

储存环自由电子激光器与 KrF 激光器 激光谐振腔腔镜研制*

高怀林¹ 王乃彦² 单玉生²

1 (中国科学院电子学研究所 北京 100080)

2 (中国原子能科学技术研究院 北京 102413)

摘要 惯性约束核聚变氟化氪激光驱动器与储存环自由电子激光器,虽然其激光产生机理完全不同,但是它们对于激光谐振腔光学膜系的要求却几乎完全相同.新研制的 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{SiO}_2/\text{MgF}_2$ “双氧化物+单氟化物”紫外光学膜系,在 248nm 中心波长处,它的光学透射率测量值为 0.27%—0.71%,反射率的计算值为 96.5%,其光谱带宽为 22.6nm.在脉冲宽度为 23ns 的 KrF 激光照射下,它的抗激光损伤阈值达到 $(5.36 \pm 0.30)\text{J}/\text{cm}^2$,是可用于储存环紫外波长自由电子激光研究与数千焦耳数量级高能、高功率 KrF 激光驱动器研究的高破坏阈值紫外光学膜系.

关键词 KrF 准分子激光 储存环自由电子激光 激光惯性约束核聚变 激光谐振腔光学膜系

1 引言

由于储存环自由电子激光是相干、可调谐、高重复频率、高功率、UV 与深紫外、皮秒激光光源,因而在生物、医学、化学、微电子、材料科学等研究领域具有重要的应用价值,是人们进行基础研究与应用基础研究的理想光源^[1-11].许多国家都建造了储存环自由电子激光器.可是,由于储存环自由电子激

光是相对论性电子束团与光子相互作用的产物,它的紫外激光辐射、高阶谐波辐射^[5]、及其辐射的高重复频率、高输出功率,会对激光谐振腔的光学膜系造成严重的损坏^[1-7].为此,在储存环自由电子激光器研究领域,各同步辐射实验室、自由电子激光实验室、电子对撞机中心都积极开展了抗激光损伤的高破坏阈值激光谐振腔光学膜系技术的实验研究工作.在意大利 ELETTRA 装置上的欧洲联合研究体

表 1 各实验室的储存环自由电子激光器激光谐振腔光学膜系研究进展

实验室	光源名称	波段/nm	状态
DUKE, NC, USA	OK-4	194—217	$\text{Al}_2\text{O}_3/\text{SiO}_2, \text{HfO}_2/\text{SiO}_2$
LURE-ORSAY, France	Super-ACO	300—350	$\text{Al}_2\text{O}_3/\text{SiO}_2, \text{HfO}_2/\text{SiO}_2$
Dortmund, Univ., Germany	Felicital	470	$\text{Al}_2\text{O}_3/\text{SiO}_2, \text{HfO}_2/\text{SiO}_2$
ETI-Tsukuba, Japan	NIJI-IV	228 150(H标)	$\text{Al}_2\text{O}_3/\text{SiO}_2, \text{HfO}_2/\text{SiO}_2$
IMS-Okazaki, Japan	UVSOR	210—239	$\text{Ta}_2\text{O}_5/\text{SiO}_2, \text{HfO}_2/\text{SiO}_2$
ELETTRA, Italy	VUV-FEL	189—356	$\text{Al}_2\text{O}_3/\text{SiO}_2, \text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ $\text{Ta}_2\text{O}_5/\text{SiO}_2$

2004-06-08 收稿

* 国家高技术研究发展计划(863-416-1),国家自然科学基金(10475081),核工业科学基金资助

(意大利、德国、英国、法国、瑞典)、日本与美国的实验室已经研究出了 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{SiO}_2$ 光学膜系、 $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ 光学膜系与 $\text{Ta}_2\text{O}_5/\text{SiO}_2$ 光学膜系, 见表 1 与表 2. 并

产生了 189nm 的最短波长 UV 激光脉冲输出^[4,8,12,13].

