

光学薄膜界面吸收对温度场的影响

赵 强 范正修

(中国科学院上海光学精密机械研究所, 上海 201800)

摘 要 考虑光学薄膜中界面吸收的影响, 提出了模拟界面吸收层模型, 并对各种膜系的温度场进行了分析计算。文中对样品激光损伤的光热偏转实时观察结果支持了这一模型

关键词 薄膜界面吸收, 温度场, 激光损伤.

1 引 言

薄膜的吸收是影响光学薄膜激光损伤阈值的重要因素。在理想化的分析计算中, 一般考虑的是膜体材料和基板的吸收, 而对于界面吸收(包括空气/膜系界面, 膜层之间的界面, 膜系/基板界面)则往往忽略。但实际上, 界面吸收是不能忽略的, 它的存在严重地影响着薄膜的抗激光强度。实验现象及数据显示, 对于多层膜系统, 吸收发生在膜系与基板的界面或其它各界面处, 薄膜界面处的吸收等于或大于膜体的吸收^[1~4]。本文提出模拟界面吸收层的模型, 对考虑界面吸收后的薄膜温度场进行了计算分析, 并讨论其对薄膜损伤阈值的作用。实验结果有力地支持了这个模型。

2 理论模型

从光与物质的相互作用观点来看, 包括透明介质材料在内的任何物质均存在吸收: 包括一般理想化意义上的本征吸收或晶格振动吸收; 从实际材料的角度来看, 杂质、空隙填充物或晶格缺陷等更加剧了材料的吸收。

在薄膜形式的材料中, 界面处的情况较为复杂, 其微观结构可见图 1(a)所示的膜系与基板之间的界面。

它与理想界面有很大差别。首先, 基板表面是粗糙不平的, 存在着众多微观的凹凸; 其次, 基板在镀膜前(无论是在真空室中还是在真空室外)以及镀膜过程中吸附潮气和杂质, 同时由于薄膜高速生长的不平衡性以及界面附近材料的相互渗透也给这一区域带来极高的晶格缺陷密度。对于膜层之间的界面, 由于制备过程中的交替蒸发, 使得界面处的杂质浓度高于膜体中的杂质浓度。在薄膜样品的储藏、使用过程中, 膜系与空气界面大量吸附大气中杂质与水分, 水分向膜层纵深渗透, 并充满各个界面处的微观空隙。图 2 示出对 Si 基片上的 SiO₂ 单层膜进行俄歇(Auger)深度分析的结果^[5]。由图可见, 杂质(主要是碳)在薄膜表面浓度最

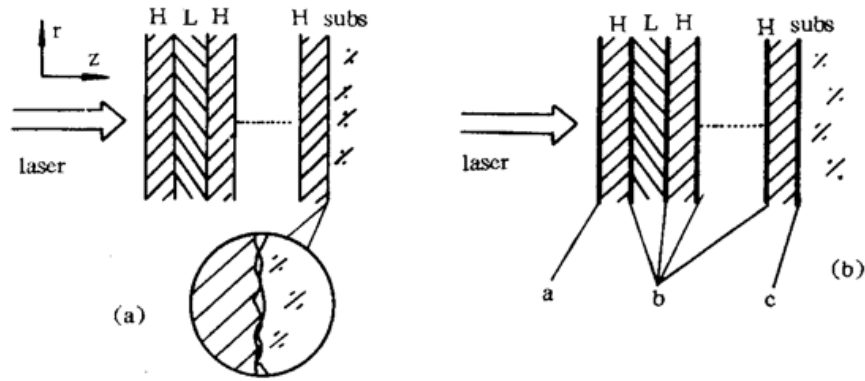
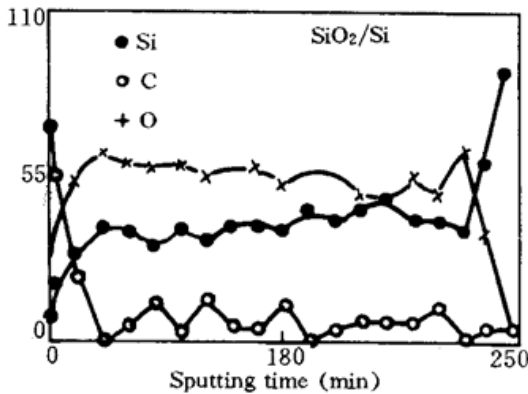


