Vilniaus universiteto Fizikos fakulteto Lazerinių tyrimų centras

Ugnė Norkutė SKULPTŪRINIŲ DANGŲ OPTINIO ATSPARUMO PRIKLAUSOMYBĖS NUO PORĖTUMO TYRIMAS

Magistrantūros studijų baigiamasis darbas

Lazerinės fizikos ir optinių technologijų studijų programa

Studentas

Leista ginti

Darbo vadovas

Recenzentas

Centro direktorius

Ugnė Norkutė

2021-05-21 doc. dr. Tomas Tolenis prof. Mikas Vengris prof. Aidas Matijošius

Turinys

Įvadas	2
1. Literatūros apžvalga	3
1.1 Skulptūrinės dangos	3
1.1.2 Skluptūrinių dangų formavimas elektronpluoščiu garinimu	5
1.1.3 Garinimas pasvirusiu kampu (GLAD)	7
1.1.4 Skulptūrinių dangų pranašumai ir trūkumai	7
1.2 Optinio medžiagų pažeidimo mechanizmai	8
1.2.1 Griūtinė jonizacija	8
1.2.2 Daugiafotonė jonizacija	9
1.3 Lazerinės spinduliuotės sukeltas pažeidimo slenkstis	10
1.4 Optinio pažeidimo priklausomybė nuo lazerio impulso trukmės ir pažeidimų morfologija vienasluoksnėse dangose	12
1.4.1 Kai lazerio impulso trukmė nuo 10 ⁻⁹ s iki 10 ⁻¹² s	12
1.4.2 Kai lazerio impulso trukmės $< 10^{-12}$ s	14
2. Metodinė dalis	15
2.1 Padėklu paruošimas ir vienasluoksnių skulptūrinių dangų garinimas	15
2.2 Optiniai matavimai	17
2.2.1 Spektrofotometro matavimaj	17
2.2.1 Interferometro matavimaj	17
2.2.1 Optinio mikroskopo matavimai	18
2.3 Struktūriniai matavimai	18
2.3.1 Lazerio indukuotos pažaidos slenksčio (LIDT) matavimai	18
2.3.2 Skenuojančio elektroninio mikroskono (SFM) matavimaj	19
3 Rezultatai ir iu antarimas	20
3.4 Skenuojančio elektroninio mikroskono rezultataj	20
3.2 Spektrofotometro rezultataj	20
3.3 Interferometro rezultataj	25
3.4 Vienasluoksnių skulptūrinių aliuminio ir niobio oksido dangų pažeidimų rezultatai	20
Jevados ir rezultatai	27
Literatūros sarašas	
Santrauka	36
Santauka	50
Summary	

Įvadas

Optinės dangos yra naudojamos lazerių generuojamai spinduliuotei nukreipti ir kontroliuoti [1]. Iš jų yra gaminami pagrindiniai lazerio optiniai elementai: veidrodžiai, poliarizatoriai, šviesos filtrai ir kt Vis daugiau optinių komponentų remiasi porėta dangos struktūra, pavyzdžiui: zolo gelio skaidrinančios dangos, aukšto atspindžio silicio dioksido dangos, tačiau darbų, kuriuose išsamiai būtų ištirtos optinio atsparumo nuo dangos porėtumo priklausomybės nėra daug. Taip pat būtent optinių dangų kokybė apriboja lazerinės sistemos maksimalią leistiną spinduliuotės galią ir tokių sistemų patikimumą bei optinį atsparumą. Todėl šiuo metu vis didesni reikalavimai yra keliami optinių parametrų stabilumui ir kuo didesniam atsparumui lazerio spinduliuotei.

Tam, kad būtų suformuotos porėtos, su aukštu lazerio indukuotu pažeidimo slenksčiu dangos galima naudoti skulptūrinių dangų technologiją ir jos metodą: garinimą pasvirusiu kampu (GLAD) [2]. Tokios dangos yra formuojamos padėklą pasukant kampu į nusodinamą garų srautą, o keičiant šį kampą galima manipuliuoti dangos porėtumu [3]. Taip pat keičiantis užgarintos dangos porėtumui, lūžio rodiklis irgi kinta. Tad tokiu būdu galima sukurti dangą iš mažo lūžio rodiklio (su dideliu draustinės juostos (Eg) tarpu), kuri būtų atsparesnė lazerinei spinduliuotei, nes aukšto lūžio rodiklio medžiaga riboja lazerio induokuotos pažaidos slenksčio LIDT vertę [4].

Šio darbo tikslas yra ištirti aliuminio oksido ir niobio oksido skulptūrinių dangų optinių ir struktūrinių savybių priklausomybes nuo porėtumo.

Pagrindiniai uždaviniai:

- 1. Suformuoti aliuminio oksido ir niobio oksido vienasluoksnes dangas naudojant skirtingus garinimo kampus bei nustatyti jų porėtumus.
- Nustatyti spektrinių savybių, lūžio rodiklio ir vidinių įtempių priklausomybes nuo skulptūrinių dangų porėtumo.
- 3. Atlikti suformuotų vienasluoksnių dangų struktūrinę analizę.
- 4. Nustatyti optinio atsparumo priklausomybę nuo skulptūrinių dangų porėtumo bei ištirti paties pažeidimo kilmę.

1. Literatūros apžvalga

1.1 Skulptūrinės dangos

XX a. pabaigoje buvo pradėtas plėtoti naujas optinių skulptūrinių dangų formavimo technologija. Ši technologija leidžia formuoti porėtas skulptūrines dangas, kurios pasižymi didesniu atsparumu lazerinei spinduliuotei. Taip pat keičiant įvairius garinimo parametrus galima pakeisti dangos struktūrines ir optines savybes.

Vienas iš svarbiausių skulptūrinių dangų parametrų ir šios technologijos pagrindas yra garinimo kampas. Naudojant įvairius garinimo kampo ir padėklo sukimo aplink savo ašį algoritmus galima valdyti nanostruktūros augimą proceso metu. Tokiu būdu galima kontroliuoti garinamų optinių dangų fizinius parametrus: formą, storį ir struktūrą [3].

Skulptūrinės dangos formuojasi kai garinamos medžiagos dalelės nusėda ir pasilieka toje vietoje, kur buvo nusėdusios, todėl labai svarbios yra šios garinimo sąlygos: nedidelė garuojančių dalelių energija (sukuria porėtą struktūrą, nes nevyksta paviršinė atomų difuzija) ir kolimuotas dalelių srautas (suformuoja tvarkingas kolonas, kad šešėliavimo reiškinys būtų pilnai panaudojamas) [5]. Toks režimas leidžia naudoti garų nusodinimą į kampu pakreiptą bandinį. Jei bandinio kampas yra pakankamai didelis (>70°), o ne statmenas garinamai medžiagai kaip įprastame metode, nusodinamas garų srautas pasidengia netolygiai t.y. atsiranda vietų, kuriose garai nenusėda dėl šešėliavimo efekto (1 pav.).



1 pav. Šešėliavimo efektas dangoje: A – dangos užuomazga, B – dangos augimas

Pirmosios susidariusios užuomazgos ant dalies dangos ploto meta šešėlius ir tokiame plote jau nebeauga danga. Todėl atsiranda dominuojantys ir nedominuojantys plotai. Dominuojantys plotai yra tie kuriuose pirmiausiai nusėda garų dalelės, šie plotai neleidžia dalelėms nusėsti už savęs esančiame plote ir taip danga auga įstrižai į garinamos medžiagos šaltinį (1 pav. B). Tokiu būdu formuojasi pavienės kolonos ir tuščios sritys, kurias užpildo oras, o pati danga būna porėtesnė nei garinant statmenai [6]. Taip pat keičiant kampą tarp garų srauto ir padėklo galima pakeisti ir medžiagos lūžio rodiklį nuo artimo vienetui (kampui esant apie 90°) iki įprasto garinamai medžiagai lūžio rodiklio (kampui esant apie 0°). Pavyzdžiui: danga, kuri kaip mišinys sudaryta iš gryno titano dioksido ir oro, kurių lūžio rodikliai atitinkamai lygus n = 2,7 (bangos ilgiui 532 nm) ir n = 1. Priklausomai nuo garinamo kampo, kuriam didėjant taip pat didėja ir tarpai tarp kolonų, kinta naujo mišinio tankumas [7]. Todėl reikia apskaičiuoti naują: efektyvųjį lūžio rodiklį, nes danga yra sudaryta iš dviejų skirtingų medžiagų, o gautas rezultatas reiškia, kad lūžio rodiklis priklauso nuo dangos porėtumo. Iš 2 paveikslėlio galima pastebėti, kad prie mažo porėtumo, lūžio rodiklis yra panašus į gryno titano dioksido, o didėjant porėtumui lūžio rodiklis ima mažėti. Taip yra dėl to, kad oro porėtoje dangoje yra daugiau nei tankioje ir apskaičiuojamas efektyvusis lūžio rodiklis tampa mažesnis.



