

激光诱导 HF 酸刻蚀后熔石英后表面 划痕的损伤行为研究*

王凤蕊 黄 进 刘红婕 周信达 蒋晓东[†] 吴卫东 郑万国

(中国工程物理研究院激光聚变研究中心, 绵阳 621900)

(2009 年 4 月 27 日收到; 2009 年 11 月 3 日收到修改稿)

用光学显微镜和原子力显微镜记录 HF 酸刻蚀后熔石英元件后表面划痕的形貌结构, 并利用单脉冲激光对其进行辐照测试, 以研究不同结构参数划痕的激光损伤特性. 实验结果表明, 由于 HF 酸的腐蚀钝化作用, 划痕结构横向截面呈余弦形分布; 其初始损伤阈值并非由单一的划痕宽度或深度参数决定, 而是与其横向剖面结构的宽深比值密切相关; 通过实验得到了二者之间的关系曲线, 并采用时域有限差分算法对不同结构参数划痕附近光场分布进行理论模拟, 理论场计算得到的增强结果与实验值符合得很好.

关键词: 熔石英, 后表面划痕, 宽深比, 损伤特性

PACC: 8140T, 4270E, 4260H

1. 引 言

用于惯性约束聚变的大型激光装置中, 熔石英元件在紫外波段的抗激光损伤能力是提高激光器输出功率的关键^[1]. 导致熔石英元件损伤阈值偏低的主要因素是表面和亚表面缺陷, 包括划痕、坑洞、杂质以及结构微缺陷等^[2,3]. 其中, 划痕是诱导激光破坏的主要因素^[4]. 划痕诱导损伤的主要原因包括其对光电场进行调制引起的场增强^[5]、划痕中残留微粒形成的热吸收中心以及表面断裂过程中产生的微裂结构导致材料机械强度弱化^[6]等, 且后表面划痕较前表面划痕损伤阈值更低^[3].

表面、亚表面缺陷的激光损伤是研究了三十多年的热点问题之一, 大多集中在理论方面. 美国劳伦斯·利弗莫尔国家实验室(LLNL)的Génin等^[4]和中国工程物理研究院的王毅等^[7]将划痕结构简化成规则的三角形或圆形, 数值模拟得出划痕的宽度、深度及倾角等参数和损伤阈值之间的对应关系; 实验方面, 美国 Salleo 等^[8]使用针尖在紫外石英窗口表面制造划痕, 进行损伤测试, 得出划痕的初始损伤阈值是划痕宽度的函数. 然而在实际应用中, 通常用 HF 酸刻蚀的方法去除划痕中的残留微

粒, 以提高其抗损伤性能^[9]. 经 HF 酸钝化后的划痕, 其内部结构不能用简单的三角形或圆形来描述, 而人为在熔石英表面制造的划痕与元件上的加工划痕在结构参数上存在较大差异, 由此得出的结论也必然与实际情况存在一定出入.

本文的目的是研究 HF 酸刻蚀后元件后表面划痕的初始损伤特性. 用光学显微镜和原子力显微镜记录 HF 酸刻蚀后熔石英元件后表面划痕的形貌结构, 根据形貌特征, 将刻蚀后划痕分为两大类, 用 $R:1$ 的方式对其进行损伤测试. 实验表明, 刻蚀后划痕的初始损伤阈值主要与其剖面结构的宽深比值决定, 与其他参数关系不大. 采用时域有限差分(FDTD)算法对余弦型划痕附近的光场分布进行理论模拟, 与实验结果符合得很好. 以上研究结果还未见相关报道.

2. 实验装置

首先采用光学显微镜和原子力显微镜对 HF 酸刻蚀后得到的不同结构、尺度的划痕进行形貌检测和尺度表征, 然后用 SAGA 激光器输出的波长为 355 nm、脉宽为 6.5 ns 的激光, 以 $R:1$ 的方式对它们进行损伤测试, 实验装置见图 1.

* 国家高技术研究发展计划(批准号:2008AA8040508)资助的课题.

