

吸收杂质热辐射诱导光学薄膜破坏的热力机制

魏朝阳 贺洪波 邵建达 范正修

(中国科学院上海光学精密机械研究所, 上海 201800)

摘要 光学元件的破坏是限制高功率激光系统发展的主要问题,理解光学元件的破坏机制对于高功率激光系统的设计、运行参量选择以及器件技术发展有重要影响。以热辐射模型为基础研究了杂质吸收诱导光学薄膜破坏的热力过程。研究发现薄膜发生初始破坏所需时间很短,脉冲的大部分时间是引起薄膜发生更大的破坏。在考虑吸收杂质发生相变的情况下,计算了吸收杂质汽化对薄膜产生的蒸汽压力,论证了薄膜发生宏观破坏的可能性。此模型能很好地解释光学薄膜的平底坑破坏形貌。

关键词 薄膜光学; 吸收杂质; 激光破坏; 热辐射

中图分类号 O484.4 **文献标识码** A

Thermodynamics Damage of Optical Coatings Induced by Absorbing Inclusion Thermal Irradiation

Wei Chaoyang He Hongbo Shao Jianda Fan Zhengxiu

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

Abstract The damage of optical elements is a main limiting factor for a large laser system. The understanding of damage mechanisms can promote system design, choice of operational parameters and technology development. Thermodynamics damage of optical coatings induced by absorbing inclusions was studied based on thermal irradiation model. It is shown that the initial damage time of optical coatings during a laser pulse is very short and the most part of the laser pulse generates larger damage. Considering the phase change of absorbing inclusion, we calculated the gas pressure exerting on coatings due to the gas phase change of absorbing inclusion and discussed the possibility of the macro damage of optical coatings. This model can well interpret the flat bottom pit damage morphology of optical coatings.

Key words thin film optics; absorbing inclusion; laser induced damage; thermal irradiation

1 引言

纳秒激光对光学薄膜的破坏是一个复杂的过程,对于不同的薄膜材料、制备方法、激光参量和作用模式,破坏过程和损伤机理都有很大差异性^[1~5]。只考虑薄膜本征吸收机制下,人们提出了光学薄膜破坏的雪崩离化、多光子吸收模型。由于光学薄膜的本征吸收较小,实验上观察到的薄膜的破坏阈值比理论计算得到的阈值低的多。研究大量光学薄膜的破坏形貌发现,光学薄膜中的吸收性杂质和微缺陷的存在是光学薄膜破坏的主要因素,基于杂质吸收模型,人们提出了光学薄膜破坏的热机制^[6]、热力破坏^[7]、以及热爆炸破坏^[8]、等离子体冲击波爆炸破坏^[9]等破坏机制。

现有的纳秒脉冲激光对光学薄膜的破坏机制并不是普适的,在激光与薄膜相互作用过程中可能包括了多个过程或多种机制的耦合。现有的理论模型大都以热传导模型为基础,没有考虑薄膜自身热导率、热扩散系数较小的特点,没有考虑杂质材料的相变。由于光学薄膜的热导率、热扩散系数极低,在激光脉冲辐照时间内,热在薄膜中的热扩散长度很小。根据这一特点以热辐射模型为基础研究了光学薄膜的热力机制破坏,并讨论了初始破坏发生后破坏的发展过程。

2 热辐射模型的温度计算

对于球形纳米吸收中心诱导光学薄膜的温升,

温升主要受薄膜主材料的热扩散系数、热导率限制^[6]。在我们的计算模型中,由于热在氧化铅薄膜主材料中的热扩散长度 $l_D = 2\sqrt{Dt}$ 较小,这里 D 为热扩散系数,其值约为 $0.0071\text{ cm}^2/\text{s}$, t 为脉冲宽度,对于 8 ns 激光脉冲,热扩散长度约为 47 nm ,若考虑薄膜的实际热导率,则热扩散长度会更小。可认为由于传导损耗的能量较小,热损耗主要通过热辐射方式。温度控制方程可由下式表达^[10]:

$$QI\pi R^2 - 4\pi R^2 \epsilon \sigma T^4 = \frac{4}{3}\pi R^3 \rho c \frac{\partial T}{\partial t}, \quad (1)$$

