

SR-FEL 宽带腔镜与双带腔镜光学膜系 实验研究与研制*

高怀林¹ 王乃彦² 王东蕾¹ 王永¹

1 (中国科学院电子学研究所 北京 100080)

2 (中国原子能科学研究院 北京 102413)

摘要 利用“电子束蒸发沉积薄膜生长技术+离子束溅射沉积薄膜生长技术”、“ $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2 + \text{Al}_2\text{O}_3/\text{SiO}_2 + \text{M-SiO}_2$ ”复合光学膜系设计技术、 $400^\circ\text{C} \times 4\text{h}$ 高温处理技术,研制的SR-FEL宽带腔镜光学膜系在355nm中心波长的绝对光学反射率测量值为 $R(355\text{nm})=99.45\%$,反射光谱带宽测量值为 $\Delta\lambda$ ($R \geq 99.00\%$)=75nm;研制的355nm/248nm双带腔镜光学膜系,在355nm中心波长,其绝对光学反射率测量值为 $R(355\text{nm})=99.69\%$,反射光谱带宽测量值为 $\Delta\lambda$ ($R \geq 99.00\%$)=59nm;在248nm中心波长, $R(248\text{nm})=98.21\%$,绝对光学反射率光谱带宽测量值 $\Delta\lambda$ ($R \geq 99.00$)=9nm, $\Delta\lambda$ ($R \geq 98.00\%$)=33nm.

关键词 储存环自由电子激光 腔镜光学膜系 电子束蒸发沉积 离子束溅射沉积

1 引言

在储存环自由电子激光(SR-FEL)研究领域,利用激光谐振腔技术产生更短波长、更高功率、紫外与深紫外(UV/DUV)激光是当前SR-FEL的重要研究内容与发展方向之一.因为利用谐振腔技术,SR-FEL的基频辐射与高阶谐波辐射都同时具有最好的时间干涉性和空间干涉性,以及激光辐射波长可以连续调谐的特点^[1-3].作为前端种子光源,与Compton背散射技术、SASE技术、HGFG技术相结合,所产生的 γ -Ray FEL与X-Ray FEL也将同时具有最好的时间干涉性、空间干涉性、可连续调谐之特点^[1-3].但是,相对论性电子束团产生的这种激光辐射与同步辐射却会对激光谐振腔腔镜产生严重的损伤现象.因此,在SR-FEL产生研究中,要求激光谐振腔的腔镜光学膜系不仅要具备绝对高反射率、宽带可调谐能力,而且还要同时具备低吸收率与低散射率耗损、抗同步辐射不退化能力和高破坏阈值性能.以便提高激光提取效率,产生更短波长、更高功率的激光输出,并延长腔镜的使用寿命与储存环的使用效率^[1-4].本文将介绍利用电子束蒸发沉积薄膜生长技术与离子束溅射沉积

薄膜生长技术,研制的SR-FEL激光谐振腔宽带腔镜光学膜系与双带腔镜光学膜系研究结果.

2 物理设计

在中心波长为355nm的宽带腔镜光学膜系设计研究中,和中心波长为248nm与355nm的双带腔镜光学膜系设计研究中,物理设计是基于SR-FEL对于激光谐振腔腔镜光学膜系的物理要求,和当前的实验研究结论进行的.特别是在惯性约束核聚变激光驱动器研究中的一些重要结论,因为二者在对激光谐振腔腔镜光学膜系的要求上极其相似.

由于在惯性约束核聚变激光驱动器研究中,人们发现在UV/DUV激光波长范围内, $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ 光学膜系具有最大的光谱可调谐带宽, $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{SiO}_2$ 光学膜系对于ns, ps, fs激光脉冲具有最高的抗激光损伤阈值^[5, 6];在储存环自由电子激光研究中,欧洲ELETTRA的研究人员发现氧化物,以及多层 SiO_2 光学膜层(M-SiO₂)具有最好的抗同步辐射、反射率不退化能力^[4, 7].所以,在当前的SR-FEL腔镜光学膜系设计中,利用光学膜系叠加技术和频带宽度扩充技术,设