[†] 通讯联系人. E-mail: jiangxdong@163.com

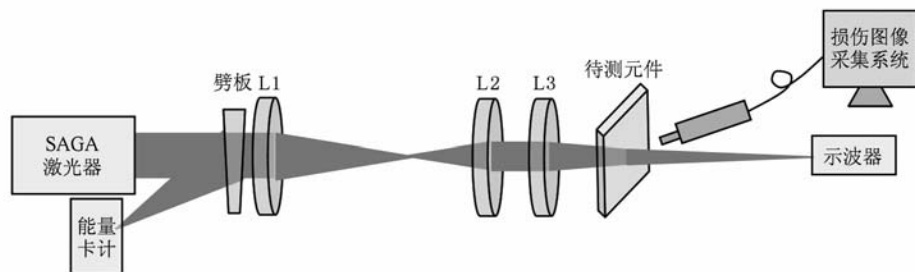


图 1 损伤测试光路

其中 L1 和 L2 为准直缩束透镜, L3 为焦距为 1 m 的会聚透镜, 待测元件距 L3 约 20 cm. 作用在其上的光斑为近高斯分布, $1/e^2$ 直径为 750 μm . 实验中用能量卡计和示波器对激光能量和输出波形进行监测, 损伤图像采集系统用于对激光作用点状态进行实时采集. 最后, 将划痕损伤数据与其原子力图像一一对照, 得出划痕损伤特性与形貌结构的关系.

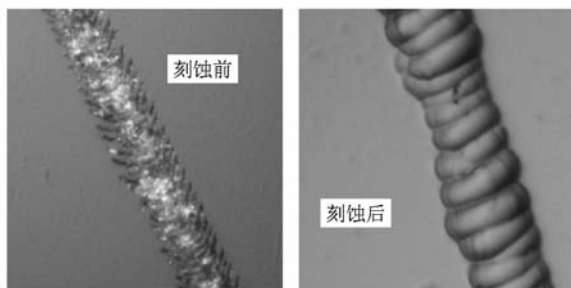


图 2 HF 酸刻蚀前后划痕形貌结构的变化

3. 实验结果及分析

3.1. HF 酸刻蚀去除划痕内残留微粒

熔石英亚表面划痕的产生主要来自于加工过程中的外加载荷, 大多呈间断分布, 其尺度、形态由载荷产生的应力场特点和所用研磨头的形状决定. 划痕间一般填充有大量抛光过程的残留微粒, 主要成分为玻璃碎屑和抛光过程引入的其他种类的杂质等. 由于杂质对光的热吸收是导致划痕损伤的重要因素, 通常利用 HF 酸对玻璃的侵蚀作用, 去除划痕内的残留微粒, 刻蚀前后划痕形貌变化如图 2 所示. 刻蚀前划痕由间断的微细结构组成, 并填充有大量残留物, 在 HF 酸作用下, 划痕内残留微粒被去除, 微细结构的宽度、深度增大, 彼此间距离缩小. 如果微细结构的初始距离不是很大, 在 HF 酸的作用下, 有可能连接在一起, 形成一整条内部较为光滑的划痕, 如图 3(a) 所示情况; 若刻蚀之前划痕的微细结构间距较大, 它们在 HF 的侵蚀作用下不会连接起来, 而是成为一个个独立的“坑”, 见图 3(b), 我们称之为“离散坑状划痕”.

因此, HF 酸刻蚀后熔石英元件表面划痕按形貌结构可分为两类, 我们称之为“连续型划痕”和“离散坑状划痕”, 这两类划痕的原子力扫描图像如图 3 所示. 实验获得两类划痕结构的尺度范围分别

为: 1) 连续型划痕: 宽度为 1750—5200 nm, 深度为 233—900 nm; 2) 离散坑状划痕: 宽度为 1840—4900 nm, 深度为 150—943.6 nm. 我们定义垂直于划痕的方向为“切向”, 沿划痕方向为“径向”. 图 3 中形貌图下方的两条曲线分别对应划痕的切向和径向剖面结构. 由图可知, 两类划痕的切向剖面结构很相近, 都呈余弦分布. 但径向结构差异较大, 连续型划痕径向起伏很小, 离散坑状划痕的径向起伏却非常大, 形成一个一个独立的“坑”, 但每个“坑”单元的径向结构也呈余弦状. 对大量离散坑状划痕的测量结果表明, 不同划痕“坑”单元之间的距离和深度不尽相同, 即便在同一条划痕内部, “坑”单元的距离和深度也不是常数.

