

激光诱导透明陶瓷损伤研究进展

陈 跃^{1,2}, 姜本学¹, 冯 涛¹, 张 龙¹

(1. 中国科学院上海光学精密机械研究所 中国科学院强激光材料重点实验室, 上海 201800;

2. 中国科学院大学, 北京 100049)

摘 要: 在激光诱导损伤的响应中, 透明陶瓷既有与其他光学元件的相似性, 也表现出损伤的特殊性因其具有晶界、微气孔等微结构缺陷。强激光对透明陶瓷诱导损伤的形貌、分析损伤的规律并揭示损伤的机理的工作被开展, 这有利于完善激光陶瓷的制备工艺, 对降低高能激光系统的运行成本和提高负载能力均具有现实意义。本文综述了透明陶瓷激光诱导损伤的探究方法、损伤的影响因素和提升损伤阈值的途径 3 方面内容, 并结合其他类光学元件较为成熟的研究思路或典型的探究方法。探讨了激光诱导透明陶瓷损伤中的几个研究重点及解决对策, 对于高损伤阈值透明陶瓷的研制以及在强激光系统中的合理应用具有重要的参考价值。

关键词: 透明陶瓷; 激光损伤; 表面损伤; 体内损伤; 损伤动力学

中图分类号: TN242 文献标志码: A 文章编号: 0454-5648(2024)03-0973-20

网络出版时间: 2024-02-08



目前, 高功率和大能量的固体激光装置中均包括数量大、种类多的光学元件, 以美国国家点火装置(NIF)为例, 全装置共包含了 7 360 块大口径光学元件(0.5~1.0 m), 使其不仅成为目前世界上最大的激光器, 也是迄今最大的光学系统。与此同时, 激光系统对光学元件的性能不断提出更加严苛的要求, 虽然光学元件的发展中有许多技术和科学上的挑战, 但最关键的挑战则是减少以及尽可能消除激光所导致的损伤。光学元件的激光诱导损伤问题, 一直也是激光惯性约束聚变领域所持续面临的重大挑战^[1-8]。对于一个既定成本的激光装置, 增大输出的激光能量(通量)会使装置的总输出能量提升, 因此, 在光学元件抗激光损伤能力允许的条件下, 其所承载光能量密度总是越高越好, 然而, 在这种临界工作模式下, 光学元件的损伤概率显著提升、使用寿命大幅度缩减。此外, 在聚变点火目的的驱使下, 高功率和大能量固体激光装置的输出能量仍在不断攀升, 光学元件所面临的激光负载压力也愈来愈大, 致力于提高光学元件抗激光损伤性能的工作显得日益迫切与繁重^[9-13]。

激光损伤不仅造成光学元件的失效和报废, 频繁更换光学元件费用昂贵, 给装置运行维护带来极大考验。所以, 激光诱导光学元件损伤问题已成为限制高功率和大能量激光装置负载能力提升的瓶颈。探究损伤产生发展的机理, 指导加工工艺改进完善, 开展激光损伤动力学研究, 已经成为惯性约束核聚变(ICF)等强激光应用领域的关键需求。

作为新一代固体激光材料—透明陶瓷, 具有激光晶体、玻璃所无可比拟的优势, 是陶瓷材料研究领域结构功能一体化的典范。透明陶瓷与单晶和玻璃相比, 具有巨大的优势, 包括可高浓度掺杂、柔性尺寸、复合结构和短制造时间^[14-17]。越来越多的透明陶瓷材料被制造出来用于激光系统^[18-22], 如英国卢瑟福-阿普顿实验室 DiPOLE100、日本滨松光子(Hamamatsu Photonics)等均采用透明陶瓷作为激光增益介质。

但透明陶瓷相较于激光晶体、玻璃和薄膜在激光损伤方面的研究相对较少, 原因在于: 一方面透明陶瓷作为激光增益介质的研究本身研究起步较晚; 另一方面透明陶瓷由于为多晶体, 在与激光相

收稿日期: 2023-09-08。 修订日期: 2023-09-26。

基金项目: 国家重点研发计划(2022YFB3605700); 国家自然科学基金(U1830125)。

第一作者: 陈 跃(1997—), 男, 博士研究生。

通信作者: 姜本学(1980—), 男, 博士, 研究员。

Received date: 2023-09-08. Revised date: 2023-09-26.

First author: CHEN Yue (1997—), male, Doctoral candidate.

E-mail: chenye@siom.ac.cn

Correspondent author: JIANG Benxue (1980—), male, Ph.D., Researcher.

E-mail: jiangbx@siom.ac.cn

互作用的过程中必然涉及到晶界、微气孔和第二相等杂质缺陷,因此透明陶瓷的激光损伤过程、损伤机理更加复杂,难以对透明陶瓷的激光损伤过程进行系统且深入的阐释和解析。随着透明陶瓷作为增益介质逐步应用于强激光装置,开展透明陶瓷的损伤特性和性能提升显得更加迫切。

通过梳理此前研究人员对透明陶瓷和其他光学元件(单晶、玻璃、薄膜)激光损伤文献[23–33],发现作为唯一多晶增益介质的透明陶瓷,在激光损伤方面的探究有其特殊性,在探究陶瓷的激光损伤过程中,仍有诸多可以借鉴的策略和经验,因此有必要综述相关研究,总结研究方法和进展,为透明陶瓷的激光损伤的研究探寻最佳的研究方法和思路,也方便为后续研究节省研究成本。

与激光晶体或玻璃相比,透明陶瓷的激光诱导损伤截止目前并未在实际的工程应用中报道表面损伤或体内损伤,但这并不影响研究人员开展相关研究,甚至需要投入更多的精力和时间做到未雨绸缪。并结合所探究的激光诱导损伤的机理,采用预处理(预退火、激光预处理)改性手段尝试提高透明陶瓷的耐激光损伤特性,探究改性的新途径与工艺,为更高功率、更大能量激光输出的实现提供更优的可行方案。

本文以高功率和大能量激光系统对透明陶瓷的激光负载要求为牵引,综述了激光诱导透明陶瓷损伤的研究进展,系统梳理了目前典型的研究光学元件激光损伤的方法,透明陶瓷作为重要的光学元件之一,将在典型的研究方法中得以借鉴,并总结了对于提升透明陶瓷激光损伤阈值可行的方法。

1 透明陶瓷激光诱导损伤的探究方法

激光与光学元件相互作用产生损伤的相关问题,从激光问世以来一直被国内外研究人员所关注。1964年,Giuliano等^[34]开始围绕激光损伤材料开展探索,由此拉开了材料损伤的研究序幕。限于表征仪器性能与损伤探测手段的局限性,在初期阶段,科研人员将重点置于光学元件损伤区域的形貌观测,分析不同的激光参数与损伤离线形貌之间的关联。例如激光波长、脉宽、偏振态等参数对损伤的影响。

清晰有效的对透明陶瓷在强激光下损伤进行识别,是探究损伤过程、揭示损伤机理的核心关键。能否实现激光损伤深度探索,很大程度上取决于透明陶瓷激光诱导损伤的探究方法的准确性。

1.1 激光诱导损伤的离线研究

所谓离线研究法,是与损伤过程中动态实时检测相对应的方法。将透明陶瓷经激光器损伤后,再观察损伤后的形貌,结合损伤形貌和数值模拟、理论计算等方法推演损伤过程,从而揭示损伤机理。这类方法也是典型的研究激光诱导损伤光学元件的方法。

2006年,余本海团队^[35]最早在国内开展利用飞秒激光烧蚀 MgAl_2O_4 透明陶瓷,采用的探究方法是典型的离线测试,首先将CCD损伤成像结果与扫描电子显微镜表征结果相结合探究损伤形貌。在单脉冲激光束作用下的烧蚀面积与脉冲能量近似呈线性关系,而多脉冲作用下的烧蚀面积与脉冲数量近似呈 Boltzmann 分布。并同时发现了当激光功率接近损伤阈值时,烧蚀后的区域在波束为 $2\,500\sim 7\,000\text{ cm}^{-1}$ 范围内的红外透过率由82%提高到了86%的规律。当激光功率超过损伤阈值后,透过率降到了20%左右。此次实验结果表示在可控可调脉冲激光参数的前提下,激光预处理技术可能有效提升透明陶瓷材料的透过率,从而进一步提高损伤阈值,为后续开展针对透明陶瓷激光预处理技术的探索奠定了一定的理论基础。

透明电光陶瓷掺镧钛酸铅(PLZT)和铌镁酸铅钛酸铅(PMNT)因其电光系数在室温下为铌酸锂的10倍和近百倍,并且具有高透射率(镀增透膜后每毫米的透射率大于95%)、宽的光谱响应特性(400–10 000 nm)、快速响应时间(约100 ns)在光通信领域已经得到了广泛的应用。而由于在大尺寸及成熟的热压工艺等方面的优势,使其在高功率激光系统中也有着广泛的应用前景。然而对于其损伤阈值的探究,目前同样鲜有实际测试报道。张学娇等^[36]在国内首先开展了相关研究,对比了在纳秒和飞秒激光脉冲损伤下,2种电光透明陶瓷(PLZT和PMNT)的损伤特性,通过对比发现测量得出辐照损伤的损伤深度随损伤直径呈类高斯型变化;随着辐照能量的增加,损伤半径增加,并且增加率慢慢减小;损伤深度和损伤面积成线性趋势增加。实验结果显示,纳秒辐照更容易产生缺陷引起的热损伤,相比之下,飞秒激光辐照引起的损伤更趋于表面。

在此之前,Feit等^[37]也已经发现飞秒脉冲与纳秒脉冲激光相比,飞秒激光脉冲前沿导致的光电离为激光脉冲后续部分产生的雪崩电离提供了种子电子,使得飞秒脉冲激光对物质的作用较少依赖于物质中的缺陷,由此确定飞秒激光对透明陶瓷的诱导

辐照损伤具有更好的确定性。

透明陶瓷受强激光冲击的过程中, 不仅材料表面易受损伤, 材料体内同样易损伤即体内损伤。2019 年, 刘晓凤等^[38]对 YAG 透明陶瓷展开了表面损伤和体内损伤的对比研究。采用固态反应烧结方法制备 4 块 YAG 透明陶瓷样品, 在 1 064 nm 的波长下的理论光学透射率为约 84%。实际测量结果为图 1e 所示的 YAG-1、YAG-2、YAG-3 和 YAG-4 分别对应的 81.2%、79.4%、80.4%和 81.4%。随后展开表面损伤测试和体内损伤测试, 结果显示在同一块透明陶瓷样品中, 表面损伤阈值高于体内损伤阈值。其中典型的表面损伤形貌如图 1a~图 1d 所示。研究人员根据实验结果, 猜测是因为透明陶瓷经过表面抛光后, 陶瓷表面会留下开孔。体内损伤是由本体中的闭合孔隙引起的。体中的闭孔使入射激光

会聚, 而开孔在表面使入射激光散射。因此, YAG 透明陶瓷的体内 LIDT 低于表面 LIDT。

随后在观察损伤后的表面形貌中发现, 当脉冲激光的能量较小时, 会出现明显的损伤坑, 且随脉冲能量的增加损伤坑的数量也会明显增加, 但当脉冲激光能量过大时(19.8 J/cm^2), 透明陶瓷出现以整个晶粒熔融气化为代表的损伤形貌。这是首次针对脉冲激光的能量与透明陶瓷的损伤形貌之间的关系展开具体讨论, 但未深入开展损伤过程的揭示和损伤机理的探究工作。

激光诱导损伤的离线研究可以提供对材料在高压激光照射后的响应行为的深入了解。然而, 需要注意的是离线研究不能完全揭示动态激光损伤过程和热传输效应, 因此与在线研究相结合可以更全面地了解激光损伤的行为和机制。

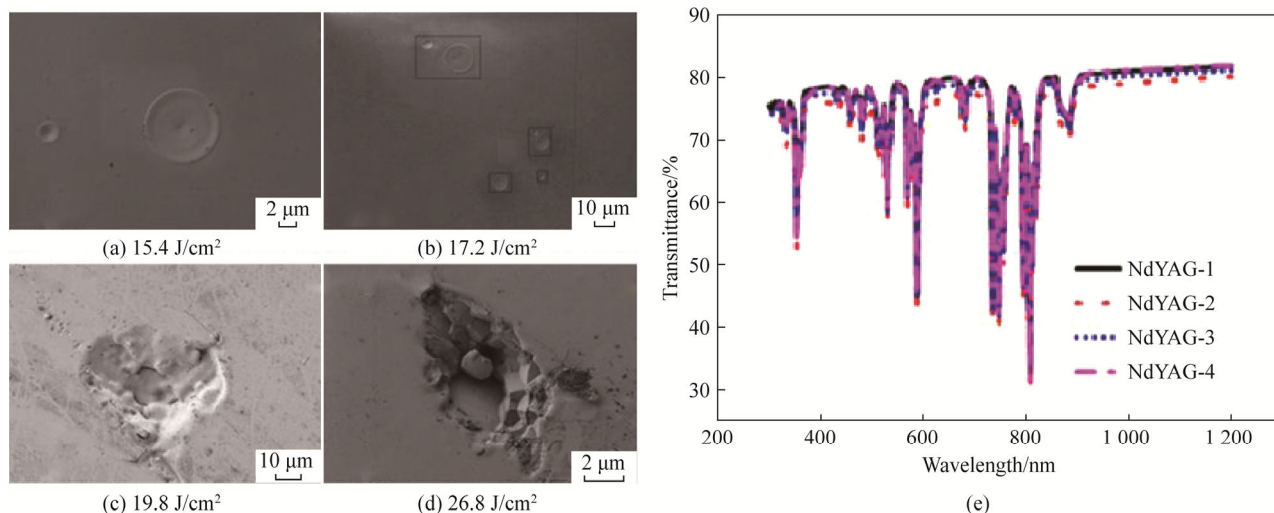


图 1 YAG 透明陶瓷的透过率及对应的体内损伤阈值和表面损伤阈值^[38]

