文章编号:1001-5078(2018)08-0958-07

·激光应用技术·

重复激光脉冲对熔石英损伤的演化机制

郭洪岩¹,刘全喜²

(1. 滨州学院航空工程学院,山东 滨州 256600;2. 西南技术物理研究所,四川 成都 610041)

摘 要:采用重复频率为10 Hz,波长为1064 nm 的纳秒激光脉冲辐照熔石英元件,通过改变激 光作用脉冲数,研究了不同脉冲累积效应对样品损伤形貌的影响。研究发现熔石英样品损伤 主要来自于等离子冲击波作用,且损伤后,样品带隙会发生明显降低。对比激光作用样品内部 和表面形貌,发现激光作用样品内部时,内部约束层使等离子冲击作用时间加长。通过对比损 伤形貌的差异,可以将损伤形貌由内到外分为断裂融化区、断裂区、融化区三个部分,并通过冲 击波压强变化,对各损伤区形貌成因进行了解释。

关键词:激光诱导损伤;热应力;激光等离子冲击波;损伤形貌

中图分类号:TN249 文献标识码:A DOI:10.3969/j.issn.1001-5078.2018.08.004

Evolution mechanism of fused silica damage by repetitive laser pulses

GUO Hong-yan¹, LIU Quan-xi²

(1. College of Aeronautical Engineering, Binzhou University, Binzhou 256600, China;2. Southwest Institute of Technical Physics, Chengdu 610041, China)

Abstract: The fused elements is irradiated by the nanosecond pulsed laser with the frequency of 10 Hz and the wavelength of 1064nm, by changing the number of action laser pulses to study the influence of different pulse accumulation effects on the damage morphology of fused silica samples. It is found that the damage of the fused silica samples mainly comes from the role of the plasma shock wave, the sample bandgap will be significantly reduced after the injury. The internal confinement layer prolongs the time of the plasma impact when the internal and surface morphology of the sample are compared. By comparing the damage morphology, the damage zones from the inside to the outside can be divided into three parts: the fracture melting zone, the fracture zone and the melting zone, and the cause of the damage area is explained by the change of the shock wave pressure.

Key words: laser-induced damage; thermal stress; laser-induced plasma shock wave; damage morphology

1 引 言

由于熔石英具有带隙宽,透过光谱范围较大 (紫外到近红外),耐高温以及化学热稳定性好等优 点,已成为了高能激光系统中不可缺少的光学元件 之一^[1-3]。但是随着高能激光系统的广泛应用,其 损伤问题已成为了各研究者关注的一大重点^[4]。 由于在不同的激光作用位置下,样品损伤形貌差距 较大,研究激光作用区域对熔石英样品损伤形貌的 影响,可以为激光加工中分析熔石英成因提供指导。 很多学者已通过改变各类激光参数,对光学元

作者简介:郭洪岩(1968 –),女,实验师,研究方向为大学物理实验,激光物理。E-mail:ghy711621@163.com 通讯作者:刘全喜(1977 –),男,副研究员,研究方向为强激光技术。E-mail:liuquanxi234@sohu.com 收稿日期:2017-12-19

基金项目: 滨州学院实验技术研究项目(No. BZXYSYXM201603) 资助。

件的损伤特性进行了大量的理论和实验研究。赵建 君通过重复激光脉冲辐照 K9 玻璃,研究了其损伤 特性^[5];罗福通过1064 nm 连续脉冲作用 K9 玻璃, 研究了其破坏机理^[6];邱荣等人通过使用不同激光 脉冲数辐照熔石英,研究了其损伤增长特性^[7]。王 金舵等人理论研究了 150 fs~10 ps 脉宽下熔石英 激光损伤特性^[8]。但鲜有涉及激光聚焦位置对样 品损伤形貌特性的研究。而精准控制激光聚焦位 置,一直是激光工业过程中的一大难题,本文通过改 变激光作用位置,分析了激光作用位置对熔石英样 品损伤形貌的影响,为指导激光系统精准聚焦提供 了参考。