Fig. 1 Structural of multilayers

高,并向膜层纵深渗透。以上的各种因素使得界面处的吸收远远高于邻近的介质膜层的吸收。运用横向光热偏转法测量 $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ 多层膜对氦氛激光的吸收^[4],测出膜系总吸收为 $(6.9 \pm 0.6) \times 10^{-4}$,其中膜层体吸收为 $(1.7 \pm 0.3) \times 10^{-4}$,总的界面吸收为 $(5.2 \pm 0.5) \times 10^{-4}$ 。由于薄膜界面限制在厚度为几个纳米的极薄范围内,所以界面吸收系数远远大于薄膜体。

为了分析界面吸收对薄膜抗激光强度的影响,将膜系界面处的复杂的吸收状况理想化为一层均匀的超薄强吸收层,这个模拟吸收层与邻近的膜层之间有着理想的界面,见图 1(b)。在这个模型的基础上计算含界面吸收的薄膜温度场。

模型中的关键问题是如何确定模拟吸收层的厚度、光学参数及热学参数。由于引进模拟吸收层后不能影响膜系的基本光学性能,就必须要求其厚度极小。结合实验与计算认为薄膜表面的杂质吸附层的厚度在 4 nm 左右^[5]。这同样适合于对模拟吸收层的

Fig. 2 Auger analysis of SiO_2/Si single layer

的厚度假定。由于界面处材料之间的相互渗透,可认为模拟吸收层的折射率为相邻膜层材料的平均值。在测量 $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ 多层膜的吸收时^[4],同时测量出高折射率层的吸收系数 a_H 为 $(18 \pm 3.6) \text{ cm}^{-1}$,低折射率层的吸收系数 a_L 为 $(1.3 \pm 0.2) \text{ cm}^{-1}$,高低折射率层界面吸收为 $(4.7 \pm 0.5) \times 10^{-4}$ 。这里假设界面层厚 5 nm,则可计算出界面层的吸收系数为 $(940.2 \pm 100) \text{ cm}^{-1}$ 。显然,界面区域的吸收系数高于膜体近 2 个数量级。模拟界面层的消光系数可由公式 $K = \lambda a / (4\pi n)$ 导出这里 a, n 分别为吸收系数和折射率。从前面的分析可认为空气界面及膜系与基板界面的吸收略大于膜层之间界面的吸收。

界面区域由于有着极高的晶格缺陷、杂质、空隙密度和复杂的微观晶体构造,声子的散射概率大大增加,从而其平均自由程大大减小。介质导热系数可由下式表达:

$$k = \frac{1}{3} C v l \quad (1)$$

式中, C 表示格波对单位体积比热的贡献; v 表示声子的速率; l 为平均自由程。可见,随着平均自由程的减小,导热系数也同样地减小。对这一界面区域,其导热系数比薄膜体材料低 1~2 个数量级^[6]。由于不同材料间的热容差异较小,可认为模拟吸收层的热容与膜体材料基本相同。

3 温度场计算与分析

薄膜中的温度场可由以下热传导方程及边界条件通过数值计算求得:^[7]

$$C_i \frac{\partial T(r, z, t)}{\partial t} - K_i \nabla^2 T(r, z, t) = g_i(r, z, t), \quad \frac{\partial T(r, z = 0, t)}{\partial z} = \gamma(r, z = 0, t)$$

$$T(r, z = \infty, t) = T(r = \infty, z, t) = 0, \quad T(r, z, t = 0) = 0$$

式中, C_i 与 K_i 分别为第 i 层薄膜的比热与导热系数; γ 为膜层表面与空气进行热交换的表面热流系数, 对激光损伤计算而言, 其值一般取为 10^5 cm^{-1} ; $g_i(r, z, t)$ 定义为第 i 层膜内的单位体积的能量吸收率; $T(r, z, t)$ 定义为 t 时刻相对于环境的温升。