Fig. 1 Transmittance of YAG transparent ceramics and corresponding in vivo and surface damage thresholds^[38]

1.2 激光诱导损伤的在线研究

对于材料损伤动力学的研究在 20 年中逐步兴起并迅速发展, 在针对包括透明陶瓷在内的光学元件的激光诱导损伤研究中各个国家的研究团队也都在不断创新研究方法。试图揭示透明陶瓷初始微缺陷与终态宏观损伤之间完整的动态发展过程。

但限于透明陶瓷的激光诱导损伤研究起步较晚, 且相关参考文献数量有限, 无法仅局限于透明陶瓷的在线研究展开文献综述。但透明陶瓷作为光学元件的重要组成部分, 可以借鉴其他类光学元件的动态损伤研究方法, 相关典型报道典型在表 1 中。

1.2.1 时间分辨的阴影成像法 最早采用时间分辨的阴影成像法探究激光对材料的损伤的是 Russo

等^[39, 41]。其探究在单脉冲激光作用下, 熔石英后表面等离子体起爆瞬态图片的相关实验, 光路示意图如图 2a 所示, 图 2b 是后表面的时间分辨实验结果图。该实验最终获得了激光诱导损伤的 1 组时序图, 主要涉及等离子体和喷溅 2 方面信息。结果表明, 不同激光波长造成的熔石英损伤坑密度不同, 且与激光功率密度有关, 在阈值激光密度为约 20 GW/cm^2 的情况下, 测量到弹坑深度的急剧变化, 如图 2c 所示。插图显示了阈值前后的弹坑轮廓初步探索了损伤发展规律。通过测量质量(原子/离子)等离子体早期阶段(30~300 ns)的光谱发射线增宽, 可以降低电子数密度和温度。这些特性是作为延迟时间和辐照度的函数进行测量的。在 20 GW/cm^2 的爆炸阈值

表 1 典型的激光诱导损伤在线研究
Table 1 Typical online research on laser induced damage

Country	Laboratory/University	Method	Research object	Injury types	Online recording objects	Time
America	Lawrence Berkeley laboratory	Time resolved shadow imaging	Fused silica	Posterior surface damage	Plasma evolution, material sputtering ^[39]	1999
	Livermore State Key Laboratory	Orthogonal polarization measurement	KDP crystals	Injuries in the body	Stress waves ^[40]	2002
		Time-resolved shadow imaging	Fused silica	Injuries in the body	Intrinsic damage process of materials ^[41]	2010
		Dual probes Measurement technology	Fused silica	Posterior surface damage	Plasma evolution ^[42]	2011
		Pump-probe	DKDP crystals	Posterior surface damage	Stress waves, plasma evolution ^[43]	2012
		Time-resolved shadow imaging	CaF ₂ , DKDP crystal, SiO ₂	Posterior surface damage	Material splattering ^[44]	2015
		Pump-probe	Fused silica	Posterior surface damage	Material splattering ^[45]	2016
China	China Academy of Engineering Physics	Time-resolved shadow imaging	Fused silica	Injuries in the body	Stress wave evolution and propagation ^[46]	2013
				Anterior and posterior surface damage	Stress waves, plasma evolution ^[47]	2014
	National University of Defense Technology	Mach-Zehnder Interference Diagnosis and Time-Resolved Techniques	Fused silica	Posterior surface damage	Plasma evolution, material sputtering ^[48-51]	2016
	Changchun University of Science and Technology	Time-resolved interferometry	Single crystal silicon	Anterior surface damage	Stress wave evolution ^[52]	2016
		Polarization spectroscopy imaging	Ceramics	Anterior surface damage	Evolution of damage topography ^[53]	2019
	Harbin Institute of Technology	Pump-probe	DKDP crystals	Anterior surface damage	Stress waves, plasma evolution ^[54]	2023
		Time-resolved shadow imaging		Internal injury, posterior surface injury	Evolution of injury morphology ^[55]	2023
France	CNRS-ENSMA	Time-resolved shadow imaging	Epoxy resin	Anterior surface damage	Stress waves ^[56]	2013
	Aix Marseille Univ	Pump-probe	Optical films	Anterior surface damage	Intrinsic damage process of materials ^[57]	2017
	Universite Paris-Saclay	Online Digital Image Method	Fused silica	Anterior surface damage	Diameter and area of injury ^[58]	2021
Japan	University of Tokyo	Pump-probe	MgO, LiFcrystal	Injuries in the body	Stress wave evolution ^[59]	2011
		Pump-probe	ZrO ₂ ceramics	Injuries in the body	Stress waves, plasma evolution ^[60]	2022

之前，使用反向韧致辐射和自我调节等可能的机制来对数据进行去刻划，如图 2d 所示。明确了激光自聚焦和临界温度，以解释这些特性在辐照度阈值后的显著变化。这个实验为后续时间分辨的超快诊断技术提供了参照依据，也为透明陶瓷的动态损伤研究开辟了新的路径。

尽管时间分辨的阴影成像法在激光损伤研究中具有一定的应用，但也存在一些不足之处：1) 有限的空间分辨率。时间分辨的阴影成像法通常需要使用高速相机或快门来记录激光损伤过程中的阴影图像。然而，由于相机的像素分辨率限制，损伤区域中的细节和微观结构可能无法完全展示，特别是在

高能量密度或细小损伤结构的情况下；2) 材料表面的平整度和光学质量要求较高。不同材料的表面反射和折射特性可能会影响阴影图像的质量和可观察性，尤其是对于复杂、不均匀或散射性较高的材料，需要仔细考虑和处理；3) 受限于可用光源。时间分辨的阴影成像法通常需要高能量和短脉冲的光源来实现高速捕捉。在某些情况下，可用的光源可能受到能量和脉冲宽度的限制，从而限制了该方法的灵敏度和适用范围。

1.2.2 双探针测量技术 双探针测量技术是 1 种通过同时使用 2 个或多个探测光束来测量激光与材料相互作用的方法。Raman 等^[42]2011 年采用双探针

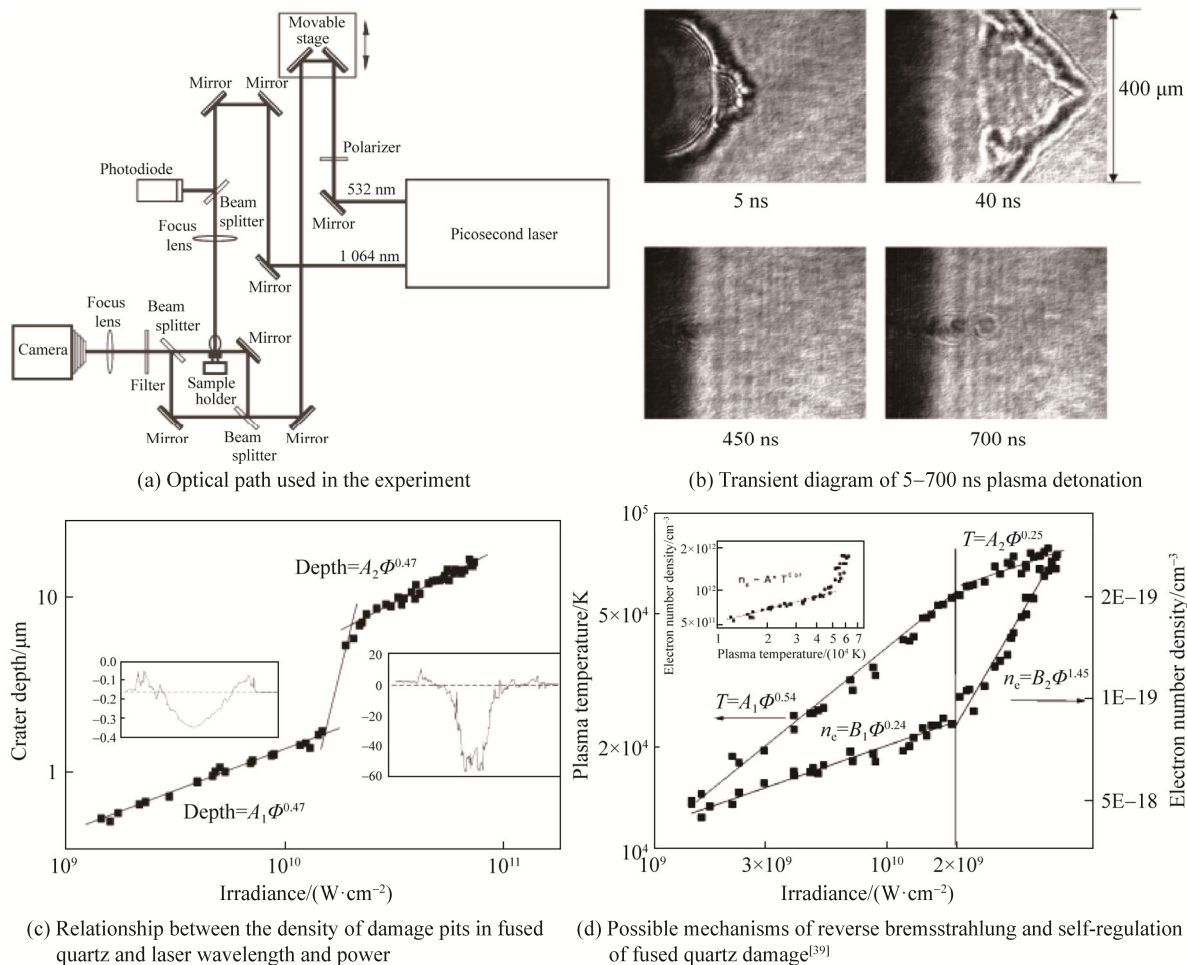


图 2 实验光路及动态损伤特性
Fig. 2 Experimental optical path and dynamic damage characteristics

测量技术, 首次获得了同一次激光损伤事件中 2 幅不同延时的图片, 光路系统如图 3c 所示。彩色在线 2.0 s 延迟和 2.5 s 延迟的表面击穿事件中喷出粒子的典型图像, 如图 3a 和图 3b 所示。2 个图像中的圆形和正方形有助于对相同的 2 组粒子进行视觉跟踪。通过实验结果可以看出, 双探针测量技术可以提供高时空分辨率的测量结果, 能够捕捉到激光损伤过程中的快速动态变化。通过同时使用 2 个或多个探测光束, 可以实现对损伤过程的详细观察和分析, 揭示细微的动态过程, 可以获得更全面的激光损伤信息, 为激光损伤研究提供量化的结果^[60-61]。但同时实验设备和测量系统的稳定性和精度提出了较高的要求, 需要较为复杂的实验设置和仪器调整。并且双探针测量技术产生的数据较为复杂, 需要进行有效的数据处理和分析。这可能涉及到多个信号的配准、噪声去除、信号提取等问题, 需要一定的专业知识和技术支持。

1.2.3 泵浦探测 泵浦-探测技术具有很高的时

间分辨能力, 可以捕捉到飞秒或皮秒时间尺度下材料响应的快速变化, 因此, 近年来逐渐应于激光对各类透明材料的动态检测中。通过使用 2 束激光进行对材料损伤的研究和监测。泵浦-探测技术包括 2 个主要步骤: 泵浦和探测。其中泵浦过程是将第 1 个激光束即泵浦激光用于在透明材料上施加高能量的脉冲, 导致材料产生损伤。泵浦激光的参数可以通过调节能量、脉冲宽度和重复频率等来实现不同的损伤模式和损伤阈值。探测过程是将第 2 个激光束即探测激光用于实时监测泵浦产生的损伤。探测激光经过透明材料时, 受到损伤产生的变化(如散射、吸收等)的影响, 探测激光的参数(如散射光信号的强度、时间延迟等)会发生相应的变化。通过对探测激光的测量和分析, 可以获取关于材料损伤的信息, 如损伤形成、扩展过程以及损伤阈值等。

