激光损伤机理判断研究

尹宪华1 张国文1 周申蕾1 马伟新2

(¹中国科学院上海光学精密机械研究所高功率激光物理国家实验室,上海 201800 ²中国工程物理研究院上海激光等离子体研究所,上海 201800

摘要 实验发现光学材料的损伤与激光波长、材料特性、激光脉宽等因素有关,而且光学材料损伤的最终态是不一样的,这个态可以是熔化、碎裂或蒸发。为了解释这些现象,从材料的热传导方程出发半定量地讨论了光学材料损伤机理,指出了一个关键参数决定了激光诱发损伤与激光脉宽 τ_p 的关系,它就是光学材料内的夹杂物把热量传递给光学材料体所需时间 τ_o 在 $\tau_p \gg \tau$ 时,损伤阈值由激光辐射强度决定;在 $\tau_p \ll \tau$ 时,损伤阈值由激光辐射能量密度决定。

关键词 激光技术;激光损伤判据;激光脉宽;热传导时间

中图分类号 O436.3 文献标识码 A doi: 10.3788/LOP49.011404

Criteria Study of Laser Induced Damage

Yin Xianhua¹ Zhang Guowen¹ Zhou Shenlei¹ Ma Weixin²

⁽¹National Laboratory on High Power Laser and Physics, Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China

² Shanghai Institute of Laser Plasmas, China Academy of Engineering Physics, Shanghai 201800, China

Abstract Scientific experiments show that damage to optical materials is related with factors like laser wavelength, material properties, laser pulse width, etc. The final stage of damage is various, which can be melting, crack and ablation. In an effort to explain these phenomena, we run a semi-quantitative discussion on the optical material damage mechanism regarding the thermal conduction equation, presenting a key parameter that determines the relationship between laser induced damage and laser pulse width τ_p —the time τ it takes for the inclusion within the optical material to transfer its heat to the body. When $\tau_p \gg \tau$, the damage threshold is determined by laser radiation intensity; when $\tau_p \ll \tau$, the damage threshold is determined by laser radiation energy density. Key words laser technique; laser damage criteria; laser pulse width; heat conduction time

OCIS codes 140.3530; 190.4390

1 引 言

在高功率激光链路中,如果靠真空端的光学窗口表面有一裂纹或瑕疵,并且光学窗口受到的张应力大于 Griffth 断裂判据值^[1~3],则会发生窗口玻璃的瞬时破裂,造成真空系统的损伤,可能会造成相邻仪器设备的 破坏,甚至危害工作人员的安全。研究发现,引起光学元件表面裂纹的原因有两个:1)光学元件在使用过程 中或制造过程中,由于表层或浅表层受到污染而引起局部激光加热产生的损伤,通常称为激光诱发损伤 (LID);2)传输光束的自聚焦和鬼像也会造成元件表面的损伤。

光学损伤与激光波长、材料特性、激光脉宽等因素有关。大部分透明固体材料的光学损伤机理被认为是 材料体内含有吸收性"夹杂物",受光辐照会产生"热爆炸"。激光诱发损伤与激光脉宽有关的机理是热爆炸 在有限时间内形成。本文采用数学模拟表明:一个关键参数决定了激光诱发损伤与激光脉宽 τ_p 的关系,它 就是夹杂物把热量传递给玻璃体所需时间 τ_o 在 $\tau_p \gg \tau$ 时,损伤阈值由激光辐射强度决定;在 $\tau_p \ll \tau$ 时,损伤

收稿日期: 2011-09-16; 收到修改稿日期: 2011-09-28; 网络出版日期: 2011-11-11

基金项目:国家自然科学基金(60707019)资助课题。

作者简介:尹宪华(1954—),男,高级工程师,主要从事固体激光工程方面的研究。E-mail: yinxianhua99@126.com

阈值由激光辐射能量密度决定。

2 热传导方程

本文的主要目的是通过材料的热传导方程解得到激光诱发损伤与 τ_p 的关系。众所周知,透明固体和夹 杂物的动力学过程可以由热传导方程来描述^[4]:

$$o_k c_k \frac{\partial T(r,t)}{\partial t} = \chi_k \nabla^2 T(r,t) + \frac{\sigma(T)I}{V_0} f(t) \eta(R-r), \qquad (1)$$

