·光学元件激光损伤·综述·



熔石英等光学材料激光损伤疲劳效应

朱景国, 田 野, 杨 英, 张 鑫, 郑胜亨, 王德恩, 韩 伟

(中国工程物理研究院激光聚变研究中心,四川绵阳 621900)

摘 要: 以熔石英材料为主,以几种典型(铌酸铋晶体、三硼酸锂晶体和HfO₂/SiO₂多层膜)的光学材料为 辅,介绍了其疲劳效应的主要表现;总结了激光波长、光斑直径、激光频率和材料位置对疲劳效应的影响;介绍 了疲劳效应的两种模式:统计性的假疲劳和材料改性的真疲劳;介绍了疲劳效应的三种主要的机理解释:吸收 缺陷模型、化学键断裂模型、色心模型;比较了疲劳实验中两种实验模式,并指出了两者的优缺点和适用研究 对象。调研表明,对于不同类型的材料,使用不同的激光波长或其他差异条件,就有可能有不同的疲劳现象、 源于不同的疲劳机理。

关键词: 激光损伤;疲劳效应;激光诱导缺陷;损伤机理 中图分类号: O437 文献标志码: A doi: 10.11884/HPLPB202335.220245

Review on laser damage fatigue effects of fused silica and other optical materials

Zhu Jingguo, Tian Ye, Yang Ying, Zhang Xin, Zheng Shengheng, Wang De'en, Han Wei (Laser Fusion Research Center, CAEP, Mianyang 621900, China)

Abstract: Under continuous laser irradiation, the damage threshold of fused silica and other optical materials will continue to decrease, showing the "fatigue effect", which seriously affects the life and stability of the repetition frequency optical system. This paper introduces the performance under fatigue effect of optical materials mainly fused silica materials, supplemented by several other typical optical materials (bismuth niobate crystal, lithium triborate crystal and HfO_2/SiO_2 multilayer film). The effects of laser wavelength, spot diameter, laser frequency and material position on fatigue effect are summarized. Two modes of fatigue effect are introduced: statistical false fatigue and material modified true fatigue. Three main mechanisms of fatigue effect are introduced: absorption defect model, bond-breaking model and coloured center model. Two experimental modes in fatigue experiment are compared, and their advantages and disadvantages and applicable research objects are analyzed. Finally, the present research status of this field are summarized, and the future development trend and directions are prospected.

Key words: laser induced damage, fatigue effect, laser induced defect, mechanism of damage

固体激光器在科学研究、国防军工、工业制造、医疗健康等领域获得了大量的应用,具备不可估量的价值^[1-2]。 相比单脉冲激光器,重复频率工作的激光器(每分钟输出几次到每秒输出上千次的激光)具有更高的工作效率,在 多个领域正得到越来越广泛的应用。在激光惯性约束聚变能源研究中,美国提出的LIFE装置^[3]设计使用 16 Hz 工 作频率的共 384 束激光,以达成 2.2 MJ 的高额能量输出。在工业制造领域,高重复频率激光器由于其更加高效的 能量输出,在激光打标、钻孔、切割、焊接等方面都有着巨大的市场需求^[4-5]。

但是,重频激光器面临的关键问题之一是光学元件在激光损伤上表现出的疲劳效应。该效应是指光学元件承 受多次激光辐照后其抗激光损伤能力下降,使得元件在受到低于原激光损伤阈值的辐照通量时也会发生损伤的现 象。光学元件疲劳效应制约了激光系统的工作频率、输出功率,降低了系统的可靠性。因此,固体激光器进一步 发展需要研究光学元件、膜层、材料的激光疲劳效应,掌握典型材料和元件的疲劳特性与规律,了解导致疲劳的物 理机制,以获得抑制疲劳效应的方法。由于熔石英较高的强度和低热膨胀系数,其作为光学元件具有广泛的应

 ^{*} 收稿日期:2022-08-10; 修订日期:2023-02-12
 联系方式:朱景国, zhujg9077@foxmail.com。
 通信作者:韩 伟, tonyhan2000@163.com。

