

# 单层 $\text{SiO}_2$ 物理膜与化学膜激光 损伤机理的对比研究\*

陈习权<sup>1,2)</sup> 祖小涛<sup>1)</sup> 郑万国<sup>2)</sup> 蒋晓东<sup>2)</sup>  
吕海兵<sup>2)</sup> 任 寰<sup>2)</sup> 张艳珍<sup>2)</sup> 刘春明<sup>1)</sup>

1) 电子科技大学应用物理系 成都 610054)

2) 中物院激光聚变研究中心 绵阳 621900)

(2005 年 7 月 10 日收到, 2005 年 7 月 25 日收到修改稿)

采用离子束溅射沉积技术和溶胶-凝胶技术在 K9 基片上镀制了厚度相近的  $\text{SiO}_2$  单层介质膜, 用表面热透镜技术对两类膜层分别进行了热吸收及实时动态热畸变实验测试, 结合散射光阈值测试及实验前后膜层的显微观测, 对相同基底、相同膜层材料而采用不同方法镀制的光学膜层, 发现化学膜的强激光损伤阈值远高于相应物理膜, 从热力学响应及膜层特性差异的角度揭示了化学膜层的强激光损伤阈值远高于相应物理膜层的微观机理, 即物理膜具有高吸收下的致密膜层快传导的基底热冲击效应, 而化学膜则有低吸收下的疏松空隙填充慢传导的延缓效应, 大量的实验数据及现象都证实了这一结论.

关键词: 强激光辐照损伤, 损伤形貌, 热冲击, 热吸收

PACC: 4262A, 4255R, 6170

## 1. 引 言

高功率激光系统中各器件的光学薄膜是抗激光损伤的一个薄弱环节, 也是影响激光装置运行通量提高的主要因素. 实践中人们发现, 传统的物理方法较难镀制全面满足惯性约束核聚变(ICF)工程所需的大口径光学元件膜层, 原因主要是表面缺陷多, 抗激光损伤阈值不高, 而溶胶-凝胶化学镀膜法所镀制的膜层, 内应力小, 镀制口径大, 最主要的是抗激光损伤阈值远高于相应的物理膜<sup>[1]</sup>, 相应的内在损伤机理研究一直是人们努力的重点.

本文采用离子束溅射沉积技术和溶胶-凝胶技术在 K9 玻璃基片上镀制了光学厚度相近的  $\text{SiO}_2$  单层介质膜, 用表面热透镜技术对两膜层进行了热吸收及实时动态热畸变实验测试, 结合散射光阈值测试及实验前后膜层的显微观测情况, 对相同基底、相同膜层材料采用不同方法镀制的光学膜层, 从热力

学响应及膜层特性差异的角度探讨了化学膜层损伤阈值远高于相应的物理膜层的微观机理.

## 2. 实 验

### 2.1. 样品的制备

实验中测试的  $\text{SiO}_2$  物理膜样品采用传统的离子束溅射沉积技术镀制, 由中物院一所提供, 而  $\text{SiO}_2$  化学膜样品由八所本课题组采用溶胶-凝胶法自行制备, 基片为相同 K9 玻璃.

其中  $\text{SiO}_2$  化学膜样品的制备过程如下: 以分析纯聚乙烯吡咯烷酮为添加剂, 氨水为催化剂, 在室温下将经二次蒸馏的分析纯正硅酸乙酯、二次蒸馏水、无水乙醇按照摩尔比为  $\text{TEOS}:\text{H}_2\text{O}:\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}=1:2:38$  混合, 搅拌一定时间后, 将溶液密封, 室温下静置 15—20 天后, 得到二氧化硅溶胶. 取定量二氧化硅溶胶, 用同等重量的 2-丁醇稀释, 采用提拉镀膜方法在空白

\* 国家自然科学基金重点项目(批准号 2013304), 中物院预研基金(批准号 421020607), 教育部博士点基金和教育部新世纪优秀人才计划资助的课题.

† E-mail: xtzui@uestc.edu.cn

K9 基片上制备单层 SiO<sub>2</sub> 薄膜.

2.2. 弱吸收及膜层动态热力学响应实验测试

光热技术对弱吸收测量具有极高灵敏度和空间分辨率,特别是表面热透镜技术,它对传统光热偏转法作进一步的改进,具有诸多的优越性以及巨大的应用潜力,最终将取代偏转法,朝实用化、仪器化方向发展<sup>[2,3]</sup>.

