

doi:10.3969/j.issn.1001-8352.2017.03.002

TiO₂-Al 含能复合薄膜激光烧蚀特性研究^{*}

马志朋^① 施群荣^② 迟 强^③ 吴立志^① 吴修伟^① 张 伟^① 沈瑞琪^① 叶迎华^①

①南京理工大学化工学院(江苏南京,210094)

②南京理工大学科学技术研究院(江苏南京,210094)

③南京理工大学国有资产与实验室管理处(江苏南京,210094)

[摘 要] 利用真空磁控溅射技术制备了不同调制周期的 TiO₂-Al 复合薄膜和 TiO₂-Al-Al₂O₃-Al 复合飞片,通过 SEM 对各层薄膜的厚度、界面成分、薄膜均匀性和致密性进行相应表征;利用光子多普勒测速系统(PDV)测量飞片速度,得出飞片速度与激光脉冲能量的关系;运用原子发射光谱法研究了 TiO₂-Al 复合薄膜调制周期对激光诱导 TiO₂-Al 复合薄膜等离子体特性的影响。研究表明:复合薄膜不同材料膜层分界面清晰可见,具有明显的层状结构;飞片速度随激光能量的增加先上升后降低,调制周期小的飞片速度高于调制周期大的飞片;对应的等离子体电子温度规律类似;在一定能量范围内,反应性复合薄膜在激光辐照下对飞片的速度特性有较为显著的增强作用。该结果对提高激光驱动飞片能量耦合率有重要意义。

[关键词] 激光烧蚀;反应性复合薄膜;电子温度;飞片速度

[分类号] O539

Laser Ablation Characteristics of TiO₂-Al Energetic Multilayer Films

MA Zhipeng^①, SHI Qunrong^②, CHI Qiang^③, WU Lizhi^①, WU Xiuwei^①, ZHANG Wei^①, SHEN Ruiqi^①, YE Yinghua^①

①School of Chemical Engineering, Nanjing University of Science and Technology (Jiangsu Nanjing, 210094)

②Office of Science and Technology Research, Nanjing University of Science and Technology (Jiangsu Nanjing, 210094)

③State Owned Assets and Laboratory Management, Nanjing University of Science and Technology (Jiangsu Nanjing, 210094)

[ABSTRACT] Magnetron sputtering was used to make TiO₂-Al energetic multilayer films and TiO₂-Al-Al₂O₃-Al flyers with different modulation periods. Each layer of the films was characterized by SEM in view of its thickness, interfacial composition, uniformity and densification. Velocity of flyer was measured by PDV to obtain its relationship to the energy of laser pulse. Effects of modulation period on plasmatc characteristics of laser-induced TiO₂-Al composite films were studied by atomic emission spectroscopy. Results show that the surface of the films is smooth and the interfaces between different layers are compact. Velocity of flyer increases first and then decreases with the increase of laser energy, and the velocity of flyer with small modulation period is higher than that of flyer with large modulation period. The corresponding electron temperature in laser plasma follows the same law. As one of promising ablative layer materials products, energetic multilayer films could significantly improve the velocity of flyers within certain energy range. This research has an important significance on promoting laser driven energy coupling rate.

[KEYWORDS] laser ablation;energetic multilayer films; plasma electron temperature; velocities of flyer

引言

激光驱动飞片技术是目前新型的动高压加载试验技术之一。激光驱动飞片具有飞片速度高^[1]、压

力高、装置简单、成本低^[2]等优点。激光驱动飞片技术就是激光烧蚀附着在透窗上的薄膜,使其被剪切高速飞行。激光驱动飞片的过程分为以下几个阶段:激光透过透明基底辐照到薄膜表面;薄膜吸收激光能量后被加热、汽化、电离形成等离子体;高温高

^{*} 收稿日期:2016-10-11
基金项目:国家自然科学基金项目(11202105);国家自然科学基金项目(11672137)
作者简介:马志朋(1992-),男,硕士研究生,主要从事含能复合薄膜在激光驱动飞片技术中的研究。E-mail:544873993@qq.com
通信作者:吴立志(1982-),男,硕导,讲师,主要从事激光驱动飞片冲击起爆技术研究。E-mail:wulizhi82@163.com