式中 ρ_k 为材料密度, c_k 为材料热容量, χ_k 为材料热导率,I为激光脉冲峰值强度,f(t)为时间轮廓, $\sigma(T)$ 为夹杂物的吸收截面,R为夹杂物吸收半径, V_0 为夹杂物体积,下标k = 1,2分别代表夹杂物和透明固体。 $\eta(R - r)$ 是 Heviside 函数: $x < 0, \eta(x) = 0; x > 0, \eta(x) = 1$ 。

(1)式的解非常复杂,因为温度与材料的吸收关系是不清楚的。为此经过简化,(1)式可以分解为两个方程,一个描述夹杂物内部,一个描述夹杂物外部:

$$-\chi_2 \nabla T(r=R) 4\pi R^2 = \sigma(T) f(t) I - \rho_1 c_1 V_0 \left(\frac{\mathrm{d}T}{\mathrm{d}t}\right), \quad r \leqslant R, \tag{2}$$

$$\rho_2 c_2 \frac{\partial T(\mathbf{r}, t)}{\partial t} = \chi_2 \nabla^2(\mathbf{r}, t), \quad \mathbf{r} \geqslant \mathbf{R}.$$
(3)

这两个方程和边界条件是互相耦合的,夹杂物表面温度具有连续性。(3)式具有解析解,而(2)式可以简化成 一个积分-微分方程,没有解析解。因此做一个试探解,引入一个热转换系数,定义为 μ(t),并满足

$$\mu(t) \frac{\chi_2}{R} (T - T_0) = -\chi_2 \nabla T(r = R), \qquad (4)$$

式中 T₀ 是夹杂物的初始温度。µ(t)可以简单地表达为

$$\mu(t) = \eta(\tau_2 - t) \sqrt{\frac{\tau_2}{t}} + \eta(t - \tau_2), \qquad (5)$$

式中 $\tau_2 = (\rho_2 c_2 R^2)/(\pi \gamma_2)$, 典型值为 10^{-8} s。根据(2)、(4)式可得

$$\frac{\mathrm{d}T}{\mathrm{d}t} = -\frac{1}{\tau} \Big[\mu(t) \left(T - T_0 \right) - \frac{I_{\sigma}(T) f(t)}{4\pi R^2 \chi^2} \Big], \tag{6}$$

式中 $\tau = (\rho_1 c_1 R^2)/(3\chi_2)$ 是夹杂物把热量传递给玻璃体所需时间。(6)式应补充一个初始条件:

$$T(t=0) = T_{\rm th},\tag{7}$$

式中 T_{th}是热爆炸的阈值温度。有了初始条件,就可以解夹杂物的温度动力学方程,确定激光脉宽与材料损 伤阈值的关系。

可用一个简单方法解(6)式。先引入一个无量纲量 $z = \sigma(T_{th}) / \sigma(T), T_{th}$ 值可由下式导出:

$$(T - T_0)\sigma^{-1}(T) \frac{d\sigma(T)}{dT} = 1.$$
 (8)

(8)式只在 T≈T_{th}附近是正确的,利用(8)式可得

$$\frac{\mathrm{d}z}{\mathrm{d}t} = \frac{1}{\tau} \big[\mu(t)z - Lf(t) \big],\tag{9}$$

式中 $L=I/I_{th}$ 。(9)式的解为

$$z = \frac{\sigma(T_{\rm th})}{\sigma(T)} = \exp\left[-\frac{1}{\tau}\int_{0}^{t}\mu(\theta)\,\mathrm{d}\theta\right] \times \left\{1 - \frac{1}{\tau}\int_{0}^{t}f(p)\exp\left[-\frac{1}{\tau}\int_{0}^{p}\mu(\theta)\,\mathrm{d}\theta\right]\,\mathrm{d}p\right\}.\tag{10}$$