Negres 等^[43]最早在 2012 年利用泵浦-探测法成功观测到 DKDP 晶体被激光聚焦作用后体内的发展

演化, 之后用第 3 路氦氛光照亮作用区域, 统计非本征损伤的增长状况, 发现了它区别于材料本征损伤的阈值和来源。图 4a 和图 4b 分别为部分实验装

置示意图和 1 组本征损伤的时序图。明确了 2 种不同机理造成的损伤阈值差别巨大, 实际工程中安全运行下的激光通量难以达到本征损伤阈值。

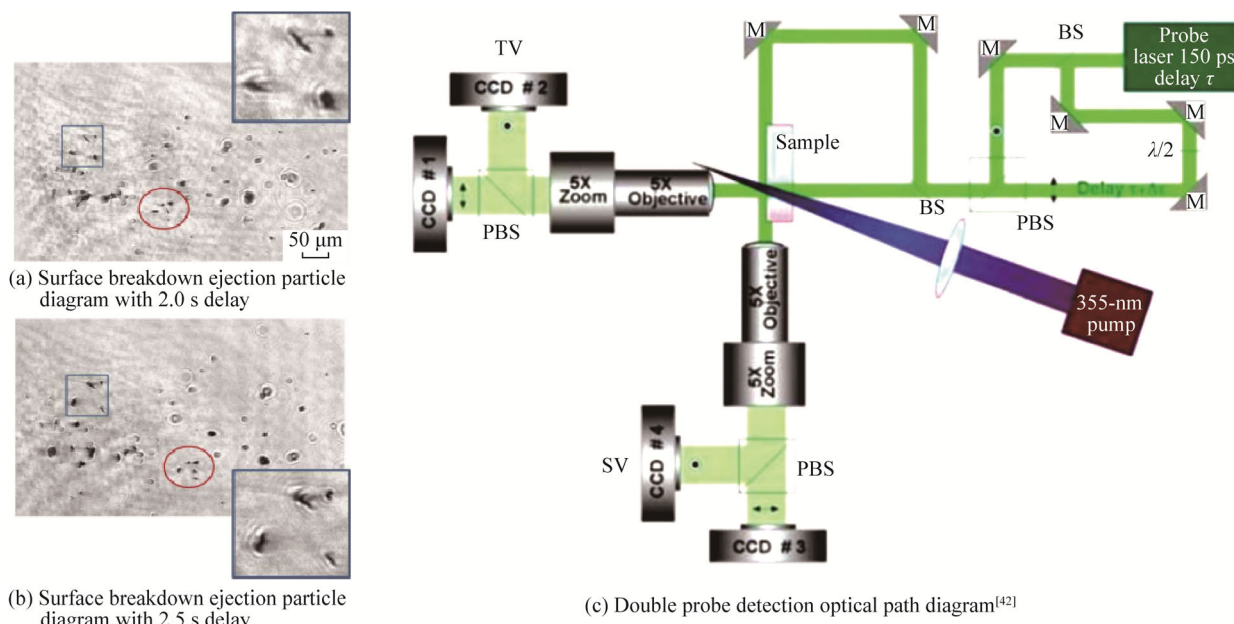
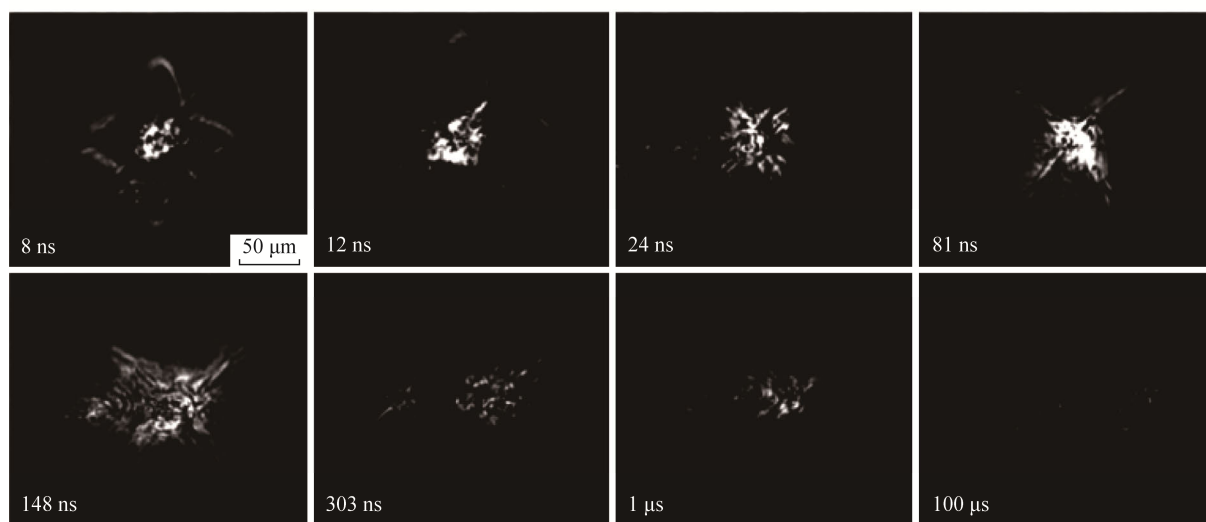
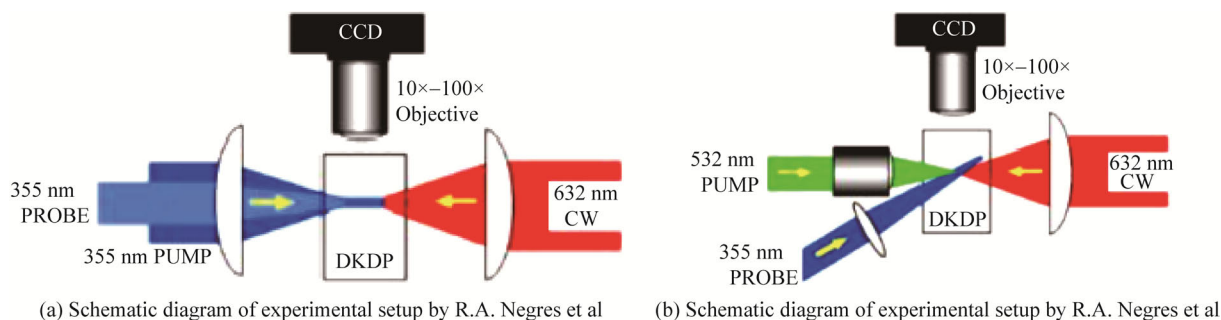


图 3 双探针实验光路图及延时测试结果

Fig. 3 Double probe experimental optical path diagram and delay test results



(c) Intrinsic damage temporal images within DKDP^[43]

图 4 实验装置示意图以及 DKDP 内本征损伤时序图像

Fig. 4 Schematic diagram of experimental setup and intrinsic damage temporal images within DKDP

Masaaki 等^[59]采用泵浦-探测法观察岩盐晶体在飞秒激光作用后的体内损伤动态发展, 探究激光诱导应力波与晶体体内的结构改变之间的联系。发现了晶体体内损伤会出现 2 层应力波, 可能主要造成了损伤的断层带; 内层应力可能是形成损伤处裂缝的主要因素。此发现引发了国际研究学者们的极大兴趣和关注, 陈明君团队^[53]近期也利用泵浦-探测法系统研究了强激光辐照下 KDP 晶体表面缺陷引起的应力波的测定及其对损伤扩展的影响。研究发现了残余表面横向裂纹在激光辐照下在晶体上引入的多重应力波是损伤扩展和激光损伤抗力降低的主要诱因。建立了表面横向裂纹的激光损伤动力学模型, 如图 5a 所示, 再现了激光辐照下微缺陷向亚毫米损伤坑演化的动力学行为。结合时间分辨泵浦和

探针技术, 原位检测横向裂纹引起的应力波分布如图 5b 所示, 模拟和实验的结论吻合确定了应力波的类型。然后, 对激光损伤的萌生和扩展进行了定量分析, 建立了不同应力波与损伤扩展的相关性。为制定光学超精密加工过程中表面裂纹缺陷的控制标准提供了有效的指导, 这对于提高高功率激光系统中 KDP 晶体的抗激光损伤性能具有重要意义。

泵浦-探测技术的应用可以帮助研究者深入了解激光对透明材料的损伤机制和耐损伤性能。通过精确控制泵浦激光和实时监测探测激光, 可以研究不同激光参数对损伤行为的影响, 提供有关材料的损伤阈值、能量耗散过程和损伤复杂性的信息, 这对于材料的设计、性能评估和应用安全性的研究具有重要意义。

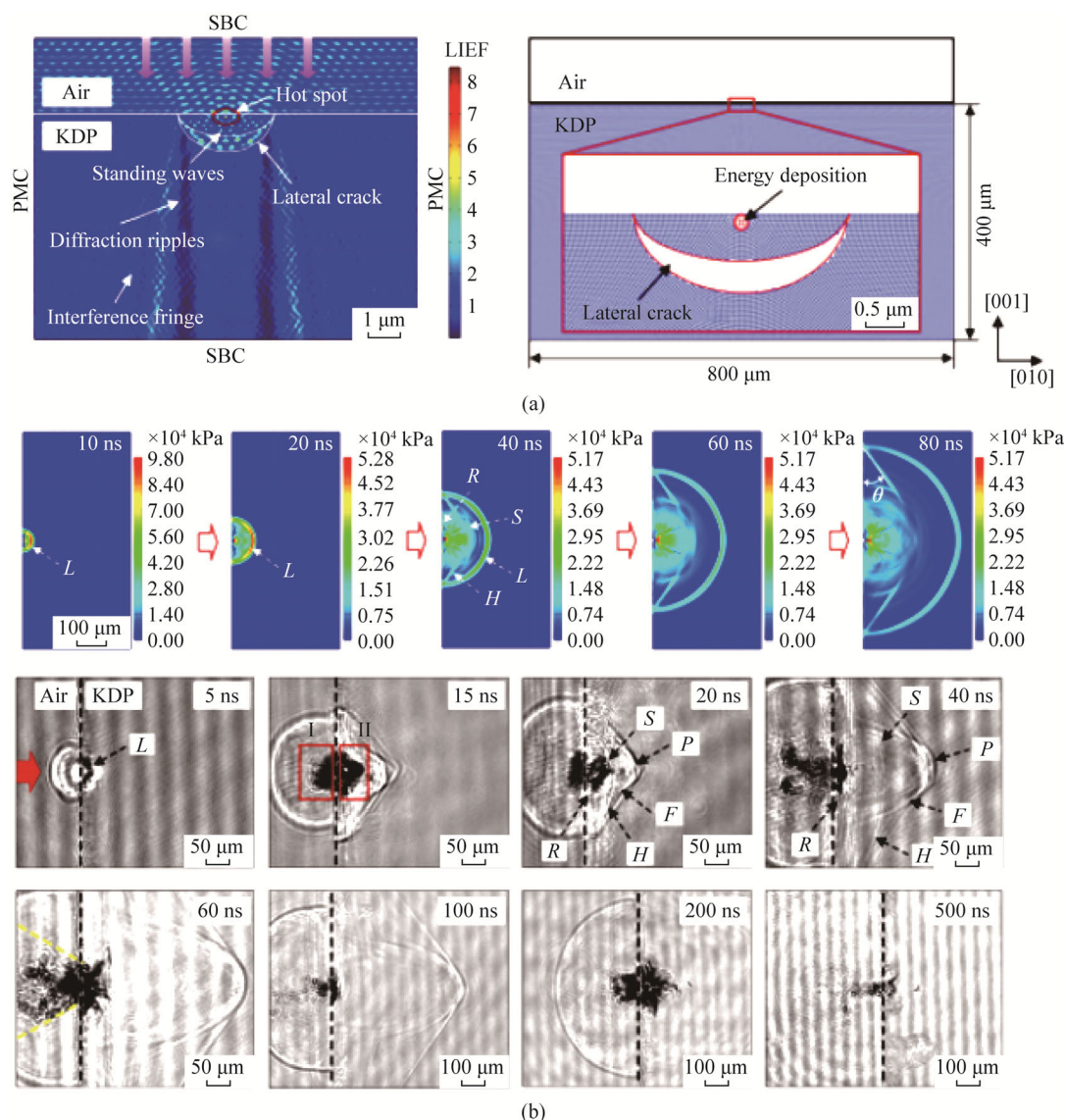


图 5 (a)表面横向裂纹的激光损伤动力学模型、(b)应力波全周期演变模拟以及原位检测横向裂纹引起的应力波分布^[53]
Fig. 5 (a) Dynamic model of laser damage for surface transverse cracks, (b) Simulation of full cycle evolution of stress waves and in-situ detection of stress wave distribution caused by transverse cracks^[53]

通过梳理以上 3 种激光诱导损伤的在线研究方法, 不难发现虽然均可以提供损伤形态的直观观察和动态过程的演化信息, 但由于由于各种方法在不同实验室和研究中可能采用不同的设备和参数, 导致结果的比较和验证困难。缺乏一致性和标准化的方法和指导原则可能限制了该技术的可重复性和可靠性。需要进一步的技术改进和标准化努力将有助于克服这些限制, 并推动其在包括透明陶瓷在内的激光损伤研究中的应用和发展。

1.3 数值模拟

以往文献报道的透明陶瓷的激光损伤的工作中往往缺少损伤演化的细节信息, 缺乏细观演化和宏观响应特性的关联。究其原因在对透明陶瓷材料激光损伤过程中的形貌损伤、等离子体产生和演化、应力波的产生和传播的过程缺少能够准确表征透明陶瓷内部微结构演化的测试手段, 同时缺少有效描述透明陶瓷材料激光损伤过程的数值模拟方法, 这也是目前在透明陶瓷材料激光损伤研究中面临的难点。数值模拟不仅可以重现实验过程, 对比实验结果, 还可以将细观损伤演化的细节信息及与宏观损伤响应的关联起来, 在模拟中观察到的细观演化过程可用于解读形成宏观上各种特征的信号。

Shen 等^[22]从实验和理论 2 个方面研究了连续波 808 nm 泵浦激光对多晶陶瓷和 Nd:YAG 晶体材料的热损伤。热损伤研究表明, Nd:YAG 透明陶瓷具有比晶体更大的热断裂电阻, 透明陶瓷比晶体高 64%。采用连续 808 nm LD 端面泵浦结构对棒样品的激光强度进行了实验测量。在 Gaussian 抽运梁的假设下, 考虑到样品导热系数和膨胀系数对温度的依赖性,

通过有限元分析模拟了样品的三维温度和热应力分布。实验测得陶瓷的破坏性断裂限制泵浦激光强度为 $(6.4 \pm 0.6) \text{ kW/cm}^2$, 比晶体高出近 64%。陶瓷和晶体的模拟平均热裂应力分别为 $(386 \pm 50) \text{ MPa}$ 和 $(235 \pm 16) \text{ MPa}$ 。

为了量化断裂发生时的温度, 研究人员使用 ANSYS 软件基于有限元法模拟了断裂点的温度分布, 图 6 展示了模拟和测量断裂点的温度分布。实线表示沿 z 轴在杆中心的纵向温度分布, 虚线表示沿杆侧面的温度分布。插图是径向温度分布, 三角形显示 3 个位置的测量温度。图 7a 和图 7b 显示了在 Nd:YAG 透明陶瓷的 6.6 kW/cm^2 和 Nd:YAG 晶体的 4.1 kW/cm^2 的断裂限制泵浦激光强度下典型的模拟三维热应力分布, 由于应力的对称分布, 仅展示了材料的一半。