计算中假设薄膜的热物性参数不随温度而改变; 界面处温度连续变化。计算中使用的激光参数见表 1。

Table 1 Laser parameters

wavelength	laser mode	pulse width(FWHM)	peak power	spot diameter (1/e)
1.06 nm	TEM ₀₀	50 ns	100 kW	600 μm

对于模拟界面吸收层, 设膜系空气界面为 a , 膜层之间的界面为 b , 膜系与基板的界面为 c , 如图 1(b)所示。下面分别介绍对部分反射膜、高反膜及增透膜进行单脉冲激光损伤时的温度场计算。

3.1 部分反射膜

膜系结构为 $n_0/HL/G$ ($\lambda_0 = 1060 \text{ nm}$), 其参数见表 2^[5,6]。

Table 2. Optical and thermal properties

layer	refractive index N	extinctive coefficient K	specific heat C ($\text{J}/\text{cm}^2 \cdot ^\circ\text{C}$)	heat conductivity k ($\text{W}/\text{cm} \cdot ^\circ\text{C}$)	thickness d (nm)
H(TiO ₂)	2.21	5×10^{-4}	3	1.8×10^{-4}	120
L(SiO ₂)	1.44	2×10^{-4}	2	1.7×10^{-3}	184
a (air/layer)	2.5	8×10^{-2}	1.5	1×10^{-5}	6
b (layer/layer)	1.83	1×10^{-2}	1.8	0.5×10^{-5}	4
c (layer/subs)	1.48	4×10^{-2}	2	1.5×10^{-5}	6
G (glass)	1.52	0	2	0.014	∞

其温度曲线见图 3(a)。相对于未考虑界面吸收的温度曲线, 温度峰值明显移向空气界面, 温升剧增。而膜层界面、膜系与基板界面虽也引起较大温升, 但相比较而言影响较小。一方面这是由于空气界面吸附较多杂质, 吸收较大; 另一方面, 空气界面远离传热较好的“热沉”-基板, 其邻近薄膜导热较差, 而通过空气所进行的热交换(包括热辐射与热对流)相比于热传导是很小的, 故而在空气界面较易积累起很高的热量。

可见, 表面杂质吸附层使部分反射膜的表面成为整个膜系中最薄弱的部分。鉴于目前损伤判别依据主要是观察薄膜表面的损伤形貌, 表面吸附杂质层的烧熔或汽化就有可能被认为是整个样品破坏的标志, 从而使测量值远低于其实际的损伤阈值。

3.2 高反膜

膜系结构为 $n_0/9(HL)H/G$ ($\lambda_0 = 1060 \text{ nm}$), 其参数见表 2。从图 4 中温度曲线与电场曲线看, 温度分布基本遵循膜内驻波电场分布。由于空气界面处的场强已大幅降低, 空气界面吸

