

文章编号: 1001-3806(2014)02-0210-04

## 重复激光脉冲作用下薄膜损伤演化规律研究

范卫星<sup>1</sup>, 王平秋<sup>2</sup>, 韩敬华<sup>1</sup>, 刘全喜<sup>2</sup>, 杨洁<sup>1</sup>, 郭超<sup>1</sup>

(1. 四川大学 电子信息学院, 成都 610064; 2. 西南技术物理研究所, 成都 610041)

**摘要:** 为了深入研究重复激光脉冲的能量效应对光学薄膜的烧蚀机理, 采用实验观测与热力学分析相结合的方法进行了研究。通过观察光学薄膜烧蚀形貌随入射激光脉冲数量增加发生改变的典型形貌特征, 分析了激光与等离子体相互作用的热力学过程, 得到了在激光重复脉冲作用下光学薄膜的损伤特性及其演化规律。结果表明, 薄膜在重复脉冲作用下, 其表面会变得粗糙, 这会大大增加对激光的吸收效应, 从而加速了薄膜的破坏, 最终被完全去除而露出基底; 同时, 烧蚀物会在热膨胀作用下向激光作用区域外扩散, 在激光烧蚀中心区域外进行沉积, 而形成更大范围的污染。由于激光光强为高斯分布, 重复脉冲作用的效应主要是对在光束中心区域的薄膜进行集中烧蚀, 会不断增加烧蚀的损伤程度, 而对烧蚀面积的增加效应极为有限。这一研究结果为重复激光脉冲对薄膜烧蚀机理的建立提供了参考。

**关键词:** 激光技术; 重复激光脉冲; 薄膜损伤; 高斯光束; X射线衍射光谱

**中图分类号:** O539; O484.4<sup>+</sup>1 **文献标志码:** A **doi:** 10.7510/jgjs.issn.1001-3806.2014.02.014

### Accumulation effect of film damage under repetitive laser pulses

FAN Weixing<sup>1</sup>, WANG Pingqiu<sup>1</sup>, HAN Jinghua<sup>2</sup>, LIU Quanxi<sup>2</sup>, YANG Jie<sup>1</sup>, GUO Chao<sup>1</sup>

(1. School of Electronics and Information Engineering, Sichuan University, Chengdu 610064, China; 2. Southwest Institute of Technical Physics, Chengdu 610041, China)

**Abstract:** In order to study the accumulation effect of film damage under repetitive laser pulses, experimental observations and thermodynamic analysis were carried out. The morphologies damaged by single and multiple laser pulses were observed under a 5000 $\times$  microscope, then the thermodynamic process between the interaction of laser and plasma was analyzed. Finally the evolution rule of the film damage was found. Both of these two damaged morphologies can be explained by the thermodynamic interactions between laser and laser plasmas. The research results show that: the rough surface of thin film is induced by the laser pulses, which will absorb more laser energy than the beginning. The melt will be removed by the stronger ablation and will be accumulated outside of the laser working area. Since the laser energy is Gaussian distributed, the damaged of multiple laser pulses is centralized and the ablation is limited at the center of laser beam only. This result is a preference for study about film ablation under repetitive laser pulses.

**Key words:** laser technique; repetitive laser pulse; thin film damage; Gaussian beam; X-ray diffraction spectra

## 引言

高能激光系统在航天、惯性约束核聚变(inertia confusion focus, ICF)等领域有着广泛的需求, 而其建造会涉及到材料、制造、设计等众多领域<sup>[1-2]</sup>。现今, 激光器元件的损伤问题已经成为限制高能激光输出

的主要问题之一, 其中, 光学薄膜上在重复激光脉冲作用下产生损伤点并不断演化的问题尤为突出<sup>[3-4]</sup>。对此, 国内外展开了大量的研究, 主要是从损伤机理以及改进机制进行入手展开<sup>[5]</sup>。对激光元件损伤研究发现, 薄膜是其中最薄弱的环节, 这涉及到薄膜的材料、镀膜方法等<sup>[6]</sup>。本文中主要是针对高斯型重复激光脉冲对薄膜的损伤形貌的演化过程进行分析, 并在此基础上对激光烧蚀的热力学过程进行分析。为重复脉冲对薄膜的烧蚀机理的建立提供参考。

