

KDP 晶体激光预处理参数的优化

王凤蕊, 李青芝, 郭德成, 黄进, 耿锋

(中国工程物理研究院 激光聚变研究中心, 四川 绵阳 621900)

摘要: KDP 晶体是目前高功率激光装置中倍频材料的首选, 元件上架前通常采用激光预处理来提高抗激光损伤性能, 由于预处理流程耗时较多, 提升预处理效率对于工程应用具有重要意义。研究了激光预处理参数对 KDP 晶体材料损伤性能的影响, 通过分析激光辐照通量、辐照发次、能量台阶等预处理参数与元件损伤性能的变化关系, 发现在一定通量范围内用不同的能量台阶可以获得同样的预处理效果, 由此确定采用变能量台阶的方法对预处理参数进行优化。实验证明, 采用此方法可以在保证预处理效果的前提下, 将总的激光辐照发次缩减三分之一, 结果对于大口径 KDP 晶体元件的激光预处理工艺具有重要参考价值。

关键词: KDP 晶体; 激光预处理; 损伤阈值; 参数优化

中图分类号: O439 **文献标志码:** A **DOI:** 10.3788/IRLA201746.0321005

Laser pretreatment parameters optimization of KDP crystal

Wang Fengrui, Li Qingzhi, Guo Decheng, Huang Jin, Geng Feng

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

Abstract: KDP crystal is the chief choice of frequency multiplier in high power laser system. Laser pretreatment is usually used to improve the damage probability of KDP element, the pretreatment process is more time-consuming, and it is of great significance to the engineering application to improve the pretreatment efficiency. KDP damage performance preconditioned by different laser pretreatment protocols was investigated, every protocol had three key parameters: laser radiation fluence, irradiated laser shots, and energy steps. By analyzing the condition parameters and the resultant damage performance, effect of every parameter on damage performance was discovered, and it is found that the same pretreatment performance can be achieved by using different energy steps, and laser pretreatment protocol was optimized by using variable energy steps instead of fixing one. Experimental results show that the variable energy steps protocol achieves total laser shots savings of 33%. The results would be benefit for KDP elements pretreatment process.

Kew words: KDP crystal; laser pretreatment; damage threshold; parameter optimization

收稿日期: 2016-07-08; 修订日期: 2016-08-12

基金项目: 中国工程物理研究院激光聚变研究中心和等离子体物理重点实验室创新基金(CX9153); 中国工程物理研究院发展基金(2013A0302016)

作者简介: 王凤蕊(1979-), 女, 副研究员, 硕士, 主要从事高功率激光材料特性方面的研究。Email: wangfr2006@163.com

0 引言

KDP 晶体是高功率激光装置中倍频材料的首选^[1-2],目前还没有其他综合性能更优良的材料可以取代它。虽然 KDP 晶体有诸多优点,但它的激光损伤阈值较低,限制了高功率激光装置的输出能力^[3-6]。实际上,完美的 KDP 晶体材料损伤阈值远高于现阶段激光器的运行指标,但在生长过程中,许多不可控因素会导致长成的 KDP 晶体存在各种缺陷,抗损伤性能大幅下降。

为了提高 KDP 晶体的抗激光损伤性能,在元件上架之前,通常采用激光辐照对晶体进行预处理^[7-18]。激光预处理是用由低到高的激光通量,以一定发次对元件通光区域进行辐照,使低通量下引发损伤的缺陷消除或改性,实现损伤性能的提升。激光预处理效果与激光波长^[12]、脉宽^[14-15]等因素有关,当预处理波长小于等于元件的工作波长时能获得更好的预处理效果。Negres 等人指出,在给定的波长和脉宽下,影响预处理效果的因素有三个^[10]:预处理达到的最大激光通量(F_{max}),预处理能量台阶大小(ΔF)以及每个台阶的发次(N)。其研究表明,未损状态下,预处理能达到的最大能量越高、能量台阶越密,每个台阶的发次越多,预处理效果越好。