用。本文以熔石英等光学材料的激光损伤疲劳效应的表现为主线,对不同参数对疲劳效应的影响、疲劳效应的两 种模式和疲劳效应的机理模型进行了总结。

1 激光损伤疲劳效应的主要表现

在重复频率激光的连续辐照下,熔石英和一些非线性光学晶体、氧化物薄膜等光学材料的激光诱导损伤阈值 (LIDT)会随着辐照发次的增加而降低,并在一定范围内先近似以对数关系下降,然后下降速度逐渐平缓并趋于稳 定。图1描述了几种典型材料:熔石英^[6]、铌酸铋(Nb₂O₅)晶体^[7]、三硼酸锂(LiB₃O₅,LBO)晶体^[8]和HfO₂/SiO₂多层 膜^[9]材料的激光损伤阈值随辐照发次变化关系。图1(b)中的实验铌酸铋晶体使用了两种沉积过程:粒子辅助沉积 (IAD)和磁控溅射(MS),结果并未对其疲劳效应造成明显影响。



Fig. 1 Schematic diagram of fatigue effect of several materials 图 1 几种材料的疲劳效应示意图

在良好的实验条件下,通常需要上千次的激光辐照才会让疲劳效应开始趋于平缓,需要上万次的辐照才能达 到基本稳定。也因为这种饱和现象,激光通量存在一个"安全点"^[10],即在低于该安全值的激光通量下,无论辐照 多少次都不会产生损伤。从图 1(c)可以看出,波长较长时 LBO 晶体的疲劳效应较明显,而波长较短时(紫外区段) 则基本看不到下降现象。这表明不同材料的疲劳表现不尽相同,它们的疲劳损伤效应也可能源于不同的机理。

2 激光损伤疲劳效应的影响参数

2.1 激光波长

目前普遍认为,在长波长时激光与物质相互作用较强,以统计性质的假疲劳为主;在短波长时激光与物质相互作用较弱,以材料改性的真疲劳为主^[11]。如图 1(b)、(c)所示,在红外波长下材料的激光损伤阈值快速下降,而紫外波长下下降较慢甚至基本不变。并且通过对相关文献大量的统计都印证这一现象在疲劳效应的普遍性,也即是 1064 nm 的统计性假疲劳比 355 nm 的材料改性真疲劳效果更强。并且大部分展现出疲劳效应的材料在长波长下也会更快达到饱和,即饱和需要更少的辐照发次,但这个值往往也在千次以上。而 Wagner^[12]发现,LBO 这类晶体属于例外,他认为该材料在激光损伤疲劳效应中的材料改性行为是由红外光子所导致的。

Gouldieff^[13] 等测试了同属于紫外区段的 266 nm 和 355 nm 下熔石英的疲劳效应,如图 2 所示。实验体现出在 低通量段,波长更短的疲劳效应更明显;而高通量段,两者疲劳效应表现相近。所以在紫外区段的波长下,波长越



Fig. 2 Influence of wavelength on fatigue effect under ultraviolet condition 图 2 紫外条件下波长对疲劳效应的影响

短,疲劳效应越明显,即材料改性现象更明显。

2.2 光斑直径

激光损伤阈值具有"口径效应",即辐照到材料上的光斑直径越大,损伤阈值越少。这是由于口径越大越容易 辐照到材料内分散存在的低阈值制造缺陷上,进而降低损伤产生阈值的测量值。口径对于疲劳效应的影响如图 2 所示,在两波长下光斑直径分别由 40 µm、30 µm 减小到 8.9 µm、11.5 µm,前后散点分布并无明显区别,这表明激光 损伤的疲劳效应并不具有"口径效应"。其他研究也印证了这一点^[12,14]。这是因为疲劳效应测试的是一个固定位 置的抗损伤能力的变化情况,该位置的制造缺陷分布情况已固定,不影响统计性假疲劳。对于材料改性的真疲劳, 因为激光通量不变,光斑口径的大小不会影响改性产生的新缺陷的密度和"恶劣度",因此也不会对疲劳效应产生 显著影响。

