

BaF₂ 晶体的激光损伤研究

李仲伢 程 雷 李成富

(中国科学院上海光机所 上海 201800)

提要 对 BaF₂ 晶体在短脉冲、长脉冲和连续激光实验条件下进行了激光损伤和抗激光加固的研究,报道了不同实验条件下的激光损伤阈值、损伤形貌和加固效果,并对加固机制和激光损伤机理进行了分析。

关键词 激光损伤, 抗激光加固, 损伤机理

1 引 言

BaF₂ 晶体具有很好的光学性能,是优良的红外窗口材料,在 0.18~11 μm 波长范围内透光性很好。在碱土金属氟化物中它的红外光吸收系数最小,并且其折射率温度系数为负值,而且最小^[1]。因此 BaF₂ 晶体的热膨胀效应和折射率随温度变化的影响几乎可以相互抵消。对 10 cm 口径的 BaF₂ 窗口允许的温度梯度可以达到 50 K,而其他的大部分红外材料只允许 1 K 之差。BaF₂ 晶体还具有较高的激光破坏强度,这些优良性能预示着它有更广泛的应用前景。

本文主要研究了 BaF₂ 晶体在 YAG 短脉冲激光(脉宽 10 ns)、钕玻璃长脉冲激光(脉宽 250 μs)和 CO₂ 连续激光条件下的损伤阈值、损伤形貌和损伤机理。对激光预辐照和酸处理加固进行了研究。实验结果表明,这两种方法对提高 BaF₂ 晶体的激光损伤阈值均是有效的。激光预辐照可使 BaF₂ 晶体的损伤阈值提高 20%~70%,其中 XeCl 准分子激光的预辐照效果较好。酸侵蚀的加固效果更好,使 BaF₂ 晶体 1.06 μm 的激光损伤阈值提高 5 倍,抗 10.6 μm CO₂ 连续激光能量损伤强度提高 10 倍以上,并对加固机制和损伤机理进行了分析。

2 实验条件

2.1 样品加固处理

实验样品的尺寸为 15 mm×15 mm×15 mm。在未进行损伤实验前将其中的部分样品先进行加固处理,本实验采用两种加固措施:(1) 选用三种不同波长的激光对样品进行预辐照,它们是 XeCl 准分子脉冲激光,Cu 蒸气准连续激光和 CO₂ 连续激光。XeCl 准分子激光波长 308 nm,单次输出能量 200 mJ,脉宽 35 ns,重复频率 1 Hz。Cu 蒸气激光波长 510 nm,输出功率 4 W,脉宽 20 ns,重复率 6 kHz。CO₂ 激光波长 10.6 μm,输出功率 100~1000 W 连续可调。(2) 用 5% 质量分数的 HCl 盐酸对样品进行不同时间的酸侵蚀。激光预辐照和酸处理的实验

条件见表 1 和表 3。

2.2 损伤实验

样品在三种不同激光装置上进行损伤实验: 1) 单模短脉冲实验, 用 $1.06 \mu\text{m}$ 波长的 YAG 激光器, 输出 TEM₀₀ 模, 脉宽(FWHM) 10 ns。用焦距 $f_1 = 60 \text{ mm}$ 和 $f_2 = 180 \text{ mm}$ 的透镜进行大、小光斑的损伤实验, 其焦斑直径分别为 $d_1(1/e^2) = 36 \mu\text{m}$, $d_2(1/e^2) = 90 \mu\text{m}$ 。2) 长脉冲激光损伤实验, 用 $1.054 \mu\text{m}$ 波长的掺钕磷酸盐玻璃激光器, 输出多模, 脉宽(FWHM) 250 μs , 焦斑面积 $2 \times 10^{-3} \text{ cm}^2$ 。3) 连续激光损伤, 用 $10.6 \mu\text{m}$ 波长的 CO₂ 激光器, 输出功率 100~ 1000 W 连续可调, 输出多模, 焦斑面积 0.54 cm^2 。