2 实验装置

实验采用纳秒激光脉冲对熔石英进行辐照损伤 实验,实验所用装置如图1所示。实验平台通过He -Ne激光准直,再通过分光镜(透射能量:射能量 =8:2)反射,分出光线经衰减片衰减后到达能量 计,用凸透镜将激光光束聚焦,为避免击穿空气对实 验造成的影响,本实验将激光聚焦在石英光学元件 内部且靠近抛光前表面处,测得在单脉冲作用下,样 品损伤概率为50%时,测得的激光输出能量为 18.26 mJ。实验所用 FellesPhotonic 型固体脉冲激光 器,输出频率在1 Hz,3 Hz,5 Hz,10 Hz 可调,输出波 长为1064 nm 和 532 nm, 1064 nm 激光输出脉宽为 12.8 ns,输出脉冲强度在时间和空间上呈高斯型; 本次实验采用的输出波长为1064 nm,衰减片能量 透过率为10%,能量计测量精度可达±3%,凸聚焦 镜焦距为20 cm,聚焦半径为0.07 mm。实验样品为 定制的六面抛光熔石英玻璃样品,样品规格为50 $mm \times 20 mm \times 3 mm_{\odot}$



3 损伤特性

选用能量为 10.63 mJ,频率为 1 Hz 的 1064 nm 激光作用熔石英内部,且靠近样品前表面处,使用 *s* - on - 1 模型,当 *s* = 33 时,得到样品典型的初始损

伤图如2所示。

伤图,如图3所示。



图 2 样品初始损伤形貌图 Fig. 2 Initial damage morphology of the sample 保持激光参量不变,继续增加激光作用脉冲数 目,当 *s* = 50, *s* = 60, *s* = 80 时,得到石英玻璃样品损



图 5 英型的府有夹件面顶仍图 Fig. 3 Typical fused glass sample damage chart

当激光作用熔石英样品表面时,样品无明显损 伤特性(s < 33), 增大激光作用脉冲数, 如图2所示, 当s=33时,样品产生初始损伤,继续增加激光作用 脉冲数目,如图3所示,在重复激光脉冲作用下,样 品损伤区域由中间向外扩展,且中间区域损伤程度 明显强于外延处;随着激光作用脉冲数目增加,样品 损伤区域逐渐由内部向外表面扩展。图3(a)中,损 伤区域集中在样品内部,且损伤中心处呈雾化状断 裂区(A区),在断裂区外延,雾化状断裂形貌减小, 出现明显的直线型裂纹(B区),且裂纹周边出现明 显的融化现象(C区)。如图3(b)所示,加大脉冲作 用数目,发现样品断裂区域具有由内向外扩展趋势, 且样品外表面出现环状断裂带(D区)。当使用f= 10 Hz 的重复脉冲持续作用样品5s后,发现样品外 表面出现明显的损伤区域,在损伤区域中心处,出现 明显与图3(a)A区中相似的雾化状断裂区(E区), 在 E 区外延,出现大范围的直线状裂纹与融化区共 存的损伤区(F区)。对比图3(a)与图3(c),发现 在雾化状断裂区外延处,外表面损伤区中融化区域 范围明显大于内表面损伤区,直线状裂纹明显少于 内表面损伤区。

4 理论研究

纳秒激光作用石英玻璃时,玻璃内的杂质、缺陷 时沉积激光能量的主要原因,当样品沉积了一定能量 时,其内部杂质熔化汽化,产生等离子体,当等离子温 度达到一定临界值时,会被点燃产生向外膨胀的等离 子冲击波,对石英玻璃产生强烈的冲击作用^[9]。

由于作用在吸收体上激光的能量呈高斯分布, 材料内部不同区域能量不同,使石英玻璃存在一定 的温度梯度,从而使材料内部产生热应力。为了研 究样品在重复激光脉冲作用下,内部和外表面损伤 形貌差异成因,本文对样品损伤时的热力学过程进 行了一系列模拟。激光能量密度作为样品损伤的重 要参量,其公式可以描述如下^[10]:

$$E_0(r) = \left(\frac{Q}{\pi w^2}\right) \exp\left(-\frac{r^2}{w^2}\right) \tag{1}$$