2.3 材料位置、激光频率

Natoli 等研究分析了不同波长下疲劳效应在熔石英体内和表面的差别,如图 3 所示^[6,15]。无论是 1064 nm 下还 是 355 nm 下,石英体内的疲劳效应都比在表面的要更加明显。如图 4 所示,该研究也分析了在 0.01~10 Hz 范围内 进行 10 发次辐照,石英的损伤概率随频率增加而增加,即,高频率下激光损伤的疲劳效应更明显。这并不是由于 高频率使得能量来不及散失而持续积累,直到积累的能量足够大才导致了疲劳损伤,因为疲劳效应即使中断很久 也会持续保持着"疲劳状态"。



图 3 石英体内和表面在 10 Hz 时疲劳效应的区别

2.4 脉宽

Momgaudis 等人研究了熔石英在 1030 nm 激光的不同脉宽下的疲劳效应,发现脉宽较宽的疲劳效应明显强于短脉宽的情况,实验结果如图 5 所示^[16]。这跟脉宽与辐照次数的乘积,即总辐照时间有关。Ke 等人研究表明熔石 英材料对激光的吸收率会随着总辐照时间的增加而增加,并近似呈饱和指数增长^[17]。Zhurkov 等人曾实验给出损 伤所需总辐照时间 *N*_D*t*_p 与电场强度 *E* 的关系为^[18]

$$N_{\rm D}t_{\rm p} = \tau_0 \exp(U_0 - \gamma_{\rm E} E)/kT \tag{(1)}$$



图 4 激光辐照频率对 10 发辐照后损伤概率的影响





图 5 在不同泵浦激光脉宽下,入射能量和损伤所需发次的关系

式中: N_D和 t_p分别是损伤时激光辐照次数和激光脉宽, τ₀和 γ_E为材料参数, U₀为损伤的初始活化能 (E=0), k 为玻 耳兹曼常数, T 为绝对温度。该公式指出在材料和其他实验条件不变的情况下, 脉宽越宽, 材料发生损伤所需要的 辐照次数越少, 即疲劳得更快。

3 疲劳效应的两种模式

3.1 假疲劳(统计疲劳)和真疲劳

起初,研究者们普遍认为激光损伤是概率性的,在低于损伤阈值的激光通量辐照下也有小概率发生损伤,所以 按统计学表现为多发次亚阈值激光辐照下产生损伤^[19]。这是因为材料中有一些损伤阈值较低的制造缺陷,而每次 辐照时都有概率照到这种缺陷并产生损伤,所以表现为损伤的概率性。这并不是疲劳效应的本质,其疲劳状态在 辐照结束后不会保留,因此称之为假疲劳或统计疲劳。不过这种统计性特别是在激光与物质相互作用较弱时很常 见,并且计算起来较为方便,有一定的实用意义^[20-21]。不过近年来,越来越多的证据表明多发次辐照导致材料发生 了改性,使得材料的激光损伤阈值确实下降了^[13,22]。并且这种疲劳状态会长时间地影响材料抗损伤性能,因此称 之为真疲劳。这在激光与物质相互作用较强时,即在使用紫外光辐照的情况下尤为明显。此外,多发次辐照不仅 会导致光学元件材料本身的改性,也会导致夹具、边框以及空气等环境的改变^[23],这会带来元件之外的影响。

Wagner 等人^[11] 分别在 1064 nm 和 355 nm 下测试了在不同的归一化激光通量 F下, SiO₂ 发生损伤所需要的辐照次数 N_D,并用 N_D(F) 图来描述。随着激光通量的减小,损伤所需辐照次数 N_D 也逐渐增加,即产生了疲劳效应。 在长波长下,如图 6(a)所示,对每个激光通量 F, N_D 的分布范围都较广且均匀,这种符合统计学规律的疲劳现象即 为假疲劳;在短波长下,如图 6(b)所示, N_D 分布更窄,且在每个通量上的分布更加不均匀,此时便认为是材料改性 的影响,为真疲劳。



