文章编号：1000-5773(2012)01-0107-06

1 064 nm 激光对氧化铟锡薄膜的损伤研究*

李阳龙，王伟平，骆永全，王海峰，张大勇

（中国工程物理研究院流体物理研究所，四川绵阳 621900）

摘要：液晶光学器件在激光光束精密控制上具有重要应用前景，氧化铟锡(ITO)薄膜作为液晶光学器件的透明导电电极，是液晶器件激光损伤的薄弱环节。为此，建立了 ITO 薄膜激光热损伤物理模型。理论计算结果表明：1 064 nm 激光对 ITO 薄膜的损伤主要为热应力损伤；连续激光辐照下，薄膜损伤始于靠近界面的玻璃基底内；脉冲激光辐照下，温升主要发生在光斑范围内的膜层，薄膜损伤从表面开始。利用泵浦探测技术，研究了 ITO 薄膜的损伤情况，测量了不同功率密度激光辐照后薄膜的方块电阻，结合1-on-1 法测定了 ITO 薄膜的 50％损伤几率阈值。实验结果表明：薄膜越厚，方块电阻越小，激光损伤阈值越低；薄膜未完全损伤前，方块电阻随激光功率密度的增加而增大。理论计算与实验结果吻合较好。设计液晶光学器件中的 ITO 薄膜电极厚度时，应综合考虑激光损伤、透光率及薄膜电阻的影响。

关键词：激光辐照；液晶光学器件；损伤阈值；氧化铟锡薄膜

中图分类号：O434；O484　　**文献标识码**：A

1 引　言

液晶光学器件在光束整形、激光偏振态和相位控制等激光束精密控制技术中具有重要的应用前景，而高激光损伤阈值则是液晶光学器件在高功率激光装置上应用的前提[1]。液晶光学器件中，在透明导电电极上加载特定的电压，可以改变液晶器件的光电特性，进而调节光束的形状和偏振态。透明导电电极需具有良好的导电性能和高透过性能，氧化铟锡(ITO)薄膜因具有较低的电阻率(10^{-4} Ω·cm 量级)和较高的透过率(可见光和近红外光的透过率高达 90％)，是目前综合性能最优异的透明导电薄膜，被大量用作液晶光学器件中的透明导电电极。ITO 薄膜在近红外波段的吸收系数较大，是液晶光学器件激光损伤的主要薄弱环节。1978 年，Pawlewicz 等人[2]初步研究了 ITO 膜层的激光损伤。此后，一些研究者分别使用不同波长的脉冲激光研究了 ITO 薄膜的激光损伤[3-6]。本研究针对液晶光学器件中使用的 ITO 膜层，分别采用 1064 nm 的连续激光和脉宽为 10 ns 的脉冲激光开展激光损伤研究，建立相关的热损伤模型，计算激光辐照下薄膜样品的温度场及应力场分布，分析损伤机理，为液晶光学器件中 ITO 透明电极的设计和抗激光加固提供参考依据。

2 理论分析

大多数液晶光学器件由光学玻璃基板(K9 玻璃)、ITO 薄膜电极、聚酰亚胺薄膜和液晶材料组成。激光辐照下 ITO 薄膜样品的计算模型如图 1 所示。假设激光输出功率不随时间变化，功率密度呈高斯分布，ITO 及 K9 玻璃材料均为各向同性。计算模型为轴对称，在二维坐标(r，z)下，材料满足如下热传导方程

* **收稿日期**：2010-04-11；**修回日期**：2010-12-20

基金项目：中国工程物理研究院科学技术基金重点项目(2007A01003)

作者简介：李阳龙(1984－)，男，硕士，主要从事激光效应研究. E-mail：jesseliyl@163.com

$$\rho_i c_{pi}\frac{\partial T}{\partial t}=\frac{\lambda_i}{r}\frac{\partial}{\partial r}\left(\frac{\partial T}{\partial r}\right)+\lambda_i\frac{\partial^2 T}{\partial z^2}+Q \tag{1}$$

