

1 064 nm 激光高反膜残余应力及其形变分析

李阳¹, 徐均琪¹, 苏俊宏¹, 袁松松¹, 刘祺¹, 刘政²

(1. 西安工业大学 陕西省薄膜技术与光学检测重点实验室, 西安 710021;
2. 中国科学院西安光学精密机械研究所 先进光学制造技术联合实验室, 西安 710119)

摘要: **目的** 由于光学薄膜自身的残余应力, 致使镀膜前后基底面型变化较大。针对这一问题, 本文制备单层膜和激光高反膜, 明确单层膜应力机制, 以此研究不同膜系高反膜的应力情况及其面型变化, 通过增加压应力补偿层减小面型变化, 为制备微变型激光高反镜提供方法。**方法** 从理论上分析单层膜残余应力机制, 采用等效参考温度的方法代替光学薄膜本征应力的效果, 通过仿真方法得到薄膜的本征应力。使用有限元分析和试验方法研究激光高反膜的残余应力情况。以单层膜试验为依据, 使用等效参考温度、生死单元和载荷步技术, 仿真分析多层膜-基系统的残余应力分布及其面型变化。采用电子束热蒸发技术制备不同的高反膜, 通过 Zygo 激光干涉仪测试其镀膜前后的面型, 分析基底初始面型、膜料和膜系对高反镜面型的影响。**结果** 仿真发现, 多层膜-基系统残余应力呈现层状分布, 从基底到膜层由拉应力变为压应力, 再由压应力变为拉应力。在残余应力作用下, 整个多层膜-基系统呈凹形, 位移呈环状分布。对于 $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ 组合, 通过分析对比不同膜系下对应每一层膜层的残余应力及其对整体面型的影响, 发现膜系 $G | (\text{HL})^{10} \text{H}2\text{L} | \text{A}$ 比 $G | (\text{HL})^{10} \text{H} | \text{A}$ 面型的变化更小。试验发现, 通过增加压应力补偿层使得高反膜的残余应力减小, 高反镜 (熔石英基底, $\phi 30 \text{ mm} \times 2 \text{ mm}$) 的面型基本没有变化 ($\Delta PV = 0.004\lambda$), 这与仿真结果一致。**结论** 熔石英基底上 TiO_2 、 HfO_2 、 H_4 和 SiO_2 的本征应力在残余应力中起主导作用, TiO_2 、 HfO_2 和 H_4 一般表现为拉应力, SiO_2 表现为压应力。不同膜料组合的高反膜体系均表现为压应力。膜系 $G | (\text{HL})^{10} \text{H}2\text{L} | \text{A}$ 比 $G | (\text{HL})^{10} \text{H} | \text{A}$ 残余应力和面型变化更小, 其残余应力为 -39.70 MPa , 比不加补偿层减小了 22.26 MPa , 面型基本没有变化。当加 2L 应力补偿层时, 在满足光谱特性的基础上可以平衡多层膜整体残余应力。

关键词: 多层膜; 残余应力; 等效参考温度; 生死单元; 应力补偿层; 面型

中图分类号: O484.4 **文献标识码:** A **文章编号:** 1001-3660(2022)09-0311-08

DOI: 10.16490/j.cnki.issn.1001-3660.2022.09.032

Residual Stress and Deformation of 1 064 nm High Reflection Films for Laser Systems

LI Yang¹, XU Jun-qi¹, SU Jun-hong¹, YUAN Song-song¹, LIU Qi¹, LIU Zheng²

(1. Shaanxi Province Thin Film Technology and Optical Test Open Key Laboratory, Xi'an Technological University,

收稿日期: 2021-10-29; 修订日期: 2022-01-05

Received: 2021-10-29; Revised: 2022-01-05

基金项目: 陕西省国际科技合作与交流计划资助项目 (2018KWZ-02); 西安市智能探视感知重点实验室项目 (201805061ZD12CG45)

Fund: Shaanxi International Science and Technology Cooperation and Exchange Program Funding Project (2018KWZ-02); Xi'an Intelligent Visiting Perception Key Laboratory Project (201805061ZD12CG45)

作者简介: 李阳 (1995—), 女, 博士研究生, 主要研究方向为光学薄膜的设计、制备及检测技术。

Biography: LI Yang (1995-), Female, Doctoral candidate, Research focus: design, preparation and testing technology of optical thin films.

通讯作者: 徐均琪 (1973—), 男, 博士, 教授, 主要研究方向为光学薄膜的设计、制备及检测技术。

Corresponding author: XU Jun-qi (1973-), Male, Doctor, Professor, Research focus: design, preparation and testing technology of optical thin films.

引文格式: 李阳, 徐均琪, 苏俊宏, 等. 1064 nm 激光高反膜残余应力及其形变分析[J]. 表面技术, 2022, 51(9): 311-318.

LI Yang, XU Jun-qi, SU Jun-hong, et al. Residual Stress and Deformation of 1064 nm High Reflection Films for Laser Systems[J]. Surface Technology, 2022, 51(9): 311-318.

Xi'an 710021, China; 2. Advanced Optical Manufacturing Technology Joint Laboratory, Xi'an Institute of Optics and Precision Mechanics of CAS, Xi'an 710119, China)

