

CO<sub>2</sub> 激光局域辐照对熔石英损伤特性的影响\*

刘春明<sup>1)</sup> 杨亮<sup>1)</sup> 晏中华<sup>1)</sup> 蒋勇<sup>1)</sup> 王海军<sup>2)</sup> 廖威<sup>2)</sup> 向霞<sup>1)</sup> 贺少勃<sup>2)</sup>  
吕海兵<sup>2)</sup> 袁晓东<sup>2)†</sup> 郑万国<sup>2)</sup> 祖小涛<sup>1)</sup>

1) (电子科技大学物理电子学院, 成都 610054)

2) (中国工程物理研究院激光聚变研究中心, 绵阳 621900)

(2012年11月27日收到; 2012年12月30日收到修改稿)

研究了 CO<sub>2</sub> 激光局域辐照对熔石英损伤特性的影响, 发现当辐照中心温度较低时 (1139 K), 辐照对损伤阈值没有明显影响, 但辐照中心温度较高时 (1638 K), 辐照对损伤阈值有明显的影 响, 损伤阈值随距离辐照中心间距的增大而减小, 在残余应力产生光程差最大处附近, 损伤阈值降到最小, 随着与辐照中心间距的进一步增加, 损伤阈值略有上升. 对导致此现象的原因做了分析. 由于残余应力的存在, 在辐照中心发生再损伤产生的裂纹后, 裂纹先沿径向扩展, 在残余应力产生光程差最大处附近, 裂纹转而向切向扩展, 这可能与径向和环向张应力随半径的变化有关. 在采用热处理炉退火消除残余应力时, 必须注意元件的洁净处理, 否则退火会出现析晶现象, 对损伤阈值和透射率造成不良影响.

**关键词:** CO<sub>2</sub> 激光局域辐照, 熔石英, 损伤特性

**PACS:** 47.70.-a

**DOI:** 10.7498/aps.62.094701

## 1 引言

早在 30 年前, 美国利弗莫尔国家实验室已开展了 CO<sub>2</sub> 激光对熔石英元件全口径抛光研究, 发现经 CO<sub>2</sub> 激光抛光后的熔石英表面抗激光损伤性能得到明显提升, 但 CO<sub>2</sub> 激光全口径抛光带来的面形畸变和残余应力限制了该技术的发展和应用<sup>[1]</sup>. 自 2002 年以后, 由于磁流变抛光技术取得了成功, 熔石英元件的表面缺陷数量显著降低<sup>[2]</sup>, 对 43 cm × 43 cm 的大口径熔石英元件, 初始损伤的数量已可以控制在 10 个以内<sup>[3-4]</sup>, 这无疑削弱了对 CO<sub>2</sub> 激光全口径抛光技术的需求, 但使 CO<sub>2</sub> 激光局域修复技术有了用武之地<sup>[2]</sup>. 到目前为止, CO<sub>2</sub> 激光局域修复技术取得了长足的发展和进步, 开发了蒸发式修复和非蒸发式修复方法<sup>[5]</sup>, 每种方法又因激光波长、光斑大小、工作模式(连续激光或脉冲激光)、扫描方式的不同而丰富多彩<sup>[6-9]</sup>.

由于 CO<sub>2</sub> 激光的功率分布一般为高斯性, 势必使辐照中心和边缘的抗激光损伤性质有所差异, 有报道认为, 对 CO<sub>2</sub> 激光局域辐照, 应力产生光程差最大处附近为激光损伤的薄弱区域<sup>[10]</sup>, 但其中的原因还不清楚, 激光损伤阈值与辐照中心间距的关系目前还没有相关研究报道. 残余应力太大会产生严重裂纹<sup>[11]</sup>, 因此残余应力的控制非常重要. 热处理炉退火消除残余应力是一种有效的方法, 但会引入污染<sup>[12]</sup>. 在本文中, 我们研究了激光损伤阈值随辐照中心间距的变化规律, 研究了退火中污染产生的析晶现象及对透射率和损伤阈值的影响.

