



·强激光物理与技术·

355 nm 和 1064 nm 双波长预处理对 DKDP 晶体损伤性质的影响*

李云飞^{1,2}, 史晋芳^{1,2}, 邱 荣², 余 健^{1,2}, 郭德成², 周 磊²

(1. 西南科技大学 制造科学与工程学院, 制造过程测试技术教育部重点实验室, 四川 绵阳 621010;

2. 西南科技大学 极端条件物质特性联合实验室, 四川 绵阳 621010)

摘 要: 为了研究 3ω 预处理、 3ω 和 1ω 同时辐照预处理情况后 DKDP 晶体的 3ω 损伤特性, 建立了双波长预处理和损伤测试实验系统, 重点研究了双波长同时辐照预处理情况下 1ω 能量密度对预处理效果的影响, 分析了双波长同时辐照预处理过程中的能量耦合机制。研究结果表明: 双波长同时辐照预处理在提升 DKDP 晶体抗 3ω 激光损伤性能方面的效果明显好于单波长预处理; 在双波长同时辐照预处理情况下, 远低于自身预处理阈值的 1ω 参与了预处理作用过程; 在相同 3ω 能量密度、能量阶梯的预处理策略下, 1ω 能量密度存在最佳值。

关键词: 激光诱导损伤; DKDP 晶体; 激光预处理; 双波长激光; 能量耦合效应

中图分类号: O731

文献标志码: A

doi: 10.11884/HPLPB202234.220060

Effect of 355 nm and 1064 nm dual-wavelength conditioning on the bulk damage properties of DKDP crystal

Li Yunfei^{1,2}, Shi Jinfang^{1,2}, Qiu Rong², Yu Jian^{1,2}, Guo Decheng², Zhou Lei²

(1. School of Manufacturing Science and Engineering, Key Laboratory of Testing Technology for Manufacturing Process of Ministry of Education, Southwest University of Science and Technology, Mianyang 621010, China;

2. Joint Laboratory for Extreme Conditions Matter Properties, Southwest University of Science and Technology, Mianyang 621010, China)

Abstract: To study the 3ω damage characteristics of DKDP crystals after 3ω conditioning, 3ω and 1ω conditioning at the same time, a dual-wavelength conditioning and damage test experimental system was established. The conditioning effects of 1ω energy density under dual wavelength irradiation were studied emphatically. The energy coupling mechanism in the conditioning process of dual-wavelength irradiation was analyzed. Research results show that the effect of dual-wavelength conditioning is significantly better than that of single wavelength. In the case of dual-wavelength simultaneous irradiation conditioning, the 1ω which is far below the threshold value of its own conditioning participates in the conditioning. Under the same conditioning strategy of 3ω energy density and energy gradient, there is an optimal value of 1ω energy density.

Key words: laser induced damage, DKDP crystal, laser conditioning, dual-wavelength laser, energy coupling effect

磷酸二氢钾 (KDP) 和磷酸二氘钾 (DKDP) 晶体是目前唯一适用于高功率大口径激光装置的非线性材料^[1-2]。由于晶体生长过程复杂、周期长, 晶体材料内部总是存在各种缺陷, 如杂质缺陷、本征结构缺陷和电子缺陷等^[3-5]。在高功率激光辐照下, 缺陷吸收激光能量会引起晶体损伤^[6-7]。在高质量金刚石飞切表面加工条件下, KDP 类晶体的表面损伤阈值往往高于体内^[8-9]。

激光辐照预处理能显著提高 KDP 类晶体的抗紫外激光损伤性能^[10]。Feit 等人^[11]通过建立纳米缺陷吸收模型, 表明激光预处理能减小晶体体内纳米缺陷(团)的尺寸。DeMange 等人^[12]利用 355, 532 和 1064 nm 波长激光分别