实验装置原理如图 1 所示,首先采用固定功率下线扫描的测试方式对两类膜层的微弱吸收情况进行实验测试,进而为了解由预损伤到损伤过程中膜层的动态热力学响应,采用递增功率下单点测试方式,分别测量了两类膜层上某点在递增变化的抽运激光功率下其表面的热畸变变化情况,两种测试方式的详细测试参数设置如表 1 所示.

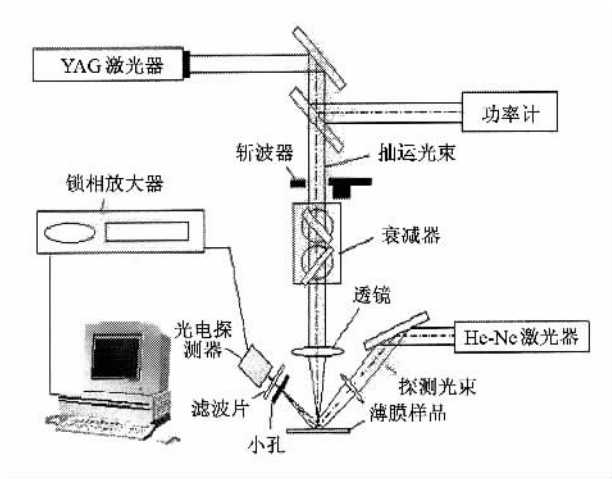


图 1 表面热透镜测量的实验装置

表 1 膜层吸收的线扫描测量与单点测试参数比较

|       | 线扫描测试/mW | 单点测试/mW |
|-------|----------|---------|
| 功率值 1 | 400      | 400     |
| 功率值 2 | 400      | 800     |
| 功率值 3 | 400      | 1200    |
| 功率值 4 | 400      | 1600    |
| 功率值 5 | 400      | 2000    |
| 测试点数  | 5        | 1       |

2.3. 膜层的强激光损伤阈值实验测试

为了研究膜层的损伤阈值对比情况,采用散射光阈值测试系统对两类膜层进行了测量.实验装置如图 2 所示.实验中使用 Nd:YAG 单纵模调 Q 激光器,输出激光波长为 1.064μm 的近高斯光束,脉宽约 3ns,运行频率为 1Hz,输出单脉冲最大能量 500mJ,光斑直径约 6mm.

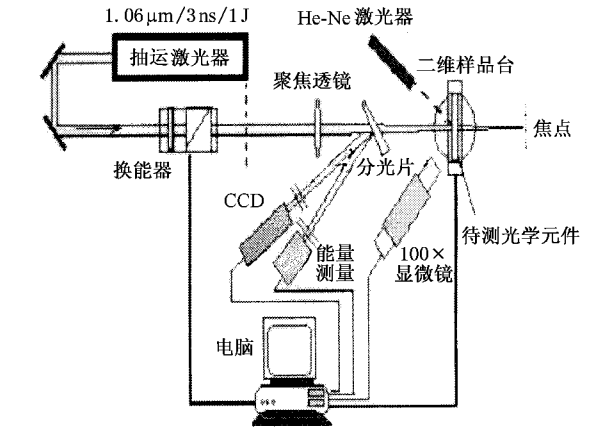


图 2 散射光阈值测试系统装置图

表 2 膜层的损伤阈值测试及其计算

|                            | 实验仪器                                       | 测量参数 |
|----------------------------|--------------------------------------------|------|
| 激光能量/mJ                    | EPM2000                                    | X    |
| 光斑面积/mm <sup>2</sup>       | CCD                                        | Y    |
| 损伤阈值 Z(J/cm <sup>2</sup> ) | $Z = (X \times 10^{-3})(Y \times 10^{-2})$ |      |

本测试系统采用 EPM2000 型能量卡计加 J25 能量探头测量并记录激光脉冲能量,它具有实时测量和自动存储能力;用快光电系统(TDS644A 数字示波器+快光电管(响应时间为 250ps))测光束脉宽;用科学级 CCD 测量并记录靶面处光束的空间分布,并测量光斑的有效面积.系统采用焦距为 1500mm 的透镜将激光聚焦,可以灵活选择对测试元件损伤阈值的光斑口径.待测元件置于可精密程控、分辨率为 10μm 的二维移动平台上,损伤阈值的计算公式见表 2.膜层损伤前后的表面形貌由 NIKON E600W 型 NOMASKI 显微镜观察和记录.

