

ns 激光辐照 ZrO₂ 薄膜剥落的理论研究*

赵建君, 宋春荣, 刘进

(军械工程学院 理化教研室, 石家庄 050003)

摘 要:在 ns 激光辐照光学薄膜温度分布的基础上, 利用最大剪应力理论建立了光学薄膜发生迎光剥落的理论模型, 得到了发生损伤相应的应力分布和膜层剥落半径与入射激光能量关系. 通过数值分析, 验证了理论模型与实验结果基本保持一致, 膜层临界损伤阈值与实验结论在数量级上保持一致; 剥落半径与入射能量关系曲线与实验结果基本吻合. 指出薄膜的损伤形态与其附着力强度有着密切关系, 只有当附着力强度小于某一定值($\sim 9.4 \times 10^4 \text{ N/cm}^2$)时, 才会发生剥落.

关键词:激光物理; 高斯光束; 光学薄膜; 损伤阈值

中图分类号: TN249

文献标识码: A

0 引言

在高功率激光系统以及导弹、卫星等航天器的引导、定位等系统中, 广泛使用了镀膜的光学元件, 而强激光辐照造成镀膜的损伤会直接导致这些系统的信号错误乃至损毁等严重后果. 因此, 研究强激光对薄膜的损伤机理对光电对抗有着重要的指导意义.

强激光造成镀膜常见损伤是热烧蚀、裂解和剥落^[1-2, 9-10]. 国内外学者对于其发生机理及结果从不同角度进行了研究, 有的考虑热熔融效应^[1-2], 或者是电离效应^[9, 14-15]、杂质影响^[10], 也有考察轴向应力^[3-5]等. 本文主要以短脉冲强激光辐照光学元件表面常用的 ZrO₂ 薄膜为例, 分析了薄膜导致的热力效应, 从轴对称热弹性出发, 以最大剪应力分析了其热力效应导致的剥落损伤. 讨论了不同情况下的损伤阈值, 并与实验结果进行了比较, 验证了理论的正确性.

1 理论模型

1.1 膜层中的温度场

采用文献[13]的理论模型, 将镀于光学材料表面的薄膜看作为一厚度为 h , 半径为 b 的圆板模型, 采用柱坐标, 坐标原点在样品的激光入射表面中心, z 轴与激光照射方向一致. 中心光强为 I_0 的 Gauss 型空间分布连续激光束垂直照射到薄膜表面 ($z=0$). 从 $t=0$ 时刻激光开始照射样品, 初始样品温度均匀, 记为 T_0 ; 由于激光辐照时间极短, 可以近似认为样品表面绝热. 同时, 忽略其他效应, 认为吸收的能量全部转换为热能. 由于膜层很薄 ($\sim \lambda/4$), 可以忽略表面反射和 z 轴温差, 得到相应的温度场分布为

$$T = T_0 + \frac{\beta I_0}{h\rho c_p} \left[\frac{a^2}{b^2} (1 - e^{-b^2/a^2}) t + \sum_{m=1}^{\infty} \frac{a^2 (1 - e^{-D\tau[(\frac{\mu_m}{b})^2]})}{b^2 D (\frac{\mu_m}{b})^2 J_0(\mu_m)} (1 - e^{-b^2/a^2}) J_0(\frac{\mu_m r}{b}) \right] \quad (1)$$

式中, T 为膜层的温度, ρ 为膜层的密度, c_p 为定压比热容, 近似作为常量处理. β 为吸收系数. μ_m 是第一类一阶 Bessel 函数的根, $m=0, 1, 2, 3 \dots$; $D = \lambda/\rho c_p$ 是热扩散系数, λ 为膜层材料导热系数.

