瘤是指在薄膜制备过程中,杂质颗粒源在薄膜材料的包裹下形成的抛物线形状的缺陷^[3-4]。由于种子源的自阴影效应,在薄膜生长过程中,薄膜与节瘤边界处存在很多小孔,节瘤和薄膜边界处的结构是不连续的,力学稳定性非常差^[5-6]。节瘤的存在会引起入射电场在节瘤内汇聚,强度叠加,使节瘤某处电场被放大^[7-8]。当激光照射到节瘤时,在具有电场极大值的区域内,薄膜吸热量剧增,使该区域温升过快过高,达到薄膜材料熔点或者在薄膜中形成极端不均匀的温度场分布,与周围基质发生力学作用,于是薄膜就沿力学最薄弱的路径(一般是节瘤与薄膜边界处)发生损伤^[9-10]。发生损伤后的节瘤在薄膜中一般会留下凹坑。凹坑结构比较稳定,电场增强小,抗激光损伤能力很强。因此大家都认为激光预处理技术能提高薄膜的损伤阈值^[11-12]。由于种子源的来源复杂,在实际的镀膜工艺中,种子源的大小,吸收和植入深度是不一样,而以上这些因素对节瘤的损伤阈值有很大的影响。由于实际中的节瘤有数量稀少、分布不均、大小不一、吸收不可控、种子源深度随机等因素,在系统研究节瘤损伤特性时无法做到单一变量的分析。

文中采用了人工节瘤的方法研究了节瘤的损伤特性。在 1 064 nm 偏振分光膜中引入了尺度、吸收可控的人工种子源,制备了四种不同尺寸的人工节瘤。用脉宽为 10 ns 的 1 064 nm 脉冲激光进行了统计性的光栅扫描式损伤测试。分析了偏振分光膜中节瘤损伤特性,给出了种子源粒径大小与节瘤损伤阈值之间的关系。由于吸收性小球的单分散性很差,文中只讨论无吸收性种子源的情况。而且文中只考虑种子源在基板上面的情况。

1 节瘤的制备与表征

1.1 种子源的制备与表征

为了制备人工节瘤,选用 SiO_2 小球作为种子源,因为这种小球单分散性好,并可以很好地控制它的粒径、密度等特性。考虑到实际情况,只研究了粒径大小为数百纳米到几个微米的 SiO_2 小球。采用 Stöber 法准备了粒径大小分别为 0.6、1.0、1.5、2.0 μm 的单分散性的 SiO_2 小球^[13]。使用超声波清洗了用于旋涂小球的基板。选用的基板是直径为 30 mm 的 BK7 基板。通过旋涂法,将准备好的 SiO_2 小球均匀地沉积在清洗好的 BK7 基板表面。通过调整 SiO_2 小球溶液的浓度和离心机的转速,使基板表面上的种子源面密度为 20~40 mm^2 左右。在旋涂过程中,采取了适当的措施避免了小球的团聚现象,保证了团聚效应小于 1%。图 1 是用光学显微镜观测到的植入种子的 BK7 基板表面。不同粒径的种子在基板表面分布情况相似,文中只给出了粒径为 1.0 μm 的种子的分布情况。通过上述方法制备出的种子源的密度,尺寸分布(SD)和团聚效应等参数如表 1 所示。对每种尺寸的 SiO_2 小球,准备了 3 个 BK7 基板。



图 1 植入种子的 BK7 基板

Fig.1 BK7 substrate of seeds

表 1 种子源特征参数

Tab.1 Seed characteristic parameters

Seeds diameter /nm	SD/(±nm)	Areal density /(#/mm ²)	Percentage of agglomerate seeds
600	30	20-40	<1%
1 000	53	20-40	<1%
1 500	82	20-40	<1%
2 000	84	20-40	<1%

