高重复频率 DPL 激光对光学薄膜元件损伤实验研究

代 福[1,2],熊胜明[2]

(1. 五邑大学 应用物理与材料学院,广东 江门 529020;
2. 中国科学院光电技术研究所,四川 成都 610209)

摘 要:光学薄膜的高重频激光损伤特性一直是激光薄膜研究者的重点。为了分析光学薄膜在高重频激光辐照下的损伤特性,探究其损伤机理,文中从实验出发,研究了重复频率 10 kHz DPL 激光对光学薄膜元件的损伤特性。结果表明,修正膜层内的驻波场分布,降低膜层内高折射材料中的驻波场峰值可以提高高重频激光损伤阈值;从激光损伤形貌与辐照激光功率的关系上看,在高重频激光辐照下光学薄膜元件的损伤实质上是热效应和场效应共同作用下产生的“微损伤”累积放大所造成的。当薄膜吸收率较小时,损伤主要表现为场效应所致的“微损伤”累积放大,当薄膜吸收率较大时,损伤主要表现为热效应所致的“微损伤”累积放大。

关键词:光学薄膜; 重频 DPL 激光; 驻波场修正; 损伤机理

中图分类号:O484.4 **文献标志码**:A **文章编号**:1007-2276(2014)07-2074-07

Experimental study on damage of optical coating irradiated by high repetition rate DPL laser

Dai Fu[1,2], Xiong Shengming[2]

(1. School of Applied Physics and Materials, Wuyi University, Jiangmen 529020, China;
2. Institute of Optics and Electronics, Chinese Academy of Sciences, Chengdu 610209, China)

Abstract: High repetition rate laser damage properties of optical coating have been the focus of the laser film researchers. In order to study the damage characteristics of optical coatings at high repetition rate laser irradiation, and explore the damage mechanism, in this paper, experimental study on the damage of optical thin film components at 10 kHz repetition rate DPL laser irradiation was made. The results show that modification of electric field distribution in the coatings, and reduce the peak value of electric field intensity of high refractive index material in the coatings can improve the laser damage threshold of coatings at high repetition rate laser irradiation. The damage mechanism of optical thin film components irradiated by repetition frequency laser was discussed. High repetition rate laser irradiation damage in substance is the "micro-damage" accumulation of amplification which caused by the combination effect of thermal effect and field effect. When the absorption rate of coatings is small, the damage is mainly

收稿日期:2013-11-04; **修订日期**:2013-12-03

基金项目:国家高技术激光技术项目

作者简介:代福(1977-),男,博士,主要从事光学薄膜激光损伤、激光预处理技术及机理方面的研究。Email:ioe_daif@126.com

caused by the "micro-damage" of filed effect cumulative amplification. When the absorption rate of coatings is high, that is mainly caused by the "micro-damage" of thermal effect cumulative amplification.

Key words: optical thin film; repetition rate DPL laser; modification of electric field distribution; damage mechanism

0 引　言

高重复频率激光辐照下光学薄膜的抗激光损伤性能一直是限制高重频激光器输出功率的瓶颈。在高重频激光辐照下光学薄膜的损伤阈值比单脉冲激光辐照下下降很多，对高重频激光辐照下光学薄膜元件的损伤行为及损伤机理研究一直是激光薄膜研究者的重点。激光辐照下光学薄膜元件的损伤机制可分为热效应和场效应，热效应主要指薄膜材料通过杂质吸收、多光子吸收或电子吸收使薄膜迅速被加热至某个临界温度，如熔点、沸点等而产生破坏[1]。这种破坏总是从薄膜的前表面开始的。而场效应则是指激光入射到薄膜材料上时，由于材料的前后表面的反射光与入射光之间的干涉重叠而形成驻波，在驻波波腹处的光强最大，因而对薄膜的破坏也最强[2]。驻波场分布要根据膜层和基底的折射率及膜层厚度来判断，有时从薄膜前表面开始损伤，有时则从膜层与膜层之间或膜层与基底的交界面处开始损伤。热效应与场效应共同存在，在纳秒级脉宽的单脉冲激光辐照下，光学薄膜的损伤主要是薄膜缺陷处局域电场吸收导致的，不管是划痕、凹坑还是节瘤缺陷，其上的局域场强往往比本征薄膜场强大好几倍[3-5]，因此，也是最先产生损伤的地方。高重复频率激光辐照下，光学薄膜元件的损伤机理与单脉冲激光辐照下光学薄膜损伤机理类似，只是在高重复频率激光辐照下光学薄膜的损伤多了一个累积效应。这种累积损伤一般有两种说法：其一是在高重频激光辐照下，由于薄膜的热扩散率小于热沉积速率，因此，产生热累积导致温度升高，最终达到临界值(比如熔点)使薄膜产生破坏[6-8]。另一种说法是，由于电场作用，在薄膜内部产生了微损伤，在重频激光辐照下，由于微损伤的累积，进而使薄膜产生破坏[9-12]。究竟重复频率激光辐照下光学薄膜的损伤机理如何？是场效应还是热效应，或者是二者共同作用，仍有待进一步研究。