其中,Q表示激光作用样品能量;w为光斑尺寸,此 处为0.07 mm, E_0 为激光作用样品能量密度。在激 光作用下,样品随激光作用时间,温度变化如下^[11]:

$$T(z,t) = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{C_n E_0 \rho c}{k\tau} \left(\frac{l}{n\pi}\right)^2 \cos\left(\frac{n\pi z}{l}\right) \times \left[1 - \exp\left[-\left(\frac{k}{\rho c}\right) \left(\frac{n\pi}{l}\right)^2 \cdot t\right]\right] + C_0 I_0 t + 300 \text{K} \quad (2)$$
$$C_n = \frac{2(1-R)}{l} \cdot \frac{(1-e^{-cd} \cdot \cos n\pi)}{2}, \quad (n = 1, 2, 3 \cdots)$$

$$C_n = \frac{\rho c l}{\rho c l} \qquad 1 + \left(\frac{n\pi}{\alpha l}\right)^2 \qquad , \ (n = 1, 2, 3)$$

$$C_0 = \frac{(1 - R)}{\rho c l} (1 - e^{-\alpha l})$$

其中,假设室温为300 K,T表示激光作用温升,t和 z分别表示激光作用时间和激光作用样品深度,此 处的 k,ρ,c,α,R,τ分别代表热导率,密度,比热容, 吸收系数,反射率和激光脉宽。

由于激光聚焦半径远小于样品尺寸,可以近似为 无限边界,则激光作用材料时热应力公式可以表示 如下^[12]:

$$\sigma_{\theta} = \left(\frac{\alpha E}{1-\nu}\right) \frac{1}{r^2} \left[\int_0^r \Delta Tr dr - \Delta Tr dr^2\right]$$
(3)

$$\sigma_r = -\left(\frac{\alpha E}{1-\nu}\right) \frac{1}{r^2} \int_0^r \Delta T r dr \tag{4}$$

$$\sigma_z = -\left(\frac{\alpha E}{1-\nu}\right)\Delta T \tag{5}$$

其中, E, v, α 分别表示样品的杨氏模量、泊松比和 线性热膨胀系数。 σ_{θ} 表示激光作用面径向热应力, σ_{r} 表示激光作用面环向热应力, σ_{z} 表示沿激光作用

深度向热应力。其中石英玻璃参数如表1所示。

表1 石英玻璃参数

Tab. 1 Quartz glass parameters

Parameters	value
热导率 k/(W・cm ⁻¹ ・K ⁻¹)	1.4×10^{-2}
密度 <i>ρ</i> /(g・cm ⁻³)	2. 2
比热容 c/(J・g ⁻¹ ・K ⁻¹)	0. 752
吸收系数 α/(cm ⁻¹)	10
反射率R	0. 12
脉宽 τ/ns	12. 8
杨氏模量 E/(N・cm ²)	7.303×10^{10}
泊松比 <i>v</i>	0. 17
线性热膨胀系数 α/K^{-1}	4.2×10^{-7}

通过模拟仿真,可以计算出使用 22 mJ 激光能 量作用熔石英样品时的热力学变化过程,如图 4 和 图 5 所示。



由于石英玻璃的抗压强度约3 GPa,抗拉强度 约0.5 GPa,抗冲击强度约为8 GPa,软化点在1100 ℃左右,但由于石英玻璃样品表面缺陷的存在,其实 际抗压强度仅有数十兆帕,从图4 可知,当使用22 mJ激光能量作用熔石英样品时,其受到的热应力仅 有数百兆帕,远小于样品断裂阈值;由图5 可知,激 光作用区升温远低于样品软化点。因此激光作用样 品过程中产生的温升和热应力不足以使样品产生 断裂。

当样品内部杂质吸收激光能量汽化时,会形成 高温高压等离子冲击波,对样品产生作用,其中等离 子冲击波压强表达式为^[13]:

 $P(\text{kbar}) = BI (GW/\text{cm}^2)^{0.7} \times \lambda(\mu m)^{-0.3} \tau$ (ns)^{-0.15} (6) 式中, P 代表压强,其中 1 bar = 0.1 MPa, I 表示入射 光强, λ 为入射波长, τ 为脉宽, B 为一常量,玻璃中 B = 21。

图 6 为等离子冲击波压强随激光作用半径的 变化。由图 6 可以看出,激光辐照范围在 50 μm 以内且激光能量大于 13 mJ 时,等离子冲击波可以 对样品造成损伤,这表明等离子冲击波是样品损 伤主要原因。







当重复激光脉冲作用熔石英样品时,满足多脉冲损伤模型^[14-15]。样品吸收激光能量,增加损伤前体,在后续激光能量作用下,损伤前体进一步增加,并沉积大量能量,当积累的能量大于样品损伤阈值时,样品产生损伤。其具体表达式如下^[14]:

 $P(E) = 1 - (E/E_{th}(N))^{-dS_{C}/2}$ (7) 其中, P 为样品损伤概率; E 为激光输出能量; E_{th} 为 样品损伤阈值; N 为激光作用样品脉冲数; S_{c} 为激光 作用样品高斯光斑面积。由式(7)可知损伤阈值与 激光作用样品表面脉冲数 N 和激光作用能量密切 相关。当激光作用频率为 10 时,其损伤概率曲线如 图 7 所示。



图 7 可知,实验数据与拟合曲线吻合度较好,但 与单脉冲作用相比,使用重复脉冲激光作用样品时, 样品损伤阈值明显减少,可能的原因是多脉冲激光 作用样品时,样品每次吸收激光能量产生的损伤前 体降低了样品透过率,增加了样品光学吸收。使用 *E* = 13.26 mJ,*f* = 10 Hz 激光脉冲作用样品 7 次,但 确保样品无明显损伤形貌,探测样品激光作用区和 未作用区透过光谱如图 8 所示。



时样品透过率曲线

Fig. 8 The transmittance curve of the sample without the laser acts and the laser shot 7 times

图 8 可知,在激光作用 7 次后,样品透过率减 小,一定程度上增加了样品对激光的吸收。可以通 过样品透过光谱,得到样品光学带隙如图 9 所示。





由于熔石英为直接带隙^[16],其带隙计算公式遵循 Tauc 公式^[17-18]:

 $\alpha hv = A \left(hv - E_{x} \right)^{1/2} \tag{8}$

$$\alpha = \frac{1}{d} \ln(\frac{1}{T}) \tag{9}$$

其中,*E_s*为样品带隙;*A*为态密度常数,品材质有关; α为样品吸收系数;*d*为样品厚度;*T*为样品透过率。 由图9可知,样品通过激光连续作用7次后,光学带 隙微弱减小,表面损伤前体的增加不仅增加了样品 的吸光性,而且加大了样品导电性能。但增加的幅 度不明显。对图3中(a)、(b)、(c)样品进行透射光 谱测试,并计算其光学带隙。

样品损伤后,其光学性质发生明显变化。由图 10可知,样品损伤后透过率与光学带隙明显下降,且 随着激光作用脉冲数增加,其透过率与光学带隙呈逐 渐减小趋势。其主要的原因是样品损伤后,内部结合 的 0-Si-0键发生断裂,增加了游离态离子键,加大 了样品导电性能,降低样品带隙^[14],随着激光作用样 品脉冲数增多,游离的离子键也逐步增多,最终导致 样品 a、b、c透过率和光学带隙依次减小。

在图 3 中,重复激光脉冲等离子冲击波对样品产 生冲击压力,使样品出现如图 3 所示直线型裂纹^[19]。

如图 11 所示,通过对激光作用熔石英样品内部 和空气时压强随时间变化规律进行仿真,发现在激 光作用样品内部时,压强变化速率较小。表明冲击 波损伤熔石英内部后,内部约束空间降低了冲击波 向四周扩展趋势,使冲击波能量长期聚集在一个较 小的范围内,损伤断裂区持续吸收激光能量,出现如 图 3(a)所示的大范围雾化状断裂区(A 区);随着等 离子冲击波作用半径增大,在损伤区外延处,出现融 化现象,但由于冲击波范围受到约束,融化区较小。 使用重复脉冲持续作用样品,样品外表面受到反冲 力^[20],使样品出现如图3(b)所示环状断裂带。当 激光作用时间足够长时,样品由内至外发生损伤,等 离子冲击波不再受内部石英玻璃样品约束,冲击波 压强扩展范围和变化速率加大^[21],损伤形貌如图3 (c)所示,形成小范围的雾化状断裂区(E区)和大 范围的融化区。