表 2 欧洲 ELETTRA 联合体的 UV 多波长光学膜系研究结果

	光学膜系	基底材料	中心波长 /nm	调谐范围 /nm	脉冲峰值功率 /kW	平均输出功率 /mW
双波长	$\text{Al}_2\text{O}_3/\text{SiO}_2 +$	UV 石英	220	217.9—224.1	0.4	10 (27mA)
	$\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$		380	355.7—362.7	0.4	10 (27mA)
单波长		UV 石英	250	240.0—264.7	—	低
	$\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$	蓝宝石	250	236.5—268.7	8.7	200 (38mA)
			250	242.2—266.5	13	300 (36mA)
	$\text{Al}_2\text{O}_3/\text{SiO}_2$	蓝宝石, UV 石英	190	189.7—200.3	0.7	16.5(31mA)

备注 $\text{LaF}_3/\text{MgF}_2$ 正在研究之中

注: 实验装置的激光谐振腔长 32.4m, 激光脉冲宽度 5ps, 重复频率 4.6MHz. 在激光中心波长 $\lambda_0 = 198\text{nm}$, 光谱带宽 $\Delta\lambda/\lambda_0 = 0.03\%$, 光子通量大于 $10^{18}/\text{s}$.

同样, 在激光惯性约束核聚变研究领域, KrF 准分子激光是当前惯性约束核聚变的二种激光驱动源之一^[14—16]. 在进行激光束能量放大、脉宽压缩与传输的过程中, 放大产生的亚千焦耳、千焦耳、纳秒激光脉冲却对激光放大系统中的成百上千面、大口径光学元件的光学膜系造成严重损坏. 从而限制着激光放大器的能量输出与功率提高. 并且, 大电流电子束在激发激光气体时, 伴随产生的 X 射线与散射电子对激光器的腔镜光学膜系也造成损坏. 此外, 还有激光气体中的 F_2 与 $\text{H}_2, \text{H}_2\text{O}, \text{C-H}$ 等气体杂质发生化学反应生成的 HF 也对激光器的腔镜光学膜系造成了化学腐蚀损坏. 这些作用加剧了惯性约束核聚变光学系统的损坏. 为此, 美国的 LLNL, LANL, 英国的 RAL, 日本都开展了抗激光损伤的高破坏阈值 UV 光学膜系的研究工作. LLNL 的研究结果见图 1 所示. 利用 LLNL 的 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{SiO}_2$ 光学膜系, 美国海军实验室在 NIKE 激光核聚变研究装置上, 产生了 5kJ, 4ns 的 56 束 KrF 激光输出, 在日本 ASHURA 装置上, 产生了 3kJ, 5ns 的 12 束激光脉冲输出. 并已开展了激光靶物理实验研究^[14].

2 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{SiO}_2/\text{MgF}_2$ 光学膜系实验研究

本节介绍新近完成的 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{SiO}_2/\text{MgF}_2$ “双氧化物 + 单氟化物”紫外光学膜系的研究工作. 包括这

种光学膜系的设计参数、实验制备参数与实验测量结果.

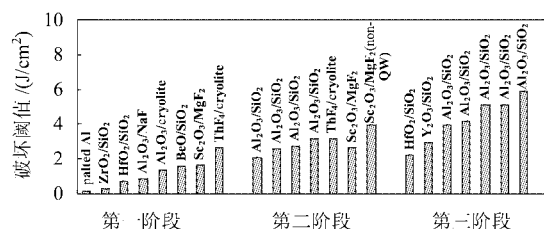


图 1 LLNL 的紫外单波长高破坏阈值 UV 光学膜系研究进展

2.1 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{SiO}_2/\text{MgF}_2$ 光学膜系结构与膜层沉积生长参数

在 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{SiO}_2/\text{MgF}_2$ 激光谐振腔光学膜系设计中, Al_2O_3 选为光学膜系的高折射率材料, SiO_2 与 MgF_2 选为低折射率材料. 光学膜系结构的数学表达式为“ $S[L_2L_2(HL)^{24}HL'H'L_1L_1]A$ ”, 式中的 H 与 L 分别表示光学厚度为 61.5nm 的 Al_2O_3 与 SiO_2 膜层. S 与 A 分别表示膜系的熔融石英基底材料与空气, L' 与 H' 分别表示光学厚度为 81.7nm 与 44.4nm 的 SiO_2 与 Al_2O_3 优化光学膜层, L_1 与 L_2 分别表示光学厚度为四分之一激光波长的 MgF_2 与 SiO_2 附加光学膜层. 由光学膜系的矩阵理论与表 3 中的物理参量可以求得这个光学膜系的反射率与光谱带宽的理论值