3. 结果与讨论

图 3 和表 3 是采用表面热透镜技术线扫描测量的热吸收系数.

表 3 膜层吸收系数的线扫描测试结果

|           | sol-gel 膜(400mW) | IBSD 膜(400mW) |
|-----------|------------------|---------------|
| 扫描点 1/ppm | 58.4             | 63.3          |
| 扫描点 2/ppm | 38.9             | 56.8          |
| 扫描点 3/ppm | 50.7             | 72.9          |
| 扫描点 4/ppm | 30.2             | 91.9          |
| 扫描点 5/ppm | 44.5             | 66.1          |
| 平均值/ppm   | 44.5             | 70.2          |

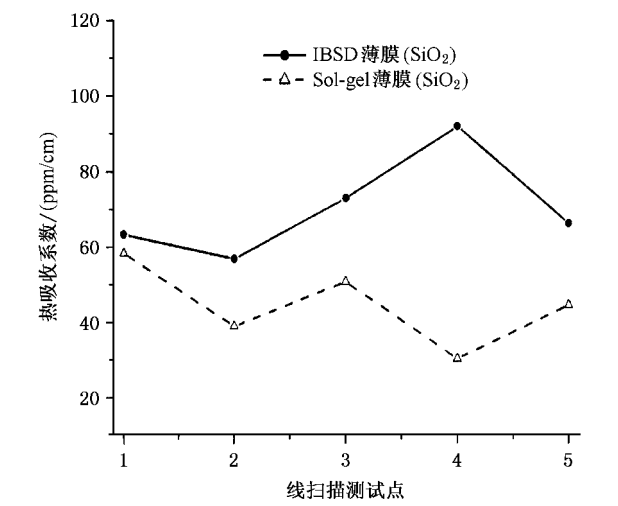


图3 膜层的线扫描测量

从中可以看出,相同基底上的 SiO<sub>2</sub> 物理膜的热吸收系数大于化学膜.递增功率下两膜层的热力学响应情况如图 4 所示,其中在较小抽运激光功率阶段,相对光热信号拟合直线的斜率情况表明了两膜层热吸收系数大小<sup>[4]</sup>,斜率越大则膜层的吸收系数越大,于是 SiO<sub>2</sub> 物理膜的吸收系数大于化学膜的吸收系数,这与图 3 和表 3 中的测试结果是完全一致的.

表 4 两类膜层的损伤阈值测试结果

|                           | sol-gel 膜(SiO <sub>2</sub> ) | IBSD 膜(SiO <sub>2</sub> ) |
|---------------------------|------------------------------|---------------------------|
| 平均值/( J/cm <sup>2</sup> ) | 41.61                        | 21.88                     |
| 最小值/( J/cm <sup>2</sup> ) | 33.98                        | 17.67                     |
| 抽运激光参数                    | 1.064μm, 3ns, 1Hz            |                           |

同时,由文献[2]可知,在较大的辐照激光功率下,光热信号与吸收系数间不再是线性关系,但是光热信号变化情况仍然反映了膜层表面的热包高度变化情况,所以可利用图 4 中的相对光热信号的变化

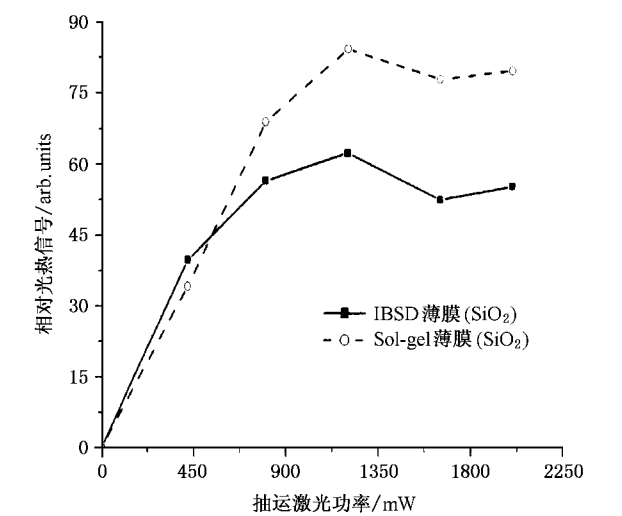


图4 递增抽运激光功率下膜层的单点测试

情况来研究膜层表面热畸变发展情况,我们将在后面进行重点分析.