2006-08-08 收稿

* 国家自然科学基金(10475081)资助

计了一种复合型宽带与双带腔镜光学膜系。“ $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2+\text{Al}_2\text{O}_3/\text{SiO}_2+\text{M-SiO}_2$ ”，以便使这种腔镜光学膜系同时具有最高绝对光学反射率、最大激光波长调谐范围、最高抗激光损伤阈值、与最好的抗同步辐射不退化性能。对于中心波长为 355nm 的宽带腔镜光学膜系，其光学膜系结构为“Sub-LL(0.5H-L-0.5H)¹²/88.75nm-(0.5H'-L'-0.5H')²⁵L'/L'-4L'/80nm”，其中的 Sub 表示腔镜基底材料为熔融石英，H 和 H' 分别表示不同光学厚度的 HfO_2 光学膜层和 Al_2O_3 光学膜层，L 和 L' 表示不同光学厚度 SiO_2 光学膜层。其理论设计值为绝对光学反射率 $R=99.90\%$ ，腔镜光谱带宽为 $\Delta\lambda(R\geq 99.00\%)=80\text{nm}$ ；对于双带腔镜光学膜系，其光学膜系结构为“Sub-LL(HL)¹¹/88.75nm-H(LH)¹¹/62nm-H'(L'H')²⁰L'/L'-4L'/53nm”。其理论设计值为，在 355nm 与 248nm， $R=99.90\%$ ， $\Delta\lambda(R\geq 99.00\%)=40\text{nm}$ 。腔镜抗激光损伤阈值达到 $E_D=5\text{J}/\text{cm}^2$ 。

3 沉积生长技术与参数

光学膜系的沉积生长技术与工艺参数，不仅是 SR-FEL 激光谐振腔光学膜系物理设计实现的手段，更是决定腔镜光学膜系物理性能指标实现的关键因素。在惯性约束核聚变激光驱动器研究工作中，LLNL 的研究人员发现，对于相同的激光谐振腔光学膜系设计，利用电子束蒸发沉积生长的腔镜光学膜系，其破坏阈值高于利用离子束溅射沉积生长的腔镜光学膜系的抗激光损伤阈值^[6]。而在 SR-FEL 研究工作中，ELETTRA 的 SR-FEL 研究人员发现，利用离子束溅射沉积生长的腔镜光学膜系，其抵抗同步辐射不退化能力高于利用电子束蒸发沉积生长的腔镜光学膜系^[4, 7]。所以，在本项目研究工作中，选用了电子束蒸发沉积薄膜生长技术与离子束溅射沉积薄膜生长技术相结合的技术。利用电子束蒸发沉积生长技术，来沉积生长腔镜光学膜系以获得有效光学反射带与抗激光损伤光学膜层；利用离子束溅射沉积生长技术，来沉积生长腔镜光学膜系的抗同步辐射光学膜层 (M-SiO₂)，使腔镜光学膜系的物理设计与研制技术完全融合在一起。

同时，由于光学镀膜机不仅是利用薄膜沉积生长技术完成腔镜光学膜系物理设计，而且更是有效控制膜层沉积生长过程参数、实现腔镜光学膜系物理设计指标、获得重复性好的实验数据的保证。因此，在 SR-FEL 腔镜光学膜系实验研究与研制中，使用了德国生产的 LEYBOLD-APS-1104 型电子束蒸发沉积光

学镀膜机，与美国生产的 VECO-SPECTRA-IBS 型离子束溅射光学镀膜机。腔镜光学膜系的沉积生长参数见表 1。在光学薄膜沉积生长过程中，为了修复分子结构受到损伤的氧化物分子^[5]，在薄膜沉积生长过程向真空镀膜室渗入一定压强的氧气，见表 1。

表 1 SR-FEL 激光谐振腔腔镜光学膜系的沉积生长技术与参数

方式	参量	数值
电子束蒸发沉积生长方式	$V(\text{HfO}_2)$	0.5nm/s
	$V(\text{Al}_2\text{O}_3)$	0.5nm/s
	$V(\text{SiO}_2)$	0.6nm/s
	T_D	185°C
离子束溅射沉积生长方式	$P(\text{O}_2)$	$1.5\times 10^{-4}\text{mbar}$
	$V(\text{M-SiO}_2)$	0.3nm/s
	T_D	120°C
	$P(\text{O}_2)$	$4\times 10^{-4}\text{mbar}$
高温热处理条件		400°C×4h

