文章编号:1000-7032(2018)05-0692-07

紫外准分子激光损伤典型光学材料的特性分析

王 玺*,李志明,谢运涛,聂劲松*

(国防科技大学脉冲功率激光技术国家重点实验室,安徽合肥 230037)

摘要:根据已经建立的紫外准分子激光损伤典型光学材料的理论模型,研究了准分子激光对透明光学材料 (石英玻璃)和非透明光学材料(K9玻璃)的损伤特性,并结合实验结果证实了理论模型的有效性。研究表 明:在准分子激光对非透明光学材料辐照下,激光光斑半径越大,产生的热应力和温度越小;脉宽越小,产生 的热应力越大;随着脉冲数的增加,温度和热应力都逐渐增大。值得注意的是,当重频增加至45 Hz 以上时, 熔融损伤阈值开始低于应力损伤阈值,这说明当重频增加到一定程度时,非透明光学材料将首先产生熔融损 伤,而不再是应力损伤。在准分子激光对透明光学材料辐照下,杂质微粒的半径和掩埋深度对光学材料温度 场分布有着重要影响。但当杂质半径和掩埋深度超过一定的数值时,杂质粒子的存在与表面温度并无联系。 理论模型能够较好地解释石英玻璃前/后表面相同的初始损伤形貌特征。

关 键 词:激光损伤;紫外准分子激光;典型光学材料 中图分类号:TN249 **文献标识码:** A **DOI**: 10.3788/fgxb20183905.0692

Characteristics of Typical Optical Materials Damaged by Ultraviolet Excimer Laser

WANG Xi*, LI Zhi-ming, XIE Yun-tao, NIE Jing-song*

(State Key Laboratory of Pulsed Power Laser Technology, National University of Defense Technology, Hefei 230037, China) * Corresponding Authors, E-mail: eastangus@126.com; njs7001@ sina.com

Abstract: According to the theoretical model of typical optical materials damaged by ultraviolet excimer laser, a numerical simulation was performed to calculate temperature and thermal stress fields using finite element method. The damage effects of excimer laser on transparent optical material (fused silica) and non transparent optical material (K9 glass) were investigated, and the validity of the theoretical model was confirmed by the experimental results. The simulation results indicate that the laser parameters exhibit a great effect on damage effect and damage threshold. It is worth noting that the melting damage threshold is lower than the stress damage threshold when the repetition rate increases to more than 45 Hz. The thermal damage of excimer laser to the strongly adsorbed impurities on the surface of fused silica is also analyzed. The theoretical analysis is in agreement with the same initial damage morphology of fused silica surface.

Key words: laser damage; ultraviolet excimer laser; typical optical material

基金项目:脉冲功率激光技术国家重点实验室基金(SKL2014ZR03)资助项目

Supported by Foundation of State Key Laboratory of Pulsed Power Laser Technology(SKL2014ZR03)

收稿日期: 2017-08-28: 修订日期: 2018-01-11

1引言

K9 和石英玻璃常用作光学系统的窗口、棱 镜、反射镜以及滤光片的基底材料等,是激光系统 和光电探测装置中使用最为广泛的光学材 料^[1-7]。研究这两种典型光学材料的紫外激光损 伤有着重要的应用背景。但是这两种典型光学材 料的紫外激光损伤机理是不同的:K9 玻璃对紫外 激光不透明,即紫外激光处于 K9 玻璃工作波段 外,本征吸收很高,吸收系数可达13.54×10⁶ m^{-1[8]}:而石英玻璃对紫外激光透明,本征吸收系 数很小,数量级仅为10⁻³/cm,因而大部分研究认 为杂质吸收造成的热损伤是石英损伤机理中最重 要的损伤机制之一^[9-13]。准分子激光由于波长范 围广、光子能量高、峰值功率大、靶耦合效率高等 特点,在激光精密加工以及军事领域中,特别是空 间应用上,高功率的准分子激光器有着很大的潜 在价值。

根据已经建立的理论模型,进一步研究了准分子激光对透明光学材料(石英玻璃)和非透明光学材料(石英玻璃)和非透明光学材料(K9玻璃)的损伤特性,获得了相关参数对材料损伤的影响规律。本文的研究工作为激光加工和激光攻防领域提供了重要的参考数据,并可以为光学元件的抗激光损伤特性研究提供理论依据。

