

# 真空环境中紫外脉冲激光对熔石英 抗损伤能力的影响\*

黄 进 蒋晓东<sup>†</sup> 刘红婕 吕海兵 王海军 袁晓东 郑万国

(中国工程物理研究院激光聚变研究中心, 绵阳 621900)

(2009 年 7 月 26 日收到; 2009 年 10 月 23 日收到修改稿)

在  $10^{-3}$  Pa 的高真空环境下, 利用 355 nm 的紫外脉冲激光以低于石英基片零概率损伤阈值的能量密度对其进行重复多次的全口径扫描, 目的是为了研究石英基片在接受不同剂量的紫外激光辐照后其抗损伤能力的变化和原因. 通过辐照过程中损伤点的扩展程度以及辐照后的抗损伤测量表明, 高真空环境下紫外脉冲激光辐照后的石英基片抗损伤能力明显降低, 降低的幅度更多的与其接受激光辐照的次数有关, 辐照能量密度的影响相对较小; 通过荧光及 X 射线光电子能谱 (XPS) 检测发现, 紫外脉冲激光辐照后石英基片表面氧缺位的增加是导致其抗损伤能力下降的主要原因, 其程度也直接与接受辐照的紫外脉冲激光剂量相关.

**关键词:** 紫外脉冲激光, X 射线光电子能谱仪, 损伤阈值, 氧缺位

**PACC:** 4260H, 4278F, 4270E, 4285F

## 1. 引 言

在高功率固体激光装置中, 三倍频后的 351 nm 紫外激光直接通过位于  $10^{-3}$  Pa 高真空环境下的终端石英光学组件来负载输出, 因此在高真空环境下石英光学元件的紫外激光负载能力对装置的稳定运行显得尤为重要. 现已有文献报道, 石英基片在经过一定通量的紫外脉冲激光辐照后, 会出现抗损伤能力的退化, 导致其使用寿命的缩短, 这与其在大气环境下接受紫外激光辐照后负载能力增强的现象截然相反, 最直接的原因可能就是真空中亚阈值的紫外脉冲激光辐照导致石英材料表面的氧缺位增加使其对紫外脉冲激光的吸收增强, 从而导致了熔石英负载能力的降低<sup>[1-3]</sup>.

本研究利用小光斑紫外脉冲激光模拟实际高功率固体激光装置中终端光学组件的辐照通量, 分改变辐照能量密度和改变辐照次数两种情况分别对石英基片表面进行高真空环境下的全口径扫描辐照, 并利用荧光光谱仪和 X 射线光电子能谱

(XPS) 测量了熔石英表面氧缺位随辐照参数变化而改变的情况, 证实了氧缺位的增加直接与紫外激光的辐照剂量大小相关. 该研究结果对于评估高功率固体激光装置中石英光学元件的使用寿命、优化终端光学组件结构设计提供了一定的参考依据.

## 2. 研究方法

### 2.1. 实验装置

为达到与石英光学元件的实际使用环境接近, 实验中的紫外脉冲激光辐照光源利用了 1064 nm 的 Nd-YAG 脉冲激光器, 通过倍频产生 355 nm 的紫外脉冲激光, 脉宽 6 ns, 频率 10 Hz, 利用透镜调节辐照到样品上激光的离焦量, 以使激光辐照到样品表面时的能量密度满足实验要求; 为达到实验结果的一致性, 所有实验样品为同一厂家生产的石英基片, 大小为 40 mm × 40 mm, 实验时放置于真空度为  $10^{-3}$  Pa 的真空室中, 利用 CCD 从真空室窗口监测扫描过程中元件表面的局部形貌变化. 实验装置排布图见图 1.

\* 国防预研基金 (批准号: 426020606) 资助的课题.