压等离子体驱动剩余的金属薄膜,使其被高速驱动出去形成飞片^[3]。

尽管激光驱动飞片技术的相关研究已经取得了显著进展,但是仍然有诸多关键问题值得深入探索和研究,其中,较为突出的有飞片的能量耦合效率较低、飞片平面性和完整性有待进一步提高等^[4]。为了解决能量耦合效率低的问题,激光驱动飞片结构经历了几次重要的技术进步。飞片最初为 Al、Cu 等纯金属,由于纯金属对激光的吸收系数偏低,且容易在加速过程中受到高温高压作用而发生解离,会影响最终撞击效果。为了改善飞片的性能,研究人员开始在飞片中加入绝热层材料(如 Al₂O₃)^[5],该技术不仅可以推迟飞片被高温侵蚀的过程,增强了飞片的稳定性^[6],而且也使得飞片速度得到了一定的提升^[7]。同时,研究人员开始使用吸光系数较高的吸收层材料(如 C、Mg 和 Ge 等)^[8-10],该技术使得激光驱动飞片的速度得到了有效提高(约 10%)。2010 年,吴立志^[11]研究发现:将 CuO-Al 作为飞片的吸收层材料,可以将铝飞片速度平均提高 10%。2015 年,朱生华等^[12]研究发现:CuO-Al 复合薄膜周期数的增加有助于提高飞片速度和飞片加速度。朱生华^[13]对 CuO-Al 复合薄膜的等离子体特性进行研究,发现复合薄膜周期数的增加有助于提高等离子体电子温度。本文中,研究 TiO₂-Al 含能材料在激光辐照下能量释放特性,将 TiO₂-Al 复合薄膜作为复合飞片的烧蚀层材料,利用磁控溅射技术制备了复合薄膜和复合飞片,并采用光子多普勒测试技术(PDV)对复合飞片速度进行测量,研究复合飞片的激光驱动特性。利用原子发射光谱法(LIBS)研究了激光诱导 TiO₂-Al 薄膜等离子体的特性规律,而且与飞片速度特性进行了对比。

1 试验装置与方法

1.1 薄膜制备

采用磁控溅射技术制备复合薄膜和飞片,制备复合薄膜使用的 TiO₂ 靶材、Al₂O₃ 和 Al 靶纯度为 99.99%,采用 K9 玻璃作为薄膜基底,K9 玻璃依次经纯丙酮、无水乙醇、去离子水在 45 ℃ 超声清洗仪中清洗之后烘干处理。

铝膜溅射工艺条件为:溅射气压 0.4 Pa,溅射功率 204 W,氩气流量 30 mL/min;TiO₂ 溅射工艺条件为溅射气压 0.4 Pa,溅射功率 244 W,氩气质量流量 30 mL/min。在此条件下制备了 2 种不同周期的 TiO₂-Al 复合薄膜:TiO₂-Al、(TiO₂-Al)_Ⅲ;其中,下标