5 结 论

通过1064 ns 重复脉冲持续作用熔石英样品 内部,对不同作用时间和不同作用位置时,样品损 伤形貌变化特性进行分析,得到结论如下:1064 ns 激光作用熔石英玻璃时,其损伤主要来自于等离 子冲击波作用;随着样品损伤程度的增加,样品断 裂离子键增加,其透过光谱和光学带隙都逐渐下 降,且在熔石英约束层内部,冲击波作用范围集 中,持续时间较长,对损伤形貌进行观测,发现由 中心到外延,内部会形成大范围的雾化状断裂区 和小范围的融化损伤区;加大激光作用时间,在等 离子冲击波作用下,激光损伤区逐渐由内部扩展 到外表面,在外表面处,样品对等离子冲击波约束 条件消失,等离子冲击扩展范围和压力梯度急剧 增大,对损伤形貌进行观测,发现由中心到外延, 外表面会形成小范围的雾化状断裂区和大范围的 融化损伤区。

参考文献:

- [1] G Mann, J Krüger. Nanosecond laser damage of optical multimode fibers [J]. International Society for Optics and Photonics, 2016, 9983:99830T.
- [2] C Clark, R Bassiri, I W Martin, A Markosyan, P G Murray, D Gibson, S. Rowan, M. M. Fejer, Comparison of single-layer and double-layer anti-reflection coatings using laser-induced damage threshold and photothermal common-path interferometry [J]. Coatings, 2016, 6:20.
- [3] Wang Y L, Zhao Y A, Xie X Y, et al. Laser damage dependence on the size and concentration of precursor defects in KDP crystals: view through differently sized filter pores[J]. Optics letters, 2016, 41(7), 1534 – 1537.
- [4] DENG Zongcai, LI Pengyuan. Research on resistance to corrosion of reinforced concrete columns with FRP wraps
 [J]. Fiber Reinforced Plastics/Composites, 2008, 5:34 36. (in Chinese)
 邓宗才,李朋远. FRP 加固 RC 柱抗腐蚀性能[J]. 玻璃

和示力,学朋边.FRF加固RC 杜仉腐蚀性能[J]. 玻璃钢/复合材料,2008,5:34-36.

[5] ZHAO Jianjun, SONG Chunrong, LIU Jin. Thermal and mechanical effect in optical material induced by repetitive pulse laser [J]. ActaPhotonicaSinica 2016, 35 (12): 1856 – 1860. (in Chinese)

赵建君,宋春荣,刘进.重复脉冲激光辐照光学材料的 热力效应[J].光子学报,2016,35(12):1856-1860.