式中：$i=1,2$；ρ_1、c_{p1}、λ_1 分别为 ITO 的密度、定压比热容及热导率；ρ_2、c_{p2}、λ_2 分别为 K9 玻璃的密度、定压比热容及热导率；Q 为激光热源，计算时将其视为体吸收热源。

相对于样品尺寸，激光光斑很小，在有限激光强度及作用时间下，样品侧面温升很小，因此可取为绝热条件。激光辐照以及边界条件、初始条件为

$$Q=\alpha I_0(1-R)\exp(-r^2/w^2-\alpha z) \tag{2}$$

$$-\lambda_1\frac{\partial T}{\partial z}\bigg|_{z=0}=\frac{1}{\alpha}Q|_{z=0}-h_f(T|_{z=0}-T_b) \tag{3}$$

$$\lambda_2\frac{\partial T}{\partial z}\bigg|_{z=h}=-h_f(T|_{z=h}-T_b) \tag{4}$$

$$\frac{\partial T}{\partial r}\bigg|_{r=0}=0 \tag{5}$$

$$T|_{t=0}=T_b \tag{6}$$

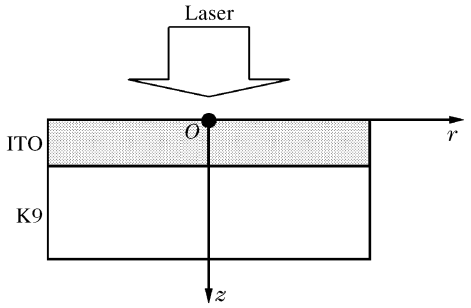


图 1 计算模型

Fig. 1 Calculating model

式中：R、h_f、h、T、T_b 分别为材料表面反射率、对流换热系数、材料厚度、材料温度及环境温度；I_0 为入射到材料表面激光光斑中心的激光光强，α 为材料对 1 064 nm 波长光的吸收系数，w 为激光光斑半径（光斑半径处的激光光强为光斑中心光强的 1/e）。

轴对称瞬态温度场下的二维热应力可由热弹性方程给出

$$\begin{cases}\gamma_{zr}=\dfrac{\partial u_r}{\partial z}+\dfrac{\partial u_z}{\partial r}\\ \gamma_{r\theta}=\gamma_{\theta z}=0\\ \varepsilon_r=\dfrac{\partial u_r}{\partial r},\varepsilon_z=\dfrac{\partial u_z}{\partial z},\varepsilon_\theta=\dfrac{u_r}{r}\end{cases} \tag{7}$$

本构方程为

$$\begin{cases}\tau_{zr}=G\left(\dfrac{\partial u_r}{\partial z}+\dfrac{\partial u_z}{\partial r}\right)\\ \tau_{r\theta}=\tau_{\theta z}=0\\ \sigma_r=\dfrac{2G}{1-2\nu}\left[(1-\nu)\dfrac{\partial u_r}{\partial r}+\nu\left(\dfrac{u_r}{r}+\dfrac{\partial u_z}{\partial z}\right)\right]-\dfrac{\beta E}{1-2\nu}\Delta T\\ \sigma_\theta=\dfrac{2G}{1-2\nu}\left[(1-\nu)\dfrac{u_r}{r}+\nu\left(\dfrac{\partial u_r}{\partial r}+\dfrac{\partial u_z}{\partial z}\right)\right]-\dfrac{\beta E}{1-2\nu}\Delta T\\ \sigma_z=\dfrac{2G}{1-2\nu}\left[(1-\nu)\dfrac{\partial u_z}{\partial z}+\nu\left(\dfrac{\partial u_r}{\partial r}+\dfrac{u_r}{r}\right)\right]-\dfrac{\beta E}{1-2\nu}\Delta T\end{cases} \tag{8}$$

平衡方程为

$$\begin{cases}\dfrac{\partial\sigma_r}{\partial r}+\dfrac{\partial\tau_{zr}}{\partial z}+\dfrac{\sigma_r-\sigma_z}{r}=0\\ \dfrac{\partial\tau_{zr}}{\partial r}+\dfrac{\partial\sigma_z}{\partial z}+\dfrac{\tau_{zr}}{r}=0\end{cases} \tag{9}$$

