



·激光的热和力学效应·

光学元件的激光损伤问题*

赵元安^{1,2}, 邵建达^{1,2}, 刘晓凤^{1,2}, 李大伟^{1,2}

(1. 中国科学院上海光学精密机械研究所 薄膜光学实验室, 上海 201800;

2. 中国科学院强激光材料重点实验室, 上海 201800)

摘 要: 光学元件是各类激光系统不可或缺的光学功能实现部件, 其性能决定了激光系统的输出能力和光束质量。光学元件的激光损伤问题从激光发明起就一直伴随着激光技术的发展, 随着激光新技术的发展和激光新应用的牵引, 激光的波段、脉冲宽度以及重复频率等参数不断拓宽, 使得激光损伤问题更加复杂, 但万变不离其宗, 激光损伤问题的核心是光学元件或光学材料对激光的吸收机制问题。从激光与光学材料相互作用的基本原理出发, 以惯性约束聚变(ICF)激光驱动器应用的典型光学材料和光学元件为研究对象, 回顾了针对光学元件的激光损伤问题开展的科研工作, 总结了在此期间形成的关键技术和里程碑进展, 同时也对依然困扰该领域的几类光学元件存在的问题瓶颈以及进一步研究发展趋势进行了展望。

关键词: 激光损伤; 光学元件; 高功率激光; 吸收机制; 微观缺陷; 纳观尺度激光损伤先驱体
中图分类号: O436 **文献标志码:** A **doi:** 10.11884/HPLPB202234.210331

Tracking and understanding laser damage events in optics

Zhao Yuanan^{1,2}, Shao Jianda^{1,2}, Liu Xiaofeng^{1,2}, Li Dawei^{1,2}

(1. Laboratory of Thin Film Optics, Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Shanghai 201800, China;

2. Key Laboratory of High Power Laser Materials, Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Shanghai 201800, China)

Abstract: Optics are indispensable components for realizing optical functions of various laser systems, and their performances determine the output capability and beam quality of the laser system. Laser damage of optics have accompanied the developments of laser technologies since the invention of laser. With the development of new laser technologies and tractions of new laser applications, laser parameters such as the wavelength, pulse width and repetition frequency have been expanded, making laser damage more complicated. However, remaining essentially the same, the core of laser damage is the absorption mechanism of optics or optical materials. Starting from the basic principles of the interaction between laser and optical materials, this paper focuses on the typical optical materials and optics used in domestic inertial confinement fusion (ICF) laser drivers, and reviews the scientific research on laser damage of optics. Then, it summarizes the key technologies and milestone progress formed during this period. At last, it predicts several types of bottleneck optics that still plagued this field as well as the development of further research.

Key words: laser damage; optics; high power laser; absorption mechanism; micro-scale defects; nanoscale laser damage precursors

1962 年, 美国科学家 McClung F J 首次报道了红宝石激光谐振腔的银镜出现了烧孔损伤现象, 这是光学元件激光损伤问题的第一次公开报道^[1]。随后发明的调 Q 技术和锁模技术使激光脉冲峰值功率提高了数个量级, 激光损伤问题贯穿并影响着激光器的设计和运行方式, 并推动了光学材料和光学元件制造技术的发展。20 世纪 60 年代, 美国提出的激光惯性约束聚变工程建设是将光学材料激光损伤作为一个学科进行系统性研究的起点, 从 1969 年起, 美国光学工程学会(SPIE)在美国标准技术局(NIST)每年召开的光学材料激光损伤年会是各国科学家进行该领域科研进展交流的重要平台, 至今已召开 50 余届, 这些研究成功解决了从 Shiva, Nova, Beamlet 到 NIF 等系列大型激光装置的建成过程中所面临的各种激光损伤问题。

* 收稿日期: 2021-07-30; 修订日期: 2021-10-26
联系方式: 赵元安, yzhao@siom.ac.cn.

激光损伤的核心问题是光学元件的吸收机制问题,即激光能量以何种方式经何种途径传递给光学元件,只有能量在激光和元件之间进行了转移才可能发生激光损伤现象。光学元件对激光的吸收过程复杂,与材料特性和激光参数密切相关,主要有热吸收以及非线性吸收两种吸收机制,激光脉冲的持续时间是决定吸收机制的主要因素。在热吸收方面,1970年,Hopper R W 和 Uhlmann D R 提出的缺陷诱导损伤模型^[2],解释了透明材料中由于制造工艺引入的各种缺陷是通过热吸收诱导激光损伤的源头,缺陷控制成为了光学元件抗激光损伤性能提升的关键因素,这奠定了热吸收机制的理论基础。杂质诱导损伤模型可以评估材料的激光损伤阈值,而杂质缺陷诱发的等离子体热爆机制在很大程度上决定了热吸收诱导的损伤尺寸,2010年 Carr 等人在此基础上提出了吸收波前模型来解释杂质诱导损伤尺寸与激光参数的关系^[3]。在非线性和吸收机制方面,Bloembergen N 提出的多光子离化模型^[4]和 Epifanov A S 提出的雪崩离化理论^[5]解释了当激光脉冲持续时间足够短,无法通过热吸收完成激光能量向材料体系传递时,光子离化电子使透明材料金属化的主要物理过程,成为了超短脉冲激光诱导光学材料损伤的理论基础。光致电离包括多光子电离和隧穿电离,Keldysh 理论由于可以计算所有阶数多光子的吸收速率,在光致电离理论模拟中应用最为广泛,其解析解可以简单地计算多光子电离^[6],数值解在计算隧穿电离时更准确^[7]。光致离化产生的自由电子通过逆韧致吸收机制继续吸收激光能量,并与其他离子发生碰撞,所以通常认为 Keldysh 光致电离理论与 Drude 碰撞电离模型组合,能够较为准确地预测材料的破坏阈值^[8]。

基于激光损伤基本原理,研究人员找到了解决光学元件激光损伤问题的切入点,但在制造工艺环节中如何有效抑制激光损伤的源头却存在很大的实现难度,尤其是不同类型光学元件的制造方法多样、工艺过程复杂,就需要建立缺陷形成与元件制造工艺过程的联系。因而,需要根据不同类型光学元件的制造工艺开展个性化的损伤特性研究,甚至需要针对不同元件的制造工艺研制特殊的缺陷探测和分析手段,这些个性化的元件和工艺就成为激光损伤研究源源不断的驱动力。比如,多层介质膜中的节瘤缺陷是工作在 $1\ \mu\text{m}$ 激光波段的主要损伤诱因,它来源于蒸镀 HfO_2 材料时相变导致的喷溅,研究人员通过采取金属钨反应蒸发的方法抑制材料相变和喷溅,控制节瘤缺陷形成,其密度降低 1 个数量级,满足了现阶段 ICF 激光驱动器的通量需求^[9-10];而用于三倍频波段(355 nm)的多层介质膜的激光损伤却源自高低折射率材料界面的纳米尺度前驱体^[11-12],研究人员对 nm 尺度前驱体的特征、形成机制仍没有形成完整的认识,也缺乏完全有效的控制方法,这个问题仍然是今后一段时期内的研究课题。

要控制缺陷,首先要找到缺陷,缺陷检测技术成为强激光光学元件行业不可或缺的关键技术。常规意义上讲,光学材料或光学元件的缺陷一般指包裹物、表面麻点、划痕等。对于激光损伤研究而言,这里的缺陷含义更加广义,不但包含通过光学成像方法可观测的结构性缺陷,还包括其他能导致激光吸收局部增强的吸收性缺陷。由于缺陷的随机性和多样性,给检测技术提出了很高的要求,尤其是要建立缺陷与激光损伤的关系,并且要溯源到缺陷形成的工艺环节,从而指导光学元件制造工艺的优化。由于激光诱导光学元件损伤难以建立在线、原位、实时的观测手段,溯源诱导激光损伤的缺陷是困难的,往往是通过对损伤形态的表征分析进行推测,并通过缺陷植入技术予以验证。这对于那些具有几何形态、微观尺度的缺陷研究是有效的,但对于常规光学手段无法分辨的纳观尺度缺陷就难以奏效。