1.2 光学膜层迎光剥落的力学模型

由式(1)可见, 由于膜层厚度 h 极小, 在厚度方向的最大温度和最小温度差别极小, 最大应力和最小应力差别也极小, 因而可以忽略 z 轴应力变化影响; 由于衬底热膨胀系数(K9 玻璃为 $\alpha = 8.5 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$)与膜层热膨胀系数($\alpha = 8 \sim 9.2 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$)非常接近, 因而可以忽略衬底变形对膜层力学行为的影响; 薄膜的脱落是受到的机械应力的综合作用结果, 应该考虑其内禀应力, 但在强激光的热冲击作用时是以热应力为主, 故在此忽略内禀应力的影响. 根据应力的平衡方程应力-应变的几何方程及应力-应变的广义胡克方程, 得到随温度场变化的径向应力 σ_r 和垂直剪应力 τ_{rz} 为

$$\sigma_r = -\frac{\alpha E \beta I_0}{h\rho c_p} \left[\sum_{m=1}^{\infty} \frac{a^2 (1 - e^{-D\tau[(\frac{\mu_m}{b})^2]})}{b^2 J_0(\mu_m) D (\frac{\mu_m}{b})^2} (1 - e^{-b^2/a^2}) \cdot J_1\left(\frac{\mu_m r}{b}\right) \frac{b}{\mu_m r} \right] \quad (2)$$

$$\tau_{rz} = \frac{\alpha E \beta I_0}{(1-\nu)h\rho c_p} \left[+ \frac{a^2}{b^2} (1 - e^{-b^2/a^2}) (\nu - 1) t + \sum_{m=1}^{\infty} \frac{a^2 (1 - e^{-D\tau[(\frac{\mu_m}{b})^2]})}{b^2 J_0(\mu_m) D (\frac{\mu_m}{b})^2} (1 - e^{-b^2/a^2}) \frac{\nu}{\mu_m} \cdot J_1(\mu_m) J_1\left(\frac{\mu_m r}{b}\right) \right] \quad (3)$$

* 军械工程学院基础部基金(JCB0504)资助

Tel: 0311-87994528 Email: aynt@sohu.com

收稿日期: 2007-04-07

由于膜层的径向应力 σ_r 、环向应力 σ_θ 和垂直剪应力 τ_{rz} 的共同作用,在任一径向位置,膜层中的最大剪应力作用面可以近似为一锥面,在剥落区近似为一锥形体. 设其锥面与膜层界面的夹角为 θ ,如图 1. 考察剥落体上各种合力的总体平衡效果时,由于膜层厚度 h 极小,以基于剥落体面上的平均应力来讨论力的平衡问题不会对结果产生本质影响.

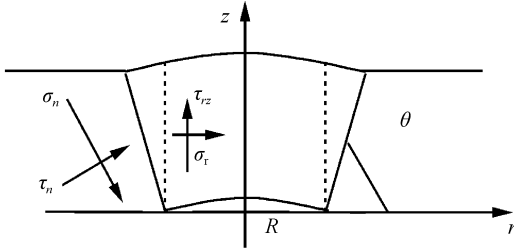


图 1 剥落区受力分析
Fig. 1 Force acting on flaking zone

假设剥落区为图 1 所示的倒锥体,底面半径为 R . 对该剥落体中内半径为 R 的锥体进行受力分析,由其径向和轴向的力平衡条件得到锥面上平均法向应力 σ_n 、内外平均剪应力 τ_{rz} 、 τ_n 与膜层圆形横截面上平均径向应力 σ_r 的关系为

$$\sigma_n A \sin\theta + \tau_n A \cos\theta = \sigma_r 2\pi r h \quad (4)$$

$$\sigma_n A \cos\theta + \tau_n A \sin\theta = \tau_{rz} 2\pi r h \quad (5)$$

式中, τ_n 和 σ_n 按图中所指方向为正

$$A = \frac{\pi(2R + h \cos\theta)h}{\sin\theta}$$

将式(4)和(5)联立求得

$$\tau_n = 2\pi r h (\sigma_r \cos\theta - \tau_{rz} \sin\theta) / A \quad (6)$$

由 $\tau_n / \theta = 0$ 得到

$$\begin{aligned} (\sigma_r |_{r=R} \sin\theta + \tau_{rz} |_{r=R} \cos\theta) A + \\ \sigma_r |_{r=R} \cos\theta - \tau_{rz} |_{r=R} \sin\theta) \partial A / \partial \theta = 0 \end{aligned} \quad (7)$$

通过解公式(7)得到最大剪应力作用面.