3 实验结果和分析

3.1 短脉冲激光损伤

3.1.1 激光预辐照

XeCl 准分子激光, Cu 蒸气激光和 CO₂ 激光的辐照条件, 损伤实验的结果如表 1 所示, 样品 1 为对照样品, 可以看出经过激光预辐照后的 BaF₂ 晶体的损伤阈值取得了不同程度的提高, 提高幅度约在 20%~ 70% 的范围, 其中 XeCl 准分子激光辐照的效果较好。表 1 的结果说明用激光预辐照的方法来提提高 BaF₂ 晶体的激光破坏强度是可行的。如果能进一步寻找最佳辐照条件, 有望使辐照效果获得更大的提高。

表 1 BaF₂ 晶体激光预辐照后的损伤阈值

Table 1 Damage thresholds of BaF₂ crystals after laser pre-irradiation

Sample	Irradiation condition				Bulk damage threshold /J · cm ⁻²
	Irradiation	Power density /W · cm ⁻²	Duration /s	Total energy /J · cm ⁻²	
1	-	-	-	-	1087 ± 109
2	Cu	0.7	60	42	1287 ± 115
3	CO ₂	27	4	108	1457 ± 120
4	XeCl	5×10^5	30 times	0.56	1647 ± 261
5	XeCl	1.1×10^6	30 times	1.2	1845 ± 203

3.1.2 不同光斑尺寸

对 BaF₂ 进行大、小光斑损伤实验的结果如表 2 所示, 光斑大损伤阈值低, 光斑小损伤阈值高, 可见光斑效应是十分明显的, 光斑大落入光斑作用区内的杂质和缺陷也多, 由杂质和缺陷所引发的损伤几率相应增加, 故损伤阈值下降, 这个结果说明杂质和缺陷是引发晶体材料产生激光损伤的重要机制。

表 2 不同光斑面积的损伤阈值

Table 2 Damage thresholds of BaF₂ crystals for different focal areas

Focal area/10 ⁻⁶ cm ²	Surface damage threshold/J · cm ⁻²
10	225
64	72

3.1.3 酸处理

选用 4 块样品, 样品 S₁ 作对照用, 对其余的三块样品进行不同时间的酸侵蚀, 实验结果如表 3 所示, 随着酸侵蚀时间的增加, 损伤阈值不断提高, S₄ 样品侵蚀 2 h 比未经侵蚀的样品 S₁ 损伤阈值提高约 5 倍, 说明酸侵蚀对提高 BaF₂ 晶体的激光损伤阈值确实效果很好。

3.2 长脉冲激光损伤

长脉冲损伤实验的结果如图 1 所示, 损伤几率随激光能量的增加而增加, 二者呈线性关系, 延长几率曲线与 x 轴相交, 交点即为零损伤几率的损伤阈值, 由图 1 测得 BaF₂ 晶体零损伤几率和 50% 损伤几率的损伤阈值分别为 $1.36 \times 10^3 \text{ J/cm}^2$ 和 $2.06 \times 10^3 \text{ J/cm}^2$ 。

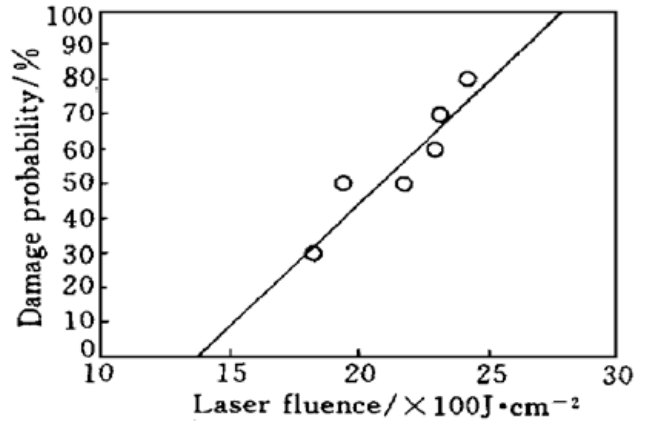


图 1 BaF₂ 晶体损伤几率与激光能量密度的关系
Fig. 1 Damage probability versus laser energy fluence for BaF₂ crystal