2 准分子激光对非透明光学材料的 损伤特性

对于 K9 玻璃这种在紫外波段不透明的光学 材料,根据参考文献[14]建立准分子激光损伤 K9 玻璃的理论模型:圆盘状 K9 玻璃模型,半径 15 mm,厚度1 mm,准分子激光垂直入射到 K9 模 型表面(z=0),z轴与激光照射方向一致,且光束 中心与样品中心重合。准分子激光器输出的激光 束是平顶光束,近似于均匀分布,激光光强在光斑 范围内均匀分布,激光光斑半径为 R,脉宽为 τ。 利用 ANSYS 有限元分析软件对辐照过程中的产 生温度及应力场进行数值模拟分析,且应力计算 只涉及热弹性模型而不考虑材料的塑形变形。由 文献[15]计算结果可得:在激光脉冲作用结束 时,模型中心产生的温度和热应力达到最大值。 因此,这里以温度和热应力表征损伤效果,考察激 光脉冲作用结束时,模型中心处的最高温度、最大 压缩应力和最大拉伸应力,其中,拉伸应力表示为 正值,压缩应力表示为负值。

2.1 激光光斑半径对损伤效果的影响

选择入射能量 50 mJ,固定脉宽 $\tau = 20$ ns,照 到模型表面的光斑半径 R 取为 0.8 ~ 5 mm,计算 得到模型的最高温度和最大热应力随光斑半径的 变化关系,如图 1、2 所示。



图1 最高温度随光斑半径变化情况







从图 1、2 可以看出,由于入射激光能量保持 不变,随着光斑半径的增大,单位面积上吸收的激 光能量减少,所以模型的最高温度、最大热应力也 会相应降低。

2.2 激光脉宽对损伤效果的影响

保持激光入射能量不变,固定光斑半径 R = 0.8 mm,激光脉宽 τ 取0.1,1,10,20,100 ns,计算 得到模型的最高温度和最大热应力随脉宽的变化 关系,如图3、4 所示。

从图 3 可以看出,脉宽的变化不会对模型的 最高温度产生影响。由于本文讨论的是样品表面 在绝热的条件下,且脉宽取值在一个较小的范围 内,因此,不管脉宽怎么改变,只要单位面积上吸 收相同的激光能量,就会使温度达到一致。所以 脉宽对最高温度没有影响,但是会对热应力产生 较大影响:压缩热应力会随着脉宽的增大而减小, 并趋于减缓;拉伸热应力会随着脉宽的增大而增 大,但增长幅度很小。









图 4 最大热应力随脉宽变化情况 Fig. 4 Maximum of stress vs. laser pulse width

2.3 激光脉冲数对损伤效果的影响

对于多脉冲的仿真计算,由于要保证运算精度,网格密度不能有所变化,但运算次数较多,会超过软件本身的计算容量。按照文献[14]的模型,激光入射条件、边界条件保持不变,计算得到重复频率为1 Hz 时模型的最高温度和最大热应力随脉冲数的变化关系,如图5、6 所示。



图 5 最高温度随脉冲数变化情况(f=1 Hz) Fig 5 Maximum of temperature vs. number of pulses



图 6 最大热应力随脉冲数变化情况。(a)最大压缩热应 力与脉冲数的关系;(b)最大拉伸应力与脉冲数的 关系。

Fig. 6 Relationship between the maximum of stress and number of pulses. (a) Maximum of compressive stress vs. number of pulses. (b) Maximum of tensile stress vs. number of pulses.

从图 5、6 可以看出,随着脉冲数的增加,模 型的最高温度和最大热应力都是逐渐增大的, 呈现出一定的累积效应,但增长幅度并不明显。 这主要是因为本次计算设定的重频很低,只有 1 Hz,前后脉冲时间间隔很长,使得脉冲数之间 的温度、应力增长值变化不大。如果重频增加 到100 Hz,保持激光其他入射条件不变,计算得 到第10个激光脉冲结束时模型的温度场分布 等值云图如图7所示,作用1s后的模型的温度 场等值云图如图8所示。由图7、8可见,重频增 加之后,随着激光辐照时间的增加,热量扩散的 不均匀性更加突出,最终导致在模型内部,温度 呈现出明显的梯度分布。模型在光斑区域内最 高温度达到1423℃,已经超过了材料的熔点, 在激光作用区域以外的位置,温度也升高到较 大的数值,接近材料熔点。由于温度的积累效 应,熔融损伤会沿着轴向和径向扩展,样品的损 伤面积会逐渐增大。这一变化和损伤实验中观 察到样品的损伤增长现象比较吻合。



