

# 193 nm 氟化物薄膜的激光诱导损伤

常艳贺<sup>1,2</sup> 金春水<sup>1</sup> 李 春<sup>1</sup> 靳京城<sup>1,2</sup>

(<sup>1</sup> 中国科学院长春光学精密机械与物理研究所, 吉林 长春 130033; <sup>2</sup> 中国科学院大学, 北京 100049)

**摘要** 在 ArF 准分子激光系统的应用中, 光学薄膜元件激光诱导损伤的因素很多, 因此在特定模式下分析薄膜损伤机理具有重要意义。采用热蒸发方法分别制备了 LaF<sub>3</sub> 和 MgF<sub>2</sub> 单层薄膜, 以及 LaF<sub>3</sub>/MgF<sub>2</sub> 的半反射薄膜和高反射薄膜, 对沉积的薄膜进行了 ArF 准分子 193 nm 激光的损伤阈值测量, 并采用 Nomarski 显微镜观察了薄膜的表面缺陷和损伤形貌。实验结果表明, 在薄膜的制备过程中, 单层 LaF<sub>3</sub> 薄膜沉积后表面比较光滑, 而 MgF<sub>2</sub> 薄膜则有少量的缺陷产生, 缺陷随着薄膜层数的增加而逐渐增多。从薄膜的显微观测推断, 在此工艺条件下制备的高反射薄膜损伤主要是由于大量缺陷引起。

**关键词** 薄膜; 缺陷; 激光损伤; 热蒸发; 氟化物

**中图分类号** O484 **文献标识码** A **doi**: 10.3788/CJL201340.0707001

## Laser Induced Damage of Fluoride Coatings at 193 nm

Chang Yanhe<sup>1,2</sup> Jin Chunshui<sup>1</sup> Li Chun<sup>1</sup> Jin Jingcheng<sup>1,2</sup>

<sup>1</sup> Changchun Institute of Optics, Fine Mechanics and Physics, Chinese Academy of Sciences, Changchun, Jilin 130033, China  
<sup>2</sup> University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China

**Abstract** Defects in thin films are one of the most important factors influencing laser induced damage in the thin film components at ArF laser system. In order to analysis the defects of fluoride thin films in wavelength of deep ultraviolet (DUV), LaF<sub>3</sub> and MgF<sub>2</sub> single layers, LaF<sub>3</sub>/MgF<sub>2</sub> half high reflection (HR) coatings and HR coatings are prepared by thermal evaporation on CaF<sub>2</sub>, the laser induced damage thresholds (LIDT) at the wavelength of 193 nm for the LaF<sub>3</sub> single layer and HR coatings are measured. Nomarski microscope is used to observe the surface defects and damage morphology. It is found that the LaF<sub>3</sub> single layer surface becomes more smooth after the preparation, while the MgF<sub>2</sub> layer appears a few defects, and the defects increase as the layer number goes up. Based on micrograph of the thin films, lots of defects play a leading role in HR coating damage mechanism at this condition.

**Key words** thin films; defects; laser damage; thermal evaporation; fluoride

**OCIS codes** 140.2180; 140.3330; 310.1620; 310.1860; 310.6870

## 1 引言

近年来, 以 ArF 准分子激光和 200 nm 以下波长自由电子激光为代表的深紫外光学应用获得了长足的发展<sup>[1-2]</sup>, 其中 ArF 准分子 193 nm 激光在材料精细微加工、深紫外光刻、材料处理及准分子医疗等诸多领域都获得了广泛的应用<sup>[3-4]</sup>, 该研究具有重大的社会价值和经济价值。

无论是 ArF 准分子激光器还是激光应用系统,

都离不开氟化物薄膜光学元件<sup>[5]</sup>。在 高能激光的辐照下, 这些薄膜元件最容易受到损伤, 损伤后的薄膜元件将直接降低系统的光束质量, 使激光应用系统的性能迅速退化, 直至整个系统功能崩溃, 因此光学薄膜元件抗激光损伤能力的程度将对整个系统起到至关重要的作用。

