

光学学报

熔石英元件紫外脉冲激光辐照损伤特性研究进展 综述

杨李茗*, 黄进, 刘红婕, 王凤蕊, 耿峰, 孙来喜, 韩伟, 丁磊, 廖威, 蒋晓东

中国工程物理研究院激光聚变研究中心, 四川 绵阳 621900

摘要 熔石英光学元件在高能量密度的紫外脉冲激光辐照下往往极易出现后表面损伤, 这严重影响了紫外高功率脉冲激光装置的可靠性。综合国内外相关研究进展, 系统阐述了熔石英元件表面在高能量紫外脉冲激光辐照下的损伤特性, 包括典型的初始损伤和损伤增长行为特征, 介绍了熔石英元件表面缺陷的类型、分布特性和紫外脉冲激光诱导损伤的内在机制, 并概述了常用的熔石英表面加工方法与缺陷控制技术。最后, 介绍了熔石英表面缺陷无损检测新技术和抗损伤性能测试技术方面的研究进展。

关键词 激光光学; 熔石英元件; 紫外脉冲激光; 缺陷; 后表面损伤

中图分类号 O437 文献标志码 A

DOI: 10.3788/AOS202242.1714004

Review of Research Progress on Damage Characteristics of Fused Silica Optics under Ultraviolet Pulsed Laser Irradiation

Yang Liming*, Huang Jin, Liu Hongjie, Wang Fengrui, Geng Feng, Sun Laixi, Han Wei, Ding Lei, Liao Wei, Jiang Xiaodong

Research Center of Laser Fusion, China Academy of Engineering Physics, Mianyang 621900, Sichuan, China

Abstract Fused silica optics are highly susceptible to rear-surface damage under irradiation by ultraviolet pulsed laser with high energy density, which seriously affects the reliability of high-power ultraviolet pulsed laser facilities. Comprehensively analyzing the related research progress in China and abroad, this paper systematically expounds the damage characteristics of the surface of fused silica optics under high-energy ultraviolet pulsed laser irradiation, including typical initial damage and characteristics of damage growth behaviors. Subsequently, it outlines the types and distribution characteristics of the defects on the surface of fused silica optics, and the intrinsic mechanism of damage induced by ultraviolet pulsed laser. Then, commonly used surface processing methods and defect control technologies for fused silica are summarized. Finally, an overview of the research progress on new non-destructive detection technologies for defects on the surface of fused silica and damage-resistant performance testing technologies is presented.

Key words laser optics; fused silica optics; ultraviolet pulsed laser; defect; rear-surface damage

1 引言

高能、高功率激光装置中的光学元件不仅在全空间频率尺度的面形指标上面临诸多科学和技术上的挑战, 还要尽可能消除因各种缺陷引发的激光诱导损伤, 以提高激光装置的使用寿命。几乎所有的强激光装置都希望运行在尽可能高的激光能量密度(通量)下并表现出很高的可靠性, 这就对装置中的强光光学元件从材料到制造提出了苛刻的要求。熔石英是一种 SiO_2 的无定型非晶宽带隙光学材料, 相比 K9 玻璃、 CaF_2 和

MgF_2 等光学基质材料, 表现出很好的光学特性、可加工性和性价比, 其最为突出的优势在于具有较大的带隙宽度(约 7.8 eV)、极低的光吸收特性和优秀的化学稳定性。然而, 用于高功率紫外纳秒脉冲激光装置的熔石英元件往往会发生大量无法预测的后表面严重损伤, 且损伤的发展变化规律与其他激光装置有明显的不同。

随着高功率脉冲激光装置的建造和使用的不断升级, 关于熔石英元件在紫外脉冲激光辐照下的损伤特性研究在近 20 年逐步深入。基于能带理论和多光子

收稿日期: 2022-06-16; 修回日期: 2022-08-01; 录用日期: 2022-08-08

通信作者: *lmyang@vip.sina.com

电离等模型计算的结果表明,熔石英元件在紫外脉冲激光下的本征损伤阈值可高达数百焦耳每平方米,实测的体损伤阈值也可达近百焦耳每平方米^[1-2]。然而,在实际应用中发现,熔石英元件表面往往在远低于本征损伤阈值的激光能量(几至十几焦耳每平方米)下发生损伤,尤其是后表面损伤更为严重,这和其他大部分用于强激光装置的光学材料(KDP 晶体、CaF₂、MgF₂ 晶体和钽玻璃等)从材料内部开始的激光诱导损伤有很大差别^[3]。熔石英损伤的另外一个现象是表面损伤的快速增长。在后表面发生初始损伤后,只要后续激光的辐照通量高于某一个特定值,损伤点的尺寸就会随着激光发次的增加表现出指数级的增长趋势^[4-5],这种损伤增长特性也与 KDP 晶体、介质膜等光学材料截然不同。因此,一旦熔石英元件后表面出现损伤,损伤区域将快速增长,这会使得元件的使用性能迅速下降,进而大大降低了激光装置的运行效率和可靠性。鉴于熔石英光学元件较为特殊的紫外脉冲激光诱导损伤现象及其在国家重大工程建造和使用中的特殊价值,开展熔石英表面的紫外脉冲激光诱导损伤研究具有非常重要的意义。

本文在综合调研近 20 年来国内外熔石英紫外脉冲激光诱导损伤大量相关文献的基础上,结合本研究团队在该领域所开展的长期研究工作,从熔石英紫外损伤行为研究着手,分析损伤形貌和损伤发展过程,提出导致损伤的缺陷类型定义,并介绍用于损伤机理研究的紫外损伤动力学发展情况。根据机理研究,材料加工缺陷是当前导致损伤的最主要因素,分析光学加工与缺陷的关系、零缺陷光学制造的新工艺,以及加工后的处理手段与损伤修复手段。最后,介绍几种新型的缺陷检测方法,并讨论最终标定熔石英元件抗激光损伤性能的测试技术。

2 紫外脉冲激光诱导熔石英元件损伤行为特征研究

在特定的脉冲激光辐照下,熔石英元件后表面的损伤和发展通常会经历两个典型的阶段。第一个阶段为初始损伤发生阶段。当存在加工残余缺陷的光学元件后表面局部区域损伤阈值低于激光束辐照通量,或元件在使用过程中因受到环境污染或疲劳效应的影响导致局部损伤阈值退化至激光运行通量以下的情况时,光学元件后表面的缺陷位置处会出现一个损伤坑点。第二个阶段为损伤增长阶段,初始损伤发生后损伤点的尺寸会在后续多发次脉冲激光的辐照下持续快速增长。对于熔石英元件而言,损伤增长的出现意味着元件的使用寿命会快速衰减。综上所述,要透彻了解熔石英元件的激光诱导损伤行为特征,就需要掌握初始损伤和损伤增长两个方面的行为特征。

2.1 熔石英后表面的初始损伤行为特征

熔石英后表面的初始损伤形态、尺度与诱导损伤的激光能量密度、缺陷部位的能量沉积程度和材料的热力学特性密切相关。一般来说公认典型的损伤形貌

有三种类型,如图 1 的扫描电镜图片所示:第一种为箭头所指的亚微米级麻点损伤,尺度基本在 1 μm 以下,开口边缘整齐,内壁光滑;第二种为左侧的蚌壳状损伤,表现为明显的脆性材料机械断裂形貌,损伤坑由石英材料在表面的解离崩脱形成,内壁光滑,尺度一般在 20 μm 以下;第三种类型为右侧的火山型破碎损伤,具有明显的材料熔化中心和边缘脆性材料机械裂纹区,由于伴随着层状材料的剥离,故尺度往往也要大得多。

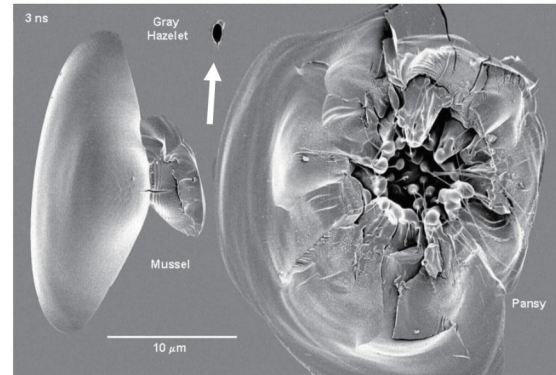


图 1 熔石英光学元件后表面的初始损伤形貌^[6]

Fig. 1 Initial damage morphologies on rear surface of fused silica optics^[6]

本研究团队用 1 on 1 的方式以高于零概率损伤阈值的激光通量(脉冲宽度为 5.6 ns、中心波长为 355 nm 的脉冲激光)对熔石英元件后表面进行辐照,统计了不同通量下初始损伤点的尺度与形态(忽略呈雾斑状的亚微米损伤)。研究结果表明:后表面初始损伤点尺寸在 7~60 μm 之间,平均值为 37 μm;激光辐照通量越高,损伤尺寸的下限值越大。Negres 等^[7]利用 3 cm 光束口径的 OSL(Optical Science Laboratory)激光装置以 1 on 1 的方式在熔石英后表面上制造了一系列初始损伤点如图 2(a)中 LID sites 所示,并以图 2(b)的形式统计了所有初始损伤点的有效直径,结果也表明初始损伤点的分布直径范围与本团队的研究结果相当。由此可以发现,初始损伤的尺度和形态具有统计一致性。图 2(b)中 ECD 为基于损伤坑面积计算的等效直径^[7]。

除以上物理形貌特征外,初始损伤坑内还包含大量的因损伤而导致的熔石英材料化学结构特性变化,如中心熔融区的 SiO₂ 结构晶化、大量非桥键氧(NBOHC)与氧空位(ODC)缺陷的产生,以及材料的稠化与致密化等。图 3 给出了典型的熔石英后表面初始损伤坑中心部位的扫描电子显微镜(SEM)检测形貌。可以发现,SEM 形貌图中存在熔融拉丝与片状层裂特征,初始损伤点的这些破碎物理形貌特征和化学结构特性的转变极大地增强了其对熔石英元件后续激光脉冲的能量吸收,使得熔石英元件的抗损伤性能出现显著下降,并直接导致后续损伤增长过程的发展。

2.2 熔石英后表面的损伤增长行为特征

损伤增长被定义为初始损伤点在后续激光脉冲辐照下损伤坑尺度(横向和纵向)持续扩大的过程。图 4

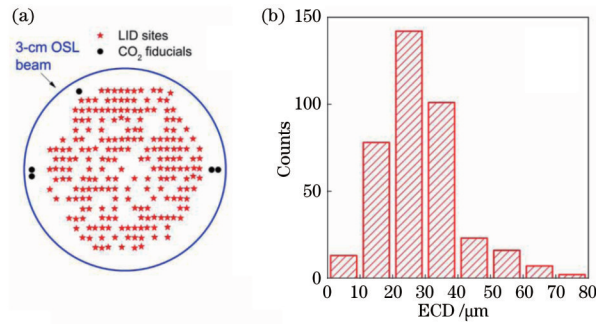


图 2 用 1 on 1 方法形成的元件后表面初始损伤点。(a) 初始损伤点分布情况; (b) 粒径分布

Fig. 2 Initial damage pits on rear surface made by 1 on 1 method. (a) Distribution of initial damage pits; (b) particle size distribution

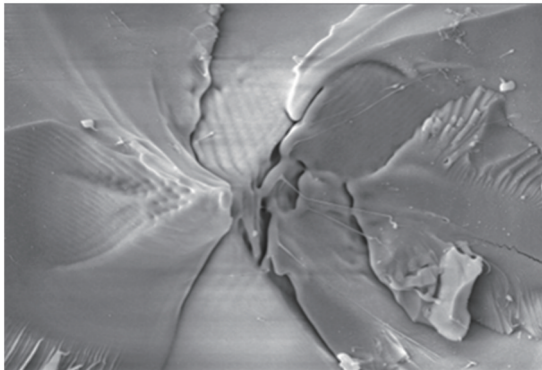


图 3 典型的初始损伤坑热爆中心的 SEM 形貌

Fig. 3 Typical SEM morphology of thermal explosion center at initial damage pit

展示了一个尺度约 30 μm 的后表面初始损伤点在仅 4 个后续激光脉冲辐照下损伤尺度持续增长至约 200 μm 的过程。

损伤增长行为与初始损伤坑的形态尺寸密切相关: 第一种具有光滑侧壁的亚微米初始损伤坑几乎不发生增长行为; 第二种尺度小于 30 μm 的蚌壳状损伤坑的增长行为不稳定, 一般需要较高的能量密度才能引发损伤的增长; 只有第三种类型的破碎型损伤坑表

现出明显的损伤增长行为。这种损伤增长过程只是单纯的损伤坑物理破碎结构和化学结构特性的持续劣化过程, 初始损伤坑与损伤增长坑在物化特性上并无实质差别。图 5 给出了利用 SEM 拍摄的熔石英后表面在紫外激光辐照下出现的典型的损伤增长坑形态。这种损伤形貌在总体上类似于火山坑, 由中心熔融相变区和边缘破碎断裂区组成^[8-10]; 在中心熔融相变区中可见大量的熔融拉丝与节瘤, 材料产生高压致密化; 边缘破碎区呈现出由中心向四周蔓延的层状或片状表面剥裂, 同时伴随着大量的裂纹分布, 证明在激光诱导损伤增长的过程中也存在因热应力和冲击波传输而导致的力学破坏。图 6 给出了巨新^[11]采用同步辐射 X 射线显微断层成像技术获得的熔石英后表面损伤增长坑的横向和纵深分布结构。可以看到: 损伤增长坑中心向体材料内部延伸; 损伤结构中分布着大量密集的坑底孔洞, 最深可达数百微米; 在浅表层上存在沿损伤坑外延伸出数百微米的横向裂纹。相比图 3 所示的初始损伤坑, 损伤增长坑的物理破碎程度和核心区熔融相变程度均明显高于初始损伤坑, 原因一方面是初始损伤坑部位材料机械强度显著下降, 另一方面是初始损伤坑部位对激光脉冲的吸收显著加强, 从而产生了更为显著的激光能量沉积。

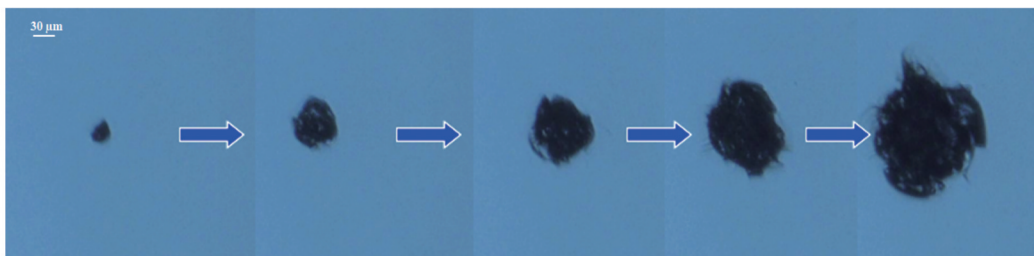


图 4 熔石英后表面初始损伤点的损伤增长过程

Fig. 4 Damage growth of initial damage pit on rear surface

通常采用两个参量表述损伤增长的特征。第一个参量为损伤增长阈值, 其定义为元件发生初始损伤后, 损伤点不产生损伤增长的最大可承载激光能量密度。图 7(a) 给出了针对一系列不同尺度的熔石英后表面初始损伤点损伤增长阈值的测试结果, 其中测试光束的调制度 M 为 1.3、脉冲宽度为 5 ns。结果表明: 对尺寸小于 30 μm 的初始损伤点而言, 损伤增长阈值波动极大, 最低

