



·光学元件激光损伤·综述·

光学元件激光预处理技术研究进展及其应用*

张晶晶^{1,2,3}, 杨 峰^{1,2}, 寇 洋^{1,2}, 王灼寒^{1,2}, 袁 磊^{1,2},
高宏伟^{1,2}, 薄 勇^{1,2}, 彭钦军^{1,2}

(1. 中国科学院 理化技术研究所 固体激光重点实验室, 北京 100190; 2. 中国科学院 理化技术研究所 功能晶体与
激光重点实验室, 北京 100190; 3. 中国科学院大学, 北京 100149)

摘 要: 光学元件中的杂质和缺陷会引起其激光损伤阈值的大幅降低, 现阶段这一问题已成为激光装置向高功率、高能量方向发展的“瓶颈”, 亟待解决。在对光学元件激光损伤的研究中发现, 用低于光学元件损伤阈值的激光对元件表面进行预处理, 可以有效提高光学元件的抗激光损伤能力。对激光预处理技术的提出背景、定性作用机理、定量理论模型及国内外技术应用现状进行了概述。并且介绍了一种可在薄膜制备过程中进行原位实时激光预处理的新型薄膜制备技术。最后指出, 激光预处理技术作为一种无污染, 可有效改善光学薄膜、光学玻璃、光学晶体元件损伤阈值的最有效方法之一, 其作用机理、实用化、仪器化还有待进一步发展。

关键词: 激光预处理; 光学薄膜; 杂质和缺陷; 激光损伤阈值

中图分类号: TN249

文献标志码: A

doi: 10.11884/HPLPB202335.230067

Research progress and application of laser preconditioning technology for optical components

Zhang Jingjing^{1,2,3}, Yang Feng^{1,2}, Kou Yang^{1,2}, Wang Zhuohan^{1,2}, Yuan Lei^{1,2},
Gao Hongwei^{1,2}, Bo Yong^{1,2}, Peng Qinjun^{1,2}

(1. Key Laboratory of Solid State Laser, Technical Institute of Physics and Chemistry, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China;

2. Key Laboratory of Functional Crystals and Laser Technology, Technical Institute of Physics and
Chemistry, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China;

3. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100149, China)

Abstract: Defects and impurities in optical components can lead to significant reduction in the laser damage threshold, which has become a “bottleneck” in the development of high-power and high-energy laser devices and needs to be solved urgently. In the study of laser damage of optical components, it is found that the laser damage resistance of optical components can be effectively improved by pretreating the surface of the components with a laser below the damage threshold. In this paper, the background, qualitative mechanism, quantitative theoretical model and application status of laser conditioning technology are summarized, and a new film conditioning technology for in-situ real-time laser conditioning of thin films is introduced. Finally, it is pointed out that laser conditioning is one of the most effective methods that can effectively improve the laser induced damage threshold of optical films, optical glasses, and optical crystal components. However, its mechanism, practicality, and instrumentation still need further development.

Key words: laser conditioning, optical films, defects and impurities, laser induced damage threshold

1964 年, 激光惯性约束聚变 (Inertial Confinement Fusion, ICF) 理论和研究的创始人之一王淦昌先生, 提出了用激光打靶实现核聚变的设想。20 世纪 80 年代末, 美国利用地下核爆的辐射能量成功驱动惯性约束聚变, 演示了 ICF 技术路线的可行性。1993 年, 美国劳伦斯利弗莫尔国家实验室 (Lawrence Livermore National Laboratory, LLNL)

* 收稿日期: 2023-03-30; 修订日期: 2023-06-15

基金项目: 国家自然科学基金项目 (61875208)

联系方式: 张晶晶, viviank0921@163.com。

通信作者: 杨 峰, yangfeng@mail.ipc.ac.cn;

高宏伟, gaohongwei@mail.ipc.ac.cn。

实施“国家点火装置(National Ignition Facility, NIF)”计划,进一步推动了ICF的进程。2022年12月13日,美国能源部宣布,LLNL首次成功在核聚变反应中实现“净能量增益”,实验中,采用192束强激光轰击氘氚靶丸,输入2.05 MJ激光能量,产生了3.15 MJ的聚变能量输出,净增益超过50%。这项成果,预计可能帮助人类在实现“零碳排放能源”的进程中迈出关键一步。

NIF装置具有的大口径(0.5~1 m)光学元件数目众多,包括钨玻璃片、偏振片、反射镜、透镜、窗口和晶体等。为保证高功率装置稳定运行,解决限制其高功率输出的因素是现今各国重点关注的问题。人们发现,限制ICF装置高功率输出的主要问题是“设备内损伤”。ICF等大激光装置的输出激光区别于常规激光,一方面强激光应用需要大面积的光学孔径,面积的增加意味着光学元件中的杂质与缺陷量将成倍增加;同时,强激光光斑尺寸大,器件中杂质与缺陷落入激光辐照区的几率将大幅增加且无法通过换点方式避开。研究者们认为,光学元件特别是薄膜和体材料的损伤根源,主要来源于 μm 乃至 nm 尺度的各类缺陷^[1]。激光引起元件损伤的过程大致为:通过对激光的本征吸收、杂质缺陷吸收和非线性吸收等方式,将光能耦合进自身表面或内部,转化为热能或产生高浓度等离子体,造成热熔融或者击穿破坏^[2]。所以,内部各种高吸收性杂质与缺陷的存在会使材料的激光抗损伤性能显著降低。

在尽量控制杂质与缺陷实现光学元件激光损伤阈值提高方面,针对材料前期,可以采取使用抗激光损伤能力强的原材料、材料提纯、改进工艺来提高元件本身的内在质量,另外后期的“激光预处理技术”也是众多光学元件上架运行前的重要措施。现今,激光预处理技术已成为NIF装置建设过程中提升光通量的关键技术手段^[3]。对激光引起光学元件的损伤进行研究,发现用低于光学元件损伤阈值的激光对其进行辐照,可以有效提高光学元件的抗激光损伤能力^[4-6]。该项技术最早在1977年由Bessarab等人在用红外脉冲激光对光学元件表面损伤的改善作用的研究中发现^[7]。1979年, Temple等人采用 CO_2 激光扫描熔石英表面,使损伤阈值得到了提高。1982年,“激光预处理”的概念被正式提出^[8]。虽然有研究发现,在对不同光学元件进行预处理后,呈现的效果并不一致,还有部分显示激光预处理后的元件,损伤阈值有不变^[9]甚至降低^[10]的情况,但更多研究发现激光预处理能够有效增强光学元件的损伤阈值。研究者们认为这一现象主要与具体材料的特点及预处理激光的参数相关^[11]。

本文从激光预处理的产生背景出发,通过介绍预处理效果与激光预处理技术的关系,总结了现阶段广为接受的三种技术的定性作用机制;并针对技术对杂质与缺陷的影响总结了三种定量描述模型;然后介绍了预处理实际应用中各种影响因素;列举了若干典型的对该技术的应用实例。最后,讨论了激光预处理技术的发展方向。

1 激光预处理机理

激光预处理技术的过程较为复杂,对不同光学元件及不同激光参数,预处理的效果并不一致,如对光学薄膜而言还与薄膜的制备方法、结构、特性、缺陷的种类和分布等有关,这也表明激光预处理技术在具体应用中大多是数种机制共同作用的结果^[12-15]。现阶段对预处理作用机制的研究中,主要包括激光清洗机制、激光加热退火机制及激光消除电子缺陷机制。

1.1 激光清洗机制

1987年, Arenberg提出了“激光清洗机制”^[16],用以解释预处理对光学元件激光损伤阈值的增强效应。激光清洗机制的理论认为:预处理激光对光学元件辐照后,引起表面升温,除去了元件表面或内部的挥发性杂质(如空气、水汽、灰尘等),这种激光净化的作用提高了抗激光损伤能力。在对透明体材料(晶体和玻璃)等进行激光预处理后,伴随损伤点密度减少的现象,还发现了表面粗糙度降低及透射率提高等现象^[17-20],这能够通过激光清洗机制进行解释。然而对很多薄膜元件,使用过后,经一段时间很容易再次吸附挥发性杂质,如果仅考虑激光清洗机制解释阈值增强现象,那么理论上该现象应该是可逆的,而实际上薄膜元件经预处理后的增强效应,既有暂时的也有永久性的^[21-22]。所以激光清洗机制无法给出所有预处理增强效应的充分解释。

1.2 激光加热退火机制

1988年, Stewart和Guenther利用 CO_2 激光对几种典型氧化物材料退火,实验中发现退火前后材料的结构出现一定程度的变化,相同薄膜材料在不同退火条件下呈现出不同的晶格结构。用1064 nm激光进行薄膜损伤测试,发现利用电子束加热沉积法制备的 Ta_2O_5 膜,退火后损伤阈值提高了40%左右。因此,研究者们提出了“激光加热退火机制”,来解释预处理的阈值增强效应^[5]。这种机制主要认为:光学元件某区域被低于激光损伤阈值的能量辐照后达到熔点,产生固-液界面快速移动后发生液相再凝结,这个过程减少了材料的结构缺陷,该机制认为激光

预处理相当于使材料进行了一次“退火”，进而增强了光学元件抗激光损伤的能力。但该机制的适用系统具有局限性，取决于特定材料和激光波长关系，如光学薄膜对波长 10.6 μm 激光具有吸收作用，才能利用该波长激光进行加热退火。

1.3 激光消除电子缺陷机制

1990年，Wolfe等人利用电子束蒸发沉积镀膜，针对适用于NIF装置的 $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ 和 $\text{ZrO}_2/\text{SiO}_2$ 薄膜进行了实验研究^[23]。实验结果表明：薄膜阈值增强效应的原因为不是污染物的吸收和激光诱导的相变，并且该实验中的薄膜变化是永久性的。研究者认为，高质量光学薄膜中观察到的激光预处理效应与薄膜中的固有电子缺陷有关。理论研究中，他们将薄膜的损伤微观过程概述为：1)光激发电子由浅能隙态进入导带；2)自由载流子在光电场作用下经加速/吸收被激发至高能量；3)通过雪崩^[24]或电子-声子相互作用(晶格加热)将多余能量转移到晶格^[25]；4)薄膜加热到某些临界损坏温度(如电介质材料的熔点或沸点)致损伤。