表 3 Al₂O₃, SiO₂, MgF₂ 光学材料在紫外波段的物理性能参数

材料	参量	光学折射率	消光系数	光量子能级/eV	膜料纯度(%)	吸收带缘/nm
Al ₂ O ₃		1.71	0.0001	8.7	99.9%	140
SiO ₂		1.51	<0.0001	7.8	99.8%	159
MgF ₂		1.43	0.0004	10.8	99.9%	115

分别为 99.99% 与 19.6nm.

在实验制备中,利用德国生产的 LEYBOLD-750AG 真空光学镀膜机,在 3×10^{-5} mbar 的真空条件下,采用电子束蒸发沉积技术,进行了光学膜层材料的沉积生长.在快速蒸发沉积生长方式实验研究中,为了减小在膜层沉积生长过程中真空室内残留气体杂质掺杂到膜层之内,Al₂O₃, SiO₂, MgF₂ 光学膜层的沉积生长速率分别为 0.5nm/s, 1.5nm/s, 1.5nm/s, 熔融石英基底温度为 250℃.在慢速蒸发沉积生长方式中,Al₂O₃, SiO₂, MgF₂ 光学膜层的沉积生长速率分别为 0.5nm/s, 1.0nm/s, 1.0nm/s.并且,为了修复在蒸发过程中结构可能受损的氧化物分子结构,向真空镀膜室渗入 1.5×10^{-5} mbar 的氧压力,熔融石英基底温度仍为 250℃.53 层膜层沉积生长结束后,对样品进行 3 个小时的慢速冷却处理,以便使膜层内的热应力达到充分的平衡.

2.2 Al₂O₃/ SiO₂/MgF₂ 光学膜系光谱特性与抗激光损伤阈值

对于制备的 Al₂O₃/SiO₂/MgF₂ 谐振腔光学膜系,用日本生产的 SHIMADZU UV-3100 型分光光度计测得的透射光谱见图 2 所示.它们的光学透射率在 248nm 中心波长分别达到了 0.27% 与 0.71%,光学膜系的光谱带宽达到 22.6nm,超过了理论设计指标值 19.6nm.但是,由实验测得的光学膜系透射率 (T) 来求其反射率 (R) 时,由于构成光学膜系的各层介质材料有吸收,所以 $R \neq 100\% - T$,而是 $R = 100\% - T - L$,式中的 L 是多层介质吸收造成的能量耗损. L 所造成的光学反射率的下降值可估算如下.在 Al₂O₃/SiO₂/MgF₂ 光学膜系中,3 种材料的光学吸收系数分别为

$$\alpha_j = \frac{4\pi}{\lambda_0} n_j k_j, j = 1, 2, 3.$$

式中的 n_j 与 k_j 分别为第 j 层材料的光学折射率与消光系数(见表 3).因为每一种材料在光学膜系中的总厚度 (D_j) 等于其膜层总数 (N_j) 乘以其几何厚度 ($d_j = (\lambda_0/4) / n_j = 62\text{nm}/n_j$),所以膜层材料吸收造成的膜系光学反射率下降值为, $L = \alpha_1 D_1 + \alpha_2 D_2 +$

$\alpha_3 D_3 = 0.028 = 2.8\%$.故,这两种光学膜系的反射率在介质有吸收的条件下 $R = 100\% - T - L = 96.83\%$ 与 96.49% .除了透射光谱的差别,由图 2 可见,对于有渗氧的慢速沉积生长的 Al₂O₃/SiO₂/MgF₂ 垂直高反射光学膜系与无渗氧的快速沉积生长的 Al₂O₃/SiO₂/MgF₂ 垂直高反射光学膜系,其光谱分布特性不尽相同,尤其是在短波长方向.前者较后者具有较高的对称性.无渗氧的光学膜系在短波长方向透射率低,而有渗氧的透过率则高.其原因正可能是在电子束蒸发材料的过程中,氧化物分子结构受到了损伤,产生了像 Si, SiO₁ 甚至 Al₂O₂, Al₂O 这样的分子结构,造成对更短波长紫外光的吸收.而在渗氧后,由于结构受损的氧化物分子得到了结构修复,所以对更短波长紫外光无显著吸收.