2 pav. Titano dioksido lūžio rodiklio priklausomybė nuo medžiagos porėtumo [7]

Taigi, keičiant garinimo kampą keičiasi kolonų pasvirimo kampas taip pat ir dangos lūžio rodiklis, o sukant padėklą kampu aplink savo ašį galima keisti kolonų augimo kryptį. Atitinkamai parinkus garinimo kampus ir jų keitimo algoritmus galima suformuoti įvairias periodines mikrostruktūras: zigzagus, kolonas ir kt [8]. Jei padėklas yra pakreiptas kampu į garinamos medžiagos srautą ir yra nesukamas formuojasi kampu į dangą auganti koloninė struktūra (3 pav. (a)). Jeigu padėklas yra periodiškai sukamas apie savo ašį susiformuoja zigzaginės struktūros (3 pav. (b)), sukant lėtai padėklą sukuriamos spiralės (3 pav. (c)), o greitai sukant - statmenai paviršiui augančios kolonos (3 pav. (d)).



3 pav. Skulptūrinių dangų pavyzdžiai: (a) – kampu į dangą kulonos, (b) – zigzagai, (c) – spiralės, (d) – statmenos kolonos; nuotraukos darytos su skenuojančiu elektroniniu mikroskopu (SEM) [5]

Keičiant skirtingus parametrus, galima gauti įvairių koloninių struktūrų, kurios atitiktų tam tikrus reikalavimus keliamus kuriant skulptūrines dangas. Taip yra užgarinamos trijų dimensijų porėtos nanostruktūros (4 pav.).



4 pav. Skulptūrinė danga gauta fizinio garų nusodinimo metu keičiant padėklo kampą garinamo srauto atžvilgiu
[9]

1.1.2 Skluptūrinių dangų formavimas elektronpluoščiu garinimu

Ploni optinių dangų sluoksniai (nuo nanometro iki mikrometro storio) yra gaunami nusodinimo technikomis, tokiomis kaip fizinis garų nusodinimas: magnetroninis dulkinimas, jonapluoštis dulkinimas, terminis garinimas. Taip pat ir kitais metodais, tokiais kaip elektrolizės nusodinimas ir kitais. Elektrolizės nusodinimo būdas yra paremtas cheminiais principais ir gali būti atliekamas atmosferos slėgyje ir kambario temperatūroje, o fizinis garų nusodinimas yra atliekamas tik aukštame vakuume. Vienos iš fizinio nusodinimo metodų: dulkinimo technologijos paremtos medžiagos dalelių išmušimu iš taikinio, bombarduojant didelės energijos atomų srautu. Paprastai išskiriamos dvi dulkinimo technologijos: jonapluoštis ir magnetroninis, jos skiriasi tik būdais nukreipiančiais jonus link taikinio [10]. Kitas fizinio nusodinimo būdas yra garinimas, jo metu medžiaga yra pakaitinama iki jos lydimosi arba sublimacijos temperatūros ir medžiaga garuoja arba sublimuoja, o pats garų srautas keliauja link bandinio sudarydamas ploną dangą. Garavimą galima sukelti dvejais būdais: elektronų pluoštu, tokiu atveju yra įkaitinama ne visa medžiaga, o tik jos dalis arba naudoti varžinį garintuvą, kuriame jau visa medžiaga yra pakaitinama iki garinimo temperatūros.

Kaip jau ankstesniame skyrelyje buvo paminėta, kad skulptūrinėms dangoms formuoti reikalinga nedidelė garuojančių dalelių energija ir kolimuotas dalelių srautas, todėl būtent elektronpluoščio garinimo technologija ir yra naudojama kuriant tokias dangas. Elektronpluoščio garinimo technologijoje sufokusuotas elektronų pluoštas yra gaunamas iš elektronų patrankos (5 pav.). Ją sudaro katodas, kuriuo tekant elektros srovei yra emituojami elektronai, o anodas šiuos elektronus pagreitina ir sukolimuoja į pluoštą. Pati garinama medžiaga yra patalpinama tiglyje, pasiekę ją elektronai perduoda savo energiją ir medžiaga pradeda lydytis, o vėliau garuoti. Vienas iš šios technologijos privalumų yra tai, kad galima nesunkiai reguliuoti garinimo greitį, o fokusuojant elektronų pluoštų išlydyti tik norimą medžiagos vietą. Taip pat optinės dangos užgarintos elektronų pluoštu pasižymi porėtesne struktūra negu dulkinimo technologijomis suformuotos dangos [11].



5 pav. Elektronpluoščio garintuvo schema [12]

1.1.3 Garinimas pasvirusiu kampu (GLAD)

Naudojant elektronpluoščio garinimo technologiją galima padengti planasluoksnes dangas įvairiais kampais. Būtent GLAD metodas leidžia naudotis pasvirusiu kampu ir padėklo sukimu aplink savo ašį garinimo metu [13]. Proceso metu tiksli padėklo pozicija yra nustatoma kompiuterine programa valdant žingsninius variklius. Su vienu varikliu yra kontroliuojamas padėklo greitis garinimo metu: sukant padėklą aplink savo ašį (z ašį), o su kitu yra kontroliuojamas padėklo kampas garinamo srauto atžvilgiu (6 pav.). Tad GLAD metodas leidžia sukurti įvairias struktūras manipuliuojant jų porėtumu.



6 pav. Garinimo pasvirusiu kampu (GLAD) metodo schema

1.1.4 Skulptūrinių dangų pranašumai ir trūkumai

Garinimo kampu technologija leidžia tinkamai parinkus garinimo kampo ir padėklo sukimo algoritmus pagaminti skirtingos nanostruktūros porėtas skulptūrines dangas, skirtas įvairiems taikymams, pavyzdžiui: veidrodžius, skaidrinančias dangas, fazines plokšteles, poliarizatorius. Porėta dangos struktūra nulemia, kad tarp kolonų atsiranda tarpų, todėl jei danga plėstųsi (pvz.: apšvietus lazeriu) ji taip greitai nesuirtų. Tačiau tuose tarpuose gali kauptis aplinkoje esanti drėgmė, tad dangos užgarintos vakuume, realiomis sąlygomis paprastai gali turėti skirtingas spektrines savybes. Taip pat skulptūrinės dangos yra mažiau atsparios mechaniniams veiksniams, o didesnis jų paviršiaus šiurkštumas didina optinių elementų sklaidą [14]. Paskutinis skulptūrinių dangų trūkumas yra susijęs su jų auginimu garinimo metu. Augant dangai paprastai pasireiškia kolonų plėtimasis ir bifurkacija (kolonų skilimas), taigi, dažnai dangos struktūra yra nehomegeniška t.y. netolygi [15].

1.2 Optinio medžiagų pažeidimo mechanizmai

Optinis medžiagų pažeidimas yra apibrėžiamas kaip lazerio spinduliuotės sukelti negrįžtami struktūriniai pokyčiai. Tokius pokyčius nulemia keli pažeidimo mechanizmai.

Skaidriose medžiagose (dielektrikuose) išoriniai elektronai valentinėje juostoje (7 pav.) yra užpildę visas galimas padėtis. Aukščiau valentinės juostos esanti didesnės energijos laidumo juosta yra dalinai užpildyta arba visai tuščia. Šias dvi juostas skiria draustinės energijos tarpas (Eg), kurio dydis priklauso nuo tam tikros medžiagos. Dėl netiesinės sugerties, kai intensyviu išoriniu elektromagnetiniu lauku (lazerio spinduliuote) valentiniai elektronai yra sužadinami į laidumo juostą pasireiškia stipri sugertis, kuri gali sukelti optinį pažeidimą. Laidumo juostoje esančių elektronų griūtinė jonizacija (griūtinis dauginimasis) ir fotojonizacija tai yra pagrindiniai reiškiniai, kurie sukelia optinį pažeidimą.



7 pav. Energiniai lygmenys

1.2.1 Griūtinė jonizacija

Griūtinis laidumo juostai priklausančių elektronų dauginimasis prasideda laisvajam krūvininkui sugėrus šviesos kvantą ir po to įvykstančios smūginės jonizacijos. Tokią jonizaciją gali sukelti tik tie laisvieji krūvininkai, kurie turi dideles energijas (apie 2-3 kartus didesnes už draustinės juostos tarpo energiją). Griūtinį medžiagos pažeidimo mechanizmą galima įsivaizduoti taip: bet kurioje medžiagoje egzistuoja tam tikras nedidelis kiekis laisvųjų elektronų, esančių laidumo juostoje. Apšviečiant medžiagą lazerio spinduliuote laisvieji elektronai įgyja energijos ir yra greitinami. Tokie elektronai, įgiję pakankamai papildomos energijos, gali išlaisvinti surištuosius elektronus iš valentinės juostos per smūginę jonizaciją, tokiu būdu sukurdami dar daugiau laisvųjų elektronų (8 pav.). Dalis energijos, kurią įgyja

laisvasis elektronas, sunaudojama lokaliam medžiagos kaitinimui, dėl to įvyksta optinis medžiagos pažeidimas [16].



8 pav. Laisvųjų elektronų sugertis (a), smūginė jonizacija (b) [16]

1.2.2 Daugiafotonė jonizacija

Paprastai išskiriami du fotojonizacijos atvejai: tunelinė jonizacija ir daugiafotonė jonizacija (sugertis). Šie procesai priklauso nuo lazerio spinduliuotės intensyvumo ir dažnio. Fotojonizacijos metu, elektronas medžiagoje yra tiesiogiai sužadinamas lazerio spinduliuotės elektriniu lauku. Artimojo ultravioleto arba artimosios infraraudonosios srities fotonas neturi pakankamo energijos kiekio sužadinti elektroną skaidrioje terpėje, perkeldamas jį iš valentinės į laidumo juostą, tam pasiekti reikia keletos fotonų (9 pav.) [16].