计算和模拟结果表明, 最大环向热应力不发生在入射面的中心。相反, 对于 2 个样品, 温度分布都发生在泵浦激光束的边缘。如图 7 所示。它与最大温度梯度的位置一致。热效应模拟结果表明, 裂缝从温度梯度最大的位置开始, 然后向外围和中心扩散。因此, 热累积引起的温度梯度和随后的热应力是泵浦激光引起损伤的主要原因。该研究中给出的 Nd:YAG 晶体 (250 MPa) 的断裂应力与上述数值吻合较好。陶瓷 Nd:YAG 比晶体的断裂应力更高, 这可能是由于陶瓷材料具有非晶体结构和小晶界。

此前在各种实验中已经证明, 光学元件中的缺陷会导致激光损伤阈值的降低。然而由于缺乏合适的数值模型, 仍然很难理解缺陷效应造成诱导激光损伤的过程。为了解决这个问题, Lu 等^[62]设计了 1 个

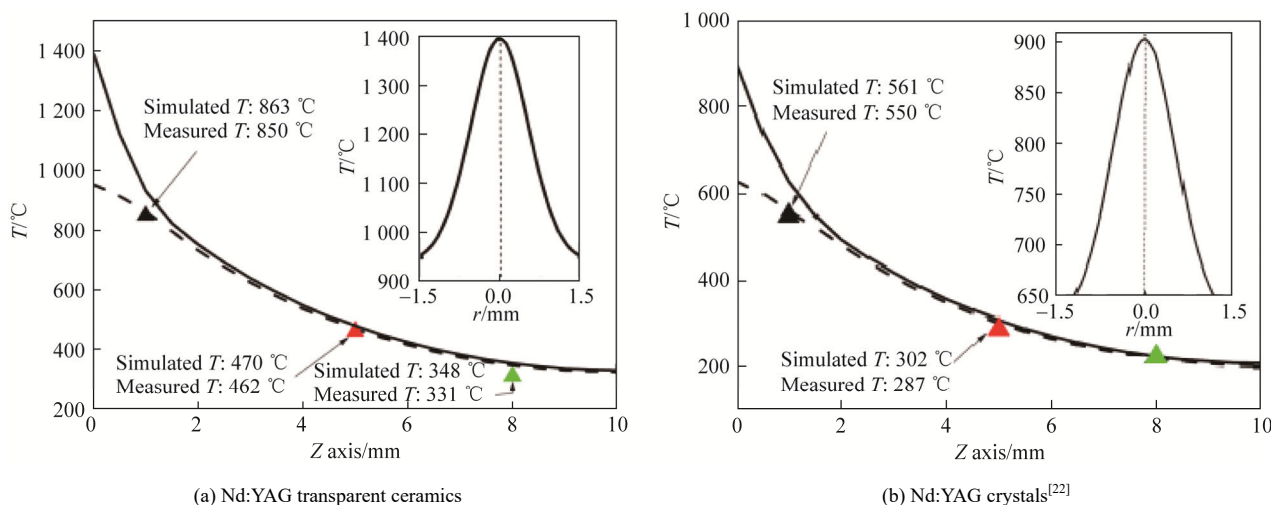
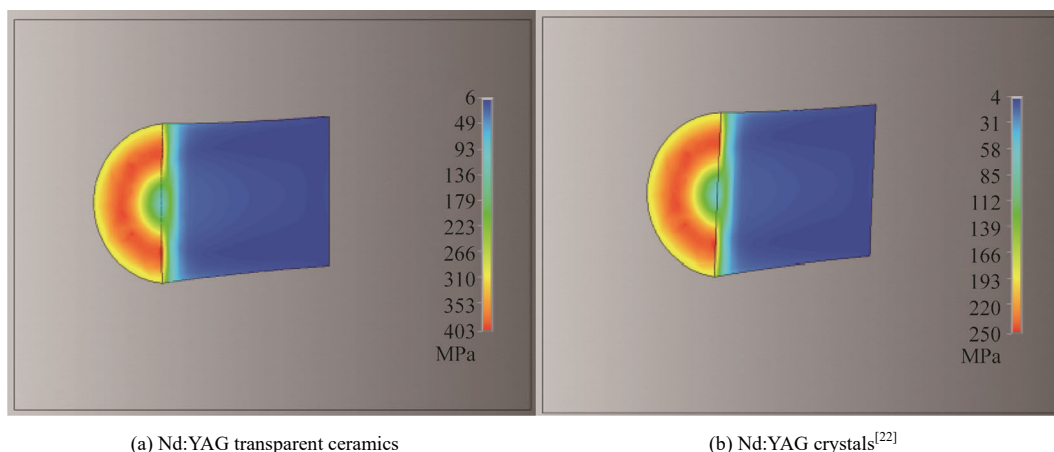


图 6 模拟和测量在断裂点的温度分布

Fig. 6 Simulated and measured temperature distribution at the fracture point



(a) Nd:YAG transparent ceramics

(b) Nd:YAG crystals^[22]

图 7 陶瓷和晶体典型的模拟三维热应力分布

Fig. 7 Typical simulated three-dimensional thermal stress distribution of ceramics and crystals

将传热、固体力学和电磁场相结合模型研究激光脉冲对有缺陷的工件, 分别根据重合的结果不仅可以高精度地证明通过实验和模拟获得, 也证明了工件中的缺陷光强、温度和热应力的显著局部增强, 从而减少激光损伤门槛。模拟结果显示, 局部区域中强度增强

的光使温度增加了约 3 倍, 并使热应力增加约 8 倍。因此, 由于光学元件内部的光强度因划痕而局部增强, 最大温度和热应力都显著增强, 可以降低损伤阈值, 与实验结果相吻合, 图 8 所示即为表面划痕缺陷在激光脉冲辐照数值模型。

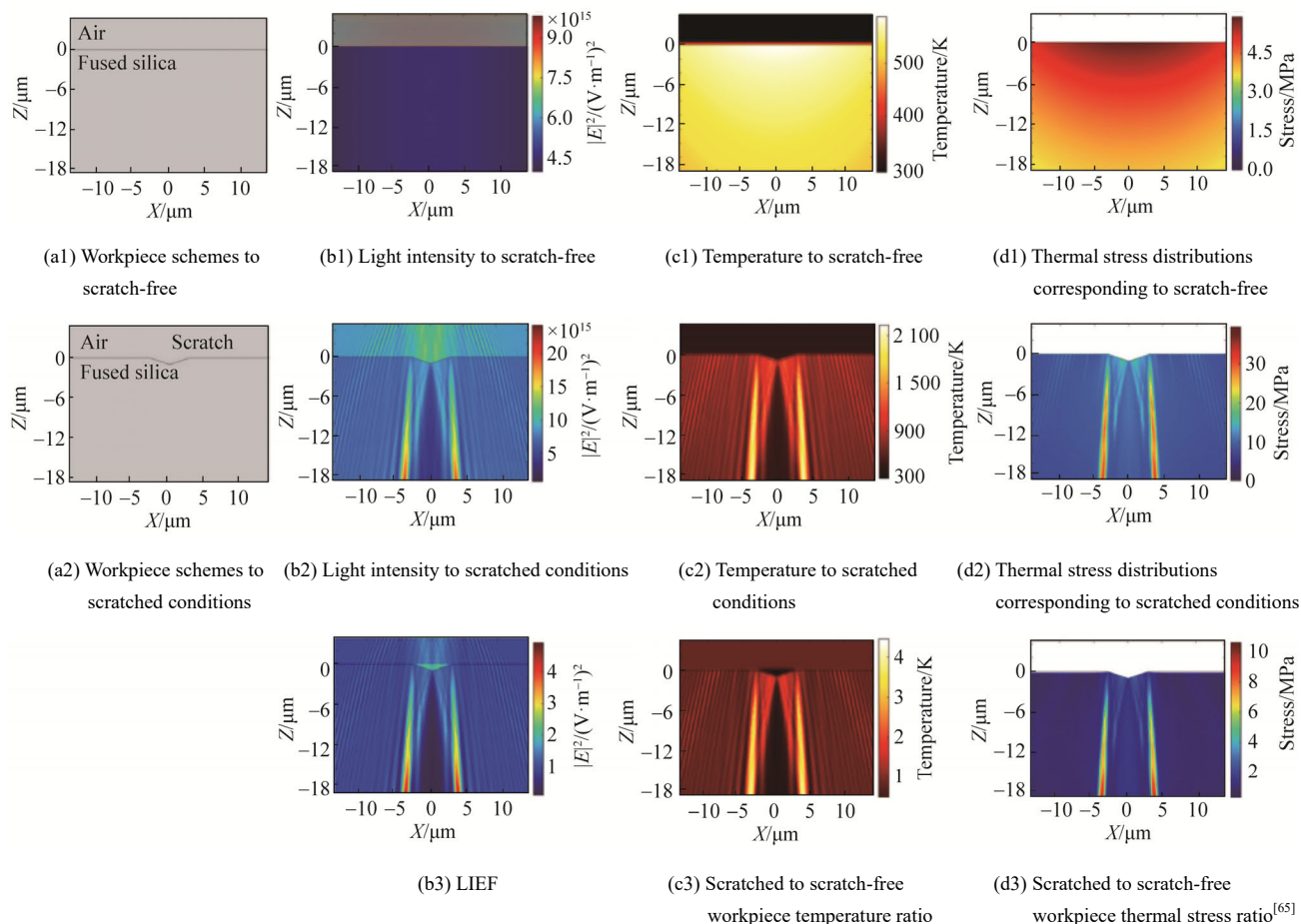


图 8 缺陷对激光制造影响的数值研究

Fig. 8 Numerical study on the defect effect on laser manufacturing

1.4 人为调节缺陷

2016 年, Raman 等^[45]为地使用微米尺度的球状颗粒代替加工材料引入的微缺陷, 模拟了实际材料后表面上由不同的杂质缺陷污染对熔石英损伤带来的影响, 主要研究了熔石英在遭到电介质粒子污染后杂质与激光的相互作用时的损伤特征。实验结果如图 9 所示, 捕获了熔石英在附着了 2 种杂质球状颗粒后喷溅的瞬态图像, 通过对比后发现, 不同粒子污染后的损伤特征存在不同之处。金属杂质更易与泵浦激光发生相互作用, 沉积激光能量, 并约束在自身, 产生相应的喷溅行为, 而电介质杂质则会使材料基底与激光发生更强烈的作用, 最终破坏基底。

采用人为的缺陷控制, 可以有效利用微纳尺度

的球状颗粒模拟光学元件中的微缺陷, 从而探究杂质诱导损伤的过程, 揭示损伤的机理, 这将极大的提高探究的效率, 也将不可控的微缺陷变得可控, 值得在探究透明陶瓷激光诱导损伤的过程中借鉴。

包括透明陶瓷在内的诸多的光学元件中, 除微颗粒缺陷(如微气孔)较为常见以外, 元件表层的划痕和微裂纹也很难完全避免, 然而微裂纹的存在更易吸收激光的能量, 促进多种应力波的形成和迅速扩散, 从而降低光学元件的激光损伤阈值。其中残余表面横向裂纹在激光辐照下在晶体上引入的多重应力波是损伤扩展和激光损伤抗力降低的主要诱因。然而, 这些应力波的耦合使其在晶体中的传播变得复杂, 并且每个应力波与激光损伤之间的相互作用机制尚未完全表征。

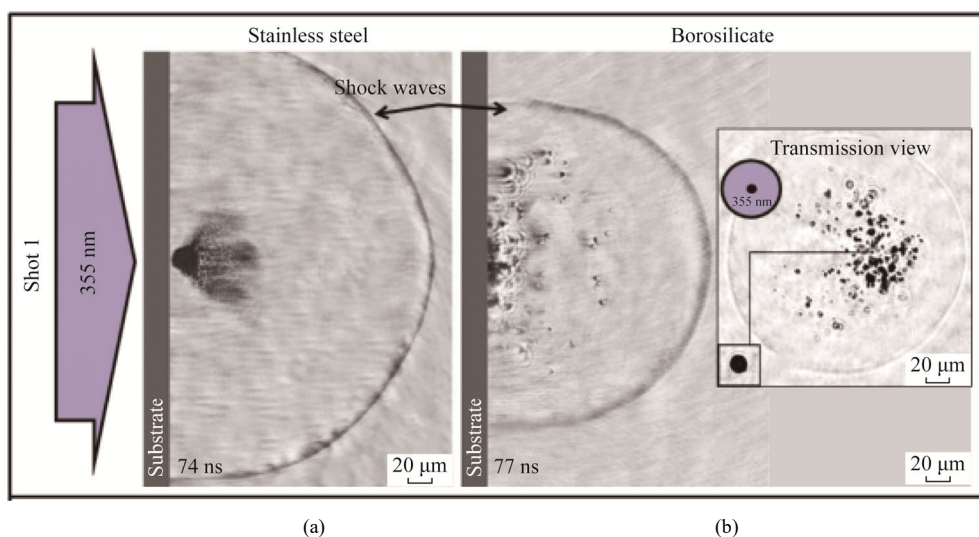


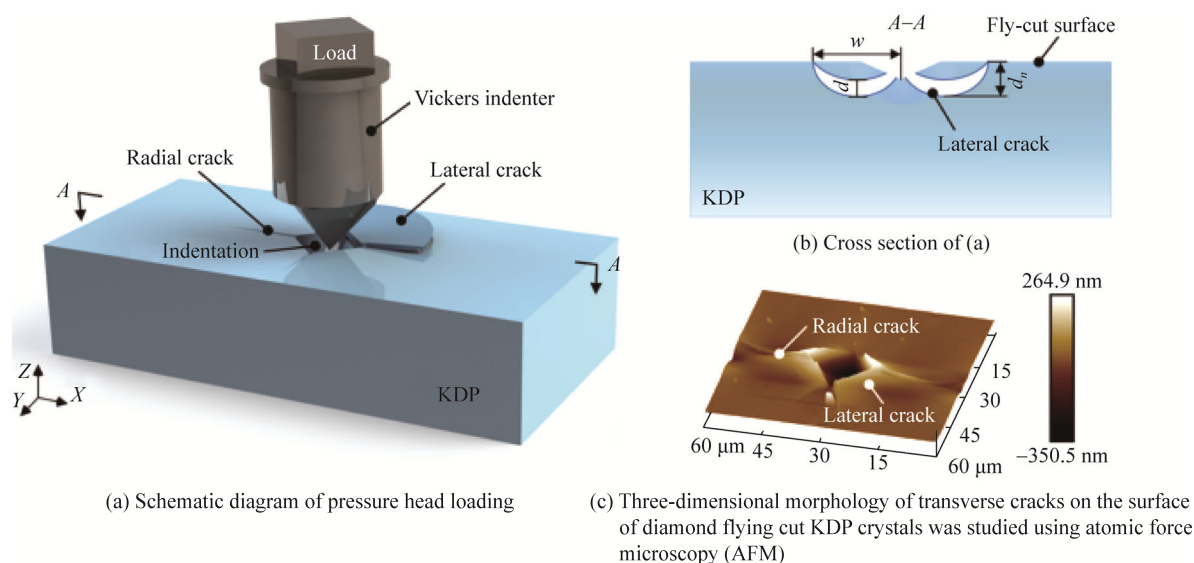
图 9 亮视场侧视图阴影摄影显示直径为 20 μm 的散射(a) 74 ns 时的 SS 球体(b)在 355 nm 峰值后 77 ns 延迟的 BS 球, 8 ns 激光脉冲, 图(b)中的插图显示了相同延迟下的传输视图^[45]