假设膜层的剥落是沿着最大剪应力作用面的纯剪切破坏,按照最大剪应力理论,由式(6)有

$$\tau_n = 2\pi r h (\sigma_r |_{r=R} \cos\theta - \tau_{rz} |_{r=R} \sin\theta) / A = \tau_b |_{r=R} \quad (8)$$

式(8)中 τ_b 为材料的剪切强度极限. 通过给定相应的 R ,即可以通过式(7)得到对应的 θ 以及中心光强 I_0 ,可以得到对应的破坏功率. 取 $R \rightarrow 0$ 即可得到膜层破坏临界功率.

2 数值计算结果及讨论

2.1 温度场分布及效应分析

ZrO₂ 薄膜的主要物性参量如表 1. 为与实验结论相比较,取材料参量为:ZrO₂ 薄膜半径 $b=0.05$ cm,厚度 $h=0.265 \times 10^{-3}$ cm. Nd:YAG 激光器输出的连续激光波长为 $1.06 \mu\text{m}$,高斯光斑半径 $a=0.275 \times 10^{-3}$ cm,相应的材料吸收系数为 $\beta=0.00002 \text{ cm}^{-1}$.

取材料初始温度为 $T_0=300$ K. 由于薄膜与衬底间的附着力强度与镀膜工艺、具体实验环境有关,不同情况下具体数值不同^[3],一般在 $10^4 \sim 10^7 \text{ N/cm}^2$. 为了便于讨论,取附着力强度为 10^4 N/cm^2 . 利用 1.2 中讨论计算得到膜层临界损伤阈值为 $E_{th}=20.766 \text{ J/cm}^2$,与文献[3-4]中的 27.8 J/cm^2 在数量级上保持一致.

表 1 ZrO₂ 的物性参量^[11-12]

$\rho / \text{g} \cdot \text{cm}^{-3}$	$\lambda / \text{W} \cdot \text{cm}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$	$c_p / \text{J} \cdot \text{g}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$	α / K^{-1}	E / Pa	$T_{\text{melt}} / \text{K}$	ν
5.8	0.0175	0.45234	9.2×10^{-6}	1.96×10^{11}	3223	0.25

图 2、3 分别给出了不同入射激光能量下的单层膜截面温度场和最大剪应力的分布情况. 可以看出:激光光斑中心处温度最高,随着半径 R 的变大,温度迅速下降,形成很大的梯度;相应的导致最大剪应力中心处最大,随着半径 R 的变大而迅速下降. 激光入射能量越高,相应的温度和剪应力越大. 当入射能量达到热应力损伤阈值时,薄膜中心温度为 790 K ,远小于 ZrO₂ 的熔点 3223 K . 说明此时 ZrO₂ 薄膜的损伤不是热熔破坏,而是热力损伤. 分析其原因是由于 ZrO₂ 薄膜在极短时间内吸收脉冲激光的辐射能量转化为热量,短时间内来不及扩散,因此形成

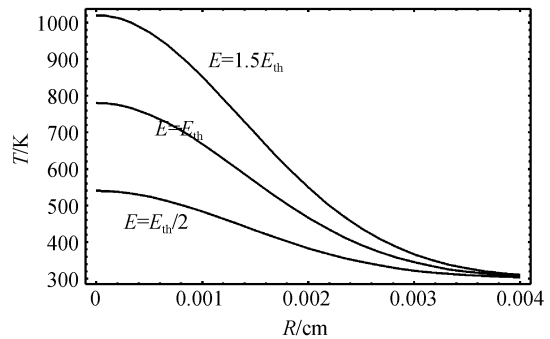


图 2 ZrO₂ 薄膜截面温度场分布
Fig. 2 Section temperature distribution of a ZrO₂ film induced by $1.064 \mu\text{m}$ laser