9 pav. Tuneliavimas (a), tarpinis režimas (b), daugiafotonė jonizacija (c) [16]

Tunelinės jonizacijos (9 pav. (a)) metu lazerinės spinduliuotės elektrinis laukas silpnina Kulono jėgą, rišančią valentinį elektroną ir atomą. Tačiau jei elektrinis laukas pakankamai stiprus (>10¹² W/cm²), kuloninė jėga gali "neišlaikyti" elektrono ir jis taps laisvu. Tunelinis jonizacijos režimas pasireiškia esant nedideliam optinės spinduliuotės dažniui, bet esant dideliam intensyvumui.

Daugiafotonė sugertis vyksta kai elektronas sugeria keletą fotonų vienu metu. Jei sugertų fotonų bendra energija viršija jonizacijos potencialą (dujoms) arba draustinės juostos plotį (kondensuotoms terpėms), elektronas tokiu atveju yra išlaisvinamas. Šis procesas vadinamas daugiafotone jonizacija (9 pav. (c)). Tokia jonizacija pasireiškia, kai intensyvumas yra

nedidelis, tačiau vieno fotono energija (dažnis) yra didelė. Taip pat galimas ir tarpinis jonizacijos atvejis, kai elektronas, sugėręs keletą fotonų vienu metu, tuneliuoja (9 pav. (b)) [16]. Kuris fotojonizacijos mechanizmas konkrečiomis sąlygomis dominuoja, galima nustatyti žinant medžiagos ir spinduliuotės parametrus ir įvertinant vadinamąjį Keldišo (Keldysh) parametrą γ :

$$\gamma = \frac{\omega}{e} \sqrt{\frac{mcn\varepsilon_0 E_g}{I}};\tag{1}$$

čia *m* ir *e* žymi elektrono masę ir krūvį, ω – spinduliuotės dažnis, *I* – spinduliuotės intensyvumas, *c* - šviesios greitis, *n* - medžiagos lūžio rodiklis, *E*_g – draustinės juostos tarpą atitinkanti energija.

1.3 Lazerinės spinduliuotės sukeltas pažeidimo slenkstis

Lazerinės spinduliuotės sukeltas medžiagos optinio pažeidimo slenkstis, plačiau žinomas anglišku akronimu LIDT (angl. *laser-induced damage threshold*) yra apibrėžiamas didžiausiu į medžiagą kritusios elektromagnetinės spinduliuotės energijos tankiu (energijos tankis – impulso energija, tenkanti ploto vienetui, dimensija J/cm²), kuriam esant medžiaga dar nėra suardoma ar kitaip negrįžtamai pakeičiama šviesos [17]:

$$H = \frac{E_{max}}{A_{eff}};$$
(2)

čia E_{max} – kritusio į medžiagą impulso energija, kuri dar nesukelia pažeidimo, A_{eff} – efektyvusis pluošto plotas.

Optinio pažeidimo slenkstis yra nuo įvairių veiksnių (žr. 1 lentelė) priklausantis dydis.

Spinduliuotės bangos ilgis	Vis didėjant fotonų energijai: pažaidos	
	slenkstis mažėja [18]	
Pasikartojimo dažnis	Didinant impulsų pasikartojimo dažnį:	
	pažaidos slenkstis mažėja [19]	
Impulsų trukmė	Ilgėjant impulsų trukmei: pažaidos slenkstis	
	mažėja [20]	

1 lentelė. Optinio pažeidimo slenksčiui įtaką darantys faktoriai

Optinio pažeidimo slenkstis (LIDT) nustatomas pagal ISO 11254-2 [21] ir ISO 11254-1 [22] standartų procedūras. Šie standartai nurodo, kad esant tam pačiai spinduliuotės energijos

tankiui bandinys turi būti paveiktas ne mažiau kaip dešimt skirtingų sričių. Padidinus ar sumažinus lazerio spinduliuotės energijos tankį, matavimai ir vėl yra kartojami.

Optiniai pažeidimai atsiranda dėl įvairių veiksnių (pvz. defektų), todėl esant identiškoms bandinio ekspozicijos sąlygoms, kai kurios sritys yra pažeidžiamos, o kai kurios ne. Eksperimentiškai optinių komponentų pažaidos lazerio spinduliuotei slenkstis nustatomas brėžiant pažaidos tikimybės priklausomybės kreivę nuo energijos tankio (10 pav.(a)). Skaičiuojant pažeistas bei nepažeistas vietas įvertinama pažeidimo tikimybė (10 pav.(b)). Lazerinės spinduliuotės sukeltas slenkstis nustatomas tiese aproksimuojant tikimybių vertes, kurios yra nelygios 0 bei 1, o slenksčio vertė nustatoma ten, kur tiesė kerta abscisių ašį (10 pav.(b)). Nustatant pažeidimo slenkstį svarbu, kad išsiskirtų 0% bei 100% pažeidimo tikimybės.



10 pav. (a) bandinio paviršiaus būsenos paveikus lazerio spinduliuote, (b) tikimybinė pažeidimo kreivė [21]

Pažeista ar nepažeista bandinio paviršiaus sritis nustatomos stebint bandinį optiniu interferencinio kontrasto mikroskopu arba optiniu mikroskopu, naudojant tamsaus lauko režimą. Pats mikroskopo didinimas turi būti ne mažesnis nei 100-150 kartų. Jei lazeriu paveiktose srityse joks pakitimas nepastebimas, sakoma, kad pažeidimas neįvyko.

Kai kiekviena analizuojamo bandinio sritis paveikiama vienu lazerio impulsu, tai eksperimentiškai nustatytas lazerinio pažeidimo slenkstis vadinamas 1-į-1 slenksčiu, jei kiekviena bandinio sritis paveikiama serija sudaryta iš S identiškų pasikartojančių lazerio impulsų, tai lazerinio pažeidimo slenkstis vadinamas S-į-1 slenksčiu. S-į-1 lazerinio pažeidimo slenkstis bus mažesnis nei 1-į-1, nes kartojantis impulsams toje pačioje vietoje dėl įvairių optinio komponento degradacijos mechanizmų gali atsirasti pažeidimai, kurių nebuvo po pirmojo impulso poveikio. Viena iš priežasčių dėl ko tai įvyksta yra defektų inkubacija [23], tai yra medžiagos pakitimas dėl lazerio spinduliuotės poveikio. Jis pasireiškia dėl gardelės defektų ir sugerties centrų kūrimosi, kai padidėjus spinduliuotės sugerčiai medžiagoje dėl jos atsiranda pažeidimas [24].

1.4 Optinio pažeidimo priklausomybė nuo lazerio impulso trukmės ir pažeidimų morfologija vienasluoksnėse dangose

1.4.1 Kai lazerio impulso trukmė nuo 10⁻⁹ s iki 10⁻¹² s

Lazerio impulso trukmėms esant didesnėms nei keliasdešimt ps, daugiafotoniai procesai yra silpni. Lazerinės spinduliuotės energija šiluminės difuzijos būdu yra perduodama medžiagos gardelei, tokiu atveju pažeidimas vyksta dėl sugerties centrų dangoje. Esant galingiems spinduliuotės impulsams, per trumpiau negu 10⁻⁹ s pasiekiama daugiau nei 10⁴ laipsnių temperatūra ir kelių GPa slėgis. Dėl didelės sugerties centro temperatūros susiformuoja išsilydžiusios medžiagos sluoksnis [25], kuriame jau pradeda vykti griūtinis elektronų dauginimosi procesas, inicijuotas ir palaikomas lazerio spinduliuotės. Tai: pagrindinis optinių pažeidimų mechanizmas, pasireiškiantis 10⁻¹² s - 10⁻⁹ s impulso trukmėms. Nanosekundiniams ir pikosekundiniams lazerio impulsams, pažeidimo slenksčio priklausomybė nuo impulso trukmės yra aprašoma kvadratinės šaknies dėsniu:

$$LIDT(ns)\sqrt{\tau_{ps}} = LIDT(ps)\sqrt{\tau_{ns}}.$$
(3)

M. Zhu ir kiti mokslininkai tyrė kokia yra pažeidimų morfologija vienasluoksnėse HfO₂ (11 pav.), Al₂O₃ ir SiO₂ (12 pav.) dangose [26]. Visos dangos buvo suformuotos elektronpluoščio garinimo technologija "Leybold 1110" dengimo įrenginiu. Lazerinės spinduliuotės sukeltas medžiagos optinio pažeidimo slenkstis (LIDT) buvo įvertintas 1-į-1 slenksčiu, esant 1064 nm lazerio bangos ilgiui ir 12 ns impulso trukmei, o patys pažeidimai buvo stebimi su elektroniniu mikroskopu "Carl Zeiss AURIGA CrossBeam".