进一步，他们认为激光预处理的效果是由于对上述步骤(1)的遏制而发生的，也就是当以低通量激光辐照电介质材料，缺陷能级中的电子会被激发到导带，但该光电场不足以造成损伤(步骤(2)和(3))，于是电子衰变到较深能级，所以随后激光辐照中便不易被激发至导带。经预处理后的材料，再以高于未处理损伤阈值的强度辐照时，能转移至导带的电子数量很低，因此转移到晶格的净能量不会引起损伤，进而提高了光学薄膜的抗激光损伤能力。

2 激光预处理的定量模型

目前解释激光预处理效应的三大机制，本质上都认为效应产生的原因与光学元件中杂质与缺陷的种类及密度减少有关。所以将其作为出发点分析激光预处理过程，对探究激光预处理技术对光学元件损伤阈值的提高机理具有重要参考价值。迄今较成熟的定量预处理模型主要有三种，在建模阶段三者都假设了两个阈值通量及对应的阈值温度：其一是预处理阈值通量 F_{cond} ，它对应预处理的阈值温度 T_{cond} ；其二是损伤阈值通量 F_c ，对应了损伤阈值温度 T_c 。三种模型的差异体现在，经亚阈值激光辐照后，计算杂质与缺陷数量的方法。

2.1 Feit-Rubenchik-Dyan (F. R. D) 模型

由Feit, Rubenchik和Dyan等人提出的F. R. D模型的基础是热扩散理论^[26-28]。研究者假设损伤是由激光在杂质中的吸收引起的。在激光辐照后杂质粒子的温度会升高，当杂质粒子表面温度达到某一临界值时，热爆炸产生等离子体从而导致材料的损坏。为确定将粒子加热到临界温度所需的激光通量，需要求解适当的热方程。杂质粒子在预处理阈值温度会发生分解，分解后的杂质半径会减小，但其余特性不发生变化。对热扩散方程求解，得到阈值通量与粒子半径间的表达式

$$F_{c/\text{cond}} = \frac{2\lambda T_{c/\text{cond}}}{\alpha \sqrt{\kappa \xi(a)}} \sqrt{\tau} \quad (1)$$

$$\xi(a) = \frac{UA}{1-X^2} \left[\phi\left(\frac{X}{A}\right) - X^2 \phi\left(\frac{1}{XA}\right) \right] \quad (2)$$

式中： λ 是基底材料的热导率； α 是杂质的吸收系数，它通常表示为 $\alpha = \sigma/\pi a^2$ ，其中 σ 为吸收截面， a 为粒子半径，而对于半径远小于激光波长的杂质粒子，可以用公式 $\alpha \approx -\frac{12n\omega a}{c} \text{Im} \frac{n^2}{\varepsilon + 2n^2}$ 求出吸收系数，其中 n 为折射率， ε 为粒子的介电常数， c 为光速； κ 是基底材料的热扩散率； τ 是激光脉宽； $U = \sqrt{D/\kappa}$ ； $D = 3\lambda/4\rho c_p$ ，杂质的质量密度为 ρ ，比热容为 c_p ； $A = a/\sqrt{4D\tau}$ ； $X = U + \sqrt{U^2 - 1}$ ； $\phi(x) = 1 - \exp(x^2)\text{erfc}(x)$ ，其中 $\text{erfc}(x)$ 为误差函数。假设杂质密度根据半径的分布为 $n(a)$ ，则预处理后的损伤点密度可以表示为

$$\rho(F) = \int_{a_c(F)}^{a_c(F)} n(a) da - \int_{a_c(F_{\text{cond}})}^{a_c(F_{\text{cond}})} n(a) da \quad (3)$$

式中： $a_c(F_{\text{cond}})$ 表示的是激光通量处于预处理阈值通量时，经预处理可消除的缺陷半径。因此，在实验中对损伤阈值通量和预处理阈值通量的数值进行记录后，结合已知的杂质粒子数分布 $n(a)$ ，F. R. D模型就能预测出预处理后的损伤点密度。

2.2 Absorption Distribution Model (ADM) 模型

ADM模型由LLNL实验室的Liao等人在2010年提出，模型基础仍是热扩散方程^[29-30]。该模型与F. R. D模型较为相似，但在它的条件下，假设吸收元之间会有随机汇聚，那么吸收系数在半径相同的杂质间会产生一定分布，

研究者将这种分布认为是正态分布,由此得到概率密度函数

$$f(\alpha) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma} \exp\left[-\frac{(\alpha-\mu)^2}{2\sigma^2}\right] \quad (4)$$

该模型将缺陷分为两类:能够通过预处理消除的缺陷 μ_1 、 σ_1 和不可消除的缺陷 μ_2 、 σ_2 ,所以式(4)中的 $\mu = \mu_1 + \mu_2$, $\sigma = \sigma_1 + \sigma_2$,二者都是与杂质与缺陷类型吸收相关的参数(μ 为平均值, σ 为方差)。如果假设两种吸收分布是完全相关的,那么可以合理地假设,当一种类型大量存在时另一种类型也会存在。假设预处理激光通量为 F ,那么半径为 a 的杂质发生损伤的概率为

$$P(F,a) = \int_{\alpha_x(F,a)}^{\infty} f(\alpha) d\alpha \quad (5)$$

式中:积分下限 $\alpha_x(F,a)$ 是激光通量为 F 时,要使半径为 a 的杂质与缺陷达到损伤阈值温度,满足条件的吸收系数值。利用热传导方程求出这一吸收系数具体数值后,对损伤概率进行求解,进一步能够得到损伤点密度的表达式

$$\rho_F = \int_{a_{\min}}^{a_{\max}} n(a)P(F,a) da \quad (6)$$

研究者指出,式(6)等号右侧积分的上下限分别代表杂质与缺陷粒子半径的两个极值,一般选取为 500 nm 和 50 nm。研究者们在实验中预设 R-on-1 是最佳预处理效应的测量值,并表示 S-on-1 和 R-on-1 的损伤测试结果能够清楚地描绘未处理(S-on-1)和“最佳预处理”(R-on-1)情形。假设能够被预处理消除的杂质与缺陷已被完全消除,经等式(5)可以使用 R-on-1 数据提取不可被消除的杂质与缺陷的参数,再用 S-on-1 数据提取能被消除的杂质与缺陷参数。一旦粒子半径分布已知,就可以 $n(a)$ 和式(6)求解损伤点密度。研究者们根据 ADM 模型进行计算,将在实验中所得结果与之对比,结果显示粒子分布函数的选择会影响模型的预测准确性,利用合适的分布函数会获得很好的预测结果^[31]。

2.3 Duchateau 模型

2009年, Duchateau 模型被提出^[32],同样基于分析热对杂质与缺陷的影响。模型对杂质与缺陷的假设包括以下两种:第一种假设其由点缺陷组成,机制一认为热激活的迁移(即内嵌原子团与空位的复合)可能导致其湮灭;第二种假设缺陷是结构性缺陷,机制二认为温升会导致缺陷相变继而引起随后的晶体结构重组(即热熔融)。该模型首先给出了缺陷半径 a 与热扩散率 D 的关系为 $a \ll D\tau$ 时,缺陷吸收产生温场的表达式

$$T(\mathbf{r},t) = T_0 + \sum_{i=1}^{n_0} \frac{P_a a^2}{4\lambda} \int_{\frac{r_i}{4Dt}}^{\infty} \exp(-u)/u du \quad (7)$$

式中: \mathbf{r} 为缺陷 i 在平面上随机分布的位置; t 为时间; T_0 为初始温度; n_0 是初始缺陷数; u 为无量纲积分变量;单位体积吸收的功率 $P_a = \zeta F/\tau$; ζ 为吸收系数,取 10^4 cm^{-1} 。然后,当考虑一组缺陷时,组合效应会导致更高的温度。

机制一分析认为,假设上述缺陷实际上是由原子大小的点缺陷组成,这些点缺陷在迁移过程中可以湮灭,例如,间隙空位对满足这一要求。在这种情况下,预处理是通过减少点缺陷的数量来减少缺陷的吸收。每个内嵌原子团在被预处理激光辐照时,假设每隔 1 ps 都可能发生向周围晶格的转移,转移概率可以写成

$$P(t) = \exp[-E_a/k_B T(t)] \quad (8)$$

式中: E_a 表示激活能, k_B 为玻耳兹曼常数。在转移中,原子团会有复合或不复合的可能,转移过程停止需满足 $P(t) < 0.01P(t = \tau)$ 。因此,转移 m 步后的残余缺陷数 $n(a)$ 为: $n_0 \prod_{i=1}^m [1 - P(t = t_i) \times 0.5]$ 。

机制二将缺陷认为是一种结构缺陷,并假设预处理激光脉冲在缺陷附近诱导相变。随后,当冷却到室温时,晶格的重新排列消除了缺陷。这是由于对结构缺陷而言,当与其相距 5 倍结构缺陷厚度外,材料的温度超过沸点,结构缺陷会被消除。根据温场表达式计算出可被消除的缺陷数 n' ,则残余缺陷数 $n_a = n_0 - n'$ 。因为预处理阈值通量与吸收系数呈负相关,吸收系数与缺陷数呈正相关,因此预处理后的阈值增益为

$$g = \frac{F_c^{\text{ac}}}{F_c^{\text{bc}}} = \frac{n_0}{n_a} \quad (9)$$

式中: F_c^{bc} 为预处理前的材料损伤阈值, F_c^{ac} 为预处理后的材料损伤阈值。此外,研究者对比了机制一和机制二对部

分预处理影响因素的预测能力。结果表明：脉冲通量和脉宽的影响均能够被较好解释，但机制二对脉宽的敏感度高于机制一；在预处理对损伤密度曲线形状的影响方面，机制二表现出更好的模拟实验结果的能力，机制一无法解释预处理前后损伤密度形状不变的原因；机制二则在脉冲数对预处理效果产生的影响上无法解释。同时，研究者指出大多数缺陷通常会结合结构缺陷和点缺陷，所以实际上具有复杂的性质。