这里 R 为吸收缺陷半径, I 为平均激光功率密度, Q 为吸收率, ρ 为吸收缺陷密度, ϵ 为发射率, σ 为斯特藩常量,其值为 $5.6697 \times 10^8\text{ W m}^{-2} \cdot \text{K}^{-4}$ 。上式可简化为

$$\frac{dU}{1-U^4} = dt,$$

式中 $U = \left(\frac{IQ}{4\epsilon\sigma}\right)^{1/4}$, $t = \frac{\tau}{t_r}$, $t_r = \frac{4U\rho cR}{3IQ}$, τ 为激光脉冲宽。对此式积分得

$$\frac{\arctan U}{2} - \frac{\ln|-1+U|}{4} + \frac{\ln|1+U|}{4} = t, \quad (2)$$

吸收缺陷的温升随时间的演化关系如图 1 所示。

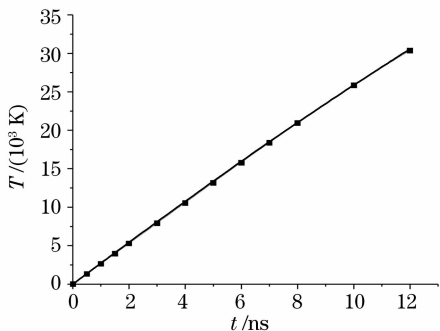


图 1 吸收杂质温升随时间的演化

Fig. 1 Evolution of temperature rise of inclusion with time

可看出,温升随辐照时间在一个激光脉冲内基本上是缓慢线性的增加。

3 热应力计算

吸收缺陷的局部加热会导致缺陷热膨胀而在薄膜主材料中产生热应力,吸收缺陷周围的环向应力可由(3)式给出^[11]:

$$\sigma_{\theta} = \frac{\alpha ET}{3(1-\nu)}, \quad (3)$$

式中 α 为吸收缺陷的热膨胀系数, ν 为泊松比, E 为杨氏模量。

薄膜若发生破坏,通常情况下要满足两个条件,薄膜发生破坏的力学条件为^[11]

$$\sigma_{\theta} \geq \sigma_{th} = \sqrt{\frac{EG}{2\pi R}}, \quad (4)$$

式中 E 为薄膜材料的杨氏模量, G 为界面破坏能密度,其值约为 1 J/cm^2 , σ_{th} 为薄膜的抗拉强度。

满足条件(4)式不足以在薄膜中产生裂纹。由于薄膜中的裂纹总是有一定的大小,所以在作用区域内需要一定的应变场能量产生裂纹。对于半径大小为 R 的吸收缺陷,薄膜发生力学破坏满足的能量方程为^[7]

$$E_m = 39R^2\gamma, \quad (5)$$

式中 γ 为薄膜材料的表面能密度。只有吸收缺陷附近的应变场能量超过 E_m 时,裂纹才能产生,即满足条件

$$Q\vartheta E_p \geq E_m = 39R^2\gamma, \quad (6)$$

式中 E_p 为激光脉冲能量, Q 为吸收率, ϑ 为耦合系数

$$\vartheta = \frac{T_0}{9c_h} \left(\frac{1+\nu}{1-\nu}\right)^2 \alpha_h^2 c_l^2,$$

c_h 为薄膜热容, T_0 为室温, α_h 为热膨胀系数, c_l 为纵模声速。对于球形吸收缺陷,吸收的脉冲能量 $QE_p \approx \frac{4}{3}\pi R^3 k_a F_p$, k_a 为吸收系数, F_p 为激光脉冲能量密度。把吸收的激光能量代入(6)式,可得表达式