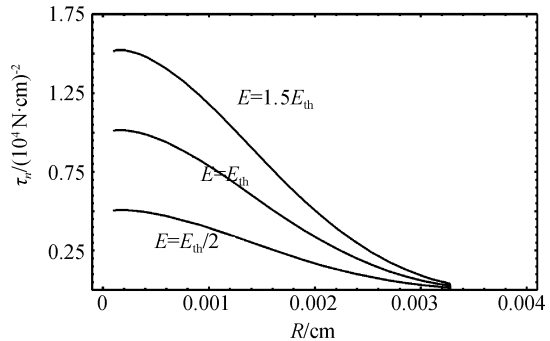


图 3 ZrO₂ 薄膜截面最大剪应力分布
Fig. 3 Section stress distribution of a ZrO₂ film induced by $1.064 \mu\text{m}$ laser

很大的温度梯度,导致产生很大的径向应力、环向应力、垂直剪应力,综合效果导致最大剪应力 τ_n 能够达到破坏附着力强度时就会发生剥落. 不同能量入射导致剪应力峰值不同,入射能量越大,达到薄膜剥落的剪应力范围越大,即损伤区域增大. 这与文献[3-4]给出的结论相同.

2.2 能量与损伤关系

图4给出了激光能量与剥落半径的关系,实线代表理论计算值,黑色三角形代表文献[3、4]给出的实验结果. 比较发现,排除实验数据的分散性后,理论计算与实验结果吻合的很好,表明本文所建立的模型具有合理性和可行性.

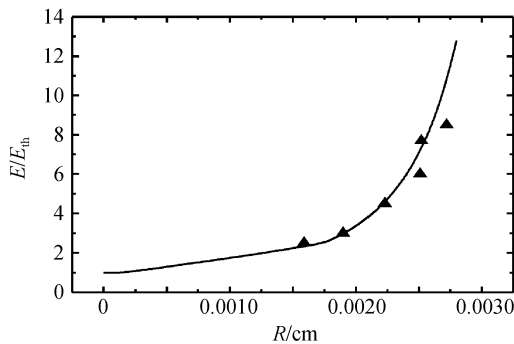


图4 激光能量与剥落半径
Fig. 4 Change of E/E_{th} vs R

图5给出了不同附着力强度情况下的损伤阈值. 图中由上至下的实线分别表示薄膜与衬底间的附着力强度为 10^5 N/cm^2 、 10^4 N/cm^2 的临界损伤阈值;虚线表示发生热熔融的临界损伤阈值. 可以看出:如果通过工艺提高薄膜与衬底间的附着力强度,可以有效地增加对剥落损伤的抵抗能力,但并不表示不会发生熔融损伤;当附着力强度达到某一定值 ($9.4 \times 10^4 \text{ N/cm}^2$) 时,可能同时发生剥落、熔融损伤,大于该值 ($9.4 \times 10^4 \text{ N/cm}^2$) 时发生熔融损伤.