11 pav. Lazerio pažeidimų morfologijos HfO₂ vienasluoksnių dangų, nusėdusių ant BK7 stiklo esant (a) 13,4 J/cm², (b) 21,1 J/cm² ir (c) 33,8 J/cm² energijos tankiui [26]

Mokslininkai savo straipsnyje pastebėjo, kad vienasluoksnėse HfO₂ lazerio pažeidimo vietoje atsirasdavo krateriai, jų diametras vis didėdavo esant didesniam lazerio energijos srautui (11 pav. (b) ir (c)). Aplink kraterius taip pat buvo galima pastebėti ir susidarusias poras, kurios susiformavo lazerio pažaidos spindulio diametre. Susidariusius gilesnių kraterių atsiradimo priežastį tyrimo autoriai siejo su padėklo BK7 defektais, kadangi vienasluoknės dangos nėra storos, padėkle esantys defektai gali daryti didesnę įtaką nei daugiasluoksnėse dangose. Pažeidimas dėl padėklo defektų buvo stebimas ir SiO₂ vienasluoksnėje dangoje (12 pav. (b)). Taip pat ir pačiose dangose gali atsirasti defektų, kurie gali sukelti pažeidimą (jų vietoje taškai) kaip, kad atsirado Al₂O₃ vienasluoksnėje dangoje (12 pav. (a)).



12 pav. Lazerio pažeidimų morfologijos: Al₂O₃ vienasluoksnės dangos esant (a) 17,8 J/cm² energijos tankiui ir SiO₂ vienasluoksnės dongos esant (b) 21,1 J/cm²energijos tankiui [26]

L. Smalakys ir kiti mokslininkai taip pat tyrė kokia yra pažeidimų morfologija vienasluoksnėse 361 nm SiO₂ ir 299 nm HfO₂ storio dangose (13 pav.) [27]. Lazerinės spinduliuotės sukeltas medžiagos optinio pažeidimo slenkstis (LIDT 1 į 1) buvo nustatomas naudojant Nd:YAG lazerį, esant 355 nm bangos ilgiui ir 4,8 ns impulsų trukmei. Galima pastebėti, kad pažeidimų vietose susidarė taškai (vienasluoksnėje SiO₂), o kartu su jais ir pažeista platesnė nei taškai vieta hafnio vienasluoksnėje dangoje, kuri atsirado dėl išsilydžiusios medžiagos šioje srityje.



13 pav. Lazerio pažeidimų morfologijos: A) SiO₂ ir B) HfO₂ vienasluoksnių dangų [27]

1.4.2 Kai lazerio impulso trukmės < 10⁻¹² s

Impulso trukmėms esant mažesnėms nei kelios ps, optinis dielektrinės medžiagos pažeidimas vyksta dėl netiesinės sugerties, kuri pasireiškia greičiau nei šiluminė difuzija kietajame kūne [20,21]. Pradeda vykti griūtinis elektronų dauginimasis laidumo juostoje, kol pasiekiamas kritinis elektronų plazmos tankis, kurios dažnis tampa artimas lazerio spinduliuotės dažniui. Ši plazma stipriai sugeria spinduliuotės energiją ir įvyksta laisvųjų krūvininkų sugertis (angl. free-carrier absorption) kaip metale. Šis greitas procesas, greitesnis už šiluminę difuziją, sukelia medžiagos paviršiaus abliaciją ir jau negrįžtamus pakitimus tūryje. V. Yuan ir kiti mokslininkai savo darbe [28] tyrę pažeidimų morfologiją paveikiant vienasluoksnę HfO₂ danga, užgarintą elektronpluoščio garinimo technologija, femtosekundiniams impulsams (50 fs) pastebėjo, kad pažeidimai įvyksta dėl abliacijos dangos paviršiuje, todėl dangoje esantys defektai nebuvo pagrindiniai pažeidimų šaltiniai (14 pav.).



14 pav. Lazerio inicijuotas pažeidimas HfO_2 vienasluoksnėje dangoje esant 2 J/cm² ($\lambda \sim 800$ nm) energijos tankiui, 50 fs impulso trukmei [28]

2. Metodinė dalis

2.1 Padėklų paruošimas ir vienasluoksnių skulptūrinių dangų garinimas

Vienasluoksnės skulptūrinės dangos buvo garinamos ant lydyto kvarco (angl. "fused silica" – FS) padėklų (diametras 25,4 mm), prieš tai juos specialiai nuėsdinus ir nuvalius. Tokiu paruošimu buvo siekiama padidinti atsparumą lazerinei spinduliuotei, nes šios procedūros padeda dalinai išvalyti popaviršinius defektus.

Šiame darbe vienasluoksnių dangų auginimui ir optinio atsparumo priklausomybės nuo porėtumo tyrimui buvo pasirinkta garinimo elektronų pluoštu technologija (15 pav.) ir garinimo pasvirusiu kampu (GLAD) metodas. Eksperimentų metu naudojami vakuuminiai garinimo įrenginiai "Sidrabe" (aliuminio oksido garinimui) ir "VERA 1100" (niobio oksido garinimui). Abiejose vakuuminėse kamerose yra sumontuota žingsninių variklių sistema, kuri yra naudojama kontroliuojant polinkio kampą ir padėklo sukimą aplink savo ašį garinimo metu. Taip pat kiekviename prietaise įmontuotas kvarcinis monitoringas leidžia procesų metu stebėti užgaravusios medžiagos storį ir augimo greitį. Labai svarbus parametras užgaravusios dangos storio matavimui yra koeficientas, nusakantis kiek skiriasi ant kvarcinio kristalo ir padėklo užgaravusios medžiagos kiekis (angl. "tooling factor" – TF). Kadangi procesų metu kvarcinio monitoringo sistema ir padėklas yra skirtingame aukštyje (kartu ir padėklo kampas yra keičiamas), ant jų užgaruoja skirtingas garinamos medžiagos kiekis. Tad TF kalibravimas skirtingoms medžiagoms ir garinimo kampams yra būtinas uždavinys, kuris buvo atliekamas užgarinant kontrolines aliuminio oksido ir niobio oksido dangas. Šis parametras lemia, kad ant padėklo yra užgarinamas norimas medžiagos storis.



15 pav. Elektronpluoščio garinimo principinė schema [29]

Prieš garinant, optiniams matavimams skirtas dangas, buvo sumodeliuotas elektrinio lauko pasiskirstymas ir vienasluoksnių dangų fiziniai storiai (žr. 2 lentelė) buvo parinkti tokie, kad optinis storis būtų lygus bangos ilgio, kuriam skirta danga (532 nm), penkiems ketvirčiams (16 pav.). Tokiu atveju dangoje vyksta konstruktyvi interferencija ir dalis spinduliuotės yra atspindima. Modeliavimai buvo atliekami su "Optilayer" programa, kuria galima sumodeliuoti vienasluoksnes ir daugiasluoksnes dangas, sudarytas iš įvairių medžiagų, tokių kaip dielektrikų, metalų ir įvairių mišinių, taip pat galima įvertinti optinių dangų savybes: spoliarizacijos, p-poliarizacijos ir nepoliarizuotos šviesos atspindėjimą, pralaidumą, absorbciją, taip pat grupinių greičių dispersiją (GDD), elektrinio lauko pasiskirstymą dangos viduje ir kt.



16 pav. Sumodeliuotas elektrinis laukas su "OptiLayer" programa

Visų garinimų procesų metu buvo palaikomas vienodas dangos formavimosi greitis – 3 Å/s, garinimų medžiagomis buvo pasirinkti metalo oksidai: aliuminio oksidas (Al₂O₃) ir niobio oksidas (Nb₂O₅), atitinkamai jų lūžio rodikliai yra $n_{(Al2O3)} = 1,77$ ir $n_{(Nb2O5)} = 2,37$ bangos ilgiui 532 nm. Niobio dangos po garinimų buvo atkaitintos 300° C temperatūroje 1 val. tam, kad pilnai oksiduotųsi. Taip pat siekiant apsaugoti užgarintas dangas nuo aplinkos poveikio, jos buvo laikomos eksikatoriuje (inde, kuriame yra silikagelio granulių, sugeriančių vandens garus). Žemiau esančioje 2 lentelėje pateikti eksperimentų duomenys, skirti optinio atsparumo priklausomybės nuo porėtumo tyrimui.

Medžiaga	Garinimo kampas, °	Vakuumas, mbar	Garinimo greitis, Å/s	Atkaitinimas po garinimo: 300° C, 1 val.	Fiziniai storiai, nm
Aliuminio oksidas	0	1.6*10-5	3	-	436
	50	1.7*10-5	3	-	445
	60	2*10-5	3	-	460
	70	1.8*10-5	3	-	473
	80	1.3*10-5	3	-	533
Niobio oksidas	0	1.6*10-4	3	+	314
	50	1.6*10-4	3	+	364
	60	1.6*10-4	3	+	390
	70	1.6*10-4	3	+	405
	80	1.6*10-4	3	+	433

2 lentelė. Eksperimentų duomenys

2.2 Optiniai matavimai

2.2.1 Spektrofotometro matavimai

Spektrofotometras yra skirtas matuoti optinį pralaidumą ir atspindį ultravioletiniame, regimajame ir infraraudonajame šviesos bangų diapozonuose. Spektroskopiniai matavimai buvo atlikti su spektrofotometru, matuojant nuo 300 nm iki 900 nm ruože ir nustatant vienasluoksnių skulptūrinių dangų pralaidumą ir atspindį.

Gauti spektriniai duomenys buvo apdorojami "OptiChar" programa, skirta vienasluoksnių optinių dangų charakterizavimui. Šioje programoje naudojami įvairūs modeliavimo skaičiavimai, kurie leidžia tiksliai nustatyti optines konstantas, pavyzdžiui: lūžio rodiklį.