文中针对重复频率激光辐照下光学薄膜元件的损伤特点，实验研究了重复频率 10 Hz 的 DPL 激光辐照下 Ta_2O_5/SiO_2 高反射薄膜的损伤特性，采用红外热像仪方法实时测量了高重频激光辐照下光学薄膜表面的温度变化，进而探讨了高重频激光辐照下光学薄膜的损伤机理。

1 实　验

实验样品为采用离子束溅射方法制备的 Ta_2O_5/SiO_2 四分之一膜堆，膜系为 $G/(HL)^{11}H/A$，基板为石英玻璃(JGS1)。制膜样品的真空度为 4.16×10^{-4} Pa，SiO_2 沉积速率为 0.336 nm/s，Ta_2O_5 沉积速率为 0.558 nm/s。

辐照激光为重复频率 10 kHz，波长 1 064 nm，脉宽 50 ns 的 DPL 激光。该激光输出平均功率在 100 W 以上比较稳定，激光器的最大输出功率为 296 W，出射激光的光腰直径为 1 mm，激光光束发散角约5 mrad，采用焦距为 50 mm 的透镜对光束聚焦，作用在样品上的聚焦光斑直径约 0.2 mm，实验装置如图 1 所示。图中 He-Ne 激光用作激光准直，采用德国 Testo876 型红外热像仪实时测量样品表面的温度变化，当监测的样品表面温度出现直线式急剧上升时，薄膜出现不可逆损伤，此时的激光辐照功率密度即为光学薄膜在该点处的激光损伤阈值。

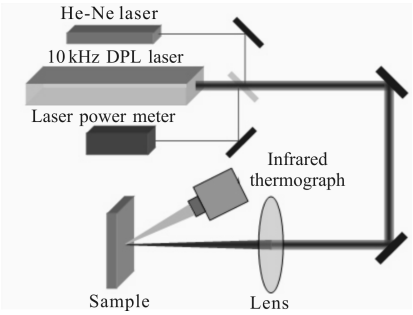

图 1 实验装置示意图

Fig.1 Schematic layout of facility

1.1 样品吸收率及表面粗糙度测试

为了研究膜系的驻波场分布对高重频激光损伤

阈值的影响，实验采用离子束溅射法制备了膜系为 G/(HL)^{10}H1.5269L0.5959H/A 的 Ta_2O_5/SiO_2 高反射薄膜，镀膜参数与前面膜系 G/(HL)^{11}H/A 的镀膜参数一样。采用激光量热计测量了样品在 1 064 nm 波长处的吸收率，采用 NEW VIEW 200 表面粗糙度仪测量了样品镀膜前后表面的均方根粗糙度，如表 1 所示。从表中可以看出，三种膜系的样品镀膜后薄膜的均方根粗糙度较镀膜前有所改善，均匀性较好，激光辐照在薄膜上的表面散射小。