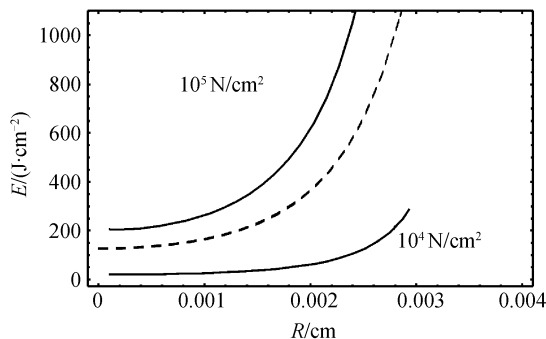


图5 热力损伤阈值比较
Fig. 5 Threshold comparement of heat and stress

3 结论

通过在高斯型短脉冲激光辐照光学薄膜温度分布的基础上,综合考虑各种应力的情况下,基于最大

剪应力理论建立了光学薄膜发生迎光剥落的理论模型,得到了发生损伤的最大剪应力分布和膜层剥落与入射激光能量关系. 通过数值计算,分析了在短脉冲激光辐照时 ZrO_2 薄膜的损伤情况,发现在取附着力强度为 10^4 N/cm^2 的情况下得到的结论与实验结果基本一致;利用 1.2 中讨论计算得到在 $R=0$ 即可得到膜层临界损伤阈值为 $E_{th}=20.766 \text{ J/cm}^2$, 与文献[3-4]中的 27.8 J/cm^2 在数量级上保持一致;在排除实验结果离散性的基础上,剥落半径与入射能量关系曲线与实验结论基本吻合. 薄膜的损伤形态与其附着力强度有着密切关系,当附着力强度达到某一定值 ($\sim 9.4 \times 10^4 \text{ N/cm}^2$) 时,可能同时发生剥落、熔融损伤,大于该值 ($\sim 9.4 \times 10^4 \text{ N/cm}^2$) 时首先发生熔融损伤. 通过与实验数据的比较,证明了模型和结论的科学性.

理论模型同样适用于同类膜层的激光损伤效应研究和材料损伤性能评估,为激光对抗和激光加固提供了理论参考.

参考文献

- [1] DU D, LIU X, KORN G, *et al.* Laser induced breakdown by impact ionization in SiO_2 with pulse widths from 7 ns to 150 fs [J]. *Appl Phys Lett*, 1994, **64**(23): 3071-3073.
- [2] WANG Wei-ping, LÜ Bai-da, LIU Cang-li, *et al.* The morphology of pulsed laser-induced damage on the surface of a copper film mirror[J]. *Optic & Laser Technology*, 2003, **35**: 303-307.
- [3] WU Xiao-wei, ZHOU Mei-juan. Thermal shock effect on optical film damage induced by high power laser [J] *Journal of Jinggangshan Normal College (Natural Sciences)*, 2000, **21**(6): 36-38.
郭小伟,周美娟. 光学薄膜的激光热冲击效应[J]. 井冈山师范学院学报(自然科学版), 2000, **21**(6): 36-38.
- [4] GONG Hui, LI Cheng-fu, WANG Ming-li. Thermal shock effect on optical films damage induced by high power laser[J]. *Chinese Journal of Lasers*, 1996, **23**(3): 245-248
龚辉,李成富,王明利. 激光对光学薄膜损伤的热冲击效应[J]. 中国激光, 1996, **23**(3): 245-248.
- [5] YIN Yi-hui, SU Yi, CHEN Yu-ze. Theoretical model for the spallation of optical coating irradiated by short pulsed laser [J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2001, **28**(8): 706-708.
尹益辉,苏毅,陈裕泽. 短脉冲激光辐照下光学膜层迎光剥落的理论模型[J]. 中国激光, 2001, **28**(8): 705-708.
- [6] LIU Qiang, LIN Li-bin, Gan Rongbing. Experiment study on the uniformity of damage threshold of oxide films[J]. *High Power Laser and Particle Beams*, 2003, **15**(6): 538-542.
刘强,林理彬,甘荣兵,等. 光学膜层激光损伤阈值均匀性的实验研究[J]. 强激光与粒子束, 2003, **15**(6): 538-542.
- [7] MA Zi, LÜ Bai-da, XIAO Qi. Laser damage mechanisms of optical coating under near threshold energy [J]. *Laser Technology*, 2000, **24**(3): 145-147.
马孜,吕百达,肖琦. 近阈值能量密度下薄膜的激光损伤特点[J]. 激光技术, 2000, **24**(3): 145-147.