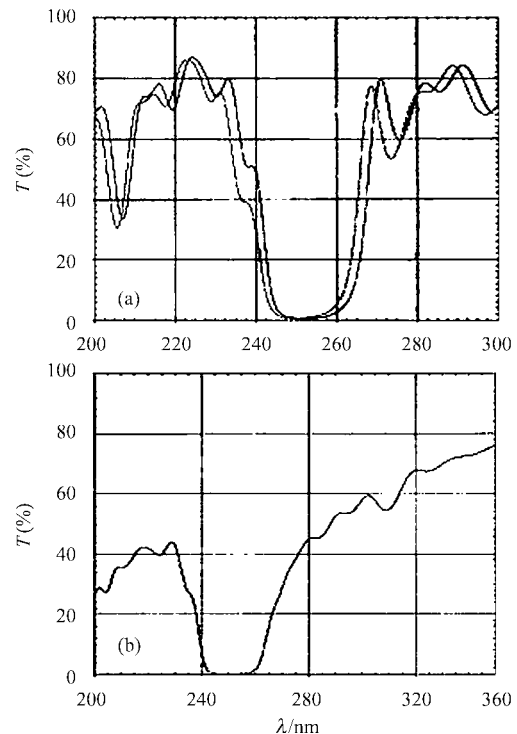


图 2 在熔融石英基底上的 Al₂O₃/SiO₂/MgF₂ 高反射光学膜系的透射光谱测量结果 (a)有渗氧的光学膜系的透射光谱;(b)无渗氧的光学膜系的透射光谱.在 248nm 中心波长的透射率为 0.27 与 0.71,光谱带宽达到 22.6nm.

对于制备的谐振腔光学膜系,利用光声原理测量了它们的抗激光损伤强度——激光损伤阈值^[16],所用的实验装置、测量原理与文献[16]相同,见图3. 实验测量使用的激光器为德国 Lambda Physik 公司生产的 LPX-150 型 KrF 准分子激光器,激光脉冲参数为 500mJ/23ns. 测定照射激光能量的激光能量计为美国生产的 Sci-Tech 38-1UV5 型能量计,测定激光脉冲宽度的光电管为我国生产的 GD-51 型光电管、数字存储示波器为美国生产的 TDS640 型示波器,光声探测器为 PZT-5A 型探头. 依照定义,在单点单次照射标准条件下,样品的破坏阈值定义为发生破坏前的最大激光照射能量密度与发生破坏时的最小激光照射能量密度的算术平均值. 对于无渗氧快速沉积生长的 Al₂O₃/SiO₂/MgF₂垂直高反射光学膜系,基底材料分为 K9 光学玻璃基底与熔融石英基底 2 种. 在 23ns 的 KrF 激光照射下,它们的破坏阈值测量结果见表 4 所示. 其统计平均值分别为 (1.48 ± 0.05)J/cm²与 (2.10 ± 0.11)J/cm². 这表明在相同的实验制备条件下,在熔融石英基底上的光学膜

系破坏阈值比在 K9 光学玻璃基底上的高. 为此,对于有渗氧的慢速沉积生长的 Al₂O₃/SiO₂/MgF₂垂直高反射光学膜系,只使用了熔融石英基底. 从表 4 的实验结果可见,其破坏阈值的统计平均结果为 (5.36 ± 0.30)J/cm². 比无渗氧样品的破坏阈值提高了两倍. 这种差别的物理根源可能与影响光谱特性的原因相同. 此外,从表 4 也可见,在相同研究条件下生长的光学膜系,其破坏阈值也存在着差异. 这就是在此使用统计平均结果来表征光学膜系破坏阈值的原因.

