



·强激光物理与技术·

大口径 DKDP 元件的辐照损伤分布特性*

刘 畅¹, 巨 新¹, 刘宝安^{1,2}, 孙 洵², 张立松², 徐明霞², 任宏凯²,
魏列宁², 武鹏程², 李 扬², 东 超², 闫春燕^{1,3}

(1. 北京科技大学 物理系, 北京 100083; 2. 山东大学 晶体材料国家重点实验室,
济南 250100; 3. 潍坊医学院, 山东 潍坊 261053)

摘 要: 大口径高能激光装置是各强国积极研究的重点项目。对装置内大口径光学元件损伤特性进行评估具有重要的意义, 在此研究大尺寸光学元件表面损伤。通过分段拍摄、图像拼合、损伤点记录、统计与归纳等工作发现, 不同尺寸损伤点的分布特性差异较大。结合统计学方法与类似实验对比、理论计算等方式对损伤点分布与样品辐照环境特性变化的关系进行分析。结果显示, 损伤点的位置分布与辐照光束的能量密度关联紧密; 系统光束 (351 nm) 在低于 6 J/cm^2 时能量分布均匀, 高于 6.7 J/cm^2 时呈现较为明显的高斯分布状态。可以为大口径高能辐照环境的元件损伤特性评估提供有价值的参考, 对大口径紫外激光器的日常运行与维护具有极其重要的工程意义。

关键词: DKDP; 激光诱导损伤; 损伤分布; 大口径; 高能激光

中图分类号: O77+4

文献标志码: A

doi: 10.11884/HPLPB202133.210198

Irradiation damage distribution characteristics of DKDP in large-aperture high-energy laser

Liu Chang¹, Ju Xin¹, Liu Baoan^{1,2}, Sun Xun², Zhang Lisong², Xu Mingxia², Ren Hongkai²,
Wei Liening², Wu Pengcheng², Li Yang², Dong Chao², Yan Chunyan^{1,3}

(1. Department of Physics, University of Science and Technology of Beijing, Beijing 100083, China;

2. State Key Laboratory of Crystal Materials, Shandong University, Ji'nan 250100, China;

3. Weifang Medical University, Weifang 261053, China)

Abstract: To establish the effective evaluation about damage properties of large-aperture and high-energy optic components, we studied the statistics of the surface damage of the DKDP component. We analysed and summarized various kinds of damage distributing in surface of the optic component by step-by-step shooting, merging images and counting damage pits. We investigated correlation distribution of damage types and irradiation conditions using statistics of surface damage data, theoretical calculation and demonstration of similar experiment. It is found that positions of damage pits are closely relevant to distribution of energy density of laser beam (3ω). When the energy density exceeds 6.7 J/cm^2 , the distribution of energy density of the laser beam can be Gaussian. On the contrary, when energy density is less than 6.7 J/cm^2 , the distribution of energy density of the laser beam can be uniform. Our study could provide a valuable reference for evaluating characteristics of damage to optical component working under irradiation in large-aperture high-energy laser. It is also reterable in operating and maintaining large-aperture high-energy laser facility.

Key words: DKDP; laser induced damage; distribution; large-aperture; high-energy laser

磷酸二氢钾(KDP)晶体是一种广泛应用的光学材料^[1], 其非线性光学系数、透光波段、生长速度和大尺寸元件生成条件均明显优于一般光学晶体材料。KDP 的氟化产物磷酸二氟钾(DKDP)的横向受激拉曼散射效应较低, 是

* 收稿日期: 2021-05-24; 修订日期: 2021-11-10

基金项目: 国家自然科学基金项目 (51402173); 中央高校基本科研业务费专项资金项目 (FRF-TP-15-099A1)

联系方式: 刘 畅, bjbdlc2013@sina.com.

通信作者: 巨 新, jux@ustb.edu.cn.

惯性约束聚变中谐波转换器制造中常用的晶体材料^[2]。此类元件表面损伤达到一定比例时,将严重影响系统光束的输出质量。由此可见,DKDP元件的激光诱导损伤性能不仅制约了激光器的最大输出功率,也限制了其有效工作周期。

之前的研究专注于KDP/DKDP材料的激光诱导损伤特性研究,如损伤机理、材料损伤过程的分析与重建^[3],阈值变化特性以及微观损伤结构^[4],并证明了辐照光束能量、口径、波长等参数与损伤特性存在关联^[5]。然而大口径高功率激光器设备系统构成复杂,相同辐照环境下同类型元件的损伤特性呈现出明显的差异^[6],不能简单地做同一类型的分析。

为研究工作于大口径高能量辐照环境下的大尺寸光学元件的损伤特性,在此选取一片特定位置的大口径退役元件作为样品,对其表面的损伤类型和分布特性进行统计和归纳,结合相关运行记录、理论计算与损伤测试,确定此类元件在激光器内部工作时的损伤特性和相关规律,为此类大口径高能激光器元件光束输出调节、结构优化和相关元器件的寿命评估提供有价值的参考与分析。

1 实验条件与测量方法

1.1 设备参数与测量光路

测试样品采用传统慢生长方法制备的氙含量为70%的II型DKDP晶体,尺寸为430 mm×430 mm×10 mm。使用2台卓立汉光PSA400-11-X精密电动直线滑台(行程400 mm,水平负载50 kg,整步分辨率25 μm)承载载物台完成样品的水平平移(x - y 轴),第3台PSA400-11-X(z 轴)固定在垂直于平台支架上,实现镜头焦距的精确调节。3台PSA400-11-X通过SC300-3B控制器与计算机相连,通过程序设定移动次序和距离。显微镜镜头的分辨率为5 μm,视场为12 mm,物距为200 mm。照明光源使用长春新产业光电(CNI)的PGL-V-H-532型CW激光器(波长532 nm,输出功率300 mw,输出模式TEM00)。系统整体结构如图1所示。

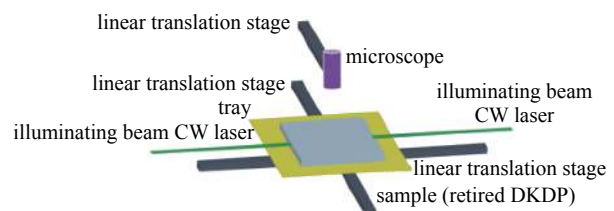


Fig. 1 Schematic of microscope

图1 显微镜结构示意图

1.2 测量方法

测量时,照明光束经过棱镜与反射光路调制,从样品侧面进入并与显微镜轴线垂直正交。考虑到杂散光与背景光可能会对样品表面形貌测量产生干扰,测量时将整套系统置于黑暗环境中,并精确调解摄像头焦距,尽量获得最优的损伤图像。