表 1 样品性能参数

Tab.1 Sample performance parameters

Coatings	Absorption rate	RMS before coating/nm	RMS after coating/nm
G/(HL)^{11}H/A	17.15×10^{-6}	0.87	0.81
G/(HL)^{10} H1.5269L0.5959H/A	30.21×10^{-6}	0.74	0.71

1.2 样品元素化合态测试

对制备的薄膜样品进行 X 光电子能谱 (xps)和 phlips X′ Pert proMPD X 射线衍射 XRD(Cuka,40 kV/40 mA)测试，确定所制备的薄膜样品中化学计量比是否失调。各单质元素及化合态中各元素的结合能值如表2 所示。

表 2 元素在化合态中的结合能值

Tab.2 Bound energy value of elements in compound

Elements	O(SiO_2)	Si(SiO_2)	Uncombined Si	O(Ta_2O_5)	Ta (Ta_2O_5)	Uncombined Ta
Bound energy /eV	532.65	103.7	99.7	530.4	26.7	21.64

实验测得制备的薄膜样品中 Ta_2O_5 中的 Ta^{5+}的结合能值为 26.7 eV，O^{2-}的结合能值为 530.4 eV，没有观察到单质 Ta 及其他价位的 Ta、O 结合能峰值。同样，SiO_2 薄膜样品中 Si^{4+}结合能值为 103.7 eV，O^{2-}的结合能值为 532.65 eV，也没有观察到单质 Si 及其他价位的 Si、O 结合能峰值，如图 2 所示。说明制备的薄膜样品氧化充分，氧以负二价，钽以正五价，硅以正四价的形式出现在化合物中，无单质 Ta、Si 出现。所镀制的高反射薄膜不存在化学计量比失调的现象。

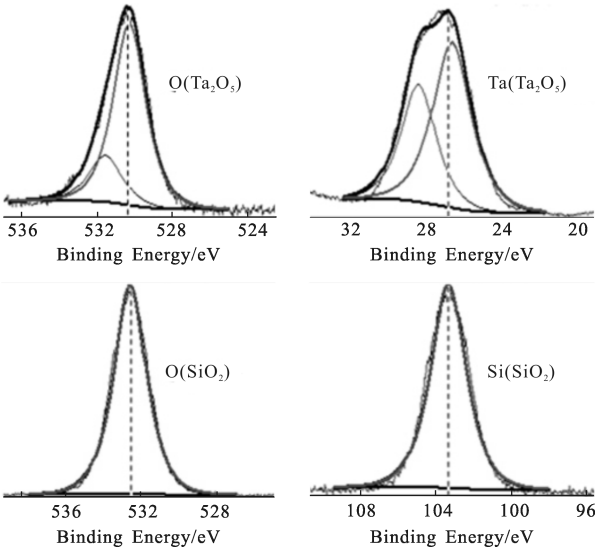

图 2 O 和 Si 的结合能

Fig.2 Bound energy value of O and Si

2 实验结果分析

2.1 高重复频率激光辐照下膜内驻波场分布对损伤阈值的影响

激光辐照下对薄膜引起的温度变化或造成的损伤与沉积在薄膜中的激光能量大小密切相关，沉积在薄膜中的激光能量与激光强度和薄膜内产生的驻波场关系为 $g_i=KI_0\alpha_i n_i|E|^2$[13]，式中，$I_0$ 为激光强度，n_i 为材料折射率，α_i 为材料吸收系数，E 为薄膜内的电场强度。由此可以看出沉积在薄膜内的激光能量与驻波场峰值的二次方成正比。驻波场对能量沉积所起的作用比其他因素更大。但对膜系中的高低折射率材料而言，高折射率材料的热导率及热扩散率比低折射率材料的低很多。比如，Ta_2O_5 的热导率为 2.6×10^{-4} W/cm·K，HfO_2 的热导率为 7.7×10^{-6} W/cm·K，SiO_2 的热导率为 2.8×10^{-3} W/cm·K。由此可知，薄膜中的高折射率材料是激光能量沉积最多的地方，也是薄膜最易损伤的地方。因此，修正膜层中电场强度分布，减小高折射率材料膜层内电场强度的同时，适当增加低折射率材料膜层的电场强度而又不致引起损伤，则可以提高高反射薄膜的激光损伤阈值[14]。