## 1 实验研究

为了得到损伤特征随脉冲个数的作用的变化规

基金项目: 国家重大专项课题资助项目 (GFZX0205010803.220)

作者简介: 范卫星(1970-), 男, 博士, 高级工程师, 主要从事光学薄膜的研制。

E-mail: fwx\_hjh@163.com

收稿日期: 2013-05-08; 收到修改稿日期: 2013-06-06

律,首先进行实验研究,把纳秒激光聚焦到薄膜表面进行烧蚀,然后根据烧蚀形貌的变化特征,为进一步热力学分析奠定基础。

### 1.1 实验条件

本实验中采用的激光器输出波长为 1064nm,脉宽为 13ns,光强的空间分布为近高斯分布。样品是 Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 薄膜,其厚度大约为 600nm,基底是 K9 玻璃。激光脉冲经焦距为 10cm 的凸透镜聚焦后,辐照到薄膜表面。光斑半径大约为 70μm。激光作用的能量、个数以及频率等由计算机自动控制和记录。作者对烧蚀的薄膜形貌采用高倍显微镜进行观测。

### 1.2 损伤特性随脉冲个数作用的变化规律

能量为 30mJ、频率为 1Hz 的激光脉冲作用在薄

膜上,高倍显微镜观测其烧蚀形貌,如图 1 所示。

图 1 为不同个数激光脉冲作用下薄膜烧蚀形貌变化特性。从整体烧蚀形貌来看,可以分为烧蚀中心区域与外侧区域。当一个脉冲作用时,会看到从中心点沿径向的彩色光环带,这是由于干涉效应形成的。光圈的缓急变化可以反应烧蚀坑深度的变化,彩带环从烧蚀中心为中心逐步展开,这说明烧蚀中心区域最低,沿着径向烧蚀深度逐渐升高,但是从干涉环的径向变化较缓慢,从红色光圈变化来看,大约只有 2 个周期。随着脉冲个数的增加,彩色干涉环的径向间隔变小,说明烧蚀深度逐渐增加,一共大约有 4 个周期。当 3 个脉冲作用后,烧蚀中心区域的薄膜被烧蚀去除掉后露出玻璃基底。从彩色干涉环沿径向的变化来判断,内侧变化最快,在外延变化最慢,说明被烧蚀的薄膜材料在烧蚀内沿被堆积起来。从烧蚀中心区域的面积来看,从第 1 个脉冲到第 2 个脉冲变化较快,其半径从大约 45μm 增大到 65μm,但是到第 3 个脉冲变化很缓慢,仅达到 70μm,与光束半径相近,这说明重复脉冲作用区域主要是作用在能量集中的光束中心区域。从烧蚀外延来看,有明显的烧蚀喷溅物的沉积痕迹,其喷溅痕迹沿着径向向外,这说明在烧蚀过程中有向外膨胀的过程<sup>[7]</sup>。随着脉冲的作用,烧蚀区域的微观结构也会对后续激光脉冲的作用产生影响,作者对个数的脉冲激光作用下,烧蚀中心的微观形貌进行观测,如图 2 所示。