## 2 实验

实验采用相干公司制造的 GEM-100L 型 CO<sub>2</sub> 激光器, 波长为 10.6 μm, 功率稳定性 ±3%, 出口光斑直径 3.8 ± 0.4 mm, 光束发射角小于 5 mrad, 模式为 TEM<sub>00</sub>. 样品采用康宁 -7980 熔石英, 尺寸为

\* 国家自然科学基金(批准号: 10904008), 国家高技术研究发展项目(批准号: 2008AA8040508)和中央高校基本科研业务费(批准号: ZYGX2011J043)资助的课题.

† 通讯作者. E-mail: yxd66my@163.com

40 mm × 40 mm × 4 mm 或 40 mm × 60 mm × 4 mm. CO<sub>2</sub> 激光通过 ZnSe 透镜后辐照到熔石英样品表面, ZnSe 透镜位于二维平移台上, 样品上光斑尺寸通过移动 ZnSe 透镜改变其与样品的间距来调节, 激光功率通过 Coherent Fieldmax-TO 功率计测量, 光斑尺寸通过刀口法测量. 在制造辐照点时, CO<sub>2</sub> 激光以稳定的功率和光斑作用在样品表面某一固定点一段时间后, 立即停止辐照, 样品在空气中自然冷却. 利用 Nikon-LV-100 光学显微镜测量样品形貌. 利用 PTC-720 应力仪检测应力双折射产生的光程差, 检测精度 ±1.5 nm. 利用日本岛津 UV-2500 紫外 - 可见分光光度计测量透射率, 利用 Philips X'Pert X 射线衍射仪测试晶体结构. 利用 SAGA-Nb: YAG 激光激光器的三倍频激光测试损伤阈值, 波长 355 nm, 脉宽 6.4 ns, 测试方法为 R-On-1, 测试光斑面积通过 Spiricon 光束品质分析仪测量, 测试光斑聚焦在样品后表面, 大小为 0.23 mm<sup>2</sup>. 损伤阈值用  $F \propto \tau^{0.5}$  关系归一化为脉宽 1 ns 的通量,  $F$  为

单位面积上的激光能量, 单位为 J/cm<sup>2</sup>,  $\tau$  为脉冲宽度, 单位为 ns.

### 3 结果及讨论

为了研究 CO<sub>2</sub> 激光局域辐照对损伤特性的影响, 用 7mm 直径的 CO<sub>2</sub> 激光光斑在空白熔石英基底上辐照制造了间距 10 mm 的辐照点阵. 图 1(a) 为在 40 mm × 40 mm × 4 mm 大小样品上制造的辐照点阵的应力分布; (b) 为进行损伤测试后放置一个月以上的应力分布, 图中的小白点为损伤测试点, 测试点间的距离为 1 mm. 对大多数辐照点, 在应力产生光程差最大处附近形成了环形裂纹, 应力通过裂纹得以释放. 各测试点的光程差与损伤阈值的关系如图 2(a) 所示, 由于辐照点阵列的周期性, 测试点的光程差和损伤阈值呈现出周期性变化的特征. 图 2(b) 为测试点损伤阈值、应力产生光程差与辐照中心间距的关系, 残余应力产生的光程差随间距的增大而增加, 在距离辐照中心 2.1 mm 附近, 光程

