

多层介质/金属紫外滤光膜系的辐照损伤特性

吴永刚, 焦宏飞, 曹 鸿, 张 莉, 付联效, 彭东功, 郑秀萍

(同济大学 精密光学工程技术研究所, 上海 200092)

摘要:利用电子束蒸发方法制备用于 BaF₂ 晶体慢成分滤光的多层介质/金属紫外滤光膜系。在 γ 射线、中子和激光辐照环境中研究薄膜的损伤特性。结果表明:薄膜对 γ 射线和中子具有优良的耐辐照特性;在激光辐照环境中,薄膜的激光损伤阈值受多层薄膜中金属层的影响,激光入射时,最先辐照到的金属层的厚度决定了多层薄膜的耐激光辐照损伤特性。

关键词: BaF₂ 晶体; 多层膜; 介质/金属薄膜; 滤光膜; 辐照损伤

中图分类号: O484.4 文献标识码: A 文章编号: 1000-6931(2007)06-0729-05

Characterization of Dielectric/Metallic Multilayer UV Filter Irradiated by γ -ray, Neutron and Laser Beams

WU Yong-gang, JIAO Hong-fei, CAO Hong, ZHANG Li, FU Lian-xiao,
PENG Dong-gong, ZHENG Xiu-ping

(Institute of Precise Optical Engineering and Technology, Tongji University,
Shanghai 200092, China)

Abstract: Dielectric/metallic multilayer UV filter applied for the suppression of slow component of BaF₂ scintillator was prepared with electron beam evaporation, and the effects of γ -ray, neutron and laser beam on the filter were characterized. Results show that the performance of the filter keeps unchanged under γ -ray irradiation of 1×10^5 Gy and neutron irradiation of $4.0 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$. The damage threshold of the filter irradiated by laser beams is related to the layer which was first encountered by the laser beam, and its thickness determines the damage threshold of the filter.

Key words: BaF₂ scintillator; multilayer; dielectric/metallic film; filter; irradiation damage

BaF₂ 晶体是目前已知最快的闪烁体,它的快闪烁成分衰减时间仅为 0.9 ns,可用于 γ 射线等的快速探测^[1]。然而, BaF₂ 晶体的闪烁发光中还存在慢闪烁成分,其衰减时间达 630 ns,

且强度约占整个发射光强度的 85%^[2]。慢闪烁成分的存在严重制约了 BaF₂ 的快速探测特性。虽采用了 TMAE 探测器^[3]、Cs-Te 光阴极倍增管^[4]、掺镧 BaF₂^[5] 等来降低慢成分的影

响,但制备方法和结构较为复杂,或效果不尽理想。幸运的是, BaF_2 晶体中两个快闪烁成分的中心波长分别为 219 nm 和 194 nm,而慢闪烁成分的中心波长则为 310 nm,因此,可借助滤光薄膜的光谱选择性透射特性,在 BaF_2 晶体上制备多层滤光薄膜,以保留快闪烁成分,同时有效地滤除慢闪烁成分^[6]。 BaF_2 晶体的应用环境相当苛刻,它在工作时不仅受到 γ 射线的辐照,还受到中子的辐照,附着于 BaF_2 晶体上的多层薄膜,同样会受到 γ 射线和中子的辐照。多层薄膜的耐辐照特性很大程度上影响了闪烁器件的寿命,同时决定了这种方法的可行性。 BaF_2 晶体在工作过程中还不同程度地受到来自其它射线如激光的辐照,可能引起多层膜结构的损伤及性能的退化。因此,研究激光辐照的损伤特性,对于加强多层膜的激光防护有重要作用。

本工作分别在石英和 BaF_2 衬底上制备 $(\text{Al}_2\text{O}_3/\text{MgF}_2/\text{Al}/\text{MgF}_2)^2(\text{Al}/\text{MgF}_2)^2$ 多层膜系,研究衬底在强 γ 射线和中子辐照环境中的损伤特性,以及附着在石英晶体和 BaF_2 晶体上的多层膜在强 γ 射线和中子辐照环境中的损伤特性,还研究附着在石英晶体上的多层膜系在激光辐照环境中的损伤效应。