由于缺陷诱导激光损伤,而缺陷在光学元件中随机分布,那么对光学元件激光损伤性能的检测评价就成为了另一个重要的研究内容。激光损伤阈值测试的标准建立于 20 世纪 90 年代,并随着激光技术和光学材料的发展不断完善。激光损伤阈值测试国际标准 ISO21254 采用的是取样方法,存在测量不确定性大、离线测试结果与元件在高功率激光系统中的应用效果失配的问题,究其原因是测量激光光束是否准确捕捉到随机分布的缺陷。针对 ICF 的大口径光学元件,光栅式扫描测试方法通过类似穷举法^[13]很好地解决了缺陷漏检的问题,同时也采取了光学元件损伤进行分级评价,面向实际应用提出了功能性损伤阈值的概念。

功能性损伤阈值^[14]的提出给大口径光学元件的高通量运行提供了另外一种思路,即容忍缺陷和一定程度的损伤,这对于大型激光工程是切合实际的选择。以此为基础发展了独立于光学元件传统制造工艺的一系列后处理技术,用于去除制造工艺残留的少量缺陷或抑制这些缺陷在激光辐照下的热力学响应,包括介质膜的激光预处理^[15]、DKDP 晶体的激光预处理^[16]、熔石英的化学刻蚀处理^[17]以及 CO_2 激光修复^[18]等。这些后处理技术因元件类型而异,每种后处理技术是基于一种特定缺陷的特征及其激光损伤行为的特例选择,仍然属于对激光损伤问题追根溯源研究的范畴。

本文将我国高功率激光系统对光学元件的激光负载要求为牵引,以介质膜和 KDP/DKDP 晶体等典型光学元件为研究对象,研究缺陷诱导光学元件损伤的共性问题。首先将介绍诱导基频激光介质膜元件损伤的节瘤缺陷,

这不但 ICF 激光驱动器的重要瓶颈问题,也是其他领域激光应用薄膜元件的共性问题。它是一种典型的微观尺度缺陷,可以通过常规光学探测方法进行表征,因而容易建立缺陷与诱导损伤的直接关联关系,也为理解其形成原因并寻求其控制方法奠定基础。然后将介绍纳观尺度前驱体诱导光学元件激光损伤问题,这里介绍两类受限于纳观尺度前驱体的光学元件:KDP 类晶体和应用于皮秒脉冲的多层介质膜。由于其尺度已远小于光学分辨率,由于可以与激光损伤直接建立关联的表征技术缺失,使得这类损伤难以溯源到缺陷的形态乃至成因,是现阶段仍然困扰研究人员的问题。最后,将针对 ICF 激光领域 m 级尺寸光学元件的工程应用需求,介绍去除或抑制缺陷从而提升光学元件抗损伤能力的光栅式扫描激光预处理技术及其评价方法。

1 微观缺陷诱导光学元件激光损伤

节瘤缺陷是微观缺陷的典型代表,是 20 世纪 90 年代激光对薄膜破坏研究的主要发现之一,目前国内外对节瘤缺陷及人工种植节瘤缺陷的电场增强和损伤特性进行了大量的研究,对节瘤缺陷的损伤机制已经有了深刻的认识。

节瘤缺陷是导致基频介质膜元件损伤的主要诱因,相比其他微观缺陷,具有自身明显的形貌特征。节瘤缺陷起源于种子,由于后续膜层的沉积,在膜堆中形成如图 1 所示的抛物线结构^[19],其整体表现为一个锥体,锥体和周围膜层的界面随着膜层的不断沉积而不断改变。靠近种子的锥体边界与周围膜层不连续,随着后续膜层的不断沉积,这种不连续逐渐趋于连续。大而浅的种子,容易形成边界不连续的节瘤缺陷,小且深的种子形成的节瘤缺陷边界连续比较好。最终在薄膜表面形成鼓包结构,鼓包的径向尺度在一般几个 μm ,高度在百 nm 左右。

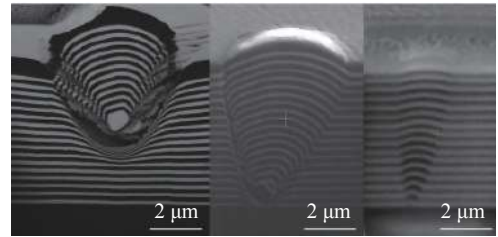


Fig. 1 Cross sections of nodules^[19]
图 1 节瘤缺陷的剖面结构^[19]

节瘤缺陷诱导的场增强效应^[20-21]是节瘤缺陷容易发生损伤的一个重要原因。根据对节瘤缺陷实际剖面表征的尺寸,对高反射膜中种子直径为 250 nm、冠直径为 2.82 μm 的节瘤缺陷诱导的电场增强效应进行了仿真分析,如图 2(a) 所示,发现电场强度平均有 2 倍的增强,因而光强则有 4 倍的增强^[20]。这使得节瘤种子吸收穿透种子上方膜堆的激光能量而迅速升温,并向周围介质进行热传导,热传导形成的温度梯度和热膨胀都将诱导热应力的产生,当热应力超过介质的抗拉极限,裂纹将产生和传播。如果种子区的温升更高将会导致种子区的熔融甚至汽化,所形成强大的内压将节瘤及周围的膜层爆炸性地喷出,最终留下节瘤坑。对节瘤缺陷及周边薄膜材料的热力学响应进行了数值仿真。图 2(b) 给出的是激光能量密度 7.5 J/cm²(1064 nm, 12 ns) 辐照条件下的径向温度分布,图 2(c) 给出的是 12 ns 末种子诱导的热应力 σ_θ 和临界应力 σ_c 分布^[22]。

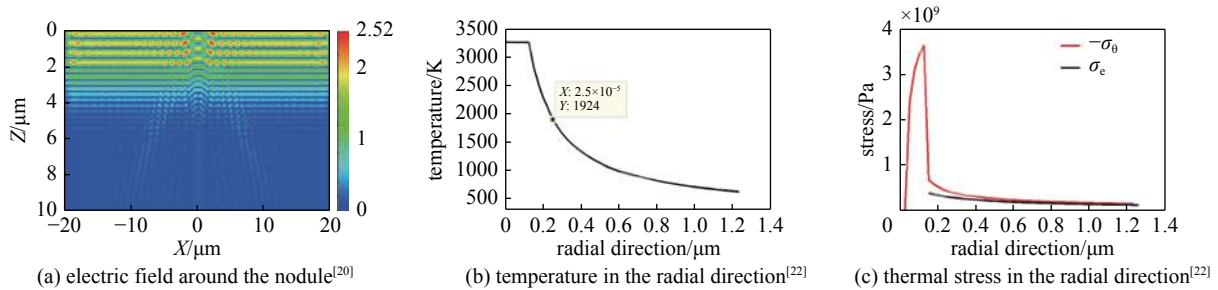


Fig. 2 Distributions of electric field, temperature and thermal stress induced by the nodule
图 2 节瘤缺陷诱导的电场、温度场、热应力分布

根据以上数值分析结果可知,在节瘤种子的周围都有可能产生裂纹并沿径向传播。但是考虑到节瘤的边界通常比较薄弱,特别是靠近种子的边界;另外,膜层 $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ 的界面也比较薄弱,因此,裂纹很容易在这两个部位产生,并沿该方向发展,形成的损伤如图 3 所示。

我们利用 FIB 刻蚀技术观察了节瘤缺陷的边界结构特征,发现越靠近种子的节瘤边界越差,随着沉积膜层数目的增加,边界逐渐变为连续。节瘤边界的不稳定性对节瘤损伤不利,且如果薄膜在外界热应力条件下裂纹将首先在节瘤处产生,本质上节瘤缺陷与膜堆的结合方式决定了其在不同激光通量下的响应特性^[19]。按照图 1 节瘤缺陷与膜堆的结合方式,可将节瘤缺陷分为两类:一类是随着后续膜层的沉积,锥体的边界与周围膜层变得连续(第