综上所述，对三种理论定量模型进行对比可以看到，F. R. D模型和 Duchateau模型将求解热方程作为切入点，两者对损伤点密度的计算均依赖于温度变化与缺陷数目的联系；而ADM模型则依赖于统计理论，实验获得参数的方式使模型预测结果的准确性较高，并且由于预测结果对材料的特征参数敏感性较低，这保证了较高的可移植性。同时，当前模型精度不够高的原因可能包括：首先，对热方程的求解上，目前均假设材料具有恒定的物理参数，且在温升过程保持不变，但实际很难保证在升温过程中，材料的吸收系数不发生变化，这一部分会引发材料与缺陷的热不稳定性；其次，预处理激光波长也会对杂质与缺陷的吸收产生影响。

3 激光预处理方式

定量模型研究表明，具体的预处理效应与激光和杂质与缺陷的各类参数有关，所以研究具体工艺应用下各类参数的影响对工程化具有重要价值。激光预处理技术研究中，会根据不同环境和目标光学元件特点对预处理方式进行适当调控，这些影响预处理效应的因素包括激光类型、扫描方式、激光能量、脉宽等。

3.1 预处理激光类型

激光预处理技术研究方面，美国的LLNL和法国的原子能署(Commissariat à l'énergie Atomique, CEA)报道过很多工作，而我国对激光预处理的研究尚处于起步阶段，但随着新阶段对ICF装置的需要，也在加大激光预处理的研究力度。目前激光预处理研究中，主要使用的激光类型主要有：中红外连续(Continuous Wave, CW)或脉冲CO₂激光、近红外脉冲激光及紫外脉冲激光。

中红外连续或脉冲CO₂激光预处理研究始于1979年^[8]，10.6 μm的CO₂激光对元件表面进行辐照，导致元件表面的局部升温，产生高温高压等离子体，出现熔化流动和蒸发现象，这种微熔作用能够减少基底微缺陷、修复膜层初始损伤，达到提高损伤阈值的效果^[33-35]。例如，经CO₂激光预处理的熔石英基片，零概率损伤阈值提高了30%左右^[36]。

近红外脉冲激光预处理研究始于1977年^[7]，主要使用1 μm的Nd离子基频光进行。该类型激光的作用机制主要是修复光学元件的杂质与缺陷，常用于消除薄膜杂质和内部缺陷；文献[37]用1064 nm激光对预处理pick-off镜，研究发现，零概率损伤阈值和50%概率损伤阈值分别提高38.8%和7.6%。紫外脉冲激光主要用来清除石英等基质材料的表面杂质和缺陷，为CO₂激光的预处理做前期准备^[38]，使用的激光源主要包括：准分子XeF、XeCl、KrF激光和三倍频Nd:YAG激光等。

3.2 激光预处理扫描方式

对光学元件进行激光预处理工艺时，根据激光光斑大小，可分为大光斑处理和小光斑处理。大光斑处理也称“全口径辐照处理”，这种处理方式用大小基本为元件口径的激光束辐照元件表面，对激光束要求极为苛刻，激光束很难以达标的辐照时间和均匀光强辐照整个元件，所以大光斑预处理仍处在研究阶段。相应的小光斑处理是指，用较小激光束对元件表面进行匀速扫描，扫描速度由光斑大小、激光脉冲重频等决定，显然的，小光斑处理可以对扫描路径进行优化，同时该方式的扫描速度可控，预处理能够在优化参数上实现较好效果^[39]。

1982年，Temple等人提出两种典型小光斑预处理扫描路径^[8]：

(1) 恒定功率、恒定扫描速度，如图1所示；

(2) 逐渐增加功率的扫描方式。该种扫描方式下有三种能量增加方式(如图2所示)：1) 以元件损伤阈值的某一恒定百分比进行扫描($n\%$)；2) 以元件损伤阈值的某两个百分比作区间，以较大能量间隔递增扫描(n -step)；3) 以较小能量间隔递增(ramp)扫描。三种方式的损伤阈值基准均为未处理元件样品利用S-on-1(对于介质薄膜同一点，用几百个脉冲能量密度相等的激光脉冲照射，两次辐照间隔时间等于1/脉冲重频)方式进行损伤测试的所得值。虽然现有研究显示，以较小能量间隔进行递增扫描的ramp方式具有最明显的处理效果，但该方式对扫描技术要求最高且耗时最长，所以现阶段预处理多采用 n -step方式^[40]。

在处理方式上，包括在线和离线两种方式。1997年，Runkel等首先提出在线处理的可能性，此后Stolz和Sheehan也系统研究了在线预处理技术^[41]，但研究者发现，在线处理不仅对预处理激光的光束质量有更高要求，并

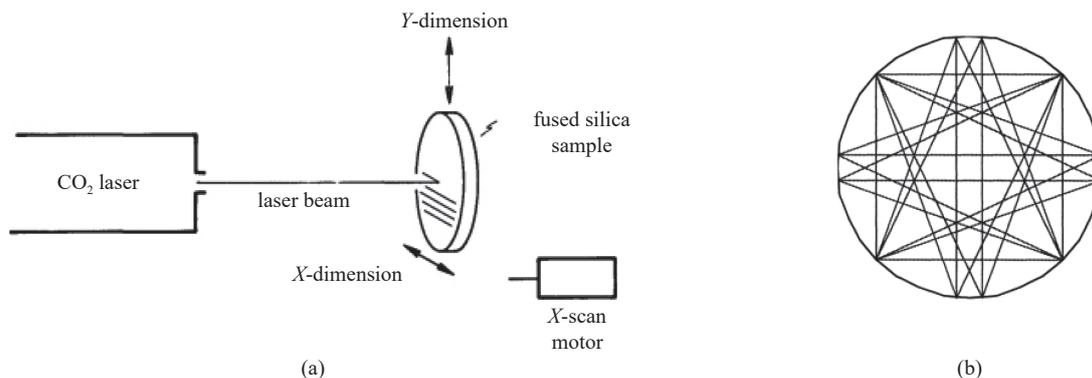


Fig. 1 (a) Schematic diagram of CO₂ laser constant power scanning; (b) schematic diagram of scanning mode

图 1 (a) CO₂ 激光恒定功率扫描示意图; (b) 扫描方式示意图

且由于装置内的光学元件损伤具有一定联系,一个光学元件的破坏会相继引起其他光学元件的破坏,最终导致整个 ICF 装置故障,所以在线处理在工程运行和元件部署方面存在很大不便。因此,离线处理方式为现在最常用的预处理方式,即元件在专用平台进行预处理后,再上架实际运行。

3.3 激光预处理效果的影响因素

该部分主要阐述研究者们在对预处理激光部分参数进行调控的过程中,观察到的对预处理效果的影响,包括波长、脉宽、总通量(单脉冲通量×脉冲数)等。已有研究表明,高于一定的预处理阈值通量才会有较明显的预处理效果,且在不引起元件损伤的前提下,预处理激光通量越高,预处理的效果越好^[42-43]。

Adams 等^[44]根据量化晶体损伤的方法,研究了波长和脉宽对预处理效果的影响。他们使用 Nd 的三倍频激光(351 nm),比较了不同脉宽(55 ps、91 ps、300 ps、860 ps、2.6 ns 和 10 ns)对 DKDP 晶体的预处理效果,脉宽 2.6 ns 的条件下进行损伤测试。从晶体的实际损伤部位提取损伤点密度测量值的过程如图 3 所示。结果显示,预处理脉宽在 860 ps 时损伤点密度最小;研究者还利用三倍频和倍频(527 nm)波长对 KDP 晶体进行预处理,并在倍频测试波长下进行损伤测试,实验结果显示,三倍频预处理效果更优。

DeMange 等^[43,45]对 1064 nm、532 nm、355 nm 三种波长的激光预处理进行系统研究。研究显示采用 532 nm 和 355 nm 的激光进行预处理后,在利用三种波长进行损伤测试的验证中均发现了损伤阈值提升的现象,而 1064 nm 的预处理仅显示对该波长处的损伤有预处理效果;同时研究者发现,532 nm 几乎可消除全部杂质和缺陷,而 355 nm 则只能消除部分杂质与缺陷。研究认为这是由于三个波长间的杂质与缺陷特征不同,或相同特征缺陷具有不同的演变规律。

4 激光预处理研究与应用实例

激光预处理技术对 ICF 类激光装置的高功率输出具有重大意义。为保障装置稳定运行,国内外已经将该技术作为高功率装置建设过程中关键技术手段,研究主要聚焦在光学晶体和光学薄膜应用中。LLNL 利用激光预处理技术去除工艺残留杂质与缺陷或控制其激光响应,具体应用在反射镜^[41,46]、偏振片^[47]、KDP/DKDP 晶体^[48]等光学元件。一方面,在建造 ICF 类激光系统上,唯一能将激光波长从近红外转换到近紫外的大口径晶体是 Busch 和 Scherrer

