

多脉冲激光诱导熔石英体损伤的时间分辨研究

曹珍^{1,2}, 贺洪波^{3*}, 胡国行^{3**}, 赵元安³, 邵建达^{1,3}

¹中国科学院上海光学精密机械研究所精密光学制造与检测中心, 上海 201800;

²中国科学院大学材料与光电研究中心, 北京 100049;

³中国科学院上海光学精密机械研究所薄膜光学实验室, 上海 201800

摘要 利用时间分辨激光光度计实时测量纳秒脉冲激光诱导熔石英体损伤过程中的透射、反射和散射变化量;通过在同一区域多次动态测量直至损伤产生,获得了多脉冲累积破坏的时间分辨过程。结果表明:在损伤出现前的脉冲辐照过程中,熔石英透过率已明显下降,后向反射率同步上升,甚至可达70%;后向反射率的上升量与透过率的损失量几乎相同;在多脉冲辐照过程中,只要脉冲辐照中出现后向反射,就会产生损伤;受激布里渊散射对多脉冲诱导熔石英体损伤具有促进作用。

关键词 激光光学; 激光损伤; 激光材料; 光学性质; 熔石英

中图分类号 TN244

文献标识码 A

doi: 10.3788/CJL201946.0803001

Time-Resolved Investigation of Multiple-Pulse Laser-Induced Bulk Damage in Fused Silica

Cao Zhen^{1,2}, He Hongbo^{3*}, Hu Guohang^{3**}, Zhao Yuanan³, Shao Jianda^{1,3}

¹Advanced Optical Manufacturing and Testing Center, Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics,
Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China;

²Center of Materials Science and Optoelectronics Engineering, University of Chinese Academy of Sciences,
Beijing 100049, China;

³Laboratory of Thin Film Optics, Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics,
Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China

Abstract In this study, a time-resolved laser photometer was applied to measure the real-time variations in transmission, reflection, and scattering during the nanosecond laser irradiation of bulk fused silica. The time-resolved process of multi-pulse accumulative damage can be obtained via the multiple dynamic measurements in a single region till the damage occurs. The results show that the transmission considerably decreases during the pulse irradiation process prior to the occurrence of damage, and the backward reflectivity simultaneously increases, even up to 70%. The increase in the backward reflectivity is almost equal to the decrease in the transmission. The statistical analysis results show that as long as there exists backward reflection during multi-pulse irradiation, damage can occur. Stimulated Brillouin scattering promotes the multi-pulse-induced damage in bulk fused silica.

Key words laser optics; laser damage; laser material; optical property; fused silica

OCIS codes 140.3330; 140.3380; 160.4760; 160.6030

1 引言

高功率激光系统的发展受到了光学元件激光损伤阈值的限制^[1-3]。激光损伤阈值随着辐照脉冲数的增加而减小,是熔石英元件损伤中常见的现象,称

为多脉冲累积效应^[4]。多脉冲累积破坏严重限制了熔石英元件的使用寿命,因此,明确多脉冲损伤机制对提高元件使用寿命和高功率激光系统输出能量至关重要。

国际上针对多脉冲累积破坏已开展了较为深入

收稿日期: 2018-12-26; 修回日期: 2019-01-28; 录用日期: 2019-02-18

基金项目: 国家重点研发计划(2016YFE0104300)

* E-mail: hbhe@siom.ac.cn; ** E-mail: huguohang@siom.ac.cn

的研究,研究人员主要通过分析多脉冲损伤阈值和辐照脉冲数之间的统计关系来反推多脉冲损伤中累积效应的产生机制^[5-7]。Gallais 等^[5]研究了 BK7 等玻璃元件在多脉冲辐照下的损伤情况,认为多脉冲损伤过程可分为两个阶段:第一个阶段是预损伤阶段,即在损伤前,材料在脉冲辐照下产生微观水平的变化,导致材料中诱导损伤产生的前驱物密度增大,进入一种可能导致单脉冲损伤的状态;第二个阶段就是损伤发生的阶段,其机制与单脉冲损伤的情况相同^[5]。目前,已有多种模型被提出来解释损伤前脉冲辐照对材料造成的微观变化,例如:杂质吸收能量造成破坏的杂质吸收模型^[8]、材料中产生结构缺陷的价带断裂模型^[9]、材料晶格结构发生变化的色心模型^[10]。对于块状熔石英的体内损伤来说,自聚焦和受激布里渊散射(SBS)等在材料体内产生的非线性效应可能在多脉冲损伤过程中扮演着重要角色^[4]。Zhurkov 等^[11]认为原子尺度上的结构缺陷的形成极有可能与 SBS 在熔石英材料内部形成的扰动有关。总之,目前还没有统一明确的理论来解释多脉冲诱导熔石英损伤的机理,关键问题还是损伤前脉冲辐照过程中是否会引材料变化,及其如何导致材料损伤阈值减小。