约为 5 J/cm², 最高可与完好表面的损伤阈值相当, 该结果与小尺度损伤点形貌介于光滑的蚌壳型裂片结构和火山坑破碎结构两种形式间有关; 对于尺寸大于 30 μm 的初始损伤点而言, 损伤增长阈值波动变小, 趋于稳定, 分布范围为 4~6 J/cm²。结合图 7(b) 的损伤增长概率测试结果可以看出, 若通盘考虑所有类型尺度的初始损伤点, 熔石英元件的零概率损伤增长阈值约为 4.5 J/cm²。

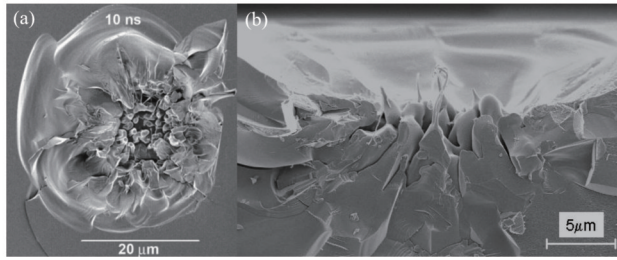


图 5 典型的熔石英后表面损伤增长坑俯视图与侧视图^[9]。(a)俯视图;(b)侧视图

Fig. 5 Top view and side view for damage growth pit on rear surface of fused silica^[9]. (a) Top view; (b) side view

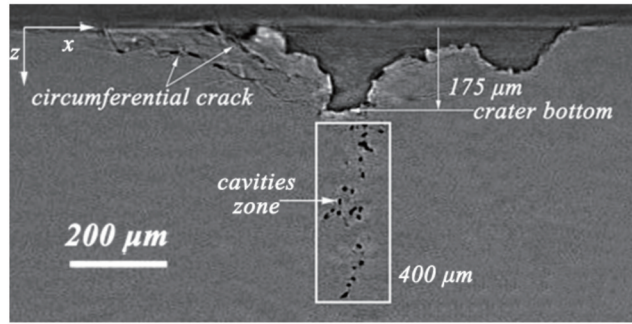


图 6 基于同步辐射 X 射线显微断层成像拍摄的损伤增长坑的横向和纵深分布形貌^[11]

Fig. 6 Transverse and depth distribution morphologies of damage growth pits based on synchrotron radiation X-ray microtomography^[11]

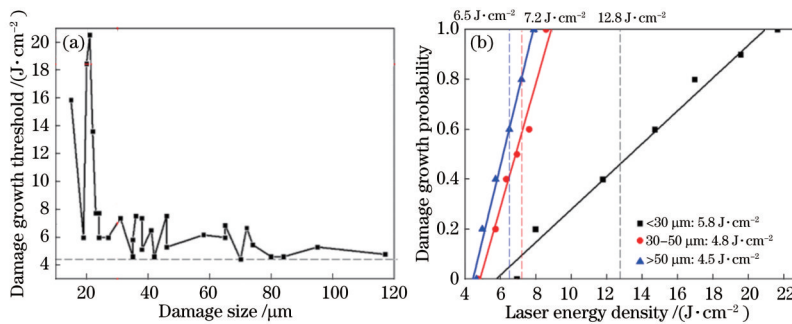


图 7 不同初始损伤点的测试结果。(a)损伤增长阈值;(b)损伤增长概率

Fig. 7 Test results of different initial damage points. (a) Damage growth threshold; (b) damage growth probability

另一个参量为损伤增长因子。当激光脉冲能量密度超过损伤增长阈值时,随着后续激光发次的增加,损伤点的横、纵向尺度将持续增大。损伤增长因子可用于定量描述损伤坑在特定脉冲能量加载下横向尺度的扩张速度。通过在不同能量密度下测试熔石英元件表面初始损伤点尺寸随激光辐照发次的演变规律可发现,熔石英前表面损伤坑尺寸随着激光辐照发次的增加呈线性增长趋势,而后表面则与之明显不同。通过统计特定能量密度的激光脉冲多次辐照下损伤坑面积与激光脉冲辐照发次之间的关系可以看出,后表面损伤坑尺度随着激光辐照发次的增加呈现出明显的指数增长规律,即

$$S = S_0 \exp[a(N - 1)], \quad (1)$$

式中: S 为特定发次的激光脉冲辐照后的损伤点面积; S_0 为初始损伤点的面积; N 为激光辐照发次($N \geq 1$); a 为拟合系数,即损伤增长因子,也就是说,损伤增长因

子将直接决定后表面损伤尺寸的扩张速度。图 8 为熔石英光学元件的前、后表面损伤点尺寸与激光辐照发次的关系^[12],研究结果与本团队给出的结论是一致的。其中, D 为损伤坑尺度, R^2 为拟合度,0.23 为后表面的损伤增长因子。

损伤增长因子直接受到激光辐照通量的影响。利用式 1 拟合出的各个能量密度下熔石英后表面损伤点损伤增长趋势如图 9(a) 所示。图 9(b) 给出了损伤增长因子与激光能量密度的线性拟合结果。可以发现:在熔石英后表面发生初始损伤后,通过降低激光能量密度可直接减小损伤增长因子;当激光能量密度不大于 5 J/cm^2 时,损伤增长因子接近于 0,即损伤将难以增长。综上所述,熔石英元件的损伤增长特性在很大程度上决定了整块元件的使用寿命,故提高元件的抗初始损伤性能和严格控制损伤增长是延长激光系统中熔石英元件使用寿命的两大根本措施。

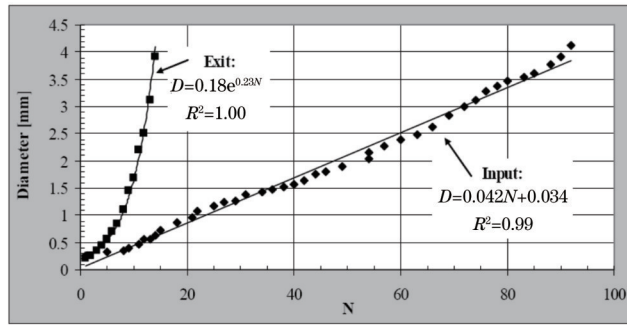


图 8 熔石英光学元件的表面损伤点尺寸与激光辐照次数的关系^[12]

Fig. 8 Size of damage point on surface of fused silica optics varying with laser irradiation time^[12]

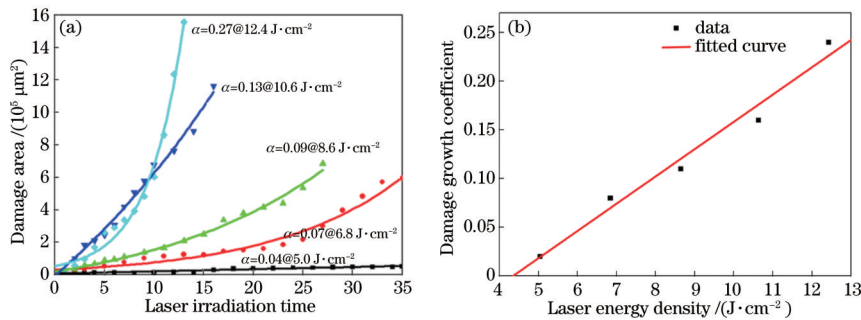


图 9 熔石英后表面的损伤增长特性。(a) 损伤尺度与激光辐照次数的关系；(b) 损伤增长因子与激光能量密度的关系

Fig. 9 Damage growth characteristics of rear surface of fused silica. (a) Relationship between damage area and laser irradiation time; (b) relationship damage growth coefficient and laser energy density

2.3 熔石英后表面损伤喷发的行为特征

熔石英的初始损伤和损伤增长行为是激光与物质相互作用的表象结果,紫外纳秒脉冲激光诱导的熔石英表面损伤是一个超快过程。由于无法进入物质内部观察损伤的发展过程,因此通常采用损伤发生后的纳秒级延时观察手段获取损伤爆炸后的瞬态动力学信息,观察分析爆炸流场的变化、物质喷射和体内应力波传播等,以解释损伤发生的机理和演化规律。

对于熔石英的后表面损伤,采用瞬态阴影成像可以直接对其损伤发生发展的过程进行观察,获得损伤喷发过程中等离子体微爆、冲击波产生与传播,以及材料微喷溅等特征信息。本研究团队和国内外相关研究人员均利用泵浦-探测的时间分辨探测技术对熔石英激光诱导损伤的动力学过程进行了精细的时空分辨研究^[13-16]。对于熔石英后表面的激光诱导损伤爆发直至损伤坑成型这一动态发展阶段,整个过程可持续数百纳秒甚至达到微秒量级,表面损伤部位在损伤发展过程中会先后出现等离子体、冲击波与粒子喷溅等物理现象。不断改变泵浦光和探针光之间的延时可以获得熔石英表面损伤爆发全过程的时间分辨图像。损伤爆发过程始于脉冲激光加载 0 时刻 ($T=0$, 0 时刻的定义为泵浦光瞬时最大光强位置), 结束于脉冲激光加载后 1 ms 左右。本研究团队对损伤全过程进行了侧照明阴影图像分析,将整个损伤爆发过程划分为 4 个阶段,如图 10 所示:第一个阶段为损伤引爆中心区在高温高压状态下形成等离子初爆,可见表面裂纹的初始生长;

第二个阶段是等离子体和熔石英材料气液相变产物的喷射,并开始产生冲击波;第三个阶段是固液相熔石英微颗粒的喷射阶段,喷射出来的颗粒尺寸为微米量级,喷射物的速度约为 2.5 km/s;第四个阶段通常发生在 100 ns 后,由于整个材料体系的温度冷却,故在冲击波、应力等残余力学效应的作用下损伤坑内破碎的大块固相熔石英体材料持续喷溅,最终形成损伤坑点。结合图 6 所示的分布在损伤坑底部的大量孔洞,可以得出,高温高压的等离子体爆炸过程在产生后向高速等离子体喷射的同时,前向的冲击波还导致了体材料内部的撕裂和空洞化,具有前后两个方向同时破坏的特性。

Zhu 等^[15]对损伤喷溅产物进行了收集研究,显微形貌的照片如图 11 所示。收集的喷溅颗粒被划分为 4 类。第一类和第二类颗粒的形貌相似,均表现为液滴状,二者之间的区别为:第一类尺寸更小,表面光滑类球形,可能产生于损伤初期,是熔石英高温熔融中心部位的喷射物;第二类颗粒形状不规则、尺寸稍大且分布不均,估计是出射时温度略有下降,引起材料的黏度增加造成的。第三类和第四类颗粒从形貌上看二者具有明显的机械断裂损伤特征,且尺寸更大,二者的区别为:第三类颗粒可能比较接近损伤中心的熔融区域,进而存在部分液滴状和丝状形貌;第四类片状颗粒物存在明显的平行裂纹。

Demos 等^[17]在 2013 年搭建了一套非常典型的用于损伤增长过程时间分辨研究的泵浦-探测系统,采用脉冲宽度为 8 ns、中心波长为 355 nm 的脉冲激光器作

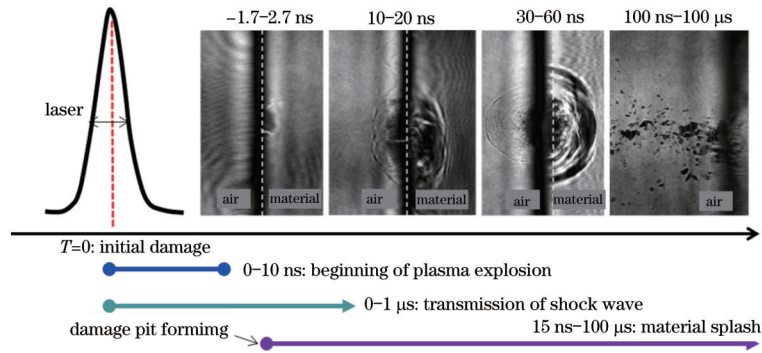


图 10 熔石英后表面损伤爆发过程中的典型物理阶段

Fig. 10 Typical physical stages in rear surface damage eruption of fused silica optics

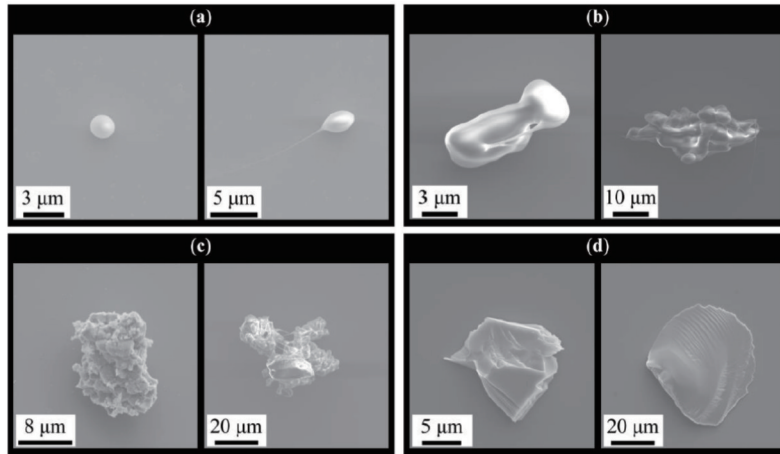


图 11 4 类典型的熔石英后表面损伤喷溅颗粒形态^[16]。(a) 第一类; (b) 第二类; (c) 第三类; (d) 第四类

Fig. 11 Four types of typical damage splashing particles on rear surface of fused silica^[16]. (a) First kind; (b) second kind; (c) third kind; (d) fourth kind

为泵浦光源, 利用中心波长为 532 nm、脉冲宽度为 4.5 ns 的偏振正交双光束探测材料喷发和空气中的冲击波, 并利用中心波长为 532 nm、脉冲宽度为 180 ps 的偏振正交双光束探测样品后表面动力学和材料变化。图 12 展示了基于正面照明阴影成像方式获得的一个损伤增长过程的典型时间分辨成像。在图 12(b)

中可以发现, 损伤点爆发过程中存在冲击波传输和热力耦合效应导致的瞬态裂纹生长。冲击波的速度为 2 km/s, 远低于熔石英内声波的速度。冲击波外延的不规则反映了该冲击波源于不同位置的多个冲击波的叠加, 即表明损伤增长源于初始损伤坑内多点损伤源的共同引爆。

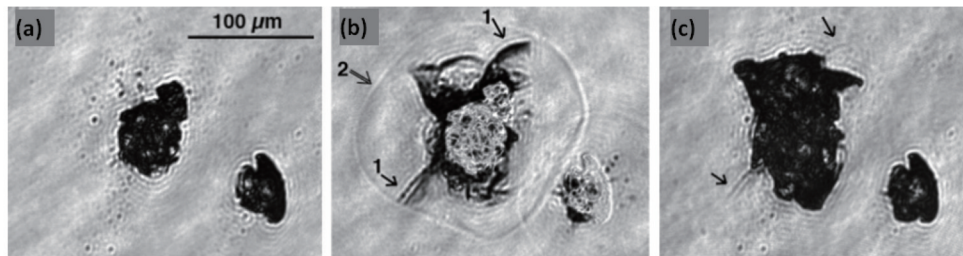


图 12 基于时间分辨成像获得的初始损伤点图像、脉冲作用 21 ns 后损伤点的瞬态图像和终态的损伤增长图像^[17]。(a) 初始损伤点图像; (b) 脉冲作用 21 ns 后损伤点的瞬态图像; (c) 终态的损伤增长图像

Fig. 12 Initial damage point image, transient damage point image after 21 ns pulse irradiation and damage growth image of final state obtained by time-resolved imaging^[17]. (a) Initial damage point image; (b) transient damage point image after 21 ns pulse irradiation; (c) damage growth image of final state