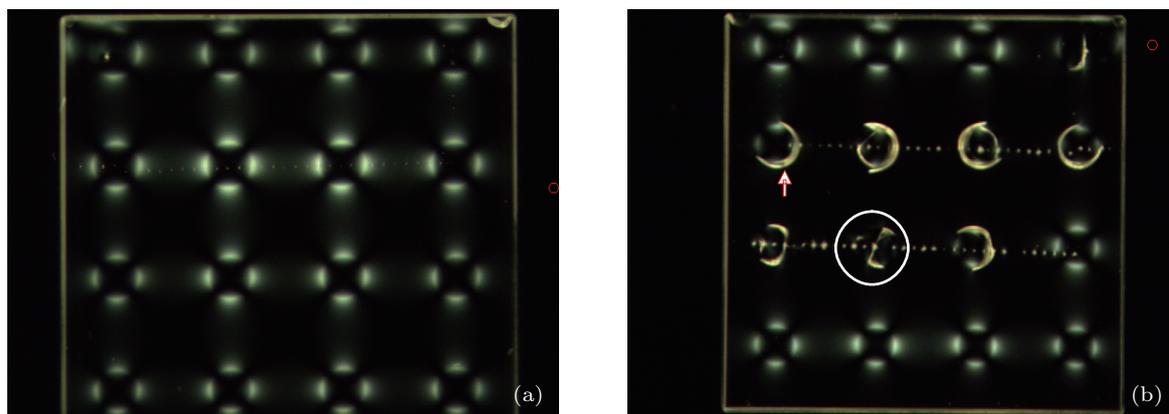


图 1 辐照点阵列 (a) 和损伤测试后 (b) 的应力图像, 图中红色箭头所指为光程差最大处发生的环形裂纹, 红色圆圈内表示辐照中心发生的裂纹, 裂纹先沿径向扩展, 后沿切向扩展

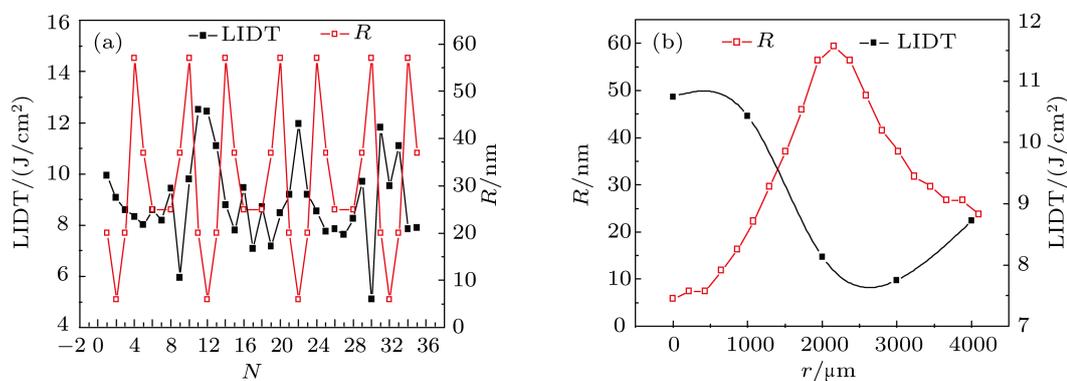


图 2 损伤测试点的损伤阈值和光程差 (a); 光程差、损伤阈值与辐照中心距离的关系 (b), 其中  $R$ ,  $LIDT$ ,  $N$  和  $r$  分别表示光程差、激光损伤阈值、测试点序号和到辐照中心的距离

差达到极大值, 约为 59 nm, 然后随距离的增大而下降, 损伤阈值随距离的增大先下降, 在光程差最大处附近, 损伤阈值取极小值, 然后随距离的增大损伤阈值略有回复. 说明光程差最大处附近为激光损伤的薄弱区域, 这与文献报道结果一致<sup>[10]</sup>. 图 2(a) 对应的辐照激光功率为 51.9 W, 辐照时间为 10 s, 其光斑中心的温度变化可通过下式来计算<sup>[13]</sup>:

$$T = \frac{0.85P}{(\pi)^{3/2}\alpha k} \arctan\left(\sqrt{\frac{t}{\tau}}\right), \quad (1)$$