3.2. 划痕损伤阈值测试

Ron1 损伤测试方法通常用来确定元件的激光损伤阈值. 实验中首先用 Ron1 方法对元件上无划痕区域进行损伤测试, 得到无划痕区域的初始损伤阈值约为 8.65 J/cm^2 . 然后对两类划痕进行定点损伤测试, 结果如图 4 所示. 图中横坐标为划痕被测点切向剖面的半峰全宽 (FWHM) 与深度的比值, 简称宽深比, 方块和三角形符号分别对应离散坑状划痕和连续型划痕的初始损伤阈值. 由图 4 中数据分布可知, 两类划痕的初始损伤阈值都与其切向宽深比

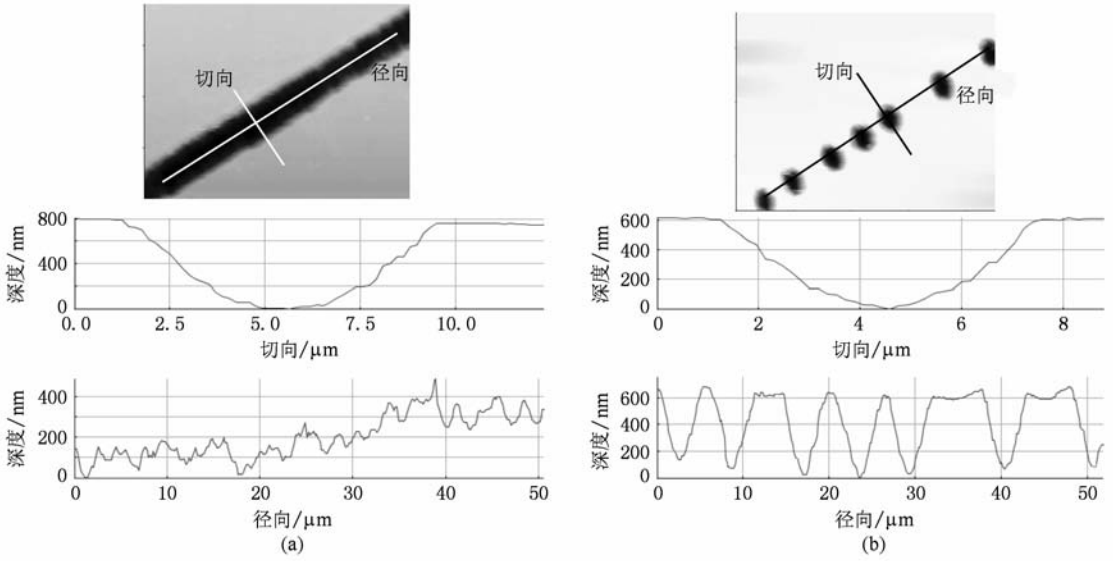


图3 两种典型划痕形貌以及与之对应的划痕切向、径向剖面结构曲线 (a)连续型划痕, (b)离散坑状划痕

紧密相关,切向宽深比值越大,划痕的初始损伤阈值越高.由实验结果还可以得出,离散坑状划痕初始损伤阈值略低于与其宽深比相近的连续型划痕.

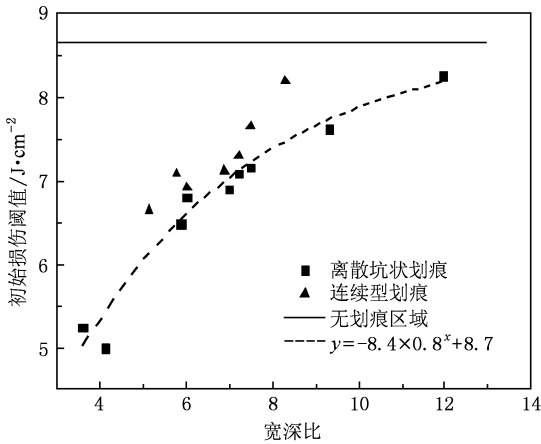


图4 后表面划痕初始损伤阈值随切向宽深比的变化

图4中虚线是对离散坑状划痕初始损伤阈值的拟合结果,实直线是元件上无划痕区域的初始损伤阈值.由虚线走势,可把直线作为拟合曲线的渐近线,这与通常认为的“本征损伤阈值是缺陷损伤阈值的上限”相一致^[10,11].

3.3. FDTD 算法模拟划痕附近光场分布

由前面实验结果可知,经 HF 酸刻蚀后,划痕中残留微粒被清除,划痕的抗损伤能力主要与划痕对入射光场进行调制引起的场增强大小有关.下面我

们用二维 FDTD 算法模拟划痕附近的光场分布,从理论上说明划痕结构参数与其抗损伤性能的关系.