- [6] LUO Fu, SUN Chenwei, DU Xiangwan. Stress relaxation damage in K9 glass plate irradiated by 1.06µm CW laser
 [J]. High Power Laser and Particle Beams, 2001, 13(1): 19-23. (in Chinese)
 罗福,孙承纬,杜祥琬. 106 μm 连续激光照射下 K9 玻璃的应力松弛破坏[J].强激光与粒子束, 2001, 13 (1):19-23.
- [7] QIU Rong, WANG Junbo, REN Huan, et al. Growth of laser-induced damage in fused silica under nanosecond laser irradiation[J]. High Power Laser and Particle Beams, 2012,24(5):1057 1062. (in Chinese)
 邱荣, 王俊波, 任欢,等. 纳秒激光诱导熔石英光学玻璃的损伤增长[J]. 强激光与粒子束, 2012,24(5): 1057 1062.
- [8] WANG Jinduo, GUO Xiqing, YU Jin. Simulation and analysis of laser-induced damage in fused silica with pulse widths from 150 fs to 10 ps[J]. High Power Laser and Particle Beams, 2015, 27(4):041002. (in Chinese) 王金舵,郭喜庆,余锦. 150fs ~ 10ps 脉宽下熔石英激光 损伤的仿真与分析[J].强激光与粒子束 2015, 27 (4):041002.
- [9] QIAO Hongcao, ZHAO Jibin, LU Ying. Current statusof laser-induced shock wave application technology[J]. Surface Technology, 2016, 45(1):1-6. (in Chinese) 乔红超,赵吉宾,陆莹. 激光诱导冲击波应用技术研究 现状[J]. 表面技术, 2016, 45(1):1-6.
- [10] Fan Chinghua and Jon P. Longtin, Modeling optical breakdown in dielectrics during ultrafast [J]. Applied optics, 2001,40(18):3124-3131.
- [11] ZOU W F, XIE Y M, XIAO X, et al, Application of thermal stress model to paint removal by Q-switched Nd : YAG laser[J]. Chinese Physics B, 2012, 23(7):74205.
- [12] LI Shixiong, ZHANG Zhengping, QIN Shuijie, et al. Research on the temperature and thermal stress of fused silicairradiated by a laser pulse [J]. Laser and Infrared, 2016,46(7):786-791. (in Chinese)
 李世雄,张正平,秦水介,等. 单个脉冲作用下熔融石 英的温度和热应力研究[J]. 激光与红外,2016,46 (7):786-791.
- [13] HU Peng, CHEN Faliang. Inclusion damage mechanisms of optical glass under laser irradiation [J]. High Power Laser and Particle Beams, 2005, 17(7):961 - 965. (in Chinese)

胡鹏,陈发良.激光辐照下杂质诱导光学玻璃损伤的 两种机理[J].强激光与粒子束,2005,17(7): 961 - 965.

- [14] HU R F, HAN J H, FENG G Y, et al, Study on the phase trasition of fracture region of laser indued in fused by focused nanosecond pulse [J]. Optik-International Journal for Light and Electron Optics, 2017, 140:427 - 433.
- [15] TIAN Runni, WANG Junbo, QIU Rong, et al. Ultra-fast diagnosis of monocrystalline silicon ablated by ns and fs laser[J]. Laser Technology, 2015, 39(6):765 - 768. (in Chinese)

田润妮,王俊波,邱荣,等.纳秒和飞秒激光烧蚀单晶 硅的超快诊断[J].激光技术,2015,39(6): 765-768.

- [16] WANG Zh, FENG G Y, HAN J H, et al, Fabrication of micro-hole arrays using femtosecond laser by coated with aluminum film on fused silica sheet[J]. Optical Engineering,2016,55(10):105101.
- [17] WANG Tao, ZHAO Yuanan, HUANG Jianbin, et al. Cumulative effect of optical film damage under repetitive rate laser[J]. High power laser and particle beam, 2005, 17

(b04):171 - 174. (in Chinese)

王涛,赵元安,黄建兵,等.重复率激光作用下光学薄 膜损伤的累积效应[J].强激光与粒子束,2005,17 (b04):171-174.

- [18] Gallais L, Natoli J, Amra C. Statistical study of single and multiple pulse laser-induced damage in glasses. [J]. Optics Express, 2002, 10(25):1465-1474.
- [19] Cheng S C, Schiefelbein S L, Moore L A, et al. Use of EELS to study the absorption edge of fused silica [J]. Journal of Non-Crystalline Solids, 2006, 352 (28 29): 3140 3146.
- [20] Kajihara K, Hirano M, Skuja L, et al. Intrinsic defect formation in amorphous SiO 2, by electronic excitation: Bond dissociation versus Frenkelmechanisms [J]. Phys. rev. b, 2008,78(9):1884-1898.
- [21] WEI W H, FANG L, YANG Z Y, et al. Effect of Sb on structure and physical properties of GeSbxSe7 - x chalcogenide glasses [J]. Journal of Inorganic Materials, 2014, 29(11):1218 - 1222.