式中：u 为位移，ε、γ 为应变，σ、τ 为应力，下标 r、θ、z 分别代表 r、θ、z 方向上的分量，$G=E/2(1+2\nu)$，E 为弹性模量，ν 为泊松比，β 为热膨胀系数。

3 模拟结果

计算时使用的 ITO 及 K9 玻璃的热物理参数[7-10]如表 1 所示，其中 n 为折射率。对于 K9 玻璃，其断裂阈值受表面处理情况、微观不均匀性等影响，有一定的不确定性，计算时取压缩断裂强度为

690 MPa,拉伸断裂强度为 30 MPa。对于 ITO 薄膜,其熔点约为 2 100 K,计算时取压缩断裂强度为 500 MPa,拉伸断裂强度为 20 MPa。K9 玻璃的厚度为 1 mm,ITO 膜厚 d 为 100 nm 和 300 nm,样品半径为 3 cm。激光波长为 1 064 nm,连续激光辐照时间为 5 s,脉冲激光脉宽为 10 ns,光斑直径为 6 mm,对流系数为 1 000 W/(m^2 · K),材料反射率 R=6%。

表 1 K9 玻璃及 ITO 的热物理参数

Table 1 Thermal parameters of K9 glass and ITO

Material	ρ/(g/cm^3)	α/(m^{-1})	n	ν	E/(GPa)	β/(10^{-7}K^{-1})	λ/(W/(m · ℃))	c_p/(J/(kg · ℃))
K9 glass	2.51	1	1.52	0.203	78	8.6	1.4	800
ITO	7.14	5×10^6	2.0	0.3	50	6.7	3.3	360

图 2 为不同峰值功率密度的连续激光辐照下,不同厚度的 ITO 薄膜表面中心处温度随时间变化的曲线。激光峰值功率密度为 120 W/cm^2 的激光辐照 5 s 时,薄膜材料的温度分布如图 3 所示,其中图 3(a)和图 3(b)分别为激光辐照后 ITO 薄膜表面径向温度分布及靶材轴向温度分布。由图 2、图 3 可知:温升主要发生在激光光斑范围内,ITO 薄膜中激光辐照中心处的温度最高,但未达到 ITO 薄膜的熔点,此时,ITO 薄膜若损伤,则损伤不是热熔融损伤,而是热应力损伤。

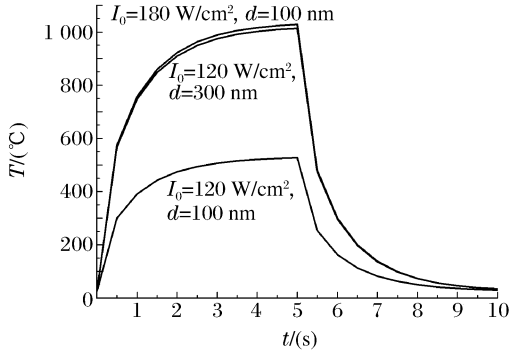


图 2 ITO 薄膜表面中心处的温度变化

Fig. 2 Temperature change in center of ITO films

峰值功率密度为 120 W/cm^2 的激光辐照 300 nm 厚的 ITO 薄膜以及峰值功率密度为 200 W/cm^2 的激光辐照 100 nm 厚的 ITO 薄膜时,样品的应力分布如图 4 所示。从图 4 可以看出,最大应力为环向应力 σ_θ,且在 K9 玻璃基底内靠近界面一侧达到拉伸断裂阈值;轴向应力 σ_z 的幅值在光斑中心处最大,与环向拉伸应力 σ_θ 相当,但达不到压缩断裂阈值;径向应力 σ_r 与剪切应力 τ_{zr} 相对较小。因此,样品的激光损伤由环向拉伸应力 σ_θ 控制,样品损伤始于界面附近的玻璃基底内,ITO 薄膜从内部向外表面开裂。本研究计算的损伤实际上都是由最大环向拉伸应力是否超过材料的拉伸断裂强度决定的。

