

基于飞秒激光微加工的介质膜损伤修复研究

林圆圆¹⁾²⁾ 姜有恩^{1)†} 韦辉¹⁾ 范薇¹⁾ 李学春¹⁾

1)(中国科学院上海光学精密机械研究所, 高功率激光物理联合实验室, 上海 201800)

2)(中国科学院大学, 北京 100049)

(2014年12月15日收到; 2015年3月4日收到修改稿)

针对波长 1053 nm, 0° 高反介质膜元件, 采用有限时域差分法, 模拟分析了损伤修复点边缘与法线的夹角对膜层内电场强度分布的影响, 该角度越小, 修复点的损伤阈值越高. 通过优化飞秒激光微加工过程中的焦斑尺寸、脉冲能量、扫描步长和扫描次数等参数, 获得了夹角为 25°、深度为 14 μm 的修复点. 该修复点典型的损伤阈值为 21 J/cm², 是修复前的 2.3 倍, 50 个修复点的测试结果表明该修复参数具有非常好的可重复性. 修复点的测试结果还验证了修复点边缘与法线的夹角大小与其损伤阈值的关系, 45° 的电场强度最大值约为 25° 的 2.5 倍, 而 45° 的损伤阈值约为 25° 的 1/2, 模拟和实验结果一致性较好. 同时, 实验验证了微加工的激光脉宽对修复点损伤阈值的影响, 在只改变脉宽的情况下, 脉宽越长, 损伤阈值越低.

关键词: 介质膜元件, 损伤修复, 飞秒激光微加工, 损伤阈值

PACS: 42.62.-b, 78.66.-w, 02.70.Bf, 07.05.Fb

DOI: 10.7498/aps.64.154207

1 引言

在高功率激光驱动装置中, 大口径介质膜光学元件是不可或缺的, 如高反膜、增透膜和偏振膜元件等. 介质膜元件在其加工过程中会引入一些缺陷, 主要的类型包括: 污染物造成的深层节瘤缺陷, 薄膜内部晶格缺陷或纳米杂质引起的纳米级吸收缺陷, 以及基底加工残余的划痕缺陷等. 当运行于高通量密度时, 缺陷点会导致膜层内局部电场强度增强, 进而形成激光损伤. 在激光辐照下, 恶性损伤点的尺寸会持续增长, 降低了光学元件的使用寿命^[1,2]. 为了抑制损伤增长, 近年来发展了多种激光损伤的修复技术^[3-5], 通过微加工技术将恶性损伤点切除, 并形成不发生损伤增长形状的修复坑.

目前, 二氧化碳激光修复石英元件表面损伤^[4]的技术已经应用于美国 NIF 装置中, 采用热烧蚀法将损伤点的裂纹和破碎物蒸发掉, 留下圆锥形的加工区域, 可有效抑制损伤增长. 但是对于介质膜损伤点, 由于多层膜结构的不同成分具有不同的热膨

胀系数与吸收光谱, 热烧蚀法会对膜层产生新的破坏应力, 不能抑制薄膜损伤点的增长. 高速单晶金刚石研磨的加工法验证了修复 KDP 晶体损伤的可行性^[5], 但对于介质膜, 金刚石铣刀在起刀处容易引起膜层之间的剥离, 带来附加损伤, 而且形成的修复形貌边缘与法线的夹角过大, 会导致局部电场强度增强, 同样无法抑制损伤增长^[6]. 飞秒激光微加工是一种将固相材料直接气化的切除过程, 可以规避热烧蚀加工和机械加工的弊端, 非常适合用于介质膜元件的损伤修复^[3]. 由于飞秒激光的脉冲宽度比介质膜材料的电子横向弛豫时间短, 电子来不及将能量传递给晶格, 因此不会对修复区域的材料产生热影响^[7].

本文以波长 1053 nm 的 0° 高反膜元件为对象, 研究获得了适合于该类型元件的飞秒激光微加工修复方法: 首先运用有限时域差分方法 (FDTD) 模拟计算了不同修复形貌相应的电场强度分布, 进而得出优化的形貌; 然后基于飞秒激光微加工, 并测试了损伤点修复后的形貌特征以及相应的损伤阈

† 通信作者. E-mail: joyen@siom.ac.cn

值, 实验和模拟结果具有较好的一致性; 修复点的典型损伤阈值为 21 J/cm^2 , 是修复前的 2.3 倍, 50 个修复点的测试结果表明该修复参数具有非常好的可重复性.