综上所述, 无论是初始损伤的爆发还是损伤增长的爆发, 都可以通过对损伤爆发的动态过程进行时间

分辨剖析来更加深入地了解损伤过程中的热、力耦合效应和冲击相变过程, 从而更加深入地理解熔石英表

面的初始损伤和损伤增长的行为特征。

3 缺陷的分类和紫外损伤动力学研究

3.1 熔石英表面缺陷的定义与分类

现阶段熔石英元件表面的初始损伤几乎都来源于表面微纳米级吸收中心对入射紫外脉冲激光的吸收。元件表面在远低于熔石英材料本征损伤阈值的条件下就发生了损伤,充分说明了微纳米级吸收中心在熔石英表面广泛存在这一客观事实。该现象与熔石英表面上由光学加工过程和使用环境等一系列因素所引起的缺陷密不可分。传统光学加工领域对缺陷的定义主要指麻点、擦痕、开口气泡、破点和破边等,显然这些缺陷在紫外激光辐照下往往会成为损伤的源头,但在实际情况中表面疵病控制得极好的元件在紫外激光加载下也会发生损伤,这就说明针对紫外激光损伤的缺陷需要重新定义和分类。本研究团队根据紫外熔石英损伤研究的特点重新定义了缺陷和分类,新的缺陷分类和定义主要考虑了诱发紫外脉冲激光损伤的特殊损伤机理、缺陷来源、缺陷检测手段和抑制缺陷技术等各方面

因素^[18-20]。紫外激光诱导损伤的缺陷(也被称为功能性缺陷或损伤前驱体)可分为如下三类。

1) 污染性缺陷

该类缺陷指加工导致的元件表面不纯,即元件在加工过程中嵌入或残留在表面和亚表面的污染物或其他杂质元素,一般与加工工具、加工辅料、加工环境和使用环境有关。该类缺陷最常见的是在熔石英表面水解层中残留的和在亚表面损伤(SSD)层的微裂纹中嵌埋着的以氧化铈抛光粉为主的微量金属和非金属杂质,主要元素成分为Ce、Fe、Al、Ca和Mg等^[21],也包括在包装运输和使用中引入的一些有机物成分或损伤喷射自身形成的二次污染物。该类缺陷的能级带隙极窄,很容易成为紫外激光的光吸收中心,故通常被认为是一种极易产生损伤的前驱体。早在2005年,Neauport等^[22]就已经开展了熔石英表面抛光残留的金属杂质对抗损伤性能的影响研究。研究表明,抛光再沉积层中Ce、La的浓度与熔石英表面的损伤密度有直接的相关性,这类污染性缺陷会在几个焦耳每平方厘米的低能量密度下引发熔石英的表面损伤,如图13所示。

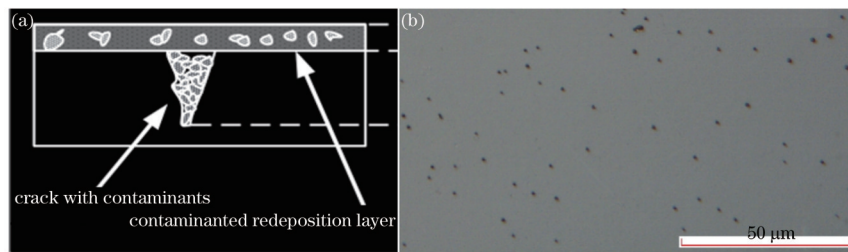


图 13 熔石英元件表面污染性杂质缺陷分布示意图及其引起的表面高密度损伤坑。(a)污染性杂质缺陷分布示意图;(b)污染性杂质缺陷引起的表面高密度损伤坑

Fig. 13 Distribution of contamination impurity defects on surface of fused silica optics and surface high-density damage pits caused by them. (a) Distribution of contamination impurity defects; (b) surface high-density damage pits caused by contamination impurity defects

2) 破碎性缺陷

该类缺陷是宏观上可观察到的物理结构破坏,即元件在加工过程中形成于表面或亚表面上的划痕、麻点、微裂纹和微坑等具有脆性材料破碎特征的缺陷。

传统光学中的表面疵病和亚表面损伤都属于这一类缺陷^[23-24]。该类缺陷通常广泛存在于熔石英加工表面上,也是一种较低阈值的损伤诱导前驱体。图14给出了熔石英表面典型的几种破碎型划痕的形貌特征。

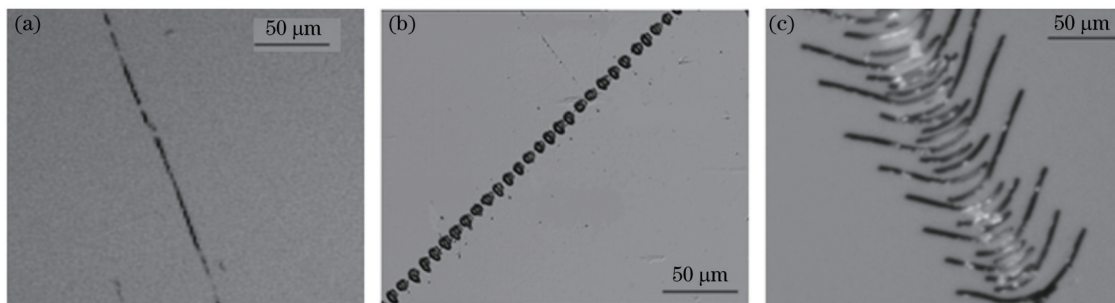


图 14 熔石英表面典型的破碎性划痕形貌。(a)线形连续划痕;(b)间断式坑状划痕;(c)燕尾形划痕

Fig. 14 Typical scratch morphologies on surface of fused silica. (a) Linear continuous scratch; (b) disconnected pit scratch; (c) hertz scratch

破碎性缺陷对熔石英激光损伤的影响首先表现在调制激光光场所引发的局域场增强,最高可增强10.2~27.0倍^[25]。其次,熔石英破碎位置的Si—O键

被打开,形成非桥键氧(NBO)型缺陷,并与镶嵌在破碎结构中的其他杂质缺陷形成纳米级缺陷复合体或空位团,缺陷密度显著增加,故极容易引起紫外吸收的增

强。此外,破碎型缺陷的存在也使得熔石英元件表面的断裂强度显著下降。本研究团队基于实验手段研究了熔石英后表面各类划痕的激光诱导损伤阈值^[26]。结果表明,无划痕的熔石英基底损伤阈值为 8.7 J/cm^2 ,而线形连续划痕和间断式坑状划痕的最高损伤阈值仅为 5.0 J/cm^2 左右,可见熔石英后表面划痕可将熔石英表面的损伤阈值降低 40% 以上。

3) 结构性缺陷

该类缺陷是微观上 SiO_2 的化学结构破坏,如加工

中由作用力而产生的浅表层材料挤压移动,虽然未发生破碎,但是存在分子键变异而产生的亚能级状态,或出现微应力、氧缺位、悬挂的羟基等表现^[27]。图 15 为采用纳米压痕仪产生的表面材料挤压形貌和快荧光信号,以及受挤压区域的损伤现象,该缺陷属于非常典型的材料结构性缺陷^[28]。目前正常抛光的熔石英表面虽然存在这类结构性缺陷,但是其通常被归属于具有较高损伤阈值的缺陷范畴内。

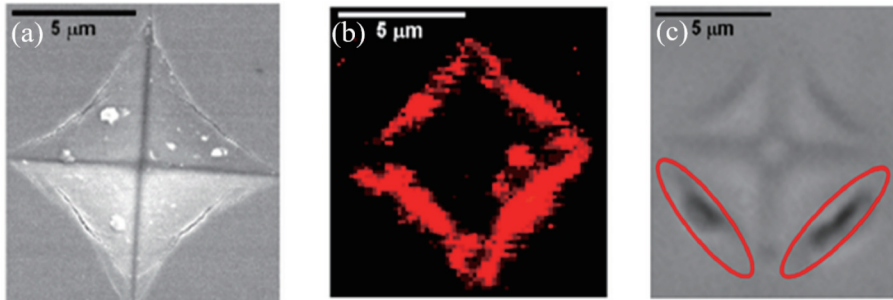


图 15 熔石英表面化学结构缺陷及其诱导的激光损伤^[28]。(a) 0.5 N 压痕仪制造的塑性压痕;(b) 塑性压痕的快荧光信号;(c) 化学结构缺陷诱导的激光损伤

Fig. 15 Chemical structure defects on surface of fused silica and laser damage induced by them^[28]. (a) Plastic indentation produced by 0.5 N indentation meter; (b) fast fluorescence signal in plastic indentation; (c) laser damage induced by chemical structural defects

不同的研究角度可以对缺陷有不同维度的定义和分类。面向紫外激光诱导损伤机理研究所构建的三类缺陷定义,有利于对紫外损伤机理的认识,还有利于对应的光学加工工艺的改进。

3.2 熔石英紫外损伤动力学和基本热爆模型

在对熔石英紫外损伤行为和形貌进行全面观测,以及对诱导损伤的缺陷进行分类和定义后,为了便于系统性开展熔石英表面的损伤机理研究,本研究团队提出了熔石英元件紫外损伤动力学研究的概念。紫外元件损伤动力学的主要研究内容包括光学元件在紫外激光照射下损伤的起源、发展、材料效应和控制方法。损伤的起源和发展研究是在原子水平上对损伤过程中的材料结构、电子结构和形貌变化进行表征,厘清损伤起源的多种过程和种类,发现初始损伤和损伤发展的规律,建立损伤起源和发展模型,特别对材料制备和光学加工制造过程中导致损伤的因素进行分类研究,预测元件的工作状态,提出改善方向和途径。材料效应研究着重研究微观结构变化导致的宏观光学性质变化间的关联,以及材料热熔化、热爆和喷溅的动力学过程与元件失效的关联。控制方法研究则是在元件状态预测的基础上,先确定元件在材料制备和光学加工过程中的初始损伤控制因素和方法,再建立合适的元件工作状态与损伤发展参数间的关联,最终选择元件的缺陷控制节点和相关技术建立判断元件的失效标准。

国际上对脉冲激光诱导损伤的内在机制开展了大量的理论研究。Hopper 和 Uhlmann^[29]首先提出了包裹物小球吸热损伤模型,该模型假设材料中存在多种类型的纳米吸收杂质,这些杂质在吸收激光能量后温度迅速升高,进而导致材料发生熔化或气化,并且热力

耦合会引起周围基质材料的损伤。为了解释损伤发生过程中的冲击波等实验现象,人们在小球吸热模型的基础上又引入了等离子体火球热爆炸的概念^[30],认为缺陷吸收激光能量后温度升高会引起材料的熔化、气化并离化,形成等离子体。等离子体火球进一步吸收激光能量,导致等离子体膨胀,最终发生微爆炸。微爆炸形成了冲击波,冲击波会对材料产生冲击破坏和机械破坏,导致裂纹产生,进而形成材料剥离和物质喷射。

Sadigh 等^[31]进行了基于第一性原理的分子动力学计算,计算了如图 16 所示的石英玻璃在不同温度下的电子态密度,证明了温度升高可导致吸收带边红移,且当达到一定温度时,材料的带隙会变窄从而可能对紫外激光产生直接吸收。此外,这种基质材料本身产生的吸收会形成如图 17 所示的吸收波面,该吸收波面会随着后延脉冲能量的持续沉积而不断从缺陷中心沿着元件表面纵深扩展,最终使得光学表面在缺陷周围发生损伤^[32]。

在实验验证方面,Saito 和 Ikushima^[33]在熔石英的冲击加热实验中,通过动态反射光谱的检测发现,当温度高于 5000 K、压力超过 70 GPa 时,熔石英表现出明显的吸收,这个结果对于失控吸收的理论模型是一个很好的支撑依据。

基于上述的损伤机制和模型的研究,熔石英元件紫外激光诱导损伤的全过程物理图像已经比较清楚,可简要表述如下。熔石英元件在制备加工过程中表面和亚表面上引入的各种缺陷会构成元件表面的初始态,在紫外纳秒激光加载过程中表现为缺陷吸收脉冲激光能量使得材料体系升温。该现象的本质为在缺陷

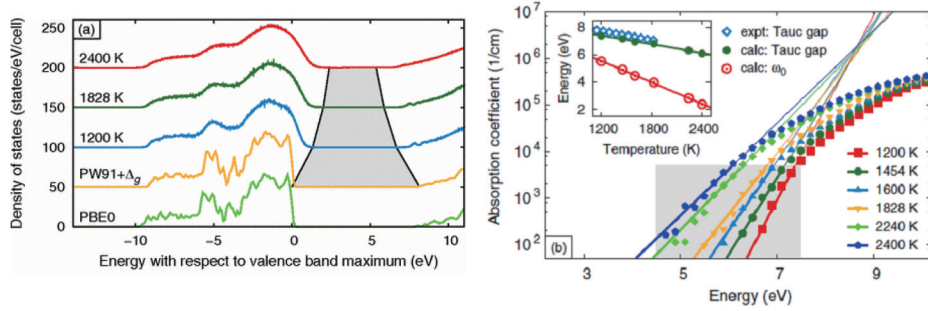


图 16 不同温度对熔石英带隙和吸收系数的影响^[31]。(a)熔石英带隙;(b)吸收系数

Fig. 16 Influence of different temperatures on band gap and absorption coefficient of fused silica^[31]. (a) Band gap; (b) absorption coefficient

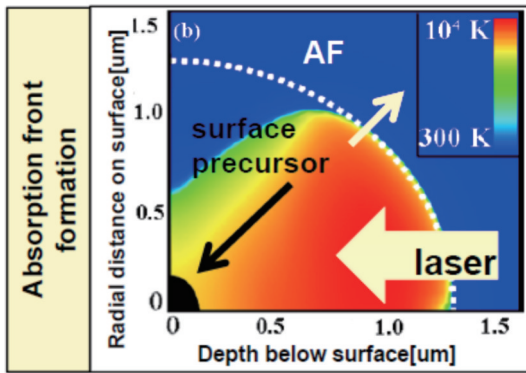


图 17 用于解释熔石英损伤起始过程的吸收波前模型^[32]

Fig. 17 Absorption wavefront model for damage initiation of fused silica^[32]

能级的辅助下,价带电子吸收光子能量跃迁至导带,从而产生自由电子,电子通过晶格碰撞或电子-声子相互作用而产生热,使得缺陷周围的基质产生温升,温升可以使得熔石英的带隙窄化,进而产生吸收带边的红移。当温升达到临界值后,熔石英基质材料开始吸收后续激光脉冲的能量,导致以缺陷为中心的吸收区域膨胀,从而使得缺陷周围的材料体系在一个极短的时间范围内以极快的速度升温。当温度达到熔石英材料的热力

学耐受极限时,损伤开始发生,随后损伤引爆核心点经过一系列热力学过程进一步发展而形成损伤最终态(损伤坑或损伤点)。因此,熔石英的纳秒脉冲激光诱导损伤具有跨时空尺度(时间上为皮秒至毫秒量级,空间上为纳米至微米量级)的特点,并且在损伤过程中伴随一系列复杂的物态变化。图 18 给出了损伤诱导事件的时间线假想模型^[33]。图 19 给出了熔石英元件纳秒激光诱导损伤的动力学全过程描述。