其中  $\tau = \frac{a^2}{4D}$ ,  $a$  为  $1/e$  光束半径,  $D$  为热扩散系数, 室温下其值为  $8.34 \times 10^{-7} \text{ m}^2/\text{s}$ ,  $k$  为导热系数, 取  $k = 0.02 \text{ W}\cdot\text{cm}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ ,  $P$  为激光功率. 由 (1) 式得到图 2(a) 对应的辐照中心温度为 1683 K. 对 7 mm 直径的光斑, 功率 47.6 W, 辐照时间 4s 时, 由 (1) 式计算得到光斑中心温度为 1139 K, 测量得到的最大光程差约为 30nm, 辐照后对损伤阈值的影响不明显, 这是由于辐照温度较低时, 不能修复熔石英表面的缺陷, 也不会对面形产生影响. 当辐照温度较高时,  $\text{CO}_2$  激光局域辐照对熔石英损伤阈值的影响至少与六个方面的因素有关, 第一, 去除表面污染, 如表面的碳含量<sup>[14]</sup>; 第二, 修复表面和亚表面存在的缺陷, 如划痕、裂纹等; 第三, 影响表面形貌, 对光束产生调制, 出现光场强区<sup>[14,15]</sup>; 第四, 改变分子结构, 如使 Si-O-Si 键角减小<sup>[14]</sup>; 第五, 引入残余应力<sup>[16]</sup>; 第六, 引入再沉积碎片, 就局域  $\text{CO}_2$  激光辐照而言, 再沉积碎片出现在应力产生光程差最大区域附近, 辐照中心不会形成再沉积碎片<sup>[14]</sup>. 由于激光辐照中心区域的温度较高, 更易修复缺陷, 除去污染, 不会形成再沉积碎片, 对典型的修复形貌, 在样品表面附近, 光束调制产生的强区在修复坑边缘, 修复坑中心区域为光场减弱区域<sup>[14]</sup>, 这些因素都会导致辐照中心区域的损伤阈值提升. 在辐照的边缘区域, 即残余应力产生光程差最大的区域附近<sup>[14]</sup>, 由于辐照温度较低, 其情况与辐照中心区域不同, 可能残留有缺陷, 还会引入再沉积碎片, 产生光束调制的强区, 因此成为抗激光损伤的薄弱区域.

相对损伤阈值的降低, 辐照区域在发生再损伤后产生的裂纹也是需要关注的. 从图 1 (b) 中看到, 在光程差最大处附近发生的裂纹为沿切向的环形裂纹, 在辐照中心发生的裂纹先沿径向扩展, 后沿切向扩展. 辐照中心产生裂纹的显微镜图片如图 3 所示. 裂纹的这种扩展行为与张应力随半径的变化有关, 根据理论计算结果<sup>[11]</sup>, 最大环向张应力随半

径增加而减小, 径向最大张应力随半径增加并不是单调减小, 而是在某一位置取得极大值, 超过了环向张应力, 因此在该处裂纹改变了方向. 裂纹的产生与损伤尺寸的关系如表 1 所示. 当损伤点尺寸小于 162  $\mu\text{m}$  时, 没有产生裂纹, 当损伤点尺寸大于 182  $\mu\text{m}$  时, 产生了裂纹. 将裂纹产生时损伤的临界尺寸取为 172  $\mu\text{m}$ , 根据应力和裂纹产生时损伤临界尺寸的关系<sup>[11]</sup>:

$$\sigma_c = K_I / \sqrt{\pi l}, \quad (2)$$

其中  $K_I = 0.75 \text{ MPa}\cdot\text{m}^{-1/2}$ , 是熔石英材料的断裂强度 (fracture toughness),  $\sigma_c$  是产生裂纹的临界应力,  $l$  是裂纹产生时最大的损伤尺寸. 利用 (2) 式, 可以估计应力的大小. 将临界尺寸取为 172  $\mu\text{m}$ , 代入 (2) 式, 得到应力大小为 32.3 MPa, 与文献报道的值非常接近<sup>[11]</sup>. 保持辐照光斑为 7 mm, 辐照时间为 10 s, 降低辐照功率到 47.6 W, 使表面辐照中心温度降为 1544 K, 这时应力产生的最大光程差为 53 nm, 裂纹产生的临界损伤尺寸约为 320  $\mu\text{m}$ , 应力减小为 23.7 MPa, 说明应力与温度有密切的关系.