2.2.1 Interferometro matavimai

Interferometras yra taikomas optiniams matavimams, nustatant mažų matmenų neatitikimus ar paviršiaus nelygumus. Šio darbo metu formuojamos struktūros buvo koloninės, tad šiais matavimais siekta nustatyti nusodinto sluoksnio plokštiškumą, nes įtempiai dangose gali stipriai pakenkti jos optinėms ir fizinėms savybėms, o kartu ir galimybei sėkmingai dangą

panaudoti lazerinėje sistemoje. Užgarintų vienasluoksnių dangų įtempiams įvertinti buvo pasirinkta Stoney formulė [30]:

$$\sigma = \frac{1}{6} \left(\frac{1}{R_2} - \frac{1}{R_1} \right) \frac{E}{(1-\nu)} * \frac{t_s^2}{t_f}; \tag{4}$$

čia σ – įtempis, R_1 – bandinio kreivumas prieš garinimą, R_2 – kreivumas po garinimo, E – Jungo modulis (7,17*10¹⁰ Pa), v – Puasono santykis (0,17), t_s – pagrindo storis (1 mm), t_f – dangos storis.

2.2.1 Optinio mikroskopo matavimai

Darbo metu analizuoti pažeidimų morfologijai buvo naudojamas optinis mikroskopas "Olympus BX41". Įrenginio didinimas siekia nuo 10 iki 500 kartų, o skiriamoji geba: 150 nm. Visų šiame darbe padarytų pažeidimų nuotraukų didinimas siekė 10x ir 40x kartų.

2.3 Struktūriniai matavimai

2.3.1 Lazerio indukuotos pažaidos slenksčio (LIDT) matavimai

Skulptūrinių vienasluoksnių dangų lazerinės spinduliuotės atsparumo slenksčių nustatymams buvo naudojamas stendas su impulsiniu Nd:YAG lazeriu ($\tau \sim 3$ ns, $\nu = 15$ Hz, pluošto diametras: 84 µm), kuris veikia nanosekundiniame režime, 532 nm bangos ilgiui. Darbo metu buvo taikoma 1 į 1 metodika.

Matavimams naudotą optinės sistemos schemą (17 pav.) sudaro įvairūs optiniai komponentai: veidrodžiai (M), erdvinis filtras (SF), skirtas Gauso pluoštui formuoti, energijos matuoliai (PD1 ir PD2). Taip pat slopintuvas, kuris sudarytas iš $\lambda/2$ fazinės plokštelės ir poliarizatoriaus (P), skirtas keisti spindulio impulso energijai, nekeičiant spindulio formos ar impulso trukmės. Atliekant lazerio indukuotos slenksčio (LIDT) matavimus, dėl lazerio spindulio savifokusacijos, kita bandinio pusė galėjo pažeisti, todėl papildomai buvo įmontuotas mažo atstumo fokusuojantis lęšiukas (L1), o išsklaidomai šviesai surinkti naudojamas lęšiukas (L2). Visa lazerinė sistema buvo kontroliuojama kompiuteriu.



17 pav. Lazerio indukuotos pažaidos slenksčio (LIDT) matavimų stendo schema [31]

2.3.2 Skenuojančio elektroninio mikroskopo (SEM) matavimai

Skenuojantį elektronų mikroskopą (SEM) sudarantys pagrindiniai komponentai yra elektronų šaltinis, elektromagnetiniai lęšiai ir elektronų detektoriai (18 pav.). Elektronų pluoštas pereidamas pro lęšius yra pagreitinamas, sufokusuojamas ir vėliau patenka ant tiriamo bandinio paviršiaus. Pats bandinys išspinduliuoja antrinius elektronus, kurie yra užregistruojami elektronų detektoriumi [32].



18 pav. Skenuojančio elektronų mikroskopo principinė schema [32]

Įvairiais kampais užgarintų aliuminio ir niobio oksido dangų struktūroms įvertinti naudotas skenuojantis elektronų mikroskopas. SEM matavimams skirti bandiniai buvo užgarinti tų pačių garinimo procesų metu ant silicio plokštelių, kad būtų galima stebėti porėtos dangos formavimąsi ir matytųsi koloninė dangos struktūra. Gautos skenuojančio elektronų mikroskopo nuotraukos buvo analizuojamos naudojant programą "ImageJ". Eksperimentinis dangų storis nustatytas išmatavus 5 skirtingose dangos vietose nubrėžtas linijas ir išvedus jų vidurkį.

3. Rezultatai ir jų aptarimas

3.4 Skenuojančio elektroninio mikroskopo rezultatai

Tiriamojo darbo metu buvo užgarintos aliuminio ir niobio oksido skulptūrinės dangos skirtingais kampais (0°, 50°, 60°, 70° ir 80°), pasinaudojant GLAD metodu. Siekiant pamatyti susidariusias optinių dangų struktūras buvo padarytos nuotraukos su skenuojančiu elektroniniu mikroskopu. Aliuminio oksido dangose kolonos pradėjo formuotis nuo 50° kampu garintos dangos (19 pav), didėjant garinimo kampams: 60°, 70° ir 80° kolonos susiformuodavo vis storės (pvz.: 50° kolonos plotis siekė apie 25 nm, 60° apie 27 nm). Taip pat galima pastebėti, kad koloninės struktūros augo netolygiai: 70° kampu garintos dangos dalis kolonų nustojo formuotis iki vienasluoksnės dangos pusės storio, o 80° kampu užgarintos dangos kolonos plotis ties dangos apačia siekė apie 23 nm, o ties dangos paviršiumi apie 42 nm. Galima išskirti, kad 80° kampu užgarintos dangos struktūroje tarp kolonų aiškiausiai matomi tarpai, o iš SEM nuotraukų iš viršaus (20 pav.) taip pat pastebima, kad tokiam kampui esant susiformavo kolonų salelės ir atsirado didesni tarpai tarp jų.



19 pav. Skulptūrinių aliuminio oksido dangų, užgarintų skirtingais kampais, gautų struktūrų skersinės SEM nuotraukos



20 pav. Skulptūrinių aliuminio oksido dangų, užgarintų skirtingais kampais, gautų struktūrų SEM nuotraukos iš viršaus

Niobio oksido dangoms susiformavusius kolonų kontūrus jau galima buvo pastebėti 50° kampu užgarintai dangai (21 pav.) ir jų plotis siekė apie 22 nm. Taip pat esant didesniems garinimo kampams, jos vis platėjo ir palyginus su aliuminio dangomis atitinkamiems kampams buvo storesnės: 60° kampu užgarintos niobio oksido kolonos plotis siekė apie 30 nm, 70° kampu užgarintos dangos siekė apie 41 nm, o 80° kampu užgarintos dangos siekė apie 70 nm ties dangos paviršiumi, ties apatine dangos dalimi apie 38 nm. Taigi kolonos kaip ir aliuminio dangoje augo netolygiai. Taip pat pasižiūrėjus į niobio oksido dangų nuotraukas iš viršaus (22 pav.) galima pamatyti kolonų saleles, jau pradėjusias formuotis nuo 60° kampu užgarintos dangos ir didėjant kampui: tarpai tarp salelių retėjo.



21 pav. Skulptūrinių niobio oksido dangų, užgarintų skirtingais kampais, gautų struktūrų skersinės SEM nuotraukos



22 pav. Skulptūrinių niobio oksido dangų, užgarintų skirtingais kampais, gautų struktūrų SEM nuotraukos iš viršaus

Siekiant įverti užgarintų dangų porėtumą buvo naudojama kompiuterinė programa "ImageJ". Šia programa buvo analizuojamos SEM nautraukos iš viršaus (20 pav. ir 22 pav.). Gauti rezultatai parodo, kad niobio dangos buvo porėtesnės ties visais kampais išskyrus 80° kampą (22 pav.), ką galima pastebėti ir iš SEM skersinių nuotraukų. Tačiau aliuminio oksido dangos užgarintos 50° kampu porėtumas nedaug skyrėsi nuo 0° kampu užgarintos dangos, pažvelgus į SEM nuotraukas darytas iš viršaus (20 pav.) ir skersai (19 pav.), struktūriškai taip pat skirtumų nematyti.



23 pav. Skulptūrinių aliuminio ir niobio oksidų dangų porėtumo priklausomybė nuo garinimo kampo

Taip pat naudojant "ImageJ" programą buvo nustatyti eksperimentų metu gautų skulptūrinių aliuminio ir niobio dangų storiai (žr. 3 lentelė). Būtent eksperimentiniai storiai buvo naudojami modeliuojant optinių dangų spektrus.