* 收稿日期: 2022-03-03; 修订日期: 2022-04-20

基金项目: 国家自然科学基金委员会与中国工程物理研究院联合基金项目 (U1530109); 国家自然科学基金项目 (11972313)

联系方式: 李云飞, 1181279434@qq.com。

通信作者: 史晋芳, 603071939@qq.com。

对 KDP 晶体进行预处理, 对比研究了预处理激光波长对预处理效果的影响规律, 结果表明激光预处理存在明显的波长效应。Reyne 等人^[13]的研究发现在 355 nm 和 1064 nm 同时辐照下, KDP 晶体的体损伤密度随着 1064 nm 激光能量密度的增大而升高, 远低于自身损伤阈值的 1064 nm 激光对损伤的贡献。吴金明等人^[14]研究了 1064 nm 和 355 nm 同时辐照下 DKDP 晶体的损伤特性, 结果表明, 随着 1064 nm 能量密度 (低于其自身损伤阈值) 升高, 晶体的损伤点密度减小, 损伤点尺寸增大, 表现出波长间能量的耦合效应。这些研究结果表明, 激光辐照预处理能显著改善 KDP 类晶体的抗紫外激光损伤性能, 在多个波长激光同时辐照情况下, 各波长激光与缺陷间的相互作用过程存在尚不清楚的能量耦合机制。为探索 DKDP 晶体的预处理机制, 提升晶体的抗损伤性能, 本文以改进激光辐照预处理的方法为切入点, 研究了 355 nm 和 1064 nm 激光同时辐照预处理对 DKDP 晶体的紫外激光损伤性能的影响规律。

1 实验测量方法

1.1 实验装置及样品

双波长预处理和损伤测试实验系统如图 1 所示。Nd:YAG 调 Q 激光器 (Spectra-Phyiscs, LAB-190-10) 输出基频 (1ω , 1064 nm, 约 12 ns) 和三倍频 (3ω , 355 nm, 约 9 ns) 激光脉冲, 由分光镜完成谐波分离与合束; 半波片 (HWP) 和偏振片 (POL) 组成能量调节系统; 透镜用于聚焦和控制靶面光斑大小, 靶面为近高斯光斑, 靶面光斑尺寸采用刀口法测量, 1ω 和 3ω 的有效光斑面积分别为 0.2 mm^2 和 0.12 mm^2 ; 能量计用于测量和监控脉冲能量; 光束质量分析仪 (Newport, LBP2-HR-VIS2) 用于获取光斑形貌, 以及监测光斑重叠情况; 三维电控平移台用于放置并移动样品; CCD1 (艾菲特, AFT-ZML-0912) 与入射激光方向呈 45° 角, 主要用于光斑重叠和晶体表面损伤监测; CCD2 (度申科技, DO3THINK) 与入射激光方向垂直, 用于晶体体损伤实时监测并获得损伤图像; He-Ne 激光用于指示和体损伤点成像照明。