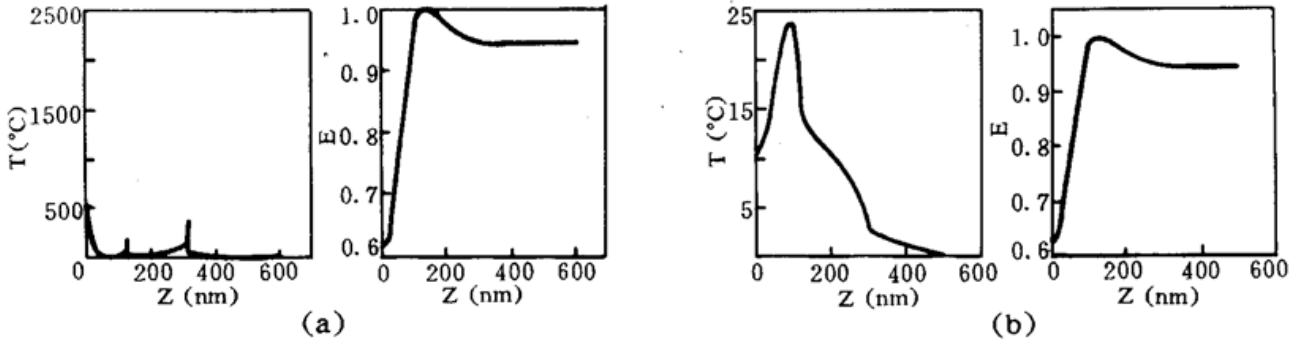


Fig. 3 Temperature and electricity distribution in partial reflectance multilayers (a) with interface absorption layers; (b) without interface absorption layers

收对膜系温度场的影响已受到抑制。同理，膜系与基板的界面也是影响甚微。而高、低折射率膜层界面由于处于驻波场的峰值处，其温升剧增，形成一个尖峰。高温使界面产生变异，引起非线性吸收增加，并进而产生更高的温升。如此雪崩式的过程使膜系中各个高、低折射率膜层界面成为最易受强激光冲击的部分。在损伤实验中可观察到由外至内逐个膜对界面破坏的现象。

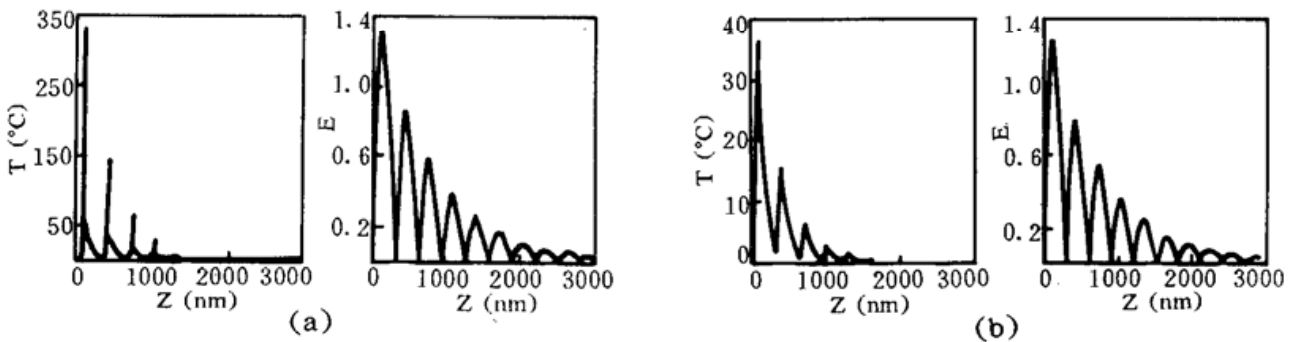


Fig. 4 Temperature and electricity distribution in high reflectance multilayers. (a) with interface absorption layers; (b) without interface absorption layers

3.3 增透膜

选用对 $1.06 \mu\text{m}$ 的倍频增透膜，膜系结构为 $n_0/\text{LMH}/G(\lambda_0=705 \text{ nm})$ ，其参数见表 2。由于最表层的 SiO_2 膜材料致密，吸附杂质渗透深度降低，从而空气界面模拟吸收层的厚度减小。

温度响应曲线及电场曲线见图 5。考虑界面吸收后，其空气界面处温升剧增。相对比较而言，膜层界面及膜系与基板界面的影响稍小。其原因在前面已分析。但同时可以观察到，膜系与基板界面对温度场已起了重要的作用。因为一方面，膜系与基板界面有着较大的吸收系数；更重要的是，由于增透膜内的电场分布特性，与部分反射膜、高反膜相比，基板界面处的场强已大大增加，从而使得这一区域的吸收较大。