- 图 7 第 10 个激光脉冲结束时,模型的温度场等值云图 (f=100 Hz)。
- Fig. 7 Contour of temperature distribution at tenth pulse terminal time



- 图 8 重频 100 Hz 激光作用 1 s 后的温度场等值云图
- Fig. 8 Contour of temperature distribution in K9 glass irradiated by 100 Hz laser

2.4 激光重频对损伤阈值的影响

根据前面的计算结果,定义两种损伤阈值,一 种是以温度达到熔点的熔融损伤阈值,另一种是 以热应力达到压缩断裂强度的应力损伤阈值。保 持激光其他参数不变,重频分别取1,2,10,50, 100 Hz,作用时间为1 s,计算得到熔融损伤阈值 和应力损伤阈值与重频的关系,如图9所示。结 果表明,重频越高,熔融损伤阈值和应力损伤阈值



Fig. 9 Damage threshold vs. repetitive frequency

越小,重频为100 Hz时,熔融损伤阈值仅为0.41 J/cm²。值得注意的是,当重频增加至45 Hz以上时,熔融损伤阈值开始低于应力损伤阈值,这说明 当重频较高时,材料将首先产生熔融损伤,其后才 产生应力损伤。

3 准分子激光对透明光学材料的损伤特性

由于石英玻璃在大部分波段包括紫外波段都 属于透明光学材料,因此杂质吸收造成的损伤机 制被众多学者认为是石英损伤中最主要的损伤机 制之一。光学材料一般在抛光、清洗等工序中不 可避免地带来杂质粒子。比如,抛光过程的 CeO₂ 微粒,切割机械中的 Cu、Cr、Fe 等微粒,以及清洗 中引入的 Al 离子。这些杂质是导致激光损伤阈 值大为减小的关键因素^[11-13]。

图 10 为 308 nm XeCl 准分子激光损伤石英



图 10 308 nm 准分子激光对石英玻璃损伤实验光路图 Fig. 10 Schematic of the experimental setup



- 图 11 308 nm 准分子激光对石英前后表面的初始损伤形 貌。(a)前表面;(b)后表面。
- Fig. 11 Microscope micrographs of initial damage morphology irradiated by 308 nm excimer laser. (a) Input surface. (b) Output surface.

玻璃实验光路图。实验装置主要由 XeCl 准分子 激光器、准直系统、衰减系统、分束镜、石英平凸聚 焦透镜、二维可移动光学平台、紫外激光能量计和 若干石英玻璃样品组成。图 11 为脉冲能量密度 为 3.3 J/cm² 时,光学显微镜观察到的石英玻璃 前表面和后表面的初始损伤形貌。

根据参考文献[16]建立的杂质微粒在准分子激光辐照下引起石英玻璃损伤的理论模型:取杂质对象为氧化铈(CeO₂)微粒,入射激光为 308 nm XeCl 准分子激光。将杂质看成嵌于光学材料中的一个球形吸收性颗粒,*a* 为杂质微粒半径,*d* 为杂质微粒的掩埋深度,如图 12 所示。



- 图 12 石英表面杂质微粒的物理模型。(a)三维结构示 意图;(b)平面示意图。
- Fig. 12 Physical model of fused silica irradiated by excimer laser. (a) 3-D model. (b) 2-D model.

在激光辐照下,材料和杂质的温升及热应力 可以通过热传导方程和热弹性力学方程确定。在 球坐标系下温度场方程:

$$\rho_{i}c_{i}\frac{\partial T}{\partial t} = k_{i}\frac{1}{r^{2}}\frac{\partial}{\partial r}\left(r^{2}\frac{\partial T}{\partial r}\right) + q, \ r < a, \quad (1)$$

$$\rho_{s}c_{s}\frac{\partial T}{\partial t} = k_{s}\frac{1}{r^{2}}\frac{\partial}{\partial r}\left(r^{2}\frac{\partial T}{\partial r}\right) + q, \ r > a, \quad (2)$$

$$T_{\rm i} = T_{\rm g} = 25 \, \,^{\circ}{\rm C} \,, \, t = 0 \,,$$
 (3)

$$T_{\rm i} = T_{\rm s}, \ k_{\rm i} \frac{\partial T_{\rm i}}{\partial r} = k_{\rm s} \frac{\partial T_{\rm s}}{\partial r}, \ r = a,$$
 (4)