ABSTRACT: The large surface shape change on the substrate after coating is due to the residual stress of the optical films. It presents a challenge for coating optical elements with high precision surface shape. The work aims to study the residual stress mechanism and surface profile shape change of monolayer films and laser high reflection films with different films on substrate. The surface shape change of the substrate is reduced by adding a compressive stress compensation layer on the outermost layer of the multilayer films. It provides a method for preparing micro-deformation laser high reflection mirrors. The residual stress mechanism of monolayer film is analyzed by the theory of thermal stress and residual stress in optical films. The equivalent reference temperature is used to replace the intrinsic stress of optical thin films, and the intrinsic stress of optical thin films is obtained by simulation. The residual stress distribution and surface shape change of laser high reflection films-substrate system is studied by finite element analysis and experiments. Based on the stress of monolayer film, the residual stress distribution and surface profile change of high reflection films-substrate system is simulated and analyzed by equivalent reference temperature, birth and death element and load step technology. Different high reflection films are prepared by thermal evaporation of electron beam. The effects of initial substrate surface profile, films material and films combinations on high reflection films-substrate system are analyzed via testing surface profile changes of it, using Zygo laser interferometer. The simulation results show that the residual stress of high reflection films-substrate system is layered. It changes from tensile stress to compressive stress and then to tensile stress in the direction from the substrate to films. The surface profile of high reflective films-substrate system is concave and the Z-axis displacement is distributed annularly due to residual stress. By analyzing the influence of monolayer film on the substrate surface shape and comparing the residual stress value of each film layer in different high reflective films systems, it is found that the surface profile change of $G | (HL)^{10}H2L | A$ is smaller than $G | (HL)^{10}H | A$ with TiO_2/SiO_2 . The surface profile of substrate with high reflective films (fused silica substrate, $\phi 30 \times 2$ mm) is basically unchanged ($\Delta P/V = 0.004 \lambda$) because the residual stress of films reduced by adding a compressive stress compensation layer, which is consistent with the simulation results. On the fused silica substrate, the intrinsic stress of TiO_2 , HfO_2 , $H4$ and SiO_2 plays a leading role in the residual stress. The residual stress of TiO_2 , HfO_2 , $H4$ is tensile on the fused silica substrate while the SiO_2 is compressive. All the high reflection films systems with different material combinations show compressive. For TiO_2/SiO_2 , the films-substrate system $G | (HL)^{10}H2L | A$ is smaller than $G | (HL)^{10}H | A$ in residual stress of optical films and the change of surface shape on substrate. Its residual stress value is -39.70 MPa, which is 22.26 MPa less than that without stress compensation layer. Its surface shape has basically not changed. The addition of 2L (stress compensation layer) balances the residual stress of the multilayer films-substrate system without affecting the spectral characteristics.

KEY WORDS: multilayer films; residual stress; equivalent reference temperature; birth-death element; stress compensation layer; surface shape

在高功率大能量激光系统^[1]、自适应光学系统以及“神光”系列装置^[2]中, 包括许多有精确面型要求的反射镜。这些反射镜一般是通过在光学元件表面镀制高反膜来实现的, 但是镀膜后常常会由于薄膜的残余应力较大, 致使镀膜后元件面型发生改变。研究表明, 在玻璃基底(径厚比为 13.5)上镀制 Ta_2O_5/SiO_2 高反膜, 镀膜后面型变化量 ($\Delta P/V$) 达到 1.451λ 而影响实际使用^[3]。对于高精度的激光反射镜, 不仅要拥有高反射率和高激光损伤阈值, 而且要求镀膜后元件面型基本保持不变。

如何提高高反膜的反射率和抗激光损伤阈值, 许多学者做了相关研究^[4-6], 然而对于高反膜的应力及面型变化的研究较少。由于薄膜的残余应力是引起镀膜件面型变化的主要原因, 因此对镀膜件面型的控制

主要是对薄膜残余应力的控制。薄膜的残余应力与沉积工艺参数密切相关^[7-8], 使用薄膜工艺耦合技术^[9], 通过调整薄膜厚度^[10]、沉积温度、氧分压^[11]、沉积速率、离子束辅助^[12]、退火处理^[13]等工艺参数^[14-15], 可以控制薄膜的残余应力, 也可以通过在反射镜元件的背面镀 SiO_2 膜层, 利用薄膜的应力反向拉伸, 从而达到调整面型的目的^[3], 此方法对于较厚的基底元件具有局限性。由于通过试验方法来调控薄膜的残余应力, 需要耗费大量财力物力, 因此通过模拟仿真来分析薄膜应力的方法^[16-17]逐渐被使用。由于光学薄膜应力成因复杂, 模型多样^[18-19], 使得光学薄膜的应力仿真道路坎坷。对于多层膜的残余应力及其面形变化的仿真, 目前常用的有 2 种方法。第一种方法为直接加载应力^[20], 此方法是把薄膜的残余应力当作外部载

荷,直接加载到基底表面,可以看到面型变化,却无法查看具体应力值。第二种方法是采用等效替代的方法^[21-23]来仿真膜层的本征应力,这种方法可以直观地看到膜-基残余应力分布以及面形变化,但是模型复杂,计算量庞大。

基于上述讨论,本文分析了高反膜常用氧化物薄膜残余应力机制,以单层膜应力情况为依据,使用 Ansys 仿真软件,建立多层膜残余应力模型,考虑到多层膜层状分布与复合材料的铺层^[24-26]相似,采用 Shell 单元中的 Section 来仿真膜层,简化膜层建模,结合等效参考温度和生死单元技术,明确不同膜系下膜-基结构的应力分布和面型变化,为光学薄膜残余应力的仿真提供方法。制备不同的高反膜,研究初始面型、膜料以及膜系对高反镜面型的影响,以仿真试验为指导,通过增加高反膜中压应力匹配层,最终得到微变型激光高反镜,为制备微变型高反镜提供指导。

1 试验

1.1 薄膜制备

使用 ZZS500-2/G 真空箱式镀膜机,膜料选用北京有色金属研究院的薄膜材料,采用电子束蒸发沉积薄膜,使用光电极值法对薄膜厚度进行监控,采用短波控制长波的方法制备高反膜。基底为熔石英($\phi 30\text{ mm}\times 2\text{ mm}$),镀膜采用的工艺参数见表 1,监控波长为 520 nm,光学厚度为 $\lambda_0/2$ ($\lambda_0=1\ 064\text{ nm}$)。