2 模拟计算

运用 FDTD 方法对修复区域的电场强度分布进行模拟计算, 1053 nm 的 0° 高反膜由二氧化铪与二氧化硅交替排列的 24 层膜组成, 膜系结构如图 1 所示. 图中最上面附加一层二氧化硅保护层, 浅绿色代表二氧化铪膜层, 深绿色代表二氧化硅膜层, 中间空白部分代表空气层, 角度 θ 代表边缘和法线的夹角 (下文称为边缘倾斜角度 θ). 二氧化铪膜层厚度为 133.56 nm , 二氧化硅膜层厚度为 181.58 nm , 膜层总厚度为 $3.96 \mu\text{m}$, 二氧化铪比二氧化硅的折射率高, $n_H = 1.97$, $n_L = 1.45$ [8].

研究表明 [8], 对于 0° 高反膜, 当修复点边缘倾斜角度 θ 小于 30° 时, 在激光辐照下修复区域的电场强度增强效应最弱, 即修复点具有高的损伤阈值. 为了与实际的加工水平相符合, 同时验证下文

损伤阈值测试数据的准确性, 模拟了修复点边缘倾斜角度 θ 为 25° 和 45° 两种情况. 对于特定的修复倾斜角, 针对光束入射角为 0° , 5° , 10° 和 15° 的四种情况, 分别模拟了 S 偏振光与 P 偏振光在膜层内的电场强度分布, 部分结果如图 2 所示. 图 2 中 (a) 与 (b) 为边缘倾斜角度 θ 为 25° , 光束入射角为 5° 时, S 偏振光与 P 偏振光在膜层内的电场强度分布; 而图 2 (c) 与 (d) 为边缘倾斜角度 θ 为 45° , 光束入射角为 5° 时, S 偏振光与 P 偏振光在膜层内的电场强度分布. 为了便于观察, 实验结果图在纵向方向进行了拉伸, 由图中可知: 电场强度分布与边缘倾斜角度 θ 和入射光的偏振方向密切相关.

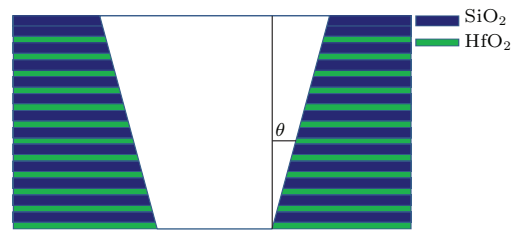


图 1 (网刊彩色) 0° 高反膜模拟区域示意图
Fig. 1. (color online) Schematic diagram of the simulation domain for 0° high reflector coating.