与膜系与基板界面相比，空气界面处的吸收较易得到控制，作者通过改善其储藏、使用条件或以适当功率的激光对样品表面进行预处理来减弱、消除表面杂质吸附，从而有效地降低表面吸收。图 5(a)温度曲线中虚线示出了表面吸收得到抑制后的温度场分布，表面温度已显著降低，温度峰值出现在膜系与基板界面处。所以，对于增透膜系来说，除去样品表面易受损伤外，膜系与基板界面破坏的可能性也是较大的。对于基板，可以进行一些镀膜前的处

理工作，包括清洗、烘烤或激光预处理等。

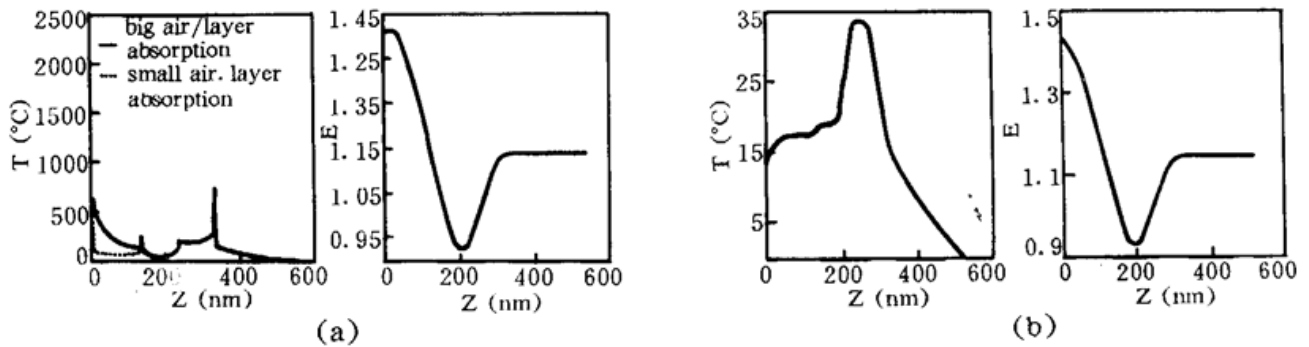


Fig. 5 Temperature and electricity distribution in high reflectance multilayers. (a) with interface absorption layers; (b) without interface absorption layers

Table 3. Optical and thermal properties

layer	refractive index N	extinctive coefficient K	specific heat C ($J/cm^2 \cdot ^\circ C$)	heat conductivity k ($W/cm \cdot ^\circ C$)	thickness d (nm)
L(SiO_2)	1.44	2×10^{-4}	2	1.7×10^{-3}	122
M(Y_2O_3)	1.66	4×10^{-4}	2.5	5.4×10^{-4}	106
H(ZrO_2)	1.93	8×10^{-4}	2.6	3×10^{-3}	90
a (air/L)	1.5	8×10^{-2}	1.4	2×10^{-5}	4
b (L/M)	1.55	2×10^{-2}	1.5	1.5×10^{-5}	4
b' (M/H)	1.80	2×10^{-2}	1.5	2×10^{-5}	4
c (M/subs)	1.73	7×10^{-2}	1.2	2.5×10^{-5}	6
G (glass)	1.52	0	2	0.014	∞

以上计算中发现模拟界面吸收层的厚度、光热参数对温度场有着直接的影响，文献[5]对此已有详细的论述，这里不再赘述。

4 实 验

以光热偏转技术实时观察样品的损伤过程，实验装置如图 6 所示。泵浦光为功率连续可调的 Nd : YAG 激光，脉宽为 50 ps，脉冲重复频率为 75 kHz，最大峰值功率为 2000 kW，聚焦光斑直径为 300 μm 。样品的膜系结构为 $n_0/9(HL)HB/G(\lambda_0=1060\text{ nm})$ ，H- ZrO_2 ，L- SiO_2 ，B-Si 膜，G-玻璃。