表 1 薄膜制备的工艺参数
Tab.1 Process parameters of films preparation

Materials	Deposition temperature/ ℃	Beam current/ mA	Pressure/ (10^{-2} Pa)	Deposition rate/ ($\text{nm}\cdot\text{s}^{-1}$)	Oxygen flow/ ($\text{mL}\cdot\text{min}^{-1}$)
TiO ₂	180	130	2.0	0.39	3
HfO ₂	180	130	2.0	0.39	3
H4	180	130	2.0	0.40	3
SiO ₂	180	20	0.3	2.36	0

1.2 性能测试

薄膜的残余应力由薄膜的热应力和本征应力组成。薄膜的热应力由薄膜与基底材料的热膨胀系数差异和沉积前后的温度差异决定。基底上单层膜热应力^[22]可以表示为:

$$\alpha_{\text{th}} = \frac{E_f}{1-\mu_f}(\alpha_f - \alpha_s)\Delta T \quad (1)$$

式中: E_f 和 μ_f 分别为薄膜的弹性模量和泊松比; α_s 和 α_f 分别为基底和薄膜的热膨胀系数; ΔT 是薄膜沉积温度与室温之差。

薄膜的残余应力由化简的 Stoney 公式^[22]表示:

$$\sigma = \frac{4E_s}{3(1-\mu_s)} \frac{t_s^2}{t_f} \frac{\Delta P}{D_s^2} \quad (2)$$

式中: t_s 和 t_f 分别为基底和薄膜的厚度; E_s 和 μ_s 分别为基底材料的弹性模量和泊松比; D_s 为基底的直径; ΔP 为镀膜前后 PV 值的差值。使用 Zygo Verifire 激光干涉仪(4"Verifire PE),在遮光环境和气浮光学隔振平台上,采用编号 121031 的标准镜对熔石英基片镀膜前后的面型进行测量,测试波长为 632.8 nm。根据式(1)、(2)可以分别计算得到薄膜的热应力和残余应力。

2 结果及分析

2.1 单层膜应力机制及其面型变化

基底材料和膜层材料的材料参数^[9,22]见表 2。

表 2 材料参数
Tab.2 Material parameters

Material	Elasticity modulus/ GPa	Poisson's ratio	Coefficient of thermal expansion/ ($10^{-6}\cdot\text{℃}^{-1}$)
Fused quartz	72	0.70	0.50
TiO ₂	230	0.27	9.00
SiO ₂	73	0.17	0.55
HfO ₂	190	0.27	3.60
H4	88	0.27	9.00

试验均采用初始面型相近的低光圈平面基底,以轴截面的轮廓作为面型变化的判断依据,单层膜镀膜前后基底面型变化如图 1a 所示。当初始面型为低光圈,镀制单层 TiO₂、HfO₂、H4 时,镀膜面的 PV 值变大,则这些材料在熔石英基底上表现为拉应力。单层 SiO₂ 镀膜后,镀膜面的 PV 值变小,基底更为平缓,则单层 SiO₂ 材料在熔石英基底上表现为压应力。

由表 2 知,基底熔石英的热膨胀系数小于薄膜材料的热膨胀系数。根据式(1),当处于降温过程时,薄膜的热应力均为拉应力, TiO₂ 与基底的热膨胀系数差最大, SiO₂ 与基底的热膨胀系数差较小,所以 TiO₂ 的热应力最大, SiO₂ 的热应力最小,如图 1b 所示。熔石英基底上 TiO₂、HfO₂ 和 H4 的残余应力为拉应力,本征应力均大于热应力,则本征应力在残余应力中起主要作用; SiO₂ 的残余应力是压应力,由于其热膨胀系数与基底相近,则热应力较小,在图 1b 中显示很小,几乎可以忽略不计,其本征应力近似等于残余应力。

在熔石英基底上,当膜层厚度为 $\lambda_0/4$ 时, TiO₂、HfO₂ 和 H4 的残余应力表现为拉应力, SiO₂ 表现为压应力,本征应力在残余应力中起主导作用。因此,在制备多层膜时,应严格控制工艺参数,避免单一参数

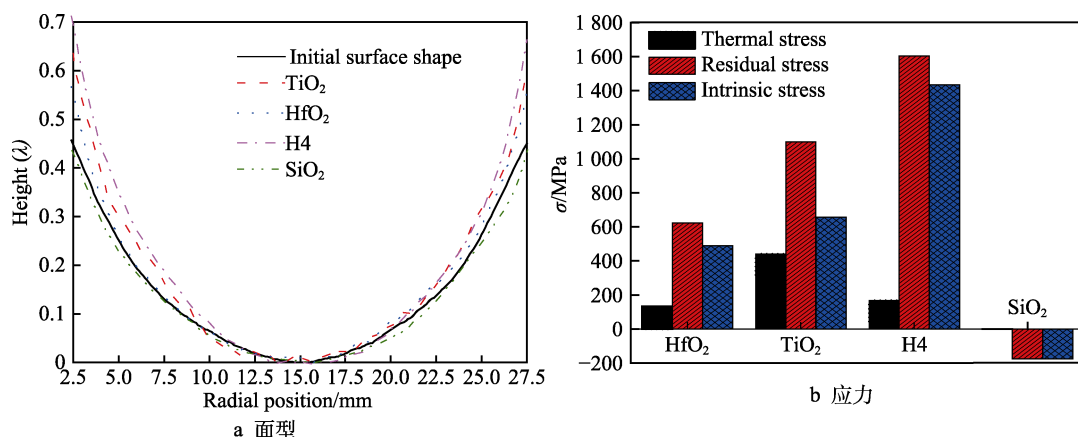


图 1 单层膜应力及面型变化

Fig.1 Stress and surface shape change of monolayer film: a) surface shape of monolayer film; b) stress of monolayer film

变化引起本征应力的变化,从而导致多层膜间应力匹配较差。 $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ 、 $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ 和 $\text{H4}/\text{SiO}_2$ 组合均满足多层膜间拉应力、压应力交替出现的应力匹配条件。