设计这样的膜层需要满足两个条件：(1) 反射率为最大，或者说振幅反射系数为负数而虚部等于零；(2) 两种材料的第一个分界面上的电场强度等于下一个相似界面上的电场强度，以便较均匀地分配场强[15]。

利用这种方法计算了在 G/(HL)^{10}H/A(H：Ta_2O_5，L：SiO_2) 膜堆上附加膜堆的结果为 G/(HL)^{10}H1.5269L 0.5959H/A ，图 3 给出了 G/(HL)^{10}H/A 膜系及修正后膜系 G/(HL)^{10}H1.5269L0.5959H/A 的驻波场分布，图 4 给出了相应的反射率曲线。

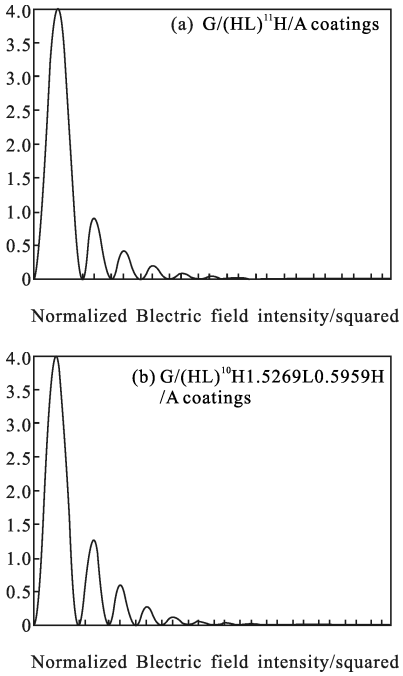

图 3 膜层内驻波场分布

Fig.3 Electric field distribution inside the coatings

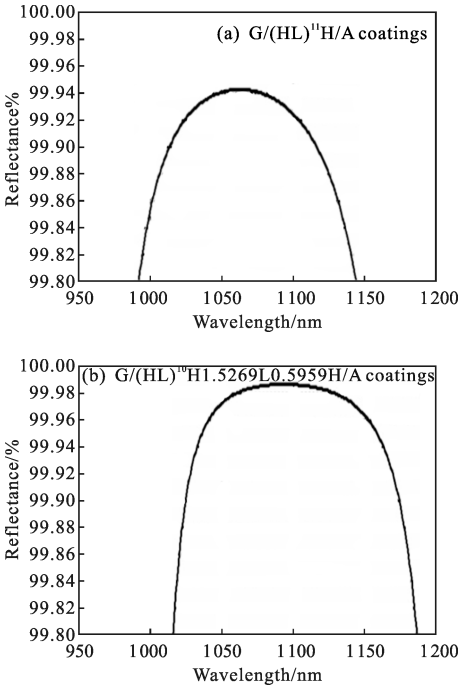

图 4 样品反射率曲线

Fig.4 Reflectance curve of sample

设计结果可见薄膜在 1 064 nm 波长的反射率并没有下降，反而还有所上升。而最外层 Ta_2O_5 膜层的驻波场峰值从修正前的 0.8 降为 0.5，次外层 SiO_2 层的驻波场峰值从修正前的 0.8 上升为 1.3。

对驻波场修正前后的薄膜进行重复频率 10 kHz 的激光损伤测试发现，驻波场修正前膜系 G/(HL)^{11}H/A 的损伤阈值低于 763.9 kW/cm^2，而驻波场修正后的膜系 G/(HL)^{10}H1.5269L0.5959H/A 的损伤阈值高于 942.2kW/cm^2，修正后的样品损伤阈值较修正前提高幅度大于 23.3%，如图 5 所示。图中 S1 为膜系G/(HL)^{11}H/A 的样品，S2 代表膜系 G/(HL)^{10}H1.5269L0.5959H/A 的样品。由图可知，修正最外层高折射率膜层的驻波场峰值后，虽然样品总吸收率有所增加，但由于减小了最外层 Ta_2O_5 膜层中的能量沉积，使膜层的温升降低，出现微损伤所需的激光功率越高，相应地，高重频 DPL 激光辐照下薄膜的损伤阈值也就得到了提高。次外层 SiO_2 层的驻波场峰值虽有增加，导致沉积在该层的激光能量也相对有所增加，但因为 SiO_2 层的热导率及热扩散率相对较大，单层 SiO_2 层的损伤阈值比单层 Ta_2O_5 层高很多，因此，对薄膜总的损伤阈值几乎没有影响。