$$R \geq R_{cr} \approx \frac{10\gamma}{\vartheta k_a F_p}, \quad (7)$$

从(7)式可看出,对于一定能量的激光脉冲,若使得薄膜破坏,则吸收缺陷必须具备一定的临界尺寸,若吸收缺陷较小,吸收的激光能量不足以满足产生裂纹所需要的能量。

对于激光能量密度 $F_p = 10\text{ J/cm}^2$, 表面能密度 $\gamma = 2.4 \times 10^{-5}\text{ J/cm}^2$, $\vartheta = 5 \times 10^{-5}$, $k_a = 10^5\text{ cm}^{-1}$, 临界半径约为 48 nm 。

基于上述讨论,激光辐照薄膜,在满足(6)式和(7)式的情况下,薄膜会产生裂纹。

取吸收杂质半径为 100 nm , 激光功率密度 I 为 1 GW/cm^2 , 对氧化铅薄膜中的铂吸收杂质,计算所用的参量如表 1 所示。

由(4)式计算可得膜层与膜层之间或膜层与基底之间的抗拉强度约为 500 MPa , 代入(3)式得到达到薄膜的抗拉强度所需要的温升约为 $1200\text{ }^\circ\text{C}$, 从表 1 可看出,此温度低于薄膜的熔点。另外从(2)式计算得吸收中心达到此温度所需要的时间仅为 0.5 ns 。可知对于一个 8 ns 的激光脉冲来说,引起薄

膜初始破坏的时间很短,脉冲的大部分时间是诱导薄膜产生更大的破坏。

表 1 计算用吸收杂质和薄膜主要特性参量

Table 1 Main parameters used in calculation

Absorbing inclusion	Pt	Host materials
		HfO ₂
Density / (g/cm ³)	21.45	9.7
Melting point / K	2041	3080
Vaporation point / K	4098	4602
Heat capacity / [J/(kg · K)]	130	144
Melting latent heat / (J/kg)	122000	113400
Vaporizing latent heat / (J/kg)	2615400	2990000
Linear expansion coefficient / 10 ⁻⁶ K	9.0	0.8
Young modulus / GPa	95	170
Poisson ratio	0.33	0.27
Pulse width / ns	8	
Laser wavelength / nm		355

4 薄膜破斑的发展

当缺陷周围的抗拉强度达到膜层与膜层之间或膜层与基底之间的抗拉强度后,膜层与膜层或者膜层与基底将会剥离,产生初始破坏的裂纹。由于达到膜层剥离的时间很短,激光脉冲还在继续作用,在随后的激光脉冲作用下,膜层剥离的长度将会加大。即裂纹长度会加大,裂纹的传输速度通常约为声速在此材料中传播速度的 0.6 倍,裂纹在随后激光脉冲作用下的传输长度可由(8)式计算^[12]:

$$d_{\max} = 2Vt = 1.2 \sqrt{E/\rho}(\tau - t_{\text{init}}), \quad (8)$$

式中 V 为裂纹传播速度, t_{init} 为引起薄膜初始裂纹所需要的时间。对于 HfO₂ 薄膜,计算可得最大裂纹长度为 37.6 μm。这一大小和高反膜典型的平底坑破坏形貌大小比较相符。如图 2 所示由 WYKO 表面轮廓仪测量的膜系结构为 G|(HL)⁹H|A 的破斑