Negres^[10]等人的研究给出了晶体材料预处理的一般规律,但是常规预处理流程耗时较多,尤其是对于大尺寸的工程元件来说,预处理需要的时间更长^[17]。如果可以通过优化预处理参数,用较少的时间达到较为满意的预处理效果,将对工程应用具有重要意义。文中以 ICF 驱动器工程工艺的晶体材料为实验对象,研究了激光预处理参数变化对预处理效果的影响,在兼顾预处理效果和效率的同时,探索优化预处理参数的可行性。

1 实验条件及研究方法

1.1 实验参数及光路

实验使用激光器的输出波长为 355 nm,脉冲为高斯型,脉冲宽度(FWHM)6.5 ns,激光光场为近平顶分布,样品位置的光斑调制度 1.7,激光脉冲能量抖动小于 $\pm 4\%$,激光光场分布及脉冲形状如图 1 所示。激光器输出的最小能量间隔约 0.75 J/cm²。

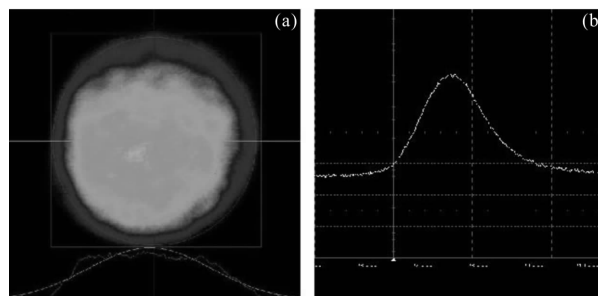


图 1 预处理激光光场分布及脉冲形状

Fig.1 Intensity distribution and pulse shape of the pretreatment laser

KDP 晶体为山东大学晶体所提供,加工成 40mm×40 mm 的样品,厚度 10 mm。整形滤波后的 355 nm 激光经透镜会聚于样品的被测位置,靶面光斑尺寸约 1.5 mm。通过损伤监测系统实时监测被测点的损伤情况,系统光路图如图 2 所示。

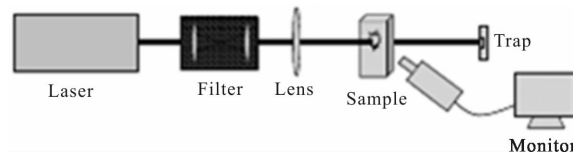


图 2 预处理实验光路图

Fig.2 Layout of pretreatment experiment

1.2 研究方法

为了对实验对象的损伤性能有一个较为直观的认识,在预处理实验开始前,首先采用 1 on 1 的方法测试了 KDP 元件的损伤概率,见图 3。图中,横坐标为激光辐照通量,纵坐标为该辐照通量下元件发生损伤的概率。图中散点为实验数据,直线是对测试数据的拟合。由图可知,当辐照通量低于 3.57 J/cm²时,元件不会发生损伤,3.57 J/cm²即为此样品的零概率损伤阈值;随着辐照通量的增加,发生损伤的概率越来越大,当辐照通量超过 10.65 J/cm²后,元件损伤概率为 100%。从不损伤到必然损伤,能量跨度超过 7 J/cm²。对样品的不同位置随机测试结果显示,损伤阈值高低与被测位置没有关系。由于不同类型、尺寸的缺陷具有不同的损伤阈值^[11],上述结果说明了晶体内部缺陷非常多样,同时缺陷在材料体内的分布具有很大的随机性。需要指出的是,由于 KDP 晶体缺陷的多样性及分布的随机性,1 on 1 测试结果不能排除晶体中存在损伤阈值低于 3.57 J/cm² 缺陷的可能性。