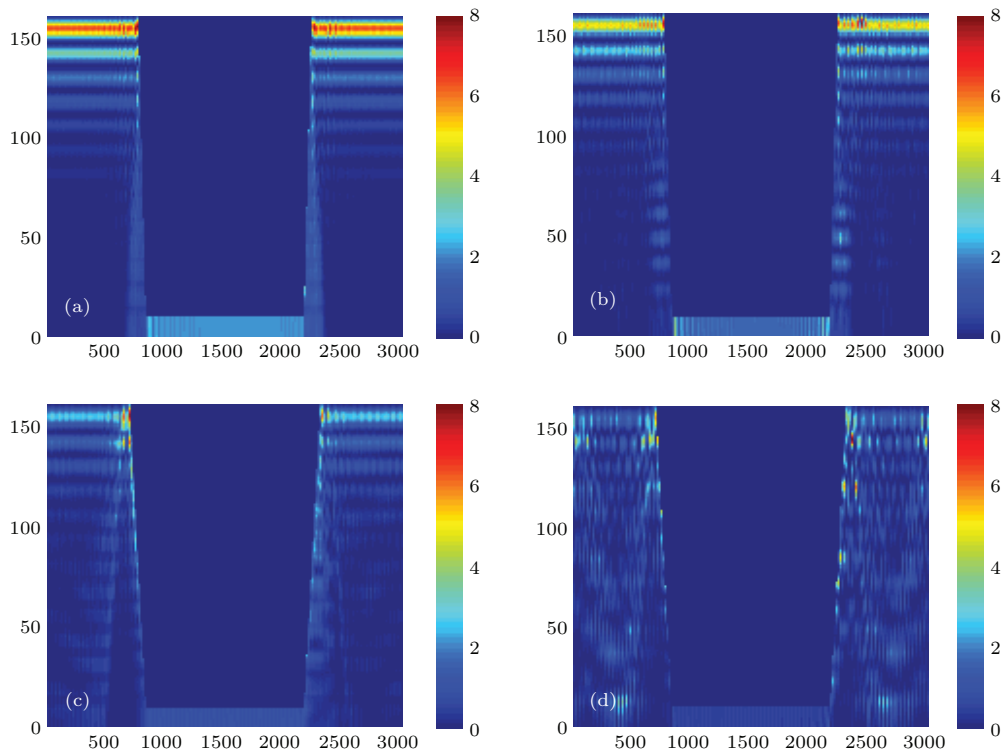


图 2 (网刊彩色) 部分电场强度分布图 (a) θ 为 25° , 入射光为 P 偏振光; (b) θ 为 25° , 入射光为 S 偏振光; (c) θ 为 45° , 入射光为 P 偏振光; (d) θ 为 45° , 入射光为 S 偏振光

Fig. 2. (color online) Representative images of simulated field distribution for multilayer film: (a) θ is 25° , the incident light is P-polarized; (b) θ is 25° , the incident light is S-polarized; (c) θ is 45° , the incident light is P-polarized; (d) θ is 45° , the incident light is S-polarized.

因为损伤易发生在高折射率的HfO₂膜层内^[7], 所以只对HfO₂膜层内的电场强度最大值的分布进行了总结, 结果如图3所示. 由结果可得出以下三点结论: 其一, 当光束入射角与偏振方向不变时, 修复形貌边缘倾斜角度 θ 为25°的膜层内的电场强度最大值较小, 电场强度最大值分布与损伤阈值关系密切, 电场强度最大值越高, 损伤阈值越低, 所以边缘倾斜角度 θ 为25°的修复形貌优于45°的修复形貌. 其二, 在边缘倾斜角度 θ 为25°, 入射角为5°的情况下, P偏振光与S偏振光的电场强度最大值比值为0.7, 在边缘倾斜角度 θ 为45°情况下的比值为0.4, 即P光的电场强度最大值小于S光. 主要原因是P光的振动方向位于入射平面内, 且与传输方向垂直, 只有平行于界面的分量可以耦合进入介质膜内, 而S偏振光的振动方向与修复界面平行. 因此, 在小角度入射的情况下, 修复点的S偏振光损伤阈值低于P偏振光. 其三, 激光入射角在0至10°区间时, 电场强度最大值的变化PV为14%, 并且0°入射时该值较小, 即0°入射时修复点的损伤阈值较高. 因此, 当激光入射角在10°范围内进行修复点的损伤阈值测试时, 对损伤阈值测试结果影响很小, 验证了下文激光小角度入射测试方法的可靠性.

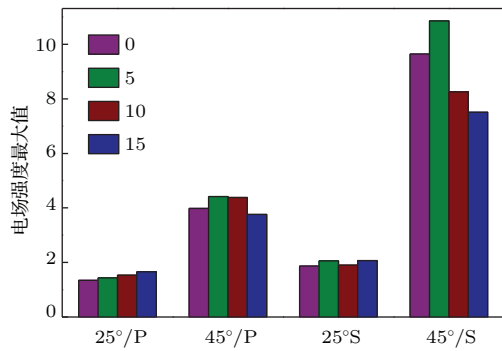


图3 (网刊彩色) 电场强度最大值的统计图

Fig. 3. (color online) Summary plot shows the distribution of the maximum intensification.

3 飞秒激光微加工的修复形貌

3.1 实验系统

实验系统如图4所示, 采用了Light conversion公司生产的PHAROS激光器作为光源, 脉冲宽度~260 fs至10 ps可调, 中心波长为1025 nm, 重频200 kHz时输出的最高单脉冲能量为30 μJ. 飞秒激

光器出射的光束经过45°高反镜传输至两轴的扫描振镜, 然后通过透镜L2聚焦到介质膜元件待修复的损伤区域, 介质膜元件安装在三维位移台上. 为了实现精确对焦, 利用从加工元件表面残余反射光通过透镜L2、振镜L1后, 在CCD1上采集到的光斑形状作为负反馈进行对焦调节. 最后通过振镜, 实现光栅扫描(raster-scanning)式的微加工, 加工区域为矩形, 光斑叠加率~50%.