Medžiaga	Garinimo kampas, ⁰	Fiziniai storiai, apskaičiuoti prieš garinimą, nm	Sumodeliuoti užgarintų dangų storiai, nm	Storiai gauti iš SEM nuotraukų, nm
	0	436	422	410
Aliuminio oksidas	50	445	389	464
	60	460	501	480
	70	473	538	510
	80	533	535	532
Niobio oksidas	0	314	335	345
	50	364	393	399
	60	390	385	389
	70	405	390	388
	80	433	425	415

3 lentelė. Aliuminio ir niobio oksidų, garintų skirtingais kampais dangų storiai

3.2 Spektrofotometro rezultatai

Darbo metu su spektrometru buvo išmatuoti aliuminio ir niobio oksido vienasluoksnių dangų, nusodintų skirtingais kampais (0°, 50°, 60°, 70°, 80°), pralaidumo ir atspindžio spektrai (24 pav. ir 25 pav.). Iš gautų aliuminio oksido dangų rezultatų galima pastebėti, kad esant didesniam užgarintos dangos kampui pralaidumas didėjo, o atspindys mažėjo (24 pav.). Tokią pačią tendenciją galima pastebėti ir niobio dioksido dangoms (25 pav.), šį rezultatą galima paaiškinti gautomis SEM nuotraukomis, kurios parodo kokia yra užgarintos dangos struktūra (19 pav. ir 21 pav.). Didėjant garinimo kampui struktūros darėsi vis porėtesnės: atsirado vis didesni tarpai tarp kolonų, todėl danga lengviau praleido šviesą ir atspindėjo mažiau. Ypatingai tai galima pastebėti aliuminio oksido vienasluoksnei dangai užgarintai 80° kampu ir palyginus ją su niobio oksido danga, užgarinta tokiu pačiu kampu: aliuminio oksido dangos pralaidumas siekė apie 96 % (80°, 532 nm bangos ilgiui), atitinkamai niobio oksidui pralaidumas siekė apie 92 %. Būtent iš SEM nuotraukų gautų tankio rezultatų (23 pav.) galima pastebėti, kad aliuminio danga, užgarinta 80° kampu, yra porėtesnė už niobio dangą, užgarintą esant tam pačiam pasvirimui kampui. Tad mažesnis dangos tankis padidina dangos pralaidumą ir priešingai: didesnis tankis padidina dangos atspindį, kaip galima pastebėti iš gautų spektrų rezultatų niobio ir aliuminio oksido dangoms (24 pav. ir 25 pav.).



24 pav Vienasluoksnių skulptūrinių aliuminio oksido dangų, užgarintų skirtingais kampais, pralaidumo (P) ir atspindžio (A) spektrai



25 pav. Vienasluoksnių skulptūrinių niobio oksido dangų, užgarintų skirtingais kampais, pralaidumo (P) ir atspindžio (A) spektrai

Didesnis dangos tankis reiškia, kad dangoje yra mažiau tarpų, kuriuose gali kauptis oras ir apskaičiuojamas efektyvusis lūžio rodiklis yra didesnis (27 pav. aliuminio oksido dangos užgarintos 0° kampu). Esant didesniam dangos efektyviajam lūžio rodikliui, jis gali viršyti

padėklo FS lūžio rodiklį, kuris paprastai yra apie n = 1,5, todėl atsispindinčios šviesos kiekis nuo paviršiaus padidėja, nes šviesos pluoštai, atsispindėję nuo pagrindo ir nuo vienasluoksnės dangos, stiprina vienas kitą sukurdami konstruktyvią interferenciją, tad yra gaunamas didesnis atspindys. Todėl 0° ir 50° kampu užgarintos aliuminio oksido dangos turėjo didesnį atspindį negu 70° ir 80° kampu garintos dangos, nes efektyvieji lūžio rodikliai buvo didesni nei padėklo lūžio rodiklis. Taip pat priešingai: esant vienasluoksnei dangai su mažesniu lūžio rodikliu nei padėklo, gaunamas didesnis pralaidumas. Iš grafiko (24 pav.) galima pastebėti, kad padėklo FS pralaidumas yra mažesnis nei aliuminio oksido dangų, užgarintų septyniasdešimt ir aštuoniasdešimt laipsnių kampais, tačiau su niobio oksido dangomis panašus rezultatas nebuvo gautas, nes aliuminio oksido dangų 70° ir 80° kampu garintų dangų gauti efektyvieji lūžio rodikliai buvo mažesni už padėklo lūžio rodiklį: 70° n = 1,43 (532 nm bangos ilgiui) ir 80° n = 1,27 (532 nm bangos ilgiui).

Optinės dangos gali ne tik atspindėti ir praleisti spinduliuotę, bet ir ją sugerti arba išsklaidyti. Šie nuostoliai buvo įvertinti ir darbo metu. Iš (26 pav.), paveikslėlio galima pastebėti, kad aliuminio oksido vienasluoksnių dangų nuostoliai yra minimalūs ir darė nedidelę įtaką pralaidumo ir atspindžio spektrams: garintoms visais kampais dangoms ji nebuvo didesnė nei 0,3 %. Tačiau niobio oksido dangų atveju, spektro ruože nuo 400 nm iki 600 nm nuostoliai buvo kiek didesni ir ypatingai 60⁰ ir 80⁰ garintoms dangoms.



26 pav. Vienasluoksnių skulptūrinių aliuminio ir niobio oksido dangų, užgarintų skirtingais kampais, nuostolių grafikai

Gauti spektriniai duomenys buvo apdoroti "OptiChar" programa ir modeliuojant gautos lūžio rodiklio priklausomybės nuo bangos ilgio (27 pav.). Palyginus eksperimentinius rezultatus su kitų tyrėjų duomenimis [7] buvo gauta tokia pati tendencija abejoms skulptūrinėms vienasluoksnėms metalo oksidų dangoms: didėjant garinimo kampui lūžio rodiklis mažėjo. Eksperimentiniai lūžio rodikliai esant 532 nm bangos ilgiui aliuminio ir niobio oksido dangų (žr. 4 lentelė), užgarintų 0° kampu yra panašūs į teorinius grynų medžiagų: $n_{(Al2O3)} = 1,77$ ir $n_{(Nb2O5)} = 2,37$ (bangos ilgiui 532 nm), o didėjant garinimo kampui mažėja. Tad, didėjant garinimo kampui kartu didėja ir porėtumas, o apskaičiuojamas efektyvusis lūžio rodiklis tampa mažesnis.



27 pav. Vienasluoksnių skulptūrinių aliuminio ir niobio oksido dangų, užgarintų skirtingais kampais, lūžio rodiklių priklausomybės nuo bangos ilgio

	0°	50°	60°	70°	80°
Aliuminio oksidas	1,55	1,51	1,45	1,43	1,27
Niobio oksidas	1,93	1,74	1,67	1,57	1,49

4 lentelė. Lūžio rodikliai esant 532 nm bangos ilgiui

3.3 Interferometro rezultatai

Įtempiai optinėse dangose gali stipriai pakenkti dangos optinėms ir fizinėms savybėms, todėl šio tyrimo metu interferometru buvo išmatuoti vienasluoksnių metalo oksidų dangų paviršių kreivumai. Pasinaudojus Stoney formule (žr. (4) formulė) buvo apskaičiuoti liekamieji įtempiai užgarintose dangose (28 pav.). Liekamieji įtempiai susideda iš medžiagos vidinių įtempių σ_v , išorinių įtempių σ_v bei šiluminių įtempių σ_t . Vidiniai tempiamieji įtempiai verčia optinį elementą įsigaubti į vidų, o gniuždomieji – į išorę.

Svarbu paminėti, kad susidarę vidiniai įtempiai užgarintoje medžiagoje priklauso nuo dangos porėtumo t.y. dangos mikrostruktūros: įvairių didžių dalelės, jungdamosi tarpusavyje netolygioje struktūroje, patiria deformaciją, dėl to pasireiškia tempiamieji įtempiai. Porėtesnės optinės dangos būtent pasižymi tempiamaisiais įtempiais, kurie rašomi su minuso ženklu. Kai porėtumas nedidelis – danga pasižymi gniuždomaisiais įtempiais, jie būna su pliuso ženklu [34, 35]. Eksperimentų metu užgarintų vienasluoksnių aliuminio ir niobio oksido dangų visi apskaičiuoti įtempiai buvo tempiamieji (28 pav.). Tačiau galima pastebėti, kad didėjant garinimo kampui įtempiai mažėjo beveik visoms aliuminio ir niobio oksido dangoms, nors porėtumas didėjo, šiam rezultatui galėjo turėti įtakos matavimų paklaidos. Niobio oksidu užgarintos dangos buvo atkaitintos 1h 300° C temperatūroje, tad atkaitinimo procesas sumažino įtempius, kaip matosi dangoms užgarintoms 0° ir 80° kampais ir palyginus jas su aliuminio oksidu užgarintomis tokiu pačiu kampu dangomis. Tačiau užgarintoms 50° ir 60° kampais niobio dangoms atkaitinimas buvo nepakankamas, todėl dangos turėjo arba ilgiau būti pašildytos arba pabūti aukštesnėje temperatūroje.



28 pav. Vienasluoksnių skulptūrinių aliuminio ir niobio oksido dangų, užgarintų skirtingais kampais, įtempių priklausomybė nuo porėtumo

3.4 Vienasluoksnių skulptūrinių aliuminio ir niobio oksido dangų pažeidimų rezultatai

Vienasluoksnių porėtų aliuminio ir niobio oksido dangų lazerinės spinduliuotės atsparumo slenksčių nustatymams buvo naudojamas impulsinis nanosekundinis Nd:YAG lazeris ($\tau \sim 3$ ns, $\nu = 15$ Hz), kuris veikia 532 nm bangos ilgiui. Gautų tikimybių rezultatai (29 pav.) labai aiškios tendencijos kaip nuo porėtumo priklauso dangų atsparumas neparodo, bet galima pastebėti, kad aliuminio ir niobio oksido dangoms, užgarintoms 0° kampu, pažeidimo tikimybė yra daug didesnė prie mažesnių energijos tankių. Tad neporėta struktūra yra mažiau atsparesnė lazerinei spinduliuotei. Vienas iš porėtos struktūros privalumų yra tarpai tarp kolonų: dangai besiplečiant (pvz.: apšvietus lazeriu) ji taip greitai nesuyra, nes kolonos turi erdvės plėstis, paveiktos šilumos. Tačiau tuose tarpuose gali kauptis aplinkoje esančios dalelės: vandens garai, dulkės. Siekiant kuo labiau sumažinti aplinkos įtaką visos užgarintos dangos buvo laikomos eksikatoriuje. Taip pat kaip ir ankstesniuose skyreliuose buvo paminėta niobio

dangos buvo atkaitintos, kad pilnai oksiduotųsi. Tad atkaitinti reikėjo galimai daugiau, ypač 60° ir 80° kampais užgarintas niobio oksido dangas, nes kaip buvo matyti iš nuostolių grafikų, nuostoliai šių dangų buvo didžiausia (ypatingai 400 – 600 nm ruože, lazerio spinduliuotė 523 nm) ir pažeidimų tikimybė prie mažesnių energijos tankių yra didesnė (29 pav.).