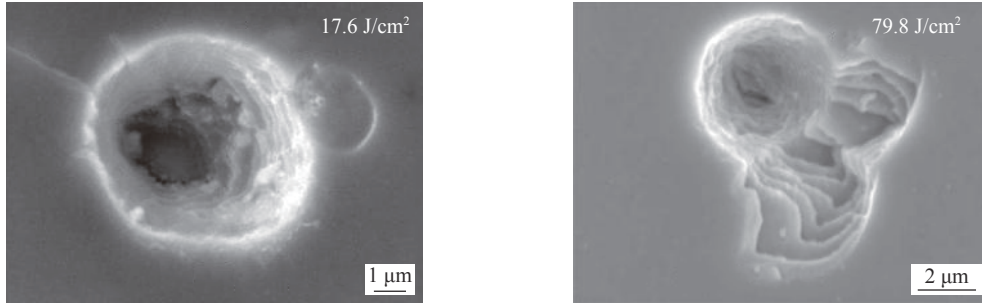
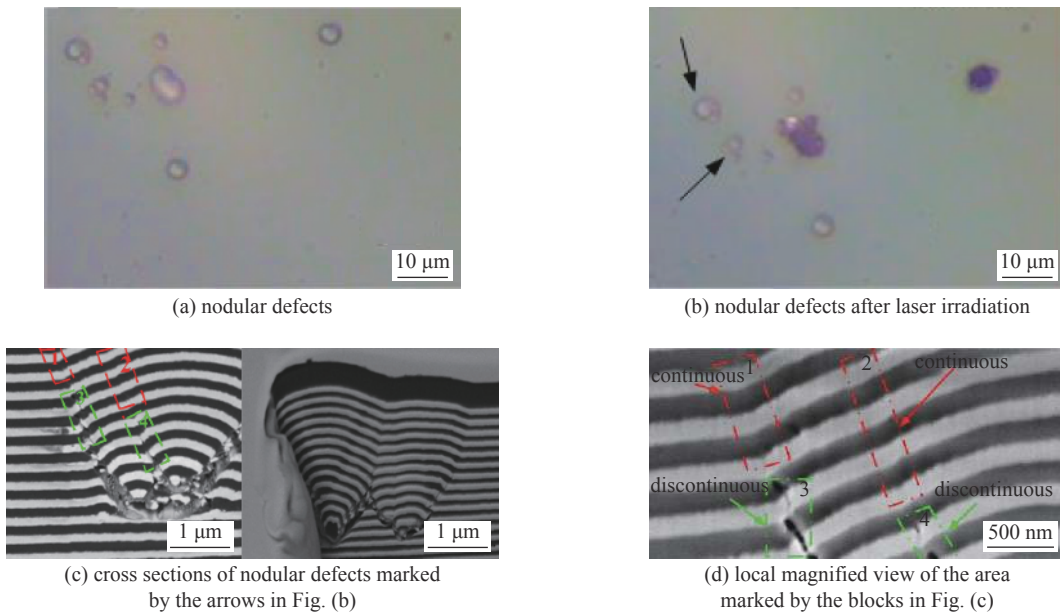


Fig. 3 Typical damage morphologies of nodules

图 3 节瘤缺陷的典型损伤形貌

一类缺陷);一类是锥体的边界与周围膜层最终没有形成连续(第二类缺陷)。采用 79.8 J/cm^2 (1064 nm , $\sim 10 \text{ ns}$) 能流密度激光脉冲辐照如图 4(a) 所示的节瘤缺陷, 仍有部分节瘤缺陷未发生破坏, 如图 4(b) 所示箭头所指位置。实验证明这些没有变化的节瘤缺陷的锥体边界随着后续膜层的沉积, 最终锥体边界与周围膜层实现了连续, 如图 4(d) 中红框位置所示, 而 79.8 J/cm^2 (1064 nm , $\sim 10 \text{ ns}$) 能流密度扫描后, 第二类缺陷不存在, 可见第一类缺陷具有较高的损伤阈值, 第二类节瘤缺陷具有较低的损伤阈值。

Fig. 4 Laser damage characteristics of nodular defects under the fluence of 79.8 J/cm^2 ^[19]图 4 79.8 J/cm^2 能流扫描下节瘤缺陷的抗激光损伤特性^[19]

通过对节瘤缺陷的表征, 结合镀膜沉积技术分析, 可以证明节瘤缺陷源于基底上的污染粒子以及膜料蒸发时的喷溅粒子。美国利弗莫尔实验室(LLNL)的研究表明, HfO_2 材料的相变温度为 $1700 \text{ }^\circ\text{C}$, 在电子束蒸镀过程中由于相变过程引发严重的喷溅, 喷溅粒子成为节瘤种子附着在基板上, 从而使薄膜上容易生成节瘤缺陷^[23]。因此, 研究人员采用金属铪作为镀膜材料, 避免了相变诱导的喷溅问题, 从而使薄膜的节瘤缺陷密度降低了一个数量级, 大大提升了薄膜的抗激光损伤性能。

从上述分析可以看出, 如果我们可以获得诱导激光损伤的缺陷特征, 那么相应的损伤机理及控制技术就可以有的放矢。但是, 随着激光向更短波长和更短脉冲宽度发展, 诱导激光损伤的缺陷尺度已缩小到纳观尺度, 无法从形态上直接表征, 因而难以溯源并建立与激光损伤的关系。这类问题目前仍困扰研究人员, 也是激光损伤研究领域亟待解决的热点问题。

2 认识纳观尺度激光损伤前驱体

有别于微观缺陷, 这里称之为前驱体。缺陷一般指可观测的、与周围基质材料特征有差异的微观结构, 常用光学显微手段观测。本文谈到的前驱体一般无法采取光学方法直接观测、与周围基质材料没有明显特性差异。称其为纳观尺度激光损伤前驱体的原因在于, 其典型损伤的尺度在 μm 量级, 前驱体的尺寸应在亚 μm 甚至 nm 量

级。纳观尺度激光损伤前驱体诱导的损伤表现为如图 5 所示的尺度更小、密度更高的损伤坑。由于尺度小,“不可见”,目前尚缺乏对纳观尺度激光损伤前驱体直接探测和表征的有效手段,因此对于纳观尺度激光损伤前驱体诱导损伤的研究大都停留在唯象研究阶段。

2.1 通过材料生长工艺调控和认识激光损伤前驱体

尽管这类激光损伤前驱体无法直接观察,但可以通过与材料生长工艺迭代,利用工艺参数调控前驱体的形成过程,从而影响前驱体的尺度特征及对激光的吸收能力,我们就可以比较深刻的理解前驱体。当然,这种方法不具备普适性,本文以 KDP 晶体为例进行介绍。

KDP 类晶体的激光损伤主要包括缺陷吸收、碰撞离子化、等离子体产生与扩展、冲击波形成、材料改性等阶段^[24],是晶体吸收性缺陷损伤的关键诱因,S.G. Demos 认为这类缺陷可能是一类具有电子结构的本征缺陷团簇^[25],S. Reyné 认为这类缺陷可能具有椭球结构^[26],但对晶体缺陷的形态和特性的认识目前还没有直接的表征手段。KDP 晶体快速生长过程中,由于溶液的过饱和度增加,生长溶液自发成核的概率会明显提升,这些成核颗粒会嵌入晶体体内,诱导产生散射缺陷和其他不完美晶格缺陷。研究人员提出了连续过滤技术,可以滤除溶液中大于滤孔尺寸的杂质颗粒、胶体粒子,大大减少嵌入杂质对晶体生长的影响,降低诱导不完美晶格缺陷的可能,有效提高 KDP 晶体的抗激光损伤能力,如图 6 所示^[27]。这意味利用连续过滤技术可以直接调控 KDP 晶体内部激光损伤前驱体的尺度,用以研究不同尺度前驱体的损伤特性。

我们设计了采用不同滤孔的连续过滤技术生长 KDP 晶体,滤孔尺寸分别为 0.1 μm 和 0.03 μm 。同时将非连续过滤的 KDP 晶体作为对比对象。如图 7 所示,三类晶体的损伤特性具有明显差异,0.1 μm 滤孔生长晶体的零概率损伤阈值与非连续过滤样品接近,但其高能量密度下损伤概率已明显下降;0.03 μm 滤孔生长晶体的损伤性能整体有显著提升^[28]。