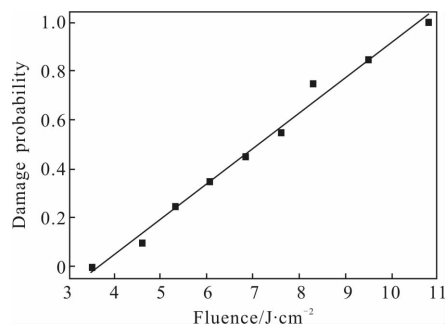


图 3 预处理之前 KDP 晶体的损伤概率

Fig.3 Damage probability of KDP sample before pretreatment

Negres^[10]等人的研究主要关注了激光预处理工艺中的三个关键参数： F_{max} 、 ΔF 和 N 。由于晶体材料的不均匀性，在对元件进行大面积激光预处理的时候，为了减少在预处理过程中发生的损伤，最大辐照通量要兼顾材料中损伤阈值最低的点，因此 F_{max} 是材料中最薄弱点的损伤阈值，但在了解元件损伤性能之前，无法预先确定 F_{max} 的值。另外，由图 3 可知，材料不同位置的初始损伤阈值不同，因此预处理参数中有必要包含“初始预处理激光通量(F_m)”，以保证预处理开始阶段不会有损伤发生。因此，实验研究的预处理工艺重点关注三个参数：初始辐照通量，能量增加台阶，以及每个能量的辐照发次，记为($F_m, \Delta F, N$)。在全面了解了元件的损伤性能之后，根据实验结果，再来确定 F_{max} 。

激光损伤测试中常用的 R on 1 测试本身就包含对材料的激光预处理过程，因此，笔者采用基于 R on 1 测试方法的随机多点测试，来研究优化激光预处理参数的可行性。由初始能量开始，以一定的能量台阶及发次对被测点进行预处理，逐渐增加辐照能量，直至该位置发生损伤为止，记录该处的损伤阈值。预处理过程中，用高倍率的显微镜实时对预处理点进行观测，损伤一旦发生，立即中止测试。变换 $F_m, \Delta F$ 及 N ，研究各参数对预处理效果的影响。实验中，为了较为客观地反应预处理参数对材料性能的影响，每组预处理参数都会对材料的多个不同位置进行测试，给出每组预处理参数对应的损伤概率。

2 预处理参数对预处理效果的影响

2.1 初始辐照通量

由于缺陷的分布是随机的，因此材料中不同位

置具有不同的损伤阈值，那么激光预处理效果与材料的初始状态，即 1 on 1 损伤阈值的高低，有没有关系呢？下面来比较初始通量对预处理效果的影响。由图 3 可知，元件在辐照通量低于 3.57 J/cm^2 时发生损伤的概率非常低，激光器输出能量最小间隔为 0.75 J/cm^2 ，由此确定一组处理参数的起始通量为 2.8 J/cm^2 ，作为对照，取另外一组的起始通量为 4.3 J/cm^2 ，能量间隔和辐照发次均为 1.5 J/cm^2 和 1。分别记为 A(2.8, 1.5, 1), B(4.3, 1.5, 1)。实验中，若第一发脉冲辐照后即发生损伤，则更换测试位置。事实上， 2.8 J/cm^2 的初始辐照通量下均未发生损伤，说明这一通量对所测样品来说是安全的，而 4.3 J/cm^2 辐照时偶有损伤发生。两组参数的预处理结果如图 4 所示。从拟合曲线可以读出每个通量对应的损伤概率，为了方便比较，仅考虑每组预处理参数对应的零概率损伤阈值。

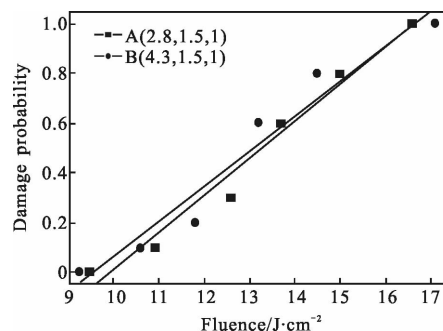


图 4 起始预处理通量对损伤性能的影响

Fig.4 Impact of the initial fluence on damage performance

经过激光预处理后，与原始状态相比，元件的损伤性能得到了大幅提升，说明在激光预处理的作用下，材料中那些阈值较低的缺陷被消除或改性，使之在低通量下不再发生损伤。B 组中那些初始损伤阈值较高的被测点，在经过相同能量台阶、相同辐照发次的激光预处理后，并不比未经挑选的 A 组表现好，二者之间的微小差异认为是由材料本身不均性导致的。图 4 的结果说明：在相同的 ΔF 及 N 作用下，初始损伤性能较低的区域阈值提升幅度不一定比高的部分差，通过激光预处理，元件能够达到的最高损伤阈值与其初始状态关系不大，但是必须保证起始激光通量低于缺陷的初始损伤阈值，以免在预处理开始时发生损伤。 2.8 J/cm^2 的辐照通量不会引起元件损伤，因此确定此通量为被测样品的初始辐照通量。