由膜层的弱吸收测量和表 4 中损伤阈值的测试结果可知,当激光辐照时,较多的热吸收所形成的热沉是造成物理膜损伤阈值偏低的首要原因.为了弄清两类膜层在弱吸收情况下的热力学响应及其对损伤阈值的内在影响,结合高功率激光辐照下膜层光热畸变的微观作用模型<sup>[5-7]</sup>,分别从膜层的微观特征、损伤形貌和缺陷情况等几个主要方面,对两类膜层进行了对比研究.

如图 5 所示,光学膜层的厚度一般为 nm—μm 量级,而基底一般为 mm 量级,考虑到激光辐照下膜层的光热畸变效应,可将基底上具有一定微弹性形变特性的光学膜层形象地比喻成粘在桌子上的气球,二者界面是固定的,如图 5(a).

由于光学膜层的热吸收长度远大于基底,所以在激光辐照过程中吸收了绝对多数的热量,在膜层形成大量热沉,这种热沉通过传导和扩散会迅速导

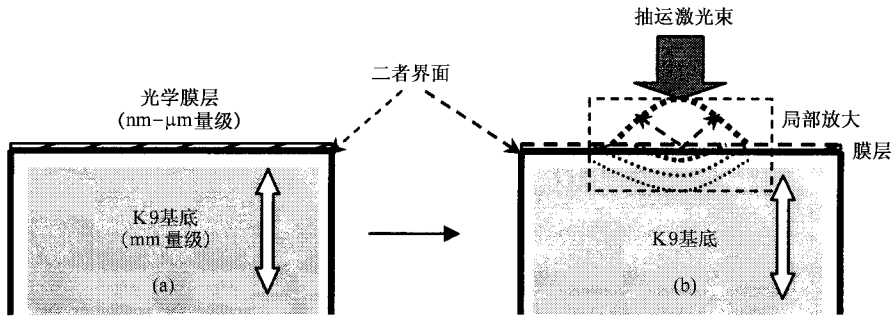


图5 高功率激光作用下膜层光热畸变的微观作用模型

致膜层的升温<sup>[8]</sup>.正是这种急剧的温升在膜层与基底界面处形成巨大的放射状热冲量,以热应力和反射弹性波的方式分别对膜层和基底形成瞬时冲击,如图 5(b)所示,可以形象地将这个过程比喻为往气球里充气,即界面处形成的巨大向上热冲量会使很

薄的膜层发生微弹性扩张,从而在膜层表面形成光热畸变.如果这种畸变程度超越了膜层的微弹性形变范围,膜层就会产生破坏.

采用原子力显微镜观测到的两类膜层的微观特征如图 6 所示.