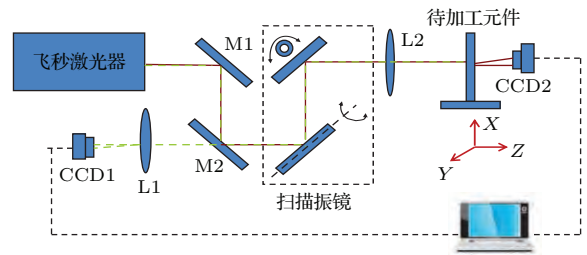


图4 飞秒激光修复系统图

Fig. 4. Optical diagram for the femtosecond laser machining.

为了研究光斑大小对修复形貌的影响, 实验中L2采用了两种不同焦距的聚焦透镜: 第一种焦距为100 mm的平凸透镜; 第二种为Mitutoyo公司生产的M Plan Apo NIR显微物镜, 倍率为20×, 数值孔径为0.4, 焦距为10 mm. 高斯光束经透镜变换后的束腰直径尺寸与瑞利距离计算公式为

$$2w = \frac{4f\lambda}{\pi D} M^2, \quad (1)$$

$$RD = \frac{\pi w^2}{\lambda}, \quad (2)$$

(1) 式中 f 为聚焦透镜的焦距, λ 为激光的波长, $M^2 = 1.1$ 为常数, D 为入射光束的束腰直径4 mm;

(2) 式中RD为瑞利距离. 对于焦距为100 mm的透镜, 焦斑的束腰直径为35.9 μm, 瑞利距离为987 μm; 对于焦距为10 mm的透镜, 焦斑的束腰直径为3.6 μm, 瑞利距离为9.8 μm.

3.2 加工结果

修复点形貌控制的基本要求为: 边缘光滑, 没有裂纹, 以及边缘倾斜角度 θ 较小. 实验中采用了光学显微镜和扫描电子显微镜(SEM)对修复点的形貌进行测定, 主要研究了聚焦光斑尺寸, 激光单脉冲能量和脉冲宽度等参数对修复形貌的影响, 修复形貌如图5至图7所示. 其中图5是典型的修复点显微成像图, 图5(a)为直接飞秒激光微加工的修

复点形貌,可以看出方形修复坑周围的膜层表面有细微的划痕. 这是飞秒激光加工过程中的溅射物造成的次生破坏效应,膜层材料经飞秒激光气化后又凝结成固态的飞溅物,一部分飞溅物从坑底溅出后划过边缘膜层的表面,形成了划痕. 图5(b)是在待修复区域涂覆了一层光刻胶,修复点加工完毕,将光刻胶清洗干净后的形貌,图中方形修复坑周围膜层表面非常干净,没有划痕. 后续的损伤阈值测试结果表明,飞溅物的次生破坏对修复点的损伤阈值影响不大,因此后面的实验都是直接飞秒激光微加工的结果.

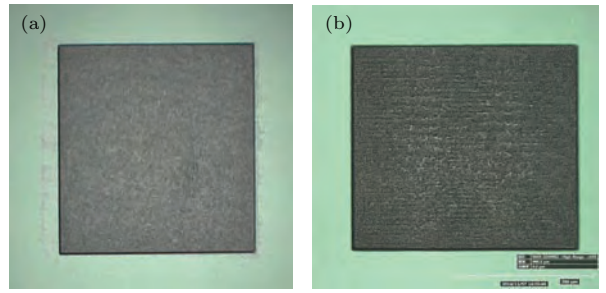


图5 飞秒激光微加工的修复点显微形貌 (a) 没有光刻胶保护; (b) 光刻胶保护
 Fig. 5. Optical microscope images of femtosecond laser-machined mitigation pits: (a) Without photoresist protection; (b) with photoresist protection.