Fig. 6 Fatigue effects at different wavelengths 图 6 不同波长下疲劳效应的表现

3.2 两种疲劳模式共同作用

在材料改性所引发的真疲劳下也难免会同时有统计因素的影响^[24],这在实验时表现为:若第一发辐射便打在 了低损伤阈值的缺陷点上,那便无法继续测试其后续的材料改性现象。此时若采用 *F*(*N*) 的实验模式,即在不同的 辐照次数 N 下测试其损伤阈值通量 F, 那么便会对实验统计的损伤阈值带来不利的浮动, 影响对疲劳现象的正确分析。因此在分析真疲劳时应采用 N(F)的实验模式, 即在不同的激光通量 F 下测试损伤所需要的辐照次数 N_D。如图 7 所示, 较低辐照次数便损伤的点多为制造缺陷的影响, 而在其上方的散点则为真疲劳。N(F) 实验模式能够较好区分并分析两种疲劳模式, 是独立研究真疲劳或假疲劳的首选。

3.3 疲劳效应保持时间

Eva^[25] 实验测试了熔石英在 248 nm 波长下以 f_p = 33 Hz 泵浦频率辐照了 2000 次, 接着中断 12 h 再继续辐照, 测得材料的吸收率 A 仍保持中断前的状态; 而在中断 12 d 后继续实验吸收率则会有一定下降, 但仍比 12 d 前的初始 值要高, 如图 8 所示。Eva 认为这是由于多发次辐射产生并积累了色心缺陷导致的。Gouldieff^{13]} 测试了疲劳效应 导致的损伤阈值下降是否会因中断而重置。使用 266 nm 波长的激光, 他设置了几组熔石英样本, 一组连续测试不中断的参照组, 得到出现损伤时的辐照次数 N_D ; 实验组中, 一组先连续辐照 N_1 =1000 次然后中断 7 min, 接着继续连 续辐照至出现损伤, 中断后至损伤的辐照次数记为 N_2 ; 另一组设置为先连续辐照 800 次然后中断 45 min 后继续连 续辐照。实验结果如图 9 所示, 有 $N_2 < N_D$, $N_1 + N_2 \approx N_D$ 。即已经承受一定发次辐照后的材料比原始材料更容易发生 疲劳损伤; 且中断前后的辐照发次之和, 与不中断连续辐照的发次相等。表明辐照中断后疲劳效应仍在保持, Gouldieff 推断这是因为产生了新的缺陷, 该缺陷可能是临时的, 但持续时长却足以保持到一次实验结束。



图 9 疲劳效应的弛豫实验

3.4 真疲劳效应使材料发生了改性

刘文文^[9]测试了 HfO₂/SiO₂ 高反射涂层在固定辐照次数下使用不同激光通量时的损伤概率,发现当辐照次数 N超过 60 时概率曲线会出现一个转折点,在这个转折点的通量后损伤概率迅速增大,并且该转折点数值会随辐照 次数的增加呈指数下降。刘文文认为这是因为疲劳效应产生了新的不可逆缺陷。之后其分析了样本的损伤形貌, 发现对于单脉冲辐照,典型的形貌是被大面积等离子体烧蚀包围的中心凹坑;对于多次辐照激光,当激光通量不超 过转折点时的损伤形貌仅为大面积等离子体烧蚀,当高于转折点时才出现凹坑。值得一提的是这次实验使用的 是 1064 nm 波长的激光。而在 2015 年, 刘文文又一次做了类似的实验^[23], 此次使用的是 532 nm 波长, 这次的损伤 形貌是: 单次辐照下为等离子体烧蚀包围的凹坑, 且坑深随着激光通量的增加而增加; 而多次辐照下仅表现为凹坑 状, 周围没有等离子体烧蚀, 并且坑深不受激光通量和辐照次数的影响, 如图 10 所示。在激光损伤中, 坑状损伤多 是由于亚 μm 尺寸的吸收缺陷等积攒大量能量, 导致材料在通道体积内过热和熔化, 并伴随着快速的内压积累, 之 后断裂部分和熔融物质都喷射出来形成。等离子体烧蚀是亚表面缺陷发射的等离子体与周围空气耦合的结果, 这 一现象归因于电子雪崩导致垂直于入射激光通量的电离前沿位移, 同时伴随着烧蚀机制^[26]。单次辐照和多次辐照 下激光损伤形貌的差异表明两者的损伤前驱体(缺陷)是不同的。对于不同波长下的实验结果差异尚待更深入地研究。