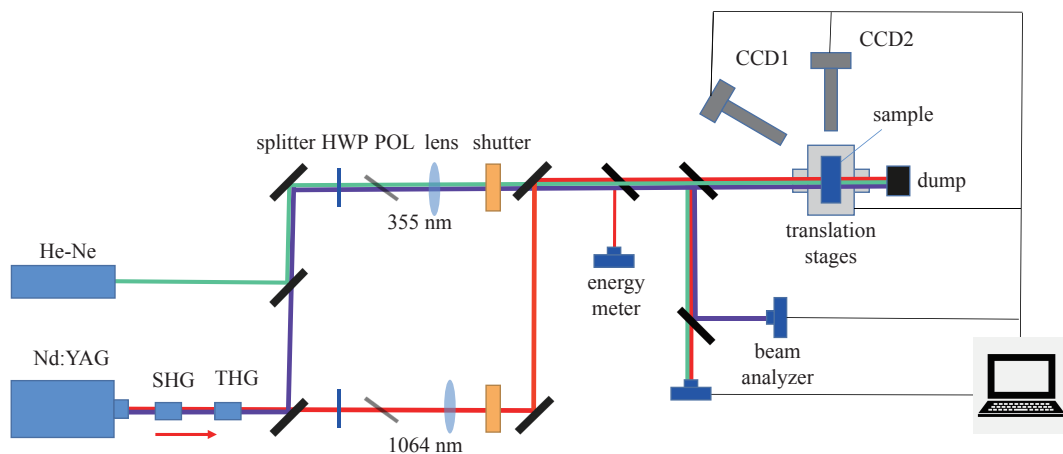


Fig. 1 Experimental system diagram of dual-wavelength conditioning and damage test

图 1 双波长预处理和损伤测试实验系统图

实验样品为单槽降温快速生长 DKDP 晶体, 如图 2 所示, 采用 II 类三倍频切割, 氙化率为 70%, 尺寸为 $50 \text{ mm} \times 30 \text{ mm} \times 10 \text{ mm}$, 单点金刚石飞切表面加工。

1.2 实验方法

预处理过程中, 对样品实验区采用光栅式扫描, 光斑间重叠比例为 90% (3ω), 能量密度 (组合) 阶梯式增加, 依次扫描辐照; 预处理激光为 3ω (或 3ω 和 1ω 同时辐照), 频率 10 Hz; 根据预处理时两个波长激光能量密度组合的不同, 把样品分成多个实验区, 每个实验区尺寸为 $10 \text{ mm} \times 25 \text{ mm}$ 。每个实验区经预处理后, 采用 1-on-1 辐照方式在 3ω 辐照下进行损伤规律测试。由于小光斑扫描预处理效率低, 整个实验过程时

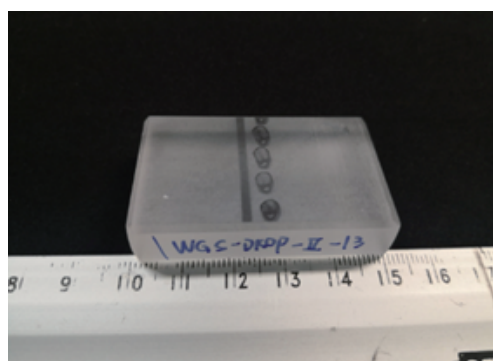


Fig. 2 DKDP crystal material

图 2 DKDP 晶体材料

间跨度较长,本文主要关注预处理方法对晶体损伤阈值的影响,故损伤概率测试范围 0~50%,为提高实验数据的准确性和规律性,实验分三轮多次进行,数据分析时对三轮数据进行平均。

每轮实验分 A, B 两组。A 组,五个区域,分别编号 A1~A5; B 组,四个区域,分别编号 B1~B4。进行双波长同时辐照预处理时, A1-A5 五个区域的 1ω 能量密度分别固定为 0, 2.6, 5.3, 7.9 和 10.6 J/cm², 3ω 按 7.4, 9.2, 11.0, 12.8 和 14.6 J/cm² 的能量密度顺序依次递增;在对 A5 区域进行最后一组能量密度组合 ($1\omega@10.6$ J/cm²+ $3\omega@14.6$ J/cm²) 预处理时,出现了多次表面损伤,故 A5 区域在预处理后未进行损伤测试。为比较 1ω 对预处理效果的影响,在 B 组中增加了 1ω 的能量密度并降低了 3ω 的能量密度, B1~B4 四个区域的 1ω 能量密度分别固定为 0, 7.9, 10.6 和 15.9 J/cm², 3ω 按 7.4, 9.2 和 11.0 J/cm² 的能量密度顺序依次递增,如表 1 所示。