<sup>†</sup> 通讯联系人. E-mail: jiangxdong@163.com

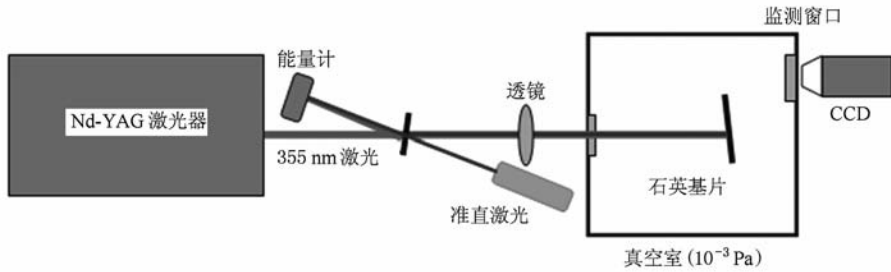


图1 实验装置排布图

## 2.2. 参数设置

同一激光作用于光学元件表面时决定其作用效果的因素有两个,即单脉冲能量密度和单脉冲作用次数,元件在真空使用过程中损伤的发生与其直接相关。

为防止辐照能量超过元件损伤阈值发生损坏,真空辐照前利用  $S:1$  的方法测量出其在真空中的零概率损伤阈值,扫描能量密度位于亚阈值水平并留有一定余量.为使激光能够全口径均匀地作用到样品表面,采用光栅式扫描的方法对样品进行平移扫描,并根据激光器输出频率和光斑大小来设定扫描速度,保证扫描到样品上的相邻两光斑有  $1/2$  面积的叠加.根据研究目的,拟定按照以下几种方式在高真空条件下进行对比实验。

1) 固定单脉冲能量密度改变作用次数.该方式主要用于研究在固定单脉冲能量密度的情况下石英基片在真空中的抗损伤能力与辐照次数的关系.对样片的辐照总次数为 150 次,辐照能量密度固定为  $0.6 \text{ J/cm}^2$ ,从而得出固定能量密度下石英基片表面损伤点生长与辐照次数的关系。

2) 固定作用次数改变辐照能量密度.该方式主要用于研究在固定辐照次数的情况下石英基片在真空中的抗损伤能力与辐照能量密度的关系.同一样品中的上半部分以  $0.6 \text{ J/cm}^2$  辐照 30 次,另一半增加一倍能量密度,以  $1.2 \text{ J/cm}^2$  的能量密度同样辐照 30 次,结束后分别对比两个区域的损伤点数量。

3) 辐照剂量相同改变辐照能量密度、辐照次数贡献系数.该方式的主要目的是在保证辐照剂量相等的情况下,分别改变辐照能量密度和辐照次数对剂量的贡献系数,最终判断出影响石英元件真空中使用寿命的主要因素.同一样品上平均划分为 4 个分区,辐照参数分别为:不辐照; $0.5 \text{ J}\cdot\text{cm}^{-2}$ ,辐照 100 次; $1 \text{ J}\cdot\text{cm}^{-2}$ ,辐照 50 次; $2 \text{ J}\cdot\text{cm}^{-2}$ ,辐照 25 次。

后三个分区接受的辐照总剂量均为  $50 \text{ J/cm}^2$ ,辐照结束后对每个分区分别用  $S:1$  的方法测量出损伤阈值,最终对比出各个分区抗损伤能力的变化情况。

## 3. 研究结果和讨论

为判断真空中石英基片接受紫外脉冲激光辐照时的负载能力变化情况,每个分区在扫描过程中用 CCD 实时记录表面形貌的变化,主要包括表面损伤发生时的扫描次数,以及损伤点数量随辐照次数的增加而变化的情况,最终结果如下。

### 3.1. 同能量密度下辐照次数的影响

由图 2 可看出,在真空中以远低于零概率损伤阈值的固定能量密度进行辐照,随着辐照次数增加到一定程度,开始出现损伤点,且损伤点随着后续辐照次数的递增呈线性增加,反映出样品的抗损伤能力随着辐照次数的增加呈现下降趋势.相比较大气环境下的紫外脉冲激光预处理,亚阈值紫外脉冲激光不仅较少导致石英元件发生损伤,而且有增强其抗损伤能力的效果<sup>[4-6]</sup>,真空中这种抗损伤能力下降的现象与其相反,反映出两种环境下激光作用机理的不同。

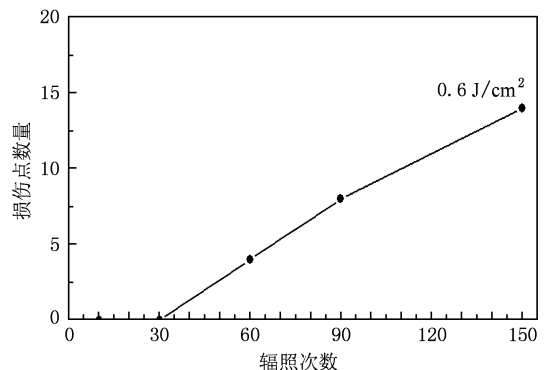


图2 固定能量密度下石英表面损伤点数量同辐照次数的关系

### 3.2. 相同辐照次数下能量密度的影响

从图 3 可以看出:以相同的次数进行亚阈值的紫外辐照,辐照能量密度越大,损伤点的产生速度越快,反映出以更高的能量密度进行真空紫外辐照会加剧石英基片损伤产生的速度,这与辐照能量密度的增加和石英基片抗损伤能力的下降有关。