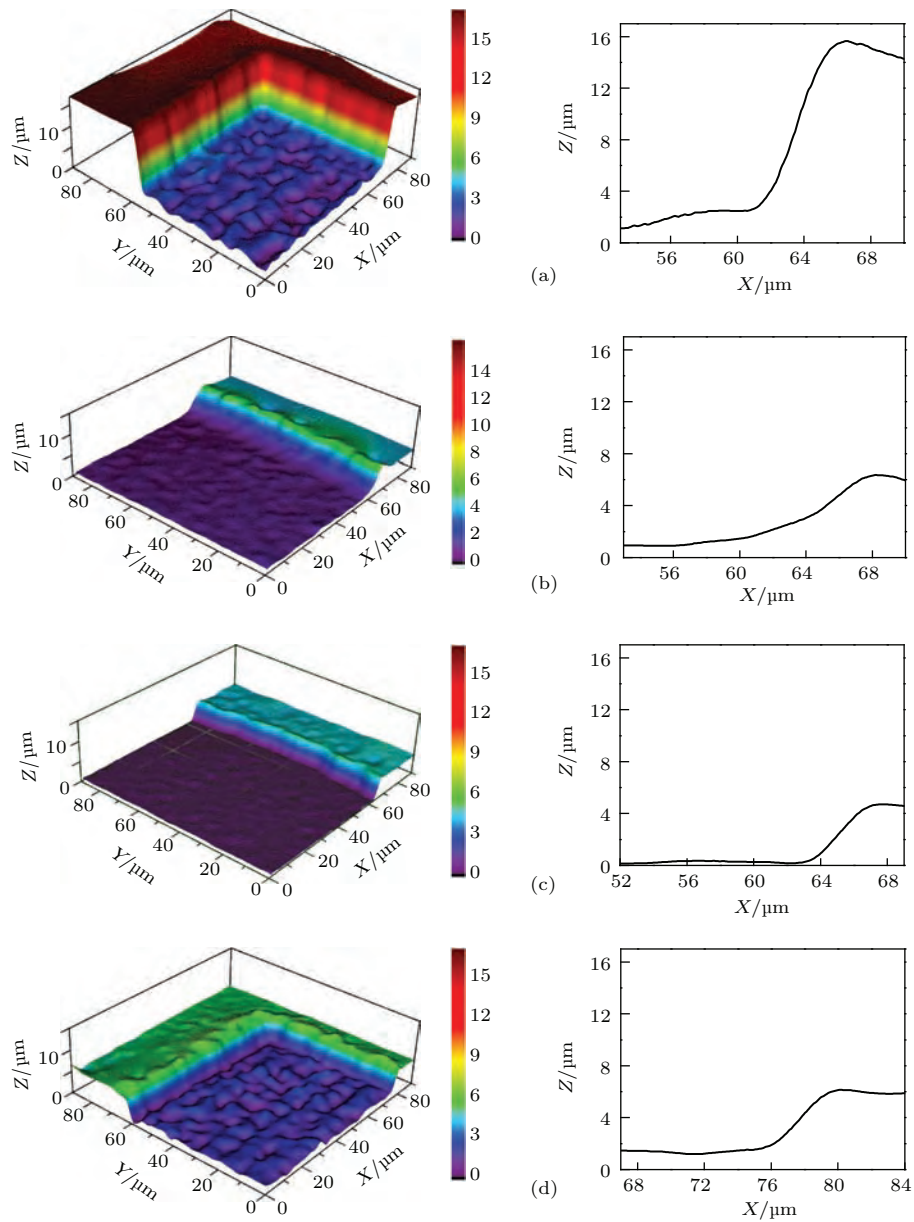


图6 (网刊彩色) 修复形貌边缘的三维图及二维图 (a) 10 mm, 2 $\mu\text{J}/\text{pulse}$, 260 fs; (b) 100 mm, 2 $\mu\text{J}/\text{pulse}$, 260 fs; (c) 10 mm, 200 nJ/pulse, 260 fs; (d) 10 mm, 2 $\mu\text{J}/\text{pulse}$, 6 ps
 Fig. 6. (color online) 3 D and 2 D morphology of the mitigation pits' sidewall: (a) 10 mm, 2 $\mu\text{J}/\text{pulse}$, 260 fs; (b) 100 mm, 2 $\mu\text{J}/\text{pulse}$, 260 fs; (c) 10 mm, 200 nJ/pulse, 260 fs; (d) 10 mm, 2 $\mu\text{J}/\text{pulse}$, 6 ps.