表 3 BaF₂ 晶体酸侵蚀后的损伤阈值

Table 3 Damage thresholds of BaF₂ crystals after acid etching

Sample	Etching time in HCl of mass fraction 0.05/min	Surface damage threshold/J · cm ⁻²
S ₁	-	225
S ₂	60	300
S ₃	90	542
S ₄	120	1257

3.3 连续激光损伤

用 CO₂ 连续激光对表 3 的 4 块样品进行损伤实验的结果如表 4 所示, 可以看出酸侵蚀对提高 BaF₂ 晶体抗连续激光损伤非常有效, 随着酸侵蚀时间的增加 BaF₂ 晶体抗 CO₂ 激光损伤功率密度不断提高, 从表 4 中计算出样品 4 激光损伤的能量密度比样品 1 提高了 10 倍以上。可见酸侵蚀对提高 BaF₂ 晶体抗连续激光损伤效果更好。

表 4 CW CO₂ 激光损伤的结果

Table 4 CW CO₂ laser damage results of BaF₂ crystals after acid etching

Sample	Etching time in HCl of mass fraction 0.05/min	Laser power/W	Power density /W · cm ⁻²	Time /s	Damage Phenomenon
1	-	100	185	0.8	No Failure
		120	222	1	Burst
2	60	250	463	1.2	No Failure
		260	481	4	Burst
3	90	270	500	1.2	No Failure
		300	556	1.2	Burst
4	120	100	185	1	No Failure
		170	315	3	No Failure
		230	426	4	No Failure
		260	481	5	No Failure
		300	556	3.4	Burst

3.4 损伤形貌

BaF₂ 晶体损伤形貌如图 2 所示, 图 2 (a) 为短脉冲激光作用下的体损伤正面照片, 损伤点的形状为有规则的炸裂破坏, 主要是应力引起的, 并与材料的结构有关。图 2 (b) 是短脉冲激光的表面损伤形貌, 为无规则的炸裂破坏。图 2 (c) 为长脉冲激光的面损伤形貌, 中心为熔区, 周围是网状龟裂破坏的花纹。长脉冲激光因为作用时间很长 (250 μs), 比短脉冲激光的作用时间 (10 ns) 要长 2.5×10^4 倍, 在这样长时间内, 激光照射在焦点上, 介质吸收激光能量, 使局部区域产生高温, 同时还不断地将热量传递给周围介质。由于 BaF₂ 晶体的热导率较低, 散发出去的热量有限, 因此中心区产生热积累, 温度不断升高, 直至达到熔点 (1280℃) 产生熔融破坏, 在熔点的周围出现解理型的炸裂破坏, 是由温度梯度产生的热应力所引起的。图 2 (d) 为连续激光炸裂损伤的形貌, 是典型的热力耦合破坏。