纳秒强激光诱导材料损伤在纳秒甚至更短的时间就可完成,常采用时间分辨方法来表征损伤的生长过程^[12]。本文将时间分辨方法应用到多脉冲累积破坏过程中,通过具有皮秒时间分辨率的时间分

辨光度计,实时探测 355 nm 纳秒脉冲激光辐照在熔石英元件体内的透射、反射和散射变化量。结果表明,在损伤前的脉冲辐照过程中,熔石英元件透过率在脉冲前沿突然下降,后向反射率却同步上升。在多脉冲辐照下,只要损伤前脉冲辐照过程出现后向反射,最终将会导致散射在反射升高后陡增,即产生损伤。而且,损伤前辐照过程产生的后向散射越剧烈,诱导损伤产生的脉冲数就越少。分析认为,SBS 导致后向反射升高,在此基础上讨论了 SBS 对多脉冲激光诱导熔石英体内损伤的影响。

2 实 验

实验中采用的时间分辨光度计示意图如图 1 所示,其中 D1、D2、D3、D4 为快速光电探头, $\lambda/2$ 为 1/2 波片, $\lambda/4$ 为 1/4 波片, S_r 为参考信号, S_t 为透射信号, S_b 为反射信号, S_s 为散射信号,CCD 为电荷耦合器件。激光光源为 Nd:YAG 激光器,脉宽为 7 ns,波长为 355 nm,重复频率为 10 Hz。1/2 波片和偏振片组成能量调节系统,用以控制激光能量输出。入射激光首先经过楔形板分光,分光后的透射光经聚焦透镜聚焦在熔石英样品内。聚焦透镜的焦距为 300 mm,聚焦后光斑的有效半径约为 19 μm 。经楔形板分光后的反射光被散射后由快速光电探头 D1 探测接收,该信号为参考信号 S_r 。经过熔石英样品后的透射光经另一块楔形板分光后,其反射光被散射后由快速光电探头 D2 探测接收,该信号为透射信号 S_t 。

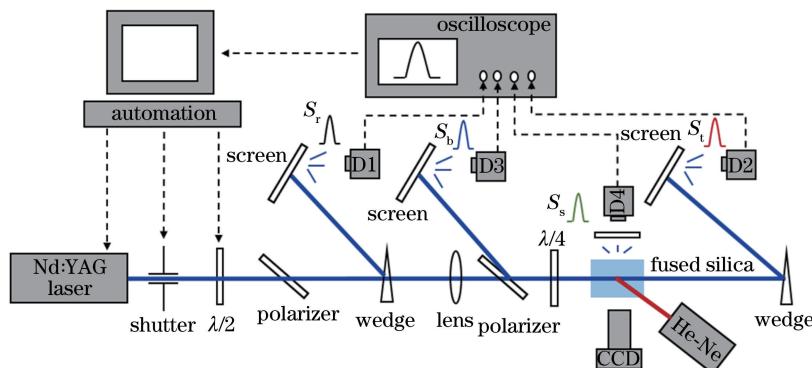


图 1 时间分辨光度计示意图

Fig. 1 Schematic of time-resolved laser photometer

在样品前放置由偏振片和 1/4 波片组成的光隔离器。入射光经过偏振片后变为 p 光,1/4 波片的光轴与入射光偏振方向的夹角为 45°,因此,p 光经过 1/4 波片后变为圆偏振光,然后入射到熔石英体内,此时熔石英元件体内若有后向反射光,则它在经过 1/4 波片后将变成 s 光,随后经偏振片反射后被