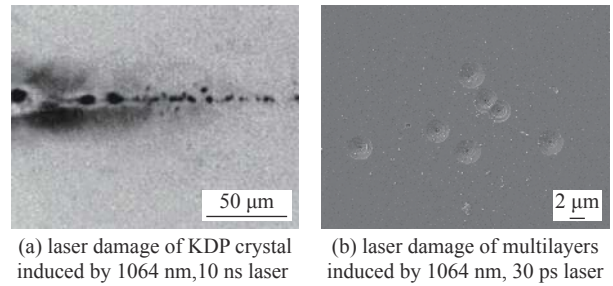


Fig. 5 Typical damage morphologies induced by nanoscale laser damage precursors

图 5 纳观尺度激光损伤前驱体诱导的典型损伤形貌

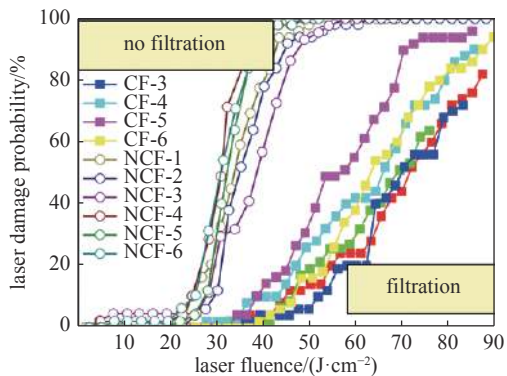


Fig. 6 Laser damage resistance enhancement of KDP crystals by continuous filtration techniques^[27]

图 6 连续过滤技术用于提升 KDP 晶体抗激光损伤能力^[27]

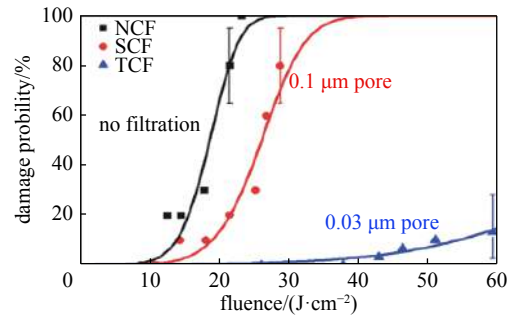


Fig. 7 Laser damage probability curves for KDP samples grown with no filter (NCF), only 0.1 μm filter (SCF) and two levels of filter (0.1 μm and 0.03 μm) (TCF) in continuous filtration unit^[28]

图 7 不加连续过滤(NCF)、0.1 μm 滤孔一级过滤(SCF)、0.1 μm 和 0.03 μm 滤孔二级过滤(TCF)样品的损伤几率^[28]

结合统计模型可以从损伤几率曲线中提取前驱体密度、阈值分布等信息,间接反映前驱体的信息。分析表明 KDP 晶体体内主要包含一种阈值分布的前驱体,采用连续过滤后样品的前驱体的基频损伤阈值明显提升,总密度显著降低,如表 1 所示,其中参数 ρ_0 表示前驱体密度, T_0 表示前驱体阈值均值, ΔT 表示阈值标准偏差。

表 1 不同滤孔生长的 KDP 晶体中损伤前驱体的信息^[28]

Table 1 Information of the laser damage precursors for KDP crystals grown with differently sized filter pores^[28]

sample	ρ_0/mm^{-3}	$T_0/(\text{J}/\text{cm}^2)$	$\Delta T/(\text{J}/\text{cm}^2)$
NCF	3.75	24.8	10.5
SCF	2.59	33.3	14.6
TCF	0.42	81.4	41.3

文献中认为 KDP 晶体中的这些纳观缺陷最可能是化学计量的电子缺陷团簇^[29-30], 故可以认为纳观缺陷的折射率实部与基质材料相等, 纳观缺陷的特征量可由其尺度和折射率虚部表示。初始损伤发生是因为纳观缺陷通过吸收激光能量导致温升超过 KDP 晶体发生损伤的临界温度, 一旦超过临界温度材料会融化并引发失控的吸收并损伤, 这个临界温度通常假设为 ~ 550 K。在热扩散模型的基础上, 结合损伤临界温度和阈值测量结果, 可以反推 KDP 晶体中纳观缺陷的特征量信息与损伤的关联。模拟分析表明 NCF 样品中纳观缺陷的最大消光系数约为 4×10^{-4} , 得到纳观缺陷的阈值能量密度与尺度的关系 $T(a)$, 如图 8(a) 所示, 尺度越小的纳观缺陷的阈值越高, 且尺度较大纳观缺陷的阈值相差不大。将纳观缺陷的阈值能量密度随其尺度的关系 $T(a)$ 代入缺陷阈值分布函数中可以获取纳观缺陷的尺度分布 $\rho(a)$, 如图 8(b) 所示, 纳观缺陷的密度和尺度明显随过滤滤孔尺度减少而降低。

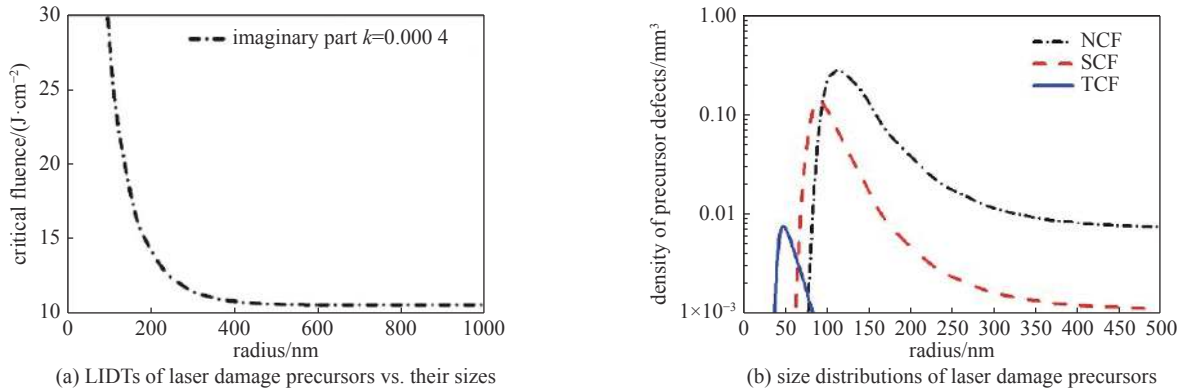


Fig. 8 Laser induced damage thresholds (LIDTs) and sizes of laser damage precursors in KDP crystals^[28]

图 8 KDP 晶体中损伤先驱体的阈值分布及尺度分布^[28]

虽然不能实际测量先驱体的尺寸, 但滤孔大小对 KDP 晶体中先驱体尺度的影响趋势得到了确认, 这与缺陷热吸收模型仿真结果一致。一方面说明 KDP 晶体在基频激光辐照下的损伤主要源于数十 nm 尺度先驱体对激光的热吸收, 另一面也给出了不同应用激光通量条件下对晶体中先驱体吸收特性和尺度控制的量化要求, 这对于高性能 KDP 晶体的研制起到了关键指导作用。

2.2 通过损伤形态对先驱体特征的理论反演认知^[31]

如图 5(b) 所示, 多层介质薄膜在基频波段皮秒脉宽的典型损伤形貌是高密度小尺度破坏。为了理解这破坏过程, 我们设计了基频高反射的多层介质膜系, 并利用 1064 nm, 30 ps 的激光进行破坏实验。图 9 给出了典型的损伤形貌, 通过对初始损伤位置的剖面分析, 发现损伤发生于第二层 (HfO₂) 和第三层 (SiO₂) 之间的界面, 损伤过程表现为从先驱体开始局部热爆炸形成空洞, 并向外温度传导造成热熔融, 再通过向上方的力学拉张形成最终的 μm 尺度损伤坑点。如图 9(c) 所示给出了热力学破坏的边界条件, 空洞的边缘位置可以认为是热爆炸温度边界, 外圈对熔融边缘温度为熔点, 这样就可以通过对损伤过程的热力学模拟, 反演多层介质膜中先驱体的动态损伤过程。

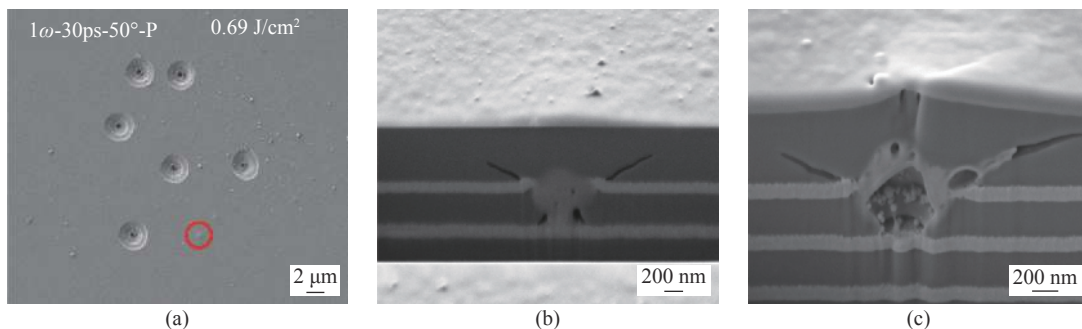


Fig. 9 Damage morphologies of HfO₂/SiO₂ multilayer films. (a) top view, (b)(c) section view. ^[31]