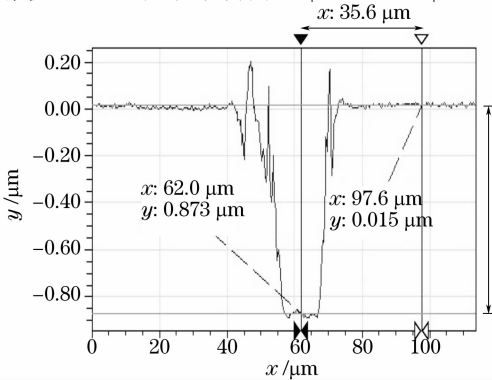


图 2 常见的典型的高反膜平底坑破坏形貌

Fig. 2 Damage morphology of flat bottom pit for high-reflection film

信息,其中 H 代表高折射率材料 HfO₂,L 代表低折射率材料 SiO₂,G 是 K9 玻璃基底,A 为入射介质(空气)^[13]。

5 考虑杂质发生气相变的情况

由前面的温升计算过程中可知,吸收缺陷的温度可达到 10⁴ K 以上将会发生吸收缺陷的相变。吸收缺陷汽化产生高压作用在薄膜材料上,压力作用示意图如图 3 所示。

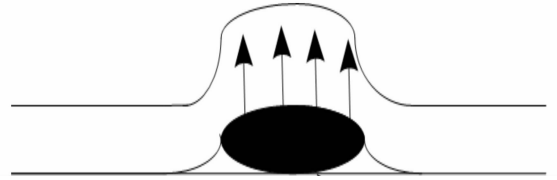


图 3 吸收杂质汽化对薄膜的压力示意图

Fig. 3 Illustration of vapor pressure exerting on film

吸收缺陷汽化后产生高压,对周围的薄膜产生压力,在薄膜脱落半径处和顶部产生张力。若这一张力大于薄膜所能承受的最大应力,则会产生宏观上的力学破坏,通常为平底坑状的破坏。

把脱落区的薄膜作为一个半径为 a ,厚度为 d 的圆盘受均布压力 P 的作用。 a 可认为是裂纹扩展的最大长度, d 为缺陷所在位置的薄膜厚度,则圆盘的不同半径处的位移^[14]

$$u(r) = \frac{3(1-\nu^2)}{16E} \frac{(r^2 - a^2)^2}{d^3} P, \quad (9)$$

从(9)式可看出破坏中心处具有最大的位移。

由弹性理论可求得圆盘在均布压力 P 的作用下,所受的最大应力

$$\sigma_{\max} = \frac{3}{4} \frac{a^2}{d^2} P, \quad (10)$$

有理想气体的状态方程

$$PV_c = \frac{(4\pi/3)r^3 \rho RT}{M}, \quad (11)$$

式中 r 为吸收缺陷半径,其值为 100 nm, R 为普适气体常数,值为 8.31 J/(mol · K), ρ 为密度, M 为吸收杂质的摩尔质量, T 为温升。这里 V_c 可近似为基底半径为 a ,高度为临界破坏状态下的热弹位移的球冠,体积为 $V_c = \frac{\pi}{2} u_c a^2$ 。联立(9)式~(11)式可得最大位移、汽化压力、最大张应力分别为 200 nm, 97 kPa, 100 MPa。考虑到薄膜的多孔柱状结构, 100 MPa 大小的应力克服薄膜的剪应力极限强度,引起薄膜的脱落是完全有可能的。

6 结 论

文中模型可以很好地解释由于纳米吸收杂质诱导的光学薄膜平底坑破坏形貌,但由于引起薄膜破坏的因素较多,表现在薄膜的破坏形貌上就具有多样性,例如表面污染物引起的薄膜熔化脱落、节瘤缺陷引起的薄膜喷溅,还有一些较大的缺陷引起的薄膜破坏形貌,利用此模型解释就不太妥当。