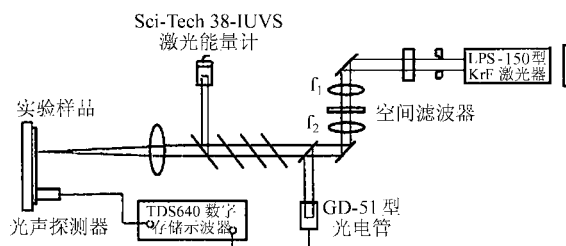


图 3 光学膜系破坏阈值的实验测量装置
M 为光学反射镜或分光镜, L 为光束聚焦透镜.

表 4 Al₂O₃/SiO₂/MgF₂高反射光学膜系结构、膜层沉积生长参数、透射光谱特性、抗激光损伤强度与反射率估算值

光学膜系	膜系结构	膜层沉积生长参数	透射率/光谱带宽/反射率估算值 $T, \Delta\lambda, R$	抗激光损伤阈值测量结果 $E_D/(J/cm^2)$	损伤阈值统计结果 $E_D/(J/cm^2)$
Al ₂ O ₃ /SiO ₂ /MgF ₂	S[L ₂ L ₃ (HL) ²⁴ HLH'L ₁ L ₁]A	$T = 250^\circ\text{C}$	$T = 0.71\%$, $\Delta\lambda = 22.6\text{nm}$, $R = 96.49\%$	K9 基底: 1.41, 1.48, 1.47, 1.54	1.480 ± 0.05
		$V_H = (0.5 \pm 0.01)\text{nm/s}$			
		$V_L = (1.5 \pm 0.13)\text{nm/s}$			
		$V_{L1} = (1.5 \pm 0.01)\text{nm/s}$			
		$V_{L2} = (1.5 \pm 0.13)\text{nm/s}$			
		$P_{O_2} = 0.0\text{mbar}$	石英基底: 2.16, 2.14, 2.26, 1.95, 1.95, 2.12, 2.12	2.10 ± 0.11	
		$T = 250^\circ\text{C}$			
		$V_H = (0.5 \pm 0.01)\text{nm/s}$			
		$V_L = (1.0 \pm 0.12)\text{nm/s}$			
		$V_{L1} = (1.0 \pm 0.01)\text{nm/s}$			
$V_{L2} = (1.5 \pm 1.2)\text{nm/s}$	石英基底: 5.78, 5.02, 5.07, 5.25, 5.53, 5.53	5.36 ± 0.30			
$P_{O_2} = 1.5 \times 10^{-5}\text{mbar}$					

实验研究结论表明,对于 Al₂O₃/SiO₂/MgF₂光学膜系,在 248nm 中心波长的光学反射率达到了 96.73%,膜系光谱带宽达到了 22.6nm. 在无渗氧与有渗氧条件下,沉积生长的二种光学膜系的破坏阈值分别达到了 (2.10 ± 0.11)J/cm²与 (5.36 ± 0.30)J/cm². Al₂O₃/SiO₂/MgF₂光学膜系在熔融石英基底上

的破坏阈值比在 K9 光学玻璃基底上的高,有渗氧的光学膜系较无渗氧的高.

3 潜在的应用

先前利用研究成功的、破坏阈值为 1.71J/cm²的

HfO₂/SiO₂光学膜系,已使我国的“天光”一号 KrF 激光驱动器实现了 400J, 186ns 的激光输出^[17]. 使用新研制的 Al₂O₃/SiO₂/MgF₂光学膜系,也已使中国原子能科学研究院飞秒激光系统实现由 248nm/2mJ/220fs 放大到 248nm/1J/1ps,成功应用于 fs, TW 激光系统. 并且,对于“天光”一号 KrF 激光驱动器,若在增大电泵浦源功率的同时,增大激光器的口径到美国 NIKE 激光器的 $\phi 600$,则在 $(5.36 \pm 0.30) \text{ J/cm}^2$ 的抗激光损伤强度下,激光驱动器就可产生 4kJ 的激光能量,达到美国的当前研究水平. 在储存环自由激光研究领域,新研制的 Al₂O₃/SiO₂/MgF₂光学膜系

物理指标已经达到了欧洲研究水平^[8,9,12,13],为开展我国自己的紫外储存环自由电子激光研究奠定了基础与条件. 进一步的研究工作为将通过利用膜系光谱带宽扩充技术及其叠加技术,研制光谱带宽更宽的多波长光学膜系.