表 1 双波长预处理参数

Table 1 Dual-wavelength conditioning parameters

group A	fluence/(J·cm ⁻²)		group B	fluence/(J·cm ⁻²)	
	1ω	3ω		1ω	3ω
A1	0	7.4, 9.2, 11.0, 12.8, 14.6	B1	0	7.4, 9.2, 11.0
A2	2.6	7.4, 9.2, 11.0, 12.8, 14.6	B2	7.9	7.4, 9.2, 11.0
A3	5.3	7.4, 9.2, 11.0, 12.8, 14.6	B3	10.6	7.4, 9.2, 11.0
A4	7.9	7.4, 9.2, 11.0, 12.8, 14.6	B4	15.9	7.4, 9.2, 11.0
A5	10.6	7.4, 9.2, 11.0, 12.8, 14.6	—	—	—

2 实验结果

图 3(a)和图 3(b)分别为 A, B 两组实验的体损伤概率曲线,按 ISO21254 标准进行拟合;表 2 为不同预处理方式下的最大零概率损伤阈值和平均体损伤点密度。在图 3(a)中,随着预处理时 1ω 能量密度增加,损伤概率曲线右移;在未预处理的情况下,晶体的最大零概率损伤阈值为 13.7 J/cm²; A1~A4 的最大零概率损伤阈值分别为约 16.6, 18.2, 18.8 和 19.9 J/cm², 相比未预处理,分别提高了 21.2%, 32.8%, 37.2% 和 45.3%。在图 3(b)中, B1~B4 的最大零概率损伤阈值分别为约 16.3, 19.3, 18.3 和 17.5 J/cm², 相比未预处理,分别提高了 19.1%, 40.9%, 33.6% 和 27.7%。

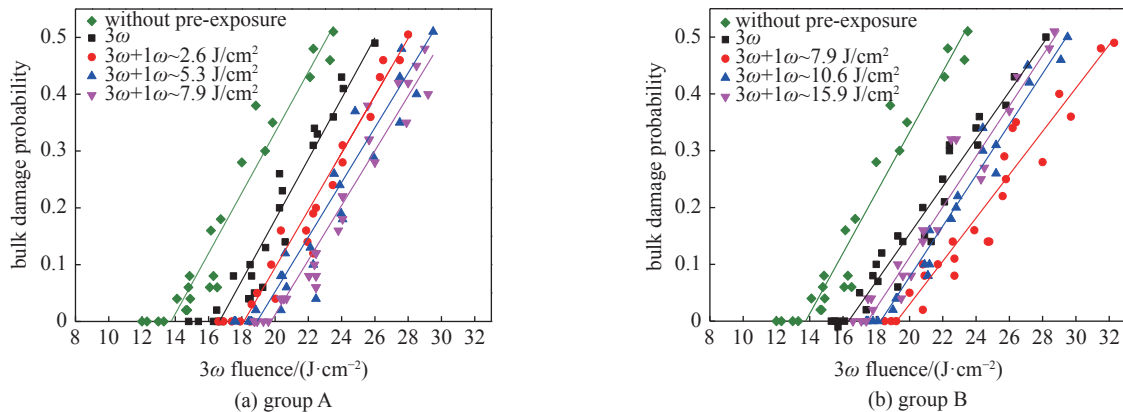
Fig. 3 The effect of dual-wavelength conditioning with different energy density combinations on the 3ω damage probability of DKDP crystal图 3 不同能量密度组合的双波长预处理对 DKDP 晶体 3ω 损伤概率的影响

图 4 为实验样品在 3ω 能量密度为 33.6 J/cm² 辐照下的典型体损伤形貌,在未预处理情况下,体内损伤点密度最大。在 A1~A4 区域,随预处理时 1ω 能量密度增加,损伤点密度呈减少趋势, A4 区域的损伤点密度最小;在 B1~B4 区域,随预处理时 1ω 能量密度增加,损伤点密度呈先减少后增加趋势, B2 区域的损伤点密度最小。