当(10)式中 $\sigma(T)$ →∞,(T→∞)满足热爆炸条件,可以得到激光损伤阈值与激光脉宽和波形的关系式:

$$\frac{L}{\tau} \int_{0}^{\infty} f(t) \exp\left[-\frac{1}{\tau} \int_{0}^{t} \mu(\theta) d\theta\right] dt = 1.$$
(11)

值得注意的是:条件 I>I_{th}仅导致热不稳定性发生,不一定是热爆炸或介质损伤。只有当激光能量密度 W 超过阈值密度 W_{th}时,(11)式才有解,热爆炸才会发生。

3 讨 论

3.1 热爆炸条件

由(11)式可知,要产生热燥炸必须满足两个条件:

$$I > I_{\rm th},\tag{12}$$

$$W > W_{\rm th}.\tag{13}$$

3.2 不同脉冲形状下的脉宽与激光损伤阈值关系

对于矩形脉冲, $f(t) = \eta [\tau_p / (2-t)]$ 。当激光脉宽 τ_p 大于透明玻璃的热传导时间 τ_2 时, 热转换系数 $\mu(t) = 1[(5)$ 式]。因此根据(11)式可给出

$$I^{\text{rect}}(\tau_{\text{p}}) = \frac{I_{\text{th}}}{1 - \exp\left(-\frac{\tau_{\text{p}}}{2}\right)}.$$
(14)

当激光脉宽 τ_p 小于透明玻璃的热传导时间 τ_2 时,热转换系数 $\mu(t) = (\tau_2/t)^{1/2} [见(5) 式]$ 。因此根据(11) 式可给出

$$I^{\rm rect}(\tau_{\rm p}) \approx \frac{2}{\tau_{\rm p}} W_{\rm th}.$$
 (15)

(14)式在整个脉宽范围内都适用。

对于高斯脉冲, 当 $\tau_{p} \gg \tau_{2}$ 时,脉冲形状可以表示为 $f(t) = \exp[-(t-t_{1})^{2}/\tau_{p}^{2}]$,其中 $t_{1}^{2} = \tau_{p}^{2}\ln(I/I_{th})$ 。根据 (11)可给出

$$I^{\text{Gauss}}(\tau_{\text{p}}) = I_{\text{th}} \exp[(\tau/\tau_{\text{p}})^2].$$
(16)

在很大的脉宽范围内,(11)式没有解析解,只有数值 解。

图 1 给出不同脉冲形状下的激光脉宽与激光损伤阈 值的关系。从图中可以看出,只有在两种情况即 $\tau_p \gg \tau$ 和 $\tau_p \ll \tau$ 时, $I^{\text{rect}}(\tau_p) \approx I^{\text{Gauss}}(\tau_p)$; 当 $\tau_p \approx \tau$ 时, $I^{\text{rect}}(\tau_p)$ 与 $I^{\text{Gauss}}(\tau_p)$ 明显不同。把长脉冲和短脉冲分别定义为 $\tau_p \gg \tau$ 和 $\tau_p \ll \tau$,则破坏阈值 I_{th} 定义为在长脉冲条件下的破坏强 度(对于 SiO₂ 材料, τ =20 ps, $I_{\text{th}} \approx 1$ TW/cm²)。因为夹杂 物把热量传递给玻璃体所需时间 $\tau \approx R^2/\chi_2$,则破坏阈值 $I_{\text{th}} \approx 1/R^2$ 。通常 $R \leq 10^{-5}$ cm,玻璃体的热传导率 χ_2 决 定了夹杂物把热量传递给玻璃体所需时间 τ ,这个量对 材料最终破坏状态有很大影响。

3.3 激光脉宽与损伤态的关系

实验发现:在光与物质作用区域内,当辐射强度超过 阈值 *I*_{th}时,并没有发生损伤而是激光吸收大大增加^[5,6]。因此要正确解决激光损伤问题需要用一个公式来 描述透明介质最终态,这个态可以是熔化、碎裂或挥发。从机械损伤角度出发,将激光损伤判据(12)和(13) 式用机械强度和机械能量判据来表达:

$$\max \sigma_{\phi}(r,t) \geqslant \sigma_{\rm th}, \qquad (17)$$

$$\mathscr{P}E_{p} \geqslant E_{m}, \qquad (18)$$

式中 $\sigma_{\theta}(r,t)$ 为应力张量的切向分量, σ_{h} 是透明体材料的极限强度, E_{p} 为激光脉冲能量, η 为被吸收能量占全部辐照能量的百分比。 $\theta = (T_{0}/(9c_{h}) \times [(1+\nu_{h})/(1-\nu_{h})]^{2} \alpha_{h}^{2} C_{l}^{2}$ 为连接系数, c_{h} 为热容量, α_{h} 是线性膨胀系数, ν_{h} 为泊松比, C_{l} 为径向声速, T_{0} 为激光辐照前温度,下标h代表玻璃体。机械强度[(17)式]不能完全描述碎裂形式,因为碎裂总有一个给定尺寸,以至于需要一个给定能量。为此建立损伤模型:在一个体积很大的透明材料体内含有一个半径为R的球体夹杂物,在这个球状区域内光与夹杂物作用并导致透明材料损伤,





Fig. 1 Damage intensity threshold versus laser pulsewidth in $$\rm SiO_2$ at wavelengths of 1.05 and 0.53 μm

激光与光电子学进展

损伤所需破坏能量为 $E_m = 39R^2 \gamma^{[5,6]}, \gamma$ 为透明体的表面能量密度。因此要在玻璃体内产生机械损伤必须满足两个判据,即局部机械强度判据[(17)式]和机械破坏能量判据[(18)式]。

3.3.1 判据的讨论

造成透明固体激光损伤的机制有两种:固有机制和夹杂物吸收机制。前者引起的光学玻璃损伤与玻璃 体本身的物化性质有关(碰撞和多光子电离机理),后者主要由夹杂物性质决定(弹性力学、热爆炸和光电离 机理)。由于吸收机制不一样,材料受激光辐照时的应力变化的动力学过程也不一样。

对于固有机制,当透明体被激光局部加热时,应力张量的切向分量达到最大值所需时间 $t = 1.15\tau(\tau = c_h \rho_h R^2 / \chi_h)$,之后温度继续上升,该应力会减小。因为应力的变化与温度梯度成正比,在辐照吸收的初始阶段温度显著上升引起应力的增加;随后热量向透明体迅速扩散,减小了温度梯度,因此也减小了应力。考虑到应力与时间的关系,判据(17)式等效为两个不等式:

$$\vartheta \geqslant \vartheta_{\rm cr} = \varepsilon_{\rm th} / \alpha_{\rm h}$$
, (19)

$$\frac{\mathrm{d}\vartheta}{\mathrm{d}t} \geqslant 0.9 \,\frac{\vartheta_{\mathrm{cr}}}{\tau},\tag{20}$$

式中 $\theta = T - T_0$, θ_{cr} 为材料碎裂形成的临界温度, ϵ_{th} 为材料极限应变。(20)式表明,如果加热速率很慢,应力达不到它的极限值,碎裂不会产生。在弹性近似下,材料极限应变表示为

$$\varepsilon_{\rm th} = \frac{3\sigma_{\rm th}(1-\nu_{\rm h})}{E_{\rm h}},\tag{21}$$

式中 E_h 为材料的杨氏模量。在线性近似下有 $\frac{d\vartheta}{dt} \approx \frac{\vartheta}{\tau_p}$,由此(20)式给出产生碎裂的条件是 $\tau_p < \tau$,这意味着采用长脉冲激光辐照,材料最终态是熔化而不是碎裂。这个结论也可应用到非线性吸收。不考虑来自光作用 区域的热扩散,把关系式 $\frac{d\vartheta}{dt} \approx k_a I_{th}/(c_h \rho_h)(k_a$ 为吸收系数)代入(20)式,可以得到产生碎裂的条件是

$$I_{\rm th} \geqslant I_{\rm cr} \approx \frac{c_{\rm h} \rho_{\rm h} \vartheta_{\rm cr}}{k_{\rm a} \tau}.$$
 (22)

(22)式表明,当 *I*_{th}<*I*_{er}时,即使 *θ*>*θ*_{er}碎裂也不会发生。这是由于来自热区的热扩散降低了温度梯度, 使得作用区内温度比材料熔点高,从而损伤朝熔化态发展。