FDTD 方法由微分形式的 Maxwell 旋度方程出发,按照 Yee 元胞对其进行差分离散后求解^[12].在直角坐标系中,对于二维问题,令所有物理量均与 z 坐标无关,即 $\partial/\partial z = 0$. 电磁场直角分量可分为两组, E_x, E_y 和 E_z 为一组,称为对于 e_z 的 TE 波; H_x, H_y 和 H_z 为一组,称为对于 e_z 的 TM 波.令 $f(x, y, t)$ 代表 \mathbf{E} 或 \mathbf{H} 的某一分量,在时间和空间域中的离散约定为以下符号:

$$f(x, y, t) = f(i\Delta x, j\Delta y, n\Delta t) = f^n(i, j). \quad (1)$$

离散 Maxwell 旋度方程并使用平均值近似可得到 TE 波和 TM 波的 FDTD 公式,对 TM 波, FDTD 公式为

$$H_x^{n+1/2}\left(i, j + \frac{1}{2}\right) = CP(m)H_x^{n-1/2}\left(i, j + \frac{1}{2}\right) - CQ(m) \frac{E_z^n(i, j + 1) - E_z^n(i, j)}{\Delta y}, \quad (2)$$

$$H_y^{n+1/2}\left(i + \frac{1}{2}, j\right) = CP(m)H_y^{n-1/2}\left(i + \frac{1}{2}, j\right) - CQ(m) \frac{E_z^n(i + 1, j) - E_z^n(i, j)}{\Delta x}, \quad (3)$$

$$E_z^{n+1}(i, j) = CA(m)E_z^n(i, j)$$

$$+ CB(m) \left[\frac{H_y^{n+1/2}(i+1/2, j) - H_y^{n+1/2}(i-1/2, j)}{\Delta x} - \frac{H_x^{n+1/2}(i, j+1/2) - H_x^{n+1/2}(i, j-1/2)}{\Delta y} \right], \quad (4)$$

(2)–(4) 式中 m 与坐标对应, 如 (2) 式中 $m = (i, j + \frac{1}{2})$; $CA(m), CB(m), CP(m), CQ(m)$ 定义如下:

$$\left. \begin{aligned} CA(m) &= \frac{\varepsilon(m)/\Delta t - \sigma(m)/2}{\varepsilon(m)/\Delta t + \sigma(m)/2} \\ CB(m) &= \frac{1}{\varepsilon(m)/\Delta t + \sigma(m)/2} \\ CP(m) &= \frac{\mu(m)/\Delta t - \sigma_m(m)/2}{\mu(m)/\Delta t + \sigma_m(m)/2} \\ CQ(m) &= \frac{1}{\mu(m)/\Delta t + \sigma_m(m)/2} \end{aligned} \right\}, \quad (5)$$

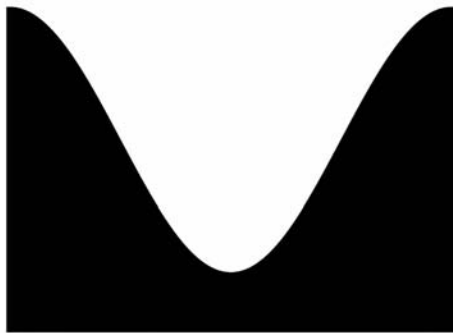
其中 ε 表示介电常数, μ 表示磁导率, σ 表示电导

率, $\sigma(m)$ 表示导磁率. 计算中空间离散间隔相等, 即

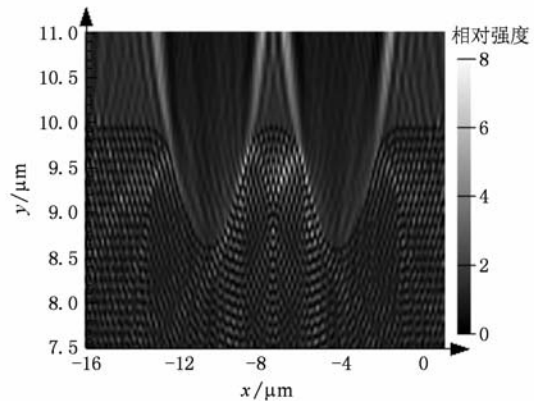
$$\Delta x = \Delta y = \delta. \quad (6)$$

为保证计算的稳定性, 空间和时间离散间隔应当满足 Courant 稳定性条件^[12]. 对散射问题, 在 FDTD 计算区域中引入总场边界, 把计算区域分为总场区和散射场区, 在总场边界处设置入射波. 对于二维半空间问题, 在两种介质的分界面会产生反射和透射, 可用三波法设置入射波, 即在上半空间引入入射波和反射波, 在下半空间引入透射波. 在截断边界处设置完全匹配层作为吸收边界.