29 pav. Vienasluoksnių skulptūrinių aliuminio ir niobio oksido dangų, užgarintų skirtingais kampais, tikimybinės pažeidimų kreivės (Nd:YAG lazeris: $\lambda = 532$ nm, $\tau \sim 3$ ns, $\nu = 15$ Hz)

Palyginus pirmųjų pažeidimų energijos tankių vertes pateiktas 5 lentelėje aliuminio oksido ir niobio oksidų dangų, galima pamatyti, kad aliuminio oksido dangos ties visais kampais yra atsparesnės lazerinei spinduliuotei nei niobio oksido dangos. Toks rezultatas yra dėl to, kad aliuminio oksido lūžio rodiklis yra mažesnis nei niobio oksido, o mažesnio lūžio rodiklio medžiagos turi didesnį draustinės juostos tarpą ir yra labiau atsparios lazerinei spinduliuotei [36].

	0°	50°	60°	70°	80°
Aliuminio oksidas (E, J/cm ²)	32,29	38,5	41,27	37,19	54,81
Niobio oksidas (E, J/cm ²)	2,45	7,25	2,54	4,28	5,41

5 lentelė. Lazerio indukuotos pažaidos slenksčiai (LIDT)

Užgarintų porėtų dangų optinio atsparumo tendenciją aiškiau galima pastebėti iš lazerio indukuotos pažaidos slenksčio gautų verčių (žr. 5 lentelė). Aliuminio oksido dangoms: didėjant garinimo kampui (didėjant porėtumui) pažeidimo slenkstis taip pat didėjo. Išsiskyrė tik 70° kampu garintos dangos, jis siekė 31,19 J/cm² ir tapo mažesnis nei 50° ir 60° laipsnių garintų dangų. Tokį rezultatą galėjo nulemti dangoje esantys defektai. Kaip ir iš žemiau pateiktų morfologinių optinių pažeidimų aliuminio oksido dangoms nuotraukų (30 pav.) matyti, kad šiose dangose vyravo defektų nulemti pažeidimų taškai. Jie susiformuodavo ir prie žemesnių

energijos tankio verčių (mažesni taškai) ir prie didesnių energijos tankio verčių (platesni taškai). Panašią pažeidimų dėl defektų morfologiją: taškus vienasluoksnėms aliuminio oksido dangoms yra gavę ir kiti tyrėjai [26].



30 pav. Skulptūrinių aliuminio oksido dangų, užgarintų skirtingais kampais pažeidimų morfologijos, po nuotraukomis: garinimo kampas; energijos tankis ir optinio mikroskopo didinimas kartais

Niobio oksido dangoms taip pat porėtumui didėjant, optinis atsparumas didėjo. Tačiau dvejoms dangoms užgarintoms 50⁰ ir 60⁰ laipsnių kampais gauti duomenys skyrėsi nuo tendencijos. Pažvelgus į nuostolių grafiką niobio dangai (26 pav.) būtent išsiskiria šiais kampais užgarintos dangų rezultatai. Dangai užgarintai 50⁰ kampu nuostoliai ties 532 nm bangos ilgiu yra mažiausi iš visų dangų, o užgarintai 60⁰ kampu dangai, ties tuo pačiu bangos ilgiu, yra didžiausi. Tai galėjo nulemti didesnį atsparumą lazerinei spinduliuotei 50⁰ kampu garintai dangai ir mažesnį 60⁰ kampu garintai dangai. Tokį rezultatą gali padėti paaiškinti ir pažeidimų morfologijos gautos optiniu mikroskopu (31 pav.). Visų dangų jos gana panašios:

prie mažesnio energijos tankio susidarę taškai arba nedideli krateriai, o esant aukštesnei energijos tankio vertei krateriai darėsi platesni ir vyravo taškai jų viduje.



0°; 2,4 J/cm²; 40x



 $0^{\circ}; 8,7 \text{ J/cm}^2; 40x$



50 °; 7,3 J/cm²; 40x



50 °; 17,6 J/cm²; 40x



60°; 3,1 J/cm²; 40x



60 °; 10,8 J/cm²; 40x





70°; 20,5 J/cm²; 40x

80°; 17,5 J/cm²; 40x

31 pav. Skulptūrinių niobio oksido dangų, užgarintų skirtingais kampais pažeidimų morfologijos, po nuotraukomis: garinimo kampas; energijos tankis ir optinio mikroskopo didinimas kartais

Tai galėjo nulemti dėl nuostolių atsiradusi sugertis, nes aliuminio dangų morfologijos nuotraukose nematyti tokių pažeidimų (esant 532 nm bangos ilgiui kaip buvo pastebėta aliuminio dangų nuostoliai buvo minimalūs). Garintų 50° ir 60° kampu niobio dangų pažeidimo morfologijos irgi išsiskyrė: dėl mažesnių nuostolių, bet galimai dėl defektų atsiradę taškai 50° kampu garintai dangai ir neturintis ryškaus kontūro krateris atsiradęs 60° kampu užgarintoje dangoje (31 pav.).

Išvados ir rezultatai

- Suformuotų vienasluoksnių aliuminio ir niobio oksido dangų, naudojant skirtingus garinimo kampus (0°, 50°, 60°, 70° ir 80°), porėtumo rezultatuose galima buvo pastebėti, kad porėtesnės dangos buvo niobio oksido, esant garinimo kampams nuo 50° iki 70°. Tačiau abiejų medžiagų dangų porėtumas didėjo (nuo 0 % iki 41 %) kartu didėjant ir garinimo kampui.
- Iš dangų pralaidumo ir atspindžio spektrų buvo nustatyta, kad porėtumas padidina šviesos pralaidumą, bet sumažina dangų atspindį. Tai nulemia pati dangos struktūra, o kartu ir efektyvusis lūžio rodiklis.
- 3. Buvo įvertinti įtempiai ir nustatyta, kad užgarintose dangose vyravo tempiamieji įtempiai, tačiau porėtumui didėjant jie mažėjo (nuo -100 MPa iki -41 MPa).
- 4. Iš pažaidos slenksčių verčių buvo galima pastebėti tendenciją, kad porėtesnėms dangoms jie buvo didesni, išskyrus niobio oksido užgarintoms 50° ir 60° kampu dangoms, taip pat aliuminio oksido dangai užgarintai 70° kampu. Tai galėjo sąlygoti defektai, kurių inicijuoti pažeidimai matėsi mikroskopu gautuose aliuminio oksido dangų nuotraukose ir nuostoliai, kurie inicijavo kraterius su taškais niobio dangose.

Literatūros sąrašas

[1] E. Lorenzo, C.J. Oton, N.E. Capuj, M. Ghulinyan, D. Navarro-Urrios, Z. Gaburro, L. Pavesi, Porous silicon-based rugate filters, Appl. Opt., **44**, 5415-5421 (2005).

[2] K.D. Hendrix, C.A. Hulse, G.J. Ockenfuss, R.B. Sargent, Demonstration of narrowband notch and multi-notch filters, Proc. SPIE, **7067**, 706702 (2008).

[3] J. Gustafson, Fabrication And Characterization Of Sculptured Thin Silver Films, daktaro disertacija (2013).

[4] T. Tolenis, L. Grinevičiūtė, L. Smalakys, M. Ščiuka, R. Drazdys, L. Mažulė, R. Buzelis, and A. Melninkaitis, "Next generation highly resistant mirrors featuring all-silica layers", Sci. Rep., **7**, 1–9 (2017).

[5] M. T. Taschuk, Glancing Angle Deposition of Thin Films Engineering the Nanoscale, 320, 173 -179, ISBN: 978-1-118-84756-5 (2014).

[6] K. D. Harris, D. Vick, T. Smy, and M. J. Brett, "Column angle variations in porous chevron thin films," Journal of Vacuum Science & Technology A: Vacuum, Surfaces, and Films, 20, 5-6, (2002).

[7] O. Stenzel, Optical coatings: material aspects in theory and practice. Berlin: Springer, 320, 81-95 (2014).

[8] J. Q. Xi, Jong Kyu Kim, E. F. Schubert, Dexian Ye, T.-M. Lu, Shawn-Yu Lin, Very Low-Refractive Index Optical Thin Films Consisting Of An Array Of SiO₂ Nanorods, Optics letters, **31**, 601-603 (2006).

[9] P. M. Martin, Ed., Handbook of deposition technologies for films and coatings: science, applications and technology, 3 ed. Amsterdam: Elsevier, 912, 629 (2010).