快速光电探头 D3 探测接收,该信号为反射信号 S_b 。为了避免表面反射光的影响,355 nm 紫外激光的入射角约为 2°。

最后,在熔石英样品侧面放置快速光电探头 D4 来探测散射信号 S_s ,在 D4 前放置中心波长为 355 nm 的滤光片,以保证只有 355 nm 的散射光

被探测到,排除其他杂散光的影响。4个探头D1、D2、D3、D4(SV2-FC型,Thorlabs公司,美国)接入同一示波器(DPO70404C型,Tektronix公司,美国),示波器的采样速率为25 GSa/s,带宽为4 GHz。利用低能量激光辐照样品,采集探头信号后,校正它们之间的响应时间差,使参考、透射、反射和散射信号同步响应。利用时间分辨激光光度计可以测量得到每一发纳秒脉冲作用过程中材料透过、反射和散射的实时变化情况。对同一区域进行多次测量直至损伤产生,即可获得多脉冲累积破坏的时间分辨过程。此外,采用连续He-Ne激光对样品进行辐照,结合CCD对辐照区域进行成像观察,在线监测样品是否产生宏观损伤。

3 结果与讨论

3.1 多脉冲损伤阈值测试

实验中采用的熔石英元件尺寸为40 mm×40 mm×40 mm,每个表面都经过光学抛光,355 nm激光被聚焦在元件中心来引起熔石英体内损伤。图2所示为采用光学元件损伤阈值测试方法S-on-1测量得到的熔石英的体损伤阈值(S为预设脉冲数)。S-on-1测试方法的过程如下:采用一系列脉冲对样品进行连续辐照,直到损伤产生,或者未产生损伤但辐照脉冲总数已达到预设脉冲数时停止辐照^[13]。实验中的S分别取300、10和1。当探测到损伤产生后,立即停止入射激光,以防止损伤进一步生长。利用 $p = n/20$ 得到每种激光功率密度的损伤概率 p ,其中n为在测试的20个点中产生破坏的点的个数。由图2可知,在相同的激光功率密度作用下,熔石英体损伤概率随脉冲数的增加而明显

增大。1-on-1测试方法所得的零损伤概率阈值约为300-on-1的2.5倍,这表明熔石英元件体损伤存在明显的多脉冲累积效应。

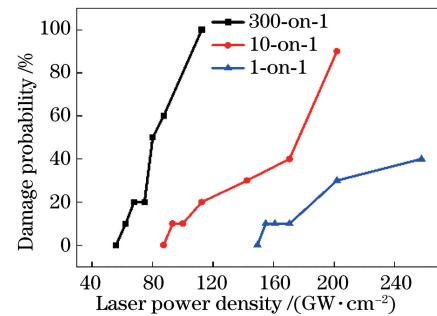


图2 利用S-on-1测试方法得到的熔石英元件的体损伤概率曲线

Fig. 2 Bulk damage probability curves in thick fused silica by using S-on-1 test method

通过CCD可在线观察每个脉冲辐照后He-Ne光的散射图像,如图3(a)~(c)所示,在熔石英体损伤出现前进行脉冲辐照(光功率密度为200 GW·cm⁻²)后,并未观察到宏观损伤。关闭He-Ne光,并在CCD探头前加装355 nm滤光片,以滤除355 nm散射光,将CCD的积分时间设为100 ms,结果发现,在引起损伤的脉冲作用过程中,能观察到明显的等离子体闪光现象,如图3(d)所示,这表明在损伤形成过程中存在电子激发过程^[10]。在损伤前的脉冲作用过程中,并未观察到等离子体闪光。利用光学显微镜观察熔石英体损伤的典型形貌特征,结果如图4所示:熔石英体损伤呈丝状形貌,且头部区域呈椭球状,包含明显的裂纹网络。这种体内的丝状损伤通常认为是由自聚焦效应引起的^[14-16]。

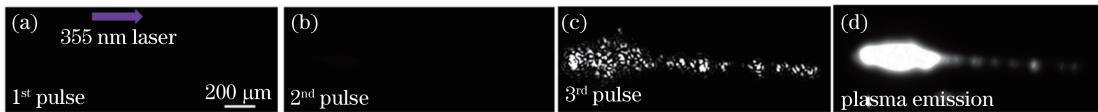


图3 CCD采集的图像。激光功率密度为200 GW·cm⁻²时(a)第1发脉冲、(b)第2发脉冲、(c)第3发脉冲辐照后的图像(箭头表示355 nm激光的入射方向);(d)CCD积分时间为100 ms时的等离子体闪光图像