Ⅲ表示 3 周期。两种复合薄膜的结构示意图 1。

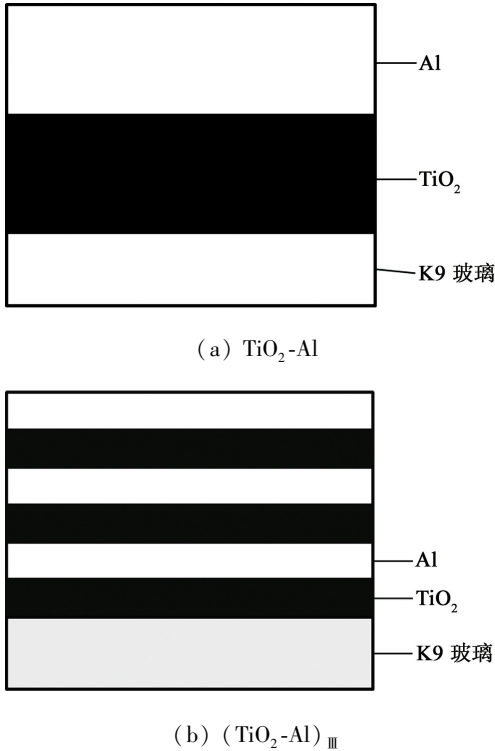


图 1 两种复合薄膜的结构示意图

Fig. 1 Schematic diagram of two kinds of composite films

1.2 等离子体特性试验装置与方法

LS-2147 型 Nd:YAG 脉冲激光器(LOTIS TH) , 波长 1 064 nm,脉宽 15 ns。光谱测试系统见图 2。具体参数见文献[13]。

1.3 飞片速度测试

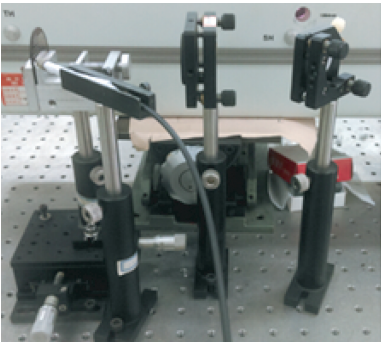
采用南京理工大学研制的光子多普勒测速仪(PDV)测量飞片的速度。该方法与激光速度干涉仪(VISAR)等传统的测速方法相比,PDV 测速系统结构相对简单,体积较小;并且 PDV 测速系统的数据处理比较容易,数据采集和记录的时间长,允许所测速度变化范围大,可以实现同步多点测速,因此,PDV 测速系统被越来越多地用于激光驱动飞片速度的测量。

测速试验装置如图 3 所示。激光经两个反射镜和一个聚焦透镜后到达飞片发生器,光纤探头尾端连接示波器。

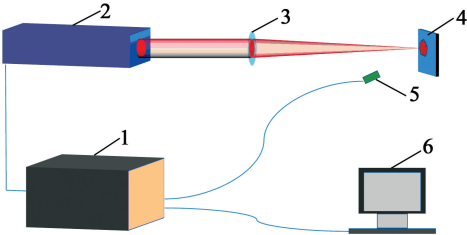
2 结果与分析

2.1 薄膜表征

几种薄膜的参数见表 1。
利用磁控溅射制备的 TiO₂-Al(0.2 μm-0.2 μm) 和 (TiO₂-Al)_Ⅲ(0.066 μm-0.066 μm)_Ⅲ 复合薄膜在 8



(a) 光路

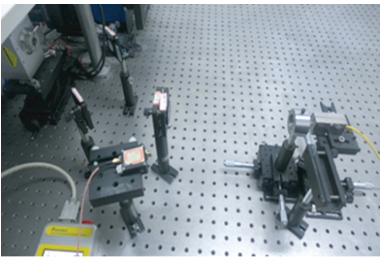


1 - 光谱仪; 2 - 激光器 (TTL 同步信号); 3 - 聚焦透镜;
4 - 薄膜样品; 5 - 光纤探头; 6 - 计算机。

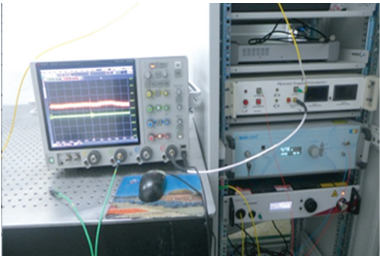
(b) 光谱采集示意图

图 2 发射光谱测试系统

Fig. 2 Emission spectrum test system



(a) 激光光路



(b) 采集信号所用的示波器

图 3 飞片速度测试试验装置

Fig. 3 Schematic diagram of flyer velocity test

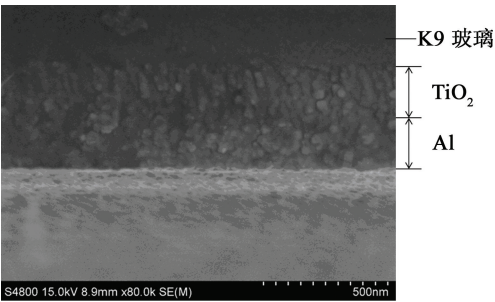
万倍放大倍数下的断面结构分别见图 4(a) 和图 4(b)。利用磁控溅射制备的 $\text{TiO}_2\text{-Al-Al}_2\text{O}_3\text{-Al}$ ($0.2\text{ }\mu\text{m}\text{-}0.2\text{ }\mu\text{m}\text{-}0.6\text{ }\mu\text{m}\text{-}3.0\text{ }\mu\text{m}$) 复合飞片在放大 1.5 万倍下的断面结构见图 4(c)。