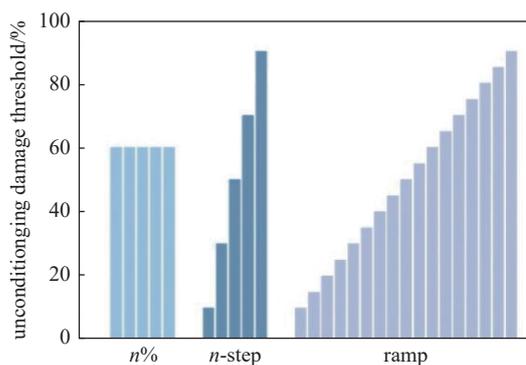


Fig. 2 Three main modes of increasing power

图 2 三种递增功率的主要方式

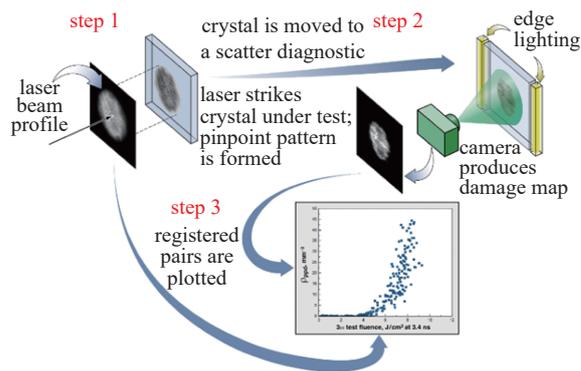


Fig. 3 Processing steps to extract $\rho(\phi)$ measurements from a scattering (damage) map image of the damage site and the corresponding damaging beam's space

图 3 从损伤位置的散射(损伤)图像和相应的损伤束的空间轮廓中提取 $\rho(\phi)$ 测量值的处理步骤

于1995年发现的铁电晶体,特别是KDP和DKDP^[49-50]。早期ICF类激光器研究中发现,如果不进行激光预处理,使用期望激光通量和脉冲长度对晶体进行辐照会使晶体内部出现损伤。另一方面,光学薄膜广泛存在直接支撑激光产生、传输、整形、合成、校正及应用全链条,承载并传输所有激光能量,其作为激光系统中的损伤最短板,抗损伤特性直接决定了激光器件的输出功率等级及输出性能。LLNL在对光学薄膜杂质与缺陷的研究中发现,NIF装置的反射镜上有两种损伤形态对装置有着重要影响:一种是由被称为“结节”的微小颗粒,它们在薄膜形成时嵌入其中;另一种是由薄膜层间(特别是靠近薄膜顶部)附着力差导致的缺陷^[51]。

薄膜的预处理效果与镀膜方式、膜层结构、预处理激光波长等有关,且预处理效果大多时候是多种机制共同作用的结果。在国外,1990年Wolfe等人^[23]研究表明,通过亚阈值激光束辐照,电子束沉积的多层 $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ 薄膜的损伤阈值可永久性增加2至3倍。研究中,使用了三种不同物理气相沉积技术(PVD)制备的薄膜,只有电子束沉积膜有显著改善;不同膜系设计的薄膜呈现不同的预处理效果;膜层数和反射/透射特性对激光预处理效果有轻微影响,研究者认为高质量光学薄膜中观察到的激光预处理效应与薄膜中的固有电子缺陷有关。同年,Kozlowski等人利用脉冲(18 Hz, 8 ns)Nd:YAG激光器(1064 nm)小光斑扫描预处理,研究了 $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ 和 $\text{ZrO}_2/\text{SiO}_2$ 薄膜的预处理效果^[4],损伤测试发现激光预处理效果是永久性的,且损伤阈值的改善高达2倍;进一步,他们提出了一种基于电子缺陷能级排空的预处理效应机理。

1992年,Staggs等人^[52]通过分析亚阈值激光辐照过程中杂质与缺陷区域的高分辨率原子力显微镜(Atomic Force Microscope, AFM)图像,认为激光预处理与缺陷表面的纳米尺度平滑有关,并指出这种平滑可能表明材料的熔化,导致原本机械不稳定的缺陷变为稳定。1995年,Kaiser等^[53]对利用电子束蒸发法制备的 $\text{LaF}_3/\text{MgF}_2$ 高反膜进行激光预处理,研究显示其损伤阈值提高一倍以上。而预处理对热舟蒸发法制备的薄膜则未显示明显的损伤阈值提高现象。研究者认为,这是因为镀膜方式不同,引起的薄膜内部微观结构不同,激光预处理对不同薄膜内部结果会呈现不同作用效果。研究显示,预处理效应与多层膜近表面亚层中的结构和化学计量变化有关。2009年,Melninkaitis等人^[54]在光学参量振荡器(Optical Parametric Oscillator, OPO)中使用的高反镜上,进行了266 nm和355 nm纳秒脉冲对激光预处理效率的实验研究。他们分别在硅基和熔石英基底上制备了 $\text{ZrO}_2/\text{SiO}_2$ 薄膜,再分别用266 nm和355 nm波长的激光对其进行预处理。研究显示了明显的波长效应,355 nm激光对薄膜预处理效果明显,激光诱导损伤阈值提高了2.5到3倍,而266 nm激光没有呈现预处理效果。这与DeMange等^[43,45]人的研究结果互为印证。实验结果说明,在高质量光学薄膜中观察到的激光预处理效应与薄膜中的固有电子缺陷有关。

在ICF一类的大激光装置中,通常需要使用大面积的薄膜元件。1994年,Sheehan等人^[47]通过对激光预处理程序进行调整,证实了米尺寸光学元件激光预处理的可能性。图4是进行大面激光预处理的设备装置图。

用于预处理的Nd:YAG激光器输出波长为1064 nm,能量1.4 J,工作频率10 Hz,脉冲宽度10 ns。后接一个能够将激光能量从接近零到最大可用值进行调节的可变衰减器,再使用有效焦距10 m的望远镜将光束的 $1/e^2$ 直径聚

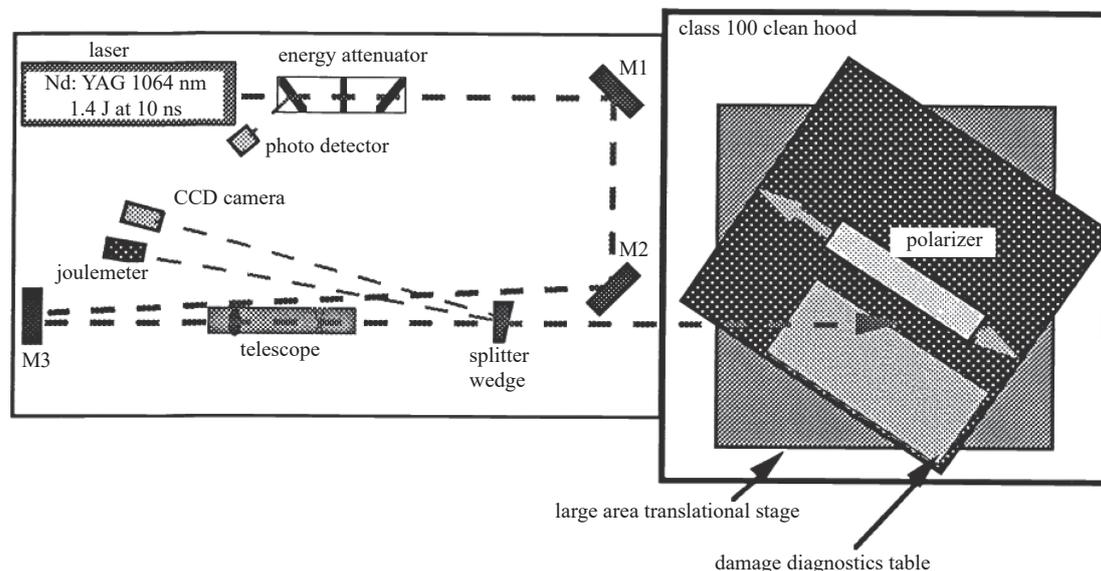


Fig. 4 Large-area conditioning facility layout

图4 大面积激光预处理的设备装置图

焦到 3 mm。光学元件放置在能够移动重达 181 kg 且可以旋转 90°的平移台上,从而可以在其使用角度对元件进行预处理。使用光束轮廓仪和焦耳计在等效样品平面中测量激光能量密度。斜坡处理后的光学元件显示:当 10 mm × 25 mm 的区域用 5 个阶梯辐照通量进行预处理时,损伤阈值增加了 1.8 倍;相同大小的区域仅用两个亚阈值通量步骤进行预处理时,明显无预处理效应;另外在较高辐射通量下发生损伤的严重程度降低了 62%~80%。

典型的,人们研究了对熔石英和 DKDP 类光学晶体进行的激光预处理效果。例如,2001 年,由 Brusasco 等人^[38]研究了 355 nm 激光预处理对大口径熔融石英光学元件上紫外激光诱导的表面损伤位点浓度的影响。研究不仅证明了 355 nm 激光预处理的有效性,同时表明了激光预处理与先进精加工和表面处理技术(如化学蚀刻)相结合时,阈值改善能力能得到进一步增强。这使得激光预处理在降低裸熔石英光学元件的损伤点密度方面显示出巨大前景。2006 年, Demange 等人^[55]指出,激光对 DKDP 类晶体所造成损伤的过程大致可以描述为:缺陷吸收、碰撞离化、等离子体产生与扩展、冲击波形成、材料改性等阶段。此后, Maunier 等人^[56]用 0.6 ns 到 12 ns 的激光脉冲对 KDP 和 DKDP 晶体进行激光预处理。实验证实,亚纳秒脉冲预处理 KDP 二次谐波产生(Second Harmonic Generation, SHG)和 DKDP 三次谐波产生(Third Harmonic Generation, THG)比纳秒脉冲更有效(对 KDP-SHG 样品,亚纳秒预处理的效率大约是纳秒预处理的 2 倍;对 DKDP-THG 样品,在 3ω 、3 ns 的兆焦耳激光通量下,用 600 ps 脉冲进行的激光预处理可以将损伤密度降低 98%~99%,如果用几个纳秒脉冲进行激光调节则被限制为仅 2 至 10 倍。这项工作为激光预处理设备的定义和兆焦耳激光器的 SHG 和 THG 的预处理程序提供了借鉴。