鉴于 193 nm 薄膜在激光应用系统的重要性, 国外从 20 世纪 90 年代开始对 193 nm 光学薄膜元

**收稿日期**: 2012-12-03; **收到修改稿日期**: 2013-03-11

**作者简介**: 常艳贺(1982—), 男, 博士研究生, 主要从事深紫外光学薄膜制备与表征技术等方面的研究。

E-mail: yanhe007@163.com

**导师简介**: 金春水(1964—), 男, 博士, 研究员, 博士生导师, 主要从事短波光学与薄膜技术等方面的研究。

E-mail: jin\_chunshui@yahoo.com.cn

件的激光损伤进行了大量的研究<sup>[6-7]</sup>。研究人员发现,导致 193 nm 激光薄膜元件损伤的因素很多,主要原因不再是以往常见的节瘤缺陷,而是尺度更小量级的缺陷,包括微结构缺陷、界面污染、杂质缺陷以及衬底的亚表面损伤等。这些缺陷不仅控制困难,且难以避免,是导致 193 nm 氟化物薄膜元件激光辐射局域化损伤的主要原因<sup>[8]</sup>。而国内因受到测试条件的制约,对 193 nm 薄膜激光损伤的研究较少。

据此本文通过热蒸发方法制备了一系列氟化物薄膜,利用实验室搭建的 193 nm 激光损伤测试系统进行薄膜元件的损伤测试,并根据薄膜的表面缺陷和损伤形貌的观测结果,探讨了在该工艺条件下制备的 193 nm 氟化物高反射薄膜的损伤机理。

## 2 样品制备与损伤测量装置

### 2.1 样品制备

薄膜样品采用钨舟蒸发方法在高真空镀膜系统中沉积而成,分别制备了 LaF<sub>3</sub>和 MgF<sub>2</sub>单层薄膜,以及 LaF<sub>3</sub>/MgF<sub>2</sub>半反射薄膜和高反射薄膜。制备时本底真空度高于  $2 \times 10^{-4}$  Pa,沉积温度为 300 °C,沉积速率控制在 0.6 nm/s 左右。LaF<sub>3</sub>/MgF<sub>2</sub>半反射薄膜的膜系为 Sub/(L H)<sup>4</sup>2L/Air,LaF<sub>3</sub>/MgF<sub>2</sub>高反射薄膜的膜系为 Sub/(L H)<sup>23</sup>2L/Air,其中 Air 表示空气,H 表示高折射率材料 LaF<sub>3</sub>,L 表示低折射率材料 MgF<sub>2</sub>,薄膜材料均采用 Merck 公司产品。Sub 表示基底,材料为直径 25.4 mm、厚度 1.5 mm 双面抛光氟化钙(CaF<sub>2</sub>),镀制前对基底进行了超声清洗和紫外光照射处理等工作。

### 2.2 损伤测量装置

薄膜样品的激光损伤测试采用基于国际标准 ISO11254 搭建的散射光检测薄膜激光损伤的测量系统<sup>[9]</sup>,该系统用连续的 He-Ne 激光作为探测光束入射到样品上,被检测样品处探测光与 ArF 准分子激光光束重合,测出受 ArF 脉冲激光辐照前后样品散射 He-Ne 激光的能量变化,并采用 Nikon LV100D 型 Nomarski 光学显微镜在 150~200 倍下观测,以和散射光相结合的方式判别薄膜是否损伤。对于不同类型薄膜的散射测量,散射光路需要添加相应的衰减片,探测器的位置也应适当调整,测试系统的典型结构示意图如图 1 所示。