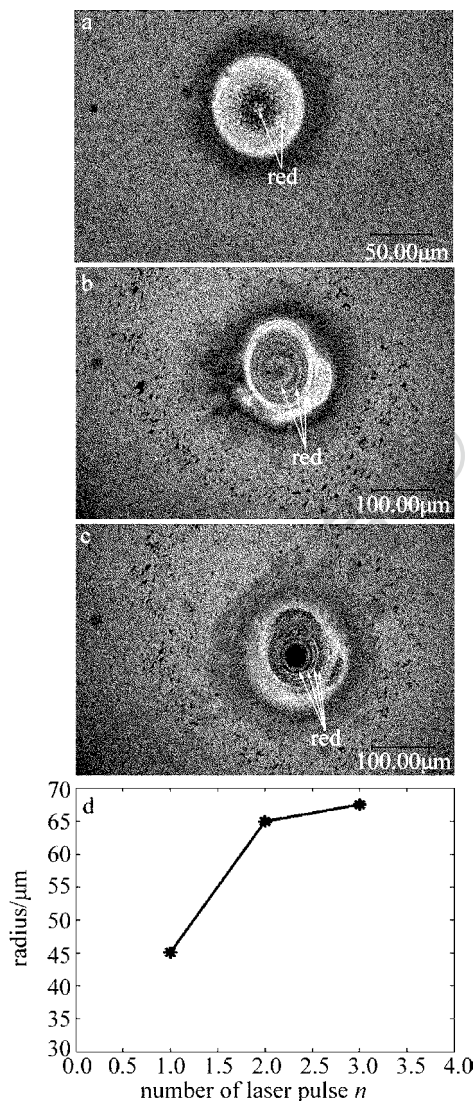


Fig. 1 The evolution laws of film damage with the number of laser pulses  
a—after the first laser pulse b—after the second laser pulse  
c—after the third laser pulse d—the change of the ablation region radius with the number of laser pulses  $n$

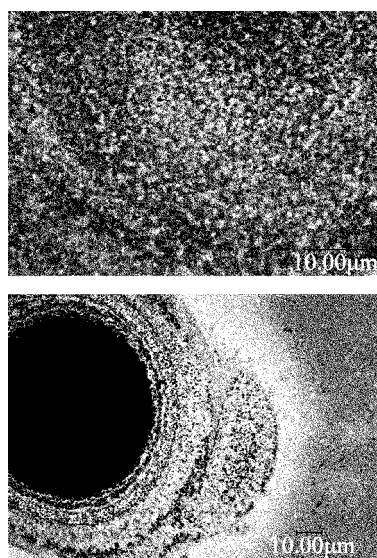


Fig. 2 The microstructures of laser induced film damage  
a—the first laser pulse b—the third laser pulse

从图 2 可以明显观察到不同个数激光脉冲作用下薄膜的微观形貌发生了很大的变化。在单脉冲作

用下,薄膜的会从光滑变得粗糙,这种结构会对后续激光脉冲产生散射和多次反射,这就大大增强了对后续激光的吸收,使得损伤速度大大增强<sup>[8]</sup>。对3个脉冲作用后的薄膜损伤形貌进行观测,可以清晰地看到烧蚀中心露出的玻璃基底以及堆积物,堆积物中有明显的熔化和冷却痕迹。

## 2 薄膜的晶态分析

通过对激光烧蚀薄膜的形貌分析可以看出,激光对薄膜的损伤主要是基于薄膜吸收引起的热效应,而热效应与薄膜的晶态紧密相联,不同的晶相传热也不相同。作者对薄膜进行X射线衍射仪(X-ray diffraction, XRD)分析,对其晶态进行初步的判断,再进行热力学分析。

### 2.1 XRD 光谱分析

图3为K9玻璃表面Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>薄膜的XRD衍射图。横坐标是X射线的衍射角,纵坐标是相对衍射强度。从图上来看,谱图中出现了明显的馒头峰,衍射峰严重宽化,说明薄膜为非晶态,其物理特性为各向同性<sup>[9]</sup>。

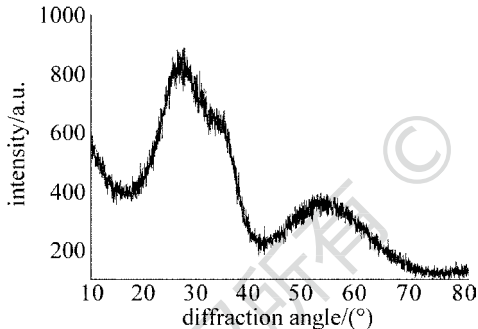


Fig. 3 The XRD spectra of thin film

### 2.2 热力学分析

对激光辐照薄膜产生的温升规律进行分析,由于激光脉冲作用时间极短,所以可以忽略激光吸收热量的散失,这里假设吸收光强与辐射光强相等以及薄膜的热力学参量恒定。本文中采用的Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>薄膜的物理参量如下:折射率为2.16,熔点为2073K,比热容为189J/(kg·K),热导率为2.6×10<sup>-4</sup>W·m<sup>-1</sup>·K<sup>-1</sup>,密度为8.2g/cm<sup>3</sup><sup>[10]</sup>。考虑到激光脉冲作用期间以及后续的冷却过程,薄膜温度变化规律可以用以下两式描述<sup>[11]</sup>:

$$T(z, r, t) = \left(\frac{2I}{\kappa}\right)\sqrt{at} \operatorname{ierfc}\left(\frac{z}{2\sqrt{at}}\right), (t < \tau) \quad (1)$$

$$T(z, r, t) = \left(\frac{2I}{\kappa}\right)\left\{\sqrt{at} \operatorname{ierfc}\left(\frac{z}{2\sqrt{at}}\right) -$$

$$\sqrt{a(t-\tau)} \operatorname{ierfc}\left[\frac{z}{2\sqrt{a(t-\tau)}}\right]\right\}, (t > \tau) \quad (2)$$

式中,ierfc是互补误差函数; $\kappa$ 是薄膜材料热导率, $a$ 为热扩散率,可以写为 $a = \kappa/(\rho c)$ , $\rho$ 是密度, $c$ 是比热容; $I$ 为激光光强,其定义为:

$$I = \frac{(1-R)E}{\pi w^2 \tau} \exp\left(-\frac{r^2}{w^2}\right) \quad (3)$$

式中, $R$ 是薄膜表面对激光脉冲的反射率, $E$ 为激光单脉冲能量, $w$ 为光束半径, $\tau$ 是脉宽, $z$ 为薄膜深度, $t$ 为时间, $r$ 为距离光束中心的径向距离。根据脉冲作用时间,将温升分为脉冲作用前和作用后进行划分。可见,温度的变化量是脉冲作用时间、薄膜深度和径向距离的函数。激光辐照下,薄膜温度的空间分布如图4所示。

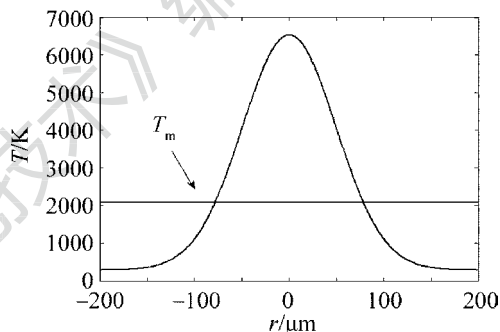


Fig. 4 The temperature distribution of the thin film in space

图4中,横坐标表示激光脉冲的辐照空间,以辐照中心(0坐标)为中心沿径向展开,纵坐标表示脉冲作用引起的空间的最高温升,图中的 $T_m$ 表示熔点温度。由图4可见,激光脉冲引起的薄膜的温度分布在聚焦中心处温度最高,沿着径向逐渐降低,超出熔点的半径范围在70μm左右,与光束半径相近。这主要是基于激光脉冲光强分布是高斯型的,这样激光能量主要集中在光束中心区域,考虑到吸收热量的扩散,则在辐照中心向薄膜内部扩散最强,从而引起的温升最高<sup>[12-13]</sup>。对在辐照中心区域,沿激光传输方向( $z$ 方向)的温升进行分析,如图5所示。

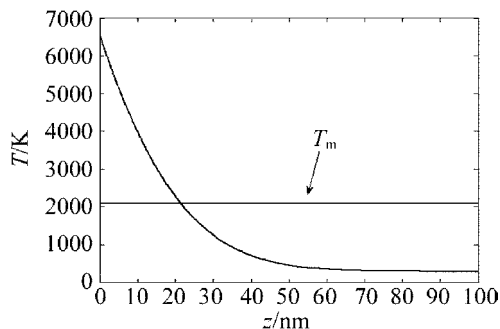


Fig. 5 The temperature distribution in deep direction of the thin film

由图 5 可见,在辐照中心处,一次脉冲作用的深度大约为 20nm。又考虑到激光辐照过程中,会有高温烧蚀物的膨胀,会对薄膜产生很大的压力,这样会使得实际烧蚀深度增大。此外,随着激光脉冲的不断作用,薄膜的烧蚀区域变得粗糙,这样会大大增加激光能量的沉积,从而使得实际烧蚀深度大大增大。从实验中看,3 个脉冲的作用就足够把薄膜进行烧蚀去除。又由于激光光强的高斯分布,这样就会使得辐照中心处薄膜去除效果最强,沿径向迅速降低。从而出现损伤形貌中,随着脉冲作用次数的增加,光束中心区域烧蚀最先去去除而烧蚀范围增加有限的特