国内在激光预处理对光学薄膜及晶体的研究方面,中国科学院上海光学精密机械研究所、中国工程物理研究院以及中国科学院长春光学精密机械研究所等研究机构先后也有一系列有意义的研究进展。2004 年,黄祖鑫等人使用 Nd:YAG 单横单纵模调 Q 激光器,采用扫描的方式对光学元件进行预处理,分别测量了镀增透物理膜元件和镀 Sol-gel 增透化学膜元件。研究人员就预处理前后元件的表面阈值变化、粗糙度变化、透过率变化以及膜层表面水蒸气凝结变化进行观察研究,对比了膜层预处理前后各参数,认为光学元件膜层激光预处理的过程是对膜层去除缺陷、固化、洁净的过程,印证了“缺陷消除模型”的合理性^[57]。2006 年,崔云等人^[58]在实验中发现,膜层中电场分布对激光损伤深度有一定影响;同时发现激光能量增幅与辐照次数对预处理效果具有严重影响。就此提出了对激光预处理工艺参数(扫描方式、初始能量、扫描次数等)的选择和优化方案。2007 年,黄进等人^[37]为验证激光预处理对薄膜损伤阈值的提高程度,采用光栅扫描方式,用 1064 nm 波长的 SAGA 激光器对镀有多层高反膜的 pick-off 镜进行预处理,研究发现元件的损伤阈值提高了 38.8%,同时表面粗糙度降低了 71.1%。实验证明,对 pick-off 镜之类的镀有高阈值高反射薄膜的光学元件,激光预处理可部分清除膜层表面杂质和缺陷,从而改善元件表面质量,提高其抗激光损伤能力。2008 年,李大伟等人^[59]对电子束蒸发(EBE)制备的 $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ 薄膜进行了激光预处理研究。他们在薄膜表面发现两种不同损伤形貌:锥形凹坑和平底凹坑(如图 5 所示),认为分别是由球状缺陷和吸收缺陷引发,激光对吸收缺陷有预处理效果,但球状缺陷经预处理扫描后损伤阈值变化不明显。总之,这一系列的实验研究证实了激光预处理对于薄膜缺陷的去除作用,并且印证了 ADM 模型的可用性。

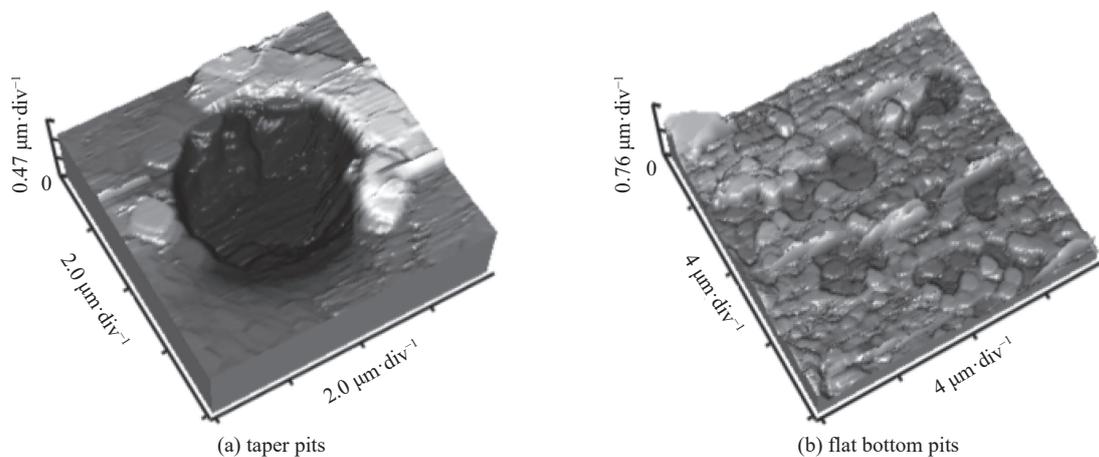


Fig. 5 AFM micrographs of damage morphologies

图 5 损伤形貌的 AFM 显微照片

2010 年, Ling Xiulan 等人^[10]在真空和大气环境下对薄膜的激光预处理进行研究。用缺陷统计模型讨论了两种环境下激光预处理的效果差异:大气环境下,激光预处理能降低薄膜的敏感缺陷密度,提高损伤阈值;真空环境出

现了激光预处理的负效应与氧元素含量的下降(如图6所示), 研究结果说明预处理过程会诱导产生化学计量比缺陷。这与 Kaiser N 等人的实验研究结果得到了一致结论^[53]。

2013年, Liu Jie 等人^[60]采用电子束蒸发法制备了 $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ 的 532 nm 高反射多层膜, 并用 532 nm 激光进行了预处理。在激光预处理前后, 对 532 nm 激光二极管、样品的表面状况和损伤形态进行了表征和比较。结果表明, 电子束沉积的多层 $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ 薄膜在激光处理后可以提高激光损伤阈值, 分析认为这一现象与缺陷密度降低有关。2015年, 刘杰等人^[61]采用单台阶能量光栅扫描及 R-on-1 两种方式研究了激光预处理对 532 nm 的 $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ 高反膜抗激光损伤阈值的处理效果, 二者损伤阈值分别提高 38% 和 30%。同年, Li Zehan 等人^[62]研究了纳秒激光预处理对 Al_2O_3 、 HfO_2 、 SiO_2 、 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{SiO}_2$ 高反膜的飞秒激光诱导损伤行为的影响。结果表明, 纳秒激光预处理使光学薄膜的飞秒激光损伤阈值降低了 5%~10%, 研究者们建立了理论模型来模拟导带中的电子密度演变, 从而利用缺陷消除对激光损伤阈值的提升进行了解释。2018年, 杨利红等人^[63]研究了在 1-on-1 方式下, 激光预处理对 HfO_2 薄膜形貌和微观结构等的影响。AFM、XRD(X-ray Diffraction)及 XPS(X-ray Photoelectron Spectroscopy)结果显示预处理后薄膜所含杂质和缺陷减少, 但其晶态结构、化学键及价态均未发生变化; 同时预处理后, 薄膜中所含 Hf 单质减少, HfO_2 增多。实验结果表明, 激光预处理具有抛光和氧化膜层的作用。以上这些预处理前后薄膜损伤形貌变化的研究, 对进一步探讨激光预处理导致薄膜杂质和缺陷消除的具体机制提供了帮助。2018年, 王建等人^[64]对 ZnSe 薄膜用 532 nm 激光进行不同脉冲与能量下的预处理。研究发现经不同参数激光预处理后, ZnSe 薄膜损伤阈值均有所提高, 在 10 脉冲、3.0 mJ 能量处理后, 损伤阈值由 0.99 J/cm^2 提高至 1.39 J/cm^2 , 提升约 40%, 同时利用 AFM 测试薄膜表面, 发现激光预处理降低了 ZnSe 薄膜表面的粗糙度, 由原来的 0.563 nm 下降到 0.490 nm。2018年, Viktória Csajbók 等人^[65]研究了皮秒脉冲的脉冲次数对高反膜损伤阈值的影响, 使用激光 795 nm (42 fs), 重复频率 1 kHz, 研究表明随着辐照次数增加, 高反膜损伤阈值逐渐减小, 研究者同时指出, 该变化趋势与所选择的高折射材料无关。2023年, Zhang Lijuan 等人^[66]通过多步激光调理工艺显著提高了 SiO_2 溶胶-凝胶抗反射膜的激光损伤阈值。研究者认为激光预处理可以祛除在制备薄膜时引入的微观缺陷, 如空位; 同时激光预处理后的薄膜也具有明显的表面改性作用, 其膜层结构和膜网络致密性发生了显著改变。

进一步, 在对 KDP 和 DKDP 晶体的激光预处理研究中, 国内近几年也获得了最新研究成果。2012年, Hu Guohang 等人^[19]通过对 DKDP 激光处理前后 355 nm、532 nm、1064 nm 的透过率测量, 发现经 6 J/cm^2 和 10 J/cm^2 的激光处理后, 透过率分别提高了 0.05%~0.4% 和下降了 0.1%。研究人员认为透过率降低主要由于激光损伤散射引起, 而透过率增加主要是由吸收减少引起。另外, 从时域角度分析了激光辐照中的晶体受作用区的加热过程, 局部快速上升和慢速冷却过程导致缺陷浓度降低, 从而提高了激光的抗损伤能力和透过率。2014年, Guo Decheng 等人^[67]利用光热吸收和拉曼光谱, 通过使用不同的激光预处理参数, 研究了 KDP 晶体的结构性质。研究发现光热吸收的变化与激光预处理通量有关, 预处理前后的拉曼光谱结果表明, 激光预处理的有效性可能与 PO_4 分子的个体模式有关。2015年, Wang Yueliang 等人^[68]研究了 DKDP 晶体在 355 nm 处的散射缺陷和体吸收的激光预处理效应。结果显示部分散射缺陷能通过晶体的再生减轻, 除散射缺陷外, 还存在一种可能是电子缺陷的吸收缺陷。激光预处理技术可以降低缺陷浓度, 从而提高激光损伤阈值。2017年, 王凤蕊等人^[69]研究了不同激光预处理参数对 KDP 晶体损伤性能的影响。研究者们通过分析激光辐照通量、辐照次数、能量台阶等预处理参数与晶体损伤性能的变化关系, 发现在一定通量范围内, 用不同能量台阶可以获得同样预处理效果。经过合理设计激光预处理参数, 在获得相同预处理效果的同时, 大幅减少了预处理所需时间。2019年, Wang Yao 等人^[70]研究了预处理前后 DKDP 晶体的荧光和受激拉曼散射特性。纳秒激光预处理后荧光强度明显下降, 这反映了晶体中电子缺陷能级的变化和电子缺陷密度的急剧下降; 同时拉曼散射峰强度变化较微弱, 说明激光预处理对晶格振动影响较小。2019年, 吴金明等人^[71]研究了 1064 nm 激光和 355 nm 激光同时辐照 DKDP 晶体的损伤特性。研究结果表明: 当