1.2 偏振分光膜的设计和制备

偏振分光膜是基于光倾斜入射于高反射膜时所产生的偏振效应设计^[14]。当光倾斜入射于高反射膜时,P 偏振光和 S 偏振光的有效折射率不相等,导致 P 偏振光与 S 偏振光的反射带宽度不一样,在中心波长左边和右边都存在一定宽度的间隙,这个间隙正是要利用的偏振区间。偏振分光膜的基本膜系是跟高反射膜或者跟滤光片是一样,例如规整的四分之一波长膜系 $\text{Sub}/(\text{HL})^n/\text{Air}$, 就可以用来设计偏振分光膜。

偏振分光膜有长波通偏振分光膜,短波通偏振分光膜和带通偏振分光膜。由于长波通偏振分光膜有偏振带宽宽,物理厚度小等特点,在该实验中采用了长波通偏振分光膜。给出的初始膜系为 $\text{Sub}/(\text{LH})^{18} 2\text{L}/\text{Air}$ (H 为 HfO_2 , L 为 SiO_2), 入射角度为 56° , 工作波长为 $1\,064\text{ nm}$, 在工作波长处 P 偏振光透射率大于 99%, S 偏振光的透射率小于 1%, 材料的折射率为 $n_H=1.9658$ 和 $n_L=1.4514$, 薄膜总的物理厚度为 $6.6\text{ }\mu\text{m}$ 。实验是在熔石英基板上植入四种不同尺寸的 SiO_2 小球, 使用日本光驰公司的 OTFC1300 型号真空镀膜机, 运用电子束蒸发技术制备了 $1\,064\text{ nm}$ 长波通偏振分光膜。为了降低薄膜中外来缺陷的密度, 在镀膜 HfO_2 膜层时采用金属 Hf 作为蒸发材料, 通过真空内充氧反应生成 HfO_2 介质膜^[15]。镀膜前真空腔内的本底真空为 $1\times 10^{-4}\text{ Pa}$, 基板温度为 $200\text{ }^\circ\text{C}$ 。蒸发金属 Hf 时氧偏压为 $2\times 10^{-2}\text{ Pa}$, 蒸发 SiO_2 是氧偏压为 $1\times 10^{-3}\text{ Pa}$ 。金属 Hf 蒸发速率为 0.5 nm/s , SiO_2 蒸发速率为 0.5 nm/s 。通过上述参数制备出来的偏振分光膜测试光谱如图 2 所示。

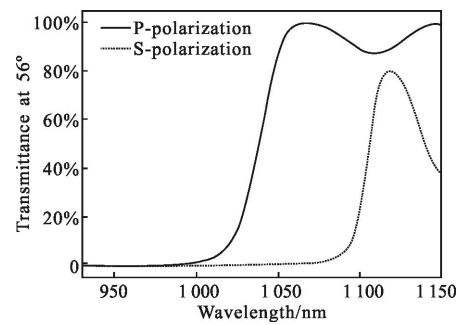


图 2 偏振分光膜的测试光谱

Fig.2 Spectrum of polarizer

1.3 人工节瘤的表征

为了表征人工节瘤, 选用了微分干涉显微镜。对光学薄膜损伤形貌进行在线观测。图 3 是用微分干涉显微镜观测得到的人工节瘤表面形貌。从图中可以看到, 随着种子粒径的增大, 节瘤表面直径在增大。通过测量得到节瘤的横向尺寸, 并根据 $D=\sqrt{kdt}$ 计算出节瘤的特征系数 k 在 4 左右, 即缺陷直径与种子粒径大小、薄膜厚度之间存在下面的关系式:

$$D=\sqrt{4dt}$$

式中: D 为节瘤直径; d 为种子粒径; t 为薄膜厚度; k 为节瘤特征系数。

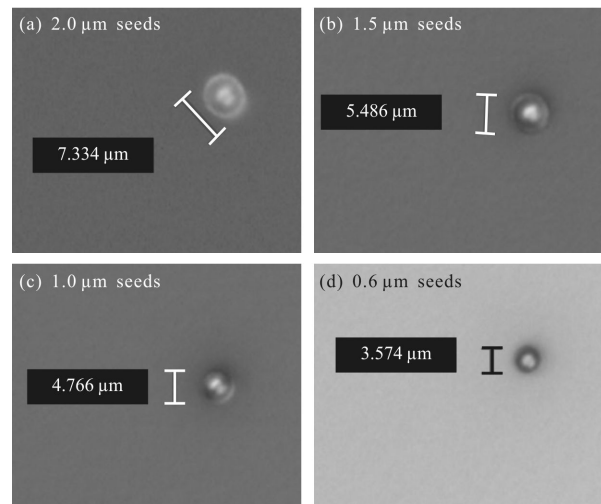


图 3 不同尺寸的种子源形成的节瘤形貌

Fig.3 Morphology of nodules that initiate from different seeds

2 节瘤的损伤特性与分析

2.1 损伤测试装置与测试方法

为了获得人工节瘤的损伤能量密度的统计值, 对以上制备好的四种尺寸的人工节瘤进行了抗激光

损伤测试,测试装置示意图如图 4 所示。激光器为 Spectra Physics 公司的 Nd:YAG 激光器,输出波长为 1064 nm,输出模式为 TEM00,调 Q 后脉宽约为 10 ns,最大输出能量 2 J,输出光斑直径约为 1 mm,用透镜聚焦后,最大输出能量密度约为 170 J/cm²。输出激光是线偏振光,通过旋转 1/2 波片可以调节能量。采用 Normaski 显微镜对测试样品进行 200 倍放大的在线实时观测。

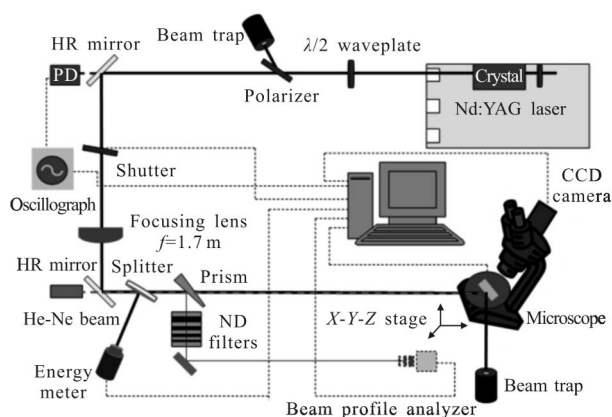


图 4 抗激光损伤阈值测试装置示意图

Fig.4 Experimental setup of the laser damage test facility

目前国际上对激光薄膜的损伤阈值测试方法主要有 1-on-1、S-on-1、R-on-1 和光栅扫描等。其中光栅扫描方式是对样品进行大面积扫描,最能反映出节瘤等缺陷对激光损伤阈值的影响。因此文中选用光栅扫描方式对节瘤进行了损伤测试。

光栅扫描为在样品上选取一个固定方形区域进行多个能量梯度的光栅式多脉冲扫描,扫描间距由所使用的激光峰值功率 90% 处的光斑直径决定。每个能量梯度扫描一次,如未出现大面积损伤或灾难性损伤则进行下一个能量梯度的扫描;如出现灾难性损伤或大面积损伤则立即停止测试。

在该实验中选择测试区域中破坏节瘤占测试节瘤总数的 50% 以上作为判断标准,此时的激光能量密度定义为表征节瘤损伤特性的阈值。在制备二氧化硅种子源的时候,即使采取一些措施来防止外来杂质颗粒的出现,并且降低了小球的团聚现象,但还是出现了一些异常的杂质缺陷。这些异常的杂质缺陷影响了光栅式扫描测试,限制采取大面积扫描,比如 10 mm×10 mm 区域的扫描。因此为了获得足够的节瘤数目并且为了避免遇到异常的缺陷,选取了