首先, 对比不同焦斑尺寸的影响, 加工形貌的局部如图 6(a) 和 (b) 所示, 分别为焦距 10 mm 和 100 mm 透镜的加工结果. 从图中可以得出, 10 mm 焦距情况下的加工深度为 14 μm , 相应的边缘倾斜角度 θ 为 25°, 100 mm 焦距相应的加工深度为 5 μm , 角度 θ 约为 60°. 由于前者的瑞利距离和焦斑面积都只有焦距 100 mm 透镜的百分之一, 因此极大地缩小了单个激光脉冲的作用范围, 即降低了对修复点边缘膜层以及基底的影响, 同时极大的提高了焦斑的峰值功率密度, 增加了单次扫描加工的深度, 因此短焦透镜加工的边缘更为陡峭. 图 6(a) 在 SEM 下的观测结果如图 7 所示, 图中修复点的边缘过渡较为光滑、没有裂纹, 并且侧壁陡峭, 修复点底部的再沉积区域呈现海绵状, 修复点周围残余少许颗粒状的溅射物.

其次, 对比不同单脉冲能量的影响, 对比结果如图 6(a) 和 (c) 所示, 都采用了焦距 10 mm 的物镜, 其中图 6(a) 的单脉冲能量为 2 μJ , 图 6(c) 为 200 nJ. 单脉冲能量较低时, 单次扫描加工深度较浅, 薄膜几乎是被层层剥除的, 并且没有伤及基底, 修复形貌边缘坡度较缓, 边缘倾斜角度 θ 约为 45°.

最后, 对比不同脉冲宽度的影响, 图 6(d) 是激光脉宽为 6 ps 的加工形貌三维图及边缘倾斜角度示意图. 对比图 6(a) 的 260 fs 加工结果, 6 ps 加工形貌的底部极不平坦, 且边缘倾斜角度 θ 较大, 有 45° 左右. 增加脉宽, 同样降低了焦斑的峰值功率密度, 并且加工中的热效应已经开始显现.

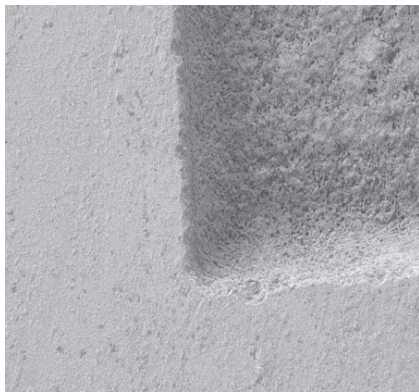


图 7 电子显微镜下观测的修复形貌边角
Fig. 7. SEM image of mitigation feature corner.

4 修复点的损伤阈值

修复点的损伤阈值是衡量修复效果的重要参数. 本文的测试方法如文献 [9], 采用细光束 Raster-

scan 的方式, 开始以较低的激光通量密度遍历扫描修复区域, 若未发生损伤增长, 则通量密度递增 3 J/cm^2 后重新扫描, 直至修复区域发生损伤增长为止. 测试系统如图 8 所示, 图中 M3, M4 为 45° 高反射镜, L3 为聚焦透镜, M5, M6 为楔形棱镜, 1, 3 为二分之一波片, 2 为检偏器; 4, 5 为吸收阱, 6 为 PIN 型光电二极管, 7 为能量计, Nd: YAG 激光器 [10] 的脉宽为 3 ns、重频为 5 Hz、中心波长为 1064 nm. 实际的激光入射角约有 10°, 一方面是为了避免激光入射到成像监测系统中, 另一方面可防止反射光对激光系统造成破坏. 上文 FDTD 计算结果表明, 入射角为 10° 时, 对 0° 高反膜损伤阈值测试影响很小, 能够模拟光学元件正常的使用状态.

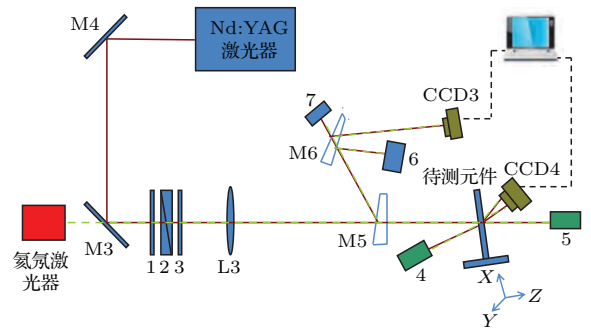


图 8 激光损伤阈值测试光路图
Fig. 8. Optical diagram for the laser damage threshold test.