参 考 文 献

- 1 M. F. Koldunov, A. A. Manenkov, I. L. Pokotilo. Efficiency of various mechanisms of the laser damage in transparent solids [J]. *Quant. Electron.*, 2002, **32**(7): 623~628
- 2 S. Papernov, A. W. Schmid. Two mechanisms of crater formation in ultraviolet-pulsed-laser irradiated SiO₂ thin films with artificial defects [J]. *J. Appl. Phys.*, 2005, **97**(11): 114906-1~114906-9
- 3 C. C. Walton, F. Y. Genin, R. Chow *et al.*. Effects of silica overlayers on laser damage of HfO₂-SiO₂ 560 incidence high reflectors[C]. *Proc. SPIE*, 1996, **2714**: 550~559
- 4 Xia Zhilin, Fan Zhengxiu, Shao Jianda. Form specification of absorber distribution in optical coatings[J]. *Chin. J. Lasers*, 2006, **33**(1): 111~115
夏志林,范正修,邵建达. 薄膜内杂质分布的分形特征[J]. *中国激光*, 2006, **33**(1): 111~115
- 5 Cui Yun, Zhao Yuanan, Jin Yunxia *et al.*. Laser damage characteristic of third harmonics separator at 1064 nm[J]. *Acta Optica Sinica*, 2007, **27**(6): 1129~1134
崔云,赵元安,晋云霞等. 三倍频分光膜 1064 nm 的破斑特性

- 研究[J]. *光学学报*, 2007, **27**(6): 1129~1134
- 6 Goldenberg H, Tranter M A. Heat flow in an infinite medium heated by a sphere [J]. *Brit. J. Appl. Phys.*, 1952, **3**(2): 296~298
 - 7 M. F. Koldunov, A. A. Manenkov, I. L. Pokotilo. Mechanical damage in transparent solids caused by laser pulses of different durations[J]. *Quant. Electron.*, 2002, **32**(4): 335~340
 - 7 M. F. Koldunov, A. A. Manenkov, I. L. Pocotilo. Theory of laser induced damage to optical coatings: dependence of damage threshold on physical parameters of coating and substrate materials[C]. *Proc. SPIE*, 1994, **2714**: 731~745
 - 9 M. D. Feit, L. W. Hrubesh, A. M. Rubenchik *et al.*. Scaling relations for laser damage initiation craters[C]. *Proc. SPIE*, 2001, **4347**: 316~323
 - 10 Jean Dijon, Jean Hue, A. Disgecmez *et al.*. Thin film laser damage mechanisms at the YAG third harmonic [C]. *Proc. SPIE*, 1996, **2714**: 416~425
 - 11 J. Dijon, M. Poulingue, J. Hue. Thermomechanical model of mirror laser damage at 1.06 part 1: nodule election[C]. *Proc. SPIE*, 1999, **3578**: 387~397
 - 12 J. Dijon, G. Ravel, B. Andre. Thermomechanical model of mirror laser damage at 1.06 Part 2: flat bottom pits formation [C]. *Proc. SPIE*, 1998, **3578**: 398~407
 - 13 Zhao Yuanan. Study of pulsed laser induced damage mechanisms and measurement technology[D]. Shanghai: Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, 2005
赵元安. 脉冲激光对光学薄膜的损伤机理及测试技术研究[D]. 上海: 中国科学院上海光学精密机械研究所, 2005
 - 14 M. Reichling, A. Bodemann, N. Kaiser. Defect induced laser damage in oxide multilayer coatings for 248 nm[J]. *Thin Solid Films*, 1998, **320**: 264~279

· 广 告 ·

最佳全球供应商

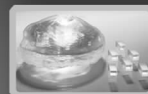


LBO 专利号: 4.826.283 美国专利号
88 1 02084.2 中国专利号
2023845 日本专利号

FC CASTECH®

我司提供以下类型晶体:

- 非线性光学晶体
- 激光晶体
- 声光及电光晶体
- 双折射晶体
- 光折变晶体
- 晶体组件
- X-射线晶体
- 光学件



BBO



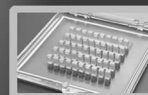
BIBO



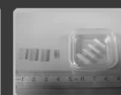
KTP



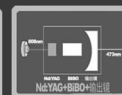
Nd:YVO₄



胶合晶体



键合晶体



蓝光组件



光胶晶体

福建福晶科技股份有限公司
FUJIAN CASTECH CRYSTALS, INC.

地址:福建省福州市杨桥西路155号

TEL:86-591-83710533

http://www.castech.com

邮编:350002

FAX:86-591-83711593

E-mail: sales@castech.com