### 3 小 结

对空间高斯分布的纳秒重复激光脉冲对薄膜的烧蚀特性进行了实验研究以及相应的热力学研究。研究表明,在重复激光脉冲作用下,薄膜的烧蚀形貌可以分为烧蚀中心区域以及外沿烧蚀物的沉积区域两部分。辐照中心的薄膜会经历粗糙度变大、烧蚀去除等过程,同时烧蚀物会不断累积,甚至在膨胀到烧蚀中心外沿进行沉积。由于入射激光的光强为空间高斯分布,则烧蚀面积随脉冲作用个数增加很少,这说明脉冲的累积主要是增强薄膜损伤的程度,而不是扩展烧蚀的面积。

#### 参 考 文 献

[1] NÉAUPORT J, BLANCHOT N, ROUYER C, *et al.* Chromatism compensation of the PETAL multipetawatt high-energy laser[J]. *Applied Optics*, 2007, 46(9):1568-15704.  
[2] HAYNAM C A, WEGNER P J, AUERBACH J M, *et al.* National ignition facility laser performance status [J]. *Applied Optics*,

2007,46(16): 3276-3303.

- [3] ZHAO Y A, GAO W D, SHAO J D, *et al.* Roles of absorbing defects and structural defects in multilayer under single-shot and multi-shot laser radiation[J]. *Applied Surface Science*, 2004, 227(1/4): 275-281.  
[4] ZHOU M, SHAO J D, FAN Zh X, *et al.* Effect of multiple wavelengths combination on laser-induced damage in multilayer mirrors [J]. *Optics Express*, 2009,17(22):20313-20320.  
[5] CARR C W, FEIT M D, RUBENCHIK A M, *et al.* Radiation produced by femtosecond laser-plasma interaction during dielectric breakdown [J]. *Optics Letters*, 2005,30(6): 661-663.  
[6] ZHAO Y, WANG T, ZHANG D, *et al.* Laser conditioning and multi-shot laser damage accumulation effects of HfO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub> antireflective coatings[J]. *Applied Surface Science*, 2005, 245(1/4): 335-339.  
[7] MATSUBARA K, FONS P, IWATA K, *et al.* Room-temperature deposition of Al-doped ZnO films by oxygen radical-assisted pulsed laser deposition [J]. *Thin Solid Films*, 2002, 422(1/2): 176-179.  
[8] ZHOU H M, YI D Q. Effect of rare earth doping on thermo-physical properties of lanthanum zirconate ceramic for thermal barrier coatings[J]. *Journal of Rare Earths*, 2008, 26(6): 770-774.  
[9] LIU F, YU Z, CHEN S, *et al.* Vanadium oxide thin films prepared by reactive magnetron sputtering [J]. *Metal Materials and Engineering*, 2008, 37(12):2221-2225 (in Chinese).  
[10] LI R. Study on laser damage properties of optical dielectric films [D]. Xi'an: Xi'an Technological University, 2010:28-38 (in Chinese).  
[11] ALLMEN M V. Laser-beam interactions with materials physical principles and applications [M]. Beijing: Science Press, 1994: 55-70 (in Chinese).  
[12] EYYUBOGLU H T, BAYKAL Y. Average intensity and spreading of cosh-Gaussian laser beams in the turbulent atmosphere [J]. *Applied Optics*, 2005, 44(6):976-983.  
[13] DAI G, LU J, WANG B, *et al.* Analysis and comparison of coating damage induced by laser at 1ms and 10ns pulse-widths[J]. *Laser Technology*, 2011, 35(4): 477-480 (in Chinese).