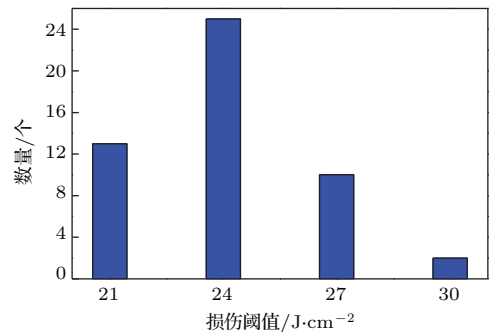


图 9 50 个修复点损伤阈值测试结果的统计图
Fig. 9. Summary plot shows the testing result for 50 mitigation pits' damage threshold.

在图 6(a) 的损伤阈值测试过程中, 激光通量密度低于 18 J/cm^2 时, 修复形貌几乎没有任何变化, 当达到 18 J/cm^2 时, 可以观察到边缘发生非破坏性损伤, 最终在 21 J/cm^2 发生损伤增长; 图 6(b) 的阈值为 9 J/cm^2 ; 图 6(c) 的阈值为 12 J/cm^2 ; 图 6(d) 的阈值为 15 J/cm^2 . 利用图 6(a) 的工艺在同一个镜片上加工了 50 个损伤修复点, 并且进行了

损伤阈值测试, 阈值统计结果如图 9 所示. 所有修复点的损伤阈值均在 21 J/cm^2 以上: 21 J/cm^2 占 26%, 24 J/cm^2 占 50%, 27 J/cm^2 占 20%, 30 J/cm^2 占 4%. 损伤点本身的损伤阈值为 9 J/cm^2 , 图 6(a) 修复点的损伤阈值是损伤点的 2.3 倍.

5 结 论

FDTD 模拟和损伤测试结果都表明, 微加工区域边缘倾斜角度 θ 是决定修复点损伤阈值的关键因素. 对于 0° 高反膜, 模拟结果表明, 修复点边缘倾斜角度 θ 越小越好. 影响修复点边缘倾斜角度 θ 有两大因素, 即焦斑的作用范围和修复点切除深度, 两者的比值即边缘与法线夹角的正切值. 可以通过减小焦斑的作用范围, 同时增加修复点的切除深度来减小夹角值. 以 25° 和 45° 的修复点为例, 图 3 中 45° 的 FDTD 模拟结果电场强度最大值约为 25° 的 2.5 倍, 而 45° 的损伤阈值约为 25° 的 $1/2$, 模拟和实验结果一致性较好.

激光微加工的脉宽也影响了修复点的损伤阈值, 激光脉宽增加后, 损伤阈值明显下降. 在不改变扫描步长和次数的情况下, 脉宽增加, 降低了焦斑的峰值功率密度, 导致每次加工深度下降, 并且底部的平整度变差. 坑底的微结构会对光产生调制, 但由于底部的反射率较低, 相比于边缘引入的硬边衍射, 该部分贡献量较小. 脉宽 6 ps 激光的加工深度下降后, 边缘倾斜角度 θ 变大. 根据 FDTD 的模拟结果, 边缘倾斜角度 θ 变大致使膜层局部电场增强, 是损伤阈值下降的主要原因. 260 fs 和 6 ps 两种激光脉冲条件下累计的总能量相同, 但是脉宽变宽后, 加工的总深度下降了, 推断有部分激光能量转化为热效应. 在 SEM 下观测时, 6 ps 的加工结果也没有发现微裂纹, 所以该加工条件下的热效应还不是影响损伤阈值的主要因素.

实验结果表明, 通过飞秒激光微加工的手段,

对波长 1053 nm, 0° 高反介质膜元件的损伤点进行修复是完全可行的. 通过优化飞秒激光微加工参数, 所获得的夹角为 25° 、深度为 $14 \mu\text{m}$ 的修复点, 边缘过渡光滑, 损伤阈值为修复前的 2.3 倍, 并且参数具有非常好的可重复性和一致性. 下一步的优化方向为进一步减小修复点边缘倾斜角度 θ , 以提高修复点的损伤阈值.

感谢孙明营博士在修复点三维形貌测试过程中给予的建议和帮助.