表 1 损伤尺寸与裂纹的产生

损伤点编号	1	2	3	4	5	6	7
损伤尺寸 / $\mu\text{m}$	131	99	130	204	82	91	162
是否有裂纹	否	否	否	是	是	否	否

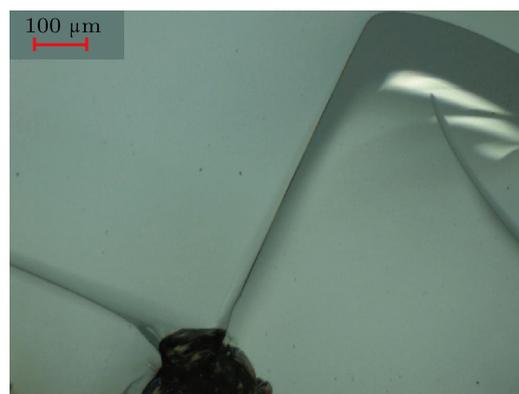


图 3 辐照中心发生的裂纹, 从辐照中心开始, 裂纹沿径向扩展, 在光程差最大处附近, 沿切向扩展, 由于显微镜采样面积的限制, 该图只是部分损伤和裂纹的图像

以上结果说明, 由于残余应力的存在,  $\text{CO}_2$  激光局域辐照点一旦发生再损伤, 当损伤尺寸达到一定大小以后, 有可能产生严重裂纹, 因此必须采取措施降低辐照产生的残余应力, 如激光退火<sup>[5]</sup> 和热处理炉退火<sup>[12]</sup> 等. 激光退火在辐照结束过程中逐

渐减小激光功率,使样品温度逐渐降低到软化温度以下.激光退火是一种洁净、局域的热处理过程,不会引入污染,不会对其他区域造成大的影响,但激光退火过程中需要激光器功率连续可调,还要能监测样品温度.热处理炉退火是一种常见的退火方式,在之前的研究中,发现普通热处理炉退火会引入表面污染,使元件抗激光损伤性能降低<sup>[12]</sup>.在这次的实验中,发现元件表面如果没有做到良好的洁净处理,残留有指纹、唾液等污染时,在高温退火过程中,可能会发生析晶现象,污染对元件的透射率和损伤阈值都有不利影响.如图4所示,在元件表面留有指纹和唾液等污染的情况下,退火后X射线衍射发现结晶现象,在 $2\theta = 41.9^\circ$ 附近出现衍射峰,与方石英的(311)衍射峰比较接近.表面经过洁净处理的元件退火后无析晶现象.

图5为污染的退火样品(a)和洁净的退火样品(b)表面的比较.在发生析晶样品的表面,表面上出现了很多颗粒状物质,而洁净表面很少有类似的现象.图6为析晶样品和洁净样品的紫外-可见光透射谱,洁净样品在全波段范围透射率都较析晶样品

高10%左右.发生析晶的样品在波长330 nm附近透射率快速下降,该波长对应的能量为3.75 eV,这是因为方石英的禁带宽度较小,使光吸收谱红移.利用R:1测试析晶样品和洁净样品的平均损伤阈值,其分别为3.3和6.5 J/cm<sup>2</sup>@355 nm&1 ns,析晶样品的平均损伤阈值降低到洁净样品的50%以下,这对抗损伤特性的影响是非常严重的.