2.2 预处理能量台阶

固定预处理的起始能量及每个能量台阶的处理发次,改变能量间隔,研究预处理台阶变化对预处理效果的影响。实际预处理参数为 A(2.8,1.5,1),C(2.8,2.9,1),D(2.8,2.1,1),E(2.8,0.75,1)。每组预处理参数对应的损伤概率曲线如图 5 所示。

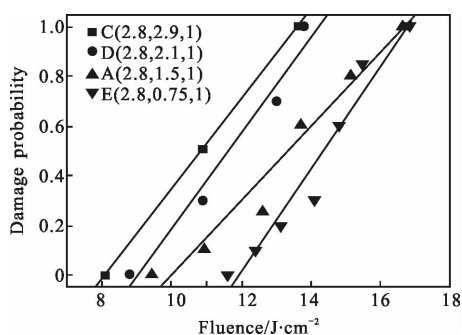


图 5 能量台阶增幅对损伤性能的影响

Fig.5 Impact of the energy steps on damage performance

比较图 5 结果可知,四组参数产生的预处理效果差异较大,四组预处理参数对应的零概率损伤阈值分别为:C-8.1 J/cm²,D-9 J/cm²,A-9.95 J/cm²,E-11.95 J/cm²。台阶最大的 C 组效果最差,台阶最小的 E 组效果最好。经 E 组处理后,元件的零损伤阈值比原始状态增加了两倍多。图 5 的结果说明,在初始辐照通量及辐照发次一定的情况下,预处理的能量台阶越小,对元件损伤性能提升效果越显著。

2.3 辐照发次

固定预处理的起始能量及能量台阶,改变每个能量的辐照发次,三组预处理参数编号为 E(2.8,0.75,1)、F(2.8,0.75,5)、G(2.8,0.75,10)。三组预处理参数的起始能量都是 2.8J/cm²,每个台阶的能量间隔约 0.75J/cm²,每个能量预处理发次分别为 1 发、5 发、10 发。预处理后元件损伤性能测试结果如图 6 所示。

随着辐照发次的增加,元件初始损伤阈值越来越高,E、F、G 三组对应的初始损伤阈值分别为 11.9 J/cm²,13.3 J/cm²,14.1 J/cm²,损伤概率曲线整体向横坐标的正向移动。增加每个能量台阶的辐照发次,预处理后元件的损伤阈值会随之提高,但随着辐照发次的增加,损伤阈值的增幅越来越小。参考文献[9]在预处理完成后,保持 F_{max} 继续辐照 1000 发,虽然元件没有出现疲劳效应,但元件损伤性能仅得到了小幅度提升。根据上述结果,随辐照发次的增加,损伤性

能提升幅度越来越缓,增加辐照发次,不仅增加了预处理环节所需时间,而且对激光器的使用寿命不利,无形中增加了预处理成本,因此,实际应用中,预处理发次宜根据实际情况控制在合适的值。

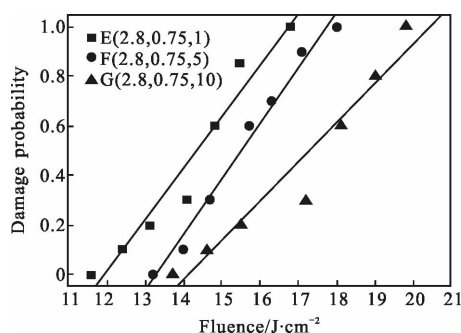


图 6 每个台阶辐照发次对损伤性能的影响

Fig.6 Impact of the shots of each step on damage performance

2.4 分析

由上面的实验结果,可以得出如下结论: F_{in} 仅保证在激光预处理开始时元件不会发生损伤,初始损伤阈值不同的缺陷,在相同的预处理参数下,阈值提升幅度没有明显差异;增加 ΔF 会提高预处理效率,但同时增加了元件的损伤风险;增加每个能量台阶的预处理发次 N 可以提升预处理效果,但提升幅度随 N 的增加而下降;引发晶体损伤的缺陷较为复杂,最佳的 F_{max} 应根据晶体自身情况而定。