参考文献

- [1] Wolfe J E, Qiu S R, Stolz C J 2011 *Appl. Opt.* **50** 9
- [2] Li L, Xiang X, Yuan X D, He S B, Jiang X D, Zheng W G, Zu X T 2013 *Chin. Phys. B* **22** 054207
- [3] Wolfe J, Qiu R, Stolz C, Thomas M, Martinez C, Ozkan A 2009 *Proceedings of the 41st SPIE Boulder, Colorado*, September 21–23, 2009 p750405
- [4] Palmier S, Gallais L, Commandre M, Cormont P, Courchinoux R, Lamaignere L, Rullier J L, Legros P 2009 *Appl. Surf. Sci.* **255** 10
- [5] Geraghty P, Carr W, Draggoo V, Hackel R, Mailhiot C, Norton M 2007 *Proceedings of the 38th SPIE Boulder, Colorado*, September 25–27, 2006 p64030Q
- [6] Qiu S R, Wolf J E, Monterrosa A M, Feit M D, Pistor T V, Stolz C J 2011 *Appl. Opt.* **50** 9
- [7] Chen S L 2013 *Ph. D. Dissertation* (Shanghai: Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics Chinese Academy of Sciences) (in Chinese) [陈顺利 2013 博士学位论文 (上海: 中国科学院上海光学精密机械研究所)]
- [8] Qiu S R, Wolfe J E, Monterrosa A M, Feit M D, Pistor T V, Stolz C J 2009 *Proceedings of the 41st SPIE Boulder, Colorado*, September 21–23, 2009 p75040M
- [9] Borden M R, Folta J A, Stolz C J, Taylor J R, Wolfe J E, Griffin A J, Thomas M D 2005 *Proceedings of the 37th SPIE Boulder, Colorado*, September 19–21, 2005 p59912A
- [10] Wang C, Wei H, Wang J F, Jiang Y E, Fan W, Li X C 2014 *Acta Phys. Sin.* **63** 224204 (in Chinese) [汪超, 韦辉, 王江峰, 姜有恩, 范薇, 李学春 2014 物理学报 **63** 224204]

Study on damage mitigation for dielectric mirrors by using femtosecond laser micromachining

Lin Yuan-Yuan¹⁾²⁾ Jiang You-En^{1)†} Wei Hui¹⁾ Fan Wei¹⁾ Li Xue-Chun¹⁾

1) (National Laboratory on High Power Laser and Physics, Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China)

2) (University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

(Received 15 December 2014; revised manuscript received 4 March 2015)

Abstract

Electric field distribution, in the wavelength range 1053 nm and 0° high reflection coatings, with different truncated conical pits has been estimated by using the finite difference time domain method (FDTD). Results of simulations indicate that the smaller the angle between the pit's edge and the normal line, the higher the damage threshold of the mitigation pit. In the experimental process, the dimension of this angle mainly depends on two factors, i.e. the influencing area of the focal spot and the depth of mitigation pits. Because the ratio between them is the angle's tangent, decreasing the influencing area of the focal spot and increasing the depth of the machined area could yield a mitigation pit with a smaller angle. By optimizing the focal spot size, pulse energy, step size and the number of machining passes of femtosecond laser micromachining, a pit with an angle of 25° and a depth of 14 μm is obtained. The typical damage threshold of the mitigation pit is about 21 J/cm^2 , which is 2.3 times greater than the fluence-limited defect. Moreover, the laser damage testing results of 50 mitigation pits show that the mitigation process has a good repeatability. The correlation between the cone angle and the damage threshold is also examined, the simulations are in agreement with the experimental results. The ratio of the maximum intensification between 45° and 25° cone angles is ~ 2.5 and that of the damage threshold between the two angles is ~ 0.5 . At the same time, the relationship between the micromachining pulse width and the damage threshold is also estimated: if other process parameters are kept constant, a longer pulse length tends to produce lower laser-resistant mitigation pits. Compared to the result of 260 fs laser pulse, the truncated conical pit created by 6 ps laser pulse has a smaller depth, which implies that more thermal effect occurs during the micromachining process. However, cracks are not found around the pit. Thus, thermal damage is not the major reason for the decrease of damage threshold. Meanwhile, smaller depth also indicates that the pit has a large cone angle. According to the result of former FDTD simulation, the decrease of damage threshold is mainly caused by electric field enhancement in a pit with a large cone angle.

Keywords: dielectric mirrors, damage mitigation, femtosecond laser micromachining, laser damage threshold

PACS: 42.62.-b, 78.66.-w, 02.70.Bf, 07.05.Fb

DOI: 10.7498/aps.64.154207

† Corresponding author. E-mail: joyen@siom.ac.cn