表 1 薄膜参数

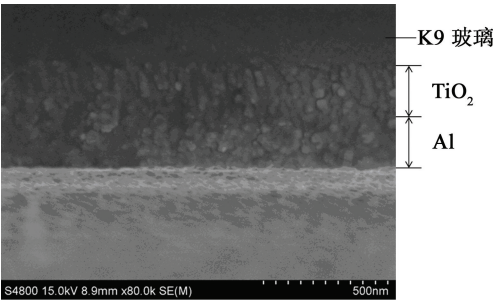
Tab. 1 Parameters of films

薄膜种类	复合薄膜结构	厚度/ μm
1	$\text{TiO}_2\text{-Al}$	0.2-0.2
2	$(\text{TiO}_2\text{-Al})_{\text{III}}$	$(0.066\text{-}0.066)_{\text{III}}$
3	$\text{TiO}_2\text{-Al-Al}_2\text{O}_3\text{-Al}$	0.2-0.2-0.6-3.0
4	$(\text{TiO}_2\text{-Al})_{\text{III}}\text{-Al}_2\text{O}_3\text{-Al}$	$(0.066\text{-}0.066)_{\text{III}}\text{-}0.6\text{-}3.0$

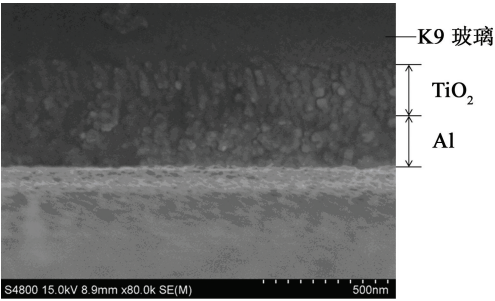
注:下标 III 表示 III 周期。



(a) $\text{TiO}_2\text{-Al}$



(b) $(\text{TiO}_2\text{-Al})_{\text{III}}$



(c) $\text{TiO}_2\text{-Al-Al}_2\text{O}_3\text{-Al}$

图 4 薄膜样品 SEM

Fig. 4 SEM image of sample film

2.2 等离子体特性

在激光脉冲能量为 224.0 mJ、延迟时间为 700 ns 的条件下, $\text{TiO}_2\text{-Al}$ ($0.2\text{ }\mu\text{m}\text{-}0.2\text{ }\mu\text{m}$) 复合薄膜的发射光谱见图 5。在波长 200 ~ 500 nm 之间, Ti 没有明显的特征峰存在。Al 的特征峰有 257.51、309.27、394.40 nm 以及 396.15 nm。

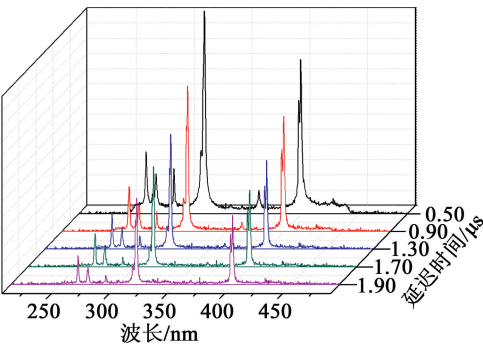


图5 激光脉冲能量为 224.0 mJ 时 TiO₂-Al 薄膜发射光谱随延迟时间的变化

Fig. 5 Variation of the emission spectrum of TiO₂-Al film with the delay time when the laser pulse energy is 224 mJ

利用波尔兹曼 (Boltzmann) 图谱法计算 4 种复合薄膜等离子体电子温度。计算时选用 3 条铝原子谱线 Al II 309. 27 nm、Al II 394. 40 nm 和 Al II 396. 15 nm, 相关光谱物理参数见表 2。