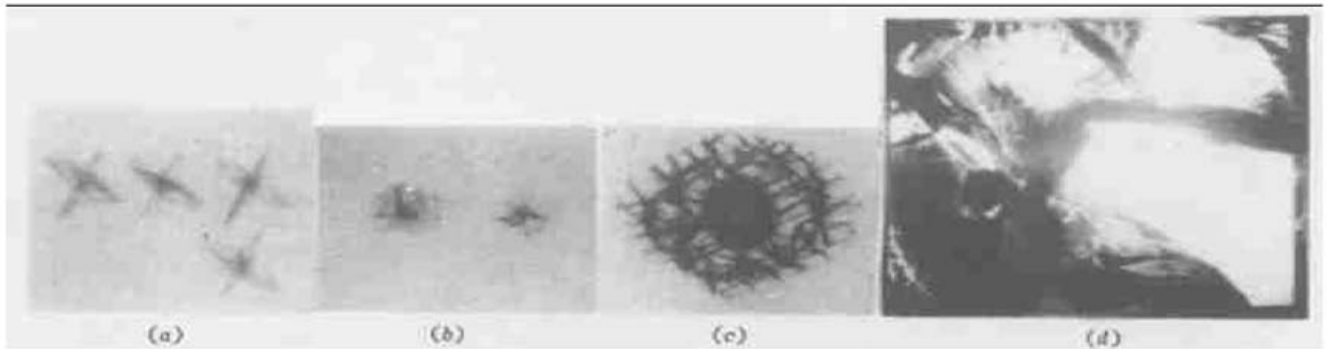


图 2 BaF₂ 晶体的损伤形貌

(a) 短脉冲体损伤; (b) 短脉冲表面损伤; (c) 长脉冲面损伤; (d) 连续激光炸裂损伤

Fig. 2 Damage morphologies of BaF₂ crystals

(a) bulk damage of short pulse; (b) surface damage of short pulse;

(c) surface damage of long pulse; (d) burst damage of CW-CO₂ laser

从图 2 可以看出同样的材料在不同的激光条件作用下产生的损伤形貌各异, 这说明激光损伤形貌不仅与材料的性质有关, 而且与激光作用的参数如功率、能量、脉宽和波长等因素有关, 这些因素与产生激光损伤的破坏机理有联系。

3.5 加固机制和损伤机理的分析

3.5.1 加固机制

激光预辐照加固机制:

激光预辐照加固大致可分为三种类型: 1) 激光清洗, 2) 激光抛光, 3) 激光退火。激光清洗所需要的激光能量/功率较小, 远低于激光损伤阈值, 大约只需要激光损伤阈值的 20%~30% 的激光能量/功率密度就可以了, 它的作用主要是去除光学元件表面吸附的水份、CO₂ 和灰尘, 去除污染, 净化表面, 对表面起到清洗的作用, 使表面对激光吸收降低, 从而起到了提高元件表面损伤阈值的作用。激光抛光用稍高的激光能量/功率, 大约为激光损伤阈值的 40%~50% 左右, 对元件进行预辐照, 可以使元件表面的微观结构发生变化^[2], 消除表面的微裂纹, 使元件表面变得光洁细致, 减小表面粗糙度, 改善表面质量, 使表面损伤阈值有较大提高。如果被辐照的元件, 对该激光波长是透明的, 这时激光辐照对提高体损伤阈值也有作用。激光退火所需要的激光能量/功率较高, 约为损伤阈值的 60%~70% 左右, 用此激光能量/功率辐照元件, 可以消除元件中存在的结构缺陷(晶体缺陷, 电子色心缺陷), 改变晶体结构^[3]和消除残余应力, 如果

被辐照的材料对该激光波长是不透明的,激光加热元件表面一薄层并冷却,表面形成一层压应力层,对元件表面相当于起到钢化作用,使表面损伤阈值有较大幅度提高,可提高 2~3 倍^[4];如果是透明的,则对提高体损伤阈值有较大作用。

综上所述,激光预辐照加固的机制不外乎是修复缺陷、去除杂质和污染、消除应力、减小粗糙度等产生破坏的因素,使光学元件的表面和体损伤阈值有较大提高。

酸侵蚀加固机制:

材料在机械加工过程中,由于研磨和抛光,表面会产生微裂纹,形成一层碎裂层,裂纹深度约 50 μm 左右^[5]。在微裂纹的裂缝中常残留磨料和杂质,并有水渗透到微裂纹中。加工好的元件表面暴露在空气中容易吸附水气和灰尘,产生污染。微裂纹、杂质和污染使元件表面吸收大为增加,因而大大降低了表面损伤阈值。酸侵蚀的作用使元件表面腐蚀掉一薄层,约 10~60 μm 左右。去除表面存在的杂质、污染和微裂纹,减小了表面粗糙度^[6]。使元件表面的损伤阈值有大幅度提高。