图 9 HfO₂/SiO₂ 多层膜的损伤形貌 (a) 俯视, (b)(c) 切面图^[31]

图 10 给出了膜层在 30 ps 单脉冲激光作用下不同时间点的温度分布。可以看出在脉冲辐照的前 10 ps, 先驱体中心的温度已经达到将近 3000 K, 但是此时热爆炸过程刚刚开始, 温升还局限于先驱体附近。在脉冲作用到 10~25 ps, 先驱体附近的材料温度迅速上升, 同时温升区域开始向外扩展。在脉冲作用的最后阶段, 即 25~30 ps, 中心的温度上升趋于平缓, 略高于 1×10^4 K, 而此时温升区域迅速向外扩展, 温度达到约 2800 K 的区域直径扩展到了约

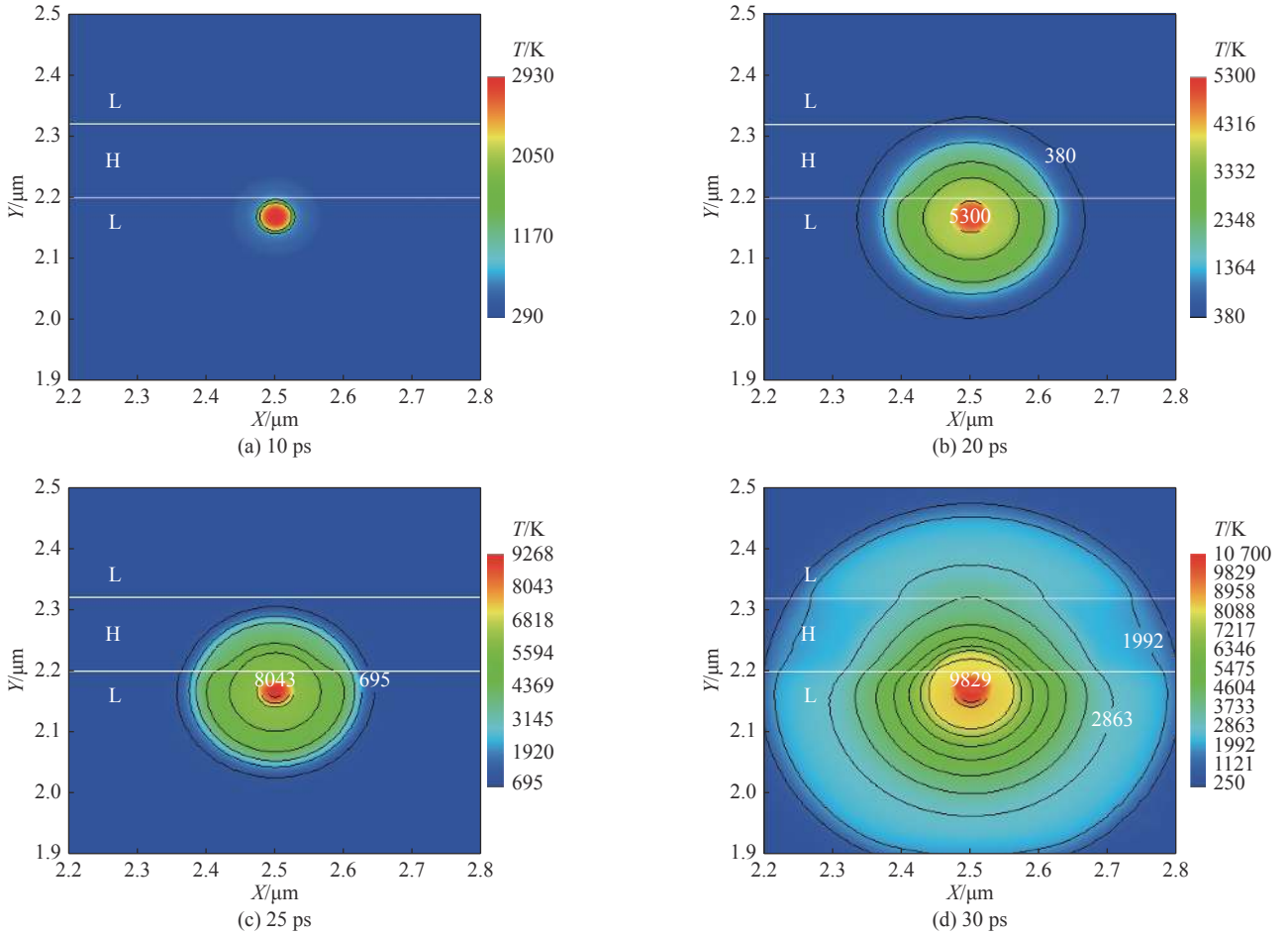
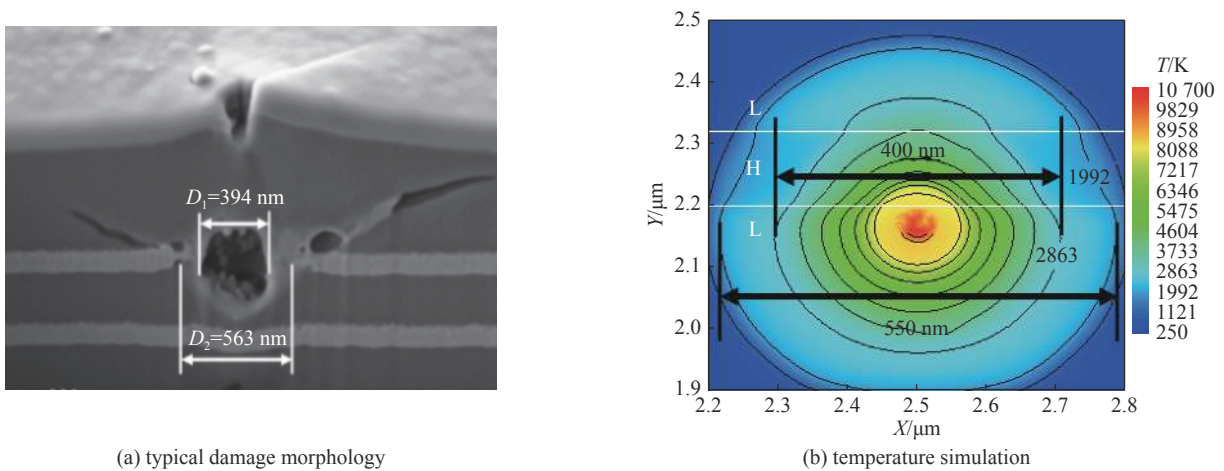


Fig. 10 Temperature simulation of the defect with the radius of 10 nm irradiated by the fluence of 0.8 J/cm^2 (1064 nm, 30 ps)^[31]

图 10 半径为 10 nm 的缺陷在 0.8 J/cm^2 (1064 nm, 30 ps) 激光辐照下的膜层温度分布^[31]

400 nm, 与损伤的空洞区域尺寸吻合, 如图 11(a), 温度达到约 1900 K 的区域直径扩展到了约 550 nm, 与损伤的熔融区域直径吻合, 如图 11(b) 所示。



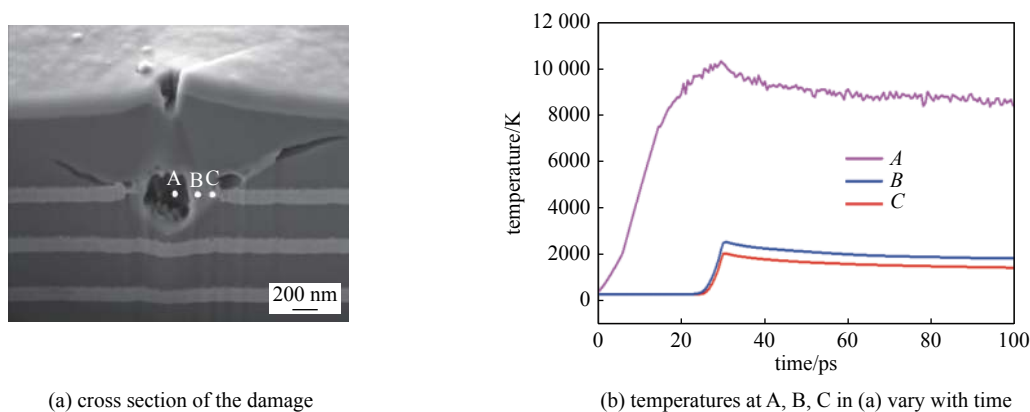
(a) typical damage morphology

(b) temperature simulation

Fig. 11 Comparison of the temperature simulation and damage morphology^[31]