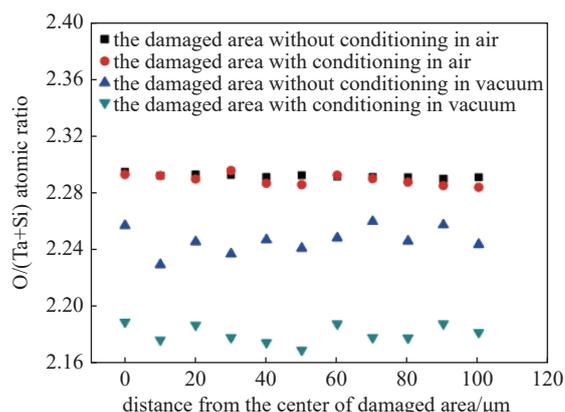


Fig. 6 Stoichiometry of the damaged area with and without conditioning in vacuum environments compared to air environments

图6 真空环境中与空气环境中, 预处理与未处理受损区域的化学计量比

1064 nm 激光和 355 nm 激光以 R-on-1 方式单独辐照样品, 测试样品在损伤概率或损伤针点方面有不同损伤响应, 表现出明显的波长效应; 当 355 nm 激光以 R-on-1 方式辐照样品, 合并不同能量密度(0、12.3、29.4 J/cm²)的 1064 nm 激光, 随 1064 nm 能量密度升高, 样品的抗激光损伤性能逐渐改善, 损伤点形貌趋于 1064 nm 单独作用时的损伤形貌, 损伤点密度逐渐降低, 损伤点尺寸逐渐增大, 整体表现出耦合预处理效应。2020 年, Liu Zhichao 等人^[72] 针对纳秒激光损伤 DKDP 晶体实验, 研究了预处理能量密度和脉冲持续时间对激光损伤性能的影响。结果表明, 较高的激光预处理辐射通量能更好提升晶体抗激光损伤能力, 且一般亚纳秒激光预处理效果优于纳秒。2021 年, 刘志超等人^[73] 讨论并验证了离线亚纳秒激光预处理技术对大口径 DKDP 晶体的损伤性能提升效果。实验结果表明在 9 J/cm² 通量辐照下, 经亚纳秒激光预处理后的大口径 DKDP 晶体元件表面平均损伤密度由 0.0502 cm⁻² 降至 0.0055 cm⁻², 降幅达一个数量级。且损伤点尺寸在激光预处理后存在减小趋势, 尺寸峰值由 25 μm 减小至 18~20 μm, 损伤点的空间位置分布也趋于均匀。2022 年, 李云飞等人^[74] 利用双波长激光同时辐照 DKDP 晶体, 装置如图 7 所示。研究显示, 相比 355 nm 单波长预处理, 采用 355 nm 和 1064 nm 同时辐照的方式存在最优预处理参数, 能更好的降低损伤点密度, 提高 DKDP 晶体对 355 nm 的最大零概率损伤阈值。这些研究不仅在实验上印证了激光预处理作用机制与电子缺陷的相关性, 还对预处理影响因素和随后工艺化参数优化调控给予了定量的支撑。2023 年, 赵元安^[75] 等人针对 DKDP 晶体采用激光预处理技术, 研究认为激光预处理技术可以有效抑制 DKDP 晶体的前驱体以提高损伤阈值, 并尝试了基于脉冲时间波形优化 DKDP 晶体激光预处理, 建立了非对称波形的亚纳秒激光预处理装置, 该处理方式下的阈值提升性能优于对称波形的亚纳秒激光, 达到 17 J/cm²(355 nm, 3 ns), 同时研究证实 500 ps 脉宽的激光预处理效果优于 7.6 ns 脉宽的激光预处理, 这与 NIF 的报道一致。

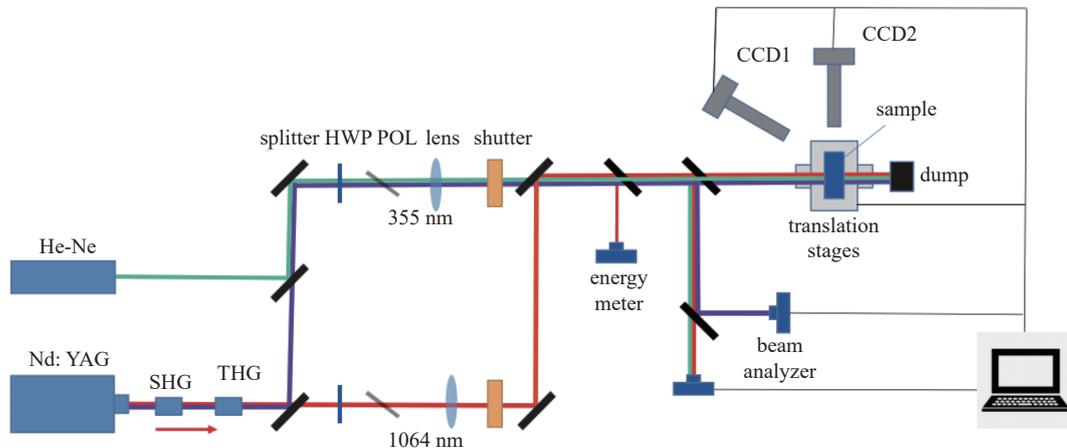


Fig. 7 Experimental system diagram of dual-wavelength conditioning and damage test

图 7 双波长预处理和损伤测试实验系统图

除此之外, 在对激光预处理的拓展应用以及前沿集合方面。2017 年, Liu Zhichao 等人^[76] 提出了一种 ALC (adaptive laser conditioning) 概念, 用光热透镜探针实时检测缺陷后对辐照通量进行自适应控制。研究者指出, 该方式的预处理过程可以将隐藏在缺陷中的损伤风险抑制到非常低的水平。利用球形粒子的导热函数解释了吸收和损伤之间的理论联系。实验结果表明 ALC 能有效地防止激光损伤, 这主要是由于针对每个被辐照单元定制了通量控制策略。2021 年, Zhang Jian 等人^[77] 进行了光学吸收测量和激光损伤阈值测试, 以探索激光预处理对熔融二氧化硅样品中 X 射线诱导缺陷的影响。光谱吸收结果表明, 激光预处理对样品的部分缺陷起到了完全消除的作用, 该研究表明激光预处理可以有效消除辐照引起的缺陷, 可作为高功率激光系统的在线缺陷消除工具。

上述的所谓薄膜激光预处理技术, 是指薄膜元件制备好之后, 安装进激光系统之前用激光辐照薄膜。就薄膜制备本身而言, 这种处理方法属于后处理技术。尽管当前薄膜制备方法、镀膜设备、镀膜工艺及薄膜后处理技术均有巨大的发展, 但是依旧难以有效解决杂质与缺陷问题, 主要由于大部分杂质和缺陷均处于薄膜内部, 特别是高低折射率膜料交界处, 所以后处理技术的作用有限。另外, 在膜料提纯、环境污染控制、缺陷机理抑制研究、充分氧化工艺等方面的研究均收效甚微。最近, 在传统激光预处理技术的基础上, 为解决当前高能激光系统中大面激光薄膜深处的缺陷损伤瓶颈问题, 中国科学院理化技术研究所提出了一种高损伤阈值大面积激光薄膜制备的创新方案——原位实时强激光量子吸收气化激光薄膜制备技术^[78](国家发明专利 ZL 201910363334.8)。在光学薄膜制

备过程中,该技术全程采用亚阈值强激光对沉积中的膜层在 nm 级厚度内(膜料单分子/原子尺度内)进行原位实时全覆盖处理,杂质与缺陷瞬间选择性吸收大量光子,气化脱离膜层或内部参数增强,从而实现对薄膜的整体提纯与改性修复。通过合适的激光参数实现对薄膜沉积过程中的杂质及其他缺陷的有效提纯与改性,获得可以有更高损伤阈值的、高综合性能的洁净光学薄膜。基于上述方案,该团队研究了杂质缺陷微粒子的光量子吸收气化理论模型,并针对薄膜中存在的典型金属杂质粒子及缺陷进行了仿真计算;同时研究了不同激光参数(改变能量、脉宽、重频、峰值强度、扫描方式等)多种方式作用下的薄膜量子吸收气化及改性效果,经初步实验验证了该技术能有效改善大面积薄膜的吸收及抗激光损伤性能。详细的研究成果将另行发表。相比于传统激光预处理技术,具有多种优势:(1)作用环境由空气转至超洁净高真空环境;(2)作用范围由薄膜表面扩展至薄膜整体;(3)作用目标由已形成的缺陷,变为从缺陷种子即开始作用,从而有效抑制缺陷的形成;(4)在薄膜沉积过程中可实时实现边处理、边沉积、边修复,无附带损伤。该技术充分利用了激光预处理技术对杂质与缺陷的高效提纯与改性能力,一方面大幅降低薄膜整体上的杂质与缺陷密度,另一方面剩余的杂质与缺陷经过强激光作用后,应用时的抗激光损伤性能也会大幅提升;同时激光对薄膜的综合能力,如应力分布、微结构特性等有望获得大幅改善,最终从源头及内部解决后续薄膜强激光应用时可能出现的激光损伤风险,全面增强薄膜与激光的相容能力。

5 总结与展望

面对高能激光装置的“瓶颈”问题,国内外进行了对光学元件激光预处理技术的研究。处理对象包括:薄膜元件、光学玻璃和光学晶体。激光预处理不但能有效提高光学元件的损伤阈值,而且具有无污染、安全性高等优点,已成为高功率激光领域广泛使用的处理技术。文章对现阶段提出的有关激光预处理的机理、物理模型、预处理的方式与影响因素等进行了概述,也介绍了国内外使用该技术的典型应用实例。