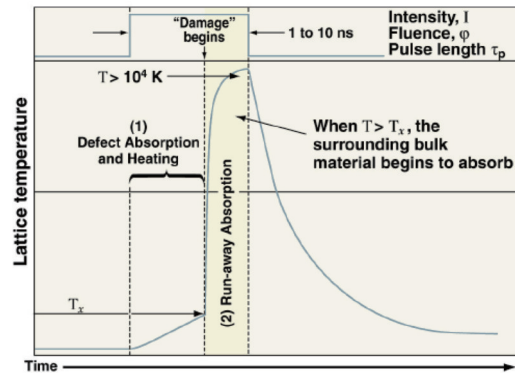


图 18 激光诱导损伤事件的时间线假想模型^[33]

Fig. 18 Hypothetical time line model for laser-induced damage events^[33]

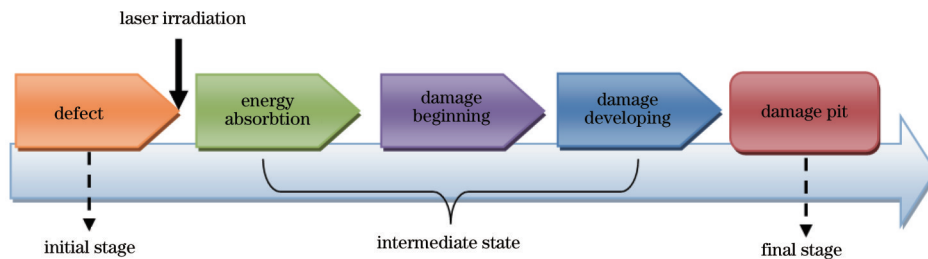


图 19 熔石英元件纳秒激光诱导损伤的动力学全过程

Fig. 19 Kinetic process of nanosecond laser induced damage in fused silica optics

3.3 熔石英紫外损伤行为的动力学解释

基于对熔石英损伤机理的认知与解读,可以帮助人们更好地理解熔石英元件在紫外脉冲激光加载下一些特有的损伤行为特征,比较主要的现象有如下几例。

1) 熔石英后表面损伤要比前表面严重得多

在紫外脉冲激光辐照下,熔石英元件的后表面(激光出射面)往往比前表面(激光入射面)更加容易损伤,这种表面损伤的不对称性可以从脉冲激光诱导前、后

表面初始损伤与损伤增长的行为差异予以解释。

首先在光传输上,当光从光疏介质传输到光密介质时,其反射波会经历一个 π 的相移,而当光从光密介质传输到光疏介质时,反射波没有相移。利用菲涅耳等式并代入熔石英材料的折射率可计算出脉冲激光加载过程中熔石英后表面的电场强度约为前表面的 1.42 倍,这就意味着光束经过熔石英材料传输后,其后表面界面上承受的实际场强明显高于前表面,故对于本来具有相同损伤阈值的两个表面,前表面体现出来的初始阈值要比后表面高约 1.4 倍。

此外,在损伤发生过程中,后表面的初始吸收中心所产生的吸收波前迎着激光方向往材料体内发展,直到在一定深度处形成极高温度的等离子体爆炸点。然

而,前表面的初始吸收中心所产生的吸收波前会由浅表层往表面发展,进而很容易在表面打开缺口并释放能量。因此,对于前后表面相同的损伤前驱体所形成的损伤爆炸,后表面往往会更加猛烈,形成更大的损伤坑。

同样的原因会使得后表面上的初始损伤坑在后续的激光辐照下不断发生损伤增长,并且损伤发生的后向喷射会导致二次污染,进而增加新的损伤点。这就意味着前表面上的损伤点发生损伤增长的因子会小很多。因此,往往能够看到对于同样加工质量的前后表面,后表面上的损伤密度、强度都远高于前表面。图 20 所示的等离子体火球爆发模型中直观地展示出了前后表面的这种损伤差异。

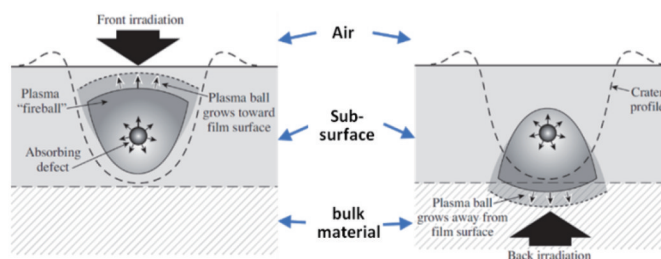


图 20 光学元件前后表面损伤诱导等离子体火球的能量释放差异^[30]

Fig. 20 Difference of energy release of plasmonic fireballs induced by damage of input and rear surfaces of optics^[30]

2) 初始损伤的形貌会有完全不同的类型

第二章中讨论了熔石英初始损伤的三种形貌类型,发现初始损伤的形貌表现出完全不同的尺寸和结构。根据热爆动力学模型,并结合缺陷预埋设实验结果,分析可知第一种损伤形貌类型发生于表面之下极浅深度存在的纳米金属或金属氧化物杂质颗粒中^[34-35],在紫外激光辐照下纳米金属或金属氧化物杂质颗粒会迅速升温。由于在很浅的表面,故只要热吸收中心温升超过 1200 K 就能形成亚微米熔融缺口,从而导致杂质颗粒逃逸。第二种损伤形貌和第三种损伤形貌形成的机理本质上是一样的,都是在一定的表层深度之下存在一个热爆中心,区别在于第二种损伤的热爆点力量比较小,仅形成了熔石英表面的结构断裂,而第三种则发生了猛烈的热爆炸、材料喷发和液化材料冷却凝固过程。造成这种热爆力量不同的原因可能比较复杂,既有初始缺陷中心深度不同导致热爆需要克服的机械损伤强度不同的原因,也有不同发次激光通量密度和脉冲宽度不同的原因。

3) 初始损伤阈值各不相同而认为损伤增长阈值基本一致

国内外针对熔石英表面损伤增长特性的测试结果均表明,熔石英后表面的损伤增长阈值几乎一致地分布在 $(5 \pm 1) \text{ J/cm}^2$ 之间,且几乎不会受到表面初始损伤阈值的影响,具有较好的恒定特性。

初始损伤阈值与损伤前驱体的缺陷位置深度和富集程度有关,故其各不相同比较容易理解。损伤增长特性上的一致性可以从损伤坑造成的表面损伤瓶颈效应来理解。与熔石英表面微纳米尺度的初始缺陷相

比,损伤坑部位的熔石英表面物化性能产生了急剧劣化,典型的后表面损伤坑分布特性如图 21 所示:在损伤坑的中心熔融区中,材料出现相变(硅氧配位、化学键架构失调、晶化和稠化等),这种变化破坏了熔石英材料原本的宽带隙特性,导致紫外吸收的显著增强;在外沿扩展崩裂区中,入射激光在该区域中会出现反射、衍射、散射和干涉等多种复杂的光调制因素,从而导致局域峰值光场显著增强。由于这种火山口状损伤坑内完全以破碎型缺陷和结构性缺陷为主,故内部不存在污染型缺陷,这就决定了损伤坑内部对入射激光能量的沉积效应没有显著区别。

其次,熔石英材料的热力学效应耐受特性也会对损伤增长阈值造成影响。这种耐受特性集中体现在材料的断裂强度和热稳定性方面,均直接与熔石英材料的本征力学、热学特性相关,而当前市面上的合成熔石英材料均具备基本一致的热力学特性,这就决定了在后表面损伤坑同类型的前提下,熔石英元件的损伤增长阈值不会产生本质的差别。

4 熔石英的表面加工与缺陷控制技术

4.1 熔石英表面的超精密加工技术

熔石英材料因其优秀的光学性能,故被大量用于高等级光学系统中。在高功率脉冲激光装置的终端三倍频系统中,各类透射元件均采用了熔石英材质。典型的光学元件加工经历成形、精磨和抛光的过程,每一道工艺都要满足在上一道工艺基础上的面形收敛、粗糙度降低和缺陷控制的要求,故一般规划的制造流程如图 22 所示。

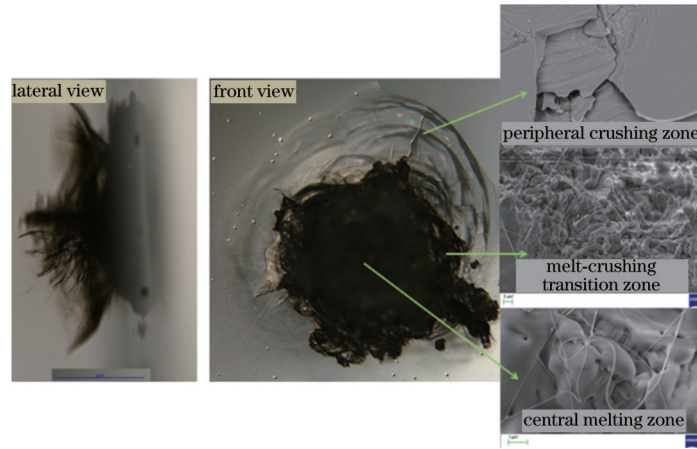


图 21 熔石英后表面典型的损伤坑分布特性

Fig. 21 Typical distribution characteristics of damage pits on rear surface of fused silica

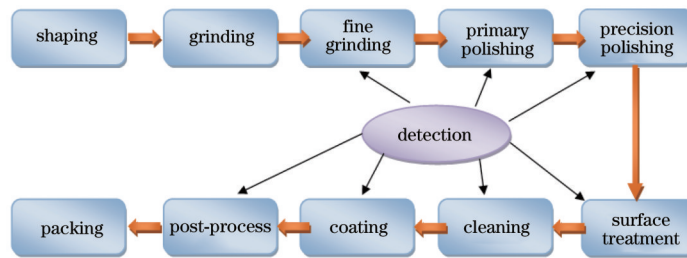


图 22 熔石英元件表面的加工制造流程

Fig. 22 Fabrication flow of surface of fused silica optics

用于成像系统的光学元件的要求比较侧重于元件面形精度,近红外高能激光器中的光学元件主要侧重于超低的表面粗糙度和表面缺陷的控制。然而,由于熔石英材料在紫外高功率辐照下的特殊损伤机理,故该类装置中的光学元件在全流程的工艺设计和控制技术上有别于其他元件的流程,在对表面面形、粗糙度和收敛效率同样关注的同时,需要对表面缺陷/亚表面损伤进行全流程的特别控制和后续处理,特别是对亚表面损伤结构和存在于水解层中的污染吸收物的控制尤其重要。由于成形和研磨工序是亚表面损伤的主要产生阶段,因此在散粒磨料工艺中,采用粒径一致性高的磨料非常重

要。同时,在每道砂的去量设计上,需要准确测量判定粒径与产生亚表面损伤层深度的关系,且后一道砂的去量以消除前一道砂残余亚表面损伤层的厚度为原则。图 23 为采用磁流变击坑法测量研磨工序亚表面损伤层深度的工艺过程。在研磨过程中适当加入氢氟(HF)酸的酸洗工艺,可以缓解熔石英微裂纹的应力和钝化裂纹结构,增加亚表面损伤层的收敛效果。另一种方案是采用固着磨料研磨法,其颗粒的粒径一致性更高、粒度更小,由于采用极高的磨削线速度,故可以大大降低熔石英材料中脆性裂纹的数量,增大塑性去除行为的次数,获得厚度小于 10 μm 的亚表面损伤层。

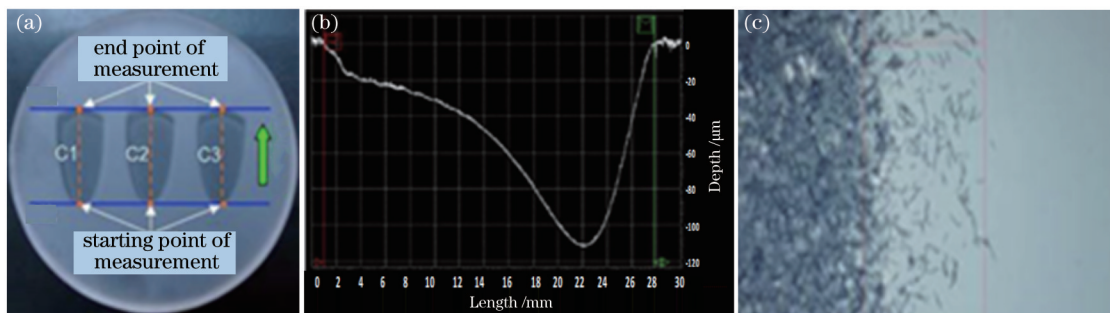


图 23 磁流变击坑法观察研磨工序亚表面损伤层结构的工艺过程。(a)磁流变击坑;(b)磁流变坑深度轮廓;(c)显微镜观察到的亚表面损伤

Fig. 23 Process of observing subsurface damage layer in grinding process by magnetorheological pit method. (a) Magnetorheological pit; (b) depth profile of magnetorheological pit; (c) subsurface damage observed by microscope

与传统初抛的去除砂眼、收敛面形功能相比,紫外熔石英元件加工流程中初抛光的一个重要工艺目标是尽可能去除研磨阶段的亚表面损伤结构。因此,常规的做法是精确测量进入初抛工序的工件表面残余亚表面损伤层的深度,并且适当增加安全系数,将二者作为初抛光去除量的参数。或者在初抛后期增加 HF 酸表面刻蚀,通过观察亚表面损伤的残余量来判断后续初抛的去除量。

传统光学抛光工艺,由于其自身的去除机理和运

动模式,故即使在精密数控小磨头抛光阶段,稍有抛光粉粒径、抛光沥青质量和环境洁净方面的不足,仍旧会产生亚表面损伤结构。同时,该结构会被掩盖在水解层下面,进而难以发现^[36]。图 24 就是工艺条件控制不够好的数控抛光亚表面缺陷照片,从划痕轨迹可以判断该缺陷为数控小磨头运动轨迹。因此,为实现严格控制抛光阶段的亚表面损伤结构,需要引入新的抛光去除机制。

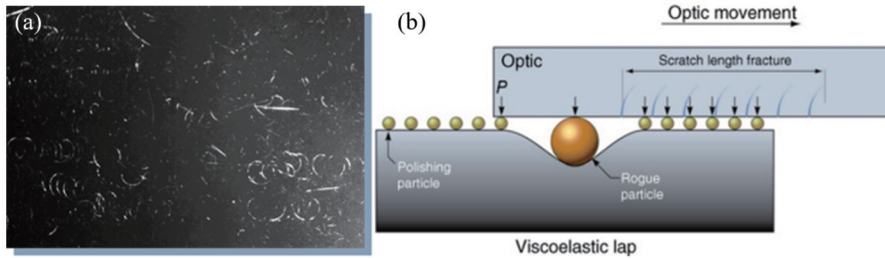


图 24 小磨头抛光后的亚表面缺陷图和缺陷产生机理分析^[36]。(a)数控抛光后的亚表面缺陷图;(b)缺陷产生机理分析

Fig. 24 Subsurface defect diagram after small tool polishing and mechanism analysis for defect generation^[36]. (a) Subsurface defect diagram after small tool polishing; (b) mechanism analysis for defect generation

抛光过程产生亚表面损伤的主要原因是抛光颗粒中的异常颗粒^[37-38],这些具有明显较大粒径的抛光颗粒夹在工件与抛光盘之间产生了较强的局部法向载荷力,导致抛光表面水解层下出现脆性断裂或较大的塑性形变。由于绝对地控制抛光液中的异常颗粒几乎是不可能的,因此通过改变抛光作用力的加载方式,既保持了去除的有效性,又可避免出现局部作用力过大而产生脆性断裂。第一种技术思路是大大降低抛光颗粒与工件之间的法向载荷作用力,依靠较高速度的切向运动使得抛光颗粒与工件表面形成剪切作用力实现低缺陷/零缺陷抛光。典型的工艺方法有磁流变抛光