Fig. 3 Images captured by CCD. Images after successive (a) 1st pulse, (b) 2nd pulse, and (c) 3rd pulse irradiation at laser power density of 200 GW·cm⁻² (arrow indicates incident direction of 355 nm laser); (d) plasma emission image under CCD integration time of 100 ms

3.2 多脉冲作用过程的时间分辨

利用时间分辨激光光度计可以得到多脉冲作用下,每个脉冲作用过程中材料透过、反射和散射的实时变化情况。当激光功率密度为97 GW·cm⁻²时,多脉冲辐照熔石英样品过程中各信号的实时变化如图5所示。由图5(a)可知,在

第1发脉冲辐照过程中,透过信号在脉冲前沿明显下降,与此同时,反射信号开始上升。随着入射激光瞬时功率逐渐下降,反射光强度逐渐降低,透射信号逐渐恢复至与参考信号重合。散射信号在辐照过程中无明显变化。由图5(b)可知,第20发脉冲作用引起的变化与第1发脉冲类似。由图5

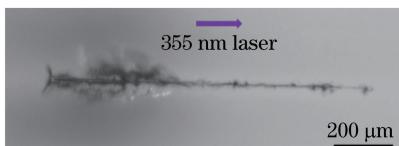


图 4 熔石英元件体损伤的典型形貌
(箭头表示 355 nm 激光的入射方向)

Fig. 4 Typical damage morphology in thick fused silica
(arrow indicates incident direction of 355 nm laser)

(c) 可知,当第 67 发脉冲作用到熔石英体内时,在透过率下降且反射率上升之后,散射信号开始上升,这标志着损伤的产生。透过信号在散射信号上升后持续降低,并没有像损伤前脉冲作用时一样重新与参考信号重合。

图 6 所示为当入射激光功率密度增大到 $133 \text{ GW} \cdot \text{cm}^{-2}$ 时,各脉冲辐照熔石英过程中各信号的实时变化情况。由图 6(a) 可知,在第 1 发脉冲作用过程中,其信号的变化趋势与激光功率密度为 $97 \text{ GW} \cdot \text{cm}^{-2}$ 时类似,透过信号在脉冲前沿突然下降,反射信号同步上升,散射信号无明显变化。但与图 5(a) 所示的激光功率密度为 $97 \text{ GW} \cdot \text{cm}^{-2}$ 时相比,透过信号下降的时间更早,反射信号的强度更大。由图 6(b) 可知,第 3 发脉冲作用引起的变化与第 1 发脉冲类似。由图 6(c) 可知,当激光功率密度增大到 $133 \text{ GW} \cdot \text{cm}^{-2}$ 时,在第 6 发脉冲辐照时形成损伤,散射信号如图 6(c) 所示,紧随在反射率之后开始上升,表示损伤出现。

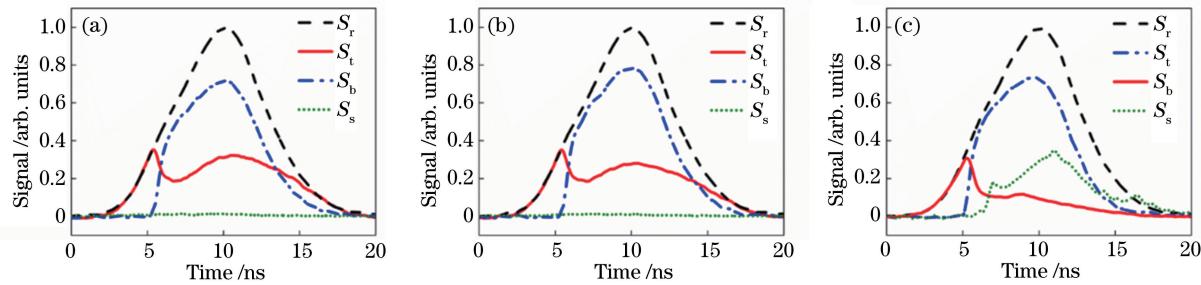


图 5 激光功率密度为 $97 \text{ GW} \cdot \text{cm}^{-2}$ 时多脉冲辐照熔石英样品过程中各信号的实时变化。

(a) 第 1 发脉冲; (b) 第 20 发脉冲; (c) 第 67 发脉冲

Fig. 5 Real-time variation of each signal during multi-pulse irradiation of thick fused silica at laser power density of $97 \text{ GW} \cdot \text{cm}^{-2}$. (a) 1st pluse; (b) 20th pluse; (c) 67th pluse