2 结果与讨论

2.1 统计结果

系统共拍摄5590张图片,其中有3555张未观察到损伤点,仅显示全黑或样品边缘的反射光;在显示有损伤的2035张照片中,603张被移除;其损伤确定为样品在拆卸或运输时造成的划伤,与激光损伤无关。考虑到该元件的工作环境并不复杂,可以忽略杂散光对元件造成损伤的可能性。

2.2 损伤分类

DKDP材料损伤是一个复杂的、与多种因素相关联的过程,尤其是对于在高能量辐照环境下工作的退役元件^[7]。不同于为损伤实验专门制备的晶体样品,大口径光学元件表面损伤形成原因更为复杂,与辐照光束的能量密度分布特性的关系更为紧密。

相关研究表明,从制备开始,元件表面由于切割、研磨、抛光、涂膜到后期日常维护等原因都会形成各种划痕、疵点和细微的纳米尺度缺陷^[8]。此类缺陷在较低能量激光的辐照下($< 1 \text{ J/cm}^2$),会形成微小尺寸的损伤点^[9]。这类损伤点的数量最多,也最为密集^[10]。其形貌可以描述为一个中心损伤核,周边环绕着损伤区域^[11]。当辐照能量密度增加到 2 J/cm^2 时,损伤点的损伤区域扩张,点的尺寸也随之增加。尽管损伤点的形貌结构发生了一定的变化^[12],但其结构依然可以视作与初始损伤点类似。随着辐照能量密度 $> 2 \text{ J/cm}^2$,部分损伤点较为密集的区域,原有的初始损伤点与周边损伤点合并成一片新的、损伤面积较大的损伤区域。该区域在光学显微镜下显示为一个完整的亮点,通过SEM和XRF可清晰地表征为多个小尺寸损伤点的合并^[13]。当辐照能量密度 $> 6.7 \text{ J/cm}^2$ 时,形成尺寸巨

大(实际测量时直径 $D > 1000 \mu\text{m}$)、结构清晰完整的损伤点^[14]。这类损伤点占元件表面损伤面积的绝大部分,是降低系统光束传输质量与元件工作寿命的关键因素。

DKDP 元件激光诱导损伤是复杂的三维结构,元件表面的二维损伤分布与光束辐照能量密度和传输质量存在着对应关系。不同能量密度辐照对应不同尺寸的损伤点,以此为依据对损伤点进行分类。

(1) $D < 50 \mu\text{m}$ 的损伤点:参考类似实验结果可知,此类损伤对应初始损伤或低通量密度 ($< 1 \text{ J/cm}^2$) 辐照的工作环境^[15]。

(2) $50 \mu\text{m} < D < 100 \mu\text{m}$ 的损伤点:根据类似实验结果可知,当元件受到中通量密度 ($\leq 2 \text{ J/cm}^2$) 激光辐照时,损伤点的最大直径约为 $100 \mu\text{m}$ ^[16]。

(3) $100 \mu\text{m} < D < 1000 \mu\text{m}$ 与 $D > 1000 \mu\text{m}$ 的损伤点:类似实验结果显示,当元件受到中通量密度 ($\leq 6.7 \text{ J/cm}^2$) 激光辐照时,损伤点的最大直径约为 $300 \mu\text{m}$ ^[16]。实际观测显示,退役元件表面 $D > 300 \mu\text{m}$ 的损伤点,未观察到明显的内核中心区、环形损伤区与周边扩张区结构,属于多个损伤点扩张合并后形成的大面积损伤区域;在 $D \approx 1000 \mu\text{m}$ 时可观察到清晰完整的损伤结构。根据以上情况,数据统计时将 $100 \mu\text{m} < D < 1000 \mu\text{m}$ 的损伤点归为一类统计, $D > 1000 \mu\text{m}$ 的损伤点则单独进行统计。

为了更好地研究损伤分布的特性,统计分为两部分来进行:一部分根据损伤点面积与元件表面积比,另一部分根据损伤点数量所占比。

从统计数据来看,该元件的损伤面积占总面积的比例为 4.6%,无论是以传统的挡光面积所占比 ($\leq 3\%$)^[17] 还是以等效 PSD 曲线计算 ($\approx 4\%$)^[18], 损伤部分所占比均超过可正常使用的临界值,属于已达到工作寿命的元件。不同辐照能量密度在 DKDP 元件表面造成损伤点尺寸可以预测,特定尺寸范围内的损伤点产生与辐照光束的能量密度关联紧密,因此利用不同类型损伤点的分布可以较为准确地评估和分析元件表面不同能量密度光束的分布及变化特性^[19]。

由表 1 可知,尺寸为 $100 \mu\text{m} < D < 1000 \mu\text{m}$ 的损伤点的数量最多,其次是 $D > 1000 \mu\text{m}$ 的损伤点,再次是 $50 \mu\text{m} < D < 100 \mu\text{m}$ 的损伤点, $D < 50 \mu\text{m}$ 的损伤点的数量可以忽略不计; $100 \mu\text{m} < D < 1000 \mu\text{m}$ 的损伤点数量远高于 $D > 1000 \mu\text{m}$ 与 $50 \mu\text{m} < D < 100 \mu\text{m}$ 的两种损伤点数量之和。

表 1 不同类型损伤统计结果 (DKDP)

Table 1 Statistical result of different types of damages (DKDP)