1 mm×1 mm 的扫描区域。根据以前的研究经验以 10 J/cm² 为初始能量,每次增加 5 J/cm² 的能量来扫描选定的区域,当出现大面积破坏或灾难性破坏的时候停止扫描。值得注意的是文中的损伤测试方式跟点破坏损伤测试方式不一样,因为在 1 mm×1 mm 的扫描区域内大概有 20~40 个节瘤,直径为 1 mm 的光斑下可包含很多个节瘤。

2.2 损伤测试结果与分析

对于 2.0 μm 种子源引起的节瘤,共扫描了 5 个 1 mm×1 mm 的区域,至少扫描了 100 个节瘤。几乎所有的节瘤会发生损伤,留下圆形坑如图 5(a)所示。当扫描区域内 50% 以上的节瘤发生损伤时,把此时的能量密度看做粒径为 2.0 μm 节瘤的损伤阈值,数值为 20 J/cm²。

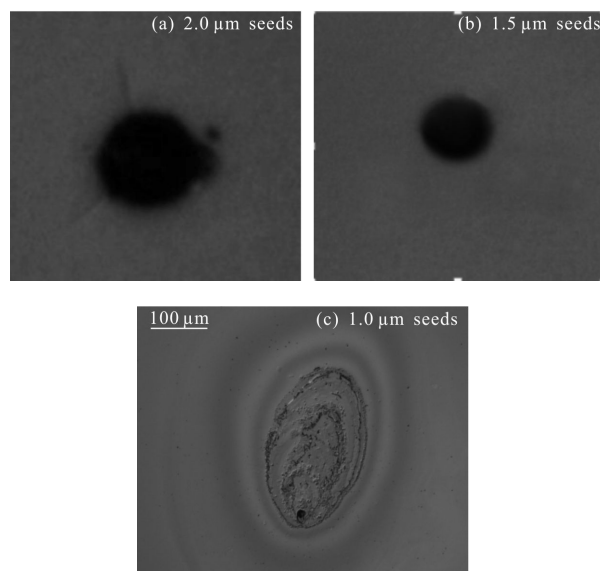


图 5 不同粒径的种子源形成的节瘤损伤形貌

Fig.5 Damage morphology of nodules that initiate from different seeds

对于种子源粒径为 1.5 μm 的节瘤,一共扫描了 7 个 1 mm×1 mm 的区域。扫描方式跟 2.0 μm 的扫描方式相同。发现能量密度为 30 J/cm² 时,大部分节瘤发生损伤,把此时的能量密度看做它的损伤阈值。种子源粒径为 1.5 μm 的节瘤的损伤形貌与粒径为 2.0 μm 的节瘤的损伤形貌是一样的,也是留下圆形凹坑如图 5(b)所示。

对于粒径为 1.0 μm 的种子源形成的节瘤,共扫描了 10 个 1 mm×1 mm 的区域,它的损伤情况跟前面的截然不同,发现能量密度为 60 J/cm² 时,极小部

分节瘤发生损伤,同时伴随着薄膜表面的脱落。这是因为粒径小的种子源引起的节瘤的边界连续性要好于大尺寸的节瘤。当种子喷射出去时所带来的破坏力同时会带动周边的薄膜而出现膜层脱落现象。图 5(c)给出了粒径为 $1.0\ \mu\text{m}$ 种子源形成的节瘤的损伤形貌。这些表面脱落面积在连续的激光照射下会迅速变大,增大到一定区域时会干涉下一个扫描区域。因此为了避免发生灾难性的大面积损伤,必须会以可能快的速度挡住入射激光,并转移到下一个扫描区域。值得注意的是对于尺寸小于 $1.0\ \mu\text{m}$ 的节瘤尽管扫描了十次以上,但是几乎没有节瘤喷射出来。但是在扫描过程也出现了大面积损伤的情况,通过观察损伤形貌发现损伤不是节瘤引起的。笔者认为那些非 SiO_2 种子引起的外来的缺陷直接影响了节瘤的喷射能量密度。所以在测试 $1.0\ \mu\text{m}$ 和 $0.6\ \mu\text{m}$ 种子的节瘤的喷射能量的时候,在扫描区域内的外来缺陷导致的那些异常低的节瘤喷射能量密度被认为是无效的。