2.2 多层膜膜系对残余应力的影响

采用 J. A. Woollam 公司的 M-2000UI 型椭圆仪对单层膜的光学常数进行测量,单层膜光学常数曲线如图 2 所示。经过拟合之后发现, TiO_2 和 SiO_2 的折射率符合柯西色散方程分布,消光系数都在 10^{-3} 数量级,则基本不用考虑薄膜材料的吸收。其中,在 1 064 nm 处, TiO_2 的折射率为 2.008 1, SiO_2 的折射率为 1.463 9。将椭圆仪测试所得的光学常数导入 TFC 膜系设计软件,计算不同膜系的高反膜反射率曲线。

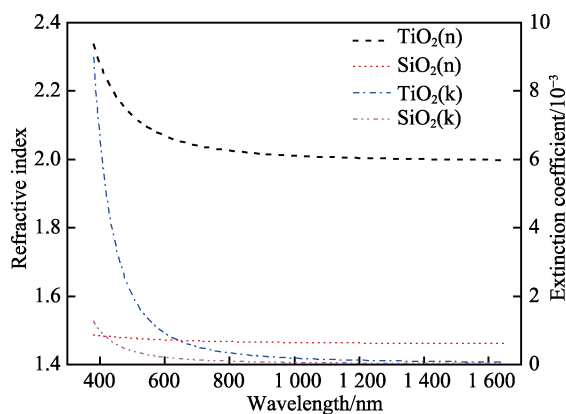


图 2 单层膜光学常数曲线

Fig.2 Refractive index and extinction coefficient of monolayer film

在一定的波段范围内,不同的膜系结构可以实现同样的光学性能,但其应力分布存在极大差异,从而造成镀膜后元件的面型变化不同。本研究采用最常用的 $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ 组合的高反射膜,不同膜系的高反膜光谱特性和残余应力情况见表 3。多层膜系统的累积应力可表示为:

$$\sigma = \frac{\sigma_H m_H + \sigma_L m_L}{m_H + m_L} \quad (3)$$

式中: σ_H 、 σ_L 分别为单层高、低折射率材料的应力; m_H 、 m_L 分别为每种材料的层数。多层膜应力成因及机制复杂,没有统一论,但其残余应力(热应力和本征应力)占据主要作用^[22]。在此,多层膜系统的累积应力可近似认为是多层膜的残余应力。根据单层膜残余应力 $\sigma_{\text{TiO}_2} = 1\,098.55 \text{ MPa}$ 、 $\sigma_{\text{SiO}_2} = -173.62 \text{ MPa}$ 和式(3)计算得到多层膜残余应力。由式(3)可以看出,多层膜残余应力与单层膜应力和膜层数有关,当增加表现为压应力的 SiO_2 层时,可以减小多层膜的残余应力。

表 3 高反膜 4 种基本膜系特性对比
Tab.3 Characteristics of high reflective films

Films	R/%		σ/MPa
	R_{avg}	$R_{1\,064}$	
G (HL) ¹⁰ A	98.73	98.82	462.47
G (LH) ¹⁰ A	99.45	99.50	462.46
G (HL) ¹⁰ H A	99.64	99.67	492.75
G (LH) ¹⁰ L A	98.82	98.91	432.17
G (HL) ¹⁰ H2L A	99.57	99.61	434.81
G (HL) ¹⁰ H4L A	99.50	99.55	386.13

从表 3 看出,膜系 G | (HL)¹⁰H | A 和 G | (HL)¹⁰H2L | A 的反射率较高,膜系 G | (LH)¹⁰L | A、G | (HL)¹⁰H2L | A 和 G | (HL)¹⁰H4L | A 的残余应力较小。基本膜系 G | (HL)¹⁰H | A 上加镀 2L 层时,2L 层不仅为保护层和缓冲层,而且减少了多层膜的残余应力。与此同时,张应力的薄膜靠近基底可以增强薄膜系统的牢固性^[3],如制备高反膜,选择膜系为 G | (HL)¹⁰H2L | A 则具有优良的性能。

2.3 多层膜-基结构残余应力仿真与分析

通过在模型上加载镀膜温度到室温的温度差,获

得多层膜-基系统的热应力, 将本征应力转变为一定温度差引起的“热应力”, 即等效参考温度 (Equivalent Reference Temperature, ERT), 这样就将复杂的本征应力表现出来, 就可以获得多层膜-基系统的残余应力情况。设计并制备单层薄膜, 测量其在室温下的残余应力。在仿真分析中, 假设膜层初始温度为 T_{ref} , 首先给膜层加载一个温度差 (等效参考温度与镀膜温度的差值), 接着给基底和薄膜整体再加载一个温度差 (镀膜温度与室温的差值), 由于加载温度载荷是连续的, 此时即可得到单层膜的残余应力。将仿真得到的单层膜的残余应力值与实测数据对比, 通过改变膜层初始温度, 直至实测和仿真的单层膜残余应力值相等时, 认为此时的膜层初始温度就是薄膜材料在该镀膜条件下的等效参考温度 $T_{\text{ref}}^{\text{in}}$, 它可以等效替代单层膜的本征应力效果。以试验所得单层膜的残余应力为依据, 从基底到膜层方向上逐层激活膜层, 分别加载引起热应力和本征应力的温度差, 使用生死单元技术 (逐层激活) 和等效参考温度模型多载荷步仿真薄膜的残余应力分布及面型的变化。

选用支持单元生死功能的 solid5 单元, 建立符合实际的几何模型, 基底为熔石英, 材料参数见表 2。建立 1/4 模型, 假定基底和薄膜是弹性材料, 且材料性质不受环境的影响。同时, 不考虑整体与外界的导热、对流和辐射等影响, 多层膜的热应力只是由镀膜温度与环境温度之间的温度差所引起的。由几何边到面, 由面到体, 采用扫掠的方式对模型进行网格划分, 生成六面体网格, 参数化命令流把单元尺寸调到足够小, 对膜层和基底-膜层界面处进行网格细化。以图 3 的坐标为基准, 约束 $x=0$ 面在 x 方向的位移, $y=0$ 面在 y 方向的位移, 选择圆心坐标节点, 固定圆心点。定义完边界条件后, 基底设置参考温度为镀膜温度, 激活第一层膜, 接着加载第一层膜的等效参考温度, 然后对第一层膜-基底整体加载温度为室温, 此时