为更清晰反映预处理参数对损伤规律的影响,将体损伤概率 $P(F)$ 表示为

$$P(F) = k(F + b) \quad (1)$$

式中: k 和 b 与预处理参数有关, F 为能量密度 (J/cm²)。对于上述实验 b 值如表 3 所示。由表 3 可以看出,在双波长同

表 2 不同预处理方式下 3ω 的最大零概率损伤阈值和平均损伤点密度

Table 2 Maximum zero probability damage threshold and average damage pinpoints density of 3ω under different pre-exposure methods

group	area	initial bulk damage threshold/(J·cm ⁻²)	percentage/%	mean pinpoints density/mm ³ (3ω , about 33.6 J/cm ²)
without conditioning	—	13.7	0	25
	A1	16.6	21.2	10
	A2	18.2	32.8	8
	A3	18.8	37.2	4
	A4	19.9	45.3	1
B	B1	16.3	19.1	18
	B2	19.3	40.9	4
	B3	18.3	33.6	5
	B4	17.5	27.7	11

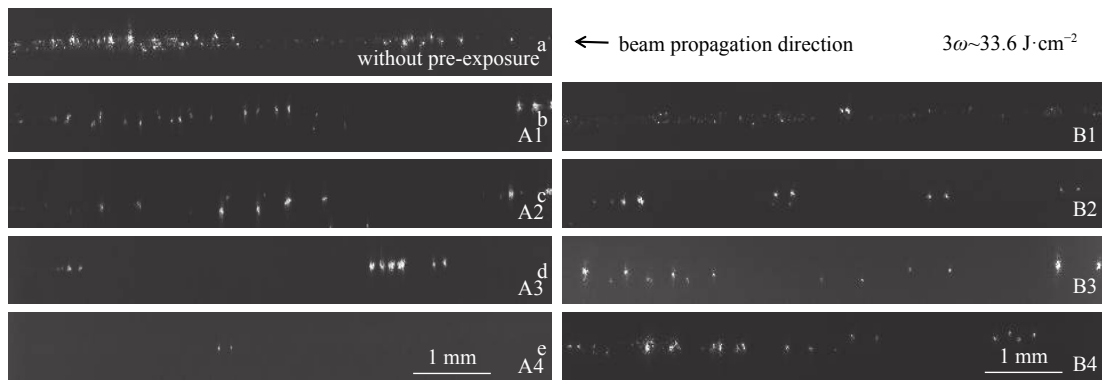


Fig. 4 Typical bulk damage pinpoint morphologies under different laser conditioning

图 4 不同预处理条件下的典型体损伤点形貌

表 3 预处理参数与 b 的关系表

Table 3 Relationship between conditioning parameters and b

area	conditioning methods	1ω energy density/(J·cm ⁻²)	b
A	without pre-exposure	—	-13.752
	A1	3ω	0
	A2		2.6
	A3	$3\omega+1\omega$	5.3
	A4		7.9
B	B1	3ω	0
	B2		7.9
	B3	$3\omega+1\omega$	10.6
	B4		15.9

时辐照预处理条件下,最佳预处理参数应在 A4 和 B2 附近。

3 实验分析

在本文的实验条件下,得到的最佳双波长预处理效果为 A4 实验区域,相应预处理参数为: 1ω 能量密度 7.9 J/cm², 3ω 以 7.4, 9.2, 11.0, 12.8 和 14.6 J/cm² 的能量密度顺序依次递增。获得的最大零概率体损伤阈值比未预处理提高了 45.3%, 比 3ω 单波长预处理提高了 24.1%; 体损伤点密度从未预处理时的 25 mm⁻³ 降低到 1 mm⁻³。

DKDP 晶体元件主要存在点缺陷和结构缺陷两类损伤前驱体^[15-16], 点缺陷主要由间隙原子-空穴对形成, 结构缺陷主要由包裹体、位错、杂质等形成。点缺陷类损伤前驱体的预处理机制主要是多光子吸收, 即预处理激光激发点缺陷及其周围材料的电子, 促使间隙原子-空穴发生迁移和复合^[17], 使缺陷尺寸和密度降低; 在预处理中, 波长