[10] Mark Gross, Svetlana Dligatch, and Anatoli Chtanov, Optimization Of Coating Uniformity In An Ion Beam Sputtering System Using A Modified Planetary Rotation Method Applied Optics **50**, 316-320 (2011).

[11] M. T. Taschuk, Glancing Angle Deposition of Thin Films Engineering the Nanoscale, 320, 180 -188, ISBN: 978-1-118-84756-5 (2014).

[12] J. Dudonis, Plonų dangų fizika ir nanotechnologijos, 1-asis leid. Šiaulių universiteto leidykla, 227, 31-32, ISBN 978-609-02-0382-8 (2012).

[13] P. M. Martin, Ed., Handbook of deposition technologies for films and coatings: science, applications and technology, 3 ed. Amsterdam: Elsevier, 912, 621-628 (2010).

[14] P. Reinig and M. Holling, "Thickness dependence of optical scattering and surface roughness in microcrystalline silicon", Thin Solid Films, 427, 358–361 (2003).

[15] A. Lakhtakia and R. Messier, Sculptured Thin Films: Nanoengineered Morphology and Optics, 336, 112-120, ISBN: 9780819456069 (2014).

[16] A. Dubietis, Netiesinė optika, Vilnius: Vilniaus universitetas, 180, 141-149 ISBN 978-9955-634-97-3, (2011).

[17] C. Schaffer, A. Brodeur, E. Mazur, Laser-induced breakdown and damage in bulk transparent materials induced by tightly focused femtosecond laser pulses, Meas. Sci. Technol., 12, 1784-1794 (2001).

[18] L. Gallais, D.-B. Douti, M. Commandre, G. Batavičiūtė, E. Pupka, M. Ščiuka, L. Smalakys, V. Sirutkaitis, A. Melninkaitis, Wavelength dependence of femtosecond laserinduced damage threshold of optical materials, J. Appl. Phys. **117**(22), 223103 (2015).

[19] M. F. Koldunov, A. A. Manenkov, Theory of laser-induced inclusion-initiated damage in optical materials, Opt. Eng. **51**(12), 121811–1 (2012).

[20] B. J. Nagy, L. Gallais, L. Vamos, D. Oszetzky, P. Racz, P. Dombi, Direct comparison of kilohertz- and megahertz-repetition-rate femtosecond damage threshold, Opt. Lett. **40**(11), 2525 (2015).

[21] ISO-11254-2, Lasers and laser-related equipment, in: Determination of laser-induced damage threshold of optical surfaces, Part 2: S-on-1 test, 2001.

[22] ISO-11254-1, Lasers and laser-related equipment, in: Determination of laser-induced damage threshold of optical surfaces, Part 1: 1-on-1 test, 2000.

[23] A. Melninkaitis, J. Mirauskas, M. Jupé, D. Ristau, J.W. Arenberg, V. Sirutkaitis, The effect of pseudo-accumulation in the measurement of fatigue laser-induced damage threshold, Proc. SPIE, 7132, 713203-713214 (2008).

[24] S. Eaton, H. Zhang, P. Herman, F. Yoshino, L. Shah, J. Bovatsek, A. Arai, Heat accumulation effects in femtosecond laser-written waveguides with variable repetition rate, Opt. Express, **13**, 4708-4716 (2005).

[25] J. Dijon, G. Ravel, B. Andre, Thermomechanical model of mirror laser damage at 1.06 mu m: II. Flat bottom pits formation, Proc. SPIE, 3578, 398-407 (1999).

[26] M. Zhu et al. Study on the laser-induced damage performance of HfO2, Sc2O3, Y2O3, Al2O3 and SiO2 monolayer coatings. Proceedings of SPIE - The International Society for Optical Engineering. 8885, 888508 (2013).

[27] Linas Smalakys, Gintarė Batavičiūtė, Egidijus Pupka, and Andrius Melninkaitis, Parametric analysis of damage probability: a tool to identify weak layers within multilayer coatings, Appl. Opt. **54**, 2953-2962 (2015).

[28] Lei Yuan, Yuanan Zhao, Guangqiang Shang, Chengren Wang, Hongbo He, Jianda Shao, and Zhengxiu Fan, Comparison of femtosecond and nanosecond laser-induced damage in HfO2 single-layer film and HfO2-SiO2 high reflector, J. Opt. Soc. Am. B 24, 538-543 (2007).
[29] D. A. Jameel, "Thin Film Deposition Processes", Int. J. Mod. Phys. Appl., 4, 193–199, (2015).

[30] G.G., Stoney, The Tension of Metallic Films Deposited by Electrolysis. Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Containing Papers of a Mathematical and Physical Character, **82**(553), 172-175 (1909).

[31] Tomas Tolenis. Modelling, formation and characterization of nano-sculptured thin films. Daktaro disertacija, 116, 52-53 (2016).

[32] A. Mukhopadhyay, "Measurment of Magentetic Hysteresis Loops in Continuous and Patterned Ferromagnetic Nanostructures by Static Magneto-Optical Kerr Effect Magnetometer", Conference Summer Project at SNBNCBS, (2015).

[33] Oliver, J.B., et al., Stress compensation in hafnia/silica optical coatings by inclusion of alumina layers. Optics Express, **20**(15), 16596-16610 (2012).

[34] Cammarata, R.C., T.M. Trimble, and D.J. Srolovitz, Surface stress model for intrinsic stresses in thin films. Journal of Materials Research. **15**(11), 2468-2474 (2011).

[36] B. Mangote, L. Gallais, M. Commandré, M. Mende, L. Jensen, H. Ehlers, M. Jupé, D. Ristau, A. Melninkaitis, J. Mirauskas, V. Sirutkaitis, S. Kičas, T. Tolenis, R. Drazdys, Femtosecond laser damage resistance of oxide and mixture oxide optical coatings, Opt. Lett. 37(9), 1478–1480 (2012).

Konferencijos

1. L. Ramalis, <u>U. Norkutė</u>, R. Buzelis, L. Grinevičiūtė, T. Tolenis, "Sculptured thin film based all-silica mirrors for high power lasers", SCT 2021: Surfaces, Interfaces and Coatings Technologies International conference, Paryžius, Prancūzija, 2021.

Ugnė Norkutė

PORĖTO SILICIO OKSIDO DAUGIASLUOKSNIŲ DANGŲ OPTINIO ATSPARUMO PRIKLAUSOMYBĖS NUO LAIKYMO SĄLYGŲ TYRIMAS

Santrauka

Šiame darbe buvo suformuotos skulptūrinės aliuminio ir niobio oksido vienasluoksnės dangos naudojant elektronpluoščio garinimo technologiją ir garinimo kampu metodą (GLAD). Optinė dangų analizė buvo atliekama su spektrofotometru, interferometru ir optiniu mikroskopu. Struktūrinei analizei buvo naudojamas skenuojantis elektronų mikroskopas, o pažeidimų matavimams: stendas su impulsiniu Nd:YAG lazeriu.

Gauti spektriniai aliuminio ir niobio oksido vienasluosksnių dangų duomenys parodė, kad porėtesnės dangos geriau praleidžia šviesą, bet mažiau atspindi dėl porėtos dangos struktūros ir besikeičiančio efektyviojo lūžio rodiklio. Taip pat tokios struktūros pasižymi tempiamaisiais įtempiais, kurie buvo gauti aliuminio ir niobio oksido dangoms. Tyrimo metu buvo pastebėta, kad lazerio pažaidos slenksčių vertės buvo aukštesnės porėtesnių dangų, išsiskyrė tik keli kampai: aliuminio oksido užgarintos 70° kampu dangos (dėl galimai atsiradusių dangoje defektų) ir niobio oksido užgarintų dangų 50° ir 60° kampu (dėl mažų nuostolių ties 532 nm bangos ilgiu (50°) pažaidos slenkstis buvo aukštesnis, esant didesniems nuostoliams (60°) ties tuo pačiu bangos ilgiu: mažesnis). Dėl nuostolių niobio dangose buvo stebimi krateriai su taškais, o aliuminio dangose dėl dangos defektų vyravo susidarę taškai.

Ugnė Norkutė

INVESTIGATION OF THE DEBENDENCE OF THE OPTICAL RESISTANCE OF SCULPTURAL COATINGS ON POROSITY

Summary

In this work, sculptural single-layer coatings of aluminum and niobium oxide were formed using electron beam evaporation technology and the glancing angle method (GLAD). Optical analysis of the coatings was performed with a spectrophotometer, an interferometer, and an optical microscope. A scanning electron microscope was used for structural analysis, and a stand with a pulsed Nd:YAG laser for damage measurements.

Obtain spectral data for alumina and niobium oxide monolayer coatings showing that porous coatings are better suited for light but less reflective due to the structure of the porous coating and the changing more effective lip index. Such structures are also characterized by the tensile stresses obtained for aluminum and niobium oxide coatings. During the study, it was observed that the laser damage thresholds were higher for porous coatings, with only a few angles differing: alumina vaporized coatings at 70° (due to possible defects in the coating) and niobium oxide vaporized coatings at 50° and 60° (due to small losses at 532 nm (50°), the damage threshold was higher with higher losses (60°) at the same wavelength: lower). Due to the losses, craters with dots were observed in the niobium coatings, and the dots predominated in the aluminum coatings due to coating defects.