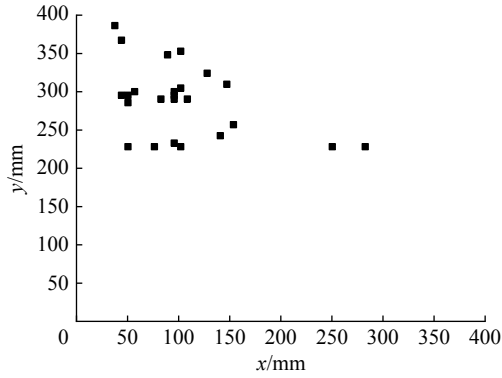
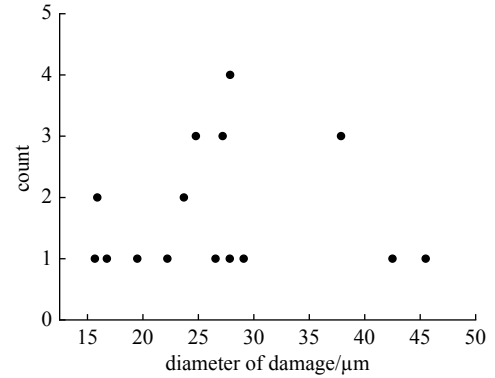
diameter of crater $D/\mu\text{m}$	count of craters	quantitative proportion/%	area of damage/ mm^2	area proportion/%
< 50	26	0.70	0.04	$\approx 0.000 02$
$50 \sim 100$	617	16.58	3.20	< 0.002
$100 \sim 1 000$	2675	71.89	221.76	0.001 2
$> 1 000$	403	10.83	8 335.01	0.045 1
total	3721		8 560.01	0.046 3

由表 1 还可知,损伤面积绝大部分是由 $D > 1000 \mu\text{m}$ 的损伤点组成, $100 \mu\text{m} < D < 1000 \mu\text{m}$ 的损伤点所占损伤面积很小, $50 \mu\text{m} < D < 100 \mu\text{m}$ 与 $D < 50 \mu\text{m}$ 的损伤点所占损伤面积可以忽略不计。

2.3 不同类型损伤的统计分析

2.3.1 损伤点直径 $D < 50 \mu\text{m}$ 的损伤分布特性

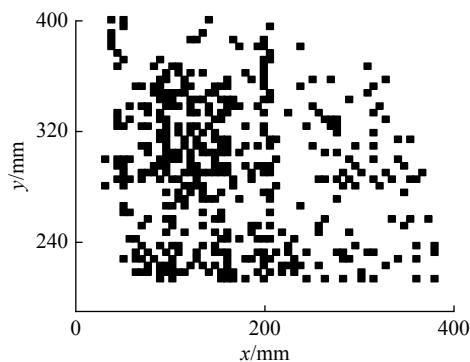
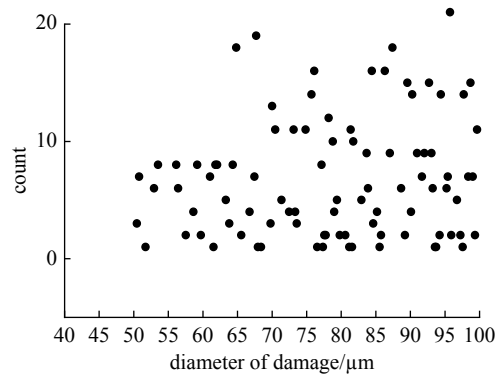
$D < 50 \mu\text{m}$ 的损伤点的分布特点为:数量少、分散且不均匀,如图 2 所示。从图中可以看出,此类损伤点主要分布在样品的左上半部,下半部几乎是空白;右上半部仅发现 2 个损伤点。此外即使在分布较为密集的左上半部,损伤点密度与其他三种损伤相比也非常低。之前的研究表明,较低的辐照通量 ($< 1 \text{ J/cm}^2$) 即可形成此类损伤,且损伤点数量的增长速度明显高于其余 3 种损伤点^[20]。不同于简单的小口径晶体辐照结果,此类损伤的数量属于样品统计中可忽略不计的部分。图 3 为直径 $D < 50 \mu\text{m}$ 的损伤点数量分布图,通过统计每个损伤点直径发现,此类损伤点的直径并未在某一尺寸区域有较为集中的分布。分析认为其原因主要是直径 $D < 50 \mu\text{m}$ 损伤点在后续高通量的辐照环境下继续发展,损伤面积不断扩展,绝大部分初始产生的微小损伤点扩展或合并为更大尺寸的损伤点,只有极少量损伤点在后续高通量辐照环境下并未扩大损伤区域,成为残存的初始损伤点。综上所述, $D < 50 \mu\text{m}$ 的损伤点的分布与辐照密度 $< 1 \text{ J/cm}^2$ 的光束能量分布已没有直接关联,不能作为评估低通量环境下光束的能量分布。

Fig. 2 Distribution region of craters($D < 50 \mu\text{m}$)图2 直径 $D < 50 \mu\text{m}$ 损伤点的损伤位置分布图Fig. 3 Count of craters of different diameter ($D < 50 \mu\text{m}$)图3 直径 $D < 50 \mu\text{m}$ 的损伤点数量分布图

2.3.2 $50 \mu\text{m} < D < 100 \mu\text{m}$ 的损伤分布特性

与 $D < 50 \mu\text{m}$ 的损伤点相比, $50 \mu\text{m} < D < 100 \mu\text{m}$ 的损伤点数量和损伤面积所占比例均有明显增加,在样品表面的分布也更加平均。图4为 $50 \mu\text{m} < D < 100 \mu\text{m}$ 损伤点的损伤位置分布图,就整体分布来看,损伤点在样品左半部分的密度高于样品右半部分。尽管此类损伤分布点的数量和损伤面积较前一种有明显提高,但其所占比例仍属于可以忽略的部分。

根据同类样品测试结果^[21],此类损伤出现于辐照密度 $> 1 \text{ J/cm}^2$ 的辐照环境,数量增长速率明显高于 $D > 100 \mu\text{m}$ 的损伤点。而在样品的统计数据中,此类损伤点的数量明显低于 $100 \mu\text{m} < D < 1000 \mu\text{m}$ 的损伤点。图5为 $50 \mu\text{m} < D < 100 \mu\text{m}$ 的损伤点数量分布图,统计每个损伤点直径发现,损伤点的尺寸在直径 $65 \sim 90 \mu\text{m}$ 区域有一定的集中,但这一趋势并不明显。出现这一现象的原因与 $D < 50 \mu\text{m}$ 的损伤点类似,即初始产生的损伤点在后续高能辐照环境下,损伤区域不断扩张,只有少量损伤点的损伤区域未扩大,并为系统所记录统计。尽管此类损伤点的数量与分布均匀程度较 $D < 50 \mu\text{m}$ 的损伤点有明显增加,但是大部分初始损伤点在后续的更高能量密度辐照条件下损伤区域出现扩张而不被统计。因此,残存的 $50 \mu\text{m} < D < 100 \mu\text{m}$ 损伤点的分布特性亦不能准确地反应辐照密度为 $1 \sim 2 \text{ J/cm}^2$ 的光束能量分布。尽管如此,对比图2、图4、图3和图5可知,样品右上半部几乎不存在 $D > 5 \mu\text{m}$ 的损伤点,由此可以推测光束在该区域的辐照能量明显低于正常值。