式中:下标 s 和 i 分别表示光学材料和杂质, a 为 杂质小球半径, q 为杂质吸收的激光功率, 其表达 式为:

$$q = \frac{3\eta I}{4a},\tag{5}$$

其中,η为杂质对激光的吸收系数,I为均匀辐照 的激光光强。

CeO₂ 微粒的掩埋深度 *d* = 50 nm,杂质半径 分别为5,10,15 nm 时,计算得到模型表面的温度 分布,如图13(a)所示。掩埋深度一定时,模型表 面温度随杂质半径的增大而增大。CeO, 微粒半



- 图 13 杂质参数与温度的关系。(a)不同杂质半径下模型 表面的温度分布;(b)不同掩埋深度下模型表面的温 度分布;(c)石英后表面杂质周围的温度场分布。
- Fig. 13 Impurity parameters vs. temperature distribution.
 (a) Temperature distribution on surface with different impurity radius.
 (b) Temperature distribution on surface with different embedding depth.
 (c) Contour of temperature distribution in fused silica output surface.

径 r = 15 nm,杂质掩埋深度分别 20,100,200 nm 时,计算得到模型表面的温度分布如图 13(b)所 示。模型表面温度随杂质掩埋深度的增大而减 小。当掩埋深度超过 200 nm 时,杂质粒子的存在 已经使得表面温度没有影响。当然这也超出了元 件亚表面层的尺度。

如果将杂质掩埋深度继续增加到一定的数 值,就相当于杂质嵌在石英玻璃后表面的亚表面 层中。计算得到相同的杂质微粒条件下,石英玻 璃后表面杂质周围的温度场分布,如图 13(c)所 示。由图 13(c)可知,杂质最高温度达到 622 ℃, 远远高于周围的石英温度。但是处于后表面的 CeO₂ 微粒的温度远没有处于前表面的温度高。 如果入射激光能量进一步增大,从石英前表面透 射过的激光能量就会被后表面的亚表面层中的杂 质强烈地吸收,随之熔融气化,产生一个个熔融 坑,这就形成了实验中出现的小麻点群的损伤形 貌,如图 11(b)所示。综合损伤实验结果图 11(a)、(b),石英玻璃的前、后表面初始损伤形貌 基本相同,都是小麻点群的损伤特征。通过这个 理论模型能够较好地解释石英前/后表面这一相 同的损伤形貌,验证了理论模型的有效性。

4 结 论

通过建立的紫外准分子激光损伤典型光学材料 的理论模型,研究了准分子激光对透明光学材料(石 英玻璃)和非透明光学材料(K9玻璃)的损伤特性。 结果表明,准分子激光光斑半径、脉宽、脉冲数和重 频对 K9 玻璃损伤有着很大的影响。特别是重频,研 究发现损伤阈值会随着激光重频的增加而减小,当 重频增加至45 Hz 以上时,熔融损伤阈值开始低于 应力损伤阈值,这说明当重频较高时,材料将首先产 生熔融损伤,其后才产生应力损伤。由此可见,激光 重频对损伤特性的影响将是下一步研究的重点。另 一方面,石英玻璃中杂质微粒的半径和掩埋深度对 温度场分布也有着较大影响。研究表明在石英玻璃 后表面,杂质的温度和前表面一样都远远高于周围 的石英温度,数值模拟结果与实验中观察到石英玻 璃前/后表面的小麻点群损伤形貌较为吻合,较好解 释了石英玻璃前/后表面相同的初始损伤形貌。数 值模拟结果和实验结果符合较好,证明了所建模型 的有效性。

参考文献:

- [1] 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]. Opt. Eng., 1989, 28(10):1039-1068.
- [2] MILLER P E, SURATWALA T I, WONG L L, *et al.*. The distribution of subsurface damage in fused silica [J]. *SPIE*, 2005, 5991:599101.
- [3] PAN Y X, WANG B, SHEN Z H, et al. Effect of inclusion matrix model on temperature and thermal stress fields of K9glass damaged by long-pulse laser [J]. Opt. Eng., 2013, 52(4):044302.
- [4] CARR C W, BUDE J D, DEMANGE P. Laser-supported solid-state absorption fronts in silica [J]. Phys. Rev. B, 2010, 82(18):184304.
- [5] STEVENS-KALCEFF M A, STESMANS A, WONG J. Defects induced in fused silica by high fluence ultraviolet laser pulses at 355 nm [J]. Appl. Phys. Lett., 2002, 80(5):758-760.
- [6] KUCHEYEV S O, DEMOS S G. Optical defects produced in fused silica during laser-induced breakdown [J]. Appl. Phys. Lett., 2003, 82(19):3230-3232.
- [7]田爱玲,王会婷,袁娟娟,等. 抛光表面的亚表层损伤检测方法研究 [J]. 光子学报, 2013, 42(2):214-218.
 TIAN A L, WANG H T, YUAN J J, et al. A novel method for subsurface damage measurement of optical components
 [J]. Acta Photon. Sinica, 2013, 42(2):214-218. (in Chinese).
- [8] TSENG A A, CHEN Y T, CHAO C L, et al. Recent developments on microablation of glass materials using excimer lasers [J]. Opt. Lasers Eng., 2007, 45(10):975-992.
- [9]黄进,蒋晓东,刘红婕,等. 真空环境中紫外脉冲激光对熔石英抗损伤能力的影响 [J]. 物理学报,2010,59(7): 4677-4681.

HUANG J, JIANG X D, LIU H J, et al. Influence of ultraviolet pulse laser irradiation on fused silica anti-damage ability in high vacuum environment [J]. Acta Phys. Sinica, 2010, 59(7):4677-4681. (in Chinese)

- [10] 欧阳升,刘志超,许乔. 熔石英表面加工引入金属微粒的三倍频激光损伤机制 [J]. 强激光与粒子束,2011,23(9):2423-2427.
 OUYANG S, LIU Z C, XU Q. Mechanism of third-harmonic laser-induced damage on fused silica surface with processing-introduced metal absorbers [J]. *High Power Laser Part. Beams*, 2011, 23(9):2423-2427. (in Chinese)
- [11] LIU H J, HUANG J, WANG F R, et al. Subsurface defects of fused silica optics and laser induced damage at 351 nm [J]. Opt. Express, 2013, 21(10):12204-12217.
- [12] PALMIER S, LUC RULLIER J, CAPOULADE J, et al. Effect of laser irradiation on silica substrate contaminated by aluminum particles [J]. Appl. Opt., 2008, 47(8):1164-1170.
- [13] NEAUPORT J, LAMAIGNERE L, BERCEGOL H, et al. Polishing-induced contamination of fused silica optics and laser induced damage density at 351 nm [J]. Opt. Express, 2005, 13(25):10163-10171.
- [14] WANG X, SHAO J Z, LI H, et al. Analysis of damage threshold of K9 glass irradiated by 248-nm KrF excimer laser
 [J]. Opt. Eng., 2016, 55(2):027102-1-7.
- [15] 王奎, 方晓东. 准分子激光辐照 K9 玻璃的热力效应分析 [J]. 强激光与粒子束, 2016, 28(4):041002-1-6.
 WANG X, FANG X D. Thermal and mechanical damage in K9 glass irradiated by KrF excimer laser [J]. High Power Laser Part. Beams, 2016, 28(4):041002-1-6. (in Chinese)
- [16] 王玺. 准分子激光损伤 K9 玻璃和熔石英的理论与实验研究 [D]. 合肥:中国科学技术大学, 2016.
 WANG X. Theoretical and Experimental Studies on Damage of K9 Glass and Fused Silica Irradiated by Excimer Laser [D].
 Hefei: University of Science and Technology of China, 2016. (in Chinese)



王玺(1981 -),男,甘肃兰州人,博 士,助理研究员,2016年于中国科 学技术大学获得博士学位,主要从 事激光与物质相互作用方面的 研究。

E-mail: eastangus@126.com



聂劲松(1970-),男,安徽合肥人,博 士,研究员,2001年于中国科学院安 徽光学精密机械研究所获得博士学 位,主要从事光电对抗技术方面的 研究。

E-mail: njs7001@ sina. com