得到第一层膜-基底整体的残余应力。类似地, 之后依次激活膜层, 逐层加载对应膜层的等效参考温度, 最终获得多层膜-基体系的残余应力分布。

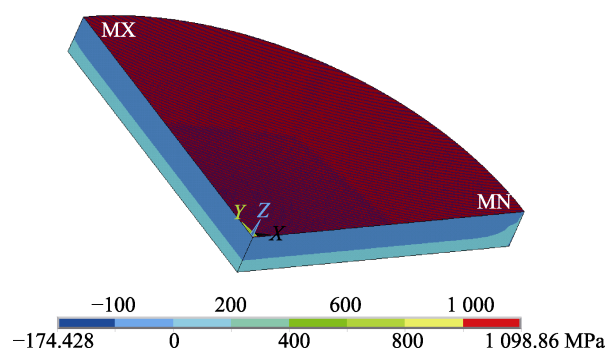


图 3 多层膜-基系统 z 方向的残余应力云图

Fig.3 z axis residual stress cloud diagram of multilayer film-substrate system

设镀膜温度为 $180\text{ }^{\circ}\text{C}$, 室温为 $25\text{ }^{\circ}\text{C}$, 以 TiO_2 、 SiO_2 单层膜残余应力为依据, 获得 $ERT_{\text{SiO}_2} = 20\text{ }^{\circ}\text{C}$, $ERT_{\text{SiO}_2(2\text{L})} = 13\text{ }^{\circ}\text{C}$, $ERT_{\text{TiO}_2} = 389\text{ }^{\circ}\text{C}$ 。图 3 为膜系为 $\text{G} | (\text{HL})^{10}\text{H} | \text{A}$ 的 $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ 多层膜-基系统 z 向残余应力云图。多层膜残余应力呈现层状分布, 整体膜-基残余应力从基底到膜层由拉应力变为压应力, 再由压应力变为拉应力。基底应力较小, 中性面在距离基底下表面 $1/3$ 处, 基底边缘残余应力稍微变大, 膜层处残余应力较大。

在膜系为 $\text{G} | (\text{HL})^{10}\text{H} | \text{A}$ 和 $\text{G} | (\text{HL})^{10}\text{H}2\text{L} | \text{A}$ 的 $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ 多层膜残余应力的作用下, z 方向的位移分布如图 4 所示, 整个多层膜系统呈凹形, 位移呈环状分布, 边缘处变形最大。在残余应力作用下, 多层膜膜系为 $\text{G} | (\text{HL})^{10}\text{H}2\text{L} | \text{A}$ 比 $\text{G} | (\text{HL})^{10}\text{H} | \text{A}$ 面型变化更小, 膜系为 $\text{G} | (\text{HL})^{10}\text{H}2\text{L} | \text{A}$ 的面型更好。

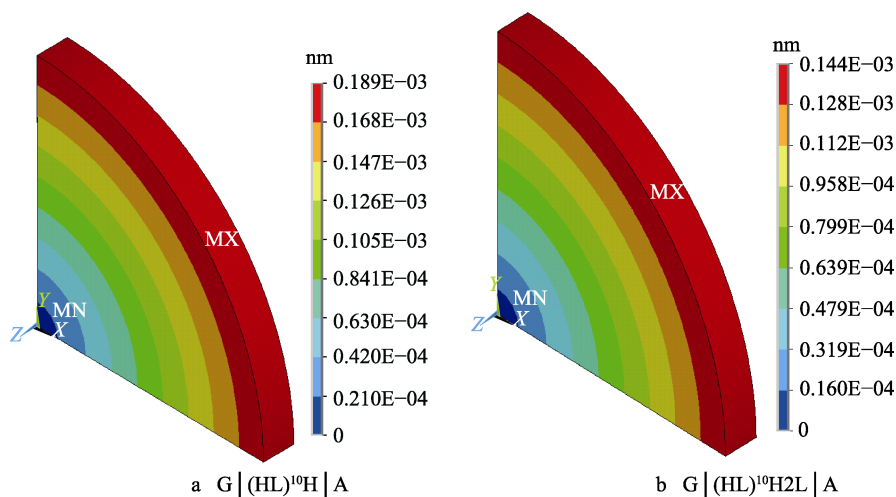


图 4 不同膜系多层膜 z 方向的位移分布

Fig.4 z -axis displacement cloud diagram of different films

提取 z 轴上的节点的应力值, 图 5 为 2 种膜系中 TiO_2 和 SiO_2 膜层内残余应力具体分布值。对于多层高反膜, TiO_2 层内的残余应力为拉应力, 且随着离基底下表面中心距离的增大, 拉应力逐渐增大; SiO_2 层内的残余应力为压应力, 且随着离基底下表面中心距离的增大, 压应力呈减小的趋势。当高反膜最外层增加 2L 层时, 对应的多层膜-基系统的中性面稍稍上移, 膜层部分的压应力变小。膜系 $G | (\text{HL})^{10} \text{H} | \text{A}$ 相对于 $G | (\text{HL})^{10} \text{H}2\text{L} | \text{A}$ 中同一层 TiO_2 层内的残余拉应力呈略微减小的趋势, SiO_2 层内的残余压应力呈略微增大的趋势。由图 4 可知, 膜系 $G | (\text{HL})^{10} \text{H} | \text{A}$ 整个多层膜系统在残余应力作用下呈现略微凹形, 其弯曲程度更大一些, 则 TiO_2 层受到的拉伸越小, 而 SiO_2 层受到的压缩越大, 所以 TiO_2 层的残余拉应力稍微减小, SiO_2 层内的残余压应力稍微增大。膜系 $G | (\text{HL})^{10} \text{H}2\text{L} | \text{A}$ 最外层的 2L 层压应力最大, 它不仅有效地平衡了 TiO_2 层的拉应力, 而且减少了多层高反膜整体的残余应力, 使得面型变化较小。