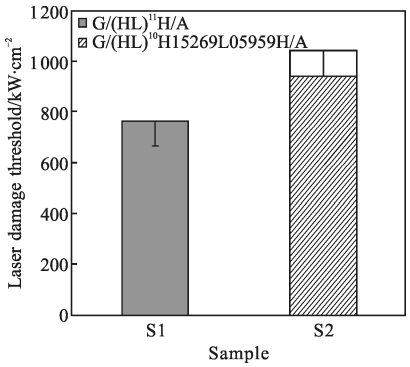

图 5 膜内驻波场修正前后样品激光损伤阈值

Fig.5 Laser damage threshold of sample before and after electric field revising inside coatings

2.2 高重复频率激光对光学薄膜的损伤机理分析

采用红外热像仪可以比较清楚地记录激光辐照下样品表面的温度变化。也可以比较明显的判断损伤的出现，确定薄膜的损伤阈值。因为薄膜一旦出现损伤，由于损伤部位的高吸收特性使得该处的激光能量沉积急剧增大，表现出来的则是该处的温度急剧上升。

实验发现，个别样品在平均功率 100 W 的激光辐照下马上出现损伤。如图 6 所示，从图中可以看出，薄膜表面根本没有温度累积，说明薄膜中可能存在吸收较大的缺陷，且缺陷处的电场强度较大，在第一个脉冲的作用下，缺陷处就产生了较大程度的微损伤或直接损伤。即使是微损伤，在后续几个或几十个脉冲内的微损伤累积就可以使薄膜出现宏观上的灾难性损伤，这种损伤出现时的温度并不高，所以从损伤形貌上看，损伤斑轮廓比较齐整，损伤斑周围有些裂纹，如图 7 所示。施正荣等[16]利用重复频率 2 Hz 的激光研究了薄膜的损伤，有些区域，在几个脉冲的作用下就产生了损伤，而另一些区域，即使连续上千个脉冲也不发生破坏。可见这类重频激光辐照下光学薄膜的损伤主要是由吸收较大的缺陷导致的，这种缺陷包括节瘤、凹坑、划痕等。