计算针对的材料为均匀熔石英, 相对介电常数为 $\varepsilon_r = 2.25$, 入射激光波长为 $\lambda = 355 \text{ nm}$, 设入射波电场幅值为 1.0 V/m . 入射角 $\theta_i = 0$, 模式为 TM 波, 空间步长为 0.25 nm . 两类划痕的切向剖面结构及离散坑状划痕“坑”单元径向剖面结构均取为相同形状的余弦型, 见图 5(a).



(a)



(b)

图 5 划痕附近光场分布模拟 (a) 简化后的划痕结构, (b) 光场强度分布

图 5(b) 给出了两个邻近余弦结构附近光场分布的模拟结果, 图中右侧标尺表示经划痕调制后的光强与入射光强度的比值. 图中的两个余弦结构可视为离散坑状划痕相邻的两个“坑”单元, 则其间的光场分布即对应于离散坑状划痕两“坑”之间的场强分布, 而图中左右两侧的光场分布可视为连续型划痕对入射光调制的结果. 由图 5(b) 可知, 入射光在划痕附近发生了明显的干涉, 干涉最强区位于两“坑”之间, 左右两侧干涉强度较弱, 即连续型划痕引发的场干涉强度小于离散坑状划痕. 这是因为与连续型划痕相比, 离散坑状划痕除“坑”单元反射光与入射光的干涉外, 相邻“坑”单元反射光之间还存在干涉, 因此其抗损伤性能更差. 那么划痕结构的

宽深比与其对光场的调制能力之间存在什么关系呢? 下面用图 6 的模拟结果来说明这个问题.

图 6 是计算得到的两类划痕引发场增强因子随其宽深比的变化情况. 由于离散坑状划痕“坑”单元径向宽深比对其损伤阈值的影响更大, 因此这里取其径向宽深比进行计算. 在划痕宽深比值为 2.5—10 的变化范围内, 两类划痕场增强因子均随宽深比的增加而减小. 观察离散坑状划痕的计算结果, 宽深比由 4 增加到 12, 对应场增强因子下降了 1.77 倍, 与图 4 给出的实验结果 1.65 非常接近. 在宽深比较小时, 离散坑状划痕场增强因子曲线较陡, 远高于连续型划痕, 随着宽深比的增加趋势逐渐变缓, 向连续型划痕靠近. 产生这种现象的原因是: 划

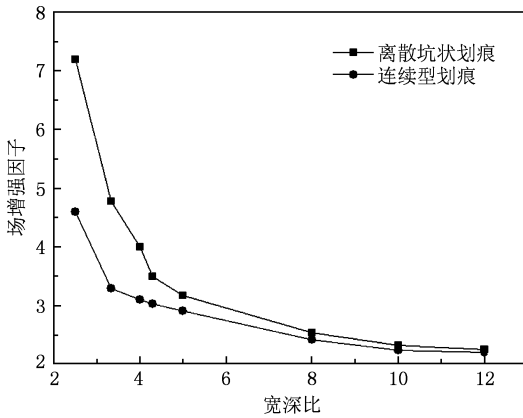


图6 划痕引发场增强因子与宽深比的关系

痕处反射光的强弱决定了划痕引发干涉场的强弱,而划痕对入射光的反射能力与其宽深比有关,宽深比越大,划痕对光的反射越弱,划痕引发的光场干涉强度也越弱,表现为划痕抗损伤能力的增强。

由于经余弦结构反射后,光是发散的,离“坑”越远,“坑”的反射光强度越弱,也就是说,两“坑”距离越远,两“坑”之间反射光的场干涉强度越弱。因此组成划痕的“坑”之间的距离也是影响离散坑状划痕场增强效应的重要参量。

综上,对于连续型划痕,切向剖面结构宽深比决定了其初始损伤阈值的大小;对于离散“坑”状划

痕来说,其抗损伤性能由“坑”单元切向、径向宽深比和“坑”距共同决定。由于离散坑状划痕抗损伤能力弱于宽深比相近的连续型划痕,在元件的加工过程中应尽量避免形成此类划痕。在元件上架前的检测中,应该重点关注元件表面划痕的类型及其结构参数,以便对该元件的激光损伤特性有所了解,使之工作在合适的通量下,或考虑对其进行相应的预处理^[13],提高抗损伤能力。这样可以有效规避元件的损伤风险,降低运行成本。