最后，在完成了腔镜光学膜系材料的沉积生长之后，对样品进行了 400°C×4h 的高温处理。其原因有 3：(1) 由于在谐振腔型工作模式下，SR-FEL 的基频光束在腔镜上的光斑直径在 1—3mm 数量级。因此，高峰值功率密度、高重复频率、SR-FEL 激光脉冲将会在腔镜上极小范围内产生几百度的高温与高温梯度。这就要求腔镜光学膜系具有极好的温度稳定性；(2) 在薄膜光学技术研究中，人们发现单层光学薄膜在高温处理后，光学透过率增加^[8]，即光学吸收耗损下降，而且抗激光损伤阈值增加^[9]。这一点也是 SR-FEL 发展更短波长激光所期待的；(3) 高温处理也可以降低腔镜光学膜系本身存在的热应力与热应力不平衡度，改善腔镜光学膜系的力学性能。基于这些因数，对于完成镀膜的腔镜样品进行了高温热处理。热处理过程与参数为，在大气环境下，将放置样品的高温炉从室温加热到 400°C，温度上升梯度为 70°C/h。然后，在 400°C 条件下，恒温 4h 后，让其自然冷却到室温，次日拿出进行测量。

4 物理参数测量与光谱分析

在 UV/DUV 激光波长范围，由于光学材料对光的吸收增大，腔镜光学膜系的透射光谱已经不能完全有效地反应腔镜光学膜系的绝对反射光谱。所以，为了测量腔镜光学膜系的绝对反射率光谱与特征参量，在研究工作中使用了当前测量精度最高的、美国生产的 VARIAN-Cary-5000 分光光度计，测量了所有研制样品的绝对反射率光谱，测量结果如下。

4.1 宽带腔镜

对于宽带腔镜光学膜系, 在 $400^{\circ}\text{C}\times 4\text{h}$ 高温热处理前后的绝对反射率光谱测量结果见图1与表2. 由图1和表2可见, 在高温热处理后, 在 355nm 中心波长的绝对光学反射率测量值为 $R(355\text{nm})=99.45\%$, 光谱带宽测量值为 $\Delta\lambda(R\geq 99.00\%)=406\text{nm}-331\text{nm}=75\text{nm}$; 而在高温热处理前, 在 355nm 中心波长的绝对光学反射率测量值为 $R'(355\text{nm})=99.60\%$, 反射光谱带宽的测量值为 $\Delta\lambda'(R'\geq 99.00\%)=401\text{nm}-333\text{nm}=68\text{nm}$. 由实验测量结果可见, 腔镜在热处理后, 在 $R\geq 99.00\%$ 的反射光谱范围内 ($406\text{nm}-331\text{nm}$), 其绝对反射率增量的算术平均值为 0.39% , 绝对反射光谱的带宽增量为 $\Delta\lambda-\Delta\lambda'=7\text{nm}$, 见图1(b). 这表明所研制的样品, 不仅耐住了 400°C 高温环境, 而且通过高温热处理在有效反射光谱范围内降低了腔镜光学膜系的绝对吸

收率, 提高腔镜光学膜系的绝对反射率、扩展了腔镜光学膜系的光谱带宽, 使 SR-FEL 具有了更宽的激光波长调谐范围与更高的激光提取效率.

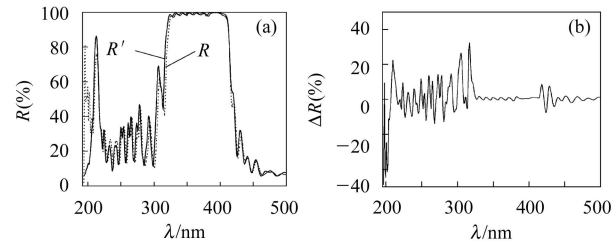


图1 中心波长为 355nm 的 SR-FEL 宽带腔镜绝对反射率光谱测量结果(a)与在 $400^{\circ}\text{C}\times 4\text{h}$ 高温热处理前后的绝对反射率和光谱带宽的变化(b) 其中 R 表示样品在经历 $400^{\circ}\text{C}\times 4\text{h}$ 高温热处理后的绝对反射率测量结果, R' 表示无热处理样品的绝对反射率测量结果.

表2 中心波长为 355nm 的 SR-FEL 宽带腔镜光学膜系在一些波长的绝对反射率测量结果

λ/nm	406	405	401	400	355	341	333	332	331	330
$R/\%$	99.02	99.10	99.55	99.67	99.45	99.73	99.67	99.64	99.38	98.88
$R'/\%$	97.89	98.02	99.01	99.25	99.60	98.65	99.02	98.53	97.73	97.17
$\Delta\lambda/\text{nm}$	$\Delta\lambda(R\geq 99.00\%)=406-331=75\text{nm}$, $\Delta\lambda'(R'\geq 99.00\%)=401-333=68\text{nm}$									

其中的 R 和 $\Delta\lambda$ 表示样品在经历 $400^{\circ}\text{C}\times 4\text{h}$ 高温热处理后的绝对反射率测量结果, R' 和 $\Delta\lambda'$ 表示无热处理样品的绝对反射率测量结果.