(MRF)^[39-41]和弹性发射抛光(EEP)^[42-43],二者的原理图如图 25 所示。前者利用一个可流动、由磁场硬化的磁流变抛光液条带作用在工件表面上形成子口径抛光工具。由于磁流变技术具有去除函数重复性好、与工件表面贴合能力强和无新增的抛光划痕缺陷的优势,因此很早就被用于紫外抗激光损伤元件的加工中。弹性发射抛光是一种流体动力学模式下的子口径抛光技术,典型的 EEP 使用旋转的聚氨酯球体作用在浸润于抛光液中的工件表面,界面的间隙极小(约为 1 μm)。抛光液以非常高的剪切速率经过界面,形成剪切作用,从而形成零损伤缺陷的表面抛光。

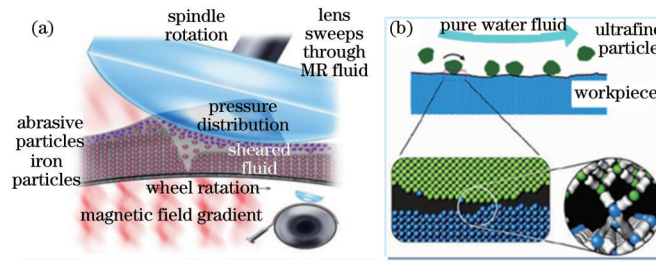


图 25 磁流变抛光和弹性发射抛光原理图。(a)磁流变抛光;(b)弹性发射抛光

Fig. 25 Schematic diagrams of magnetorheological polishing and elastic emission polishing. (a) Magnetorheological polishing; (b) elastic emission polishing

另一种技术思路是无抛光盘抛光,抛光颗粒在外的作用下直接作用于工件表面,进而达到去除的效果。典型的工艺方法有离子束抛光^[44-46]和射流抛光^[47-49]等,二者的原理图如图 26 所示。离子束抛光是在真空环境中通过离子源加速离子束流以原子轰击产生溅射或发生化学反应实现工件表面材料去除的。这是一种非接触式的去除作用模式,不存在因异常颗粒而导致的亚表面损伤。在射流抛光中,将水和抛光颗

粒的混合液按一定角度、射速和间隙距离从喷嘴射到工件表面上,通过控制射流速度使得每个颗粒造成的载荷低于熔石英脆性断裂强度,仅形成纳米塑性去除。这两种方法虽然都存在法向颗粒撞击作用,但是由于作用力可控,故均不会形成脆性断裂缺陷。

4.2 熔石英的表面后处理缺陷再抑制技术

光学抛光工艺的改进和各种新型抛光技术与设备的应用都是瞄准抛光阶段彻底去除研磨过程留下的微

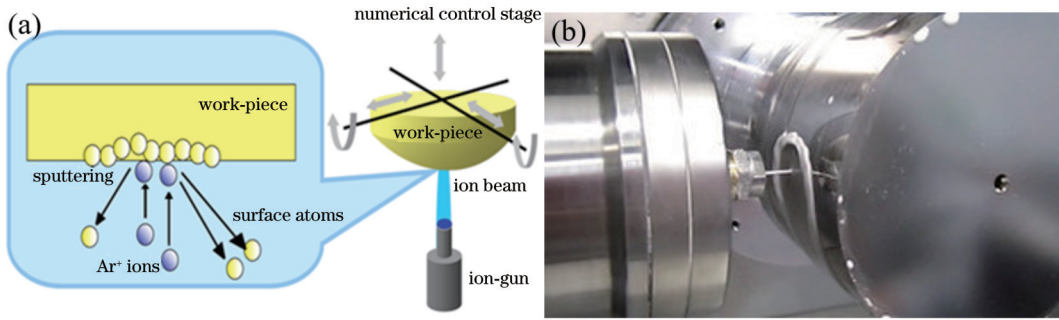


图 26 离子束抛光和射流抛光原理图。(a)离子束抛光;(b)射流抛光

Fig. 26 Schematic diagrams of ion beam polishing and jet polishing. (a) ion beam polishing; (b) jet polishing

裂纹结构和避免抛光阶段因抛光液中异常颗粒导致的加工划痕等缺陷。因此,现阶段经过工艺改进和优化的制造流程加工的光学元件出现表面破碎性缺陷的概率大大下降,甚至达到了表面无光学检测可以观察到破碎性缺陷的程度。

然而,即使达到了零表面缺陷的加工水平,依旧没有达到抑制紫外激光损伤的要求。这是因为从紫外损伤缺陷的分类来说,还存在着各类污染性缺陷,如:采用小工具抛光的表面存在极少数的亚表面损伤和水解层污染层;采用磁流变抛光的表面存在氧化铈的水解层和羰基铁成分;采用离子束抛光的表面存在表面层结构性缺陷等。为了进一步提高抗激光损伤特性,引入不同于前述以改进物理去除机制为主的新型后处理技术——一种以化学反应和流体输运为主要去除机制的动态化学刻蚀技术。最终,该技术可以实现彻底去除含有抛光粉成分的水解层和进一步去除可能存在的极少量破碎结构,进而显著改善抗激光损伤的能力。

1) 动态化学刻蚀技术

动态化学刻蚀(DCE)不属于光学制造主工艺,但已成为强光光学元件制造流程中极为重要的辅助工艺。事实上美国劳伦斯·利弗莫尔国家实验室(LLNL)早在2001年就已经意识到,任何形式的表面加工(包括传统机械抛光和磁流变抛光)均不可避免地会引入表面缺陷。对于前者而言,出现的缺陷为亚表面损伤。后者虽然可以大幅度减少亚表面损伤,但是又难以实现对污染性缺陷的有效控制,在这种情况下,为达到近乎苛刻的缺陷控制水平,必须要采取进一步的表面后处理措施。2007年,美国LLNL的研究人员发展了一种先进的表面动态化学刻蚀技术,被称为先进缓解处理(AMP)^[50-51],其实质是针对熔石英抛光表面的缺陷分布特点,建立一整套严格的表面化学刻蚀和超洁净清洗流程组合,从而逐级去除元件表面(亚表面)的各级微介观缺陷。AMP主要工艺流程及技术原理如图27所示。

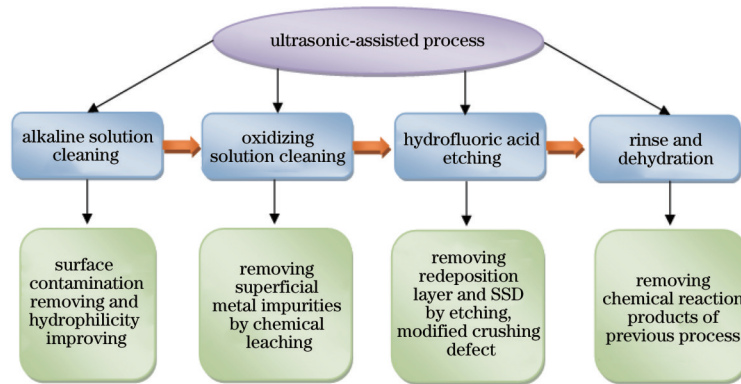


图 27 AMP 工艺流程及技术原理图

Fig. 27 Diagram for technological process and technical principle of AMP

该后处理工艺的最大特点是采用高频超声波辅助对熔石英表面进行一定深度的化学刻蚀,同时配合高纯喷淋漂洗工艺大幅度强化了对化学反应生成的二次污染物的输运^[50]。在一定深度的化学刻蚀下,熔石英表面富含污染性缺陷的再沉积层被去除,亚表面的物理破碎性缺陷被充分暴露并得到了极大程度的钝化和匀滑,这大幅度减少了对紫外光的调制和吸收。实际应用证明,AMP工艺可以大大提高熔石英后表面的损

伤阈值,降低激光损伤的面密度。美国LLNL在2009年成功地利用该项技术将12 J/cm²通量下大口径熔石英元件的损伤密度降低为原来的1/100,目前国家点火装置(NIF)中75%的熔石英透镜均已采用了这一工艺。AMP处理的不同阶段对微裂纹形态尺度的影响和内部二次污染产物(SiF₆²⁻)的输运效果模拟如图28所示。

本研究团队根据自身实际工艺水平,独立发展了

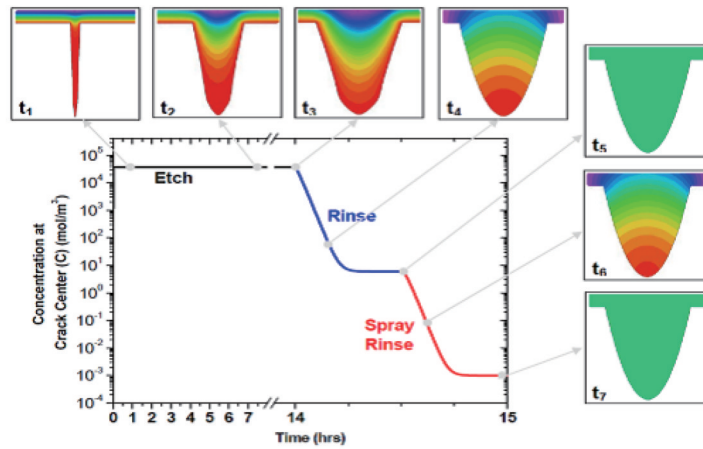


图 28 AMP 处理的不同阶段对微裂纹形态尺度和内部二次污染产物 (SiF_6^{2-}) 的运输效果模拟^[50]

Fig. 28 Simulation of microcrack morphology scale and transport effect of internal secondary pollution product (SiF_6^{2-}) in different stages of AMP treatment^[50]

一套碱性清洗与 HF 酸兆声辅助刻蚀相结合的 AMP 技术^[52-53], 成功抑制了加工后残余的表面缺陷, 熔石英元件可在 $10\sim 12 \text{ J/cm}^2$ 光通量、 351 nm 中心波长、 3 ns 脉冲宽度的激光辐照下实现近乎零损伤。然而, 当紫外脉冲激光束的运行通量超过 $15\sim 20 \text{ J/cm}^2$ 时, 另外几类高通量的损伤诱导缺陷(高通量损伤前驱体)也逐渐浮出水面。Bude 等^[54]的研究结果进一步表明, 虽然通过 AMP 可以去除熔石英表面低阈值的金属杂质, 但是在更高的紫外激光通量运行水平(光通量大于 20 J/cm^2 , 脉冲宽度为 $3\sim 5 \text{ ns}$)下, 原本对紫外激光并不会产生直接吸收的无机盐类(Na 、 K 、 Ca 、 Mg 等元素的化合物)会成为新的损伤诱导前驱体, 进而会在高激光通量水平下限制熔石英元件的抗损伤性能。这类痕量无机盐类缺陷通常是 AMP 处理过程中残留的二次污染产物, 呈高密度 ($>10^5 \text{ cm}^{-2}$) 离散均布, 尺度为

100 nm 量级, 难以被常规的缺陷检测手段检测到, 可能的来源是 AMP 高纯水中的阳离子 (K^+ 、 Ca^+ 、 Na^+ 、 Mg^+) 与阴离子 (Cl^- 、 F^- 、 SiF_6^{2-}) 结合形成不溶性痕量沉淀物。虽然这类结合产物具有较高的带隙, 但是这种结合产物仍能产生类似金属的紫外吸收, 并导致高通量激光辐照下损伤的出现。图 29(a) 为 AMP 过程中形成的无机物沉淀的显微形貌。图 29(b) 表明该类杂质具有明显的快荧光成像特性, 而快荧光被认为是损伤前驱体的重要特征。图 29(c) 为该缺陷区域在激光辐照后诱发的损伤形貌, 损伤分布与缺陷分布区域完全一致。图 29(d) 为损伤增长后形成的大尺度损伤坑。图 29(e) 给出了不同类型无机化合物的损伤阈值。同期, Baxamusa 等^[55]的研究结果也进一步表明, 化学刻蚀过程中残留的痕量有机物同样可以影响熔石英表面在高通量运行条件下的抗损伤性能。

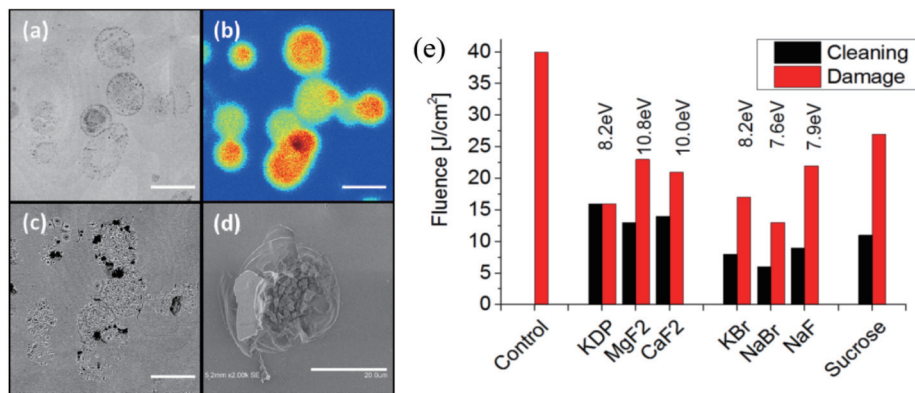


图 29 后表面宽带隙无机物沉淀的特性和不同类型无机化合物的损伤阈值^[54]。(a) 显微形貌; (b) 快荧光特征; (c) 诱导的损伤形貌; (d) 大尺度损伤坑; (e) 不同类型无机化合物的损伤阈值

Fig. 29 Characteristics of wide-band gap inorganic precipitation on rear surface and damage threshold of different types of inorganic compounds^[54]. (a) Microscopic morphology; (b) fast fluorescence characteristics; (c) induced damage morphology; (d) large scale damage pit; (e) damage threshold of different types of inorganic compounds

2014 年, NIF 的研究团队通过将 AMP 工艺升级到 AMP3.0, 实现了对 AMP 过程中次生的痕量高阈值缺陷(无机盐类化合物和有机物)的进一步抑制, 在之

前的基础上又实现了两个数量级的损伤密度下降。NIF 的 AMP 技术与其他抛光工艺的损伤密度对比如图 30 所示。国内相关的激光损伤研究团队也均陆续

开展了动态化学刻蚀技术的研究^[56-57]。上述这些研究充分证明,熔石英元件表面缺陷种类繁多芜杂,不同类型的缺陷在不同层次的激光加载通量下影响着熔石英表面的抗损伤性能,追求“至真至纯”的零缺陷熔石英表面将是很长一段时间内熔石英表面抗损伤性能研究的一个重要方向。

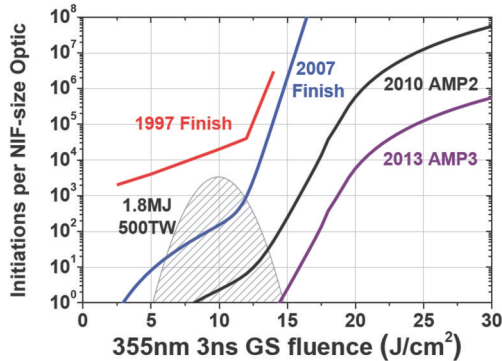


图 30 NIF 的 AMP 技术与其他抛光工艺的损伤密度对比^[32]
Fig. 30 Comparison of damage density between NIF's AMP technology and other polishing processes^[32]