1 γ 辐射场中多层介质/金属膜系耐辐照损伤特性

从光学滤光的角度而言,为滤除 BaF_2 晶体闪烁光中的快成分,可将多层膜系直接制备在 BaF_2 晶体上,也可将多层膜系制备在其它光学基片上,然后将镀有多层膜系的光学基片与 BaF_2 晶体相粘合。前者能够减少不必要的光学界面损耗,后者则可选择高质量的光学基片,易制备出符合实验要求的滤光片。

在紫外/真空紫外波段选用的基片材料可有 MgF_2 晶体和熔石英,它们都具有较低的截止波长。通过对所选用的 MgF_2 晶体和熔石英基片进行 γ 射线的辐照损伤测试观测到, MgF_2 晶体在短波段处易产生吸收,因此,将会影响器件对 BaF_2 晶体闪烁谱中快成分的透射率。熔石英经辐照后短波段处的透射率也有所下降,但下降幅度较小。因此,在分离器件中均选择了熔石英作为基片。

对在熔石英晶体(直径 25 mm,厚度 2 mm)基片上制备的多层滤光膜系进行辐照损伤测试。实验中所需的 γ 射线辐照采用上海原子核研究所的 ^{60}Co 辐照源,总的辐照剂量为 1×10^5 Gy。图 1 显示了纯石英晶体在辐照前后的透射率谱。图 2 为镀有多层滤光膜系的石英晶体在相同辐照剂量下的透射谱。由图 1 和 2 可看出,辐照后分离式器件的峰值透射率有所下降。通过简单的计算可知,在 BaF_2 晶体的快成分波段,即在 190~240 nm 范围内,分离式器件的透射率下降了约 10%,其中,石英晶体和多层膜系引起的各约为 5%。

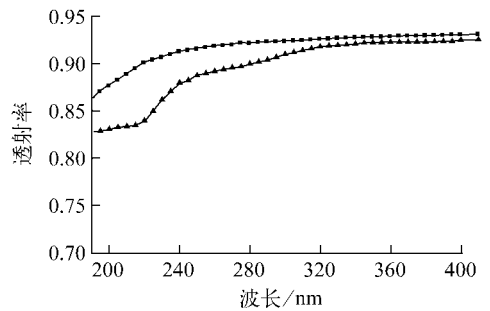


图 1 熔石英基片辐照前后的透射率

Fig. 1 Transmittance of fusible quartz substrate before and after irradiation
■——辐照前;▲——辐照后

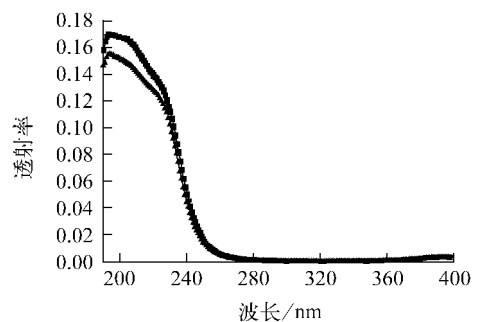


图 2 辐照前后多层介质/金属薄膜的透射率
(基片为熔石英)

Fig. 2 Transmittance of multilayer dielectric/metal films deposited on fusible quartz before and after irradiation
■——辐照前;▲——辐照后

图 3 和 4 分别显示了在 1×10^5 Gy 辐照剂量下 BaF_2 晶体以及合成器件,即以 BaF_2 晶体为衬底的多层膜系的透射率谱。两图显示,在 190~240 nm 范围内,合成器件的透射率下降

了约 19%，其中，由 BaF_2 晶体引起的约为 15%，多层膜系引起的约为 4%。显然，由于石英晶体具有相对较好的耐辐照损伤特性，因此，分离式器件具有更好的耐辐照损伤性能。