对于夹杂物吸收机制,当夹杂物受到光辐照时它的弹性参量与透明体弹性参量不同,其应力变化的动力 学过程也不同。一旦应力达到最大值,以后只会慢慢减少。在弹性近似下,材料极限应变表示为

$$\varepsilon_{\rm th} = \frac{3\sigma_{\rm th}(1-\nu_{\rm i})}{E_{\rm i}(1-\xi)},\tag{23}$$

式中参量 ξ 随激光脉宽减小而降至零。对于长脉冲, $\xi = \xi_{ih} = \alpha_h E_h (1 - \nu_i) / [\alpha_i E_i (1 - \nu_h)]$,这意味着由吸收夹 杂物引起的损伤 $\xi_{ih} \ll 1$,(20) 式没有意义。损伤判据具有(19) 式的形式。这时 α_i 替代 α_h , ε_{th} 由(19) 式定义。对 在石英中含有金属材料的夹杂物, $\xi_{ih} = 0.01 \sim 0.04$;对于非金属材料夹杂物, $\xi_{ih} > 1$ 。在这种情况下,损伤判 据服从固有机制,(23)式中 $\xi = 0$ 。

3.3.2 机械破坏能量判据的讨论

从物理意义考虑,(18)式可以写成另一种形式:考虑到作用区域内的脉冲能量和辐射功率之间的关系 $[E_p = (\sqrt{\pi}/2)I_p\tau_p]$,(18)式可表示为

$$\tau_{\rm p} \geqslant \tau_{\rm cr} \approx \frac{78R^2\gamma}{\eta\theta I_{\rm p}}.$$
(24)

(24)式意味着即使激光强度达到 $I = I_{th}$,如果激光脉宽 $\tau_p < \tau_{cr}$,材料也不会发生破裂,适当条件下会向直接 蒸发过渡。如熔石英的 $\tau_{cr} \approx 50 \text{ ps}$,当 $\tau_p = 20 \text{ ps}$ 时材料碎裂就过渡到挥发。由于飞秒脉冲不是靠热效应先 熔化材料再蒸发,而是靠强场直接蒸发材料,因此用飞秒脉冲进行微加工,其热影响区极小,打出的孔没有毛 刺,加工精度非常高。(24)式的另一个限定是需要有限的局部加热尺寸来满足材料破裂状态发生的条件。 η 决定了被吸收的那部分能量。对于一个球面作用区域 $\eta E_p = \frac{4}{3} \pi R^3 k_a W_p (W_p 为脉冲能量密度),则(24)式可$ 表示为

$$R \geqslant R_{\mathrm{cr}} \approx \frac{10\gamma}{\theta k_{\mathrm{a}} W_{\mathrm{p}}}.$$

(25)

(25)式的物理意义很明确:被吸收的激光能量正比于作用区域体积 R³,破坏能量正比于 R²,当 R 减小时,形成破裂所需能量比吸收能量减少得慢,以至于在很小的光作用区内不能形成破裂。计算表明该临界尺 寸应为亚微米量级。这一结论不仅对夹杂物而且对透明体都适用。因此判据(24),(25)式是独立的,只有同 时满足这两个判据才能发生碎裂。

4 结 论

从材料的热传导方程出发,半定量地讨论了光学材料损伤机理,得出如下结论:

1) 当采用长脉冲(r,为毫秒量级以上)辐照透明材料时,材料最终破坏态是熔化。

2) 当采用超短脉冲(τ_p 为飞秒量级)辐照透明材料时,材料最终破坏态是挥发。

3)当采用脉宽在上述两者之间的脉冲(纳秒至皮秒量级)辐照透明材料时,材料最终破坏态通常是碎裂。

 4)从(24)式得知^[7~13],若辐照激光的脉宽为亚皮秒至飞秒量级,采用固有机制解释激光损伤现象比较 合理(τ_p<τ_{er});若辐照激光的脉宽为纳秒至皮秒量级,则采用夹杂物吸收机制(热爆炸)解释激光损伤现象比 较合理。