将激光脉冲近似为三角脉冲。峰值能量密度为 0.15 J/cm^2 的激光脉冲作用于 300 nm 厚 ITO 薄膜以及峰值能量密度为 0.2 J/cm^2 的激光脉冲作用于 100 nm 厚 ITO 薄膜时,样品的温度和环向拉伸应力分布如图 5、图 6 所示。

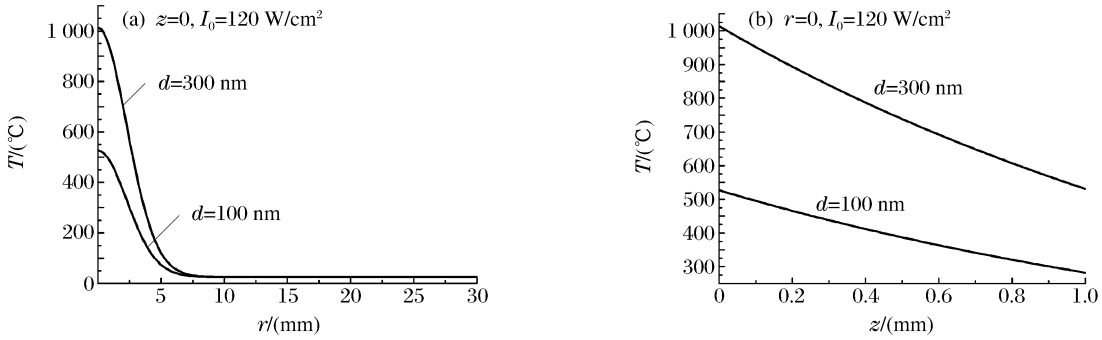


图 3 连续激光辐照后(t=5 s)样品的温度分布

Fig. 3 Temperature distribution of samples after CW laser irradiation (t=5 s)