节瘤损伤阈值与种子源粒径大小的关系如图 6 所示。从图 6 可以看出,随着种子源粒径的增大,节瘤的损伤阈值减小,这证实了节瘤边界连续性和电场在节瘤内部的放大效应分析所预测的节瘤阈值的高低的正确性。种子源粒径越大,节瘤边界连续性越差,损伤阈值就越低;节瘤种子源粒径越大,节瘤的微透镜聚焦作用越明显,在节瘤内部的电场放大效应就越大,节瘤损伤阈值越低。从图中还可以看到偏振分光膜中节瘤的损伤阈值范围是 $20\sim 170\ \text{J}/\text{cm}^2$ 。粒径为 $2.0\ \mu\text{m}$ 和 $1.5\ \mu\text{m}$ 的种子源引起的节瘤的损伤阈值分别为 $20\ \text{J}/\text{cm}^2$ 和 $30\ \text{J}/\text{cm}^2$,它的不确定度在 $5\ \text{J}/\text{cm}^2$ 左右。对于粒径为 $1.0\ \mu\text{m}$ 的种子源引起的节瘤,其损伤阈值为 $60\ \text{J}/\text{cm}^2$,误差在 $20\ \text{J}/\text{cm}^2$ 左右。因为对于种子源粒径为 $1.0\ \mu\text{m}$ 的节瘤,节瘤要么不损伤,要么发生灾难性损伤,而这种灾难性损伤很难控制,并且喷射出去的节瘤的数目不多,对喷射能量密度很难进行有效的统计。对于种子源粒径为 $0.6\ \mu\text{m}$ 的节瘤,即使能量达到损伤测试装置的上限 $170\ \text{J}/\text{cm}^2$,几乎没有节瘤喷射出去,认为在这个能量密度范围内该尺寸的节瘤是不会发生损伤。认为粒径小于等于 $0.6\ \mu\text{m}$ 的 SiO_2 种子源对 $1064\ \text{nm}\ \text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ 偏振分光膜的实际应用没有影响, $0.6\ \mu\text{m}$ 被认为是安全粒径。

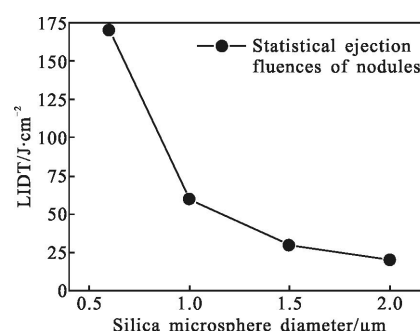


图6 节瘤损伤阈值

Fig.6 Statistical ejection fluences of nodules

3 结 论

文中通过旋涂法在 BK7 基板上制备了四种尺寸的单分散性的种子源。通过电子束蒸发技术在涂有 SiO_2 小球的 BK7 基板上制备了 $1064\ \text{nm}\ \text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ 偏振分光膜。该实验结论给出了在偏振分光膜中种子源尺寸与节瘤损伤阈值之间的关系。使用自己的抗激光损伤测试装置对偏振分光膜中的节瘤进行了光栅扫描式损伤测试。激光损伤测试结果表明,在偏振分光膜中节瘤的损伤阈值随着种子源的粒径的增大而迅速降低。种子源粒径为 $0.6\ \mu\text{m}$ 的节瘤对激光不敏感,并且对 $1064\ \text{nm}\ \text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ 偏振分光膜的抗激光损伤阈值没有影响。种子粒径为 $1.0\ \mu\text{m}$ 的节瘤的抗激光损伤阈值仍然很高,在大部分应用中可以认为对 $1064\ \text{nm}\ \text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ 偏振分光膜的损伤阈值没有影响。种子源粒径为 $1.5\ \mu\text{m}$ 及 $2.0\ \mu\text{m}$ 的节瘤的损伤阈值很低,对偏振分光膜的损伤能力的影响很大。所以在实际镀膜程序中,为了得到高阈值的偏振分光膜,应该尽量减少这类种子源的形成。