表 2 Al II 发射光谱谱线的相关物理参数

Tab. 2 Relevant physical parameters of Al II emission spectral lines		
波长/ nm	上能级能量/ cm ⁻¹	上能级的跃迁几率/ 10 ⁸ s ⁻¹
309. 27	32 436. 796	4. 440
394. 40	25 347. 756	0. 986
396. 15	25 347. 756	1. 970

以 Al II 309. 27 nm 谱线作基准绘出谱线相对强度值与对应谱线跃迁上能级能量的 Boltzmann 图, 由最小二乘法拟合得到斜率。图 6 为 TiO₂-Al (0. 2 μm-0. 2 μm) 复合薄膜发射光谱在激光能量 224 mJ、延迟时间 0. 7 μs 条件下的 Boltzmann 图, 其中, 斜率为 -1. 46 × 10⁻⁴, 电子温度为 9 850 K。

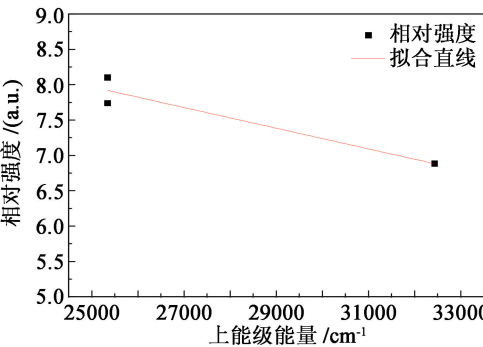


图6 3 条 Al II 谱线的 Boltzmann 图

Fig. 6 Boltzmann diagram of three Al II lines

在延迟时间一定时, 在不同的脉冲激光能量下作类似于图 6 的谱线相对强度对数值与能级 E_m 的

Boltzmann图, 可得到电子温度随激光脉冲能量变化的关系。延迟时间为 0. 70 μs 时, 激光脉冲能量在 67. 7 ~ 224. 0 mJ 之间, 每个条件下测试 3 次。

图 7 是延迟时间为 0. 70 μs 时, 两种 TiO₂-Al 复合薄膜等离子体电子温度随着激光脉冲能量的变化情况。

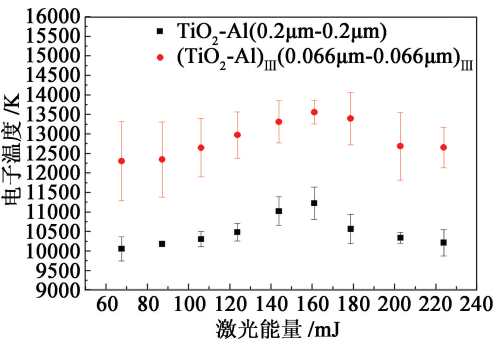


图7 TiO₂-Al 复合薄膜等离子体电子温度随激光能量的变化

Fig. 7 Variation of plasma electron temperature of TiO₂-Al composite film with laser energy

由图 7 可知, 激光脉冲能量在 67. 7 ~ 161. 2 mJ 间, 复合薄膜等离子体电子温度都是随着激光脉冲能量的增大而增大; 激光脉冲能量在 161. 2 ~ 224. 0 mJ 间, 复合薄膜等离子体电子温度随着激光脉冲能量的增大而降低。主要是因为激光脉冲能量为 174. 0 mJ 时, 激光能量已经大到足够使 K9 玻璃基底前端的空气开始产生电离, 空气电离消耗了部分激光能量, 致使脉冲激光透过空气和 K9 玻璃后到达复合薄膜表面的激光能量有所减少。因此, 激光脉冲能量对于 TiO₂-Al 复合薄膜等离子体电子温度存在一个最佳能量阈值。激光脉冲能量在 67. 7 ~ 224. 0 mJ 间, TiO₂-Al (0. 2 μm-0. 2 μm) 复合薄膜等离子体电子温度低于 (TiO₂-Al)_{III} (0. 066 μm-0. 066 μm)_{III} 复合薄膜等离子体电子温度。主要是调制周期小时有利于含能薄膜间的化学反应。