从以上研究可看出，与 BaF_2 晶体相比，强 γ 射线辐照对多层介质/金属滤光膜系的影响较为有限，这一是可能得益于多层光学膜系在透光方向的实际厚度，整个多层滤光膜系的厚度仅为数百 nm， γ 射线的辐照虽可能在多层膜系材料中产生色心、缺陷等吸收中心，但由于材料的厚度很薄，因此，材料对透射光的吸收作用基本上可忽略；二是构成多层膜系的材料基本为非晶或多晶状态， γ 射线对这些材料的损伤效应如色心、缺陷等可能会很快得到恢复。

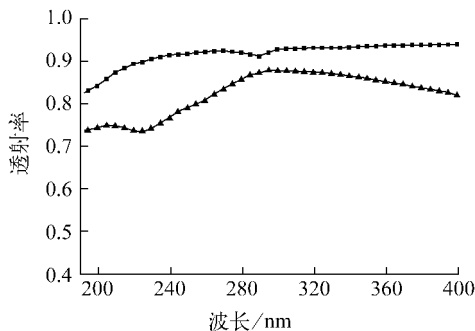


图 3 BaF_2 晶体辐照前后的透射率

Fig. 3 Transmittance of BaF_2 crystal before and after irradiation
■——辐照前；▲——辐照后

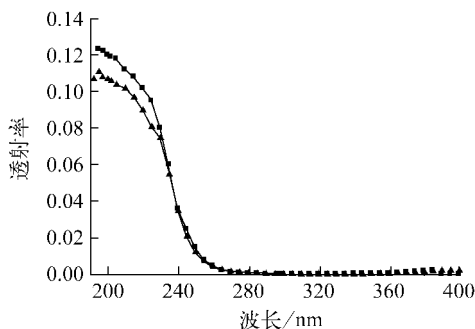


图 4 合成器件辐照前后的透射率

Fig. 4 Transmittance of composite device before and after irradiation
■——辐照前；▲——辐照后

2 中子场中多层介质/金属膜系耐辐照损伤特性

中子辐照在中国工程物理研究院核物理与化学研究所加速器 DT 中子源上进行，分别用 $4.0 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ (注量率 $1.3 \times 10^9 \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$) 和 $1.0 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ (注量率 $3.3 \times 10^8 \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$) 的辐照剂量对镀有多层膜系的 BaF_2 晶体进行辐照。结果表明，经两种辐照剂量中子辐照后，样品透射率曲线均无明显变化(图 5)。显然，中子辐照未在样品中引入可测量到的缺陷，也未破坏膜层结构。同样，中子辐照也未影响到 BaF_2 晶体的透射率。

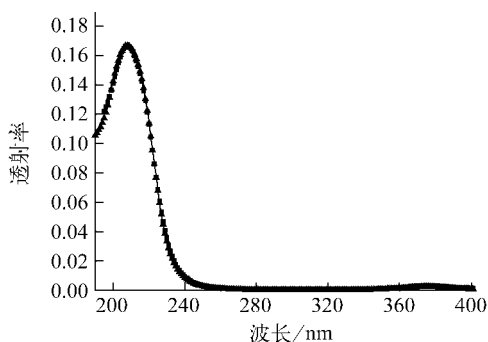


图 5 $4.0 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ 中子辐照前后膜系透射率

Fig. 5 Transmittance of films before and after $4.0 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ neutron irradiation
■——辐照前；▲——辐照后

BaF_2 闪烁晶体的发光效率因强流中子辐照分别下降约 60% 和 40%。对该结果的定性解释是，高能中子与 BaF_2 闪烁晶体材料的核反应主要为 $^{138}\text{Ba}(n, 2n)^{137}\text{Ba}$ 反应通道，反应阈能 8.7 MeV，反应截面约 $1.8 \times 10^{-28} \text{ m}^2$ 。当受到注量为 10^{13} cm^{-2} 的 14 MeV 中子辐照后，由于反应截面较高，闪烁体内引入的缺陷已使发光效率降低。而多层膜系厚度仅为 μm 量级，与中子的反应概率小于 10^{-6} ，中子的辐照不足以在薄膜中引入大量缺陷，不会破坏膜层结构。