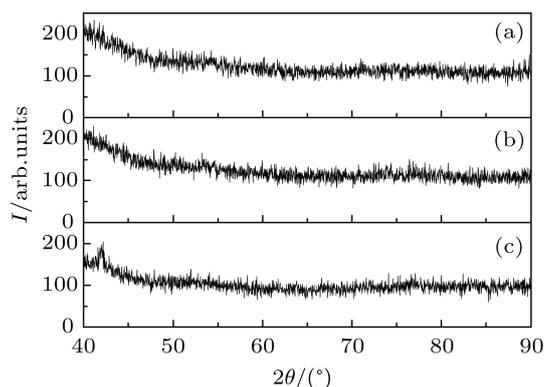


图4 退火后,元件表面因污染出现析晶现象 (a)未退火样品;(b)洁净的退火样品;(c)污染的退火样品

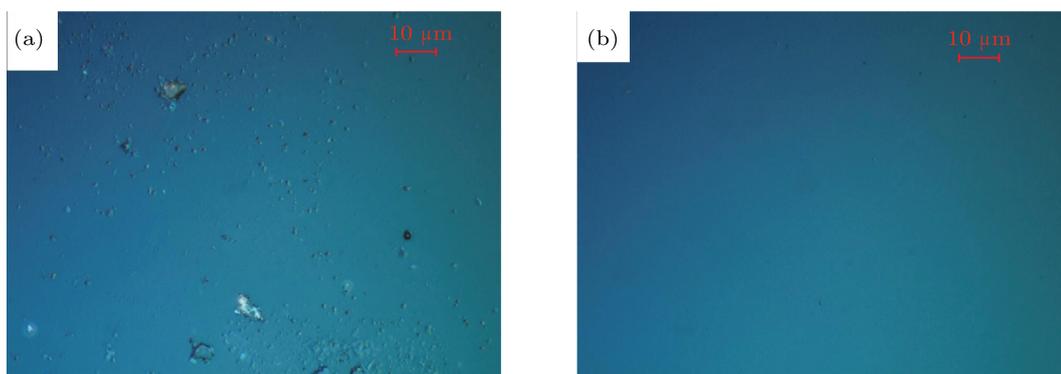


图5 污染样品(a)和洁净样品(b)退火后表面的比较

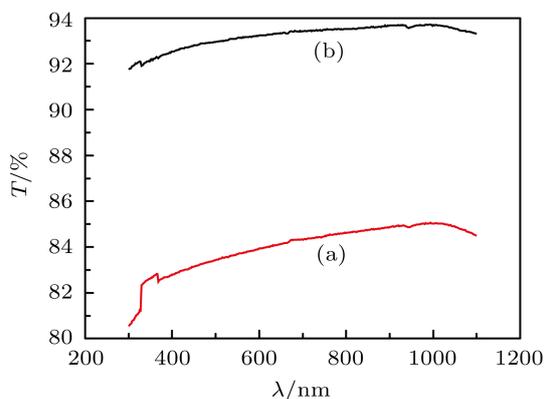


图6 污染样品(a)和洁净样品(b)退火后的透射光谱

## 4 结论

研究了CO<sub>2</sub>激光局域辐照对熔石英损伤特性的影响,在辐照温度较高时,随着与辐照中心间距的增加,损伤阈值先降低,在残余应力产生光程差最大处附近达到极小值,后随距离的增加略有回复,表明光程差最大处附近是抗激光损伤的薄弱区域,对其中的物理机制给出了定性解释.由于残余应力的存在,辐照点处发生再损伤后,当损伤尺寸增加到某一大小以上时,就会产生严重裂纹,裂纹在辐照中心开始沿径向扩展,在残余应力产生光程差最

大处附近沿切向扩展. 研究了退火过程中污染产生的析晶现象及对透射率和损伤阈值的影响, 发现污

染使透射率降低, 损伤阈值减小为基底损伤阈值的一半左右.