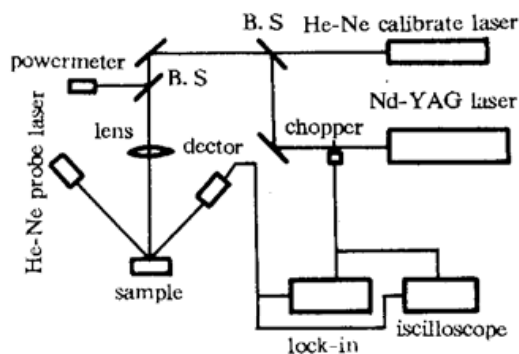


Fig. 6 Experimental layout for 1.06 μm laser damage measurement

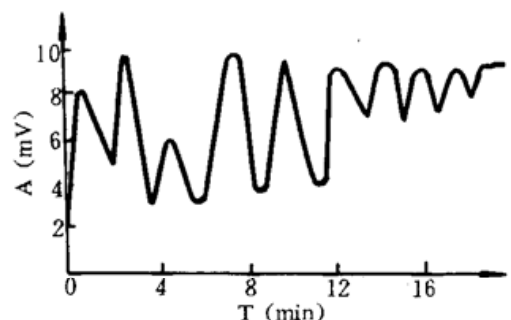


Fig. 7 Signal of photothermal displacement for protected infrared window

得到损伤偏转信号的实时曲线,如图 2 所示。图中信号的突变对应于不可逆破坏的出现。随着激光辐照时间的延续,接连出现了九个尖峰。这表示高、低折射率膜对界面由外至内逐个破坏。此时,强烈的界面吸收无疑起了重要的作用。

结 论 温度场计算结果及实验现象表明,对于部分反射膜、高反膜及增透膜,界面吸收都极大地影响了薄膜温度场分布。对于高反膜,界面吸收加剧了样品内部各个高、低折射率膜层界面的破坏。对于部分反射膜和增透膜,界面吸收降低了样品表面的激光对抗强度,且对增透膜而言,由于界面吸收所引起的膜系与基板界面的破坏的可能性较大。可以预计,对样品表面或镀膜前的基板表面进行适当功率的激光预处理可有效清除表面吸附杂质,从而提高样品的激光损伤阈值。

参 考 文 献

- [1] J. R. Palmer, Reverse thermal wave approximation for temperature transients in optical thin films and substrate-reflective optics for high power repetitive pulsed laser. *Laser induced damage in optical materials*; 1987, 546~571, NIST (U. S. A) *Spec. Publ.* 756, October 1988
- [2] H. E. Bennett, D. K. Burge, Simple expressions for predicting the effect of volume and interface absorption and scattering in high-reflectance multilayer coatings. *J. O. S. A*, 1980, 70(3): 268~276
- [3] P. A. Temple, Measurement of thin-film optical absorption at the air-film interface within the film and at the film and at the film-substrate interface. *Appl. Phys. Lett.*, 1979, 33(10): 677~679
- [4] 吴周令, 范正修, 多层介质膜的体吸收与界面吸收的研究. *光学学报*, 1989, 9(7): 630~634
- [5] Xuefei Tang, Zhengxiu Fan, Zhijiang Wang, Surface inclusion adhesion of optical coatings. *Opt. Eng.*, 1994, 33(10): 3406~3410
- [6] D. L. Decker, Thermal properties of optical thin-film materials. *Proc. SPIE. Optical Thin Films III: New Developments*, 1990, 1323: 244~252
- [7] M. Mansuripur, G. A. Neville Connell, J. W. Goodman, Laser-induced local heating of multilayers. *Appl. Opt.*, 1982, 21(6): 1106~1114

Interface Absorption Effect on Temperature Field of Optical Coatings

Zhao Qiang Fan Zhengxiu

(Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy Sciences, Shanghai 201800)

(Received 12 June 1995; revised 5 September 1995)

Abstract On the basis of full consideration to interface absorption in optical coatings, we worked out a model of simulative interface absorption layer. Calculation and analysis of the temperature field are made for some kinds of multilayers. The real-time results from laser induced damage to samples using photothermal deflection technique support this model.

Key words interface absorption, temperature field, laser induced damage.