阈值测试采用 1-on-1 方式,即每个样品点只接受一个激光脉冲辐照,不管发生损伤与否,样品移至下一个未辐照点,增加能量密度继续辐照。阈值评

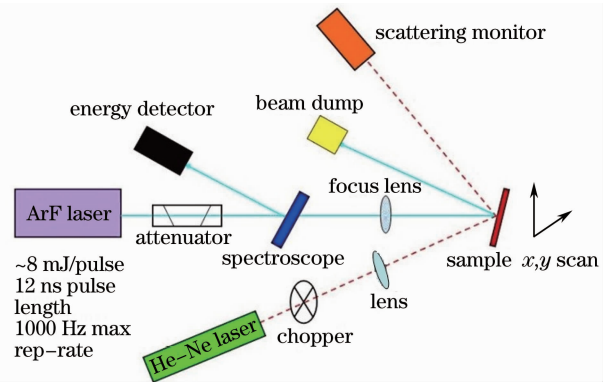


图 1 损伤阈值测量系统示意图

Fig. 1 Schematic of apparatus for laser induced damage threshold measurement

价方法采用零几率损伤方式,即计算出每一个能量密度辐照点中的损伤几率,需要测出多个能量密度下的损伤几率。然后以能量密度为横坐标,损伤几率为纵坐标,作出能量密度与损伤几率图,再对图中数据做线性拟合,拟合线与横坐标的交点处的能量密度即为零几率损伤阈值。

## 3 实验结果及分析

对制备的 LaF<sub>3</sub>单层薄膜以及 LaF<sub>3</sub>/MgF<sub>2</sub>半反射薄膜和高反射薄膜进行了 ArF 准分子 193 nm 激光损伤阈值测量。在同一模式的损伤测试过程中,随着激光能量密度的增加,单层薄膜和半反射薄膜的表面没有发生损伤,而高反射薄膜则有损伤出现,图 2 给出了 LaF<sub>3</sub>/MgF<sub>2</sub>高反射薄膜的激光损伤阈值测试结果,其损伤阈值约为 1.0 J/cm<sup>2</sup>。测试的高反射薄膜设计为标准的  $\lambda/4$  规整膜系,没有考虑薄膜内部驻波场分布的影响<sup>[10]</sup>。

对于氟化物高反射薄膜的激光损伤,由于材料本身和制备工艺的差异,膜层中存在多种缺陷,缺陷在

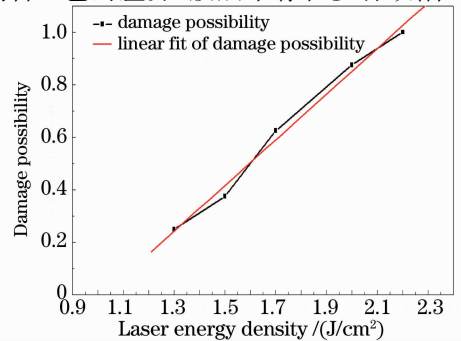


图 2 氟化物高反射薄膜在 193 nm 波长激光辐照下的损伤阈值

Fig. 2 Laser induced damage threshold for fluoride high reflection coatings at the wavelength of 193 nm

膜层中以一定的方式和密度分布,这些缺陷往往是导致薄膜损伤的主要原因<sup>[11]</sup>。图3为LaF<sub>3</sub>/MgF<sub>2</sub>高反射薄膜激光损伤形貌,从图3(a)可以看出,薄膜表面显现出点状烧蚀现象。当薄膜遭受强激光辐照时,缺陷的存在导致薄膜局部吸收的增加,随着吸收的增加,吸收的热量逐渐向四周扩散,当吸收速率高于扩散速率,并且达到临界能量时,薄膜开始出现破斑现

象,如力图3(b)所示。因为实验中ArF准分子激光的输出光斑为矩形,能量分布为平顶形式,所以损伤点和光斑的分布有直接关系。随着能量密度的进一步增加,破斑的面积逐渐扩大,破斑中心也被激光烧蚀得更为严重,直至最后整个破斑的熔融烧蚀,如图3(c)所示。