- [1] Temple R A, Lowdermilk W H, Milam D 1982 *Appl. Opt.* **21** 3249
- [2] Burnham A K, Hackel L, Wegner P, Parham T, Hrubesh L, Penetrante B, Hitman P, Emos, Menapace J, Runkel M, Fluss M, Feit M, Key M, Biesiada T 2002 *Lawrence Livermore National Laboratory Preprint UCRL-JC-144298*
- [3] Menapace J A, Davis P J, Steele W A, Hachkowski M R, Nelson A, Xin K 2006 *Lawrence Livermore National Laboratory UCRL-Conf-225806*
- [4] Menapace J A 2010 *LLNL-PROC* 461456
- [5] Adams J J, Bolourchi M, Bude J D, Guss G M, Matthews M J, Nostrand M C 2010 *Proc of SPIE* **7842** 784223
- [6] Guss G, Bass I, Draggoo V, Hackel R, Payne S, Lancaster M, Mak P 2007 *Proc of SPIE* **6403** 64030M
- [7] Daring, A Bouchut P, Coutard J G 2007 *Proc of SPIE* **6403** 640323
- [8] Bass I L, Guss G M, Nostrand M J, Wegner P J 2010 *Proc of SPIE* **7842** 784220
- [9] Gallais L, Cormont P, Rullier J L 2009 *Opt. Express* **17** 23488
- [10] Matthews M J, Stolken J S, Vignes R M, Norton M A, Yang S, Cooke J D, Guss G M, Adams J J 2009 *Proc of SPIE* **7504** 750410
- [11] Xiang X, Zheng W G, Yuan X D, Jiang Y, Dai W, Huang J, Wang H J, Li X B, Lü H B, He S B, Zu X T 2011 *High Power Laser and Particle Beams* **23** 2396 (in Chinese) [向霞, 郑万国, 袁晓东, 蒋勇, 戴威, 黄进, 王海军, 李熙斌, 吕海兵, 贺少勃, 祖小涛 2011 *强激光与粒子束* **23** 2396]
- [12] Feit M D, Rubenchik A M 2002 *Lawrence Livermore national laboratory Preprint UCRL-JC-148580*
- [13] Liu C M, Jiang Y, Luo C S, Shi X Y, Ren W, Xiang X, Wang H J, He S B, Yuan X D, Lü H B, Zheng W G, Zu X T 2012 *Chin. Phys. Lett.* **29** 044211
- [14] Li L, Xiang X, Zu X T, Wang H J, Yuang X D, Jiang X D, Zheng W G, Dai W 2011 *Chin. Phys. B* **20** 074209
- [15] Liu H J, Huang J, Wang F R, Zhou X D, Jiang X D, Wu W D 2010 *Acta. Phys. Sin.* **59** 1308 (in Chinese) [刘红婕, 黄进, 王凤蕊, 周信达, 蒋晓东, 吴卫东 2010 *物理学报* **59** 1308]

# The influence of CO<sub>2</sub> laser local irradiation on the laser damage resistance of fused silica\*

Liu Chun-Ming<sup>1)</sup> Yang Liang<sup>1)</sup> Yan Zhong-Hua<sup>1)</sup> Jiang Yong<sup>1)</sup>  
Wang Hai-Jun<sup>2)</sup> Liao Wei<sup>2)</sup> Xiang Xia<sup>1)</sup> He Shao-Bo<sup>2)</sup> Lü Hai-Bin<sup>2)</sup>  
Yuan Xiao-Dong<sup>2)</sup>† Zheng Wan-Guo<sup>2)</sup> Zu Xiao-Tao<sup>1)</sup>

1) (School of Physical Electronics, University of Electronic Science and Technology of China, Chengdu 610054, China)

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

(Received 27 November 2012; revised manuscript received 30 December 2012)

## Abstract

The influence of CO<sub>2</sub> laser local irradiation (CLLI) on the laser damage resistance of fused silica was studied. It is found that CLLI has no evident effect on the laser-induced damage threshold (LIDT) of fused silica when the temperature of irradiation center is low (1139 K). However, the influence of CLLI on LIDT becomes important when the temperature of irradiation center is higher (1638 K). At first, LIDT decreases with  $r$  increasing from zero to  $r_M$ , where  $r$  is the distance to irradiation center, and  $r_M$  is the distance at which the residual stress-induced phase retardance reaches the maximum. Then, LIDT increases a little when  $r$  is larger than  $r_M$ . The origin of this phenomenon is discussed. Due to the residual stress, re-initiated damage in irradiation region can result in the formation of fractures. The fractures due to the re-initiated damage at irradiation center transport along radial direction firstly, and then transport along the tangential direction near  $r_M$ . This may be due to the maximum tensile hoop stress and radial stress dependence of radius. Cares should be taken for the optical cleaning when thermal oven annealing is used to eliminate the residual stress. Otherwise, crystallization can be induced by contamination during annealing. The contamination also has negative impact on the light transmission and LIDT.

**Keywords:** CO<sub>2</sub> laser local irradiation, fused silica, laser damage resistance

**PACS:** 47.70.-a

**DOI:** 10.7498/aps.62.094701

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No 10904008), the National High Technology Research and Development Program of China (Grant No. 2008AA8040508), and the Fundamental Research Funds for the Central Universities, China (Grant No. ZYGX2011J043).

† Corresponding author. E-mail: yxd66my@163.com