作者感谢常州第二电子仪器厂宋治平副研究员在光学镀膜工作中提供的帮助. 感谢中国原子能科学研究院在完成这项国家高新技术研究工作中所给予的长期支持.

参考文献 (References)

- Patrick G O'Shea, Henry P Freund. *Science*, 2001, **292**(8, June): 1853—1858
- Andruszkow J et al. *Phys. Rev. Lett.*, 2000, **85**:3825
- Mike Poole. *Science*, 1996, **272**(26 April): 467—471
- Heber J et al. *Fraunhofer IOF Annual Report*, 2001, 32
- YU L H et al. *Science*, 2000, **289** (11 August):932
- Milton S V et al. *Science*, 2001, **292**(15 June):2037
- Tremaine A, WANG X J, Babzien M et al. *Phys. Rev. Lett.*, 2002, **88**(20):204801-1-204801-4
- Alexandre Gatto et al. *Appl. Opt.*, 2002, **41**(16): 3236
- Hosaka M, Koda S, Katoh M et al. *Proc. Second Asian Particle Conf.*, Beijing, 2001. 296—298
- Yamada K, Sei N, Ohgaki H et al. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.*, 2000, **A445**:173—177
- Litvinenko V. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.*, 1999, **A429**: 151—158
- Gatto A, Feigl T, Kaiser N et al. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.*, 2002, **A483**:172—176
- Gatts A, Heber J, Kaiser N et al. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.*, 2002, **A483**:357—362
- Obenschain S P et al. *Phys. of Plasmas*, 1996, **3**(5):2098
- Taniguchi J et al. *Proc. SPIE*, 2001, **4347**:109
- GAO Huai-Lin, SHAN Yu-Sheng, WANG Nai-Yan. *Chinese J. Laser*, 1997, **B6**(3):229—237
- GAO Huai-Lin, SHAN Yu-Sheng, WANG Nai-Yan. *Opt. Tech.*, 1997, **6**:23—26(in Chinese)
(高怀林,单玉生,王乃彦. *光学技术*, 1997, **6**: 23—26)

Experimental Investigations on the Resonator Mirrors of SR-FEL and ICF KrF Laser*

GAO Huai-Lin¹ WANG Nai-Yan² SHAN Yu-Sheng²

¹ (Institute of Electronics, CAS, Beijing 100080, China)

² (China Institute of Atomic Energy, Beijing 102413, China)

Abstract For storage-ring free electron laser (SR-FEL) and KrF laser driver of inertial confinement fusion (ICF KrF Laser), the mechanism of laser production is fully different from each other, but they have a nearly same requirement to the resonator mirror. The multi-layer interference coatings of the resonator mirror must suit for ultra-violet and extreme ultra-violet laser, and have a high reflectivity, wide frequency band, stable optical properties, long life-time. Today, a resonator mirror, consisting of oxides and fluoride (Al₂O₃/SiO₂/MgF₂), has been developed successfully. Its optical reflectivity at 248 nm reaches up to 96.83%, its frequency band-width is larger than 19.5nm, and its damage-resistant threshold is $(5.36 \pm 0.30) \text{ J/cm}^2$ to 23ns pulsed laser at 248nm. It will be able to be applied to the tunable high power SR-FEL and kJ ICF KrF laser.

Key words KrF excimer laser, storage-ring FEL, inertial confinement fusion, resonator mirror

Received 8 June 2004

* Supported by National High Technology Research(863-416-1)and Development Program of China, NSFC, Science Foundation of Chinese Nuclear Industry (10475081)