2.3 飞片速度测试

激光能量为 217. 4 mJ 时, TiO₂-Al 两种调制周期的复合飞片的瞬时速度曲线见图 8, (TiO₂-Al)_{III}-Al₂O₃-Al [(0. 066 μm-0. 066 μm)_{III}-0. 6 μm-3. 0 μm] 为飞片 A, TiO₂-Al-Al₂O₃-Al (0. 2 μm-0. 2 μm-0. 6 μm-3. 0 μm) 为飞片 B。飞片 A 的速度高于飞片 B 的速度。上升沿时间是飞片从峰值速度的 10% 增到 90% 需要的时间。

图 9 为两种飞片峰值速度随着激光能量的变化规律。图 10 为两种飞片上升沿时间随着激光能量的变化规律。

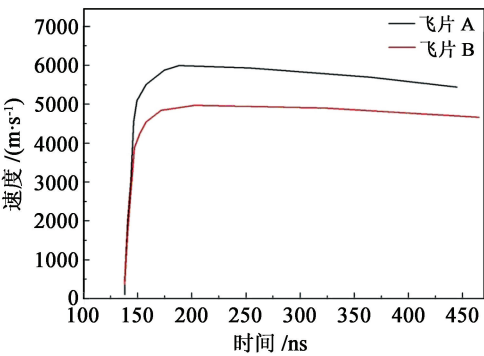


图 8 激光脉冲能量 217.4 mJ 时 TiO₂-Al 两种调制周期的复合飞片瞬时速度

Fig. 8 Instantaneous velocity curves of composite flyer with two modulation periods of TiO₂-Al when laser pulse energy is 217.4 mJ

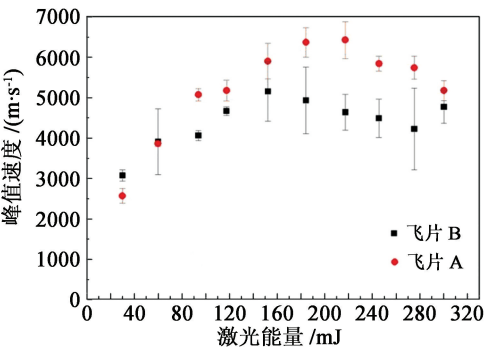


图 9 TiO₂-Al 两种调制周期复合飞片峰值速度

Fig. 9 Peak velocity of composite flyer with two modulation periods of TiO₂-Al

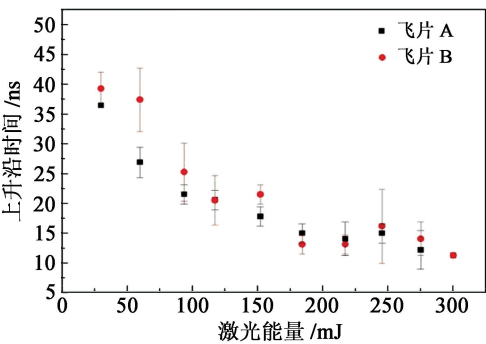


图 10 TiO₂-Al 两种调制周期复合飞片上升沿时间

Fig. 10 Rising time of composite flyer with two modulation periods of TiO₂-Al

由图 9 可知,脉冲激光能量在 30.0 ~ 152.3 mJ 间,两种复合飞片的速度都随激光能量的增加而增大;在 152.3 mJ 以后,飞片速度随激光能量的增大而减小。这是因为激光能量阈值后,会在玻璃与空气交界面产生烧蚀,玻璃烧蚀会吸收激光能量,并对后续的激光能量产生屏蔽作用,在一定程度上降低了到达飞片表面的激光能量。飞片 A 峰值速度高

于飞片 B 峰值速度。

由图 10 可知,两种调制周期复合飞片的上升沿时间随着激光能量的增大而缩短;飞片 B 上升沿时间高于飞片 A 上升沿时间;随着激光能量的进一步增大,两种飞片的上升沿时间差值越来越小。

以上结果表明:在烧蚀层膜厚一定的条件下,采用调制周期较小的含能薄膜作为烧蚀层材料不仅能增大飞片速度,而且能增大飞片加速度。

3 结 论

采用真空磁控溅射技术制备了 TiO₂-Al 反应性复合薄膜,通过 SEM 对复合薄膜的结构进行表征;运用原子发射光谱研究激光诱导 TiO₂-Al 复合薄膜等离子体特性。

结论如下:

1) 薄膜厚度在纳米级时,薄膜颗粒致密平整,复合薄膜不同材料膜层的分界面清晰可见,具有明显的层状结构,复合薄膜结构致密、均匀性好。

2) 延迟时间一定时,激光能量在 67.7 ~ 224.0 mJ 间,TiO₂-Al 复合薄膜等离子体电子温度随着延迟时间的增大而先升高后降低。激光脉冲能量在 67.7 ~ 224.0 mJ 间,TiO₂-Al(0.2 μm-0.2 μm)复合薄膜等离子体电子温度低于 (TiO₂-Al)_{III}(0.066 μm-0.066 μm)_{III}复合薄膜等离子体电子温度。

3) 在烧蚀层厚度、隔热层厚度和飞片厚度一定时,在飞片速度的对比上,调制周期小的复合飞片速度高于调制周期大的复合飞片速度。调制周期小的复合飞片上升沿时间小于调制周期大的复合飞片。

研究结果对于研究复合含能薄膜在激光辐照下的能量释放特性,推动激光驱动飞片技术的发展有着重要意义。

参 考 文 献

[1] OKADA K, WAKABAYASHI K, TAKENAKA H, et al. Experimental technique for launching miniature flying plates using laser pulses [J]. International Journal of Impact Engineering, 2003, 29(1): 497-502.

[2] PAISLEY D L. Confined plasma ablation for shock physics, plate launch, and material dynamics [C]// PHIPPS C R. Proceedings of SPIE 6261: High-power laser Ablation VI. 2006:62611Y.

[3] COGAN S, SHIRMAN E, HAAS Y. Production efficiency of thin metal flyers formed by laser ablation[J]. Journal of Applied Physics, 2005, 97(11): 113508.

[4] 吴立志, 沈瑞琪, 徐姣, 等. 激光驱动飞片技术的研究进展[J]. 兵工学报, 2010, 31(2): 219-226.
WU L Z, SHEN R Q, XU J, et al. Research advance in laser-driven flyer technology [J]. Acta Armamentarii, 2010,31(2) :219-226.

[5] PAISLEY D L, MONTOYA N I, STAHL D B, et al. Interferometry and high speed photography of laser-driven flyer plates [C]//Proceedings of SPIE. 1989, 90: 245-249.

[6] FARNSWORTH A V. Laser acceleration of thin flyers [C]//AIP Conference Proceedings. 1996, 370: 1225-1228.

[7] GREENAWAY M W, GIFFORD M J, PROUD W G, et al. An investigation into the initiation of hexanitrostilbene by laser-driven flyer plates [C]//Shock Compression of Condensed Matter. 2002, 620: 1035-1038.

[8] STAHL D B, PAISLEY D L. Carbon-assisted flyer plates: US 5301612 [P]. 1994-04-12.

[9] HATT D J, WASCHL J A. A study of laser-driven flyer plates [C]//American Institute of Physics Conference Series. 1996, 370: 1221-1224.

[10] LABASTE J L, BRISSET D, DOUCET M. Investigation of driving plasma materials for laser acceleration of flyer plates [C]//American Institute of Physics Conference Series. 2000, 505: 1189-1192.

[11] 吴立志. 激光驱动金属飞片冲击起爆技术研究 [D]. 南京:南京理工大学, 2010: 21-56.
WU L Z. Shock initiation technology of explosives by laser-driven metal flyer [D]. Nanjing: Nanjing University of Science and Technology, 2010: 21-56.

[12] 朱生华, 吴立志, 陈少杰, 等. 激光驱动含能复合飞片速度特性 [J]. 强激光与粒子束, 2015, 27 (1): 45-50.
ZHU S H, WU L Z, CHEN S J, et al. Preparation and characteristic of laser-driven energetic composite flyer [J]. High Power Laser and Particle Beams, 2015, 27 (1): 45-50.

[13] 朱生华. 反应性复合薄膜 CuO-Al 在激光驱动飞片技术中的性能研究 [D]. 南京:南京理工大学, 2015: 32-51.
ZHU S H. Study on performance of CuO-Al reactive multilayer films used in laser-driven flyer [D]. Nanjing: Nanjing University of Science and Technology, 2015: 32-51.