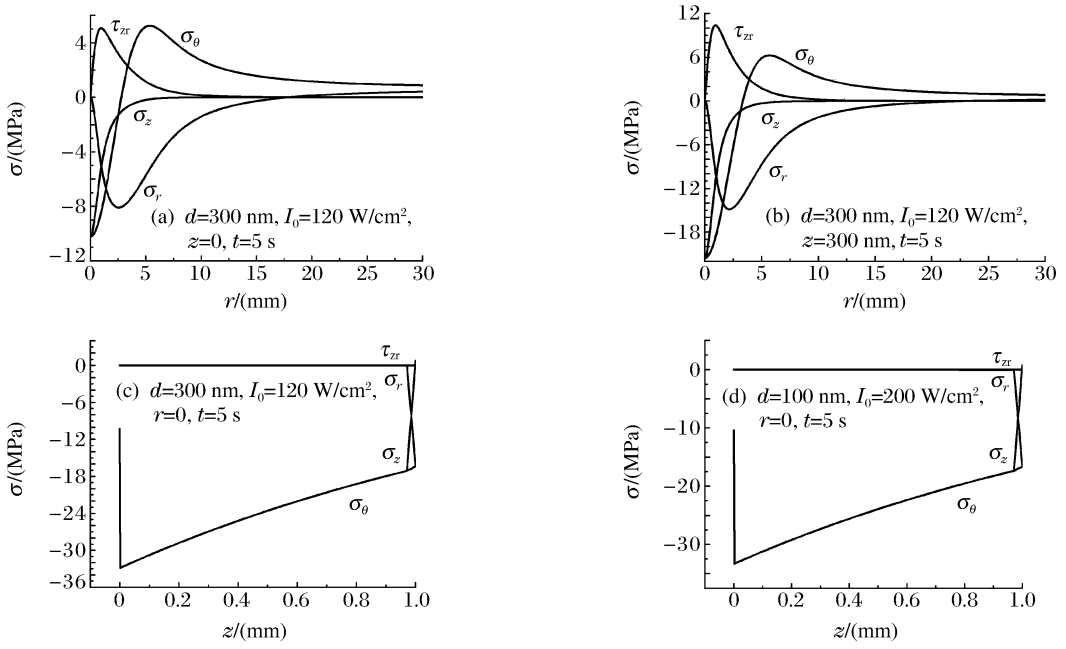


图 4 连续激光辐照后样品中的应力分布

Fig. 4 Stress distribution in sample after CW laser irradiation

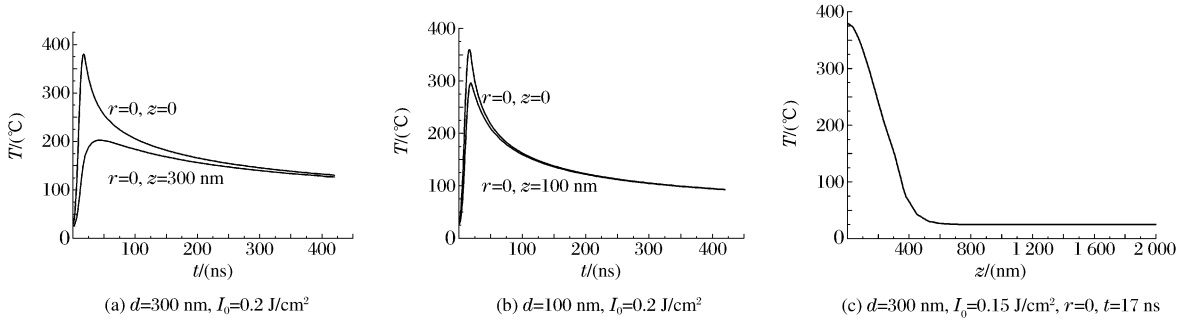


图 5 脉冲激光辐照后样品的温度分布

Fig. 5 Temperature distribution of sample irradiated by pulse laser

由图 5 可知，由于脉冲激光作用时间很短，瞬间温升主要发生在 ITO 膜层。从图 6 可以看出：薄膜越厚，界面处与薄膜表面的温差越大；ITO 薄膜表面处的环向拉伸应力 σ_θ 最大，达到拉伸断裂阈值，即激光损伤首先从 ITO 薄膜表面开始，由表面向内部开裂。

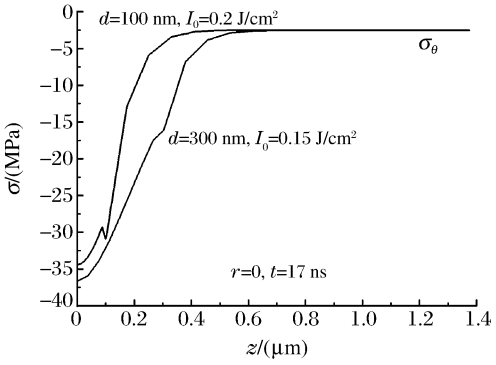


图 6 光斑中心($r=0$)处的环向拉伸应力

Fig. 6 Round stress of sample irradiated by pulse laser at $r=0$

4 实验结果与分析

分别使用连续激光和脉冲激光，利用泵浦探测技术研究了 ITO 薄膜的损伤情况，结合 1-on-1 法测定了 ITO 薄膜的 50%损伤几率阈值。实验样品为 100 nm 和 300 nm 厚的 ITO 薄膜，K9 玻璃基底厚 1 mm，实验光路如图 7 所示。由于激光辐照加热改变了 ITO 薄膜的厚度和折射率，致使透射的探测光偏转，探测信号变弱。若激光功率密度或能量密度

较低,样品未发生永久损伤,则激光辐照后探测光信号恢复;反之,若激光功率密度或能量密度较高,样品受到损伤,激光辐照后探测信号不能恢复。图 8 给出了功率密度为 200 W/cm^2 的连续激光辐照 300 nm 厚薄膜样品时获得的探测信号,其中激光辐照时间为 10 s。由图 8 可知,该情况下 ITO 薄膜完全损坏,激光辐照后探测信号不能恢复到辐照前水平。