图 11 温升模拟与损伤形态的对比^[31]

为了更好地说明损伤点不同位置的温度变化情况, 可以提取损伤点中几个关键区域的温度随时间的变化, 图 12 所示。前驱体附近的 A 点在激光作用下迅速升温, 温度随时间呈指数上升趋势, 在脉冲辐照到 7 ps 时就达到了临界温度 2200 K, 因此在脉冲作用的早期就发生了热爆炸。热爆炸发生之后材料的吸收区域迅速向外扩展, 从基质材料 B 和 C 位置的温升变化可以看出基质材料从室温上升到超过 2000 K 的温度只需要几 ps 的时间。当脉冲作用

Fig. 12 Temperatures of different locations in the damage area^[31]图 12 损伤点不同位置的温度^[31]

结束时,吸收区域恰好扩展到了 C 点对应的区域,对应于损伤点中热破坏的边界。

通过对损伤形态的细致表征,以及热力学过程的反演数值仿真,我们可以获得关于纳观尺度前驱体的一些基本特征,但其来源和形成机理仍不明确,是该领域研究人员尚在研究的内容。纳观尺度前驱体的直接表征和破坏动力学过程研究将是今后突破这类激光破坏瓶颈问题的关键技术。

3 功能性激光损伤评价与激光预处理技术

无论是微观缺陷还是纳观激光损伤前驱体,在光学材料或元件中的分布和多少与制造工艺密切相关,工程技术人员对于缺陷、前驱体的控制采取了系列方案,因而也衍生出了各种低缺陷加工制造技术,这些对于高功率激光材料和元件的制造起到了重要的推动作用。但 ICF 激光驱动器作为最大规模的激光工程,其光学元件的数量和尺寸都是迄今为止最为宏大的,在大型工程中要避免由于缺陷和前驱体诱导的激光损伤问题,提升大型激光的输出通量。寄希望于大批量制造“零缺陷”光学材料和元件是不现实的,因此要平衡产能和缺陷控制的矛盾。基于缺陷或前驱体诱导的损伤一般是尺寸可能控制的局部坑状结构,美国 LLNL 就提出了容忍一定损伤点存在的功能性损伤阈值评价体系^[23, 32],同时也对如何将每个缺陷或前驱体诱导的损伤点尺度控制到最小且最稳定,提出了一系列后处理手段,其中最具工程应用价值的就是激光预处理技术。

3.1 大口径光学元件的功能性激光损伤阈值评价方法

所谓功能性激光损伤主要表现为两个方面:首先,激光辐照产生的局部损伤应足够小,不显著改变元件的光学特性,诸如反射率、透过率等,也不显著改变传输光束的特性,不至于影响元件在系统中的整体功能;其次,这种局部损伤应该是稳定的,在激光系统设计通量条件下多次辐照不会发生尺寸增长现象。显然,功能性损伤要基于激光系统以及元件功能,对损伤点从尺度、密度、稳定性方面进行界定,目前美国 NIF 工程对大口径光学元件的功能性激光损伤判定的标准为^[15, 33-34]:

- 损伤点的横向尺寸不超过 280 μm ;
- 所有损伤点引起的遮光面积不超过元件通光面积的 0.01%;
- 在后续激光脉冲的作用下损伤点尺寸不增长;
- 介质薄膜元件经过激光预处理后的等离子烧蚀占比不超过 3%。

3.2 激光预处理技术

激光预处理是利用亚阈值的激光能流在元件正式使用前进行处理的技术,它能有效提升一些光学元件的抗激光损伤能力,激光预处理的主要作用是去除缺陷或者降低缺陷在激光辐照下的热力学响应。激光预处理不是无损处理,在处理过程中对光学元件表面或体内产生一定程度的局部影响,但这种影响的程度需要控制在功能性激光损伤阈值评价体系许可范围内。

由于缺陷分布的随机性,激光预处理技术是利用小光斑扫描光学元件表面,使元件表面受到近似均匀能流辐照的过程,如图 13 所示。通过改进相邻光斑的重叠面积,就可以控制激光束以理想的均匀度辐照元件表面。常用激光器输出脉冲的空间分布多呈高斯型,同一脉冲的辐照范围内能量密度有所差别,为了兼顾表面样品能流的均匀以及处理效率,相邻光斑间的距离为激光脉冲峰值能量 90% 处对应的光斑直径。

作为去除缺陷或者降低缺陷热力学响应的处理手段,应针对光学元件类型以及缺陷特征有针对性设计相应的

激光预处理技术。目前在 ICF 研究领域,激光预处理针对多层介质膜以及 KDP/DKDP 晶体已开始应用。我们设计并建立了纳秒和亚纳秒激光预处理系统,前者采用 Nd:YAG 激光作为光源,脉冲宽度约 10 ns,重复频率 30 Hz,具有倍频和三倍频输出能力,靶面光斑约 1.5 mm,最高能量密度达到 100 J/cm^2 (@1064 nm),主要用于多层介质膜和 KDP 晶体的激光预处理;后者采用脉宽可调(300~800 ps)的三倍频激光器,重复频率 100 Hz,靶面最大能量密度达到 10 J/cm^2 (@355 nm),主要用于 DKDP 晶体的激光预处理。系统可处理最大光学元件尺寸为 $1000 \text{ mm} \times 400 \text{ mm}$,具有完备的在线监控和自动化控制能力,系统实物如图 14 所示^[35]。

3.3 大口径介质膜元件激光预处理工艺^[35]

激光预处理技术是美国 NIF 装置中大口径介质膜元件供货前的最后一道工序,LLNL 将其研制的激光预处理装置和预处理规范提供给每个薄膜元件供货单位使用^[36]。对介质膜而言,激光预处理的作用是去除镀膜工艺优化后仍残留的节瘤缺陷,这对于大口径介质膜元件的大规模工程供货是非常重要的保障手段,一方面是去除缺陷提升抗损伤能力,另一方面也能够全口径考核薄膜元件是否达到最终在激光系统中运行通量。

目前,激光预处理技术已应用于国内的传输反射镜(TM)、肘镜(ZJ)和偏振片(PL)的生产流程,成为大口径介质膜生产的最后一道工序,其中传输反射镜的尺寸为 $610 \text{ mm} \times 430 \text{ mm} \times 85 \text{ mm}$,偏振片和肘镜的尺寸为 $810 \text{ mm} \times 430 \text{ mm} \times 90 \text{ mm}$ 。经激光预处理后元件的抗激光损伤能力如图 15 所示,传输反射镜的功能性损伤阈值达到 30 J/cm^2 (1064 nm, 5 ns),肘镜和偏振片的功能性损伤阈值达到 14 J/cm^2 (1064 nm, 5 ns)。经过激光预处理后介质膜表面状态如图 16 所示,其中坑点尺度不超过 $15 \mu\text{m}$,等离子烧蚀的横向尺度不超过 $300 \mu\text{m}$,纵向深度不超过 30 nm 。基于目前介质膜激光预处理后的表面等离子烧蚀状态,模拟分析了预处理后大口径介质膜对光束质量的影响,结果表明预处理过程引入的表面等离子体烧蚀对光束空间分布和近场光束影响很小可以忽略,如图 17(a) 和 (b) 所示。采用轮廓仪测试分析了预处理对 PSD2 的影响,结果表明预处理后大口径介质膜的 PSD2 有所增加,但仍控制在 1.1 nm 的指标要求范围内,如图 17(c) 所示。由此可见激光预处理工艺在提升元件抗破坏能力的同时并不会明显影响光束质量。需要说

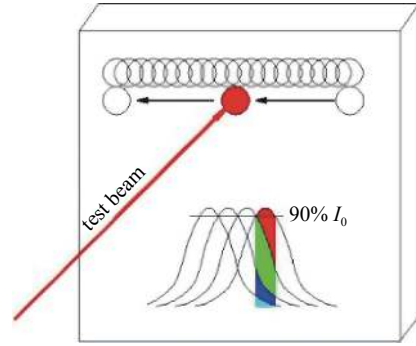


Fig. 13 Schematic diagram of small-beam raster-scan laser conditioning

图 13 小光斑扫描激光预处理流程示意图



Fig. 14 Laser conditioning platforms for large optics^[35]