更短的 3ω 比 1ω 更有优势。对于结构缺陷, 预处理作用类似于退火, 通过相变使晶格重排, 主要通过热效应消除结构缺陷。如导带电子可以通过声子吸收光子^[13], 这个过程正比于波长的 4 次方; 故对于结构缺陷, 长波长的 1ω 比 3ω 更有效。从上述实验结果可以看出, 在提高 DKDP 晶体抗紫外激光损伤性能方面, 恰当的双波长 ($3\omega+1\omega$) 预处理, 能获得比 3ω 单波长预处理更好的效果, 提高 DKDP 晶体在 3ω 激光辐照下的最大零几率体损伤阈值, 降低体损伤密度。双波长同时辐照预处理是一种新的预处理方法, 这可能涉及预处理过程中不同波长激光与晶体缺陷相互作用过程中的能量耦合机制。

同时, 在双波长激光与缺陷相互作用过程的初期, 3ω 专属缺陷通过线性 (和非线性) 机制吸收 3ω 激光能量致电子密度增加, 形成固体等离子体^[18] 或叫超临界稠密流体^[19], 由于此时缺陷未达到气化条件, 未发生剧烈的体积膨胀和微爆, 因此未造成材料不可逆的宏观损伤。这种金属流体具有金属的部分性质, 具有较高自由电子密度, 对 3ω 和 1ω 均能较强吸收; 这会使 3ω 缺陷在双波长预处理条件下比相同能量密度 3ω 单独预处理能吸收更多的激光能量。激光脉冲结束后, 缺陷及其周围材料冷却凝固, 其晶相发生改变或完全非晶化, 但其对 3ω 激光的吸收系数减小了, 在后续激光脉冲辐照下更加稳定, 从而表现出更好的预处理效果。双波长同时辐照预处理过程中, 在相互作用过程前期主要是缺陷吸收单光子能量更大的 3ω 产生种子电子和电子密度增大的过程; 在相互作用过程的中后期, 缺陷电子密度达到较高水平而强烈吸收 1ω ; 处于相互作用过程中后期的能量吸收有助于缺陷及其周围材料的整体均匀吸收, 有利于热扩散, 从而促使缺陷产生及其周围材料发生相变。考虑缺陷的尺寸效应, 如果在脉冲前沿能量沉积太快会加速等离子体形成, 从而导致缺陷气化和微爆; 而且在缺陷的迎光面还会形成等离子体屏蔽效应, 这会阻碍预处理而增加损伤。这种缺陷在脉冲前沿对 1ω 吸收较小, 在脉冲后沿对 1ω 吸收增加的情况, 与李婷等人^[20] 采用的基于激光脉冲时间形状调制的预处理方案类似。

4 结 论

本文采用了双波长激光同时辐照预处理来提升 DKDP 晶体的预处理效果, 提高晶体的抗紫外损伤性能。与 3ω 单波长辐照预处理相比, 双波长预处理存在最优的预处理参数, 总体上采用 3ω 和 1ω 双波长同时辐照预处理, 能提高 DKDP 晶体对 3ω 的最大零概率损伤阈值, 降低体损伤点密度。在本文所采用的双波长同时辐照预处理方案中, 是能量密度相对较低的 1ω 参与了 3ω 主导的缺陷与激光的相互作用过程, 这涉及预处理过程中不同波长激光与晶体缺陷相互作用的能量耦合机制。但是, 实验结果仍需获得更加全面系统的实验验证, 关于该过程更加清晰的物理图像和机制, 还需要针对 DKDP 晶体建立双波长辐照预处理模型与晶体缺陷模型, 研究缺陷与各波长激光、以及各波长激光间的相互作用和能量耦合效应。