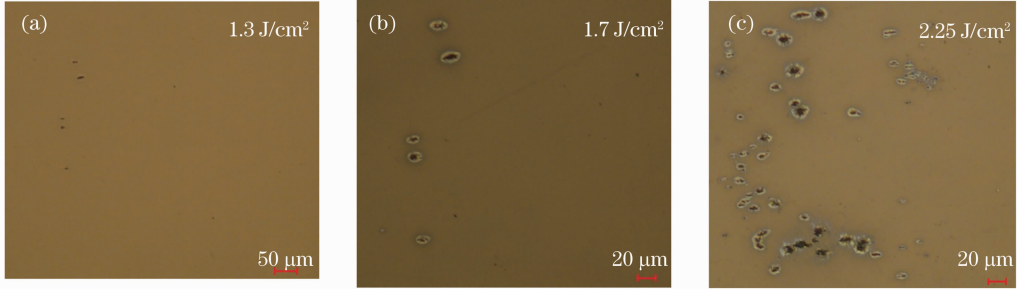


图3 氟化物高反射薄膜随ArF激光能量增大时的损伤形貌对比

Fig. 3 Damage morphology comparison of the fluoride high reflection coatings with ArF laser energy increasing

实验中制备的薄膜进行了激光辐照实验前的表面缺陷观察,采用Nomarski显微镜在200倍暗场(0.6 mm×0.46 mm)条件下分别观察了LaF<sub>3</sub>和MgF<sub>2</sub>单层薄膜,LaF<sub>3</sub>/MgF<sub>2</sub>半反射薄膜和高反射薄膜。观察前先用干燥的高纯氮气对薄膜的表面进行吹洗,吹去薄膜表面的吸附物,然后进行观察。图4为观察的结果,表明在薄膜的制备过程中,单层LaF<sub>3</sub>薄膜沉积后表面比较光滑,看不到缺陷的存在。而MgF<sub>2</sub>薄膜则不同,在沉积后表面已经有少

量的缺陷产生(圈中小黑点),缺陷随着层数的增加而逐渐增多,这在下面的多层膜中MgF<sub>2</sub>层数增多时表现尤为明显。

从上面的分析可知,在此工艺条件下制备的氟化物高反射薄膜,其损伤主要是由于大量缺陷引起的,因此对薄膜沉积过程中缺陷的控制是提高薄膜损伤阈值的重要手段。

一般来说,缺陷的成因有以下几种可能:1)在薄膜生长过程中,由真空室内部杂质和衬板表面污染所引起;2)在抛光和清洗基底时,基底遗留的残余物所引起;3)在沉积过程中,薄膜材料的喷溅所引起的。针对以上所列的可能原因以及相关实验过程进行分析,发现MgF<sub>2</sub>薄膜材料的喷溅是最可能的原因。

在MgF<sub>2</sub>膜料的熔化过程中,膜料以及钼舟上吸附的气体分子会凝聚成一个个小气泡,这些小气泡伴随着蒸发电流的增加而胀大与上升,在浮力作用下迅速上升到液面,迸裂并放出蒸汽,致使MgF<sub>2</sub>膜料发生喷溅。为了避免喷溅的发生,对MgF<sub>2</sub>材料进行预熔去气泡是有效的方法。尽管对材料进行充分预熔,也不可能去除其中所有的气泡,因此在不影响MgF<sub>2</sub>光学性能的前提下,优化控制材料的蒸发速率来减少沉积过程中的喷溅是下一步研究的重要内容。

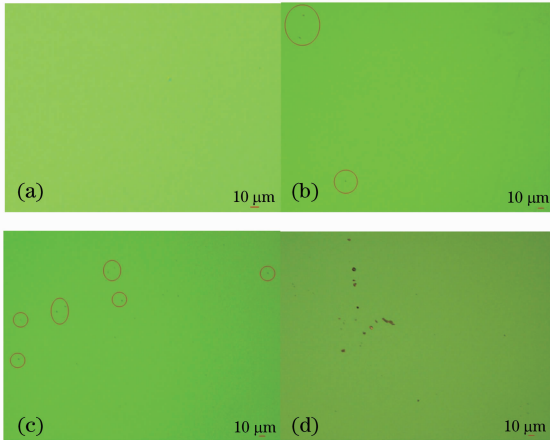


图4 样品损伤实验前的表面缺陷。(a)LaF<sub>3</sub>薄膜;(b)MgF<sub>2</sub>薄膜;(c)LaF<sub>3</sub>/MgF<sub>2</sub>半反射薄膜;(d)LaF<sub>3</sub>/MgF<sub>2</sub>高反射薄膜