4.2 双带腔镜

在宽带 SR-FEL 激光谐振腔光学膜系研究工作的基础上, 开展了双带腔镜光学膜系的研究工作. 腔镜基底材料仍然为熔融石英. 在 $400^{\circ}\text{C}\times 4\text{h}$ 热处理前后的绝对反射率光谱测量结果见图2与表3. 由图2(a)与表3可见, 腔镜样品在高温热处理之后, 在中心波长 $\lambda=355\text{nm}$ 的第一个反射光谱带内, 绝对光学反射率 R 与反射光谱带宽 $\Delta\lambda$ 的测量值为 $R(355\text{nm})=99.69\%$ 与 $\Delta\lambda(R\geq 99.00\%)=373\text{nm}-314\text{nm}=59\text{nm}$, 物理指标与图1(a)相当; 在中心波长 $\lambda=248\text{nm}$ 的第二个反射带内, $R\geq 99.00\%$ 的反射光谱位于 ($275\text{nm}-272\text{nm}$) 与 ($240\text{nm}-234\text{nm}$) 波长范围内, $\Delta\lambda(R\geq 99.00\%)=9\text{nm}$. 在 248nm 中心波长的绝对反射率测量值为 $R(248\text{nm})=98.21\%$. 和第一个反射光谱带相比较, 在第二个反射带内, 绝对反射率分布于 $98.05\%-99.17\%$ 范围内. 其中 $R\geq 98.00\%$ 的反射光谱位于 ($283\text{nm}-259\text{nm}$) 和 ($241\text{nm}-232\text{nm}$), 有效光谱带宽为 $\Delta\lambda(R\geq 98.00\%)=33\text{nm}$. 这些差别表明, 在 DUV 光谱范围内, 材料的光学吸收效应增大.

相对于热处理前的测量结果(图2(b)与表3), 在 $373\text{nm}-314\text{nm}$ 范围内, 热处理后的样品其绝对反

射率增量的算术平均值为 0.73% ; 在 $283\text{nm}-259\text{nm}$ 范围内为 1.04% . 由此可见, 以熔融石英作腔镜基底材料时, 其腔镜光学膜系, 在经历高温热处理之后, 具有当前最大的激光波长调谐范围、最高绝对光学反射率、最好的耐高温性能, 可以满足 SR-FEL 对激光谐振腔腔镜光学膜系的基本要求. 此外, 在 $\Delta\lambda(R\geq 99.00\%)=240\text{nm}-234\text{nm}$ 的光谱范围内, $R(\lambda=234\text{nm})=99.12\%$ 的高反射率说明 Al_2O_3 仍然是 DUV 波长范围内的最好光学膜系材料, 是进一步研究与研制更短波长的 SR-FEL 腔镜光学膜系可选材料.

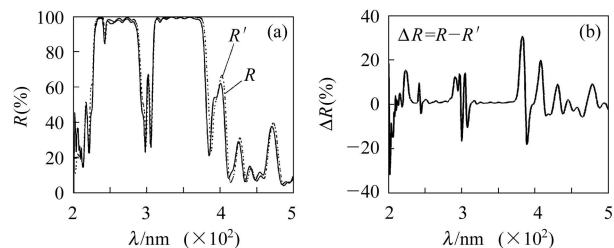


图2 中心波长为 355nm 和 248nm 的双带 SR-FEL 腔镜的绝对光学反射率光谱测量结果 其中 R 表示样品在经历 $400^{\circ}\text{C}\times 4\text{h}$ 高温热处理后的绝对反射率测量结果, R' 表示无热处理样品的绝对反射率测量结果.