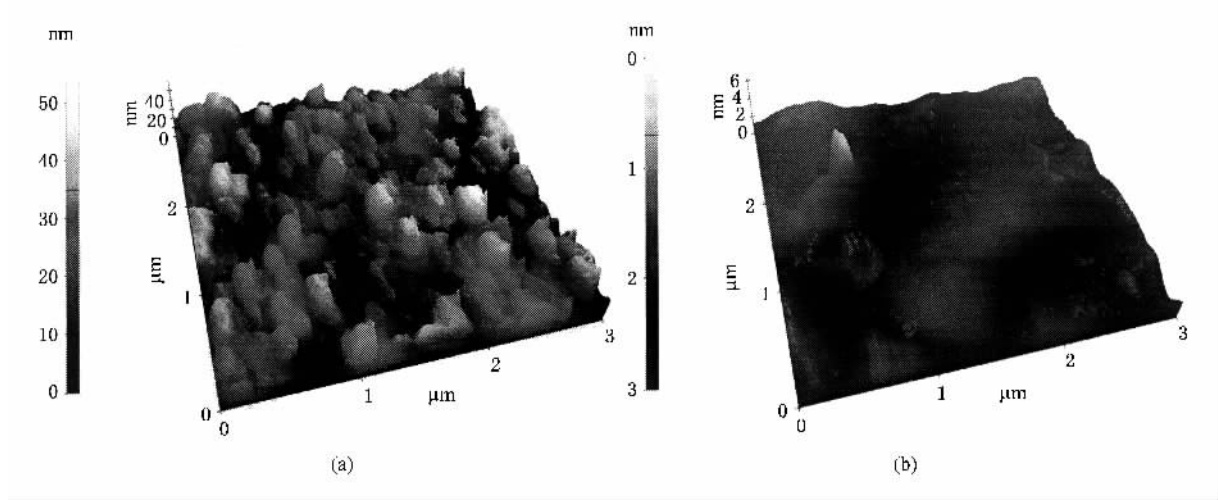


图 6 原子力显微镜观测到的 SiO<sub>2</sub> 膜层的微观特征 (a)化学膜 (b)物理膜

显而易见,化学膜层是疏松多孔的,其表面呈现出较大的微观起伏,而物理膜则是均匀致密的,表面微观起伏不大,结构紧凑.由上面的微观作用模型,可以推断当激光辐照时,物理膜的热吸收相对较多且微观结构均匀致密,所以热传导和扩散很快就可到达基底界面,形成强烈的反射热冲击效应,而化学膜热吸收要小得多,且疏松多孔,因此形成的少量热沉积可逐渐转化为材料体积扩张,填补颗粒间空隙,形成一种延缓效应,而不会立即造成对基底材料的热冲击<sup>[1,9]</sup>.同时,我们注意到物理膜就像微弹性形变能力较小且本身就绷得很紧的气球皮,而化学膜则刚好与之相反,不难推断即使在相同的热应力冲

击下,物理膜会首先损坏.图 4 的光热信号变化情况也很好地说明了这一点:在 0—450mW 的时候,物理膜表面热畸变比化学膜要大,也就是说物理膜很快就受到了强烈地热冲击,而化学膜要在小吸收情况下持续到较高抽运激光功率(> 600mW,见图 4)才会发生一定的热冲击响应,直到造成对膜层的激光损伤.

图 7 是采用 Normaski 显微镜观测到的膜层的损伤形貌情况,图 7(c)是物理膜放大 1 倍的情况.两类膜层的损伤情况也存在很大的差别:物理膜的明显损伤面积很大,损伤主要是蜂窝状孔洞及炸裂状态,说明膜层吸收热量经传导扩散以后,膜料很可能

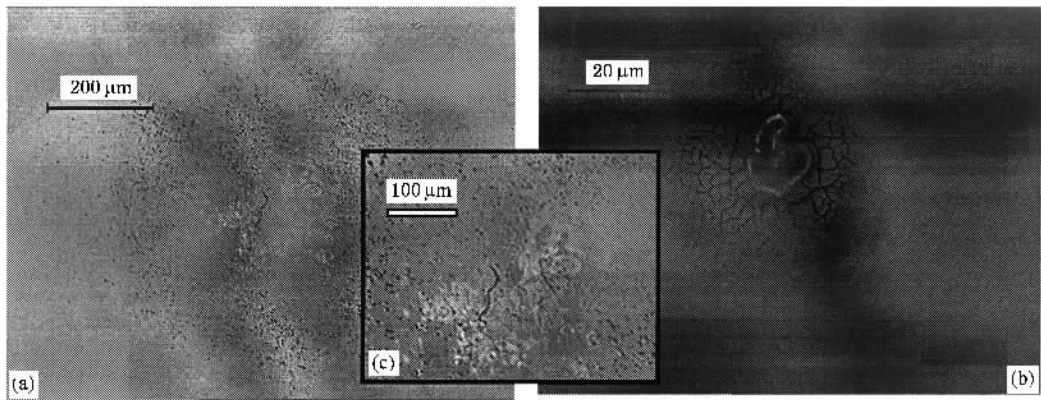


图 7 Normaski 显微镜观测到的损伤形貌 (a)物理膜 (b)化学膜 (c)物理膜放大一倍的情况

受到了基底的强烈热冲击,从而汽化和脱落,而化学膜的明显损伤面积远小于物理膜,这也有力地说明化学膜将吸收的较少的热量有效地用于被加热颗粒向周围空隙扩张,从而避免了迅速的径向热传导与热扩散,使损伤斑控制在较小范围内,同时统计情况