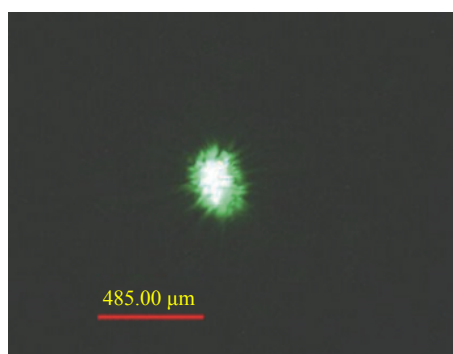
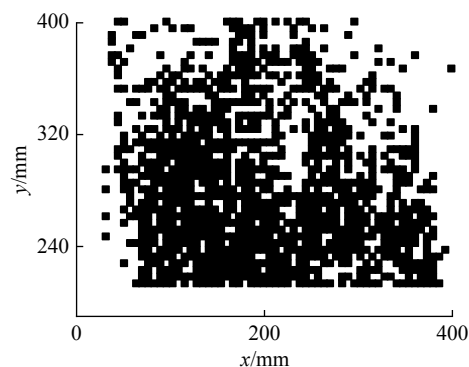
Fig. 4 Count of craters of different diameter ($50 \mu\text{m} < D < 100 \mu\text{m}$)图4 $50 \mu\text{m} < D < 100 \mu\text{m}$ 损伤点的损伤位置分布图Fig. 5 Count of craters of different diameter ($50 \mu\text{m} < D < 100 \mu\text{m}$)图5 $50 \mu\text{m} < D < 100 \mu\text{m}$ 的损伤点数量分布图

2.3.3 $100 \mu\text{m} < D < 1000 \mu\text{m}$ 的损伤分布特性

$100 \mu\text{m} < D < 1000 \mu\text{m}$ 的损伤点的数量超过了另外3种损伤点数量的总和,损伤点密度和分布均匀性也是4种损伤点中最高的。

使用光学镜头观察此类损伤点时,获得的图像是一簇明亮的斑点,周边环绕着亮度稍低的损伤区域,如图6所示。而文献[13]使用XRF研究此类损伤点微结构,损伤点在同步辐射下出现了多处明显的元素聚集(局部损伤点),这一结论为SEM所证明^[22]。由此可知,此类损伤点是由多个直径较小的损伤点在后续辐照条件下扩展后合并而成,并非一个独立的、直径较大的完整的损伤点。

图7为 $100 \mu\text{m} < D < 1000 \mu\text{m}$ 的损伤点的损伤位置分布图。从图中可以看出,除底部边缘部分之外,样品表面

Fig. 6 A typical crater ($100\ \mu\text{m} < D < 1000\ \mu\text{m}$)图 6 一个典型的 $100\ \mu\text{m} < D < 1000\ \mu\text{m}$ 的损伤点Fig. 7 Distribution region of craters ($100\ \mu\text{m} < D < 1000\ \mu\text{m}$)图 7 $100\ \mu\text{m} < D < 1000\ \mu\text{m}$ 损伤点的损伤位置分布图

均有此类损伤分布,且分布密度非常均匀,除左上角与右上角分布密度稍低之外,其余部分的分布密度基本保持一致。尽管此类损伤点的数量最多,但是损伤面积所占比例较小,与数量不成比例。图 8 为 $100\ \mu\text{m} < D < 1000\ \mu\text{m}$ 的损伤点的数量分布图,与其他 3 种损伤点不同,此类损伤点的尺寸集中趋势非常明显,大部分损伤点直径集中在 $100\sim 300\ \mu\text{m}$ 的区域内,其余尺寸点所占比例很小。

此外, $100\ \mu\text{m} < D < 1000\ \mu\text{m}$ 的损伤点的分布与 $2\sim 6.7\ \text{J}/\text{cm}^2$ 的光束能量分布关联紧密。尽管样品曾工作在辐照能量密度 $> 6.7\ \text{J}/\text{cm}^2$ 环境下,但此时辐照光束高斯分布较为明显,高辐照通量明显集中在光束中心,样品其余部分损伤点不会有明显的扩展与变化。高辐照通量形成的损伤可以清晰观察到内核中心、环形损伤和周边损伤区域,且多个损伤点扩展合并,与中低通量下形成的扩展损伤点差异明显。由此可以认为,研究辐照能量密度在 $2\sim 6.7\ \text{J}/\text{cm}^2$ 的光束的能量分布,只需分析 $100\ \mu\text{m} < D < 1000\ \mu\text{m}$ 的损伤点分布特性即可,不必过多考虑辐照能量密度 ($> 6.7\ \text{J}/\text{cm}^2$) 对 $100\ \mu\text{m} < D < 1000\ \mu\text{m}$ 的损伤点的影响。

综合分析图 4~图 8 可知,辐照密度在 $2\sim 6.7\ \text{J}/\text{cm}^2$ 的光束能量分布较为均匀。从 $100\ \mu\text{m} < D < 1000\ \mu\text{m}$ 的损伤点的分布可知,光束能量密度下半部高于上半部,且下半部的辐照能量分布较上半部密集且均匀;上半部光束辐照密度存在一定差异,左半部的辐照密度稍高于右半部。从总体上看,光束能量分布比较均匀,没有较明显高斯分布。

2.3.4 $D > 1000\ \mu\text{m}$ 的损伤分布特性

样品表面绝大部分损伤区域均由 $D > 1000\ \mu\text{m}$ 损伤点组成,其损伤面积所占比例远高于另外 3 种损伤点的总和。

使用光学显微镜观察 $D > 1000\ \mu\text{m}$ 损伤点,如图 9 所示,与 $100\ \mu\text{m} < D < 1000\ \mu\text{m}$ 的差异非常明显,其损伤部分形成内核中心区、环形损伤区和周边扩张区。当使用 X 射线吸收近边结构 (XANES) 研究元件损伤点的微结构时,显示辐照损伤区域内形成了钾、磷、氧三种元素所构成的多种化合物组合^[23]。