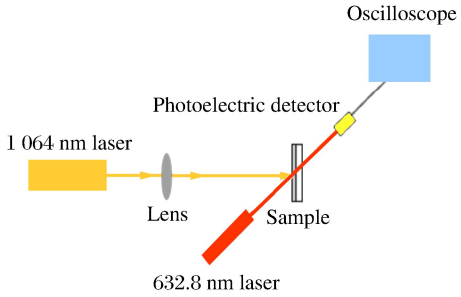


图 7　实验光路图

Fig. 7　Experimental setup

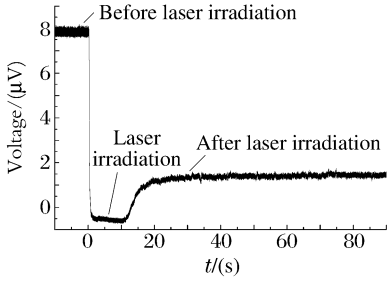


图 8　实验测试结果

Fig. 8　Experimental result

1 064 nm 的连续激光(光斑直径为 6 mm ,辐照时间为 5 s)辐照样品时的实验结果表明:100 nm 厚 ITO 薄膜的损伤阈值为 160 W/cm^2,300 nm 厚 ITO 薄膜的损伤阈值为 100 W/cm^2。脉宽为 10 ns 的脉冲激光辐照 300 nm 及 100 nm 厚 ITO 薄膜样品时,ITO 薄膜的损伤阈值分别为 0.10 和 0.15 J/cm^2。可见,实验结果与理论计算结果吻合较好。对比实验结果发现,脉冲激光损伤与连续激光损伤存在较大差异,这主要是因为脉冲作用时间很短,峰值功率密度较高,样品温度瞬间升高,热扩散还未进行时样品内部就已产生较大的热应力,而连续激光的峰值功率密度较低,在温升过程中,样品内部的热扩散及对流换热损失了大量热量。

使用方块电阻仪,对不同功率密度的激光辐照后 ITO 薄膜的方块电阻(R_{sq})进行测量,测量结果如图 9 所示。可以看出:ITO 薄膜越厚,方块电阻越小,导电性能越好,对激光的吸收越大,激光损伤阈值越低;激光辐照时间为 5 s 时,在 ITO 薄膜未完全损坏前,随着激光功率密度的增加,ITO 薄膜的方块电阻近似线性增大。

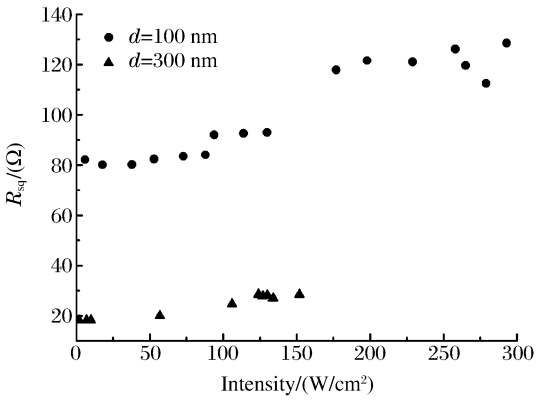


图 9　ITO 方块电阻随激光功率密度的变化曲线

Fig. 9　Change of square resistance with laser intensity

5　结　论

针对液晶光学器件中的透明导电电极材料 ITO 薄膜,开展了激光损伤实验研究,建立了相关的热损伤模型。结果表明,在波长为 1 064 nm 的激光作用下,ITO 薄膜的损伤主要为热应力损伤;ITO 薄膜未完全损坏前,其方块电阻随激光功率密度的增加而增大;脉冲激光作用时,温升主要发生在激光半径范围内的 ITO 层,材料损伤从 ITO 薄膜表面开始,而在连续激光作用下,材料的损伤则开始于 ITO 薄膜与 K9 玻璃基底界面附近的玻璃基底内。ITO 薄膜电极的高透过率、低激光损伤阈值要求薄膜厚度不应过大,但薄膜的低方块电阻要求薄膜不能太薄,因此设计薄膜厚度时应综合考虑。

ITO 薄膜的激光损伤阈值较低,极大地限制了液晶光学器件在高功率、高能量固体激光装置中的应用。因此,除了改进工艺、生产出更高品质的 ITO 薄膜外,寻找其它具有较高激光损伤阈值的透明导电薄膜替代 ITO 薄膜也可以提高液晶光学器件的应用价值。

References:

[1] Luo Y Q, Zhang D Y, Luo F, et al. Fabrication and research of liquid crystal λ/4 wave-plate at 1 053 nm laser [J]. Applied Laser, 2009, 29(2): 136-138. (in Chinese)
骆永全, 张大勇, 罗 飞, 等. 大口径近红外激光液晶波片研制 [J]. 应用激光, 2009, 29(2): 136-138.