2) 联合消释处理技术

虽然 AMP 技术极大地提高了熔石英抗激光损伤性能,但是该技术的使用在将残余亚表面损伤的破碎性结构刻蚀钝化的同时,形成了一个被放大的表面光滑坑

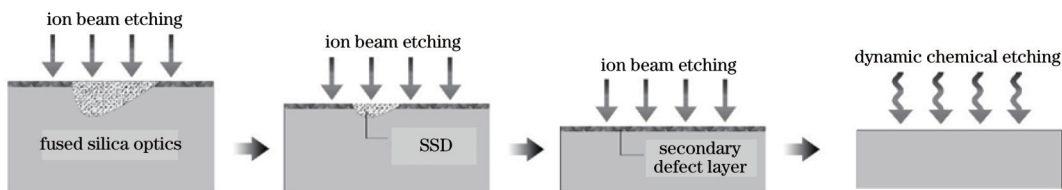


图 31 CEP 技术原理图
Fig. 31 Schematic diagram of CEP technology

3) 熔石英表面损伤点的 CO₂ 激光修复技术

熔石英元件在高通量的紫外脉冲激光作用下难以避免地会产生初始损伤,这种初始损伤点可以被看作是熔石英元件在使用过程中出现的一种新生缺陷,若不采取措施控制其损伤增长,将会严重影响光学元件在后续激光辐照下的稳定性和使用寿命。

为了抑制熔石英表面激光损伤点在后续激光脉冲下的损伤增长行为,发展了一系列的损伤修复技术,如湿法化学刻蚀法、等离子体刻蚀法、微火焰愈合法、CO₂ 激光熔融愈合法、CO₂ 激光气化剥离法和飞秒激光剥离法等,其中 CO₂ 激光修复技术是当前最具优势的损伤点控制手段。CO₂ 激光修复方法可分为非蒸发式修复和蒸发式修复^[63],其修复光路如图 33 所示。如果修复时材料以熔融为主,则采用非蒸发式修复,而如果修复时材料以蒸发为主,则采用蒸发式修复。一般而言,非蒸发式修复是用远大于损伤尺寸的光斑定点辐照损伤点,辐照时间远大于热扩散时间,使损伤材料重新熔融,熔融材料在表面张力作用下产生流动,使得

槽,增加了激光散射。2016 年,本研究团队在国际上首次提出了基于反应离子刻蚀(RIE)和 DCE 的复合刻蚀技术^[58-59],其技术原理图如图 31 所示。先利用 CHF₃/Ar 反应等离子体无痕地消除熔石英抛光再沉积层污染、亚表面破碎型缺陷和缺陷中嵌埋的各类杂质,再通过浅度的 DCE 处理缓慢消除 RIE 处理后残留于元件表面的化学结构缺陷并释放残余应力,以 4 μm 的总刻蚀深度实现了熔石英元件损伤性能的大幅度提升,并兼顾了元件表面的光学质量。经过复合刻蚀的熔石英元件,相较原始抛光元件零概率损伤阈值提升 2.43 倍,相较传统 AMP 技术深刻蚀元件(刻蚀深度为 20 μm)零概率损伤阈值提升 1.65 倍,且元件表面粗糙度(<0.7 nm)保持在原始抛光水平,相关结果如图 32 所示。该种复合刻蚀技术被命名为联合消释处理(CEP),它优于传统 HF 酸湿法刻蚀(单步刻蚀)的可能原因在于,AMP 中的 HF 酸刻蚀形成的是较为粗糙的石英表面,而复合刻蚀形成的是光滑平整的表面,这最终将引起三种效应:降低 HF 酸刻蚀副产物(SF₆²⁻等)在元件表面残留的概率;降低元件干燥过程中痕量污染(有机、无机物)在元件表面附着概率;减弱元件表面微结构对激光场调制的程度^[60-62]。这种技术的最大特点是以较浅的刻蚀深度实现对熔石英亚表面污染性缺陷和破碎性缺陷的双重抑制。实验结果表明,该技术能够比单纯 AMP 处理获得更高的激光损伤阈值,并保持元件表面粗糙度不发生劣化,进而展现出了良好的应用前景。

损伤坑得到平滑,裂纹闭合,从而达到抑制损伤增长的目的。蒸发式修复是用远小于损伤面积的光斑扫描辐照损伤区,辐照时间远小于热扩散时间,使得损伤材料快速蒸发。蒸发式修复装置需要振镜系统、扫描控制系统和吸气装置。根据 CO₂ 激光器的工作模式不同,非蒸发式修复和蒸发式修复又可分别称为连续激光修复和脉冲式激光修复。

在实际损伤修复过程中要根据损伤的具体情况,选择适合的修复原理,综合考虑各种工艺参数的影响,找到合适的工艺参数匹配关系,合理应用修复方法,这样才能得到良好的修复效果。目前的 CO₂ 激光修复技术已经能够将初始损伤点的损伤增长阈值提升至接近完好表面的水平,在延长熔石英元件使用寿命方面发挥了巨大的作用。

综上所述,出于熔石英元件在高功率固体激光装置中的特殊地位,研究人员在表面后处理技术与工艺方面开展了大量系统性的研究工作。在高功率固体激光装置追求高通量、长寿命运行模式的强烈牵引下,除

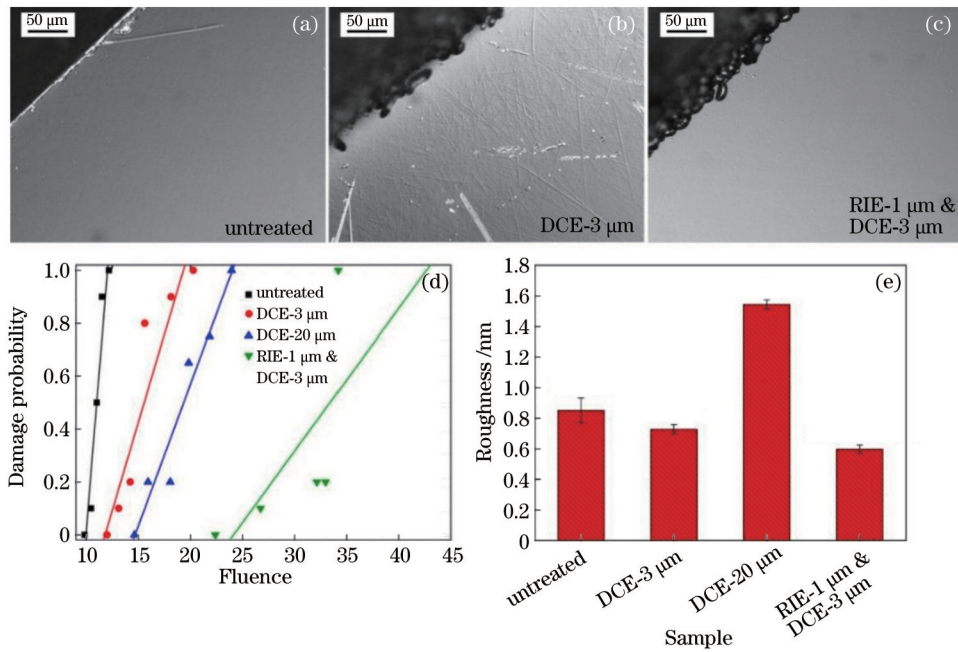


图 32 原始抛光、DCE、CEP 后的熔石英元件表面形貌和不同处理工艺下的损伤概率、粗糙度测试结果。(a) 原始抛光后的熔石英元件表面形貌; (b) DCE 后的熔石英元件表面形貌; (c) CEP 后的熔石英元件表面形貌; (d) 不同处理工艺下的损伤概率测试结果; (e) 不同处理工艺下的粗糙度测试结果

Fig. 32 Surface morphologies of fused silica optics after original polishing, DCE and CEP, and test results of damage probability and roughness under different treatment processes. (a) Surface morphology of fused silica optics after original polishing; (b) surface morphology of fused silica optics after DCE; (c) surface morphology of fused silica optics after CEP; (d) test results of damage probability under different treatment processes; (e) test results of roughness under different treatment processes

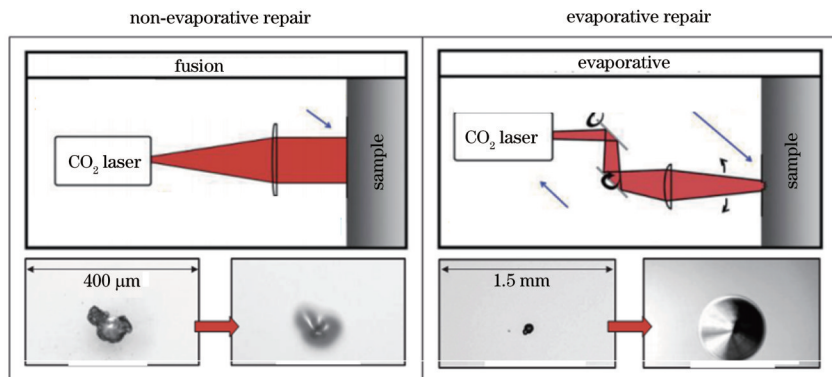


图 33 非蒸发式修复和蒸发式修复

Fig. 33 Non-evaporative repair and evaporative repair

非替代性的新型紫外光学材料面世, 否则熔石英光学元件的表面激光损伤会一直成为发展高功率固体激光装置所要面临的关键问题, 而以追求熔石英表面缺陷极致抑制的先进表面后处理工艺也将成为未来一段时间内的研究热点。

5 表面缺陷检测与抗损伤性能测试技术

5.1 熔石英表面缺陷的无损检测技术

建立有效的元件表面、亚表面缺陷检测技术, 对于探索熔石英表面的损伤机理、评价与改进熔石英表面加工工艺、后处理工艺的缺陷控制水平乃至最终判断

元件的抗激光损伤性能均具有重要的意义。传统光学制造中缺陷检测规范采用强光照明的明场观察法, 但这对不断发展的强激光元件制造需求来说是远远不够的。在缺陷形貌和损伤机理研究中, 可以采用各种显微观察手段(光学显微镜、电子扫描显微镜和原子力显微镜等)对表面破碎性缺陷进行显微观察, 也可以使用共聚焦显微镜和二次离子质谱仪对亚表面损伤结构和污染缺陷成分进行分析和探测。然而, 建立一套适用于大口径光学元件生产线, 并且能与最终的抗损伤性能相关联的检测设备更加迫切和必要。图 34(a) 为人为造成的划痕缺陷, 图 34(b) 为经过 AMP 处理的表面。虽然在图 34(b) 中可以看到划痕经过 HF 酸刻蚀

后尺寸进一步扩大了,但是这种内壁光滑无污染的划痕能够满足 8 J/cm^2 的抗激光损伤要求。因此,对于熔

石英抗紫外损伤特性来说,对缺陷的关注更多在于是否会诱发后续的损伤而不是简单的表面异常结构。

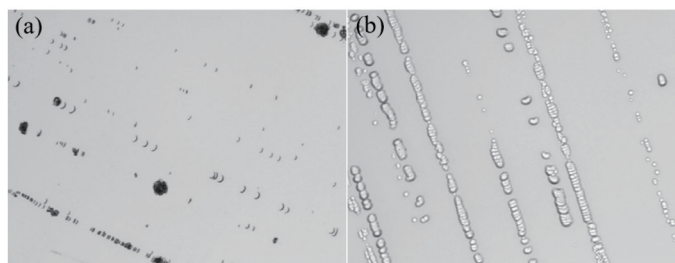


图 34 表面破碎型划痕在 HF 酸刻蚀改性前后的形貌差异^[50]。(a)改性前;(b)改性后

Fig. 34 Morphology difference of surface scratches before and after modification by HF acid etching^[50]. (a) Before modification; (b) after modification

在对缺陷形貌种类和缺陷诱发损伤机理的研究过程中发现,根据激光装置的发展水平和需求,目前主要的检测对象仍然是具有明显光吸收特性的污染性缺陷和破碎性缺陷。缺陷检测需要具有一定的损伤特性辨识度,能在一定程度上反映抗激光损伤性能的高低,可为熔石英元件的抗损伤性能评价提供有价值的结果。此外,缺陷检测技术需要具备高灵敏、无损和便利操作性。针对上述检测需求,重点发展了针对熔石英表面损伤诱导前驱体的两项无损缺陷检测技术,即光热弱吸收缺陷检测技术和光致荧光缺陷检测技术。

1) 光热弱吸收缺陷检测技术

光热弱吸收检测技术最先报道于 20 世纪 80 年代末 90 年代初,现已用于检测光学基底和薄膜表面具有光热效应的吸收性缺陷。由于光热效应是最为主要的

缺陷诱导损伤机制,因此该技术是目前为止最适用于熔石英元件损伤前驱体检测的技术手段^[64-65]。光热弱吸收的探测方法包括光热偏转法和光热共路干涉法,检测的基本原理如图 35 所示。检测系统中一束瓦量级的 351 nm 准连续激光聚焦后照射到元件表面上,另一束 632 nm 的连续探针光与主激光在元件表面精确重合后进入光电探测器中。当元件表面存在吸收性缺陷时,缺陷周围会产生温升,导致附近的基质材料出现折射率变化甚至热透镜效应(可由热包形变 $\Delta\phi$ 表示),从而对经过该区域的探针光传输产生调制。光电探测器接收这种调制信号的变化,经过锁相放大后可实现对光热吸收信号的提取。光热弱吸收是目前为止具有最高吸收检测灵敏度的技术手段,理论上可达到 1×10^{-8} 的吸收系数检测限。

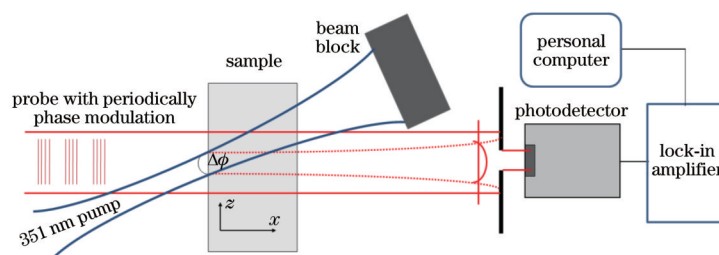


图 35 光热弱吸收检测技术的基本原理

Fig. 35 Schematic diagram of photo-thermal weak absorption detection technology

从光热弱吸收测试的基本原理可知,该检测技术近似还原了紫外激光辐照光学元件产生热效应的过程,故检测结果从理论上能够反映熔石英元件表面与损伤相关的所有吸收性缺陷。本研究团队在近几年开展了大量的光热弱吸收与熔石英后表面抗激光损伤性能的数值相关性研究,研究结果表明光热弱吸收分布强度与熔石英后表面的损伤密度具有强相关性,建立光热弱吸收系数与损伤密度的统计性关联曲线可使得对熔石英表面损伤密度进行无损检测成为可能^[66-67]。图 36 展示了 12 J/cm^2 光通量下平均光热弱吸收系数与熔石英后表面损伤密度的统计性数值相关性。

2) 光致荧光缺陷检测技术

熔石英亚表面的物理破碎性结构缺陷(划痕、裂

纹)存在大量的 Si—O 断键等化学结构缺陷,其中还极易夹杂碎屑、抛光污染物等污染性缺陷。上述这两类缺陷在特定波长的激光激发下可以产生荧光,与高分辨的显微成像技术相结合,即可高效、直观地检测出熔石英表面、亚表面具有荧光效应的污染性和破碎性缺陷。早在 2002 年,美国 LLNL Demos 和 Staggs^[68-69]就已经采用荧光显微成像的技术手段来实现对熔石英表面 351 nm 激光诱导损伤前驱体的检测,并解释了磷酸二氧钾(DKDP)晶体和熔石英光学元件表面损伤的根源。图 37 为光致荧光缺陷检测技术的基本原理示意图,其中 450 LP 代表 450 nm 以上波段长通。