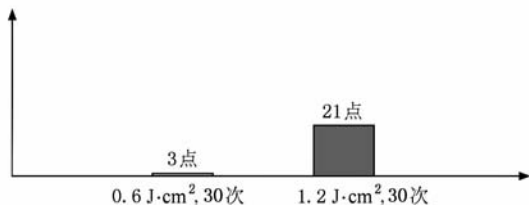


图 3 固定辐照次数下表面损伤点数量与辐照能量密度的关系

### 3.3. 相同剂量不同辐照能量密度、次数作用后造成的样品损伤差异

从图 4 可以看出,石英基片在大气环境下抗损伤能力稍强于真空环境,差别并不大;但在真空环境下接受了紫外激光辐照后损伤阈值会进一步降低,在接受了相同辐照剂量的情况下,0.5  $J \cdot cm^{-2}$  辐照 100 次后损伤阈值降低最多,2  $J \cdot cm^{-2}$  辐照 25 次后损伤阈值降低幅度较小。证明了在真空环境中基片接受的紫外激光辐照次数对其抗损伤能力变化的影响超过了辐照能量密度的影响。

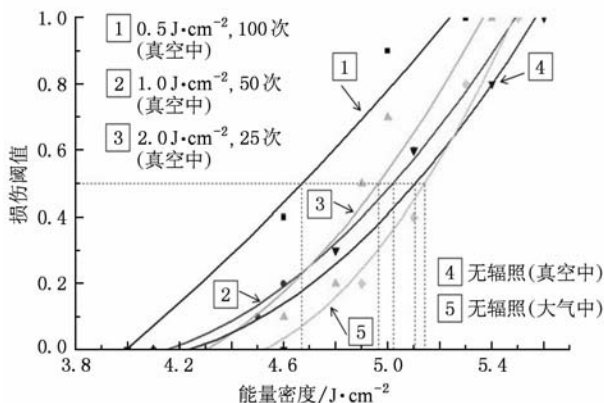


图 4 相同剂量不同能量密度、次数辐照后对样品损伤阈值的影响

### 3.4. 真空辐照后各类石英基片的氧缺位荧光激发结果

利用荧光光谱可以较好地检测材料中的氧缺位<sup>[7]</sup>,通过荧光光谱仪测量发现,在 292 nm 的激光激发下,各个样品在 456 nm 附近均产生了由氧缺位

受激所产生荧光特征峰,该荧光峰的强弱正好可反映出不同样品表面氧缺位的程度,图 5 为经过不同剂量紫外脉冲辐照后各个样品 ODC(氧缺位)荧光峰强度对比。

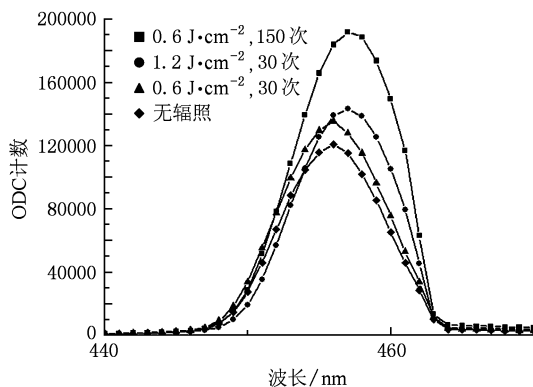


图 5 真空中不同参数的紫外辐照导致的氧缺位荧光峰差异

由图 5 可以看出,石英基片在真空中接受紫外脉冲激光辐照后会造氧缺位程度的增加,增加的幅度与其接受辐照的能量密度和次数有着直接的关系,再根据 3.3 部分的讨论可进一步推断,相同剂量下辐照次数比辐照能量密度对氧缺位加深的程度有着更大的影响。