4. 结 论

研究了 HF 酸刻蚀后熔石英元件后表面划痕的激光损伤特性。用光学显微镜和原子力显微镜记录 HF 酸刻蚀后熔石英元件后表面划痕的形貌结构,发现经 HF 酸刻蚀后的熔石英表面,划痕形貌结构主要有两种,连续型和离散坑状划痕。用 Ron1 方式对两类划痕进行激光损伤测试,结果表明,划痕的初始损伤阈值并非由单独的宽度或深度参数决定,而是与其剖面结构的宽深比值密切相关。采用 FDTD 算法对余弦型划痕附近的光场分布进行理论模拟,与实验结果符合得很好。本文结果对降低大型激光装置元件损伤风险和运行成本等具有重要意义。

- [1] Chen X Q, Zu X T, Zheng W G, Jiang X D, Lü H B, Ren H, Zhang Y Z, Liu C M 2006 *Acta Phys. Sin.* **55** 1206 (in Chinese) [陈习权、祖小涛、郑万国、蒋晓东、吕海兵、任 寰、张艳珍、刘春明 2006 物理学报 **55** 1206]
- [2] Sun C W, Lu Q S, Fan Z X 2002 *Laser Irradiation Effect* (Beijing: National Defence Industry Press) 280—286 (in Chinese) [孙承伟、陆启生、范正修 2002 激光辐照效应 (北京: 国防工业出版社) 第 280—286 页]
- [3] Bloembergen N 1973 *Appl. Opt.* **12** 661
- [4] Génin F Y, Salleo A, Pistor T V 2001 *J. Opt. Soc. Am. A* **18** 2607
- [5] Yao X, Gao F H, Li J F, Zhang Y X, Wen S L, Guo Y K 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 4891 (in Chinese) [姚 欣、高福华、李剑峰、张怡霄、温圣林、郭永康 2008 物理学报 **57** 4891]
- [6] Stevens-Kalceff M A, Wong J 2005 *J. Appl. Phys.* **97** 113519
- [7] Wang Y, Xu Q, Chai L Q, Chen N, Zhu X Q 2005 *High Power*

Laser and Particle Beams **17** 67 (in Chinese) [王 毅、许 乔、柴立群、陈 宁、朱湘琴 2005 强激光与粒子束 **17** 67]

- [8] Salleo A, Génin F Y, Yoshiyama J, Stolz C J, Kozlowski M R 1998 *Proc. SPIE* **3244** 341
- [9] Neauport J, Lamaignere L, Bercegol H, Pilon F, Birolleau J C 2005 *Opt. Express* **13** 10163
- [10] Génin F Y, Kozloski M R, Feit M D 1998 *LLNL Report UCRL-ID-0130003* 1
- [11] Feit M D, Rubenchik A M 2002 *Proc. SPIE* **4679** 321
- [12] Ge D B, Yan Y B 2002 *Electromagnetic Wave and FDTD* (Xi'an: Xidian University Press) (in Chinese) [葛德彪、闫玉波 2002 电磁波时域有限差分方法 (西安: 西安电子科技大学出版社)]
- [13] Prasad R R, Bruere J R, Peterson J E, Halpin J M, Borden M R, Hackel R P 2004 *Proc. SPIE* **5273** 288

Laser induced rear-surface-crack damage properties of fused silica etched with HF solution *

Wang Feng-Rui Huang Jin Liu Hong-Jie Zhou Xin-Da Jiang Xiao-Dong[†] Wu Wei-Dong Zheng Wan-Guo

(*Research Center of Laser Fusion, China Academy of Engineering Physics, Mianyang 621900, China*)

(Received 27 April 2009; revised manuscript received 3 November 2009)

Abstract

The micro subsurface cracks of fused silica etched with HF solution were recorded using atomic force microscope (AFM) and optical microscope. The damage characteristics of cracks with different structures were studied. Experimental results show that after HF etching, the crack's cross section turns into cosine pattern, and its laser induced damage threshold (LIDT) is not determined by the individual breadth or depth parameters, but by the breadth depth ratio of the crack cross section. The curve of LIDT versus the crack's breadth depth ratio was experimentally obtained. Finite difference time domain algorithm was used to calculate the electric field intensity distribution in the vicinity of a crack with cosine cross section, and the theoretical results agree well with the experimental ones.

Keywords: fused silica, rear-surface crack, breadth depth ratio, damage property

PACC: 8140T, 4270E, 4260H

* Project supported by the High-Technology Research and Development Program of China (Grant No. 2008AA8040508).

[†] Corresponding author. E-mail: jiangxdong@163.com