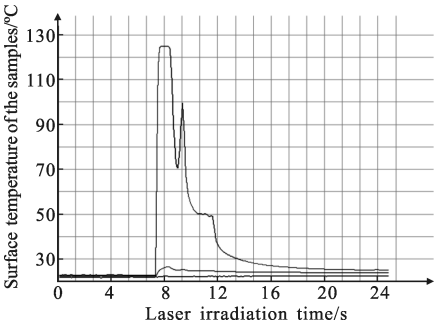

图 6 激光功率 100 W 时损坏，膜系为 G/(HL)^{11}H/A

Fig.6 Sample with film system G/(HL)^{11}H/A damage at laser power of 100 W

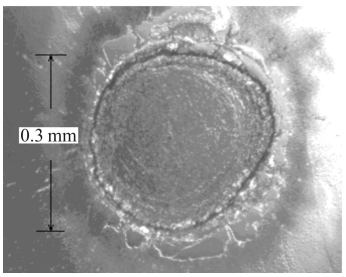

图 7 激光辐照下薄膜表面的损伤形貌，膜系为 G/(HL)^{11}H/A

Fig.7 Damage morphology of the film surface with film system G/(HL)^{11}H/A

对高反射薄膜的大部分区域，辐照激光功率采用台阶式上升的方式，功率每上一个台阶，红外热像仪记录的样品表面激光辐照中心点的温度也上一个台阶，然后在相同功率脉冲的连续作用下，由于激光能量沉积与薄膜及基板的热传导热扩散之间的非平衡关系，使薄膜表面存在热量累积，温度缓慢上升。在功率台阶为 100 W、150 W、185 W、215 W 的激光辐照下，薄膜表面的温度变化过程如图 8 所示，从图中可以看出，在平均功率 215 W 以下的激光辐照下，薄膜表面的温度累积速率略大于热扩散速率，薄膜表面有温度累积，但幅度很小，薄膜表面的温升主要来自于激光辐照能量。由 10 kHz 重复频率引起的温度累积变化相比激光能量引起的温度变化很小。当激光功率上升到 240 W 时，薄膜表面的温度急剧变化，如图 9 所示，此时薄膜已经损伤，说明辐照激光功率在 240 W 以下，无论是单个脉冲的场效应还是重频脉冲的温度累积效应均不能使薄膜出现微损伤，而辐照激光功率在 240 W 时，单个脉冲的场效应已经使薄膜出现了微损伤，所以，由于微损伤的累积使薄膜在很短的时间内从未损伤变为宏观上的灾难性损伤。这说明，对于吸收率较小的薄膜，重频激光辐照下，薄膜表面的温度升高幅度不大，引起薄膜中产生微损伤的主要原因为薄膜中的驻波场效应。所以修正薄膜的驻波长分布后，薄膜的损伤阈值得到了较大的提高。

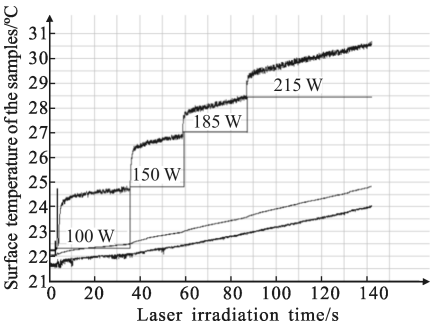

图 8 激光辐照下膜系 G/(HL)^{11}H/A 的样品表面温度变化

Fig.8 Temperature varieties on the sample surface with film system G/(HL)^{11}H/A at laser irradiation

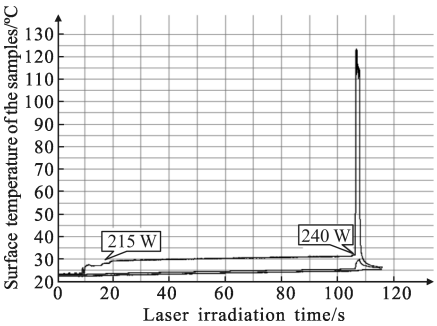

图 9 激光辐照下膜系 G/(HL)^{11}H/A 的样品表面温度变化

Fig.9 Temperature varieties on the sample surface with film system G/(HL)^{11}H/A at laser irradiation

对吸收率较大的样品，比如膜系为 G/(H2L)^{15}HL/A(H:HfO_2,L:SiO_2,G:K9)的高反射薄膜，样品的吸收率为 218 ppm，样品在平均功率为215 W、240 W、265 W 的激光辐照下样品均未产生损伤，在脉冲持续时间 30~40 s 的时间内也未出现微损伤，当激光功率上升到 296 W 时薄膜在保持温度 146 ℃左右约 6 s 的时间内出现损伤，如图 10 所示。从图中可以看出，激光功率上升到 296 W 时，薄膜表面激光辐照中心点的温度迅速上升，在经历约 2 s 的时间内，薄膜表面激光辐照中心点温度升到最高约 148 ℃，而后温度有所降低，约经历 6 s 的时间薄膜出现损伤。说明造成薄膜出现微损伤的原因并非 296 W 激光辐照下薄膜中的驻波场效应，而是当薄膜处于最高温度 148 ℃时，薄膜中出现了结构或应力或其他细微的变化，使薄膜的热导率及热扩散率有所增加，因此，激光辐照中心点的温度有所下降，但出现了结构或应力或其他细微的变化后的薄膜在后续脉冲的作用下使得这种不可逆变化出现累积放大，所以在经历约 6 s 的时间后这种微损伤累积达到一定量值，吸收急剧增大，薄膜表面激光辐照中心点温度急剧上升，薄膜最终损坏。从薄膜表面的损伤形貌上看，有比较明显的熔融痕迹，如图 11 所示，说明薄膜的损伤经历了温度上升直至出现熔融损伤。