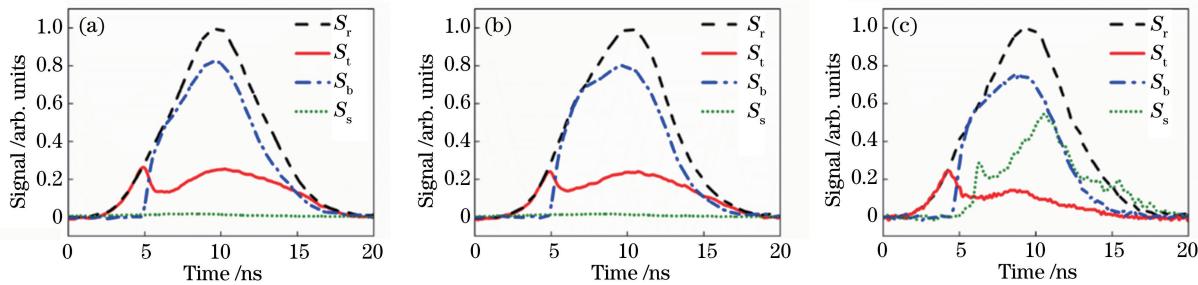


图 6 激光功率密度为 $133 \text{ GW} \cdot \text{cm}^{-2}$ 时多脉冲辐照熔石英样品过程中各信号的实时变化。

(a) 第 1 发脉冲; (b) 第 3 发脉冲; (c) 第 6 发脉冲

Fig. 6 Real-time variation of each signal during multi-pulse irradiation of thick fused silica at laser power density of $133 \text{ GW} \cdot \text{cm}^{-2}$. (a) 1st pluse; (b) 3rd pluse; (c) 6th pluse

多脉冲累积破坏的时间分辨探测结果表明,在损伤出现前的脉冲辐照过程中,熔石英的透过率已明显下降,并且后向反射率同步上升。在单个脉冲作用下,利用两个相同型号的能量计同时测量后向反射的能量和通过样品后透射的能量,分别将其除以总入射能量,得到后向反射率和透过率。用于反射率和透过率测量的采样结构基于同一时钟,具备同步性,两者之间的时间延迟通过校准进行确定。

透过率损失量由无后向反射时的透过率($\approx 92\%$)减去有后向反射时的透过率得到。图 7 所示为反射率、透过率损失量和诱导损伤所需脉冲数随激光功率密度的变化,其中每种激光功率密度下的反射率和透过率损失量值为 10 个采样点的平均值。由图 7 可知,后向反射率的上升量几乎与透过率的损失量相等,后向反射率甚至可高达 70%。这表明损伤前脉冲辐照过程中透过率下降的主要原因是后向反

射的产生。多次实验的统计结果表明,在多脉冲辐照过程中,只要损伤前脉冲辐照中出现后向反射,就会导致散射量增加,也就是损伤产生。散射量陡增的时刻都紧随在后向反射升高的时刻之后,而且后向反射率升高,诱导体损伤产生所需的脉冲数减少,如图 7 所示。

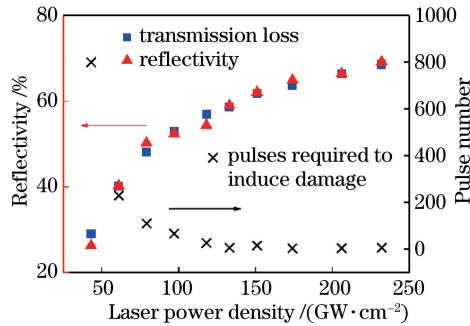


图 7 反射率、透过率损失量和诱导损伤所需脉冲数随激光功率密度的变化

Fig. 7 Reflectivity, transmission loss, and pulse number required for inducing damage versus laser power density