5) 材料碎裂状态的形成与激光辐射被吸收的机理无关,无论固有吸收还是夹杂物吸收这个过程是一样的。

本文详细分析了激光损伤形态和激光脉宽的关系,较好地解释了激光脉宽与熔化、破裂及剥离等损伤的 内在联系,对认识透明介质的损伤机理具有一定的参考价值。

参考文献

- 1 John H. Cambpell, Patricia A. Hurst, Dwight D. Heggins. Laser induced damage and fracture in fused silica vacuum windows [C]. SPIE, 1996, 2966: 106~125
- 2 Claude A. Klein. Figures of merit for high enegy laser window materias: thermals lensing and thermal stresses [C]. SPIE, 2007, 6403: 640308
- 3 W. C. O'Neal, D. E. Campbell, S. S. Glaros. Experimental laser fusion devices and related vacuum problems [C]. The Seventh International Vacuum Congress and Third International Conference on Solid Surface, 1977, UCRL-79176
- 4 M. F. Koldunov, A. A. Manekov. Pulse-width and pulse-shape dependencies of laser induced damage threshold to transparent optical materials [C]. SPIE, 1996, 2714: 718~730
- 5 M. F. Koldunov, A. A. Manekov. Efficiency of various mechanisms of the laser damage in transparent solids [J]. *Quantum Electron.*, 2002, **32**(7): 623~628
- 6 M. F. Koldunov, A. A. Manekov. Mechanical damage in transparent solids caused by laser pulses of different durations [J]. *Quantum Electron.*, 2002, **32**(4): 335~340
- 7 M. F. Koldunov, A. A. Manenkov. Recent progress in theoretical studies of laser-induced damage (LID) in optical materials: fundamental properties of LID threshold in the wide pulsewidth range from microseconds to femtseconds [J]. SPIE, 1999, 3578: 212~225
- 8 Duan Xiaofeng, Niu Yanxiong, Zhang Chu. Calculation of laser irradiation effect and analysis of laser induced damage threshold in semiconductor[J]. Acta Optica Sinica, 2004, 24(8): 1057~1061

段晓峰,牛燕雄,张 维. 半导体材料的激光辐照效应计算和损伤阈值分析[J]. 光学学报,2004,24(8):1057~1061

9 Li Yuhua, Ma Fajun, Dai Nengli *et al*.. Ultra-short pulsed laser-induced damage in inorganic silicon materials[J]. *Chinese* J. Lasers, 2007, **37**(7): 1009~1013

李玉华,马法君,戴能利等. 超短脉冲激光对无机硅材料的损伤[J]. 中国激光,2007,37(7):1009~1013

- 10 Niu Yanxiong, Zhang Shulian, Yao Jianquan et al.. Thermal and mechanical breakage induced by high power laser on optical and photoelectric elements[J]. Laser & Optoelectronics Progress, 2007, 44(9): 32~42
- 牛燕雄,张书练,姚建铨等. 高功率激光对光电器件的热-力破坏效应[J]. 激光与光电子学进展,2007,44(9):32~42

11 Huang Feng, Niu Yanxiong, Wang Yuefeng et al.. Calculation of thermal and mechanical effect induced by laser in optical

window materials[J]. Acta Optica Sinica, 2006, 26(4): 576~580

- 黄峰,牛燕雄,汪岳峰等. 光学窗口材料激光辐照热-力效应的解析计算研究[J]. 光学学报,2006,26(4):576~580 12 Duan Xiaofeng, Wang Yuefeng, Niu Yanxiong *et al.*. Analytic calculation and evaluation of thermal and mechanical damage in optical materials induced by laser[J]. *Chinese J. Lasers*, 2004, 31(12):1455~1459
- 段晓峰,汪岳峰,牛燕雄等.激光辐照光学材料热力效应的解析计算和损伤评估[J].中国激光,2004,31(12): 1455~1459
- 13 Li Hao, Geng Yongyou, Wu Yiqun. Progress on inorganic laser thermal lithography materials[J]. Laser & Optoelectronics Progress, 2011, 48(1): 011602

李 豪, 耿永友, 吴谊群. 无机激光热刻蚀材料的研究进展[J]. 激光与光电子学进展, 2011, 48(1): 011602