Fig. 10 Damage micromorphologies of HfO₂/SiO₂ high reflection coatings at 532 nm
 图 10 在 532 nm 波长下 HfO₂/SiO₂ 高反射涂层的损伤显微形貌

4 激光损伤疲劳效应的机理模型

几十年来对于激光损伤疲劳效应的物理机制存在多种解释,主要解释模型有三种:吸收缺陷模型、化学键断 裂模型和色心模型。

4.1 吸收缺陷模型

关于激光损伤(非特指疲劳损伤)经典的热力损伤模型为:当缺陷点吸收较高的激光能量会快速加热升温,与缺陷周围产生温差以及热膨胀的不均匀带来的应力差,当达到一定临界值时便会发生局部的"微爆炸"从而产生损伤^[27]。

吸收缺陷模型认为多发次的激光辐照会使材料产生 并积累新的吸收缺陷,进而增加其吸收率,最终表现为激 光损伤阈值的下降,即疲劳效应。图 11 为 Eva 等人测试 的关于熔石英的吸收率随激光辐照发次的变化关系图^[25]: 使用 248 nm 激光以 70 Hz 泵浦频率进行辐照,随着辐照次 数的增加,吸收率也持续提升,并且提升速度逐渐降低,有 饱和趋势。

2021 年 Rudenko 等人^[28] 以超快光激发和流体力学的 思路研究了多脉冲激光下熔石英体内纳米级结构的成 因。每次脉冲后, 二氧化硅块体内会发生不可逆转的改 性, 导致出现孔洞结构。这种纳米空洞也是一种吸收缺 陷, 它自身附近偏振相关的局域场增强导致了系统的光学



 Fig. 11
 Absorption coefficient of fused silica increases with the shots

 图 11
 熔石英的吸收率随激光辐照次数的提升

各向异性,致使非线性吸收增强和局域光学击穿。在电离过程局部地将介电材料转变为具有准金属性质的吸收等 离子体。导带中的电子被激光加热,并将它们的能量传递到基质中。在之后的脉冲中,超短光与改性后的纳米结 构相互作用,导致二氧化硅块体的部分对称性破坏。如图 12 所示,在数发辐照后,电子密度(归一化为电子数量 *N*e与临界值 *N*cr 的比值)和温度开始变得更加不均匀并且向分散的纳米级区域集中。

4.2 化学键断裂模型

化学键断裂模型认为激光向键合的 Si-O 对施加了额外的动能使其产生致密化^[29-31],此时激光的辐照激励起到 了高度定域反冲作用,而吸收的能量在晶格中引发瞬时破裂。并且在高频率、高功率的电场中化学键更容易发生 断裂,进而使材料在构造薄弱部位产生裂缝^[32]。田野等^[33]以分子动力学模拟研究了紫外光诱导熔石英引发的结构





图 12 在固定的电场 E下, 激光辐照 1 和 3 次后, 辐照区的电子密度 N_e/N_{cr} 和温度 T_i的快照

改性,发现连续的激光激励可以引起更多的配位缺陷。如图 13 描绘了缺陷数量与激励次数的关系,其中非桥氧空 穴中心(NBOHC)的前体——NbO 随激励次数快速增长着,这表明连续激光激励使熔石英材料不断发生着水解反 应,导致 Si-O 键发生了断裂。并发现辐照后的 SiO₂ 结构中,连接 NbO 缺陷的 Si-O 键明显短于规则的 Si-O 键,且 辐照后由于 Si^s 的形成所引起的 Si-O-Si 键角的变化也造成了 Si-Si 对间距的减小。

Shcheblanov 等^[31,34] 研究了多发次激光辐照下玻璃二氧化硅的主环数变化与材料致密化的关系。他们对玻璃 二氧化硅进行 *N*=800 次激光辐照并与原始样品对照其主环数的变化,结果如图 14 所示,辐照后六元环和七元环等 主环数含量降低,三元环和四元环等次环数含量升高,导致网络连通性增加,材料产生致密化。且玻璃二氧化硅的 四元环和三元环通常与其拉曼谱线在约 495 cm⁻¹ 的缺陷线 D₁ 和在约 605 cm⁻¹ 的缺陷线 D₂ 有关 ^[35]。佐证了激光致 密化的断键机制。