Fig. 4 Surface defects of the samples before damage. (a) LaF<sub>3</sub> coating; (b) MgF<sub>2</sub> coating; (c) LaF<sub>3</sub>/MgF<sub>2</sub> half high reflection coating; (d) LaF<sub>3</sub>/MgF<sub>2</sub> high reflection coating

## 4 结 论

采用热蒸发方法分别制备了LaF<sub>3</sub>和MgF<sub>2</sub>单层薄膜,以及LaF<sub>3</sub>/MgF<sub>2</sub>半反射薄膜和高反射薄膜,

对沉积的薄膜进行了 ArF 准分子 193 nm 激光的损伤阈值测量,并采用 Nomarski 显微镜观察了薄膜的表面缺陷和损伤形貌。实验结果表明,在薄膜的制备过程中,单层 LaF<sub>3</sub> 薄膜沉积后表面比较光滑,而 MgF<sub>2</sub> 薄膜则有少量的缺陷产生,缺陷随着薄膜层数的增加而逐渐增多。从单层膜和高反射薄膜的显微观测推断,在此工艺条件下制备的高反射薄膜损伤机理主要是由于大量缺陷所引起的,因此对薄膜沉积过程中缺陷的控制是提高薄膜损伤阈值的重要手段。

### 参 考 文 献

- 1 S Gunster, D Ristau, M Trovo, *et al.*. Deposition of robust multilayer mirror coatings for storage ring FEL lasing at 176 nm [C]. SPIE, 2005, 5963: 59632A.
- 2 S Gunster, H Blaschke, D Ristau, *et al.*. Radiation resistance of single and multilayer coatings against synchrotron radiation[C]. SPIE, 2004, 5250: 146–157.
- 3 Yu Yinshan, You Libin, Liang Xu *et al.*. Progress of excimer lasers technology [J]. Chinese J Lasers, 2010, 37(9): 2253–2270.  
余吟山, 游利兵, 梁 勳等. 准分子激光技术发展[J]. 中国激光, 2010, 37(9): 2253–2270.
- 4 J Ullmann, M Mertin, C Zeiss, *et al.*. Coated optics for DUV-excimer laser applications[C]. SPIE, 2000, 3902: 514–527.
- 5 Chang Yanhe, Jin Chunshui, Li Chun, *et al.*. Optical characterization and structure properties of ultraviolet LaF<sub>3</sub> thin films by thermal evaporation[J]. Chinese J Lasers, 2012, 39(10): 1007002.  
常艳贺, 金春水, 李 春等. 热蒸发紫外 LaF<sub>3</sub> 薄膜光学性能和结构表征[J]. 中国激光, 2012, 39(10): 1007002.
- 6 R Thielsch, J Heber, N Kaiser. Critical issues on the assessment of laser induced damage thresholds of fluoride multilayer coatings at 193 nm[C]. SPIE, 2000, 3902: 224–234.
- 7 W Arens, D Ristau, J Ullmann, *et al.*. Properties of fluoride DUV excimer laser optics; influence of the number of dielectric layers[C]. SPIE, 2000, 3902: 250–259.
- 8 J Dijon, E Quesnel, C Pelle, *et al.*. Laser damage of optical coating from UV to deep UV at 193 nm[C]. SPIE, 1998, 3578: 54–63.
- 9 A Melninkaitis, D Miksys, T Balciunas, *et al.*. Automated test station for laser induced damage threshold measurements according to ISO 11254-2 standard [C]. SPIE, 2006, 6101: 61011J.
- 10 S Gunster, H Blaschke, D Ristau. Laser resistivity of selected multilayer designs for DUV/VUV applications[C]. SPIE, 2007, 6403: 640318.
- 11 Ling Xiulan, Huang Wei, Kong Mingdong, *et al.*. Study on defects in optical thin film[J]. Optical instruments, 2004, 26(2): 178–182.  
凌秀兰, 黄 伟, 孔明东, 等. 激光薄膜缺陷研究[J]. 光学仪器, 2004, 26(2): 178–182.

栏目编辑: 韩 峰