显示其损伤主要是熔融和少量的炸裂状态,这表明化学膜受基底材料的热冲击较小<sup>[10]</sup>。

同时,我们也对实验前两类膜层进行了显微观测,如图 8 所示。

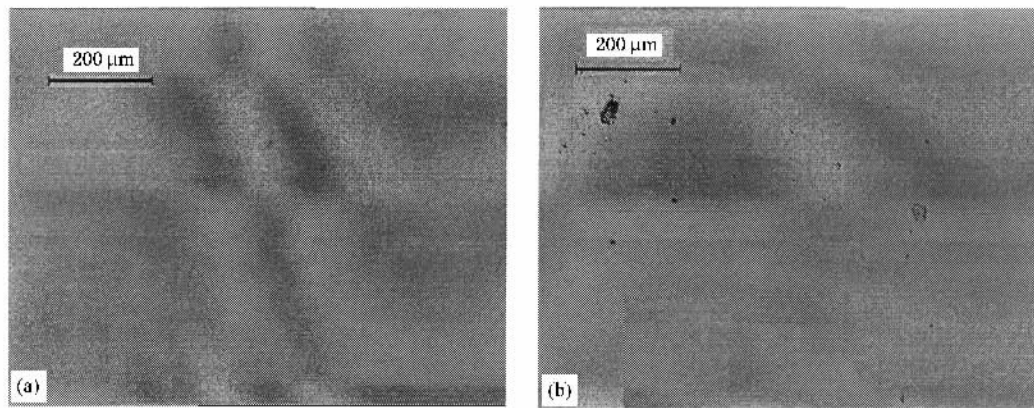


图 8 实验前两类膜层的显微观测 (a)化学膜 (b)物理膜

图 8 结果表明物理膜的杂质和缺陷情况较多,而化学膜则比较纯净杂质较少,大量的杂质和缺陷会吸收较多的热量,从而在强激光辐照下首先成为损伤的突破点<sup>[11—17]</sup>。

综合上面几方面的因素,较好地解释了相同基底、相同膜层材料而采用不同方法镀制的 SiO<sub>2</sub> 光学膜层的巨大损伤差异的内在机理和原因。

物理膜与化学膜的强激光损伤阈值差异的原因,从已知的方面看,原理上的比工艺上的要多一些,因为基本上都是膜层本身的特性参数所限定的,如吸收系数、膜层微观特征等等。但是,从工程上来说,我们可以想办法通过一定改进来降低工艺上的不利影响<sup>[18—20]</sup>,如减少膜层缺陷,减小吸收系数,提高其质量等等,以提高物理膜的损伤阈值。

## 4. 结 论

通过表面热透镜技术测试、散射光阈值测试及实验前后膜层的显微观测,发现相同基底上物理膜的热吸收远高于化学膜。物理膜具有高吸收下的致密膜层快传导的热冲击效应,受基底材料的影响比较明显,损伤阈值为 21.88 J/cm<sup>2</sup>,而化学膜则有低吸收下的疏松空隙填充的慢传导的延缓效应,受基底材料的影响要小,损伤阈值为 41.61 J/cm<sup>2</sup>。微观分析表明,化学膜是疏松多孔的,其表面呈现出较大的微观起伏,而物理膜则是均匀致密的,表面微观起伏不大,结构紧凑,这是造成化学膜热吸收低,激光损伤阈值高的原因。

[1] Yang F, Shen J, Wu G M *et al* 2003 *High Power Laser and Particle Beams* **15** 439 [in Chinese] 扬帆、沈军、吴广明等 2003 强激光与粒子束 **15** 439 ]

[2] Wu Z L, Kuo P K, Lu Y S *et al* 1996 *Proc of SPIE* **2714** 294

[3] Marcano A, Loper C, Melikechi N 2001 *Appl. Phys. Lett.* **78** 3415

[4] Robert R, John R, Taylor Z L *et al* 1997 *Proc of SPIE* **2966** 354

[5] Shen J, Baesso M L, Snook R D 1994 *J Appl. Phys.* **75** 3738

[6] Zhang D M, Zheng K Y, Zhong Z C *et al* 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 2237 [in Chinese] [张端明、郑克玉、钟志成等 2004 物理学报 **53** 2237 ]