4.3 色心模型

该模型认为多发次激光辐照让材料内积累了足够多的色心,使得电子可以在材料的中间间隙能态积累,这些 电子又可以在价带外电离并促成雪崩过程,从而在较低的激光通量下产生击穿,即疲劳效应。这里中间间隙能态 可能来源于点缺陷,也可能是由导带的电子弛豫形成暂态,即自陷激子态(STE)¹⁶]。STE态的寿命很短,无法直接 影响激光损伤阈值,其会通过原子位移概率性地转换成长寿命的色心,进而带来影响^[37-38]。值得注意的是,当激光 激励较大时,快速的振动激活将降低载流子进入 STE态的概率,以此降低结构致密化的速度^[39-40]。

激光损伤疲劳效应成因复杂,至今没有一个完美的解释。其或许由上述多个物理机理共同作用,又或许起因 于尚未发现的机理,这还需要更多的研究。



 Fig. 13 Number of several types of defects in fused silica increases with the increase of laser excitation times
 图 13 熔石英内几种缺陷的数量随激光激励次数的增加而增加



5 结 论

在重复频率激光的连续辐照下,熔石英等光学材料的激光诱导损伤阈值(LIDT)会随着辐照发次的增加而降低,并在一定范围内近似呈现对数下降关系,这便是激光损伤的疲劳效应。该疲劳效应又分为"真疲劳"和"假疲劳"。多数情况下,当激光波长较长时以统计性假疲劳为主,并且损伤阈值下降的速度更快,达到稳定所需的辐照次数也更少;当波长较短时以材料改性的真疲劳为主,其疲劳效应则表现得更缓慢也更久。

在总结前人的实验中,有固定辐照发次 N 来测损伤阈值通量 F 的 F(N) 模式,也有固定辐照通量 F 来测损伤时 发次 N_D 的 N(F) 模式。实验中真疲劳和假疲劳往往是共存的,在 F(N) 模式下两种疲劳会混杂在一起,但这也是工 程应用上实际的表现,因此 F(N) 模式"应用"研究的较好选择;而 N(F) 模式可以很好地将两种疲劳区分开来,单独 研究真疲劳或假疲劳的表现,并且工作量也仅为前者的 1/10,是"机理"研究的首选模式。

关于真疲劳效应的机理,普遍认可主要有吸收缺陷模型、化学键断裂模型、色心模型三种,但三者都不能对疲劳效应进行完美的解释,其机理还需要更多的研究。对于材料的不同类型,使用的不同激光波长或其他的差异条件,它们的疲劳现象就可能有不同的表现、源于不同的机理。由于目前在工程应用中假疲劳现象难以避免,甚至 于不稳定的制造缺陷背后的假疲劳机理也值得更深入地研究。

参考文献:

- [1] 唐晓军, 王钢, 刘娇, 等. 高亮度固体激光器技术发展研究[J]. 中国工程科学, 2020, 22(3): 49-55. (Tang Xiaojun, Wang Gang, Liu Jiao, et al. Development of high brightness solid-state laser technology [J]. Strategic Study of CAE, 2020, 22(3): 49-55)
- [2] 张国书. 核聚变能源的开发现状及新进展[J]. 中国核电, 2018, 11(1): 30-34. (Zhang Guoshu. Status and recent progress in the development of nuclear fusion energy[J]. China Nuclear Power, 2018, 11(1): 30-34)
- [3] 肖凯博, 袁晓东, 蒋新颖, 等. 美国LIFE计划激光驱动器概念设计研究现状[J]. 激光与光电子学进展, 2015, 52: 040001. (Xiao Kaibo, Yuan Xiaodong, Jiang Xinying, et al. Research status of conceptual design of diode-pumped solid-state laser driver for LIFE[J]. Laser & Optoelectronics Progress, 2015, 52: 040001)
- [4] Baufeld B, Dutilleul T. Electron beam welding of large components for the nuclear industry [J]. MATEC Web of Conferences, 2019, 269: 02009.
- [5] Schultz V, Cho W I, Merkel A, et al. Deep penetration laser welding with high seam surface quality due to buttonhole welding [C]//IIW 2018 Annual Assembly and International Conference. 2018.
- [6] Natoli J Y, Bertussi B, Commandré M. Effect of multiple laser irradiations on silica at 1064 and 355 nm[J]. Optics Letters, 2005, 30(11): 1315-1317.
- [7] Douti D B L, Gallais L, Commandré M. Laser-induced damage of optical thin films submitted to 343, 515, and 1030 nm multiple subpicosecond pulses[J]. Optical Engineering, 2014, 53: 122509.
- [8] Wagner F R, Hildenbrand A, Natoli J Y, et al. Multiple pulse nanosecond laser induced damage study in LiB₃O₅ crystals[J]. Optics Express, 2010, 18(26): 26791-26798.
- [9] Liu W W, Wei C Y, Wu J B, et al. Investigations on single and multiple pulse laser-induced damages in HfO₂/SiO₂ multilayer dielectric films at 1064 nm[J]. Optics Express, 2013, 21(19): 22476-22487.
- [10] Kitriotis D, Merkle L D. Multiple pulse laser-induced damage phenomena in silicates [J]. Applied Optics, 1989, 28(5): 949-958.
- [11] Wagner F R, Gouldieff C, Natoli J Y. Contrasted material responses to nanosecond multiple-pulse laser damage: from statistical behavior to material modification[J]. Optics Letters, 2013, 38(11): 1869-1871.
- [12] Wagner F R, Natoli J Y, Beaudier A, et al. Nanosecond multiple pulse measurements and the different types of defects [C]//Proceedings of SPIE 10447, Laser-

Induced Damage in Optical Materials. 2017: 1044719.