参考文献:

- [1] Staggs M C, Balooch M, Kozlowski M R, et al. In-situ atomic-force microscopy of laser-conditioned and laser-damaged $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ dielectric mirror coatings [C]//Laser-Induced Damage in Optical Materials, 1992: 375-385.
- [2] Kozlowski M R, Chow R. The role of defects in laser damage of multilayer coatings [C]//SPIE, 1994, 2114: 640-649.
- [3] Spalvins T, Brainard W A. Nodular growth in thick-sputtered metallic coatings [J]. *Journal of Vacuum Science and Technology*, 1974, 11(6): 1186-1192.

- [4] Liao B, Smith D J, McIntyre B. The formation and development of nodular defects in optical coatings [J]. *Laser Induced Damage in Optical Materials*, 1985: 305–318.
- [5] Hopper R W, Uhlmann D R. Mechanism of inclusion damage in laser glass[J]. *Journal of Applied Physics*, 1970, 41(10): 4023–4037.
- [6] Ledger A M. Inhomogeneous interface laser mirror coatings [J]. *Applied Optics*, 1979, 18(17): 2979–2989.
- [7] Stolz C J, Feit M D, Pistor T V. Laser intensification by spherical inclusions embedded within multilayer coatings [J]. *Applied Optics*, 2006, 45(7): 1594–1601.
- [8] DeFord J F, Kozlowski M R. Modeling of electric-field enhancement at nodular defects in dielectric mirror coatings [C]//Optical Materials for High Power Lasers. International Society for Optics and Photonics, 1993: 455–472.
- [9] Poulingue M, Dijon J, Ignat M, et al. New approach for the critical size of nodular defects: the mechanical connection [C]//Laser-Induced Damage in Optical Materials. International Society for Optics and Photonics, 1999: 370–381.
- [10] Sawicki R H, Shang C C, Swatloski T L. Failure characterization of nodular defects in multilayer dielectric coatings [C]//Laser-Induced Damage in Optical Materials. International Society for Optics and Photonics, 1995: 333–343.
- [11] Dai Fu, Yang Liming. Effects of damaged appearance of coatings on its conditioning during laser conditioning [J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2013, 42(1): 190–194. (in Chinese)
- 代福, 杨李茗. 激光预处理中薄膜损伤形貌对预处理效果的影响[J]. 红外与激光工程, 2013, 42(1): 190–194.
- [12] Zhan Guangda, Ma Bin, Zhang Yanyun, et al. Influence of laser conditioning effects on intrinsic damage property of high reflection film at 1064nm [J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2014, 43(6): 110–115. (in Chinese)
- 詹光达, 马彬, 张艳云, 等. 预处理效应对 1 064 nm 反射膜本征损伤性能的影响[J]. 红外与激光工程, 2014, 43(6): 110–115.
- [13] Stöber W, Fink A, Bohn E. Controlled growth of monodisperse silica spheres in the micron size range [J]. *Journal of Colloid and Interface Science*, 1968, 26(1): 62–69.
- [14] Gao Xiaodan. Design and manufacture of non-polarizing light-splitting film with 7 to 3 in a wide spectral range[J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2013, 42(5): 1302–1305. (in Chinese)
- 高晓丹. 宽波段 7:3 消偏振分光膜的设计及镀制[J]. 红外与激光工程, 2013, 42(5): 1302–1305.
- [15] Cheng Xinbin, Shen Zhengxiang, Jiao Hongfei, et al. Preparation of SiO₂/HfO₂ high reflectors [J]. *High Power Laser and Particle Beams*, 2012, 24(6): 1276–1280. (in Chinese)
- 程鑫彬, 沈正祥, 焦宏飞, 等. SiO₂/HfO₂ 高反射膜的研制[J]. 强激光与粒子束, 2012, 24(6): 1276–1280.