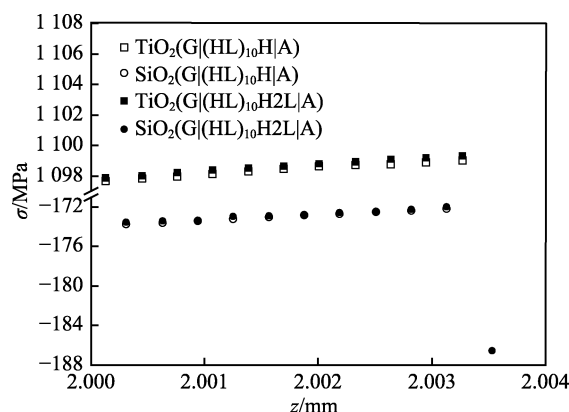


图 5 不同膜系膜层残余应力分布
Fig.5 Residual stress of film in different high reflective films

2.4 多层膜的残余应力及其形变分析

1) 初始面型对高反镜面型的影响。对于同一批熔石英基底镀膜前后的面型进行测试, 测试结果如图 6 所示。镀膜前基底有 A、B、C 3 类面型, 凹面为负,

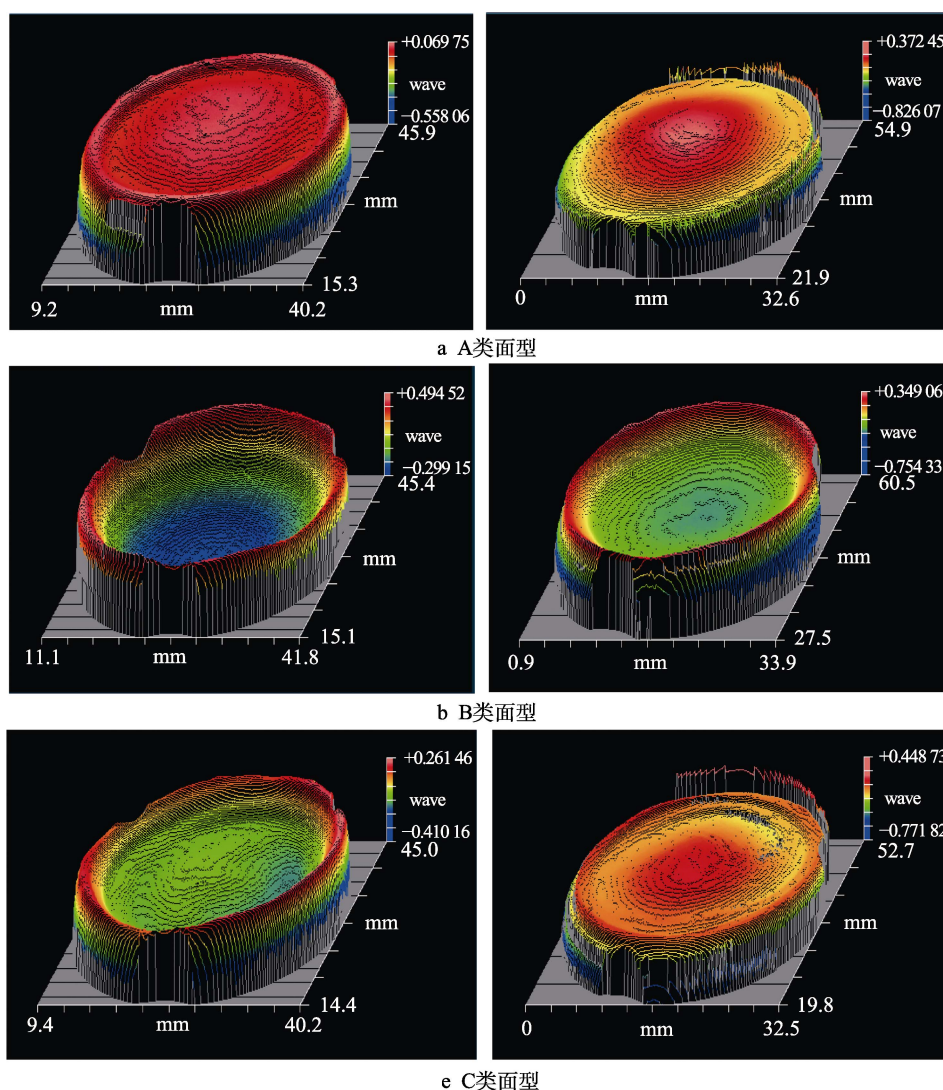


图 6 镀膜前后面型比较
Fig.6 Surface shape of high reflective mirror: a) surface shape of A;
b) surface shape of B; c) surface shape of C

凸面为正。其中, A 类略微为凸面 (PV 值为 0.059λ), B 类略微为凹面 (PV 值为 -0.449λ), C 类为凹面 (PV 值为 -0.170λ)。为了得到准确的结论, 对同一类型的未镀膜基底各取 3 片进行试验。

根据镀膜前后面型变化可知, 无论初始面型如何, 镀膜后的面型均有被“压平”的趋势, 这是因为熔石英基底上的多层膜结构整体残余应力表现为压应力。具体地, 当工艺参数固定且稳定时, 每层膜的残余应力也是恒定的, 单层膜的残余应力可以作为分析多层膜残余应力的依据。实际上, 中间膜层是在前面沉积的膜层上沉积的, 下一层则是在上一层的岛状结构上沉积的, 膜层除了自身的残余应力之外, 还会受膜层间的作用力。与此同时, 膜料分子在吸附、成核和长大过程中, 也存在膜料分子间的作用力, 这些力可能是促使高反膜表现为压应力的原因。B 类和 C 类初始面型均为凹面, C 类镀膜后变为凸面, 这表明镀膜已经修改了基底面型。在实际试验中, 对于小口径高反膜而言, 应当避免选用初始面型 PV 值较小的负光圈。