因此，高重复频率脉冲激光辐照下，光学薄膜的缺陷造成的激光损伤可能主要是由场效应引起，而本征损伤则可能主要是由于薄膜表面激光辐照中心点的温度升高达到一定量值使薄膜出现结构或应力或其他微小的不可逆变化引起，这种微小变化即为“微损伤”，在后续脉冲的作用下，由于微损伤的累积放大，最后薄膜出现宏观上的灾难性损伤。

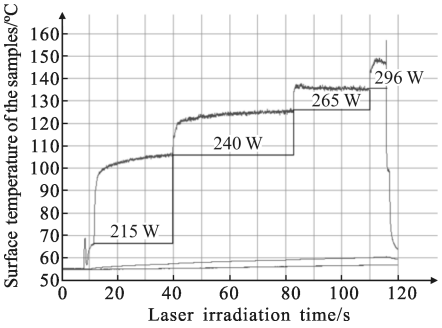

图 10 激光辐照下膜系 G/(H2L)^{15}HL/A 的样品表面温度变化

Fig.10 Temperature varieties on the sample surface with film system G/(H2L)^{15}HL/A at laser irradiation

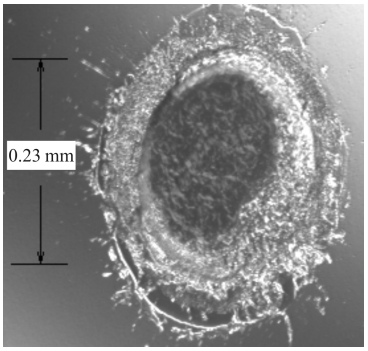

图 11 激光辐照下薄膜表面的损伤形貌，膜系为 G/(H2L)^{15}HL/A

Fig.11 Damage morphology of the film surface with film system G/(H2L)^{15}HL/A

3 结　论

高重复频率脉冲激光辐照下光学薄膜元件的损伤阈值比单脉冲激光辐照下薄膜损伤阈值下降很多。研究高重复频率脉冲激光辐照下光学薄膜的损伤机理有助于提升光学薄膜元件在高重频脉冲激光辐照下的损伤阈值。实验发现，修正薄膜内的驻波场分布，在减小最外层高折射率膜层的驻波场峰值的同时，适当增加次外层低折射率膜层的驻波场峰值，可以显著提高薄膜中出现微损伤所需的辐照激光功率，从而提高薄膜抗高重频激光辐照的损伤阈值。通过红外热像仪记录薄膜表面激光辐照中心点的温度变化规律发现，高重频激光辐照下光学薄膜的激光损伤机理为薄膜中的微损伤累积效应。产生这种微损伤需要一定的激光能量使薄膜达到一定的临界温度，若激光能量不够高或者说未达到产生微损伤所需的临界温度，则再多的激光脉冲辐照都不能使其损伤，若刚好达到临界温度，则薄膜中出现不可逆微损伤，在连续脉冲的作用下，这种微损伤累积放大，最后薄膜出现宏观的灾难性损伤。若辐照激光脉冲能量较大，在薄膜表面产生的单脉冲温升远大于临界温度，则薄膜会在几个或几十个脉冲的辐照时间内很快损坏。

参考文献：

[1] Bloembergen N. Laser induced electric breakdown in solid [J]. ***IEEE J Quantum Electron***, 1974, 10: 375-386.

[2] Ni Xiaowu, Lu Jian, He Anzhi, et al. The interaction mechanism of laser field and multilayer high-reflecting

coatings[J]. ***Journal of East China Institute of Technology***, 1992, 64: 7-10. (in Chinese)
倪晓武, 陆建, 贺安之, 等. 激光场与多层高反膜系相互作用机理[J]. 华东工学院学报,1992, 64: 7-10.