[2] Pawlewicz W T, Mann I B, Lowdermilk W H, et al. Laser-damage-resistant transparent conductive indium tin oxide coatings [J]. Appl Phys Lett, 1979, 34(3): 196-198.

[3] Radhakrishnan P, Sathianandan K, Subhash N. Laser-induced damage to spray pyrolysis deposited transparent conducting films [J]. J Appl Phys, 1986, 59(3): 902-904.

[4] Lunney J G, O'Neill R R, Schulmeister K. Excimer laser etching of transparent conducting oxides [J]. Appl Phys Lett, 1991, 59(6): 647-649.

[5] Yavas O, Takai M. High-speed maskless laser patterning of indium tin oxide thin films [J]. Appl Phys Lett, 1998, 73(18): 2558-2560.

[6] Cheng J Y, Yen M H, Hsu W C, et al. ITO patterning by a low power Q-switched green laser and its use in the fabrication of a transparent flow meter [J]. J Micromech Microeng, 2007, 17: 2316-2323.

[7] Ye S L, Ma J S, Huang X, et al. Finite element simulation of thermal stress field in cutting LCD glass substrate by laser [J]. Applied Laser, 2006, 26(4): 267-271. (in Chinese)
叶圣麟, 马军山, 黄 鑫, 等. 液晶显示玻璃基板激光切割热应力场的有限元仿真 [J]. 应用激光, 2006, 26(4): 267-271.

[8] Yagi T, Tamano K, Sato Y, et al. Analysis on thermal properties of tin doped indium oxide films by picosecond thermoreflectance measurement [J]. J Vac Sci Technol A, 2005, 23(4): 1180-1186.

[9] Szörényi T, Laude L D, Bertóti I, et al. Excimer laser processing of indium-tin-oxide films: An optical investigation [J]. J Appl Phys, 1995, 78(10): 6211-6219.

[10] Batzill M, Diebold U. The surface and materials science of tin oxide [J]. Prog Surf Sci, 2005, 79(2-4): 47-154.

1 064 nm Laser Damage on Indium Tin Oxide Films

LI Yang-Long, WANG Wei-Ping, LUO Yong-Quan,
WANG Hai-Feng, ZHANG Da-Yong

(*Institute of Fluid Physics, CAEP, Mianyang* 621900, *China*)

Abstract: Liquid crystal optical elements have important applications in laser facility, and the indium tin oxide (ITO) films are generally used in liquid crystal optical elements as transparent conductive electrodes. Laser induced damage of ITO films leads to failure of liquid crystal optical elements. The laser damage model of ITO films which simulates the temperature distribution and thermal stress distribution was established. The laser damage of ITO films was experimented through pump-probe technology, and the power density producing damage at a probability of 50% (i. e., damage threshold) was obtained by 1-on-1 testing, and the square resistance of the film after laser irradiation was also measured. The experimental data basically agree with the simulated results. The results show that 1064 nm laser damage of ITO film occurs mainly by thermal stress. The damage of ITO film begins from K9 glass substrate after CW laser irradiation, while the damage begins from the surface of ITO film after pulsed laser irradiation. Furthermore, the laser damage thresholds decrease with the increase of thickness of ITO films. The square resistance of ITO films increases with the increase of laser intensity unless the ITO films have been damaged completely. The optimal thickness of ITO film in liquid crystal optical element depends on the factors of laser damage, transparence and square resistance.

Key words: laser irradiation; liquid crystal optical elements; damage threshold; indium tin oxide film