3 多层介质/金属膜系激光辐照损伤特性

3.1 实验设备和相关参数

实验中使用了 Surelite Nd:YAG 激光器，其工作波长为 1 064 nm，也可经倍频在 532 nm 条件下使用。在 1 064 nm 波长工作时，稳定工

作能量为 650 mJ, 脉冲宽度 5~7 ns, 能量漂移范围小于 2.5%, 光束的断面与高斯分布匹配度为近场(小于 1 m 时)0.7, 远场 0.95, 与高斯分布最大偏离为 30%。在 532 nm 波长工作时, 稳定工作能量为 300 mJ, 脉冲宽度 4~6 ns, 能量漂移范围小于 3.5%, 光束的断面与高斯分布匹配度为近场(小于 1 m 时)0.7, 远场 0.95, 与高斯分布最大偏离为 30%。

3.2 多层介质/金属膜系激光辐照损伤特性

对制备在 BaF₂ 晶体上的多层介质/金属膜系在不同的激光辐照条件下进行损伤测试。当激光波长为 1 064 nm、正向入射(激光由空气与多层介质/金属膜系的界面方向入射)时, 膜系的损伤阈值列于表 1。

当激光波长为 532 nm、正向入射时, 膜系的损伤阈值列于表 2。

当激光波长为 532 nm、反向入射(激光由 BaF₂ 闪烁晶体与多层介质/金属膜系的界面方向入射)时, 膜系的损伤阈值列于表 3。

表 1 多层介质/金属膜系的辐照损伤

Table 1 Irradiation damage of dielectric/metal multilayer thin films

脉冲方式	损伤能量/mJ	损伤阈值/(J·cm ⁻²)
连续脉冲(20 s)	70	0.028
单脉冲	140	0.055

表 2 正向入射多层介质/金属膜系的辐照损伤

Table 2 Irradiation damage of dielectric/metal multilayer thin films with front incidence

脉冲方式	损伤能量/mJ	损伤阈值/(J·cm ⁻²)
连续脉冲(20 s)	6	0.021
单脉冲	15	0.053

表 3 反向入射时多层介质/金属膜系的辐照损伤

Table 3 Irradiation damage of dielectric/metal multilayer thin films with inverse incidence

脉冲方式	损伤能量/mJ	损伤阈值/(J·cm ⁻²)
连续脉冲(20 s)	4	0.014
单脉冲	6	0.021

3.3 实验结果分析

介质薄膜的激光损伤阈值通常比金属膜高 2 个数量级, 所以, 膜系中的损伤主要应出现在 Al 层中。为进行比较, 实验中另在 K9 玻璃基片上制备不同厚度的 Al 膜, 并相应于 1 064 nm 激光波长、单发脉冲的条件下, 测试 Al 膜的激光辐照损伤, 结果列于表 4。

表 4 Al 膜的辐照损伤

Table 4 Irradiation damage of Al thin films

厚度/nm	损伤能量/mJ	损伤阈值/(J·cm ⁻²)
50	5	0.017
55	18	0.064
65	19	0.067
79	20	0.070

由表 4 可知, 单层 Al 薄膜厚度为 70 nm 时, 在 1 064 nm 激光辐照下, 其损伤阈值在 0.067~0.070 J/cm² 范围内, 而表 1 所列多层介质/金属膜系的损伤阈值为 0.055 J/cm², 数值明显偏低。其可能原因是实际多层介质/金属膜系中 Al 层厚度虽为 70 nm, 但其分解为 3 层, 每层厚度仅为 20~30 nm, 由此导致了多层介质/金属膜系激光损伤阈值的降低。