3.3 损伤前辐照对损伤的影响

上述结果表明,损伤前脉冲辐照过程中透过率下降的主要原因是后向反射率升高。而在熔石英体内,后向反射率增加主要有两个可能的原因:一是等离子体的反射,即当材料中的自由电子密度达到临界值时,将导致激光反射^[17]。然而,在实验中,并未在损伤前脉冲作用时发现等离子体闪光,这说明材料在损伤前脉冲辐照过程中并未形成等离子体。二是熔石英体内形成 SBS。纳秒激光在熔石英中因电致伸缩而能激发出声波和 SBS,并且背向 SBS 的增益最强^[18]。研究^[18-19]表明,熔石英中的 SBS 与入射的激光能量呈非线性增长关系,背向 SBS 反射率可达 90%,并且背向 SBS 脉冲持续时间短于抽运脉冲持续时间,这与实验中观察到的现象一致。同时,通过反射信号的时间分布可以得到反射信号上升的阈值功率与 SBS 的阈值功率接近^[20]。因此,损伤前脉冲引起的熔石英透过率下降的主要原因是 SBS 的形成。多次实验结果表明,只要损伤前辐照过程中产生 SBS,在多脉冲的持续辐照下,就会诱导损伤产生,并且 SBS 越强,损伤越容易产生,这说明损伤前脉冲辐照过程中的 SBS 对熔石英体损伤形成具有促进作用。

损伤前辐照过程中的 SBS 可能主要从两方面影响熔石英体损伤的形成。首先,SBS 带来的扰动造成材料带隙减小^[11]。由第一性原理计算可得到,二氧化硅材料在应力作用下引起的形变会导致明显

的带隙减小^[21]。而在 SBS 过程中,电致伸缩效应使得熔石英体内强电场作用区域受到局部压缩后引起形变,这就可能导致材料带隙的减小。随着脉冲数增加,形变积累越严重,材料带隙的减小也就越明显。实验中,在损伤产生时观察到了等离子体闪光,如图 3(d)所示,这表明损伤过程中存在电子离化过程,并形成了等离子体。假设熔石英的带隙从 7.8 eV^[10]减小为 6.8 eV,根据 Keldysh 理论^[22]计算可得,当激光功率密度为 200 GW/cm²时,在波长为 355 nm、脉宽为 7 ns 的激光作用下,光离化速率将从 $5.6 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3} \cdot \text{ns}^{-1}$ 增大为 $1.2 \times 10^{22} \text{ cm}^{-3} \cdot \text{ns}^{-1}$,增大了近 4 个数量级。离化速率的增大将加速电子电离,促进等离子体形成。等离子体对激光能量产生剧烈吸收诱导材料损伤^[10]。因此,损伤前脉冲辐照可能会引起材料带隙减小,并增大电子离化速率,从而促进损伤形成。实验中熔石英体损伤的形貌呈现丝状损伤的结构,这表明自聚焦效应可能在损伤过程中扮演着重要角色^[14-16]。诱导自聚焦形成的激光阈值功率与材料的非线性折射率成反比^[23]。SBS 过程中电致伸缩效应将使熔石英的非线性折射率增大^[24],从而导致自聚焦阈值减小。因此,损伤前辐照可能会导致熔石英非线性折射率增大,从而助推自聚焦过程产生,促进体损伤形成。

4 结 论

利用具有皮秒时间分辨率的时间分辨激光光度计,对纳秒多脉冲激光作用下熔石英元件的光学性质进行实时监测,结果表明,在损伤前脉冲辐照过程中,SBS 的产生使得熔石英元件的透过率明显下降,反射率同步上升。随着 SBS 的增强,诱导体损伤产生所需的脉冲数减少,这表明 SBS 助推了体损伤的形成。分析认为,SBS 促进熔石英元件中等离子体以及自聚焦过程的形成,从而促进体损伤的产生。

参 考 文 献

- [1] Baisden P A, Atherton L J, Hawley R A, et al. Large optics for the national ignition facility [J]. Fusion Science and Technology, 2016, 69(1): 295-351.
 - [2] Wang H X, Shen L, Li C F, et al. Analysis and experimental investigation of laser induced damage of optics[J]. Chinese Journal of Lasers, 2017, 44(3): 0302006.
- 王洪祥, 沈璐, 李成福, 等. 光学元件激光诱导损伤