- [8] YANG Fan, SHEN Jun, WU Guang-ming, *et al.* Laser damage of Sol-Gel thin film [J]. *High Power Laser and Particle Beams*, 2003, **15** (5): 439-443.
杨帆, 沈军, 吴广明, 等. 溶胶-凝胶光学薄膜的激光损伤研究[J]. *强激光与粒子束*, 2003, **15** (5): 439-443.
- [9] MA Zi, LÜ Bai-da. Thin film damage induced by 1 μ m laser[J]. *Journal of Sichuan Union University (Engineering Science Edition)*, 1999, **3**(3): 136-139.
马孜, 吕百达. 1 μ m 激光对光学薄膜的损伤[J]. *四川联合大学学报(工程科学版)*, 1999, **3**(3): 136-139.
- [10] ZHAO Yuan-an, WANG Tao, ZHANG Dong-ping, *et al.* Pulsed laser induced damage model of optic coatings with absorbing inclusion [J]. *Acta Photonica Sinica*, 2005, **34** (9): 1372-1375.
赵元安, 王涛, 张东平, 等. 脉冲激光辐照光学薄膜的缺陷损伤模型[J]. *光子学报*, 2005, **34**(9): 1372-1375.
- [11] MA Chun-yu, LI Zhi, ZHANG Qing-yu, *et al.* Pulsed laser induced damage model of optic coatings with absorbing inclusion [J]. *Journal of Functionak Materials Contents*, 2004, **35**(4): 491-494-1375.
马春雨, 李智, 张庆瑜. 二氧化锆介质薄膜光学及电学特性研究[J]. *功能材料*, 2004, **35**(4): 491-494-1375.
- [12] ZHOU Ze-hua, DING Pei-dao, CHEN Bei, *et al.* Analysis of mechanical and thermal properties of ZrO₂ [J]. *Journal of Chongqing University (Natural Science Edition)* 2002, **25** (2): 60-62.
周泽华, 丁培道, 陈蓓, 等. 氧化锆力学性能和热学性能的综合分析[J]. *重庆大学学报(自然科学版)*, 2002, **25**(2): 60-62.
- [13] ZHAO Jian-jun, SONG Chun-rong, LIU Jin. Thermal and mechanical effect in optical material induced by repetitive pulse laser [J]. *Acta Photonica Sinica*, 2006, **35** (12): 1856-1860.
赵建君, 宋春荣, 刘进. 重复脉冲激光辐照光学材料的热力效应[J]. *光子学报*, 2006, **35**(12): 1856-1860.
- [14] ZHAO Yuan-an, WANG Tao, ZHANG Dong-ping, *et al.* Pulsed laser induced damage model of optical coatings with absorbing inclusion [J]. *Acta Photonica Sinica*, 2005, **34**(9): 1372-1375.
赵元安, 王涛, 张东平, 等. 脉冲激光辐照光学薄膜的缺陷损伤模型[J]. *光子学报*, 2005, **34**(9): 1372-1375.
- [15] WANG Tao, ZHAO Yuan-an, HUANG Jian-bin, *et al.* Accumulation effect of multi-shot laser induced damage to optical coatings [J]. *Acta Photonica Sinica*, 2006, **35** (6): 859-862.
王涛, 赵元安, 黄建兵, 等. 多脉冲激光作用下光学薄膜损伤的累积效应[J]. *光子学报*, 2006, **35**(6): 859-862.

ZrO₂ film Peeling Caused by Irradiating of ns Laser

ZHAO Jian-Jun, SONG Chun-Rong, LIU Jin

(Section of Physics-Chemistry, Ordnance Engineering College, Shijiazhuang 050003, China)

Received date: 2006-11-01

Abstract: In this paper, a thermal physical model of ZrO₂ film peeling caused by ns laser based on the theory of the most shearing strength is established. The distributions of stress and the relationship between the radius of peeled film and the energy of the incident laser are studied. Through analyses, it is validated that the physical model is in accordance with the result of the experiment. The damage threshold of peeled film and the curve of the peeled film radius and the energy of the incident laser is nearly the same as result of the experiment. It is pointed out that the film damage form is closely related to the coherence strength. Only when the coherence strength is less than a certain number ($\sim 9.4 \times 10^4$ N/cm²), the damage may happen.

Key words: Laser physics; Gauss beam; Optical film; Damage threshold



ZHAO Jian-jun was born in 1975. He graduated from Physics Department of Shanxi University and got M. S. degree in 2000. His research interest include nonlinear optics, laser material processing, and quanta optics.