Fig. 9 Bright-field side-view shadowgraphy showing the dispersal of 20 μm diameter (a) SS sphere at 74 ns and (b) BS sphere at 77 ns delay after peak of 355 nm, 8 ns laser pulse, inset in (b) shows transmission view at same delay^[45]

近日, 哈尔滨工业大学陈明君教授团队与中国工程物理研究院合作^[53], 采用不同负载的压头加载出不同压痕模拟晶体表面的残余裂纹缺陷, 旨在更直观地探索微裂纹缺陷在强激光照射下的损伤动力学特性。压头载荷和晶体表面产生的伴随横向裂纹如图 10 所示。图 10c 显示了通过原子力显微镜(AFM)测量的横向裂纹的三维形貌。建立了表面横向裂纹的激光损伤动力学模型, 再现了激光辐照下微缺陷向亚毫米损伤坑演化的动力学行为。结合时间分辨泵浦和探针技术, 原位检测横向裂纹引起的应力波分布, 以确定应力波的类型。并进行了定量分析, 建立了不同应力波与损伤扩展的相关性。该研究最

终揭示了横向裂纹引起损伤演化的物理机制, 为制定光学超精密加工过程中表面裂纹缺陷的控制标准提供了有效的指导, 这不仅对于提高高功率激光系统中 KDP 晶体的抗激光损伤性能具有重要意义。对于多晶属性的透明陶瓷同样具有重要的借鉴意义。

激光诱导透明陶瓷等光学材料损伤的探究中, 只有对其全面且细致的探测和表征才能更有效的揭示材料的损伤过程和损伤机理, 从而为高抗激光损伤阈值材料的制备提供坚实的理论基础。可以预见, 在未来的更多的研究中, 将先进的泵浦探测等在线探测损伤手段与传统的离线表征手段相结合, 并借助从多物理场耦合数值模拟和巧妙的人为可控的缺

图 10 预设横向裂缝示意图^[53]Fig. 10 Shows a schematic diagram of pre-set transverse cracks^[53]

陷调节, 从而更有利于定量或半定量的分析由不同损伤源引发材料损伤。

2 透明陶瓷激光诱导损伤的影响因素

透明陶瓷作为强激光系统中的增益介质, 诱发激光损伤的原因有 2 方面: 一方面激光损伤的发生与输入光强度有关, 当光强度超过一定阈值时, 材料才会发生损伤; 另一方面, 材料表面和亚表面的缺陷也是诱发材料损伤的主要原因之一。其中, 激光的参数主要包括激光功率密度、激光脉冲宽度和激光波长。更为重要的是探究可能的几种损伤源(表面粗糙度、陶瓷晶界、微气孔)^[36, 51]诱导透明陶瓷损伤的机理, 这已是最近 10 年来炙手可热的研究话题。

2.1 表面结构缺陷

尽管已经成功地制备了具有高光学透明度的透明陶瓷, 但是抛光产生的表面条件仍然会极大地限制透明陶瓷的应用。它直接阻止了激光辐射与透明陶瓷之间的相互作用, 从而导致透明陶瓷的激光损伤。因此, 围绕透明陶瓷表面粗糙度及加工工艺对激光损伤阈值的关系展开探究同样重要。

2015 年, Fu 等^[63]采用不同的抛光工艺制备了 3 种不同表面粗糙度的 Nd:YAG 陶瓷。基于此开展激光损伤实验, 研究发现, 表面粗糙度的不同对激光损伤阈值有显著影响。当透明陶瓷材料表面足够平整光滑时, 如图 11a 所示, 激光照射到表面, 在产生激光诱导等离子体后, 没有额外的热量和应力中心。而当透明陶瓷表面粗糙度较大时, 如图 11b

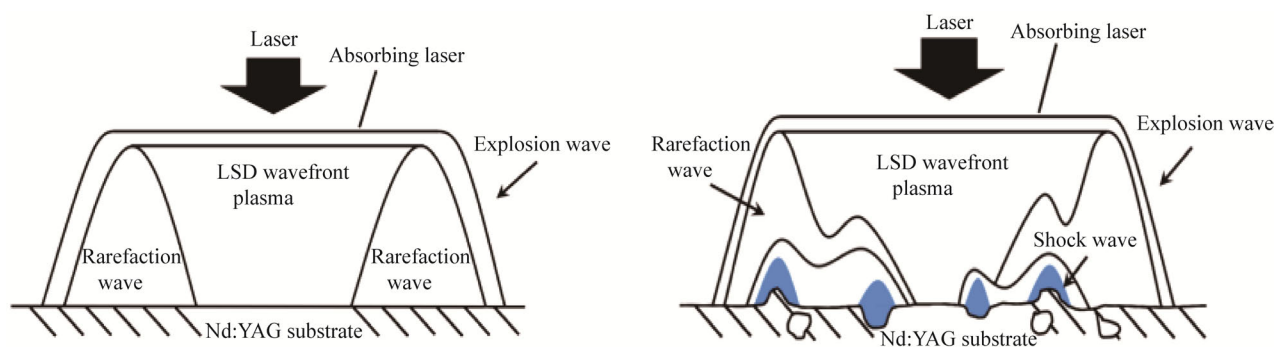
所示, 在缺陷周围产生的冲击波会使整个激光支持的爆轰波阵面畸变。激光照射过程通常有 2 个步骤。首先, 激光到达样品表面并与材料发生作用, 随后材料蒸气在激光照射中电离以产生等离子体。等离子体将继续吸收激光能量。等离子体一方面膨胀到空气中; 另一方面在材料表面被压缩, 对样品表面产生冲击波。进而引发透明陶瓷不可逆的激光损伤。这也是针对透明陶瓷表面粗糙度因素引发的表面损伤的首次系统分析, 探究表面粗糙度对损伤阈值的影响本质上是探究表面结构阙下对透明陶瓷材料损伤的影响。因此, 本项工作对研究人员的后续进一步开展工作具有重要的借鉴意义, 与此同时, 针对激光与陶瓷表面接触引发的等离子体和体内应力波的定量分析仍停留在基础层面, 有待进一步深入讨论。

2.2 微气孔

Kamimura 等^[64]于 2008 年观察到散射缺陷密度(微气孔密度)与激光损伤抗力之间存在明显的相关性。具有低散射密度的高质量 YAG 透明陶瓷显示出比低质量 YAG 透明更高的激光损伤阈值(LIDT)。Ikesue 采用的探究方案是采用先进的 YAG 透明陶瓷制备工艺制备了具有各种结构缺陷的 YAG 陶瓷陶瓷技术。将波长为 514.5 nm 的 Ar⁺激光聚焦到直径约 40 μm 处照亮样品内部。YAG 透明陶瓷和单晶中散射缺陷的测量结果如图 12a~图 12c 所示。YAG 单晶和透明陶瓷中散射缺陷密度和体 LIDT 之间的关系为如图 12d 所示。结果显示 YAG 材料的 LIDT 随

散射缺陷密度的减小而增大。高质量 YAG 陶瓷的缺陷率(缺陷率: 0.1%)与单晶几乎相同。因此, 透明陶瓷自身质量的提高也可以有效提高 YAG 陶瓷对

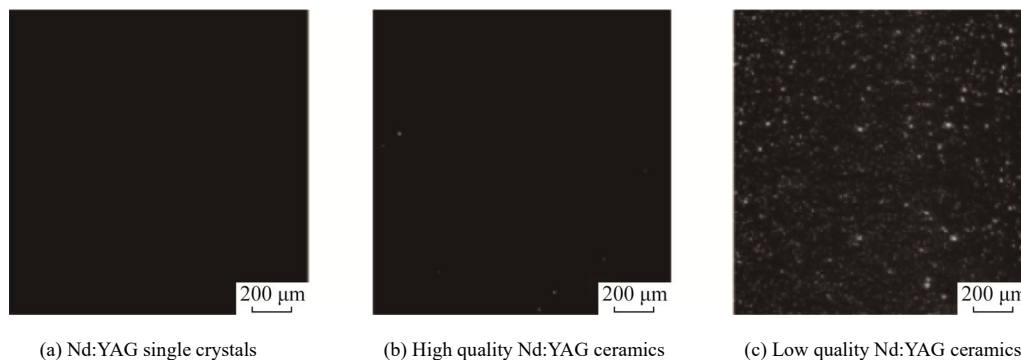
激光诱导损伤的抵抗力。但限于当时探测仪器精度有限, 并不能准确的表征散射缺陷的具体参数(尺寸大小、体积等)对损伤阈值的具体影响。



(a) Plasma generated by transparent ceramics with almost absolutely smooth surfaces (b) Plasma generated by transparent ceramics with rough surfaces^[63]

图 11 激光诱导透明陶瓷不同表面粗糙度时形成的爆炸波

Fig. 11 Explosion waves formed by laser induced transparent ceramics with different surface roughness



(a) Nd:YAG single crystals

(b) High quality Nd:YAG ceramics

(c) Low quality Nd:YAG ceramics

	Sample number	Nd ³⁺ /%	Ratio of defect/%
Single crystal	a	0.0	0.01
	b	1.0	0.01
Ceramics	c	0.0	2.74
	d	1.0	0.10
	e	1.2	2.41
	f	2.0	17.50

(d) Relationship between scattering defect density and bulk LIDT in YAG single crystal and transparent ceramics

图 12 Nd:YAG 透明陶瓷和单晶中散射缺陷及损伤阈值^[64]

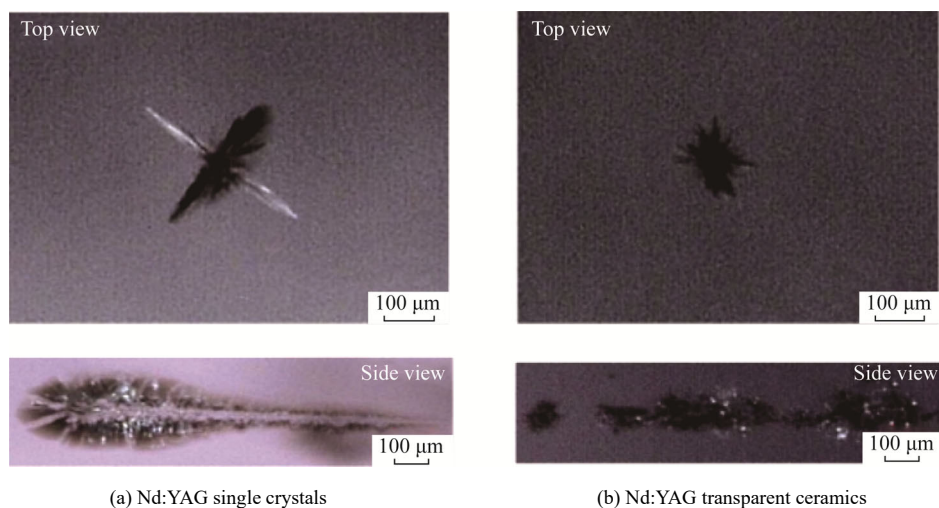
Fig. 12 Scattering defects and damage thresholds in Nd:YAG transparent ceramics and single crystals^[64]

2.3 陶瓷晶界

A. Ikesue 随后将单晶作为对照组(无晶界相)探究了晶界作为损伤源引发损伤的特性。在激光损伤阈值测量之后, 通过显微镜观察 YAG 材料中的损伤点。图 13a 和图 13b 显示 Nd:YAG 单晶和 Nd:YAG 透明陶瓷中典型激光损伤部位的显微镜照片, 损伤与激光照射方向平行。同样限于当时观测手段的条件限制, 在 YAG 陶瓷的裂纹图案中没有观察到规律性, 但明确了局部高密度缺陷影响了激光损伤的产

生。高质量陶瓷不包括任何结构缺陷(散射源除晶界外), 而在低质量陶瓷中观察到额外的晶界相。晶界相的厚度低于几十纳米, 根据观测到的晶界相认为激光损伤产生因为晶界相而不是 YAG 本身。

无论是陶瓷表面的粗糙度(表面加工微痕)还是陶瓷晶界或者是微气孔, 受限于此前探测方法的局限性, 研究人员均没有展开详细的讨论, 因此, 透明陶瓷在激光诱导下造成损伤的起源和损伤机理始终没有被完整的揭示。随着先进的泵浦-探测技术在