然而,目前在激光预处理技术研究方面仍存在一些问题。一方面,对于激光预处理效应的机理仍没有确定结论,在对不同光学元件进行预处理的研究中,发现激光预处理的机理需要根据材料本身特性和预处理激光特性确定,并且在具体预处理实例中经常是几种机理共同作用的结果;另一方面,部分预处理观察到的效应尚无法给出具体原因,例如预处理激光的光斑效应、波长效应、能量分级,以及不同工艺和材料对预处理效应的影响,包括激光预处理所引起的一些负面效应等。在研究方向上,由于研究变量较为复杂,目前研究多聚焦在损伤阈值和损伤点密度上,进一步对其他方面的研究可能会对预处理机制的确定有更多启示。在技术应用上,由于元件特性和使用环境不同,采取的多种预处理方法、相关测试与评估手段和过程监控技术仍有待完善。所以将现有技术系统化、标准化将是重要的发展方向。

致谢 感谢国家自然科学基金委和中国科学院理化技术研究所激光物理与技术研究中心给予的指导和帮助。

参考文献:

- [1] Manes K R, Spaeth M L, Adams J J, et al. Damage mechanisms avoided or managed for NIF large optics[J]. *Fusion Science and Technology*, 2016, 69(1): 146-249.
- [2] Manenkov A A, Prokhorov A M. Laser-induced damage in solids[J]. *Soviet Physics Uspekhi*, 1986, 29(1): 104-122.
- [3] Runkel M J, Nostrand M C. Overview of raster scanning for ICF-class laser optics[C]//Proceedings of SPIE 4932, Laser-Induced Damage in Optical Materials: 2002 and 7th International Workshop on Laser Beam and Optics Characterization. 2003: 136-146.
- [4] Kozlowski M R, Wolfe C R, Staggs M C, et al. Large area laser conditioning of dielectric thin film mirrors[R]. Livermore, CA: Lawrence Livermore National Lab., 1990: 376-392.
- [5] Stewart A F, Guenther A H, Domann F E. The properties of laser annealed dielectric films[C]//Proc of SPIE, 1988, 756: 369-387.
- [6] Brauns B, Schäfer D, Wolf R, et al. Effect of the substrate preparation with CO₂ laser radiation on the laser resistance of optical layers[J]. *Thin Solid Films*, 1986, 138(2): 157-162.
- [7] Bessarab A V, Korner S B, Pavlov D V, et al. Statistical relationship governing the surface damage of optical glass by wide laser radiation beams[J]. *Soviet Journal of Quantum Electronics*, 1977, 7(2): 181-185.
- [8] Temple P A, Lowdermilk W H, Milam D. Carbon dioxide laser polishing of fused silica surfaces for increased laser-damage resistance at 1064 nm[J]. *Applied Optics*, 1982, 21(18): 3249-3255.
- [9] Zhao Yuanan, Wang Tao, Zhang Dawei, et al. Laser conditioning and multi-shot laser damage accumulation effects of HfO₂/SiO₂ antireflective coatings[J]. *Applied Surface Science*, 2005, 245(1/4): 335-339.
- [10] Ling Xiulan, Zhao Yuanan, Li Dawei, et al. Laser conditioning of high-reflective and anti-reflective coatings in vacuum environments[J]. *Optics Communications*, 2010, 283(13): 2728-2731.

- [11] 周业为, 谢建, 李育德. 光学薄膜激光预处理及其机理的研究[J]. 激光杂志, 1998, 19(5): 5-7,17. (Zhou Yewei, Xie Jian, Li Yude. Investigation of laser conditioning of optical coatings and the mechanisms[J]. Laser Journal, 1998, 19(5): 5-7,17)
- [12] Zhu Meiping, Yi Kui, Li Dawei, et al. Influence of SiO₂ overcoat layer and electric field distribution on laser damage threshold and damage morphology of transport mirror coatings[J]. *Optics Communications*, 2014, 319: 75-79.
- [13] 肖清泉, 房迪, 赵珂杰, 等. 电子束蒸发方法研究Mg₂Si的薄膜及其光学带隙[J]. 红外与毫米波学报, 2017, 36(2): 202-207. (Xiao Qingquan, Fang Di, Zhao Kejie, et al. Preparation and optical bandgap of Mg₂Si film deposited by electron beam evaporation[J]. Journal of Infrared and Millimeter Waves, 2017, 36(2): 202-207)
- [14] 代福, 杨李著. HfO₂/SiO₂多层高反膜激光预处理技术[J]. 强激光与粒子束, 2013, 25(4): 929-934. (Dai Fu, Yang Liming. Laser conditioning methods for hafnia silica multilayer high-reflective coatings[J]. *High Power Laser and Particle Beams*, 2013, 25(4): 929-934)
- [15] Liu Hao, Chen Songlin, Wei Yaowei, et al. Laser conditioning on HfO₂ film monitored by calorimeter[J]. *Optics Express*, 2012, 20(1): 698-705.
- [16] Arenberg J W, Mordaunt D W. On the role of wavelength in the laser conditioning effect[J]. *Laser Induced Damage in Optical Materials*, 1987, 756: 430-439.
- [17] Kerr N C, Emmony D C. The effect of laser annealing on laser-induced damage threshold[J]. *Journal of Modern Optics*, 1990, 37(4): 787-802.
- [18] Xu Shizhen, Yuan Xiaodong, Yin Wei, et al. Effect of UV laser conditioning on fused silica in vacuum[J]. *Optical Materials*, 2009, 31(6): 1013-1016.
- [19] Hu Guohang, Zhao Yuanan, Li Dawei, et al. Transmittance increase after laser conditioning reveals absorption properties variation in DKDP crystals[J]. *Optics Express*, 2012, 20(22): 25169-25180.
- [20] Guéhenneux G, Bouchut P H, Veillerot M, et al. Impact of outgassing organic contamination on laser-induced damage threshold of optics: effect of laser conditioning[C]//Proceedings of SPIE 5991, Laser-Induced Damage in Optical Materials: 2005, 59910F.
- [21] Swain J E, Stokowski S E, Milam D, et al. The effect of baking and pulsed laser irradiation on the bulk laser damage threshold of potassium dihydrogen phosphate crystals[J]. *Applied Physics Letters*, 1982, 41(1): 12-14.
- [22] Frink M E, Arenberg J W, Mordaunt D W, et al. Temporary laser damage threshold enhancement by laser conditioning of antireflection-coated glass[J]. *Applied Physics Letters*, 1987, 51(6): 415-417.
- [23] Wolfe C R. Laser conditioning of optical thin films[C]//Proceedings of SPIE 1438, Laser-Induced Damage in Optical Materials 1989. 1990: 143810.
- [24] Bloembergen N. Laser-induced electric breakdown in solids[J]. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 1974, 10(3): 375-386.
- [25] Jones S C, Braunlich P, Casper R T, et al. Recent progress on laser-induced modifications and intrinsic bulk damage of wide-gap optical materials[J]. *Optical Engineering*, 1989, 28: 281039.
- [26] Feit M D, Rubenchik A M, Trenholme J B. Simple model of laser damage initiation and conditioning in frequency conversion crystals[C]//Proceedings of SPIE 5991, Laser-Induced Damage in Optical Materials: 2005, 59910W.
- [27] Feit M D, Rubenchik A M. Implications of nanoabsorber initiators for damage probability curves, pulselength scaling, and laser conditioning[C]//Proceedings of SPIE 5273, Laser-Induced Damage in Optical Materials: 2003. 2004.
- [28] Dyan A, Pommies M, Duchateau G, et al. Revisited thermal approach to model laser-induced damage and conditioning process in KH₂PO₄ and D_{2x}KH_{2(1-x)}PO₄ crystals[C]//Proceedings of SPIE 6403, Laser-Induced Damage in Optical Materials: 2006. 2006: 640307.
- [29] 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.
- [30] Liao Z M, Roussell R, Adams J J, et al. Defect population variability in deuterated potassium dihydrogen phosphate crystals[J]. *Optical Materials Express*, 2012, 2(11): 1612-1623.
- [31] Koldunov M, Manenkov A A. Theory of laser-induced inclusion-initiated damage in optical materials[J]. *Optical Engineering*, 2012, 51: 121811.
- [32] 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.
- [33] Ferris K F, Chick L A, Exarhos G J, et al. Microstructural size effects on the dielectric response of inhomogeneous media[C]//Proceedings of SPIE 3244, Laser-Induced Damage in Optical Materials: 1997. 1998.
- [34] Brusasco R M, Penetrante B M, Butler J A, et al. CO₂-laser polishing for reduction of 351-nm surface damage initiation in fused silica[C]//Proceedings of SPIE 4679, Laser-Induced Damage in Optical Materials: 2001. 2002.
- [35] Brusasco R M, Penetrante B M, Butler J A, et al. Localized CO₂-laser treatment for mitigation of 351-nm damage growth in fused silica[C]//Proceedings of SPIE 4679, Laser-Induced Damage in Optical Materials: 2001. 2002.
- [36] 赵松楠, 吕海兵, 任寰, 等. CO₂激光器在光学元件表面处理中的应用[J]. 激光与光电子学进展, 2006, 43(3): 43-47. (Zhao Songnan, Lv Haibing, Ren Huan, et al. Applications of CO₂ laser treatment in optical surface[J]. Laser and Optoelectronics Progress, 2006, 43(3): 43-47)
- [37] 黄进, 赵松楠, 吕海兵, 等. 利用1064 nm激光预处理提高pickoff镜损伤阈值[J]. 强激光与粒子束, 2007, 19(5): 728-732. (Huang Jin, Zhao Songnan, Lv Haibing, et al. Damage-threshold increase of pickoff optics using 1064nm wavelength laser[J]. High Power Laser and Particle Beams, 2007, 19(5): 728-732)
- [38] Brusasco R M, Penetrante B M, Peterson J E, et al. UV-laser conditioning for reduction of 351-nm damage initiation in fused silica[C]//Proceedings of SPIE 4679, Laser-Induced Damage in Optical Materials: 2001. 2002.
- [39] Negres R A, DeMange P, Demos S G. Investigation of laser annealing parameters for optimal laser-damage performance in deuterated potassium dihydrogen phosphate[J]. *Optics Letters*, 2005, 30(20): 2766-2768.
- [40] 魏朝阳, 赵元安, 贺洪波, 等. 光学薄膜元件的激光预处理技术[J]. 激光与光电子学进展, 2005, 42(5): 51-55. (Wei Chaoyang, Zhao Yuanan, He Hongbo, et