3.5.2 损伤机理

1) 短脉冲

短脉冲激光对晶体材料的损伤机理。当高功率激光照射到晶体上,焦点上的功率可以达到很高(GW 以上),引起强烈的非线性吸收,导致多光子电离,产生大量的等离子体(实验中晶体损伤总是伴随着等离子体闪光的出现)。等离子体迅速膨胀和晶体的局部升温引起的热膨胀在辐照点产生极大的应力,当应力超过材料的极限强度时,首先在那些结构薄弱的地方发生炸裂破坏,出现了如图 2(a) 所示的有规则的破坏花样。短脉冲激光表面损伤机理与体损伤基本相似,所不同的只是表面的情况比体内要复杂一些,晶体表面在机械加工过程中要产生微裂纹,表面暴露在空气中容易吸附水蒸气和灰尘造成污染。因此晶体的表面吸收一般要比体吸收大很多,尤其在杂质和缺陷附近更容易产生局部高温和等离子体,并形成很大的热应力,使晶体表面产生无规则的炸裂破坏。由于上述原因晶体表面通常在大大低于体损伤阈值的情况下就已造成破坏。在我们的实验中测得 BaF₂ 晶体的体损伤阈值为 1087 J/cm²,面损伤阈值为 225 J/cm²,体损伤阈值比面损伤阈值约高 5 倍。

2) 长脉冲和连续激光

长脉冲和连续激光对光学材料的损伤,材料对激光辐射的吸收是一个基本因素,其中材料的表面吸收具有重大的贡献,它可能比体吸收大数倍或一个数量级。特别值得指出的是,杂质和缺陷的吸收对材料的激光破坏起了非常重要的作用。通常杂质和缺陷对激光的吸收要比材料的本征吸收高 1 到几个数量级。长脉冲和连续激光的实验所用激光为多模输出,光强分布在时间和空间上都是不均匀的,当激光照射样品时,由于光强分布不均匀和非均匀吸收,在杂质附近更容易出现高温,产生高温度梯度和大的热应力。这种现象在 CO₂ 连续激光作用时尤为明显,在热冲击和热应力的联合作用下,将产生大面积乃至整块样品的炸裂破坏。

参 考 文 献

- 1 A. A. Belyaev, I. M. Voronova, A. P. Zhevlakov *et al.*. Optical materials for laser in the mid-IR range. *J. Opt. Technol.*, 1996, **63**(12): 871~ 877
- 2 Li Zhongya, Li Chengfu, Gong hui. Effect of laser treatment on laser induced damage of optical thin-film and laser glass. *Acta Optica Sinica* (光学学报), 1994, **14**(3): 281~ 286 (in Chinese)
- 3 N. C. Kerr, D. C. Emmong. The effect of laser annealing on laser induced damage threshold. *NIST*,

- 1989, Sp801: 164~ 179
- 4 P. A. Temple, W. H. Lowdermilk, D. Milam. Carbon dioxide laser polishing of fused silica surfaces for increased laser damage resistance at 1064 nm. *Appl. Opt.*, 1982, **21**(18): 3249~ 3255
 - 5 J. Marion. Strengthened solid-state laser materials. *Appl. Phys. Lett.*, 1985, **47**(7): 694~ 696
 - 6 Li Zhongya, Cheng Lei, Li Chengfu. Increase of laser damage resistance of optical materials by chemical treatment. *Acta Optica Sinica* (光学学报), 1999, **19**(6): 856~ 859 (in Chinese)

Investigation of Laser Damage of BaF₂ Crystal

Li Zhongya Cheng Lei Li Chengfu

(Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, The Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800)

Abstract Laser damage and strengthened laser damage strength of BaF₂ crystals are investigated by short pulse, long pulse and continuous lasers. Laser damage thresholds, damage morphologies and effects of strengthened are reported with different experiment conditions. The mechanisms of laser damage and strengthened laser damage strength are analyzed.

Key words laser damage, strengthened laser damage strength, mechanism of laser damage