- [13] Gouldieff C, Wagner F, Natoli J Y. Nanosecond UV laser-induced fatigue effects in the bulk of synthetic fused silica: a multi-parameter study[J]. Optics Express, 2015, 23(3): 2962-2972.
- [14] Rosenfeld A, Lorenz M, Stoian R, et al. Ultrashort-laser-pulse damage threshold of transparent materials and the role of incubation[J]. Applied Physics A, 1999, 69(S1): S373-S376.
- [15] Natoli J Y, Capoulade J, Bertussi B, et al. Need to define a functional LIDT in multiple irradiation cases: examples of silica and KDP at 1064 nm and 355 nm[C]//Proceedings of SPIE 5991, Laser-Induced Damage in Optical Materials. 2005: 599109.
- [16] Momgaudis B, Smalakys L, Vengris M, et al. Optical fatigue investigation with in situ time resolved digital holography [C]//Proceedings of SPIE 11173, Laserinduced Damage in Optical Materials. 2019: 111730A.
- [17] Ke K, Chen J, Gao F, et al. Study of UV repetition laser-induced absorption on fused silica surface using a surface thermal lensing technique[J]. Optics Letters, 2020, 45(8): 2379-2382.
- [18] Zhurkov S N, Petrov V A, Kondyrev A M, et al. Thermofluctuation nature of optical resistance of transparent solids[J]. Philosophical Magazine B, 1988, 57(2): 307-317.
- [19] Bass M, Barrett H. Avalanche breakdown and the probabilistic nature of laser-induced damage [J]. IEEE Journal of Quantum Electronics, 1972, 8(3): 338-343.
- [20] Schrameyer S, Jupé M, Jensen L, et al. Algorithm for cumulative damage probability calculations in S-on-1 laser damage testing [C]//Proceedings of SPIE 8885, Laser-Induced Damage in Optical Materials. 2013: 88851J.
- [21] Jensen L, Mrohs M, Gyamfi M, et al. Lowering evaluation uncertainties in laser-induced damage testing [C]//Proceedings of SPIE 9632, Laser-Induced Damage in Optical Materials. 2015: 96321J.
- [22] Liu Wenwen, Wei Chaoyang, Yi Kui, et al. Multiscale analysis of single- and multiple-pulse laser-induced damages in HfO₂/SiO₂ multilayer dielectric films at 532 nm[J]. Chinese Optics Letters, 2015, 13: 091404.
- [23] Becker S, Pereira A, Bouchut P, et al. Accelerated low fluence laser ageing of AR coatings[C]//Proceedings of SPIE 5991, Laser-Induced Damage in Optical Materials. 2005: 59910M.
- [24] Wagner F R, Gouldieff C, Natoli J Y, et al. Nanosecond multi-pulse laser-induced damage mechanisms in pure and mixed oxide thin films [J]. Thin Solid Films, 2015, 592: 225-231.
- [25] Eva E, Mann K. Calorimetric measurement of two-photon absorption and color-center formation in ultraviolet-window materials [J]. Applied Physics A, 1996, 62(2): 143-149.
- [26] Chambonneau M, Diaz R, Grua P, et al. Origin of the damage ring pattern in fused silica induced by multiple longitudinal modes laser pulses [J]. Applied Physics Letters, 2014, 104: 021121.
- [27] 李雨菡,肖华攀,王海容,等. 湿法刻蚀处理熔石英光学元件研究进展[J]. 激光与光电子学进展, 2021, 58: 1516026. (Li Yuhan, Xiao Huapan, Wang Hairong, et al. Review on wet etching technique of fused silica optical elements[J]. Laser & Optoelectronics Progress, 2021, 58: 1516026)
- [28] Rudenko A, Colombier J P, Itina T E, et al. Genesis of nanogratings in silica bulk via multipulse interplay of ultrafast photo-excitation and hydrodynamics[J]. Advanced Optical Materials, 2021, 9: 2100973.
- [29] Wootton A, Thomas B, Harrowell P. Radiation-induced densification in amorphous silica: a computer simulation study [J]. The Journal of Chemical Physics, 2001, 115(7): 3336-3341.
- [30] Zheng Lianqing, Lambropoulos J C, Schmid A W. Molecular dynamics study of UV-laser-induced densification of fused silica. II. Effects of laser pulse duration, pressure, and temperature, and comparison with pressure-induced densification [J]. Journal of Non-Crystalline Solids, 2005, 351(40/42): 3271-3278.
- [31] Shcheblanov N S, Povarnitsyn M E, Mishchik K N, et al. Raman spectroscopy of femtosecond multipulse irradiation of vitreous silica: experiment and simulation[J]. Physical Review B, 2018, 97: 054106.
- [32] Chmel A E. Fatigue laser-induced damage in transparent materials [J]. Materials Science and Engineering: B, 1997, 49(3): 175-190.
- [33] Tian Ye, Du Jincheng, Zu Xiaotao, et al. UV-induced modification of fused silica: insights from ReaxFF-based molecular dynamics simulations[J]. AIP Advances, 2016, 6: 095312.
- [34] Shcheblanov N S, Povarnitsyn M E. Bond-breaking mechanism of vitreous silica densification by IR femtosecond laser pulses[J]. Europhysics Letters, 2016, 114: 26004.
- [35] Pasquarello A, Car R. Identification of Raman defect lines as signatures of ring structures in vitreous silica [J]. Physical Review Letters, 1998, 80(23): 5145-5147.
- [36] Emmert L A, Mero M, Rudolph W. Modeling the effect of native and laser-induced states on the dielectric breakdown of wide band gap optical materials by multiple subpicosecond laser pulses [J]. Journal of Applied Physics, 2010, 108: 043523.
- [37] Tanimura K, Tanaka T, Itoh N. Creation of quasistable lattice defects by electronic excitation in SiO₂[J]. Physical Review Letters, 1983, 51(5): 423-426.
- [38] Guizard S, Martin P, Petite G, et al. Time-resolved study of laser-induced colour centres in SiO₂[J]. Journal of Physics: Condensed Matter, 1996, 8(9): 1281-1290.
- [39] Jürgens P, Vrakking M J J, Husakou A, et al. Plasma formation and relaxation dynamics in fused silica driven by femtosecond short-wavelength infrared laser pulses [J], Applied Physics Letters, 2019, 115: 191903.
- [40] Velpula P K, Bhuyan M K, Courvoisier F, et al. Spatio-temporal dynamics in nondiffractive Bessel ultrafast laser nanoscale volume structuring[J]. Laser & Photonics Reviews, 2016, 10(2): 230-244.