表 2~4 中的连续脉冲和单脉冲的损伤阈值有明显差异, 连续脉冲的损伤阈值比单脉冲的损伤阈值低。这是由于激光辐照的累积破坏效应造成的。通常, 薄膜在激光损伤初期阶段是瞬时的、可逆的, 当瞬时损伤的恢复时间小于激光的重复周期时, 薄膜破坏不呈现累积效应。反之, 这些附加的缺陷在后面的激光脉冲作用下, 会进一步发展并导致永久性破坏。激光的累积作用次数 n 和破坏阈值间存在经验关系 $J_{th}(n) = J_{th}^{(0)} + J_{th}^{(1)} e^{-K(n-1)}$, 式中, K 是与薄膜和激光参数有关的常数, $J_{th}^{(0)}$ 表示薄膜累积破坏阈值, 当激光束能量密度低于 $J_{th}^{(0)}$ 时, 不论作用次数 n 多大, 薄膜均不会破坏。

比较表 2 和表 3 的结果可知, 激光光束正向入射和反向入射到薄膜中的损伤阈值有很大差异, 两者的比值列于表 5。

表5 反向入射与正向入射膜系阈值的比值

Table 5 Comparison of thresholds between frontally and inversely irradiated films

脉冲方式	反向入射的阈值/正向入射的阈值
连续脉冲(20 s)	0.67
单脉冲	0.40

实验中使用了石英基片,激光通过石英基片时有4%的反射能量损失。考虑了这一因素并进行了修正后,反向入射的阈值仍低于正向入射的阈值。可能的原因是我们设计的膜系在激光正向入射时首先遇到了23 nm厚的Al层,而反向入射首先遇到的是12 nm的Al层,对于金属薄膜,其厚度与损伤阈值成正比,因此,损伤阈值会出现较大的不同。实验结果较好地证明了此膜系的损伤主要是在铝层上。分散的Al层设计使整个多层介质/金属膜系的激光损伤阈值有所降低,多层介质/金属膜系相应于激光由正向和反向入射的损伤阈值差异与正面迎对激光的第1层Al的厚度有关,第1层Al厚度较厚,将有助于提高多层介质/金属膜系的激光损伤阈值。

与惯性约束聚变中所用的介质薄膜相比,本工作中的介质/金属膜系的激光损伤阈值显然很低,适当提高膜系中金属层的厚度,可使膜系的抗激光损伤性能有一定的提高。这种膜系主要可应用于未受激光直接辐照的 γ 射线辐射和中子辐射场合。

4 结论

本工作所设计和制备的多层介质/金属膜系对 γ 射线和中子具有很好的耐辐照特性。在激光辐照环境中,薄膜的激光损伤阈值受多层

薄膜中金属层的影响,激光入射时,最先辐照到的金属层的厚度决定了多层膜系的激光辐照损伤特性。

参考文献:

- [1] SCHOTANUS P, van EIJK C W E, HOLLANDER R W, et al. Photoelectron production in BaF₂-TAME detectors [J]. Nucl Instrum Methods, 1987, A259:586-588.
- [2] ERSHOV N N, ZAKHAROV N G, RODNYI P A. Spectral kinetic study of the intrinsic luminescence characteristics of a fluorite-type crystal[J]. Opt Spectrosc, 1982, 53(1):51-54.
- [3] ANDERSON D F, CHARPAK G, KUSMIERZ W, et al. Test results of a BaF₂ calorimeter tower with a wire chamber readout[J]. Nucl Instrum Methods, 1984, 28 (1):33-36.
- [4] WOODY C L, ANDERSON D F. Calorimetry using BaF₂ with photosensitive wire chamber readout[J]. Nucl Instrum Methods, 1988, A265 (1-2):291-300.
- [5] SCHOTANUS P, DORENBOS P, van EIJK C W E, et al. Suppression of the slow scintillation light output of BaF₂ crystals by La³⁺ doping[J]. Nucl Instrum Methods, 1989, A281 (1):162-166.
- [6] 吴永刚,林小燕,顾春时,等. 一维金属/介质光子晶体用于BaF₂晶体闪烁光谱修饰[J]. 光子学报, 2005, 34(1):94-97.
WU Yonggang, LIN Xiaoyan, GU Chunshi, et al. One dimensional photonic crystal applied for the spectrum modification of BaF₂ scintillation crystal[J]. Acta Photonica Sinica, 2005, 34(1):94-97(in Chinese).