光致荧光成像检测技术的突出优势是能够实现对亚表面物理破碎性缺陷的检测,本研究团队开发了相

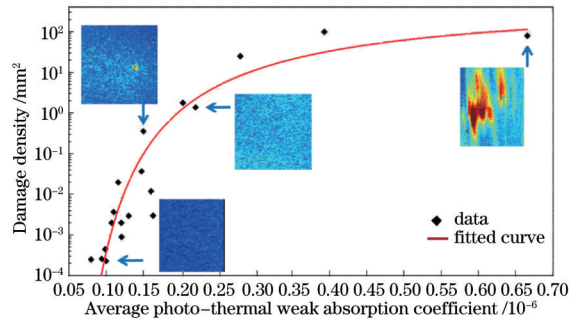


图 36 12 J/cm²光通量下平均光热弱吸收系数与熔石英后表面损伤密度的统计性数值相关性

Fig. 36 Statistical numerical correlation between average photo-thermal weak absorption coefficient and damage density of rear surface of fused silica under 12 J/cm² luminous flux

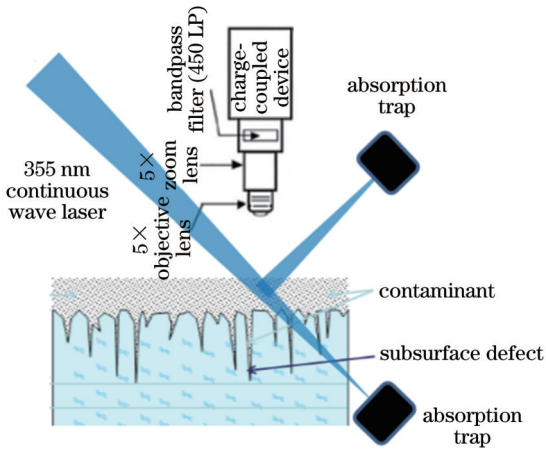


图 37 光致荧光缺陷检测技术的基本原理

Fig. 37 Basic principle of photofluorescence defect detection technique

关检测设备,首次实现了对亚表面破碎性缺陷和污染性缺陷的无损检测^[70]。图 38 给出了一块初抛光后的熔石英元件在表面相同位置的白光明场显微成像与紫外激光诱导荧光成像的对比结果。可以发现,紫外激光诱导荧光成像能够再现白光明场显微成像无法检测到的表面污染物和亚表面划痕。近两年,本研究团队在这种宽场荧光显微成像的基础上成功耦合了共聚焦成像技术,实现了对熔石英亚表面荧光缺陷的高精度三维层析检测,其显著的特点是能够实现荧光缺陷在元件表面横、纵向分布特性的三维重构。图 39 给出了一个熔石英加工表面荧光缺陷的二维和三维共聚焦检

测结果,能够直观、清楚地看到荧光缺陷在亚表面的纵向分布特征,这对于评价熔石英元件的亚表面加工质量具有重要的作用。

5.2 熔石英表面抗损伤性能测试技术

一直以来,搭建小口径激光束损伤测试装置对熔石英元件的激光损伤性能进行离线测试都是极为重要的,这是评价元件加工质量、衡量元件缺陷控制水平能否满足装置运行要求的必要手段。针对高功率激光装置中熔石英元件表面在脉冲激光作用下的抗激光损伤性能,目前常用的检测指标主要有两个,即激光损伤阈值和激光损伤密度。下面分别简述二者测试的基本原理和方法。

1) 基于 R on 1 方式的损伤阈值测试

R on 1 方法用于反映光学元件在脉冲激光辐照下表面不发生损伤的最大激光能量密度(单位为 J/cm²)。R on 1 的测试方法是在样品的每一个测试点上辐照几个或几十个激光脉冲,每个脉冲的能量密度较前一个脉冲都有一定的增加,直至元件表面出现损伤,从而获得该测试点的损伤阈值。通过对元件表面的多个点进行这种过程的重复性抽样测试,统计出不同能量密度下的损伤概率,进而得出最终的零概率损伤阈值。由于元件的每一个测试点在发生损伤前已经经历了预脉冲的辐照,因此采用 R on 1 方式所获得的测试结果包括了激光预处理对元件的影响。这种测试方法的原理如图 40 所示。

2) 基于 1 on 1 或 S on 1 方式的损伤阈值测试

在当前 ISO 21254 和 GB/T 16601 中,阐述了这两

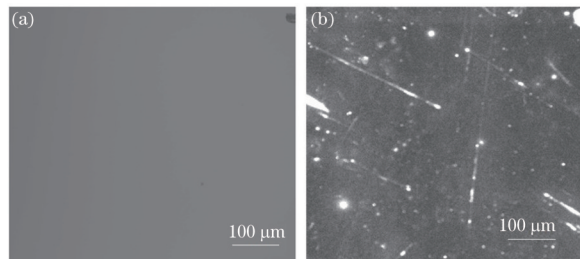


图 38 白光明场显微成像与紫外激光诱导荧光成像的检测结果对比。(a)白光明场显微成像;(b)紫外激光诱导荧光成像

Fig. 38 Comparison of detection results of white bright field microscopic imaging and ultraviolet laser induced fluorescence imaging. (a) White light field microscopic imaging; (b) ultraviolet laser induced fluorescence imaging

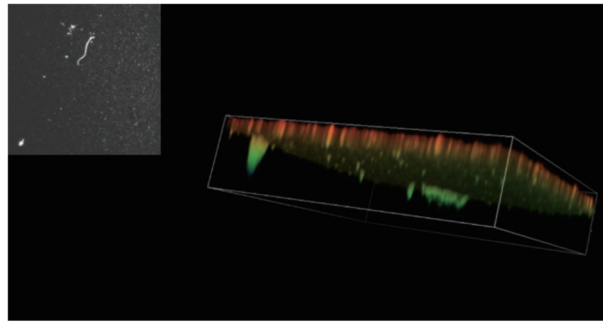


图 39 熔石英表面荧光缺陷的共聚焦三维成像检测结果(左上角为二维荧光检测结果)

Fig. 39 Detection result of confocal three-dimensional imaging for fluorescence defects on surface of fused silica (two-dimensional fluorescence detection result is shown in upper left corner)

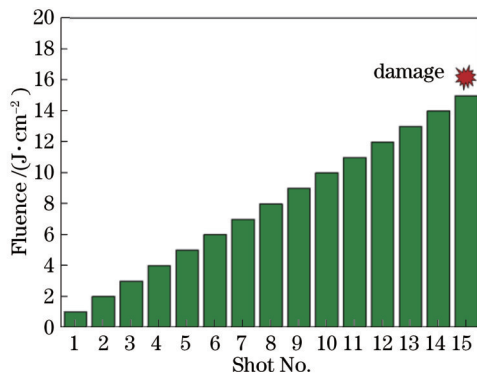


图 40 光学元件激光损伤阈值的 R on 1 测试方法原理示意图
Fig. 40 Schematic diagram of R on 1 test method for laser damage threshold of optics

种测试的标准方法。1 on 1 测试是用相同能量密度的一组脉冲对光学元件进行辐照,每个测试点只辐照一次,再统计得出样品在该能量密度的损伤概率,最终可通过不同能量密度下的损伤概率测试统计得出样品的零概率损伤阈值。S on 1 与 1 on 1 间的主要区别在于每个点的激光辐照次数被设置为 S 次,是一种考察元件随使用发次的增加而导致抗损伤性能下降程度的测试方法,类似于元件的使用寿命测试。1 on 1 测试方法的原理如图 41 所示。

3) 激光损伤密度

对于上述 1 on 1 或 R on 1 测试而言,其典型特征

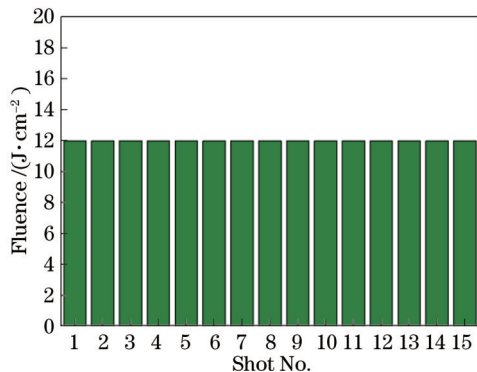


图 41 1 on 1 测试方法原理

Fig. 41 Schematic diagram of 1 on 1 testing method

是有限个取样点的损伤抽样测试。由于损伤是由光学元件表面概率性分布的缺陷引发的,故在 1 on 1 或 R on 1 测试中采取不同数量的抽样点会对损伤阈值的测试结果造成影响。为了尽可能全面地评价光学元件表面的缺陷分布水平及其对损伤的影响,一种以损伤密度为测试参量的损伤测试方法被提出并逐渐得到了广泛应用^[71-72]。损伤密度测试的核心思想是用一个恒定能量密度的小光束对被测光学元件表面进行大面积的光栅式扫描,以模拟该光学元件在全口径大光束辐照下因缺陷引发的后表面损伤,如图 42 所示。在扫描过程中,在线检测显微镜会对每一个测试区域在激光脉冲辐照前后的新增损伤点进行统计,在整个取样区域扫描完成后,可获得单位面积的损伤点密度(单位为 mm⁻²)。这种方法与传统的损伤阈值测试相比有两个显著的优势:其一,取样面积远大于基于 1 on 1 和 R on 1 的损伤阈值测试,能够更加真实地反映元件在大光束光斑辐照下的抗损伤性能;其二,损伤密度测试结果能够反映出元件表面在测试激光通量下诱发损伤的缺陷分布密度,与损伤阈值相比,其能够更加直观地反映出元件表面的缺陷控制水平。

4) 其他发展中的损伤测试方法

无论采用什么样的测试方式,由于光斑分布的不均匀性客观存在,故实际上很难在测试面上获得理想的平顶脉冲分布,这会导致元件的抗损伤性能在测试过程中存在一定程度的测试偏差。对于损伤阈值测试,峰值通量(功率密度)的引入可以较好地解决这个问题,但对于损伤密度测试,光束的不均匀将导致损伤测试结果难以精确量化,故发展了局部通量映射(Mapping)技术,以更精准地获得元件的抗损伤特性。Mapping 技术本质为损伤点局部通量与损伤点对应的表征技术,该技术的优点是缓解了光斑分布不均匀性的影响,损伤点局部光斑更加均匀,局部调制度一般可以达到 1.2~1.5。需要注意的是,Mapping 技术的使用仍应以足够的测试面积为前提,并非单发或数发即可完成测试的,否则测试数据可能存在较大偏差。

6 结束语

对于超高功率固体脉冲激光装置而言,当前最主

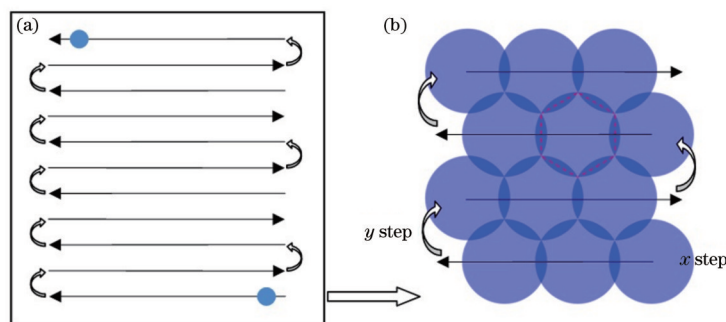


图 42 损伤密度测试所采取的光栅式扫描方式和光斑拼接模式。(a)光栅式扫描方式;(b)光斑拼接模式

Fig. 42 Raster scan and spot splicing mode used in damage density testing. (a) Raster scan; (b) spot splicing mode

要的目标之一是尽可能降低紫外三倍频激光所导致的元件损伤,以提升系统运行的有效性、可靠性和使用寿命。由于熔石英元件在巨型激光装置中的广泛应用,故研究熔石英元件的紫外脉冲激光诱导损伤行为、揭示内在的损伤机理并在此基础上发展一系列抗损伤性能提升技术与检测技术,已经成为国际上近 20 年光学材料激光诱导损伤研究领域的研究热点。由于熔石英元件不可避免地在高通量辐照下会出现后表面损伤并产生损伤增长,故对熔石英元件的抗损伤性能提升需要从提高初始损伤阈值和延缓损伤增长两个方面着手。对于光学元件自身而言,初始损伤最主要的诱导因素来自于元件表面加工和后处理过程中引入的各类缺陷。缺陷的存在使得宽带隙的熔石英材料产生亚带隙吸收,这是缺陷诱导紫外损伤的主要机制。通过改进抛光工艺和采取动态化学刻蚀等后处理技术能够抑制表面的各类损伤前驱体,结合 CO₂ 激光修复等损伤增长抑制措施,能够大幅度提高熔石英元件在紫外脉冲激光作用下的初始损伤阈值并延长使用寿命。对于激光装置而言,激光束质量的提高、光学装校与运行中洁净环境的控制,以及出现初始损伤后运行策略的调整与损伤管控措施的选取,是预防损伤灾难性增长和损伤喷溅物二次污染的重要措施。同时,一系列先进的缺陷无损检测技术与损伤特性测试技术也被不断地发展,有效支撑了熔石英元件表面制造工艺的改良,并为元件的使用提供了科学的性能评价手段。在上述各个层面的工程与科学技术的加持下,熔石英元件的抗紫外激光损伤性能在近 20 年实现了前所未有的跨越,支撑了当前各类高功率、高能量紫外脉冲激光装置的发展。

当前,强紫外脉冲激光装置的输出能量仍在不断提升,如以美国 NIF 为代表的高功率固体激光装置,在聚变点火目标的驱使下,装置的紫外脉冲输出能量已突破了 1.8 MJ 的原设计指标达到了 2.4 MJ,且仍有进一步攀升的趋势。为满足未来不断提升的应用需求,针对熔石英元件的抗损伤研究仍需要进一步深入拓展,包括超高能量密度加载条件 ($\geq 20 \text{ J/cm}^2 @ 355 \text{ nm}$) 下熔石英表面损伤前驱体的辨识、检测与损伤诱导机制、以追求缺陷极致抑制为目标的下一代先进表面后处理技术,以及熔石英表面的洁净控制技术。

同时,在超高通量紫外脉冲激光加载条件下,熔石英元件在一系列非线性机制的耦合下有可能逐渐凸显体损伤问题。在未来新形势的驱使下,熔石英元件的抗损伤性能提升之路还将继续。

参 考 文 献

- [1] 尚旭川, 曹翔科, 张蓉竹, 等. 激光波长及脉宽对光学材料抗损伤性能的影响[J]. 强激光与粒子束, 2008, 20(7): 1071-1075.
Shang X C, Cao X K, Zhang R Z, et al. Influence of laser wavelength and pulse duration threshold on laser-induced optical damage[J]. High Power Laser and Particle Beams, 2008, 20(7): 1071-1075.
- [2] Huang J, Liu H J, Wang F R, et al. Influence of bulk defects on bulk damage performance of fused silica optics at 355 nm nanosecond pulse laser[J]. Optics Express, 2017, 25(26): 33416-33428.
- [3] de Yoreo J J, Burnham A K, Whitman P K. Developing KH₂PO₄ and KD₂PO₄ crystals for the world's most power laser[J]. International Materials Reviews, 2002, 47(3): 113-152.
- [4] Negres R A, Norton M A, Cross D A, et al. Growth behavior of laser-induced damage on fused silica optics under UV, ns laser irradiation[J]. Optics Express, 2010, 18(19): 19966-19976.
- [5] Liao Z M, Abdulla G M, Negres R A, et al. Predictive modeling techniques for nanosecond-laser damage growth in fused silica optics[J]. Optics Express, 2012, 20(14): 15569-15579.
- [6] Carr C W, Matthews M J, Bude J D, et al. The effect of laser pulse duration on laser-induced damage in KDP and SiO₂[J]. Proceedings of SPIE, 2007, 6403: 64030K.
- [7] Negres R A, Cross D A, Liao Z M, et al. Growth model for laser-induced damage on the exit surface of fused silica under UV, ns laser irradiation[J]. Optics Express, 2014, 22(4): 3824-3844.
- [8] Wong J, Ferriera J L, Lindsey E F, et al. Morphology and microstructure in fused silica induced by high fluence ultraviolet 3 ω (355 nm) laser pulses[J]. Journal of Non-Crystalline Solids, 2006, 352(3): 255-272.
- [9] Demos S G, Staggs M. Characterization of laser induced damage sites in optical components.[J]. Optics Express, 2002, 10(25):1444-1450.