致 谢 感谢国家自然科学基金委和中国工程物理研究院激光聚变研究中心给予的指导和帮助。

参考文献:

- [1] Burnham A K, Hackel L A, Wegner P J, et al. Improving 351-nm damage performance of large-aperture fused silica and DKDP optics[C]//Proceedings of SPIE 4679, Laser-Induced Damage in Optical Materials. 2002: 173-185.
- [2] Carr C W, Auerbach J M. Effect of multiple wavelengths on laser-induced damage in $\text{KH}_{(2-x)}\text{D}_x\text{PO}_4$ crystals[J]. *Optics Letters*, 2006, 31(5): 595-597.
- [3] 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.
- [4] Krol H, Gallais L, Grèzes-Besset C, et al. Investigation of nanoprecursors threshold distribution in laser-damage testing[J]. *Optics Communications*, 2005, 256(1/3): 184-189.
- [5] 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, Laser-Induced Damage in Optical Materials. 2004: 532-539.
- [6] Giuliano C R. Laser-induced damage to transparent dielectric materials[J]. *Applied Physics Letters*, 1964, 5(7): 137-139.
- [7] Bloembergen N. Laser-induced electric breakdown in solids[J]. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 1974, 10(3): 375-386.
- [8] Hu Guohang, Zhao Yuanan, 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.
- [9] Hu Guohang, Qi Hongji, He Hongbo, et al. 3D morphology of laser-induced bulk damage at 355 and 1064nm in KDP crystal with different orientations[C]//Proceedings of SPIE, Laser-Induced Damage in Optical Materials. 2010.
- [10] Li Yaguo, Zhu Dexing, Zhang Qinghua, et al. Threshold fluences for conditioning, fatigue and damage effects of DKDP crystals[J]. *Optical Materials*, 2019, 91: 199-204.
- [11] Feit M D, Rubenchik A M. Implications of nanoabsorber initiators for damage probability curves, pulselength scaling, and laser conditioning[C]//Proceedings

- of SPIE, *Laser-Induced Damage in Optical Materials*. 2003: 74-82.
- [12] DeMange P, Negres R A, Rubenchik A M, et al. The energy coupling efficiency of multiwavelength laser pulses to damage initiating defects in deuterated KH_2PO_4 nonlinear crystals[J]. *Journal of Applied Physics*, 2008, 103: 083122.
- [13] Reyn e S, Loiseau M, Duchateau G, et al. Toward a better understanding of multi-wavelength effects on KDP crystals[C]//Proceedings of SPIE, Damage to VUV, EUV, and X-Ray Optics II. 2009: 73610Z.
- [14] 吴金明, 赵元安, 汪琳, 等. 1064 nm激光和355 nm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)
- [15] 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)
- [16] DeMange P P. Laser-induced defect reactions governing the damage performance of KDP and DKDP[D]. Davis: University of California, 2006: 49-59.
- [17] 刘志超, 许乔, 雷向阳, 等. 大口径氩化磷酸二氢钾晶体离线亚纳秒激光预处理技术[J]. *物理学报*, 2021, 70: 074208. (Liu Zhichao, Xu Qiao, Lei Xiangyang, et al. Off-line sub-nanosecond laser conditioning on large aperture deuterated potassium dihydrogen phosphate crystal[J]. *Acta Physica Sinica*, 2021, 70: 074208)
- [18] Hicks D G, Boehly T R, Eggert J H, et al. Dissociation of liquid silica at high pressures and temperatures[J]. *Physical Review Letters*, 2006, 97: 025502.
- [19] Carr C W, Bude J D, DeMange P. Laser-supported solid-state absorption fronts in silica[J]. *Physical Review B*, 2010, 82: 184304.
- [20] Li Ting, Zhao Yuanan, Lian Yafei, et al. Optimizing sub-nanosecond laser conditioning of DKDP crystals by varying the temporal shape of the pulse[J]. *Optics Express*, 2021, 29(22): 35993-36004.