图 13 Nd:YAG 透明陶瓷和单晶的典型损伤形貌^[64]Fig. 13 Typical damage morphology of Nd:YAG transparent ceramics and single crystals^[64]

激光损伤研究中的应用和进一步发展, 有望借助先进的探测手段以及精准的仿真手段揭示纳秒级的损伤过程和损伤机理。

3 提高透明陶瓷损伤阈值的途径

通过探寻提高透明陶瓷激光损伤阈值的新工艺或方法, 提高透明陶瓷的抗激光损伤能力是众多研究人员的终极目标。目前, 利用激光预处理或热退火处理等方法可有效提高光学元件的透过率, 进一步提高激光损伤阈值, 强激光装置的使用寿命也可以获得很好的延长, 能够有效减少国家更多的资源成本再投入。

3.1 退火处理

2019 年, Yavetskiy 等^[65]探究了 $Y_3Al_5O_{12}:Nd^{3+}$ (YAG:Nd)透明陶瓷生坯在不同热退火的机制下包括孔隙率、晶界等微观结构以及光学性能和激光性能的影响。未经退火的生坯和在 600、800、1000 °C 条件下退火的生坯的微观结构仅发生微小变化, 而在 1200 °C 退火的样品的平均微气孔增加 140 nm。然后再经 1750 °C 烧结 10 h 后, $Y_3Al_5O_{12}:Nd^{3+}$ 透明陶瓷在最终孔隙率、光学和激光特性方面具有显著差异。可以预见, 透明陶瓷在合适的热退火机制下, 激光损伤阈值可能会进一步提高。

3.2 激光预处理

激光预处理是一种通过在材料表面或体内预辐照低于损伤阈值的激光以改变材料抗激光损伤能力的技术^[66]。经过预辐照后的材料样品通常具有更高的阈值和更小的损伤点密度, 因此, 激光预处理作为一种有效的后处理手段, 已被广泛应用于薄膜、

倍频晶体和玻璃等光学元件中^[67-69]。

最理想的预处理方式是以元件口径大小的激光光斑直接辐照元件表面, 然而该方法对激光束的光强分布和束径大小提出了极为苛刻的要求, 目前还在探索中^[70]。工程上使用最广泛的是光栅扫描(N-on-1)法^[71], 即使用小光斑对元件表面逐点辐照以实现均匀覆盖, 并通过优化扫描方式、脉冲能量增幅、单点脉冲个数和最大脉冲能量等参数获得最优效果。Negres 等^[72]的研究表明, 脉冲能量增幅、单点脉冲个数和最大脉冲能量 3 种参数的不同组合能获得相同的预处理效果。因此, 优化扫描方式成为了减少预处理功耗和时间的关键, 也是预处理技术工业化的一个难点。

截止目前, 虽然利用激光预处理方法提高透明陶瓷的损伤阈值的研究目前还未曾有报道, 同样值得期待。

3.3 表面刻蚀微纳结构

提高光学元件的激光损伤阈值的方法除了激光预处理和热退火这 2 种最常见的方法以外, 近十年来, 随着飞秒激光加工、聚焦等离子束刻蚀等微纳量级精密加工技术的迅速发展, 研究人员尝试借助新技术在光学元件表面通过刻蚀微纳结构降低激光的反射率, 提高透过率, 从而进一步提高激光损伤阈值。

抗反射亚波长结构(ARSS)具有更高的激光损伤阈值(LIDT)和更好的光谱性能, 被认为是一种很有前途的抗反射激光应用方法。程鑫彬团队^[73]设计并制造了二维周期亚波长结构如图 15 所示, 并概述了表面和次表面污染物对抗反射亚波长结构(ARSS)

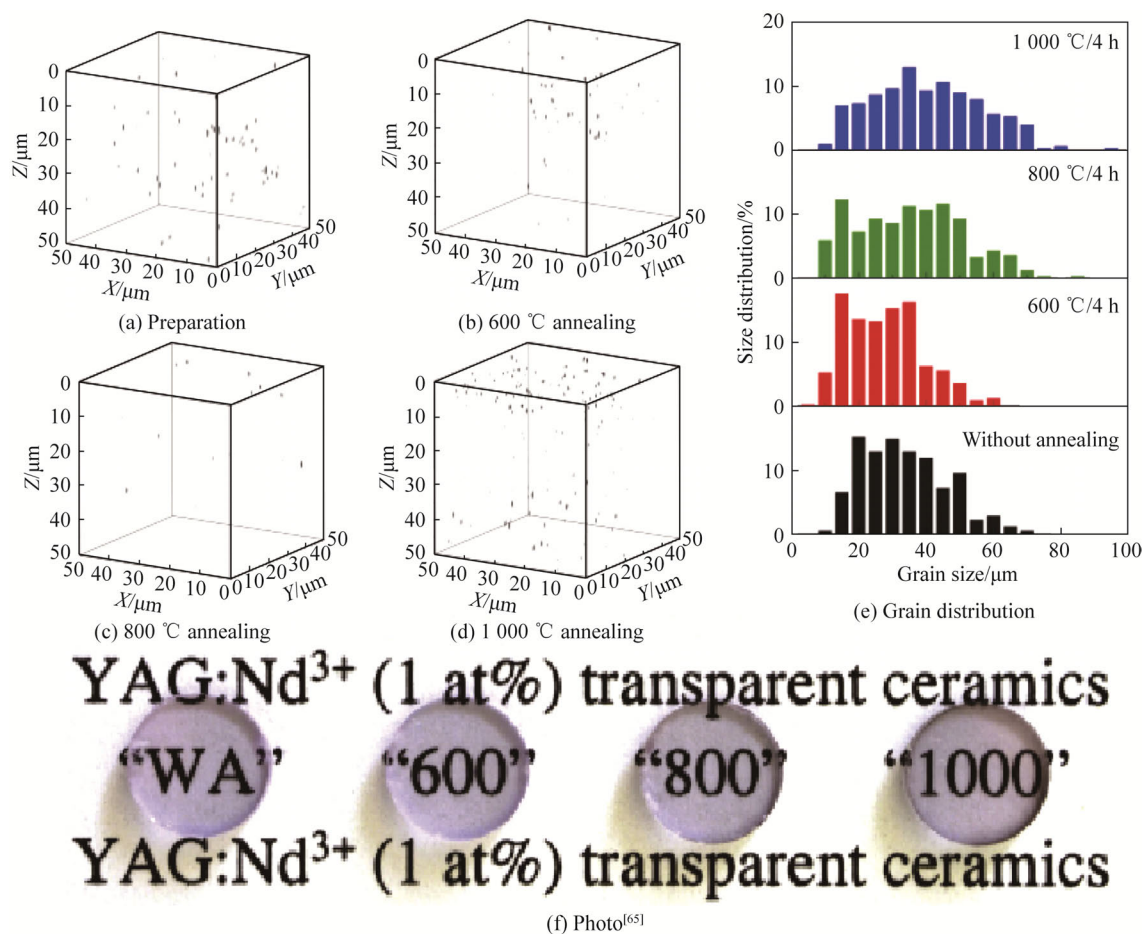


图 14 用不同温度退火的生坯制备 YAG:Nd³⁺ (1%)透明陶瓷的微气孔在激光共聚焦显微镜下的观察结果
Fig. 14 Observations of the micropores in YAG:Nd³⁺ (1%) transparent ceramics prepared from green billets annealed at different temperatures under a laser confocal microscope

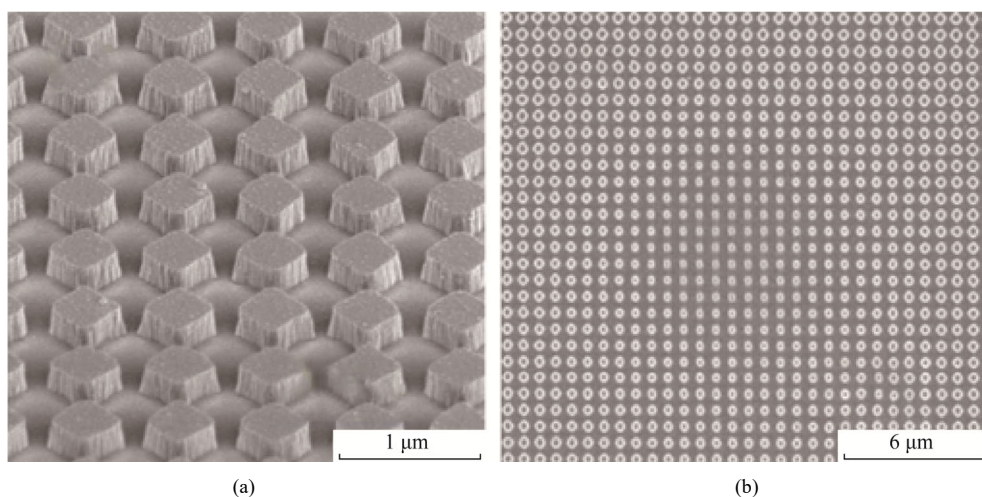


图 15 具有金颗粒的 ARSS 的激光损伤测试前后的 SEM 照片^[73]
Fig. 15 SEM photos of ARSS with gold particles before and after laser damage testing^[73]

激光损伤特性的影响。研究发现, 在 16 J/cm² 的注量下, 所制备的 ARSS 表面上的光致抗蚀剂残留物直接引起激光损伤。等离子体清洁可以去除大部分光致抗蚀剂残留物, 然而, 在离子束蚀刻过程中形

成的再沉积层是有害的, 在 24 J/cm² 的相对低的通量下触发激光诱导的损伤。优化了超声波清洗工艺有效提高了 ARSS 的激光损伤阈值, 显著增加到 56 J/cm², 这与裸露的熔融二氧化硅衬底的 LIDT 相当。

最早通过表面微结构修饰硫族化物玻璃提升激光损伤阈值的是美国的研究人员 Catalin^[74]。利用干法刻蚀所制备 As_2S_3 大块玻璃的蛾眼微结构及其主要特点性能如图 16 所示。

激光损伤测试的结果表明, 与微结构大块玻璃与原始未经处理的大块玻璃。2.1 μm (2 Hz, 80 ns 脉冲)增加了 30%以上(图 17)。考虑到这些表面的典型抗反射涂层与未涂覆的玻璃相比, 玻璃具有更低

的损伤阈值, 可以推断微结构玻璃是比传统的抗反射涂层对激光损伤更有弹性。

无论是激光预处理还是热退火, 亦或是利用飞秒激光在表面刻蚀微纳结构, 虽然在其他类的光学材料中或多或少都已经得到了验证和应用, 但是否在透明陶瓷中适合, 同时可否基于此研发更加适合于透明陶瓷的激光损伤阈值提升途径。仍需要广大的研究人员开展系统的实验和探索。

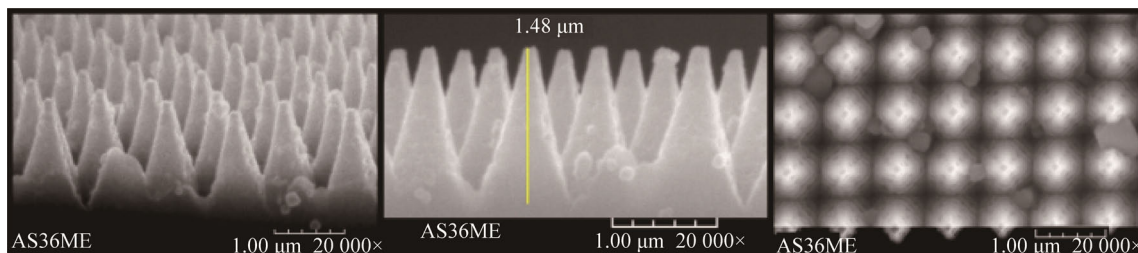


图 16 通过干法刻蚀对 As_2S_3 块体玻璃的 Motheye 微结构进行了研究^[74]
Fig. 16 The Motheye microstructure of As_2S_3 bulk glass was studied by dry etching^[74]

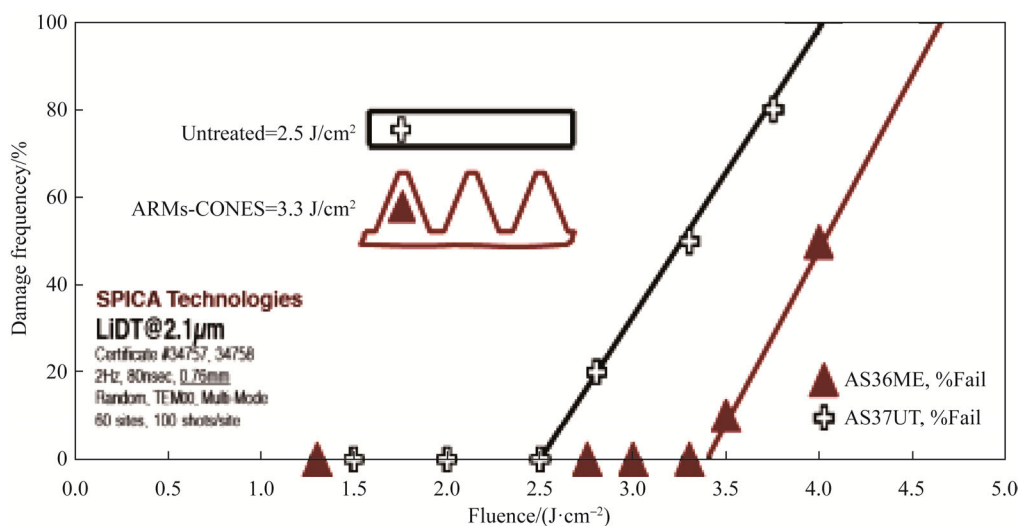


图 17 有和没有蛾眼微结构的 As_2S_3 衬底的损伤阈值数据^[74]
Fig. 17 Damage threshold data of As_2S_3 substrate with and without moth eye microstructure^[74]