[7] Tao Y M, Jiang Q, Cao H X *et al* 2004 *Acta Phys. Sin.* **54** 274 [in Chinese] [陶永梅、蒋青、曹海霞等 2004 物理学报 **54** 274 ]

[8] Gong H, Li C F, Wang M L 1996 *Chinese Journal of Lasers* **23** 245 [in Chinese] [龚辉、李成富、王明利 1996 中国激光 **23** 245 ]

[9] Ji Z G, Zhao S C, Xiang Y *et al* 2004 *Chin. Phys.* **13** 561

[10] Zhao Y N, Gao W D, Shao J D *et al* 2004 *Applied Surface Science* **227** 275

[11] Xu Z, Liang H Y, Wang X X *et al* 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 3637 [in Chinese] [徐洲、梁海弋、王秀喜等 2004 物理学报 **53** 3637 ]

- [ 12 ] Hopper R W , Uhlmann D R 1970 *J. Appl. Phys.* **41** 4023
- [ 13 ] Tran D V , Lam Y C , Murukeshan V M *et al* 2003 *IcoPE* **981** 8484
- [ 14 ] Xiang X , Zu X T , Zhu S *et al* 2004 *Appl. Phys. Lett.* **84** 52
- [ 15 ] Zhang D P , Qi H J , Shao J D *et al* 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 1385  
( in Chinese ) 张东平、齐红基、邵建达 等 2005 物理学报 **54** 1385 ]
- [ 16 ] Comeau D , Hache A , Melikechi N 2003 *Appl. Phys. Lett.* **83** 246
- [ 17 ] Wang Z G , Zu X T , Liu L J *et al* 2003 *Nucl. Instrum. Meth. B* **211** 239
- [ 18 ] Chen X B , He C J , Chen L *et al* 2001 *Acta Phys. Sin.* **50** 1371 ( in Chinese ) [ 陈晓波、何琛娟、陈 鸾 等 2001 物理学报 **50** 1371 ]
- [ 19 ] Wang J , Yuan C W , Huang Z B *et al* 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 3054 ( in Chinese ) [ 汪 静、袁春伟、黄忠兵 等 2004 物理学报 **53** 3054 ]
- [ 20 ] Diao J J , Chen G D , Qiu F S *et al* 2004 *Chin. Phys.* **13** 1927

## Experimental research of laser-induced damage mechanism of the sol-gel SiO<sub>2</sub> and ibsd SiO<sub>2</sub> thin films<sup>\*</sup>

Chen Xi-Quan<sup>1)†</sup> Zu Xiao-Tao<sup>1)†</sup> Zheng Wan-Guo<sup>2)</sup> Jiang Xiao-Dong<sup>2)</sup>  
Lü Hai-Bing<sup>2)</sup> Ren Huan<sup>2)</sup> Zhang Yan-Zhen<sup>2)</sup> Liu Chun-Ming<sup>1)</sup>

1) ( Department of Applied Physics , University of Electronic Science and Technology of China , Chengdu 610054 , China )

2) ( Laser Fusion Research Center , China Academy of Engineering Physics , Mianyang 621900 , China )

( Received 10 July 2005 ; revised manuscript received 25 July 2005 )

### Abstract

This paper investigates the high-power laser-induced damage of two types of single-layer SiO<sub>2</sub> thin films on K9 substrate , which are respectively deposited by IBSD technique and sol-gel technique , and have the same substrate parameters and the same film thickness . They were tested by surface thermal lensing technique to obtain the thermal absorbance and the dynamic response . The results show that the laser-initiated damage threshold of Sol-Gel SiO<sub>2</sub> thin film is far higher than that of IBSD SiO<sub>2</sub> thin film . And combined with threshold measurement and the microscopic observation , this paper well explains in detail the threshold difference between Sol-Gel SiO<sub>2</sub> and IBSD SiO<sub>2</sub> thin films .

**Keywords :** high-power laser radiation damage , damage morphologies , thermal shock , thermal absorbance

**PACC :** 4262A , 4255R , 6170

<sup>\*</sup> Project supported by the National Natural Science Foundation of China ( Grant No. 2013304 ) , and the National Defence Preliminary Research Foundation of China Academy of Engineering Physics ( Grant No. 421020607 ) , by SRFDP and by NCET .

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail : xtzu@uestc.edu.cn