2) 膜料对高反镜面型的影响。选用面型相近的负光圈基底, 分别镀制膜系为 $G|(HL)^{10}H|A$ 的 TiO_2/SiO_2 、 HfO_2/SiO_2 和 $H4/SiO_2$ 组合。其中镀膜前后面型的变化见表 4。由表 4 看出, 在当前试验条件下, 熔石英上不同膜料组合高反膜都表现为压应力, 其中 TiO_2/SiO_2 膜料组合高反膜的面型变化量最小, 实际生产中应尽量选用面型变化量最小的 TiO_2/SiO_2 膜系组合。

Material combination	$ \Delta PV $	Residual stress/MPa
H4/SiO ₂	0.557λ	-167.54
HfO ₂ /SiO ₂	0.356λ	-107.08
TiO ₂ /SiO ₂	0.206λ	-61.96

3) 膜系对高反镜面型影响。熔石英基底上的多层 TiO_2/SiO_2 高反膜表现为压应力, 由式 (3) 可知, 增加压应力层可以减少多层膜的残余应力。在膜系 $G|(HL)^{10}H|A$ 的基础上加整数个 2L 的应力补偿层, 在满足不影响反射膜光谱特性的条件下, 使得多层膜的残余应力更小。膜系 $G|(HL)^{10}H2L|A$ 、 $G|2L(HL)^{10}H|A$ 和 $G|(HL)^{10}H4L|A$ 镀膜前后的面型变化如图 7 所示。

由图 7 可见, 高反膜元件中间部分由于多层膜的累积变得平缓, 在边缘处面型变化较大。与单层膜面型相比, 多层膜的面型并没有表现出良好的曲线, 这可能是因为多层膜的膜层间存在其他形式的应力(界面应力等)。膜系 $G|(HL)^{10}H2L|A$ 的面型变化量比 $G|2L(HL)^{10}H|A$ 小, 这是因为最外层的 2L 可以用

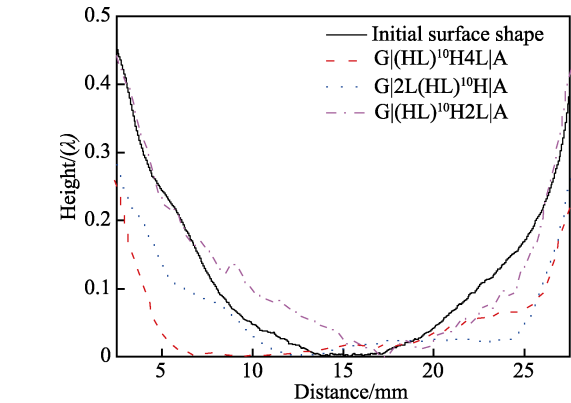


图 7 镀膜前后面型比较
Fig.7 Surface shape comparison of high reflective mirror with different films

来平衡最后一层高折射率材料的拉应力, 从而使得面型变化较小, 而膜系 $G|2L(HL)^{10}H|A$ 是在靠近基底上镀制了单层 SiO_2 薄膜, 由图 1 单层膜残余应力可知, 熔石英上单层 SiO_2 残余应力较小, 则接近基底的 SiO_2 膜层对于基底面型的改善作用不大, 致使以后的多层膜面型变化变大。膜系 $G|(HL)^{10}H4L|A$ 的变形量最大, 则不能通过在多层膜最外层加镀 4L 层来减小面型变化, 膜层的厚度也是影响单层膜残余应力的主要因素。当膜厚增加时, 其残余应力可能会改变, 4L 层的残余应力并不是单纯的 2L 层残余应力的简单叠加。

综上所述, 膜系 $G|(HL)^{10}H2L|A$ 的 TiO_2/SiO_2 组合是 3 种膜系中面型变化最小且最接近初始面型的, 与仿真的结果一致, 其镀膜前后面型变化为 0.004λ, 高反膜残余应力为 -39.70 MPa。当基底初始面型为负光圈时, 在高反膜最外层加压应力补偿层, 可以减小多层膜整体残余应力, 使得镀膜前后基底面型变化较小。

3 结论

本文通过有限元分析膜层的残余应力和由其引起的面型变化, 获得了最佳的膜系结构。对制备的样品进行了测试、比较分析, 得出如下结论:

1) 通过对多层膜残余应力仿真发现, 多层膜残余应力呈现层状分布, 其中基底应力较小, 膜层处残余应力较大。在残余应力的作用下, 整个多层膜系统呈凹形, 位移呈环状分布, 边缘处变形最大。高反膜膜系 $G|(HL)^{10}H2L|A$ 比 $G|(HL)^{10}H|A$ 面型变化更小。

2) 在本文试验条件(熔石英基底)下, TiO_2 、 HfO_2 和 H4 残余应力表现为拉应力, SiO_2 为压应力, 它们的本征应力在残余应力中起主导作用。

3) TiO_2/SiO_2 、 HfO_2/SiO_2 和 H4/ SiO_2 高反膜在熔石英基底上均表现为压应力, TiO_2/SiO_2 组合残余应力和面型变化最小, 通过增加压应力补偿层, 使得多

层膜残余应力最小,镀膜前后面型基本没有变化。当在最外层加 2L 应力补偿层时,在满足光谱特性的基础上,可以减小高反膜的残余应力,从而减少高反镜面型变化。

参考文献:

- [1] BOUILLET S, AMEIL C, BEAU V, et al. Large Optics Metrology for High-Power Lasers[J]. Journal of the Optical Society of America A, Optics, Image Science, and Vision, 2019, 36(11): C95-C103.
- [2] JIANG Shao-en, WANG Feng, DING Yong-kun, et al. Experimental Progress of Inertial Confinement Fusion Based at the ShenGuang-III Laser Facility in China[J]. Nuclear Fusion, 2019, 59(3): 032006.
- [3] 吴德兴. 高精度平面反射镜的制作方法研究[D]. 天津: 天津大学, 2014.
WU De-xing. The Investigation of the Manufacture Method of High Precise Plane Mirror[D]. Tianjin: Tianjin University, 2014.
- [4] LONG Guo-yun, ZHANG Yao-ping, FAN Xin-long, et al. Deposition of High Reflective Films on Deformable Mirror for High Power Laser System[J]. Optical Engineering, 2020, 59: 057103.
- [5] KUMAR S, SHANKAR A, KISHORE N, et al. Laser-Induced Damage Threshold Study on $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ Multilayer Reflective Coatings[J]. Indian Journal of Physics, 2020, 94(1): 105-115.
- [6] MA Ping, ZHENG Yi, ZHANG Ming-xiao, et al. Correlation between Defect Absorption and Nano-Second Laser-Induced Damage of $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ Based High Reflective Coatings at 1064 nm[J]. Thin Solid Films, 2019, 669: 404-409.
- [7] DEPLA D, BRAECKMAN B R. Quantitative Correlation between Intrinsic Stress and Microstructure of Thin Films[J]. Thin Solid Films, 2016, 604: 90-93.
- [8] CEMIN F, ABADIAS G, MINEA T, et al. Benefits of Energetic Ion Bombardment for Tailoring Stress and Microstructural Evolution during Growth of Cu Thin Films[J]. Acta Materialia, 2017, 141: 120-130.
- [9] 胡江川, 蔡红梅, 陈松林, 等. 高反射镀膜层应力耦合研究[J]. 红外与激光工程, 2011, 40(12): 2447-2450.
HU Jiang-chuan, CAI Hong-mei, CHEN Song-lin, et al. Matching the Residual Stress between Thin Films for High Reflective Mirrors[J]. Infrared and Laser Engineering, 2011, 40(12): 2447-2450.
- [10] MCDONALD I G, MOEHLENKAMP W M, AROLA D, et al. Residual Stresses in Cu/Ni Multilayer Thin Films Measured Using the $\text{Sin}^2\psi$ Method[J]. Experimental Mechanics, 2019, 59(1): 111-120.
- [11] JENA S, TOKAS R B, TRIPATHI S, et al. Influence of Oxygen Partial Pressure on Microstructure, Optical Properties, Residual Stress and Laser Induced Damage Threshold of Amorphous HfO_2 Thin Films[J]. Journal of Alloys and Compounds, 2019, 771: 373-381.
- [12] KHAZAAL H F, HBURI I S, FARHAN M S. The Impact of Ion-Beam Parameters on the Characteristics of Nb_2O_5 Thin Films[J]. Surfaces and Interfaces, 2020, 20: 100593.
- [13] SHEN Jie-nan, ZENG Yi-bo, XU Ma-hui, et al. Effects of Annealing Parameters on Residual Stress and Piezoelectric Performance of ZnO Thin Films Studied by X-Ray Diffraction and Atomic Force Microscopy[J]. Journal of Applied Crystallography, 2019, 52(5): 951-959.
- [14] WANG I J, KU C S, LAM T N, et al. Tuning Stress in Cu Thin Films by Developing Highly (111)-Oriented Nanotwinned Structure[J]. Journal of Electronic Materials, 2020, 49(1): 109-115.
- [15] HSIAO S N, CHOU C L, LIU S H, et al. Influence of Pressure on (0 0 1)-Preferred Orientation and In-Plane Residual Stress in Rapidly Annealed FePt Thin Films[J]. Applied Surface Science, 2020, 509: 145304.
- [16] 蒋丽媛, 刘定权, 马冲, 等. 多层红外光学薄膜的热应力分析[J]. 红外, 2018, 39(5): 20-24.
JIANG Li-yuan, LIU Ding-quan, MA Chong, et al. Analysis of Thermal Stress in Multilayer Infrared Optical Thin Film[J]. Infrared, 2018, 39(5): 20-24.
- [17] 李长安, 杨明冬, 全本庆, 等. 多层薄膜沉积的应力仿真分析[J]. 激光与光电子学进展, 2018, 55(4): 410-414.
LI Chang'an, YANG Ming-dong, QUAN Ben-qing, et al. Stress Simulation Analysis of Multilayer Film Deposition[J]. Laser & Optoelectronics Progress, 2018, 55(4): 410-414.
- [18] MILTON O. Materials Science of Thin Films[M]. Second edition. Beijing: National Defense Industry Press, 2013: 436-439.
- [19] 曹建章, 徐平, 李景镇. 薄膜光学与薄膜技术基础[M]. 北京: 科学出版社, 2014: 368-370.
CAO Jian-zhang, XU Ping, LI Jing-zhen. Thin Film Optics and Technology[M]. Beijing: Science Press, 2014: 368-370.
- [20] 张丽莎, 许鸿. 氧分压对 HfO_2 薄膜残余应力的影响及有限元分析[J]. 强激光与粒子束, 2008, 20(6): 894-898.
ZHANG Li-sha, XU Hong. Influence of Oxygen Partial Pressure on HfO_2 Residual Stresses and Its Finite Element Analysis[J]. High Power Laser and Particle Beams, 2008, 20(6): 894-898.
- [21] KAHRAMAN Y. Investigation on Thermal Residual Stress of Borided Steel: Finite Element Simulation[J]. Emerging Materials Research, 2020, 9(4): 1-30.
- [22] 高春雪. 光学薄膜应力的分布与控制研究[D]. 南京: 东南大学, 2015.
GAO Chun-xue. Study of the Distribution and Control of Stress in Optical Thin Films[D]. Nanjing: Southeast University, 2015.
- [23] GHASEMI NEJHAD M N, PAN Chi-ling, FENG Hong-wei. Intrinsic Strain Modeling and Residual Stress Analysis for Thin-Film Processing of Layered Structures[J]. Journal of Electronic Packaging, 2003, 125(1): 4-17.

(下转第 334 页)