4 总结

在所研究的透明光学元件中, 目前主要集中在晶体和熔石英玻璃, 少数研究的是玻璃、单晶硅, LiF , MgO 等材料。由于透明陶瓷中含有晶界、微气孔、第二相等结构缺陷, 因此透明陶瓷的损伤特性和机理远比单晶和熔石英复杂。加之透明陶瓷作为激光增益介质的研究本身起步相对较晚, 因此目前关于激光诱导透明陶瓷的文献数量稀少。从已有文献报道中不难发现, 即使激光诱导透明陶瓷的损伤过程和损伤机理的探索工作已经持续了十余年之

久, 但是造成透明陶瓷损伤的根本因素以及损伤应力波、等离子体分布演化等一系列损伤机理相关问题, 仍无完善、系统的报道回答。

在激光诱导透明陶瓷损伤的研究中, 早期侧重点在于不同加工工艺下、不同激光脉冲能量密度下、表面不同粗糙度下损伤阈值的测定, 陶瓷表面和体内初始微缺陷的表征和检测, 损伤核心区域显微形貌观察, 以及将透明陶瓷与单晶损伤过程的对比分析。然而, 近十年逐渐发展成熟的激光损伤光学元件的动力学却没有及时在透明陶瓷中应用和进一步发展。如损伤应力波是最终造成材料碎裂的主因,

但时间分辨成像对透明陶瓷中应力波发展分布行为进行测量的研究尚未报道。已经开展的研究基本以离线损伤为主且都停留在初步定性分析,不能清晰地定量地说明应力、等离子体的分布和演化情况。

为了更好的探索损伤过程中的细观演化过程,并且进一步探寻提高透明陶瓷的损伤阈值的途径。除了亟待发展时间分辨率更高的探测平台,多场耦合的数值模拟方法同样重要,将损伤实验、数值模拟和理论计算三者有效结合可有效剖析宏观-介观-微观不同层面上透明陶瓷的损伤机理。本文在全

面总结前人研究的基础上,系统梳理出包括激光损伤源、探究损伤方法与损伤阈值提升途径 3 方面的研究路径,如图 18 所示。

探究激光诱导透明陶瓷的损伤旨在从根本上探寻提升损伤阈值的方法,目前针对提升光学元件的损伤阈值的方法和工艺已经探索出了激光预处理、退火处理以及表面刻蚀微纳结构,然而针对透明陶瓷以上 3 种实施途径均没有开展系统研究,因此在围绕透明陶瓷提升激光损伤阈值的研究中同样任重道远。

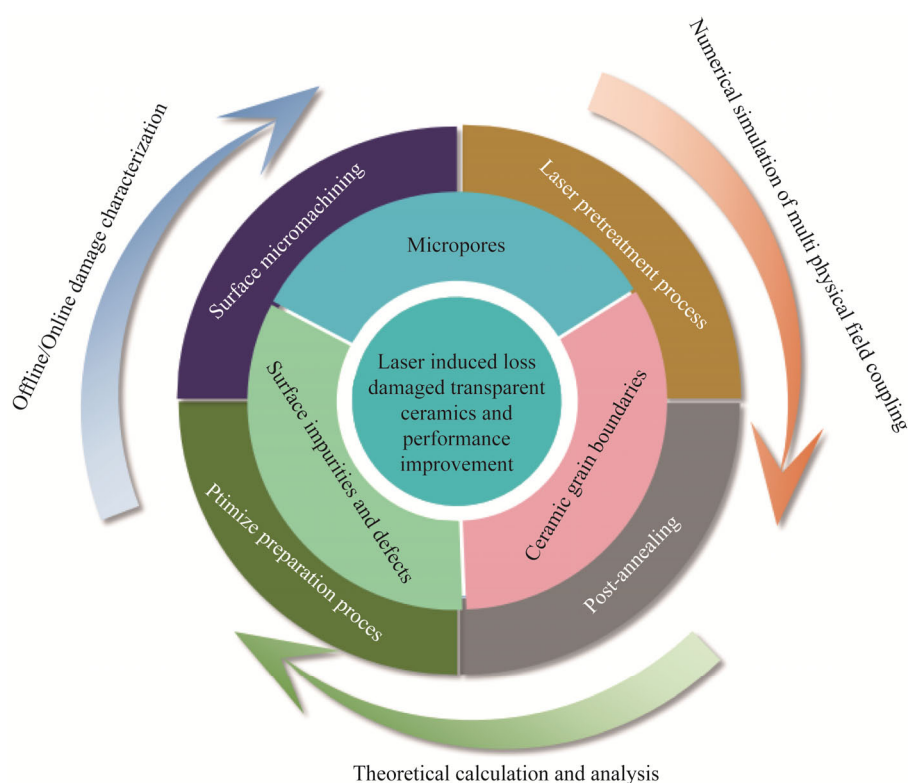


图 18 激光诱导损伤透明陶瓷及性能提升研究路径

Fig. 18 Research path for laser induced damage and performance improvement of transparent ceramics

随着激光技术的不断进步,可以预见更高功率的激光器将被用于透明陶瓷的损伤研究,这将有助于更好地理解材料在高能量输入下的响应,推动相关科学原理的进一步探索。同时,未来的研究将重点关注多尺度分析,从微观到宏观,以全面了解透明陶瓷材料的损伤机理。通过使用先进的实验技术和数值模拟方法,能够更加深入研究微观缺陷、晶界和材料组织对损伤行为的影响。光学诊断技术在透明陶瓷激光损伤研究中将会起着关键作用。随着技术的进步,将出现更多先进的光学诊断方法,可以实时监测材料的光学性能、表面形貌和损伤演化,为研究人员提供更全面的数据和信息。

随着计算机模拟技术和人工智能技术的进步,可以预期在未来的研究中,利用数值模拟和机器学习方法来一方面可以预测和模拟透明陶瓷材料的损伤行为。有助于准确评估材料的耐久性和损伤寿命,为设计和应用提供更精确的指导;另一方面,可以帮助研究人员进行先进的材料设计和制备,开发出更具抗损伤性能的透明陶瓷材料。这可能包括改善材料的结构、添加外部增强物或应用复合材料的方法,以提高材料的耐损伤性能。

除了基础科学研究,透明陶瓷激光损伤研究的应用也将得到进一步的拓展。例如,高能激光设备、光纤通信器件、光学传感器等领域都可以受益于对

透明陶瓷激光损伤行为的深入了解, 从而提高器件的性能和可靠性。通过在这些关键领域进行深入研究, 激光诱导透明陶瓷损伤研究将不断推动其应用和发展, 为高性能光学和光电器件的设计和制造提供更好的基础和指导。

参考文献:

- [1] WOOD R M. Laser damage in optical materials[M]. Washington. SPIE, 1986: 457–466.
- [2] SCHAFFER C B. Interaction of femtosecond laser pulses with transparent materials[D]. Boston: Harvard University, 2001.
- [3] HAYNAM C A, WEGNER P J, AUERBACH J M, et al. National Ignition Facility laser performance status[J]. Appl Opt, 2007, 46(16): 3276–3303.
- [4] SCHAFFER C, NISHIMURA N, GLEZER E, et al. Dynamics of femtosecond laser-induced breakdown in water from femtoseconds to microseconds[J]. Opt Express, 2002, 10(3): 196–203.
- [5] XU SHIZHEN, ZU XIAOTAO, YUAN XIAODONG. Localized CO₂ laser treatment and post-heating process to reduce the growth coefficient of fused silica surface damage[J]. Chin Opt Lett, 2011, 9(6): 73–75.
- [6] MICLOS S, SAVASTRU D, LANCRANJAN I. Numerical simulation of a fiber laser bending sensitivity[J]. Rom Rep Phys, 2010, 62(3): 519–527.
- [7] MAEDA H. Numerical analysis of photonic crystal waveguide with stub by CIP method[M]//Advances in Networked-Based Information Systems. Cham: Springer International Publishing, 2021: 320–328.
- [8] KELDYSH L V. Ionization in the field of a strong electromagnetic wave[J]. Zh.eksperim.i Teor.fiz, 1964, 47: 1307–1314.
- [9] SHEN N, BUDE J D, CARR C W. Model laser damage precursors for high quality optical materials[J]. Opt Express, 2014, 22(3): 3393–3404.
- [10] WONG J, FERRIERA J L, LINDSEY E F, et al. Morphology and microstructure in fused silica induced by high fluence ultraviolet 3 ω (355 nm) laser pulses[J]. J Non Cryst Solids, 2006, 352(3): 255–272.
- [11] QI H J, ZHU M P, FANG M, et al. Development of high-power laser coatings[J]. High Pow Laser Sci Eng, 2013, 1(1): 36–43.
- [12] VIGNES R M, SOULES T F, STOLKEN J S, et al. Thermomechanical modeling of laser-induced structural relaxation and deformation of glass: Volume changes in fused silica at high temperatures[J]. J Am Ceram Soc, 2013, 96(1): 137–145.
- [13] REIF J, COSTACHE F, HENYK M, et al. Ripples revisited: Non-classical morphology at the bottom of femtosecond laser ablation craters in transparent dielectrics[J]. Appl Surf Sci, 2002, 197–198: 891–895.
- [14] YE Y, TAN Y, JIN G Y. Accurate measurement for damage evolution of ceramics caused by nanosecond laser pulses with polarization spectrum imaging[J]. Opt Express, 2019, 27(11): 16360–16376.
- [15] IKESUE A, YOSHIDA K, YAMAMOTO T, et al. Optical scattering centers in polycrystalline Nd:YAG laser[J]. J Am Ceram Soc, 1997, 80(6): 1517–1522.
- [16] IKESUE A, YOSHIDA K. Scattering in polycrystalline Nd:YAG lasers[J]. J Am Ceram Soc, 1998, 81(8): 2194–2196.
- [17] IKESUE A, YOSHIDA K. Influence of pore volume on laser performance of Nd:YAG ceramics[J]. J Mater Sci, 1999, 34(6): 1189–1195.
- [18] KAMIMURA T, KAWAGUCHI Y, ARII T, et al. Investigation of bulk laser damage in transparent YAG ceramics controlled with microstructural refinement[C]//Proc SPIE 7132, Laser-Induced Damage in Optical Materials, Boulder, USA. 2008: 362–366.
- [19] BISSON J F, FENG Y, SHIRAKAWA A, et al. Laser damage threshold of ceramic YAG[J]. Jpn J Appl Phys, 2003, 42: L1025–L1027.
- [20] ZHANG X J, YE Q, QU R H, et al. Research on laser induced damage in PLZT electro-optical transparent ceramic[J]. Opt Mater Express, 2016, 6(3): 952.
- [21] DE VIDO M, PHILLIPS P J, HEIN J, et al. Influence of polishing and coating techniques on laser induced damage on AR-coated ceramic Yb:YAG[C]//Proc SPIE 9237, Laser-Induced Damage in Optical Materials, Boulder, USA. 2014: 273–280.
- [22] SHEN Y, BO Y, ZONG N, et al. Experimental and theoretical investigation of pump laser induced thermal damage for polycrystalline ceramic and crystal Nd:YAG[J]. IEEE J Sel Top Quantum Electron, 2015, 21(1): 160–167.
- [23] FERSMAN I A, KHAZOV L D. The effect of surface cleanliness of optical elements on their radiation resistance[J]. Sov J Opt Technol, 1971, 37: 627–628.
- [24] HUNT J T, MANES K R, RENARD P A. Hot images from obscurations[J]. Appl Opt, 1993, 32(30): 5973–5982.
- [25] WIDMAYER C C, MILAM D, DESZOEKE S P. Nonlinear formation of holographic images of obscurations in laser beams[J]. Appl Opt, 1997, 36(36): 9342–9347.
- [26] KANE D M, HALFPENNY D R. Reduced threshold ultraviolet laser ablation of glass substrates with surface particle coverage: A mechanism for systematic surface laser damage[J]. J Appl Phys, 2000, 87(9): 4548–4552.
- [27] HONIG J, NORTON M A, HOLLINGSWORTH W G, et al. Experimental study of 351-nm and 527-nm laser-initiated surface damage on fused silica surfaces due to typical contaminants[C]//Proc.SPIE, Laser-Induced Damage in Optical Materials. Boulder, USA. 2005: 129–135.
- [28] FEIGENBAUM E, ELHADJ S, MATTHEWS M J. Light scattering from laser induced pit ensembles on high power laser optics[J]. Opt Express, 2015, 23(8): 10589–10597.
- [29] NORTON M, ADAMS J J, CARR C W, et al. Growth of laser damage in fused silica: Diameter to depth ratio[C]//Proc.SPIE.6720.Laser-Induced Damage in Optical Materials. Boulder, USA. 2008: 441–448.
- [30] CHAMBONNEAU M, CHANAL M, REYNÉ S, et al. Investigations on laser damage growth in fused silica with simultaneous wavelength irradiation[J]. Appl Opt, 2015, 54(6): 1463–1470.
- [31] MATTHEWS M J, SHEN N, HONIG J, et al. Phase modulation and morphological evolution associated with surface-bound particle ablation[J]. J Opt Soc Am B, JOSAB, 2013, 30(12): 3233–3242.
- [32] BROWN A, OGLOZA A, TAYLOR L, et al. Continuous-wave laser damage and conditioning of particle contaminated optics[J]. Appl Opt, 2015, 54(16): 5216–5222.
- [33] WANG S, WANG J, LEI X, et al. Investigation of the laser-induced surface damage of KDP crystal by explosion simulation[J]. Opt Expr, 2019, 27(11): 15142–15153.
- [34] GIULIANO C R. Laser-induced damage to transparent dielectric materials[J]. Appl Phys Lett, 1964, 5(7): 137–139.
- [35] 余本海, 戴能利, 李玉华, 等. 飞秒激光烧蚀 MgAl₂O₄ 透明陶瓷的实验研究[J]. 无机材料学报, 2007, 22(2): 328–332.
- YU Benhai, DAI Nengli, LI Yuhua, et al. J Inorg Mater, 2007, 22(2):