- 分析及实验研究 [J]. 中国激光, 2017, 44 (3): 0302006.
- [3] Liu S, Gao X S, Tian Z J, *et al.* Research advances in improving laser damage resistance [J]. Laser & Optoelectronics Progress, 2018, 55(11): 110002.
刘爽, 高雪松, 田宗军, 等. 提高抗激光损伤性能技术研究进展 [J]. 激光与光电子学进展, 2018, 55 (11): 110002.
- [4] Chmel A E. Fatigue laser-induced damage in transparent materials [J]. Materials Science and Engineering: B, 1997, 49(3): 175-190.
- [5] Gallais L, Natoli J, Amra C. Statistical study of single and multiple pulse laser-induced damage in glasses [J]. Optics Express, 2002, 10(25): 1465-1474.
- [6] Gallais L, Natoli J Y. Optimized metrology for laser-damage measurement: application to multiparameter study [J]. Applied Optics, 2003, 42(6): 960-971.
- [7] Natoli J Y, Bertussi B, Commandré M. Effect of multiple laser irradiations on silica at 1064 and 355 nm [J]. Optics Letters, 2005, 30 (11): 1315-1317.
- [8] Hopper R W, Uhlmann D R. Mechanism of inclusion damage in laser glass [J]. Journal of Applied Physics, 1970, 41(10): 4023-4037.
- [9] Eron'Ko S B, Zhurkov S N, Chmel A. Kinetics of accumulation of damage in transparent insulators subjected to repeated laser irradiation [J]. Soviet Physics: Solid State, 1978, 20: 2064-2066.
- [10] Jones S C, Braunlich P, Casper R T, *et al.* Recent progress on laser-induced modifications and intrinsic bulk damage of wide-gap optical materials [J]. Optical Engineering, 1989, 28(10): 281039.
- [11] Zhurkov S N, Korsukov V E. Atomic mechanism of fracture of solid polymers [J]. Journal of Polymer Science: Polymer Physics Edition, 1974, 12 (2): 385-398.
- [12] DeMange P, Negres R A, Raman R N, *et al.* Role of phase instabilities in the early response of bulk fused silica during laser-induced breakdown [J]. Physical Review B, 2011, 84(5): 054118.
- [13] ISO 11254-2. Determination of laser-damage threshold of optical surfaces-Part 2 : S-on-1 test [S]. International Organization for Standardization, 2001.
- [14] Zverev G, Pashkov V. Self-focusing of laser radiation in solid dielectrics [J]. Soviet Physics JETP, 1970, 30(4): 616-621.
- [15] Soileau M J, Williams W E, Mansour N, *et al.* Laser-induced damage and the role of self-focusing [J]. Optical Engineering, 1989, 28(10): 281133.
- [16] Khrapko R, Lai C Y, Casey J, *et al.* Accumulated self-focusing of ultraviolet light in silica glass [J]. Applied Physics Letters, 2014, 105(24): 244110.
- [17] Nahen K, Vogel A. Plasma formation in water by picosecond and nanosecond Nd:YAG laser pulses. II. Transmission, scattering, and reflection [J]. IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics, 1996, 2(4): 861-871.
- [18] Yoshida H, Fujita H, Nakatsuka M, *et al.* Stimulated Brillouin scattering phase-conjugated wave reflection from fused-silica glass without laser-induced damage [J]. Optical Engineering, 1997, 36 (9): 2557-2563.
- [19] Lamaignère L, Gaudfrin K, Donval T, *et al.* Laser-induced damage of fused silica optics at 355 nm due to backward stimulated Brillouin scattering: experimental and theoretical results [J]. Optics Express, 2018, 26(9): 11744-11755.
- [20] Cao Z, He H B, Hu G H, *et al.* Transient optical properties in fused silica measured by time-resolved high power laser photometer [J]. Chinese Optics Letters, 2019, 17(5): 051601.
- [21] Gao E L, Xie B, Xu Z P. Two-dimensional silica: structural, mechanical properties, and strain-induced band gap tuning [J]. Journal of Applied Physics, 2016, 119(1): 014301.
- [22] Keldysh L. Ionization in the field of a strong electromagnetic wave [J]. Soviet Physics JETP, 1965, 20(5): 1307-1314.
- [23] Mao S S, Quéré F, Guizard S, *et al.* Dynamics of femtosecond laser interactions with dielectrics [J]. Applied Physics A, 2004, 79(7): 1695-1709.
- [24] Melloni A, Frasca M, Garavaglia A, *et al.* Direct measurement of electrostriction in optical fibers [J]. Optics Letters, 1998, 23(9): 691-693.