预处理的作用是使元件中引发损伤的低阈值缺陷改性或消除,在辐照通量达到某一值之前不再发生损伤。分析图 5 中的结果,能量台阶越小能达到的损伤阈值越高,但预处理结果直到超过 8.1 J/cm² 之后才显现出区别。由于在考察每个预处理参数的预处理效果时,都是对样品不同区域进行随机多点测试,因此结果可以反应元件整体水平。图 5 结果说明,以小于 2.9 J/cm² 的任何一个能量台阶对晶体进行预处理都能将晶体损伤阈值提升至 7.7 J/cm²。由于 KDP 晶体材料损伤缺陷具有多样性,有理由认为缺陷的损伤阈值是连续分布的,可以推测,某一通量 Fa 的预处理激光作用于 KDP 晶体,不仅仅会使单一的某种缺陷改性,而是会使损伤阈值处于一定范围内的多种缺陷同时改性,使它们在辐照通量达到某一值之前不再发生损伤,即通量 Fa 作用的是处于某个阈值区间 $[Fa_{min} Fa_{max}]$ 的全部缺陷。反过来看,要消除某个阈值范围内的全部缺陷,可以通过设定不

同的 ΔF 实现,但存在一个最佳的 ΔF ,使得所用发次最少。图 5 中,在损伤测试通量超过 8.1 J/cm^2 后,由 ΔF 不同导致的差异开始显现, ΔF 越小,能够达到的损伤阈值越高。实验中, 0.75 J/cm^2 的台阶间隔,是激光器的最小能量间隔,可以推测,如果台阶继续减小,能够进一步提升晶体损伤阈值。

3 辐照参数的优化

要减少预处理的功耗和时间,关键问题是优化预处理方式。造成预处理时间过长的因素有两个,台阶的大小及每个台阶的辐照发次。根据上面的分析可知,要想通过一组固定的 $(F_{in}, \Delta F, N, F_{max})$ 参数,用较少的时间达到满意的预处理效果,是不太现实的。

通常的预处理工艺中,预处理能量增加幅度是一个定值,实验结果说明,KDP 晶体存在与预处理通量对应的损伤阈值区间 $[Fa_{min}, Fa_{max}]$,通量越低对应的阈值区间范围越大,随着通量的逐渐提高,区间范围也在缩小,而且每个阈值范围都对应一个最佳的 ΔF 。基于上述研究结果可以采用改变能量台阶的做法,在预处理通量较低时,采用大的能量台阶,随着通量的增加,逐渐减小能量台阶,达到提高预处理效率的目的。采用变台阶的预处理方法,首先应该确定每个能量台阶对应的安全通量,确保元件在预处理过程中不发生损伤。

安全通量的确定方法:安全通量=起始能量+台阶能量值×损伤前台阶数。一般来说,损伤发生前的上一发脉冲能量对于元件是安全的,但对于较小的能量台阶,比如 0.75 J/cm^2 ,为安全起见,安全通量与对应损伤阈值的差值应大于一个能量台阶。上述几个能量台阶对应安全通量的计算结果如表 1 所示。

表 1 安全通量的确定

Tab.1 Determination of safe fluence

Energy step/ $\text{J} \cdot \text{cm}^{-2}$	0 damage probability/ $\text{J} \cdot \text{cm}^{-2}$	Safe fluence/ $\text{J} \cdot \text{cm}^{-2}$
2.9	8.1	5.7
2.1	9	7
1.5	9.95	8.8
0.75	11.95	11.05

为了验证变台阶预处理方法的可行性,根据前面的实验结果及表 1,选定了两组预处理参数 H $(2.8, 2.9/0.75, 1)$ 和 I $(2.8, 2.9/1.5/0.75, 1)$,对元件多