### 3.5. XPS 测量的石英基片硅氧比例结果

为进一步验证石英基片表面氧缺位的变化情况,利用 X 射线光电子能谱仪测量了并分析熔石英表面 XPS 窄谱中各谱线的强度,从而计算出石英表面 Si,O 的相对含量<sup>[8]</sup>。Si,O 的相对比例按照下式进行计算:

$$N_{O}:N_{Si} = \frac{I_{O} \times S_{O}}{I_{Si} \times S_{Si}}, \quad (1)$$

式中, $N$  为单位体积中原子的个数, $I$  为 XPS 峰的强度, $S$  为灵敏度因子,由此计算得出的不同辐照条件下石英表面的 O,Si 比例如表 1 所示(每个样品测量三个不同点,最后取平均值)。

从表 1 中看出,由于材料表面本身的化学结构缺陷,石英基片表面的 O,Si 原子数比例已经偏离正常的化学配比值 2,在没有经过紫外辐照的情况下为 1.58;大气环境下接受 0.6  $J \cdot cm^{-2}$  的紫外脉冲激光辐照 30 次后化学配比无明显改变,但在真空环境下接受相同剂量的紫外辐照后化学配比偏离加重达到了 1.48,进一步增加辐照次数到 150 次后 O,Si 原子数比例降低至 1.4。由此可见,随着真空紫外辐

照剂量的增加,缺氧程度增加,再次证明了真空紫外脉冲激光辐照会导致石英表面产生氧缺位,氧缺位的程度直接与辐照剂量相关。

表1 各个辐照区域的 XPS 测量结果

辐照参量	O 和 Si 原子数的比例			平均
	第一个点	第二个点	第三个点	
真空无辐照	1.51	1.63	1.61	1.58
0.6 J·cm <sup>-2</sup> , 30 次 (大气中)	1.56	1.62	1.60	1.59
0.6 J·cm <sup>-2</sup> , 30 次 (真空中)	1.47	1.49	1.47	1.48
0.6 J·cm <sup>-2</sup> , 150 次 (真空中)	1.43	1.35	1.42	1.40

### 3.6. 真空紫外脉冲辐照后的损伤行为

石英基片在真空中接受紫外脉冲激光辐照后导致化学配比偏离的方程可用如下形式表示<sup>[5]</sup>:

$$O_0 = V_0 + \frac{1}{2}O_2(g), \quad (2)$$

其中  $g$  表示生成物状态为气体形式. 因此在石英基片表面形成氧空位  $V_0$ , 从而导致化学配比偏离, 偏离后形式为

$$SiO_2 = SiO_{2-x} + x \frac{1}{2}O_2(g). \quad (3)$$

材料中的氧空位  $V_0$  电离后形成电离缺位  $V_0^{\cdot\cdot}$  和过剩电子  $e'$ , 即

$$O_0 = V_0^{\cdot\cdot} + 2e' + \frac{1}{2}O_2(g). \quad (4)$$

由此看出, 真空环境下石英基片接受一定条件的紫外脉冲激光辐照后, 由于氧缺位的增加导致剩

余电子的产生, 剩余电子被氧空位形成的正电子中心弱束缚, 从而形成了附加的施主能级, 减小了石英材料的禁带宽度. 在一定条件下附加施主能级上的电子较容易进入导带, 从而增加了石英材料的自由载流子. 根据石英材料的紫外脉冲激光损伤机理, 自由载流子的增多会增加其在接受紫外脉冲激光辐照时发生多光子电离及雪崩电离的概率, 从而导致其抗损伤能力的下降<sup>[9,10]</sup>; 另外, 氧缺位的增加导致材料对紫外激光的吸收增强, 这也是导致其损伤能力下降的重要原因<sup>[11]</sup>.

## 4. 结 论

在  $10^{-3}$  Pa 的高真空环境下, 通过控制辐照能量密度和辐照次数, 在低于真空零概率损伤阈值的情况下用不同剂量的紫外脉冲激光辐照石英基片, 通过石英基片损伤点随着辐照剂量变化而发展的程度以及损伤阈值测量结果表明, 真空中石英基片的抗损伤能力会随着其接受紫外激光辐照的剂量增加而下降, 在影响辐照剂量的因素中, 辐照次数对熔石英抗损伤能力的影响高于辐照能量密度; 利用荧光光谱仪和 X 射线光电子能谱仪, 可明显看到接受真空紫外激光辐照后的石英基片有氧缺位增加的现象, 增加程度也直接与接受的辐照剂量相关, 这也同时反映出石英基片表面氧缺位的增加是其在真空中随着使用时间的增加而出现损伤阈值降低的主要原因, 这一结论解释了大型高功率固体激光装置中真空石英光学元件负载能力退化的现象, 对于指导装置中真空石英元件的使用有一定的参考意义。