- al. Laser conditioning on optical thin film components[J]. *Laser and Optoelectronics Progress*, 2005, 42(5): 51-55)
- [41] Stolz C J, Sheehan L M, Maricle S M, et al. Laser conditioning methods of hafnia-silica multilayer mirrors[C]//Proceedings of SPIE 3578, Laser-Induced Damage in Optical Materials: 1998. 1999.
- [42] DeMange P, Carr C W, Negres R A, et al. Laser annealing characteristics of multiple bulk defect populations within DKDP crystals[J]. *Journal of Applied Physics*, 2008, 104: 103103.
- [43] 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.
- [44] Adams J J, Weiland T L, Stanley J R, et al. Pulse length dependence of laser conditioning and bulk damage in KD_2PO_4 [C]//Proceedings of SPIE 5647, Laser-Induced Damage in Optical Materials: 2004. 2005.
- [45] DeMange P, Carr C W, Negres R A, et al. Multiwavelength investigation of laser-damage performance in potassium dihydrogen phosphate after laser annealing[J]. *Optics Letters*, 2005, 30(3): 221-223.
- [46] Stolz C J, Weinzapfel C L, Rigatti A L, et al. Fabrication of meter-scale laser resistant mirrors for the National Ignition Facility: A fusion laser[C]//Proceedings of SPIE 5193, Advances in Mirror Technology for X-Ray, EUV Lithography, Laser, and Other Applications. 2003.
- [47] Sheehan L M, Kozlowski M R, Rainer F, et al. Large-area conditioning of optics for high-power laser systems[C]// Proceedings of SPIE 2114, Laser-Induced Damage in Optical Materials: 1993. 1994.
- [48] Adams J J, Jarboe J A, Carr C W, et al. Results of sub-nanosecond laser conditioning of KD_2PO_4 crystals[C]//Proceedings of SPIE 6403, Laser-Induced Damage in Optical Materials: 2006. 2007: 64031M.
- [49] 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: 2001. 2002.
- [50] 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.
- [51] Fomier A, Cordillot C, Ausserre D, et al. Laser conditioning of optical coatings: some issues in the characterization by atomic force microscopy[C]//Proceedings of SPIE 2253, Optical Interference Coatings, 1994.
- [52] Staggs M C, Balooch M, Kozlowski M, et al. In-situ atomic-force microscopy of laser-conditioned and laser-damaged $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ dielectric mirror coatings[C]//Proceedings of SPIE 1624, Laser-Induced Damage in Optical Materials: 1991, 1991.
- [53] Kaiser N, Anton B, Jaenchen H, et al. Laser conditioning of $\text{LaF}_3/\text{MgF}_2$ dielectric coatings for excimer lasers[C]//Proceedings of SPIE 2428, Laser-Induced Damage in Optical Materials: 1994. 1995.
- [54] Melninkaitis A, Vaninas A, Mirauskas J, et al. Laser conditioning of high reflectivity mirrors used in OPOs by 266 and 355 nm nanosecond pulses[C]//Proceedings of SPIE 7504, Laser-Induced Damage in Optical Materials: 2009. 2009: 750408.
- [55] 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*, 2006, 45: 104205.
- [56] Maunier C, Bertussi B, Damiani D, et al. Comparison of ns and sub-ns laser conditioning of KDP and DKDP crystals for high power lasers[C]//Proceedings of SPIE 6720, Laser-Induced Damage in Optical Materials: 2007. 2007: 67201L.
- [57] 黄祖鑫, 蒋晓东, 任寰, 等. 激光预处理对光学元件膜层性能的影响[J]. *强激光与粒子束*, 2004, 16(1): 23-26. (Huang Zuxin, Jiang Xiaodong, Ren Huan, et al. Study of laser conditioning influence on properties of optical films[J]. *High Power Laser and Particle Beams*, 2004, 16(1): 23-26)
- [58] 崔云, 赵元安, 晋云霞, 等. 激光预处理对增透膜阈值的影响[J]. *真空科学与技术学报*, 2006, 26(4): 321-325. (Cui Yun, Zhao Yuanan, Jin Yunxia, et al. Influence of laser conditioning on laser induced damage threshold of antireflection layer[J]. *Chinese Journal of Vacuum Science and Technology*, 2006, 26(4): 321-325)
- [59] Li Dawei, Zhao Yuanan, Shao Jianda, et al. 0.532- μm laser conditioning of $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ third harmonic separator fabricated by electron-beam evaporation[J]. *Chinese Optics Letters*, 2008, 6(5): 386-387.
- [60] Liu Jie, Li Xu, Yu Zhenkun, et al. Effect of laser conditioning on the LIDT of 532nm $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ reflectors[C]//Proceedings of SPIE 8786, Pacific Rim Laser Damage 2013: Optical Materials for High Power Lasers. 2013: 87860Z.
- [61] 刘杰, 张伟丽, 朱美萍. 532 nm $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ 高反膜的激光预处理效应[J]. *强激光与粒子束*, 2015, 27: 032034. (Liu Jie, Zhang Weili, Zhu Meiping. Laser conditioning effect of $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ high reflectors at 532 nm[J]. *High Power Laser and Particle Beams*, 2015, 27: 032034)
- [62] Li Zehan, Du Juan, Zhao Yuanan, et al. Modeling the effect of nanosecond laser conditioning on the femtosecond laser-induced damage of optical films[J]. *Optics Express*, 2015, 23(11): 14774-14783.
- [63] 杨利红, 薛鹏成, 王涛, 等. 激光预处理对 HfO_2 光学薄膜微观性能的影响[J]. *光电子·激光*, 2018, 29(2): 187-196. (Yang Lihong, Xue Pengcheng, Wang Tao, et al. Influence mechanism of laser conditioning on the microcosmic properties of HfO_2 optical thin films[J]. *Journal of Optoelectronics-Laser*, 2018, 29(2): 187-196)
- [64] 王建, 徐均琪, 李候俊, 等. 532nm激光辐照下ZnSe薄膜光学特性研究[J]. *应用光学*, 2018, 39(6): 929-935. (Wang Jian, Xu Junqi, Li Houjun, et al. Optical properties of ZnSe film under 532nm laser irradiation[J]. *Journal of Applied Optics*, 2018, 39(6): 929-935)
- [65] Csajbók V, Bedőhazi Z, Nagy B J, et al. Ultrafast multipulse damage threshold of femtosecond high reflectors[J]. *Applied Optics*, 2018, 57(2): 340-343.
- [66] Zhang Lijuan, Jiang Xiaolong, Chen Jing, et al. Effect of laser conditioning on surface modification and laser damage resistance of SiO_2 antireflection film[J]. *Crystals*, 2023, 13: 477.

- [67] Guo Decheng, Jiang Xiaodong, Huang Jing, et al. Effect of UV laser conditioning on the structure of KDP crystal[J]. *Advances in Condensed Matter Physics*, 2014, 2014: 451048.
- [68] Wang Yueliang, Zhao Yuanan, Hu Guohang, et al. Mitigation of scattering defect and absorption of DKDP crystals by laser conditioning[J]. *Optics Express*, 2015, 23(12): 16273-16280.
- [69] 王凤蕊, 李青芝, 郭德成, 等. KDP晶体激光预处理参数的优化[J]. *红外与激光工程*, 2017, 46: 0321005. (Wang Fengrui, Li Qingzhi, Guo Decheng, et al. Laser pretreatment parameters optimization of KDP crystal[J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2017, 46: 0321005)
- [70] Wang Yao, Shao Jianda, Hu Guohang, et al. Laser-conditioning mechanism in KD_2PO_4 crystals revealed by fluorescence and Raman scattering analysis[J]. *Optical Engineering*, 2020, 59: 027105.
- [71] 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 Yuanan, 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)
- [72] Liu Zhichao, Geng Feng, Lei Xiangyang, et al. Effect of laser pulse duration and fluence on DKDP crystal laser conditioning[J]. *Applied Optics*, 2020, 59(17): 5240-5246.
- [73] 刘志超, 许乔, 雷向阳, 等. 大口径氟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)
- [74] 李云飞, 史晋芳, 邱荣, 等. 355 nm和1064 nm双波长预处理对DKDP晶体损伤性质的影响[J]. *强激光与粒子束*, 2022, 34: 061003. (Li Yunfei, Shi Jinfang, Qiu Rong, et al. Effect of 355 nm and 1064 nm dual-wavelength conditioning on the bulk damage properties of DKDP crystal[J]. *High Power Laser and Particle Beams*, 2022, 34: 061003)
- [75] 赵元安, 连亚飞, 李婷, 等. KDP类晶体的激光损伤研究[J]. *强激光与粒子束*, 2023, 35: 071001. (Zhao Yuanan, Lian Yafei, Li Ting, et al. Laser damage of KDP crystals and their analogues[J]. *High Power Laser and Particle Beams*, 2023, 35: 071001)
- [76] Liu Zhichao, Zheng Yi, Zhang Qinghua, et al. Adaptive laser conditioning of reflective thin-film based on photo thermal lens probe[J]. *Review of Scientific Instruments*, 2017, 88: 124901.
- [77] Zhang Jian, Geng Feng, Liu Zhichao, et al. Elimination of X-rays irradiated defects in fused silica by laser conditioning[J]. *Optics Communications*, 2021, 483: 126639.
- [78] 彭钦军, 申玉, 杨峰, 等. 一种提高光学薄膜损伤阈值的大面激光薄膜制备装置: CN109972095B[P]. 2021-02-26. (Peng Qinjun, Shen Yu, Yang Feng, et al. A large area laser thin film preparation device for improving the damage threshold of optical thin films:CN109972095B[P]. 2021-02-26)