- [10] Kubota A, Caturla M J, Stolken J, et al. Densification of fused silica due to shock waves and its implications for 351 nm laser induced damage[J]. *Optics Express*, 2001, 8(11): 611-616.
- [11] 巨新. 紫外元件损伤动力学实验研究[J]. *中国科学: 物理学 力学 天文学*, 2021, 51(9): 38-52.
Ju X. Experimental research on the dynamics of ultraviolet laser-induced damage[J]. *Scientia Sinica (Physica, Mechanica & Astronomica)*, 2021, 51(9): 38-52.
- [12] Norton M A, Donohue E E, Feit M D, et al. Growth of laser damage on the input surface of SiO₂ at 351 nm[J]. *Proceedings of SPIE*, 2007, 6403: 64030L.
- [13] Raman R N, Elhadj S, Negres R A, et al. Characterization of ejected fused silica particles following surface breakdown with nanosecond pulses[J]. *Optics Express*, 2012, 20(25): 27708-27724.
- [14] Raman R N, Negres R A, Demos S G. Kinetics of ejected particles during breakdown in fused silica by nanosecond laser pulses[J]. *Applied Physics Letters*, 2011, 98(5): 051901.
- [15] Raman R N, Negres R A, Demos S G. Time-resolved microscope system to image material response following localized laser energy deposition: exit surface damage in fused silica as a case example[J]. *Optical Engineering*, 2011, 50(1): 013602.
- [16] Zhu C Y, Liang L X, Peng G, et al. Explosion plume on the exit surface of fused silica during UV laser-induced damage[J]. *Results in Physics*, 2022, 32: 105094.
- [17] Demos S G, Raman R N, Negres R A. Time-resolved imaging of processes associated with exit-surface damage growth in fused silica following exposure to nanosecond laser pulses[J]. *Optics Express*, 2013, 21(4): 4875-4888.
- [18] Miller P E, Suratwala T I, Bude J D, et al. Laser damage precursors in fused silica[J]. *Proceedings of SPIE*, 2009, 7504: 75040X.
- [19] Feit M D, Rubenchik A M. Influence of subsurface cracks on laser-induced surface damage[J]. *Proceedings of SPIE*, 2004, 5273: 264-272.
- [20] Neauport J, Cormont P, Lamaignère L, et al. Concerning the impact of polishing induced contamination of fused silica optics on the laser-induced damage density at 351 nm[J]. *Optics Communications*, 2008, 281(14): 3802-3805.
- [21] Liu H J, Wang F R, Huang J, et al. Experimental study of 355 nm laser damage ignited by Fe and Ce impurities on fused silica surface[J]. *Optical Materials*, 2019, 95: 109231.
- [22] Neauport J, Lamaignère L, Bercegol H, et al. Polishing-induced contamination of fused silica optics and laser induced damage density at 351 nm[J]. *Optics Express*, 2005, 13(25): 10163-10171.
- [23] Liu H J, Huang J, Wang F R, et al. Subsurface defects of fused silica optics and laser induced damage at 351 nm [J]. *Optics Express*, 2013, 21(10): 12204-12217.
- [24] Suratwala T, Wong L, Miller P, et al. Sub-surface mechanical damage distributions during grinding of fused silica[J]. *Journal of Non-Crystalline Solids*, 2006, 352(52/53/54): 5601-5617.
- [25] Génin F Y, Salleo A, Pistor T V, et al. Role of light intensification by cracks in optical breakdown on surfaces [J]. *Journal of the Optical Society of America A*, 2001, 18(10): 2607-2616.
- [26] 王凤蕊, 黄进, 刘红婕, 等. 激光诱导 HF 酸刻蚀后熔石英后表面划痕的损伤行为研究[J]. *物理学报*, 2010, 59(7): 5122-5127.
Wang F R, Huang J, Liu H J, et al. Laser induced rear-surface-crack damage properties of fused silica etched with HF solution[J]. *Acta Physica Sinica*, 2010, 59(7): 5122-5127.
- [27] Xu S Z, Zu X T, Jiang X D, et al. The damage mechanisms of fused silica irradiated by 355 nm laser in vacuum[J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 2008, 266(12/13): 2936-2940.
- [28] Laurence T A, Bude J D, Shen N, et al. Metallic-like photoluminescence and absorption in fused silica surface flaws[J]. *Applied Physics Letters*, 2009, 94(15): 151114.
- [29] Hopper R W, Uhlmann D R. Mechanism of inclusion damage in laser glass[J]. *Journal of Applied Physics*, 1970, 41(10): 4023-4037.
- [30] Papernov S, Schmid A W, Oliver J B, et al. Damage thresholds and morphology of the front- and back-irradiated SiO₂ thin films containing gold nanoparticles as artificial absorbing defects[J]. *Proceedings of SPIE*, 2007, 6720: 67200G.
- [31] Sadigh B, Erhart P, Åberg D, et al. First-principles calculations of the Urbach tail in the optical absorption spectra of silica glass[J]. *Physical Review Letters*, 2011, 106(2): 027401.
- [32] Bude J, Miller P E, Shen N, et al. Silica laser damage mechanisms, precursors and their mitigation[J]. *Proceedings of SPIE*, 2014, 9237: 92370S.
- [33] Saito K, Ikushima A J. Absorption edge in silica glass[J]. *Physical Review B*, 2000, 62(13): 8584-8587.
- [34] Demos S G, Negres R A. Time-resolved imaging of material response during laser-induced bulk damage in SiO₂[J]. *Proceedings of SPIE*, 2008, 7132: 71320Q.
- [35] Hamza A V, Siekhaus W J, Rubenchik A M, et al. Engineered defects for investigation of laser-induced damage of fused silica at 355 nm[J]. *Proceedings of SPIE*, 2002, 4679: 96-107.
- [36] Wong L, Suratwala T, Feit M D, et al. The effect of HF/NH₄F etching on the morphology of surface fractures on fused silica[J]. *Journal of Non-Crystalline Solids*, 2009, 355(13): 797-810.
- [37] Suratwala T, Steele R, Feit M D, et al. Effect of rogue particles on the sub-surface damage of fused silica during grinding/polishing[J]. *Journal of Non-Crystalline Solids*, 2008, 354(18): 2023-2037.
- [38] Basim G B, Adler J J, Mahajan U, et al. Effect of particle size of chemical mechanical polishing slurries for enhanced polishing with minimal defects[J]. *Journal of the Electrochemical Society*, 2000, 147(9): 3523-3528.

- [39] Menapace J A. Developing magnetorheological finishing (MRF) technology for the manufacture of large-aperture optics in megajoule class laser systems[J]. Proceedings of SPIE, 2010, 7842: 78421W.
- [40] Menapace J A, Penetrante B, Golini D, et al. Combined advanced finishing and UV-laser conditioning for producing UV-damage-resistant fused silica optics[J]. Proceedings of SPIE, 2001, 4679: 1-13.
- [41] Jacobs S D, Golini D, Hsu Y, et al. Magnetorheological finishing: a deterministic process for optics manufacturing [J]. Proceedings of SPIE, 1995, 2576: 372-382.
- [42] Mori Y, Yamauchi K, Endo K. Elastic emission machining[J]. Precision Engineering, 1987, 9(3): 123-128.
- [43] Kanaoka M, Liu C, Nomura K, et al. Figuring and smoothing capabilities of elastic emission machining for low-thermal-expansion glass optics[J]. Journal of Vacuum Science & Technology B, 2007, 25(6): 2110-2113.
- [44] Drueding T W, Fawcett S C, Wilson S R, et al. Ion beam figuring of small optical components[J]. Optical Engineering, 1995, 34(12): 3565-3571.
- [45] Arnold T, Böhm G, Fechner R, et al. Ultra-precision surface finishing by ion beam and plasma jet techniques: status and outlook[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2010, 616(2/3): 147-156.
- [46] Liao W L, Dai Y F, Liu Z Z, et al. Detailed subsurface damage measurement and efficient damage-free fabrication of fused silica optics assisted by ion beam sputtering[J]. Optics Express, 2016, 24(4): 4247-4257.
- [47] Booij S M, van Brug H H, Braat J J M, et al. Nanometer deep shaping with fluid jet polishing[J]. Optical Engineering, 2002, 41(8): 1926-1931.
- [48] 罗银川, 李秀龙, 张杨, 等. 射流抛光中的流场特性研究[J]. 光学技术, 2014, 40(4): 376-380.
Luo Y C, Li X L, Zhang Y, et al. Analysis of flow field characteristics in fluid jet polishing[J]. Optical Technique, 2014, 40(4): 376-380.
- [49] 杨平, 彭文强, 李圣怡, 等. 熔石英元件纳米射流超光滑抛光流场仿真与实验[J]. 航空精密制造技术, 2016, 52(4): 4-9.
Yang P, Peng W Q, Li S Y, et al. Flow field simulation and experimental of nanoparticle jet ultra-smooth polishing for fused silica workpiece[J]. Aviation Precision Manufacturing Technology, 2016, 52(4): 4-9.
- [50] Suratwala T I, Miller P E, Bude J D, et al. HF-based etching processes for improving laser damage resistance of fused silica optical surfaces[J]. Journal of the American Ceramic Society, 2011, 94(2): 416-428.
- [51] Feit M D, Suratwala T I, Wong L L, et al. Modeling wet chemical etching of surface flaws on fused silica[J]. Proceedings of SPIE, 2009, 7504: 75040L.
- [52] Ye X, Huang J, Liu H J, et al. Advanced mitigation process (AMP) for improving laser damage threshold of fused silica optics[J]. Scientific Reports, 2016, 6: 31111.
- [53] Li Y, Yan H W, Yang K, et al. Improvement of laser damage thresholds of fused silica by ultrasonic-assisted hydrofluoric acid etching[J]. Chinese Physics B, 2017, 26(11): 118104.
- [54] Bude J, Miller P, Baxamusa S, et al. High fluence laser damage precursors and their mitigation in fused silica[J]. Optics Express, 2014, 22(5): 5839-5851.
- [55] Baxamusa S, Miller P E, Wong L, et al. Mitigation of organic laser damage precursors from chemical processing of fused silica[J]. Optics Express, 2014, 22(24): 29568-29577.
- [56] Hu G H, Zhao Y A, Liu X F, et al. Combining wet etching and real-time damage event imaging to reveal the most dangerous laser damage initiator in fused silica[J]. Optics Letters, 2013, 38(15): 2632-2635.
- [57] Ye H, Li Y G, Zhang Q H, et al. Post-processing of fused silica and its effects on damage resistance to nanosecond pulsed UV lasers[J]. Applied Optics, 2016, 55(11): 3017-3025.
- [58] Sun L X, Liu H J, Huang J, et al. Reaction ion etching process for improving laser damage resistance of fused silica optical surface[J]. Optics Express, 2016, 24(1): 199-211.
- [59] Sun L X, Huang J, Liu H J, et al. Combination of reaction ion etching and dynamic chemical etching for improving laser damage resistance of fused silica optical surfaces[J]. Optics Letters, 2016, 41(19): 4464-4467.
- [60] Sun L X, Shao T, Xu J F, et al. Traceless mitigation of laser damage precursors on a fused silica surface by combining reactive ion beam etching with dynamic chemical etching[J]. RSC Advances, 2018, 8(57): 32417-32422.
- [61] Sun L X, Shao T, Zhou X D, et al. Understanding the effect of HF-based wet shallow etching on optical performance of reactive-ion-etched fused silica optics[J]. RSC Advances, 2021, 11(47): 29323-29332.
- [62] Shao T, Shi Z H, Sun L X, et al. Role of each step in the combined treatment of reactive ion etching and dynamic chemical etching for improving the laser-induced damage resistance of fused silica[J]. Optics Express, 2021, 29(8): 12365-12380.
- [63] Adams J J, Bolourchi M, Bude J D. Results of applying a non-evaporative mitigation technique to laser-initiated surface damage on fused-silica[J]. Proceedings of SPIE, 2010, 7842: 784223.
- [64] Chen J, Dong J T, Wu Z L. Development of a "turn-key" system for weak absorption measurement and analysis[J]. Proceedings of SPIE, 2013, 8786: 87861M.
- [65] Lorette V, Boccara C. Absorption of low-loss optical materials measured at 1064 nm by a position-modulated collinear photothermal detection technique[J]. Applied Optics, 2003, 42(4): 649-656.
- [66] Huang J, Wang F R, Liu H J, et al. Non-destructive evaluation of UV pulse laser-induced damage performance of fused silica optics[J]. Scientific Reports, 2017, 7: 16239.
- [67] Huang J, Wang F R, Li W H, et al. Assessing the UV-pulse-laser-induced damage density of fused silica optics

- using photo-thermal absorption distribution probability curves[J]. *Optics Letters*, 2022, 47(3): 653-656.
- [68] Demos S G, Staggs M. Application of fluorescence microscopy for noninvasive detection of surface contamination and precursors to laser-induced damage[J]. *Applied Optics*, 2002, 41(10): 1977-1983.
- [69] Ciapponi A, Palmier S, Wagner F, et al. Laser induced fluorescence as a tool for the study of laser damage precursors in transparent materials[J]. *Proceedings of SPIE*, 2008, 6998: 69981E.
- [70] 刘红婕, 王凤蕊, 耿峰, 等. 荧光成像技术无损探测光学元件亚表面缺陷[J]. *光学精密工程*, 2020, 28(1): 50-59.
- Liu H J, Wang F R, Geng F, et al. Nondestructive detection of optics subsurface defects by fluorescence image technique[J]. *Optics and Precision Engineering*, 2020, 28(1): 50-59.
- [71] Lamainère L, Balas M, Courchinoux R, et al. Parametric study of laser-induced surface damage density measurements: toward reproducibility[J]. *Journal of Applied Physics*, 2010, 107(2): 023105.
- [72] Lamainère L, Bouillet S, Courchinoux R, et al. An accurate, repeatable, and well characterized measurement of laser damage density of optical materials [J]. *Review of Scientific Instruments*, 2007, 78(10): 103105.

约稿专家简介:



杨李茗(1967—),男,博士,研究员/博士生导师。1985年进入浙江大学光学仪器工程学系激光技术及仪器专业学习,1989年毕业留校,担任学生辅导员工作;1993年在职攻读浙江大学光电与科学仪器工程学系光学仪器专业硕士;1995年转入浙江大学现代光学仪器教研室工作,并攻读测试计量技术与仪器专业博士学位。1998—1999年在日本静冈大学学习,2000年获得博士学位,同年晋升副教授职称。2001年7月调入中国工程物理研究院激光聚变研究中心工作。主要从事高功率、高能激光装置大口径光学元件精密加工和检测技术研究,负责大口径光学元件批量制造流程技术开发验证和流程线能力建设,开拓了高功率激光光学元件的损伤机理、缺陷探测和缺陷抑制,以及新制造技术探索等领域的研究。目前主要负责高能激光装置中特殊光学元件的技术开发攻关及应用等工作。E-mail:lmyang@vip.sina.com。