图 14 大口径光学元件激光预处理平台^[35]

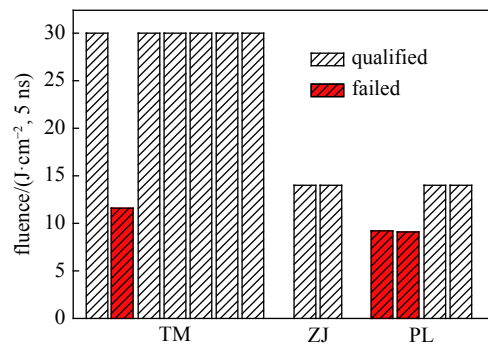


Fig. 15 LIDTs of large-aperture dielectric films after laser conditioning (TM: transport mirror; ZJ: elbow mirror; PL: polarizer^[35])

图 15 预处理后大口径介质膜的激光损伤阈值(TM: 传输反射镜; ZJ: 肘镜; PL: 偏振片)^[35]

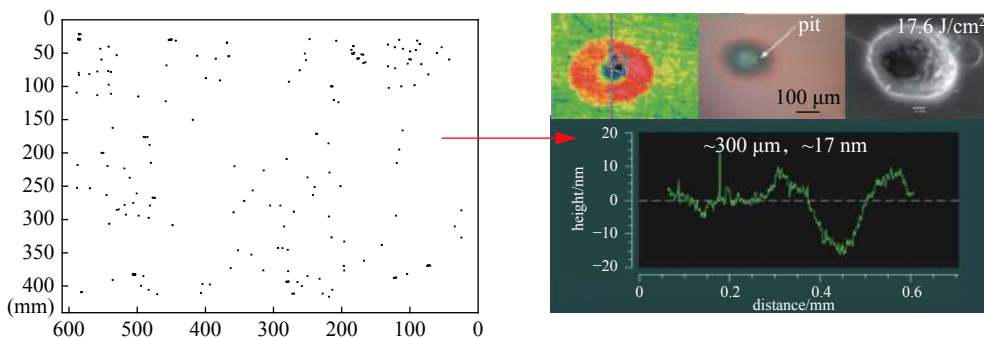
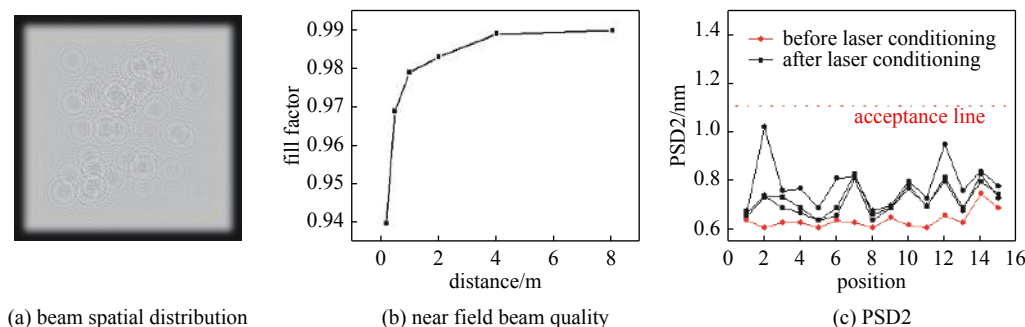


Fig. 16 Surface state of the conditioned dielectric films^[35]

图 16 预处理后介质膜的表面状态^[35]

Fig. 17 Influences of plasma scalds on the beam quality and PSD2^[35]图 17 等离子体烧蚀损伤对光束质量及元件 PSD2 的影响^[35]

明的是, 图 15 中显示红色的数据代表这三个元件在激光预处理过程中就确定其无法满足在高功率激光系统设计通量运行的需求, 因而不会在高功率激光系统上安装使用。

3.4 DKDP 晶体元件的激光预处理

DKDP 晶体的激光损伤前驱体在材料体内, 因而不同于介质膜将表面节瘤缺陷去除, 激光预处理不可能将体内的前驱体去除, 而只能是通过改善吸收强度从而降低前驱体在激光辐照下的热力学响应。关于这个机理问题, 国际上尚有不同观点, 美国 LLNL 认为激光预处理降低了 DKDP 晶体的非线性吸收, 而对热吸收没有影响^[37]; 而我们的实验显示激光预处理对二者均有降低的效果, 并且采用亚纳秒激光预处理对非线性吸收的抑制效果更好^[38-39]。

我们开展了 DKDP 晶体的亚纳秒激光预处理工艺研究, 采用中等口径(200 mm) DKDP 晶体开展了系统性的亚纳秒激光预处理工艺研究, 通过优化脉冲宽度及时间波形, 优化确定了工艺参数和工艺流程, 采用 500 ps 激光预处理, DKDP 晶体样品的零几率损伤阈值最大可提升 1 倍, 首次获得大于 $21.6 \text{ J/cm}^2(3\omega, 3 \text{ ns})$ 的国内最好结果, 如图 18 样品 1 所示。图 18 中黑色柱状代表未预处理 DKDP 晶体的零几率损伤阈值, 红色柱状代表预处理 DKDP 晶体的零几率损伤阈值, 蓝色柱状代表预处理 DKDP 晶体的功能性损伤阈值。如果采用功能性损伤的抗激光损伤能力评价体系, 允许处理后样品的光学透过率下降控制在 0.1% 以内时, 其功能性损伤阈值达到 $26 \text{ J/cm}^2(3\omega, 3 \text{ ns})$ 以上, 具备了使 DKDP 晶体抗激光损伤能力达到我国 ICF 激光驱动器设计运行通量的能力。

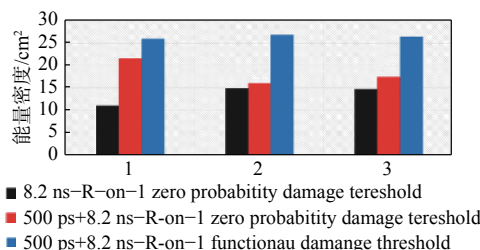


Fig. 18 Laser damage resistance enhancement of KDP crystals by sub-nanosecond laser conditioning

图 18 DKDP 晶体的亚纳秒激光预处理的抗激光损伤性能提升效果

4 结论

本文从光学元件中吸收激光能量的微观缺陷和纳观尺度激光损伤前驱体出发, 通过解析介质膜中节瘤缺陷的形成原因, 理解诱导破坏的热力响应过程, 从而确定抑制节瘤缺陷形成的镀膜工艺控制方法, 形成一套针对可光学分辨微观缺陷的系统性分析方法和解决方案; 针对纳观尺度激光损伤前驱体, 尽管无法直接观测, 但结合特殊的材料生长工艺(如 KDP 等水溶液生长的晶体材料)可以调控前驱体形成, 仍然可以结合仿真得到 nm 尺度激光损伤前驱体的尺度及吸收特性, 但尚不具备对所有材料中纳米尺度激光损伤前驱体的分析能力, 对纳米尺度前驱体的认识仍缺乏直接研究手段, 目前只能依赖热力学仿真来反演猜测前驱体特征。纳米尺度激光损伤前驱体是影响光学材料在紫外波段或皮秒尺度短脉冲应用的主要瓶颈, 与此相关的纳观检测技术、ps 量级的损伤动力学研究将是认识并有针对性突破这类激光损伤瓶颈问题的重要研究内容。

致谢 感谢中国科学院福建物质结构研究所姚元根研究员、郑国宗研究员, 山东大学许心光教授、孙洵教授等在 KDP 晶体研究过程中的有益探讨; 感谢中国工程物理研究院激光等离子体研究所隋展研究员在功能性激光损伤阈值测试标准制定方面给予的指导和帮助。

参考文献:

- [1] McClung F J, Hellwarth R W. Giant optical pulsations from ruby[J]. *Journal of Applied Physics*, 1962, 33(3): 828-829.