[3] Ge′nin F Y, Pistor T V, Chase L L. Role of light intensification by cracks in optical breakdown on surfaces [J]. ***J Opt Soc Am A***, 2001, 18(10): 2607-2616.

[4] Bloembergen N. Role of cracks, pores, and absorbing inclusions on laser induced damage threshold at surfaces of transparent dielectrics [J]. ***Applied Optics***, 1973, 12(4): 546-552.

[5] Zhu Zhiwu, Zhang Zhen, Cheng Xiang′ai, et al. Damage phenomenon and probability of CCD detectors under single-laser-pulse irradiation [J]. ***Infrared and Laser Engineering***, 2013, 42(1): 113-118. (in Chinese)
朱志武, 张震, 程湘爱, 等. 单脉冲激光对 CCD 探测器的硬损伤及损伤概率 [J]. 红外与激光工程, 2013, 42(1): 113-118.

[6] Lange M R, Mclver J K, Guenther A H. The inclusion model for repetitively pulsed laser damage [C]//Damage in Laser Materials, 1984, 727: 382-393.

[7] Apollonov V V, Chyotki S A, Khomich V Yu, et al. Thermo-elastic action of the powerful high repetition rate laser radiations on the solid state surface [C]//Damage in Laser Materials, 1981, 638: 313-327.

[8] Vaidya Nathan. Repetitively pulsed laser damage in optical thin-films[C]//SPIE, 1992, 1848: 583-593.

[9] Fan Zhengxiu, Wu Zhouling, Tang Xuefei. Repeat-rate laser induced damage in optical coatings [J]. ***Chinese Journal of Laser***, 1994, 21(9): 734-737. (in Chinese)
范正修, 吴周令, 汤学飞. 重复率激光对光学薄膜的破坏[J]. 中国激光, 1994, 21(9): 734-737.

[10] Xia Jinjun, Cheng Lei, Gong Hui. Accumulation and laser damage in optical glasses [J]. ***Acta Optica Sinica***, 1997, 17(2): 231-236. (in Chinese)
夏晋军, 程雷, 龚辉. 光学材料的多脉冲激光损伤研究[J]. 光学学报, 1997, 17(2): 231-236.

[11] Manenkov A A. Fundamental mechanism of laser-induced damage in transparent solids[C]//NIST, 1988, 775: 486-501.

[12] Wang Xi, Bian Jintian, Li Hua, et al. Experiment on damage in K9 glass due to repetition rate pulsed CO_2 laser radiation [J]. ***Infrared and Laser Engineering***, 2013, 42(5): 1204-1207. (in Chinese)
王玺, 卞进田, 李华, 等. 重频脉冲 CO_2 激光损伤 K9 玻璃的实验[J]. 红外与激光工程, 2013, 42(5): 1204-1207.

[13] Zhou Weijun, Yuan Yonghua, Gui Yuanzhen, et al. Thermal effect of TiO_2/SiO_2/K9 film by 1.06 μm CW laser [J]. ***High Power Laser and Particle Beams***, 2005, 17(9): 1307-1311. (in Chinese)
周维军, 袁永华, 桂元珍, 等. 1.06 μm 连续激光辐照 TiO_2/SiO_2/K9 薄膜元件温升规律研究 [J]. 强激光与粒子束, 2005, 17 (9): 1307-1311.

[14] Kong Mingdong. A new design method for reduce electric field intensity in optical multilayer film [J]. ***Opto-Electronic Engineering***, 1999, 26(1): 55-59. (in Chinese)
孔明东. 光学多层膜减小电场强度的一种新设计方法[J]. 光电工程, 1999, 26(1): 55-59.

[15] Apfel J H. Optical coating design with reduced electric field intensity [J]. ***Appl Opt***, 1977, 16(7): 1880-1885.

[16] Shi Zhengrong, Fan Zhengxiu, Deng He. Damage and its accumulation of optical coatings [J]. ***Chinese Journal of Laser***, 1988, 15(1): 22-26. (in Chinese)