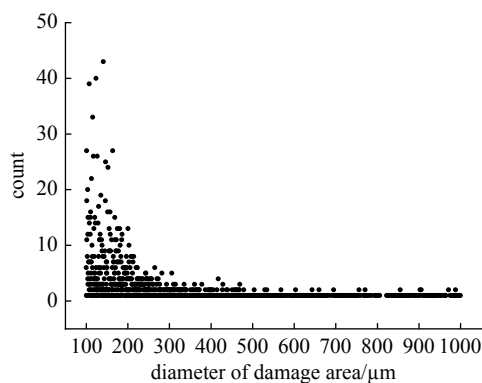
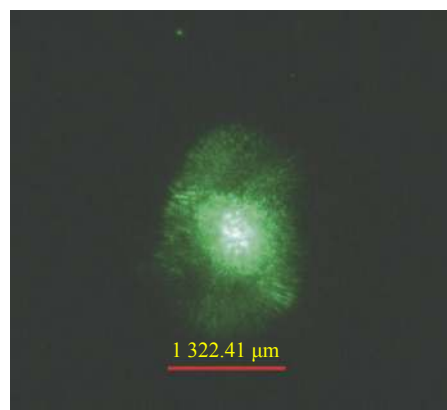
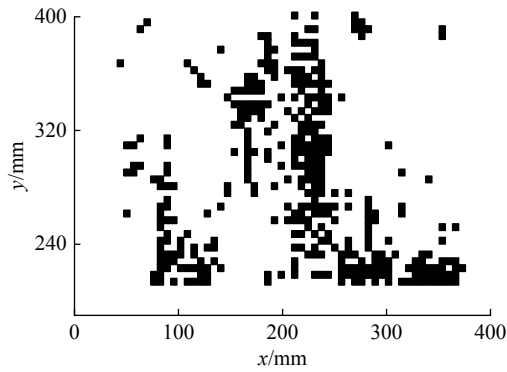
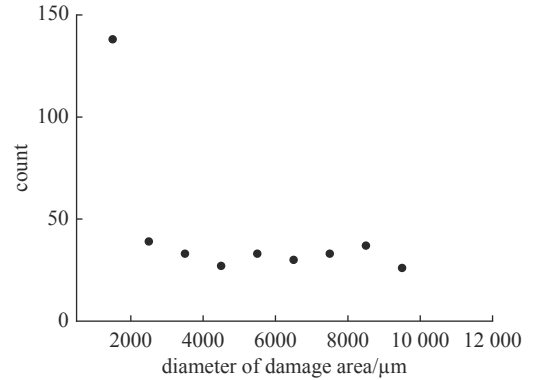
Fig. 8 Count of craters of different diameter ($100\ \mu\text{m} < D < 1000\ \mu\text{m}$)图 8 $100\ \mu\text{m} < D < 1000\ \mu\text{m}$ 损伤点的数量分布图Fig. 9 A typical crater ($D > 1000\ \mu\text{m}$)图 9 一个典型的 $D > 1000\ \mu\text{m}$ 损伤点

图 10 为 $D > 1000\ \mu\text{m}$ 损伤点的损伤位置分布图,可以看出,这类损伤分布非常不均匀,多集中于样品中心周边,仅有下半部分尚有少量分布,其余部分则接近空白。

图 11 为 $D > 1000\ \mu\text{m}$ 损伤点的数量分布图,其尺寸在 $1000\sim 2000\ \mu\text{m}$ 的区域内有一定的集中,在其他区域数量

Fig. 10 Distribution region of craters($D > 1000 \mu\text{m}$)图 10 $D > 1000 \mu\text{m}$ 损伤点的损伤位置分布图Fig. 11 Count of craters of different diameter ($D > 1000 \mu\text{m}$)图 11 $D > 1000 \mu\text{m}$ 损伤点的数量分布图

较为平均。

尽管损伤点尺寸与样品表面的前驱体有较为密切的关系,导致相同的辐照环境下产生不同尺寸的损伤点^[24]。但是相关实验的结论显示,此类损伤出现在辐照密度不高于 6.7 J/cm^2 的环境下,损伤点的尺寸不会继续增加^[16]。如果是相邻的多个损伤点扩张并合并为尺寸较大的损伤点,则无法形成典型的损伤点结构,不会与本类损伤点产生混淆。因此可以得出以下结论: $D > 1000 \mu\text{m}$ 损伤点的分布与光束通量密度平均值 $> 6.7 \text{ J/cm}^2$ 的辐照光束能量分布密切相关,与光束通量密度平均值 $< 6.7 \text{ J/cm}^2$ 的辐照光束不产生关联。

$D > 1000 \mu\text{m}$ 损伤点分布可以证明辐照光束能量密度 $> 6.7 \text{ J/cm}^2$ 时,光束能量分布严重不平衡,光束中心附近的密度辐照密度最高;其余部分的能量密度较小,在部分中心区域(左上半部、右上半部)也可以认为其能量密度值远低于平均值。这说明对于大口径高能激光器而言,辐照能量越高,辐照光束越难做到均匀分布,在此环境下,即使光束通量整体密度平均值 $> 6.7 \text{ J/cm}^2$,也只有个别区域的能量密度明显高于此值,其余部分所受到的辐照能量密度则低于此值。从宏观统计来看,能量密度 $> 6.7 \text{ J/cm}^2$ 光束的能量辐照累积呈高斯分布,这一特性可以很好地关联 $D > 1000 \mu\text{m}$ 损伤点的分布特性,也与理论计算结果相符^[25]。

2.4 讨论

2.4.1 相关实验

徐子媛^[10]对 DKDP 进行了研究,结果显示使用 3ω 辐照样品,在能量密度相同的前提下,当脉宽低于 1 ns 时,尽管出现损伤点的数量和损伤几率要明显高于 ns 级,但其所造成的损伤点直径低于 $5 \mu\text{m}$,由此产生的损伤面积所占占比可忽略不计。

S. Reyné^[26]的研究则证实,实现相同的损伤密度和损伤面积,使用 ω 和 2ω 辐照时所需的能量密度要远高于 3ω 。胡国行^[27]在研究 KDP 损伤微形貌时发现,不同波长辐照在 KDP 晶体上的损伤点存在差异;吴金明等人^[28]在研究多波长激光辐照 DKDP 晶体的耦合预处理效应时同样观察到该现象,即: 1064 nm 激光的损伤显微形貌由中心点、围绕中心的微损伤变化区域和定向裂纹组成,而 355 nm 激光的损伤显微形貌主要由中心点和微损伤变化区域组成,很难观察到定向裂纹。对比图 6 和图 9 中的损伤点,显然属于后一种损伤。