- 328–332.
- [36] 张学娇, 叶青, 瞿荣辉, 等. 纳秒激光和飞秒激光对透明电光陶瓷表面损伤研究[J]. 中国激光, 2014, 41(7): 167–172.
ZHANG Xuejiao, YE Qing, QU Ronghui, et al. China Laser, 2014, 41(7): 167–172.
- [37] FEIT M D, RUBENCHIK A M, SHORE B W, et al. Laser-induced damage in dielectrics with nanosecond to subpicosecond pulses II: Theory[C]//Proc SPIE 2428, Laser-Induced Damage in Optical Materials. Boulder, USA. 1995, 2428: 469–478.
- [38] LIU X F, ZHAO Y A, LI D W, et al. Laser damage characteristics of the YAG ceramics[C]//Pacific Rim Laser Damage 2019: Optical Materials for High-Power Lasers. Qingdao, China. 2019: 181–189.
- [39] RUSSO R E, MAO X L, LIU H C, et al. Time-resolved plasma diagnostics and mass removal during single-pulse laser ablation[J]. Appl Phys A, 1999, 69(1): S887–S894.
- [40] JIANG H, MCNARY J, TOM H W K, et al. Nanosecond time-resolved multiprobe imaging of laser damage in transparent solids[J]. Appl Phys Lett, 2002, 81(17): 3149–3151.
- [41] ZENG X Z, MAO X L, WEN S B, et al. Energy deposition and shock wave propagation during pulsed laser ablation in fused silica cavities[J]. J Phys D: Appl Phys, 2004, 37(7): 1132–1136.
- [42] RAMAN R N, NEGRES R A, DEMOS S G. Kinetics of ejected particles during breakdown in fused silica by nanosecond laser pulses[J]. Appl Phys Lett, 2011, 98(5): 051901.
- [43] NEGRES R A, RAMAN R N, BUDE J D, et al. Dynamics of transient absorption in bulk DKDP crystals following laser energy deposition[J]. Opt Express, 2012, 20(18): 20447.
- [44] DEMOS S G, NEGRES R A, RAMAN R N, et al. Relaxation dynamics of nanosecond laser superheated material in dielectrics[J]. Optica, 2015, 2(8): 765.
- [45] RAMAN R N, DEMOS S G, SHEN N, et al. Damage on fused silica optics caused by laser ablation of surface-bound microparticles[J]. Opt Express, 2016, 24(3): 2634.
- [46] 刘红婕, 孟祥杰, 王芳, 等. 熔石英光学材料紫外皮秒激光损伤的瞬态特性研究[J]. 光学与光电技术, 2013, 11(4): 8–11.
LIU Hongjie, MENG Xiangjie, WANG Fang, et al. Opt Optoelectron Technol, 2013, 11(4): 8–11.
- [47] 周强, 王俊波, 邱荣, 等. 纳秒激光诱导熔石英玻璃损伤的超快诊断[J]. 中国激光, 2014, 41(3): 71–75.
ZHOU Qiang, WANG Junbo, QIU Rong, et al. Chin J Lasers, 2014, 41(3): 71–75.
- [48] 沈超, 程湘爱, 田野, 等. 1 064 nm 纳秒激光对熔石英元件后表面击穿的实验与数值研究[J]. 物理学报, 2016, 65(15): 149–159.
SHEN Chao, CHENG Xiangai, TIAN Ye, et al. J of Phys, 2016, 65(15): 149–159.
- [49] SHEN C, CHAMBONNEAU M, CHENG X A, et al. Identification of the formation phases of filamentary damage induced by nanosecond laser pulses in bulk fused silica[J]. Appl Phys Lett, 2015, 107(11): 1–5.
- [50] SHEN C, CHENG X A, JIANG T A, et al. Time-resolved imaging of filamentary damage on the exit surface of fused silica induced by 1 064 nm nanosecond laser pulse[J]. J Phys D: Appl Phys, 2015, 48(15): 155501.
- [51] SHEN C, CHENG X A, XU Z J, et al. Observation of particle ejection behavior following laser-induced breakdown on the rear surface of a sodium chloride optical window[J]. Opt Expr, 2016, 56(1): 011009.
- [52] 李贺, 蔡继兴, 谭勇, 等. 毫秒激光辐照单晶硅的在线应力损伤研究[J]. 光学学报, 2016, 36(2): 171–178.
LI He, CAI Jixing, TAN Yong, et al. Acta Opt Sin, 2016, 36(2): 171–178.
- [53] DING W Y, ZHAO L J, CHEN M J, et al. Determination of stress waves and their effect on the damage extension induced by surface defects of KDP crystals under intense laser irradiation[J]. Optica, 2023, 10(6): 671.
- [54] YUAN H, LI Y X, DAN Z Q, et al. Investigation and analysis of pin-point damage and damage growth characteristics in KDP and DKDP crystals[J]. Opt Express, 2023, 31(22): 35786.
- [55] ECAULT R, BERTHE L, BOUSTIE M, et al. Observation of the shock wave propagation induced by a high-power laser irradiation into an epoxy material[J]. J Phys D: Appl Phys, 2013, 46(23): 235501.
- [56] SOZET M, BOUILLET S, BERTHELOT J, et al. Sub-picosecond laser damage growth on high reflective coatings for high power applications[J]. Opt Express, 2017, 25(21): 25767–25781.
- [57] HALLO G, LACOMBE C, PARREAULT R, et al. How to provide reliable metrology of online laser-induced damage on large fused silica optics using digital image correlation[C]//SPIE Optical Systems Design. Proc SPIE, Online Only. 2021, 11873: 31–37.
- [58] SAKAKURA M, TOCHIO T, EIDA M, et al. Observation of laser-induced stress waves and mechanism of structural changes inside rock-salt crystals[J]. Opt Express, 2011, 19(18): 17780–17789.
- [59] ZHANG Y M, ITO Y, SUN H J, et al. Investigation of multi-timescale processing phenomena in femtosecond laser drilling of zirconia ceramics[J]. Opt Express, 2022, 30(21): 37394–37406.
- [60] 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.
- [61] LIU H J, YE X, ZHOU X D, et al. Subsurface defects characterization and laser damage performance of fused silica optics during HF-etched process[J]. Opt Mater, 2014, 36(5): 855–860.
- [62] LU Q A, XU W H, HE X L, et al. Numerical simulation of defect influence on nanosecond laser manufacturing[J]. Int J Therm Sci, 2023, 183: 107900.
- [63] FU Y L, LI J X, LIU Y, et al. Influence of surface roughness on laser-induced damage of Nd:YAG transparent ceramics[J]. Ceram Int, 2015, 41: 12535–12542.
- [64] KAMIMURA T, KAWAGUCHI Y, ARII T, et al. Investigation of bulk laser damage in transparent YAG ceramics controlled with microstructural refinement[C]//Proc SPIE 7132, Laser-Induced Damage in Optical Materials. Boulder, USA. 2008, 7132: 362–366.
- [65] YAVETSKIY R P, DOROSHENKO A G, PARKHOMENKO S V, et al. Microstructure evolution during reactive sintering of $Y_3Al_5O_{12}:Nd^{3+}$ transparent ceramics: Influence of green body annealing[J]. J Eur Ceram Soc, 2019, 39(13): 3867–3875.
- [66] BERCEGOL H. What is laser conditioning: A review focused on dielectric multilayers[C]//SPIE Proceeding, Laser-Induced Damage in Optical Materials. Boulder, USA, 1999: 421–426.
- [67] KOZLOWSKI M R, STAGGS M, RAINER F, et al. Laser conditioning and electronic defects of HfO_2 and SiO_2 thin films[C]//SPIE Proceeding, Laser-Induced Damage in Optical Materials. Boulder, USA, 1990: 269–282.
- [68] STAGGS M C, YAN M, RUNKEL M J. Laser raster conditioning of KDP and DKDP crystals using XeCl and Nd:YAG lasers[C]//SPIE Proceedings Laser-Induced Damage in Optical Materials: 2000,

- Boulder, USA. 2001: 400–407.
- [69] MENAPACE J, PENETRANTE B, MILLER P, et al. Combined advanced finishing and UV-laser conditioning for producing UV-damage-resistant fused silica optics[C]//Optical Fabrication and Testing. Boulder, USA, 2002: 56–68.
- [70] 陈猛, 袁晓东, 吕海兵, 等. 光学元件激光预处理技术[J]. 光学技术, 2010, 36(1): 79–83.
- CHEN Meng, YUAN Xiaodong, LV Haibing, et al. Opt Tech, 2010, 36(1): 79–83.
- [71] SHEEHAN L M, KOZLOWSKI M R, RAINER F, et al. Large-area conditioning of optics for high-power laser systems[C]//SPIE Proceedings, Laser-Induced Damage in Optical Materials. Boulder, USA. 1994: 559–568.
- [72] NEGRES R A, DEMANGE P, DEMOS S G. Investigation of laser annealing parameters for optimal laser-damage performance in deuterated potassium dihydrogen phosphate[J]. Opt Lett, 2005, 30(20): 2766–2768.
- [73] LIU F, JIAO H F, MA B, et al. Influence of the surface and subsurface contaminants on laser-induced damage threshold of anti-reflection sub-wavelength structures working at 1 064 nm[J]. Opt Laser Technol, 2020, 127: 106144.
- [74] FLOREA C, SANGHERA J, BUSSE L, et al. Improved laser damage threshold for chalcogenide glasses through surface microstructuring[C]//SPIE Proceedings, Photonic and Phononic Properties of Engineered Nanostructures. San Francisco, USA. 2011: 181–213.

Research Progress on Laser Induced Damage to Transparent Ceramics

CHEN Yue^{1,2}, JIANG Benxue¹, FENG Tao¹, ZHANG Long¹

(1. Key Laboratory of Materials for High Power Laser, Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China; 2. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

Extended Abstract

In the response to laser induced damage, transparent ceramics are similar to other types of optical components (*i.e.*, single crystals, fused quartz glass, *etc.*), such as surface and *in vivo* damage. However, they exhibit a particularity of damage due to its microstructure defects such as grain boundaries and micro pores. With the continuous development of high-power laser technology, transparent ceramics as laser gain media to resist laser damage are required. It is necessary to conduct in-depth research on the damage characteristics of transparent ceramics. In order to clarify the damage sources that induce damage to transparent ceramics and the damage response caused by structural defects in transparent ceramics under intense laser irradiation as well as reveal the damage mechanism, the defect characterization and damage detection methods are also continuously developed and optimized. Among them, an online time-resolved imaging method represented *via* pump detection is developed. The evolution of stress waves and plasma, as well as their impact on damage to transparent ceramics are analyzed *via* time-resolved imaging. The damage characteristics and mechanism of transparent ceramics induced by strong laser are investigated by the online time-resolved imaging method. In addition, there are also many types of structural defects in transparent ceramics that are difficult to be accurately controlled. Therefore, it is possible to artificially regulate the source of damage, such as the size and density of micro pores. This can control uncontrollable micro-defects, greatly improving the efficiency of exploration. The damage research of transparent ceramics can be further innovated.

This review represented the research methods of laser induced damage in transparent ceramics, the influencing factors of damage (*i.e.*, surface structural defects, micropores, and ceramic grain boundaries), and some approaches to increase the damage threshold. Transparent ceramics are the gain medium in high power laser systems, and there are two main reasons for inducing laser damage. On the one hand, it is related to the input laser parameters, but more importantly, the main damage sources in transparent ceramics (*i.e.*, surface roughness, ceramic grain boundaries, and micro-pores) lead to an irreversible damage under high power laser induction. This aspect becomes a recent research topic to explore the mechanisms and characteristics of various damage sources causing damage to transparent ceramics. To better explore the microscopic evolution process in the damage process, effectively analyze the damage mechanisms of transparent ceramics in macro-/meso- and micro-levels, and further explore some ways to improve the damage threshold of transparent ceramics, it is thus necessary to effectively combine line damage test, numerical simulation and theoretical calculation of multi-physical field coupling, and artificial defect control in multiple depths. A comprehensive analysis is carried out around the damage source in transparent ceramics to clarify the damage law, and gradually establish the correlation of “damage source-injury performance-injury mechanism”, and finally lay an important foundation for exploring a way to improve the damage threshold.

A ultimate goal of research on laser damage to transparent ceramics is to explore effective ways to increase the damage threshold, in order to better ensure the application effect of transparent ceramics in practical engineering. This review thus discussed several possible implementation approaches for the damage threshold of transparent ceramics, *i.e.*, laser pretreatment, annealing process, and surface micro/nano processing. The three approaches are effectively validated in improving the laser damage threshold of other types

of optical components. However, based on the polycrystalline properties of transparent ceramics themselves, it is still necessary to conduct systematic experiments and explorations to determine whether they can have a positive effect in improving the laser damage threshold in transparent ceramics.

Summary and prospects This review summarized three aspects *i.e.*, the exploration methods of laser induced damage in transparent ceramics, the influencing factors of damage, and the ways to increase the damage threshold. The research progress on laser induced damage to transparent ceramics was elaborated, having an important reference significance in the related fields. To clarify the influence of structural defects such as micropores and grain boundary on the damage formation mechanism, a guidance for the control standards of structural defects in the preparation and processing of transparent ceramics was provided. This review also has an important reference value for the development of high damage threshold transparent ceramics and their reasonable application in high-power laser systems. The study of intense laser induced damage to transparent ceramics will continue to promote the expansion of related basic and applied science research, thereby providing a foundation/guidance for the design and manufacture of high-performance optical and optoelectronic devices.

Keywords transparent ceramics; laser damage; surface damage; internal damage; damage dynamics