- [2] Hopper R W, Uhlmann D R. Mechanism of inclusion damage in laser glass[J]. *Journal of Applied Physics*, 1970, 41(10): 4023-4037.
- [3] Carr C W, Bude J D, Demange P. Laser-supported solid-state absorption fronts in silica[J]. *Physical Review B*, 2010, 82: 184304.
- [4] Bloembergen N. Laser-induced electric breakdown in solids[J]. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 1974, 10(3): 375-386.
- [5] Epifanov A S, Manenkov A A, Prokhorov A M. Theory of avalanche ionization induced in transparent dielectrics by an electromagnetic field[J]. *Journal of Experimental and Theoretical Physics*, 1976, 43(2): 377-382.
- [6] Schaffer C B, Brodeur A, Mazur E. Laser-induced breakdown and damage in bulk transparent materials induced by tightly focused femtosecond laser pulses[J]. *Measurement Science and Technology*, 2001, 12(11): 1784-1794.
- [7] Deng Hongxiang, Guo Wenli, Gao Huanhuan, et al. A numerical approach for femtosecond laser-induced photoionization in solids and its application[J]. *Journal of Optics*, 2019, 21: 075501.
- [8] Jing Xufeng, Tian Ying, Zhang Junchao, et al. Modeling validity of femtosecond laser breakdown in wide bandgap dielectrics[J]. *Applied Surface Science*, 2012, 258(10): 4741-4749.
- [9] Dijon J, Poulingue M, Hue J. Thermomechanical model of mirror laser damage at 1.06 μm : I. Nodule ejection[C]//Proceedings of SPIE 3578 Laser-Induced Damage in Optical Materials. 1999: 387-397.
- [10] Liu Xiaofeng, Li Dawei, Zhao Yuan'an, et al. Characteristics of nodular defect in $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ multilayer optical coatings[J]. *Applied Surface Science*, 2010, 256(12): 3783-3788.
- [11] Papernov S. Mechanisms of near-ultraviolet, nanosecond-pulse-laser damage in $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ -based multilayer coatings[J]. *Chinese Optics Letters*, 2013, 11: S10703.
- [12] Li Cheng, Zhao Yuan'an, Cui Yun, et al. Comparison of 355-nm nanosecond and 1064-nm picosecond laser-induced damage in high-reflective coatings[J]. *Optical Engineering*, 2018, 57: 121908.
- [13] Borden M R, Folta J A, Stolz C J, et al. Improved method for laser damage testing coated optics[C]//Proceedings of SPIE 5991, Laser-Induced Damage in Optical Materials. 2005: 59912A.
- [14] Taniguchi J, Lebaron N E, Howe J, et al. Functional damage thresholds of hafnia/silica coating designs for the NIF laser[C]//Proceedings of SPIE 4347, Laser-Induced Damage in Optical Materials. 2001: 109-117.
- [15] Stolz C J. Status of NIF mirror technologies for completion of the NIF facility[C]//Proceedings of SPIE 7101, Advances in Optical Thin Films III. 2008: 710115.
- [16] Spaeth M L, Manes K R, Kalantar D H, et al. Description of the NIF Laser[J]. *Fusion Science and Technology*, 2016, 69(1): 25-145.
- [17] 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.
- [18] 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.
- [19] Liu Xiaofeng, Li Dawei, Zhao Yuan'an, et al. Further investigation of the characteristics of nodular defects[J]. *Applied Optics*, 2010, 49(10): 1774-1779.
- [20] Shan Yongguang, He Hongbo, Wei Chaoyang, et al. Geometrical characteristics and damage morphology of nodules grown from artificial seeds in multilayer coating[J]. *Applied Optics*, 2010, 49(22): 4290-4295.
- [21] 潘顺民, 卫耀伟, 安晨辉, 等. 45°高反膜中节瘤缺陷的电场增强效应及损伤特性[J]. *强激光与粒子束*, 2020, 32: 071006. (Pan Shunmin, Wei Yaowei, An Chenhui, et al. Electric field enhancement effect and damage characteristics of nodular defect in 45° high-reflection coating[J]. *High Power Laser and Particle Beams*, 2020, 32: 071006)
- [22] Shan Yongguang, He Hongbo, Wei Chaoyang, et al. Thermomechanical analysis of nodule damage in $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ multilayer coatings[J]. *Chinese Optics Letters*, 2011, 9: 103101.
- [23] Stolz C J. Engineering high-damage-threshold NIF polarizers and mirrors [R]. ICF Quarterly Report, 1999, 9(2): 151-162.
- [24] Demange P P, Negres R A, Radousky H B, et al. Differentiation of defect populations responsible for bulk laser-induced damage in potassium dihydrogen phosphate crystals[J]. *Optical Engineering*, 2010, 45: 104205.
- [25] Demos S G, Demange P, Negres R A, et al. Investigation of the electronic and physical properties of defect structures responsible for laser-induced damage in DKDP crystals[J]. *Optics Express*, 2010, 18(13): 13788-13804.
- [26] Reyné S, Duchateau G, Natoli J Y, et al. Laser-induced damage of KDP crystals by 10 ns nanosecond pulses: influence of crystal orientation[J]. *Optics Express*, 2009, 17(24): 21652-21665.
- [27] Baisden P A, Atherton L J, Hawley R A, et al. Large optics for the National Ignition Facility[J]. *Fusion Science and Technology*, 2016, 69(1): 295-351.
- [28] Wang Yueliang, Zhao Yuan'an, Xie Xiaoyi, et al. Laser damage dependence on the size and concentration of precursor defects in KDP crystals: view through differently sized filter pores[J]. *Optics Letter*, 2016, 41(7): 1534-1537.
- [29] Demange P, Negres R A, Carr C W, et al. Laser-induced defect reactions governing damage initiation in DKDP crystals[J]. *Optics Express*, 2006, 14(12): 5313-5328.
- [30] Duchateau G. Simple models for laser-induced damage and conditioning of potassium dihydrogen phosphate crystals by nanosecond pulses[J]. *Optics Express*, 2009, 17(13): 10434-10456.
- [31] 李成. 纳观尺度缺陷诱导多层介质膜激光损伤动力学研究[D]. 上海: 中国科学院上海光学精密机械研究所, 2020: 79-87 (Li Cheng. Dynamics of nanoscale defects induced laser damage of multilayer dielectric coatings[D]. Shanghai: Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of

- Sciences, 2020: 79-87)
- [32] De Yoreo J J, Burnham A K, Whitman P K. Developing KH_2PO_4 and KD_2PO_4 crystals for the world's most power laser[J]. *International Materials Reviews*, 2002, 47(3): 113-152.
- [33] Sheehan L M, Kozlowski M R, Tench R J. Full-aperture laser conditioning of multilayer mirrors and polarizers[C]//Proceedings of SPIE 2633, Solid State Lasers for Application to Inertial Confinement Fusion (ICF). 1995: 457-463.
- [34] Hunt J T, Manes K R, Renard P A. Hot images from obscurations[J]. *Applied Optics*, 1993, 32(30): 5973-5982.
- [35] 赵元安, 胡国行, 刘晓凤, 等. 激光预处理技术及其应用[J]. *光学精密工程*, 2016, 24(12): 2938-2947. (Zhao Yuan'an, Hu Guohang, Liu Xiaofeng, et al. Laser conditioning technology and its applications[J]. *Optics and Precision Engineering*, 2016, 24(12): 2938-2947)
- [36] Sheehan L M, Schwartz S, Battersby C L, et al. Automated damage test facilities for materials development and production optic quality assurance at Lawrence Livermore National Laboratory[C]//Proceedings of SPIE 3578, Laser-Induced Damage in Optical Materials. 1999: 302-313.
- [37] Liao Z M, Spaeth M L, Manes K, et al. Predicting laser-induced bulk damage and conditioning for deuterated potassium dihydrogen phosphate crystals using an absorption distribution model[J]. *Optics Letters*, 2010, 35(15): 2538-2540.
- [38] Peng Xiacong, Zhao Yuan'an, Wang Yueliang, et al. Variation of the band structure in DKDP crystal excited by intense sub-picosecond laser pulses[J]. *High Power Laser Science and Engineering*, 2018, 6: 03000e41.
- [39] 王岳亮. I类KDP和II类DKDP晶体激光损伤机理及激光预处理特性研究[D]. 上海: 中国科学院上海光学精密机械研究所, 2017: 53-66 (Wang Yueliang. Laser damage mechanisms and laser conditioning properties in I-type KDP and II-type DKDP crystals[D]. Shanghai: Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, 2017: 53-66)