表3 双带SR-FEL腔镜光学膜系反射光谱测量结果和反射光谱带宽

λ/nm	373	364	363	355	330	323	322	316	314	283
$R/\%$	99.17	99.73	99.79	99.69	99.46	99.30	98.97	99.09	99.07	98.22
$R'/\%$	97.54	98.83	99.01	99.14	99.04	98.87	98.77	97.81	98.39	96.45
$\Delta\lambda/\text{nm}$	$\Delta\lambda(R > 99.00\%) = 373 - 314 = 59\text{nm}$, $\Delta\lambda'(R' > 99.00\%) = 363 - 330 = 33\text{nm}$									
λ/nm	275	272	271	259	248	241	240	234	233	232
$R/\%$	99.19	99.12	98.89	98.05	98.21	98.83	99.17	99.12	98.82	98.09
$R'/\%$	98.16	98.42	98.19	97.41	97.01	93.61	98.11	98.53	97.98	96.72
$\Delta\lambda/\text{nm}$	$\Delta\lambda(R > 98.00\%) = (283 - 259)\text{nm} + (241 - 232)\text{nm} = 33\text{nm}$, $\Delta\lambda(R > 99.00\%) = (275 - 272)\text{nm} + (240 - 234)\text{nm} = 9\text{nm}$, $\Delta\lambda'(R' > 98.00\%) = (275 - 271)\text{nm} + (240 - 234)\text{nm} = 10\text{nm}$, $\Delta\lambda'(R' > 99.00\%) = 0.0\text{nm}$									

注: R 和 $\Delta\lambda$ 表示样品在经历 $400^\circ\text{C} \times 4\text{h}$ 高温热处理后的绝对反射率测量结果, R' 和 $\Delta\lambda'$ 表示无热处理样品的绝对反射率测量结果.

5 结论

从上面的实验研究工作结果可见, 利用复合腔镜光学膜系设计技术、电子束蒸发沉积与离子束溅射沉积薄膜生长技术, 以及渗氧技术, 高温热处理技术, 研

制的“ $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2 + \text{Al}_2\text{O}_3/\text{SiO}_2 + \text{M-SiO}_2$ ”双带腔镜光学膜系与宽带腔镜光学膜系, 在 248nm 与 355nm 中心波长, 其绝对光学反射率与激光波长可调谐范围, 都已经达到当前的最好研究水平. 进一步要做的工作是改善双带腔镜光学膜系在 244nm 处的不连续性, 克服 HfO_2 光学材料在 220nm 吸收带缘处带来的不利影响.

参考文献(References)

- O'Shea Patrick G, Freund Henry P. Science, 2001, **292**: 1853—1858
- Milton S V, Gluskin E, Arnold N D et al. Science, **292**: 2037—2045
- YU L H, Babzien M, Ben-Zvi I et al. Science, 2000, **289**: 932—934
- Gunster St, Gatto A, Trovo M et al. Proc. 2004FEL Conf., 2004, 233—236
- GAO Huai-Lin, WANG Nai-Yan, SHAN Yu-Sheng. HEP & NP, 2005, **29**: 99—103 (in Chinese)
- (高怀林, 王乃彦, 单玉生. 高能物理与核物理, 2005, **29**: 99—103)
- Rainer F, Milan D, Lowdermilk W H. NBS Special Publication, 1981, **638**: 339—343
- Gatts A, Heber J, Kaiser N et al. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, 2002, **A483**: 357—362
- SHANG S Z, LIAO C Y, YI K et al. High Power Laser & Particle Beams, 2005, **17**: 511—514 (in Chinese)
(尚淑珍, 廖春艳, 易葵等. 强激光与粒子束, 2005, **17**: 511—514)
- GAO Huai-Lin, SHAN Yu-Sheng, WANG Nai-Yan. Chinese J. Laser, 1997, **B6**: 229—237

Development of the Broadband and Dual-band Cavity Mirrors for SR-FEL at 355nm and 248nm*

GAO Huai-Lin¹ WANG Nai-Yan² WANG Dong-Lei¹ WANG Yong¹

¹ (Institute of Electronics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100080, China)

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

Abstract The cavity mirrors of the storage-ring free-electron laser (SR-FEL) at 355nm and 248nm central wavelengths have been developed with the technologies of electron-beam evaporation deposition and ion-beam sputter deposition. The mirror coatings consists of “ $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2 + \text{Al}_2\text{O}_3/\text{SiO}_2 + \text{M-SiO}_2$ ”. The absolute reflectance and frequency-tunable range at 355nm are $R=99.45\%$ and $\Delta\lambda(R \geq 99.00\%) = 75\text{nm}$, respectively, for the broadband resonator mirror. For the mirror with the dual-central wavelengths, $R=99.69\%$ and $\Delta\lambda(R \geq 99.00\%) = 59\text{nm}$ for the first band at 355nm ; For the second band at 248nm , $R=98.21\%$, $\Delta\lambda(R \geq 99.00\%) = 9\text{nm}$ and $\Delta\lambda(R \geq 98.00\%) = 51\text{nm}$.

Key words storage-ring free-electron laser, cavity mirror coatings, electron-beam evaporation deposition, ion-beam sputter deposition

Received 8 August 2006

* Supported by NSFC (10475081)