胡国行^[20-21, 29]在使用 3ω 激光(波长 355 nm , 脉宽 6 ns)、R-on-1 模式测试损伤阈值变化特性证明,当辐照能量密度不再增加的情况下,样品表面损伤点的数量和直径都不会有明显增长。Carr 等人^[30]也进行了类似的研究并得出相同结论。韩伟^[15]等人测试了大口径元件在 351 nm 波长的不同辐照密度环境下损伤点尺寸的变化特性,证明了此类 DKDP 元件在辐照密度低于 6.7 J/cm^2 时,损伤点尺寸不会继续增加。

综上所述,通过对 DKDP 在多种辐照条件下的损伤变化特性研究可知:在对样品表面的损伤进行统计时, 3ω (ps 脉宽)辐照所产生的损伤可忽略不计;样品表面的主要损伤点($D > 100 \mu\text{m}$)与 ω 辐照无直接关联;以上因素不会对研究样品表面的损伤分布特性与光束能量分布的关系产生影响; $100 \mu\text{m} < D < 1000 \mu\text{m}$ 的损伤点分布与辐照通量在 $2 \sim 6.7 \text{ J/cm}^2$ 区间的光束能量密度分布密切相关;相应的, $D > 1000 \mu\text{m}$ 的损伤点分布与辐照通量 $> 6.7 \text{ J/cm}^2$ 的光束能量密度分布紧密关联。

2.4.2 理论计算

理论计算研究证明,辐照能量、辐照次数以及辐照密度分布函数形成关系可表示为

$$N = A \int \rho(\varphi) f(\varphi) d(\varphi) \quad (1)$$

式中: N 为辐照次数; A 为光束口径; $\rho(\varphi)$ 为损伤表面的能量密度; $f(\varphi)$ 为能量分布概率密度函数^[31-32]。

但这一情况仅限于小口径激光器,对于大口径高能激光器而言,由于其结构更为复杂,光束在各种元器件之间传输时受到随机产生的光束能量分布变化的影响更加明显。在多次激光辐照条件下,辐照次数与单发/次的光束能量分布 $\Phi(x,y)$ 并未有无关的关联;与元件表面任意区域所承受的最高辐照密度 $\Phi_{\max}(x,y)$ 的关联更为紧密。因此对于大口径元件而言,更接近损伤点的实际数量的计算公式为

$$N = A \int \rho(\varphi) f_{\max}(\varphi) d\varphi \quad (2)$$

式中: $f_{\max}(\varphi)$ 为 $\Phi_{\max}(x,y)$ 的概率密度分布函数, $\Phi_{\max}(x,y)$ 为 N 发次累计的最大光通量分布,如式(3)所示。

$$\Phi_{\max}(x,y) = \max_{i=1,2,\dots,N} \{\Phi_i(x,y)\} \quad (3)$$

经过数据拟合以及与测试数据相对比发现,尽管 $\Phi_{\max}(x,y)$ 是一个随着 N 增加而缓慢增长的递增函数,但它的累计概率分布函数 $f_{\max}(\Phi)$ 仍然是一个服从高斯分布的函数^[25]。由此造成大口径光学元件损伤也必然满足这一分布。也可以很好地解释 $50 \mu\text{m} < D < 100 \mu\text{m}$, $100 \mu\text{m} < D < 1000 \mu\text{m}$ 以及体损伤点直径 $D > 1000 \mu\text{m}$ 三种损伤类型的分布特点。

2.4.3 大尺寸 KDP 元件

使用分辨率为 $4 \mu\text{m}$ 、放大倍率为 50 倍的显微镜拍摄大尺寸 KDP 元件 ($330 \text{ mm} \times 330 \text{ mm} \times 10 \text{ mm}$) 照片共 2 802 张,损伤统计结果如表 2 所示。

对比表 1 和表 2 统计数据可知,在忽略损伤点尺寸的前提下,KDP 晶体表面单位面积损伤点密度 (0.078 mm^{-2}) 明显高于 DKDP 的损伤点密度 (0.020 mm^{-2})。

KDP 损伤点分类统计所占比例如图 12 所示。由图 12 可知,KDP 晶体表面损伤点小尺寸占比较高, $D < 30 \mu\text{m}$ 的损伤点数量占据损伤点总数的绝大部分(79.87%),其中 $D < 10 \mu\text{m}$ 的损伤点数量占据损伤点总数近一半(48.16%)。

为了更好地对比 KDP 与 DKDP 的差异,依据表 2 的统计方式对 DKDP 的损伤进行分类制作了表 3。与 KDP 的损伤点相比较,DKDP 的大尺寸损伤点 ($> 50 \mu\text{m}$) 所占总数比例 (99.30%) 远高于 KDP (4.19%),而且在 $D > 50 \mu\text{m}$ 的损伤点中, $D > 100 \mu\text{m}$ 的损伤点占了损伤点数量和损伤面积的绝大部分。

鉴于测绘 DKDP 的显微镜无法观测到 $D < 5 \mu\text{m}$ 的损伤点,统计时并未发现直径在 $5 \sim 10 \mu\text{m}$ 区间内的损伤点。数据统计时只计算点数量,不考虑点直径及面积所占比,忽略 KDP 表面直径 $D < 10 \mu\text{m}$ 的损伤点。在此种对比条件下,KDP 表面直径较小的损伤点 ($10 \mu\text{m} < D < 50 \mu\text{m}$) 依然在损伤点数量中占据很高的比例。KDP 的点损伤密度 (0.04 mm^{-2}) 也明显高于 DKDP (0.02 mm^{-2})。

胡国行^[29]等人在研究不同晶向的 KDP 和 DKDP 损伤特性时观察到,不同晶向切割的 KDP 和 DKDP 晶体,在相同的辐照条件下,损伤发生概率和损伤点数量增长速率均有较大差异。采用 z 轴向切割的晶体,在辐照密度低于 8 J/cm^2 时,KDP 与 DKDP 损伤点数量增长速率基本相同;

表 2 损伤统计结果 (KDP)

Table 2 Statistical result of damages result (KDP)

diameter of crater/ μm	count of craters	quantitative proportion/%
<10	4087	48.16
10~20	1736	20.45
20~30	955	11.25
30~40	830	9.78
40~50	523	6.16
>50	356	4.19
total	8487	