[1] Stephen T M, van Zyl B, Amme R C 1992 *Laser Induced Damage in Optical Material* **1848** 106  
 [2] Burnham A K, Runkel M, Demos S G 2000 *SPIE* **4134** 243  
 [3] Xu S Z, Zheng W G, Sun J X, Yin W, Yuan X D, Lü H B, Zu X T 2008 *High Power Laser and Particle Beams* **20** 1649 (in Chinese) [徐世珍、郑万国、孙久勋、尹伟、袁晓东、吕海兵、祖小涛 2008 强激光与粒子束 **20** 1649]  
 [4] Lameignère L, Bercegol H, Bouchut P 2004 *SPIE* **5448** 952  
 [5] Prasad R R, Bruere J R, Peterson J E 2003 *SPIE Boulder Damage Symposium XXXV—Annual Symposium on Optical Materials for High Power Lasers Boulder Colorado*, September 22—24, p145

[6] Zhang L, Xu Y, Jiang X D, Liang L P, Lü H B, Li X P, Wei X F, Wu D, Sun Y H 2007 *Acta Phys. Sin.* **56** 3833 (in Chinese) [张磊、徐耀、蒋晓东、梁丽萍、吕海滨、李绪平、魏晓峰、吴东、孙予罕 2007 物理学报 **56** 3833]  
 [7] Gao Z Q, Yang C R, Chen H W, Fu C L, Liao J X, Zhao L 2006 *Piezoelectrics & Acousto-optics* **28** 68 (in Chinese) [高志强、杨传仁、陈宏伟、符春林、廖家轩、赵莉 2006 压电与声光 **28** 68]  
 [8] Chen H W, Yang C R, Fu C L 2005 *Piezoelectrics & Acousto-optics* **27** 150 (in Chinese) [陈宏伟、杨传仁、符春林 2005 压电与声光 **27** 150]  
 [9] Wen X M, Xie C W, Lin L Z 1997 *Acta Phys. Sin.* **46** 1652 (in

- Chinese) [文小明、谢崇伟、林理忠 1997 物理学报 **46** 1652] [11] Xia Z L, Shao J D, Fan Z X 2007 *Acta Phys. Sin.* **56** 401 (in Chinese) [夏志林、邵建达、范正修 2007 物理学报 **56** 401]
- [10] Chen F, Meng S X 1998 *Prog. Phys.* **18** 198 (in Chinese) [陈 飞、孟绍贤 1998 物理学进展 **18** 198]

## Influence of ultraviolet pulse laser irradiation on fused silica anti-damage ability in high vacuum environment \*

Huang Jin Jiang Xiao-Dong<sup>†</sup> Liu Hong-Jie Lü Hai-Bing Wang Hai-Jun Yuan Xiao-Dong Zheng Wan-Guo

(*Research Center of Laser Fusion, China Academy of Engineering Physics, Mianyang 621900, China*)

(Received 26 July 2009; revised manuscript received 23 October 2009)

### Abstract

In high vacuum environment of  $10^{-3}$  Pa, using 355 nm pulsed ultraviolet (UV) laser we repeatedly raster scanning fused silica at energy density of under zero probability damage threshold, with the purpose of studying the change in anti-damage ability of fused silica after receiving different UV laser irradiation dosages in high vacuum. The damage measured after irradiation and increasing of damage pit indicate that the anti-damage ability of fused silica obviously drop, the degree of depression is more closely correlated with the irradiation time, while the influence of irradiation energy density is weak. The measurement of fluorescence excitation and X-ray photoelectron spectroscopy proves that the increase of oxygen-deficiency in fused silica is the main cause, and the degree correlates with the received UV laser irradiation dosage.

**Keywords:** ultraviolet pulse laser, X-ray photoelectron spectroscopy, damage threshold, oxygen deficiency

**PACC:** 4260H, 4278F, 4270E, 4285F

\* Project supported by the National Defense Pre-Research Foundation of China (Grant No. 426020606).

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail: jiangxdong@163.com