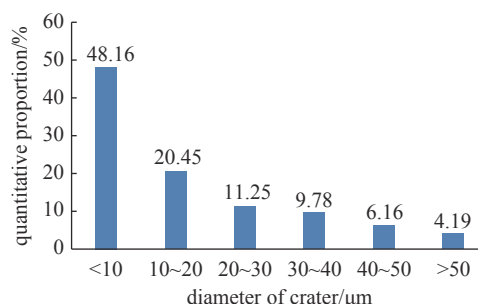


Fig. 12 Statistical of result(KDP)

图 12 KDP 损伤点分类统计所占比例

表 3 对比损伤统计结果 (DKDP)

Table 3 Contrast statistics of result(DKDP)

diameter of crater/ μm	count of craters	quantitative proportion/%
<5	0(out of resolution)	0.00
5~10	0	0.00
10~20	5	0.13
20~30	16	0.43
30~40	3	0.08
40~50	2	0.05
>50	3695	99.30
total	3721	

辐照密度高于 8 J/cm^2 时, DKDP 的损伤点数量增长速率高于 KDP; 在相同的辐照条件下采用三倍频向切割的晶体, 辐照密度高于 3 J/cm^2 时, KDP 的损伤点数量增长速率明显高于 DKDP, 且呈指数型增长。这一结论符合统计数据对比结果。

朱德星^[21]采用 S-on-1 模式测试研究 DKDP 与 KDP 晶体的疲劳效应时观察到, 在同样的辐照环境下(辐照密度低于 8 J/cm^2), KDP 的损伤点直径增长速率与 DKDP 的无明显差异。

综上所述, 现有数据统计的结果是 KDP 的损伤点密度 (0.04 mm^{-2} , 忽略直径 $< 10 \mu\text{m}$ 的损伤点) 约为 DKDP 的 2 倍 (0.02 mm^{-2} , 忽略直径 $< 10 \mu\text{m}$ 的损伤点)。一般情况下, 随着辐照能量密度的增加, 采用三倍频向切割 KDP 的损伤点数量增速应明显高于 DKDP^[29]。而 KDP 的损伤统计数据中, 体损伤点的数量非常少。综合以上研究结果分析, 2 块样品损伤点密度差异产生的主要原因可能是处于不同的辐照通量密度环境, 且 KDP 的通量密度环境明显低于 DKDP。在低通量辐照条件下, 大尺寸 KDP/DKDP 的差异有限; 利用 KDP 与 DKDP 大尺寸元件的损伤特性对比, 可以较好地还原 DKDP 晶体在使用初期位于低辐照功率环境下的损伤点分布特性。

3 结 论

本文基于对退役元件表面各种类型损伤的数量与分布情况的统计, 并结合类似实验的相关研究成果以及相关数学统计模型进行分析, 得出此类元件所在位置的损伤特性分布规律。分析统计数据结果如下: (1) 对于工作在能量辐照密度环境下的大尺寸元件, $D < 100 \mu\text{m}$ 损伤点的分布特性对于研究低通量密度光束 ($< 2 \text{ J/cm}^2$) 的能量分布仅有很小的参考价值; (2) $100 \mu\text{m} < D < 1000 \mu\text{m}$ 的损伤点的分布特性与中通量密度辐照光束 ($2 \sim 6.7 \text{ J/cm}^2$) 的能量分布有着较为密切的关联, 对于测试样品所处的工作环境而言, 辐照密度 $2 \sim 6.7 \text{ J/cm}^2$ 的光束能量分布比较均匀, 但光束下半部的能量密度高于上半部, 左上半部的辐照能量高于右上半部; (3) $D > 1000 \mu\text{m}$ 的损伤点的分布特性与高通量密度辐照光束 ($> 6.7 \text{ J/cm}^2$) 能量密度分布密切相关, 与中通量和低通量密度辐照光束能量分布无任何关联。测试样品所处的工作环境下, 只有中心部分的辐照能量密度明显高于平均值, 其余部分的能量则低于平均值; 与中通量密度辐照光束相比, 光束的能量密度分布严重不均, 呈明显的高斯状态; (4) 元件右上角无法观测到任何 $D > 5 \mu\text{m}$ 的损伤点, 与该元件的实际工作环境有密切关联, 可以推测该位置所受到的辐照能量密度低于其他区域。

根据以上结论可知, 不同类型的损伤在元件表面的分布与元件受到的辐照光束能量密度分布有着直接关联。通过对元件表面不同种类的损伤分布特性的研究, 可以有效地分析系统光束的实际能量分布, 特定元件工作环境与损伤特性, 从而为相应的元件寿命评估提供有价值的参考资料与依据。

致 谢 感谢山东大学晶体所诸位教师在实验中给予的指导, 以及几位博士研究生给予的帮助。

参 考 文 献:

- [1] Melninkaitis A, Sinkevicius M, Lipinskas T, et al. Characterization of the KDP crystals used in large-aperture doublers and triplers[C]//Proceedings of SPIE 5647, Laser-Induced Damage in Optical Materials: 2004. 2005: 298-305.
- [2] Han Wei, Wang Fang, Zhou Lidan, et al. Suppression of transverse stimulated Raman scattering with laser-induced damage array in a large-aperture potassium dihydrogen phosphate crystal[J]. *Optics Express*, 2013, 21(25): 30481-30491.
- [3] Negres R A, Raman R N, Bude J D, et al. Dynamics of transient absorption in bulk DKDP crystals following laser energy deposition[J]. *Optics Express*, 2012, 20(18): 20447-20458.
- [4] Zheng Yinbo, Zhou Xinda, Ba Rongsheng, et al. Microscopic characterization of bulk damage resistance of DKDP nonlinear crystals[J]. *Optics & Laser Technology*, 2020, 121: 105672.
- [5] Han Wei, Huang Wanqing, Wang Fang, et al. Laser-induced damage on large-aperture fused silica gratings[J]. *Chinese Physics B*, 2010, 19: 106105.
- [6] Lemaître L, Dupuy G, Bourgeade A, et al. Large beam damage experiments in fused silica optics at 351nm[C]//Proceedings of SPIE 9238, Pacific Rim Laser Damage 2014: Optical Materials for High-Power Lasers. 2014: 92380C.
- [7] Burnham A K, Hackel L, Wegner P, et al. Improving 351-nm damage performance of large-aperture fused silica and DKDP optics[R]. UCRL-JC-144298, 2002.
- [8] 彭恩鸿. KDP晶体加工微纳缺陷对激光损伤影响和微修复新方法研究[D]. 哈尔滨: 哈尔滨工业大学, 2019 (Peng Enhong. Study on the effect of machining micro/nano defects on laser damage and novel micro-repairing method of KDP crystal[D]. Harbin: Harbin Institute of Technology, 2019)
- [9] DeMange P, Negres R A, Carr C W, et al. A multi-dimensional investigation of laser conditioning in KDP and DKDP crystals[R]. UCRL-CONF-216863, 2005.
- [10] 徐子媛, 王岳亮, 赵元安, 等. 不同脉冲宽度355 nm波长激光诱导DKDP晶体损伤特性[J]. *强激光与粒子束*, 2019, 31: 091004. (Xu Ziyuan, Wang Yueliang, Zhao Yuan'an, et al. Laser damage behaviors of DKDP crystals dominated by laser pulse duration[J]. *High Power Laser and Particle Beams*, 2019, 31: 091004)
- [11] Hu Guohang, ZhaoYuan'an, Sun Shaotao, et al. Characteristics of 355 nm laser damage in KDP and DKDP crystals[J]. *Chinese Physics Letters*, 2009, 26:

097802.

- [12] Carr C W, Feit M D, Muyco J J, et al. Effect on scattering of complex morphology of DKDP bulk damage sites[C]//Proceedings of SPIE 5647, Laser-Induced Damage in Optical Materials: 2004. 2005: 532-539.
- [13] Cao Zhiqiang, Ju Xin, Yan Chunyan, et al. Synchrotron micro-XRF study of metal inclusions distribution in potassium dihydrogen phosphate (KDP) induced by ultraviolet laser pulses[J]. *Optical Materials Express*, 2015, 5(10): 2201-2208.
- [14] Guillet F, Bertussi B, Surmin A, et al. Effect of strain on laser damage and its relation with precursor defects in KDP/DKDP[C]//Proceedings of SPIE 8190, Laser-Induced Damage in Optical Materials: 2011. 2011: 819027.
- [15] Tian Ye, Han Wei, Cao Huabao, et al. Characteristics of laser-induced surface damage on large-aperture KDP crystals at 351 nm[J]. *Chinese Physics Letters*, 2015, 32: 027801.
- [16] Han Wei, Zhou Lidan, Xiang Yong, et al. Characteristics of laser-induced surface and bulk damage of large-aperture deuterated potassium dihydrogen phosphate at 351 nm[J]. *Chinese Physics Letters*, 2016, 33: 027803.
- [17] Hunt J T. National Ignition Facility performance review 1998[R]. UCRL-ID-138120-98, 1999.
- [18] Spaeth M L, Manes K R, Widmayer C C, et al. National Ignition Facility wavefront requirements and optical architecture[J]. *Optical Engineering*, 2004, 43(12): 2854-2865.
- [19] 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: 092005. (Ju Xin. Experimental research on the dynamics of ultraviolet laser-induced damage[J]. *SCIENTIA SINICA Physica, Mechanica & Astronomica*, 2021, 51: 092005)
- [20] Hu Guohang, Zhao Yuan'an, Sun Shaotao, et al. Growth characteristics and mechanism of surface and bulk damage in KDP and DKDP crystals[J]. *Chinese Physics Letters*, 2009, 26: 087805.
- [21] 朱德星. KDP/DKDP非线性晶体的激光诱导损伤特性研究[D]. 北京: 中国工程物理研究院, 2018 (Zhu Dexing. Study on laser induced damage characteristics of KDP / DKDP nonlinear crystals[D]. Beijing: China Academy of Engineering Physics)
- [22] Li Xiangcao, Liu Bao'an, Yan Chunyan, et al. Structures of retired components and KDP crystals irradiated by high fluence using synchrotron μ -XRF and μ -XRD[J]. *Optical Materials Express*, 2019, 9(2): 845-859.
- [23] Li Xiangcao, Liu Bao'an, Yan Chunyan, et al. Investigating the surface electronic structures of retired components and irradiated KDP crystals with different fluences by XANES spectroscopy[J]. *Optical Materials Express*, 2018, 8(4): 816-823.
- [24] Hu Guohang, Zhao Yuan'an, Li Dawei, et al. Wavelength dependence of laser-induced bulk damage morphology in KDP crystal: determination of the damage formation mechanism[J]. *Chinese Physics Letters*, 2012, 29: 037801.
- [25] 韩伟, 周丽丹, 李富全, 等. 光束通量空间分布随机变化的统计分析[J]. *物理学报*, 2014, 63: 074204. (Han Wei, Zhou Lidan, Li Fuquan, et al. Statistical analysis of shot-to-shot variation of laser fluence spatial distribution[J]. *Acta Physica Sinica*, 2014, 63: 074204)
- [26] Reyn  S, Duchateau G, Hallo L, et al. Multi-wavelength study of nanosecond laser-induced bulk damage morphology in KDP crystals[J]. *Applied Physics A*, 2015, 119(4): 1317-1326.
- [27] Hu Guohang, Zhao Yuan'an, Sun Shaotao, et al. A thermal approach to model laser damage in KDP and DKDP crystals[J]. *Chinese Physics Letters*, 2009, 26: 097803.
- [28] 吴金明, 赵元安, 汪琳, 等. 1064nm激光和355nm激光同时辐照DKDP晶体的耦合预处理效应[J]. *中国激光*, 2019, 46: 0501003. (Wu Jinming, Zhao Yuan'an, Wang Lin, et al. Coupling conditioning effect of DKDP crystals under simultaneous irradiation by 1064 nm laser and 355 nm laser[J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2019, 46: 0501003)
- [29] Hu Guohang, Zhao Yuan'an, Sun Shaotao, et al. One-on-one and R-on-one tests on KDP and DKDP crystals with different orientations[J]. *Chinese Physics Letters*, 2009, 26: 087801.
- [30] Carr C W, McMillian T H, Staggs M C, et al. Evolution of bulk damage initiation in DKDP[C]//Proceedings of SPIE 4932, Laser-Induced Damage in Optical Materials: 2002 and 7th International Workshop on Laser Beam and Optics Characterization. 2003: 429-433.
- [31] Laignere 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: 103105.
- [32] DeMange P, Carr C W, Radousky H B, et al. System for evaluation of laser-induced damage performance of optical materials for large aperture lasers[J]. *Review of Scientific Instruments*, 2004, 75(10): 3298-3301.