个区域进行预处理,统计损伤概率。其中 H 参数的具体预处理能量设定为 $(2.8, 5.7, 6.45, 8.7, 9.45, 10.2, 10.95 \text{ (J/cm}^2) \dots\dots)$,其中第一个能量台阶为 2.9 J/cm^2 ,其余为 0.75 J/cm^2 ,I 参数的能量设定为 $(2.8, 5.7, 7.2, 7.95, 8.7, 9.45, 10.2, 10.95 \text{ (J/cm}^2) \dots\dots)$,其中第一个能量台阶为 3 J/cm^2 ,第二、三个能量台阶为 1.5 J/cm^2 ,其余为 0.75 J/cm^2 。结果如图 7 所示,图中同时给出了 E 组的实验数据作为参照。

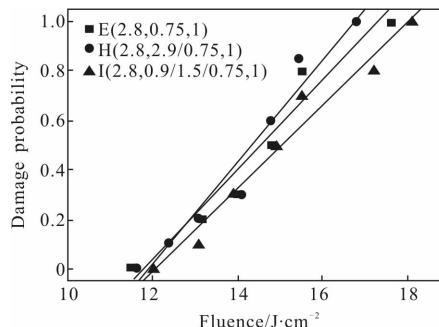


图 7 几种变台阶损伤性能的比较

Fig.7 Damage performance comparison of different variable energy steps protocol

E、H、I 三组对应的零概率损伤阈值非常接近,考虑到元件材料本身的不均匀性及激光能量的抖动因素,认为这三组激光预处理方案对样品损伤性能提升幅度是一样的。但从辐照脉冲数量来看,I 组比 E 组减少了四个,相当于节约了三分之一的预处理时间。实验结果说明,合理的改变预处理台阶,确实能够大幅减少对元件的总辐照发次。

上述结果是基于辐照发次 $N=1$ 的情况得到的,若想进一步提升预处理效果,可以增加每个通量的辐照发次。设 $N=10$,那么需要按照上面的流程,先得到 $N=10$ 时每个预处理台阶对应的安全通量,然后根据结果优化预处理参数。

4 结论

文中研究了不同激光预处理参数对 KDP 晶体材料损伤性能的影响。从实验结果发现,每个预处理通量实际上是作用于处于一定阈值区间内的缺陷,使其不再发生损伤,区间范围随激光通量(损伤阈值)的增加而减小;每个预处理能量台阶对应一个元件的安全通量;在材料损伤阈值的可提升范围之内,只要在损伤发生之前,用低于损伤阈值的能量对材料进行预处理,就能够避免损伤的发生。基于此,提

出了根据 KDP 晶体的实际情况,采用变化的预处理能量台阶,合理设计激光预处理参数,在获得相同预处理效果的同时,大幅减少了预处理所需的时间。由于目前 KDP 晶体的生长工艺是基本固定的,所含缺陷种类也是比较接近的,因此变台阶的预处理方法具有一定普适性。该方法不仅可以大幅节约预处理所需时间,而且降低了预处理装置的运行成本,对于大尺寸元件和工程应用具有积极的意义。

参考文献:

- [1] Xu Longbo, Peng Zhitao, Sun Zhihong, et al. Damage online inspection technology of driver terminal optical elements [J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2009, 38(4): 721-724. (in Chinese)
徐隆波, 彭志涛, 孙志红, 等. 驱动器终端光学组件损伤在线检测技术[J]. 红外与激光工程, 2009, 38(4): 721-724.
- [2] Hu Jianping, Ma Ping, Xu Qiao. Laser damage threshold measurement of the optical elements [J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2006, 35(2): 187-191. (in Chinese)
胡建平, 马平, 许乔. 光学元件的激光损伤阈值测量[J]. 红外与激光工程, 2006, 35(2): 187-191.
- [3] Wang Zhifang. Research on grinding and dislocations of wafer [J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2006, 35(S5): 188-191. (in Chinese)
王志芳. 晶片研磨速率及损伤层的研究[J]. 红外与激光工程, 2006, 35(S5): 188-191.
- [4] Shen Hua, Zhang Yingcong, Zhu Rihong. Mathematical model and structure parameters optimization of KDP crystal optical absorption coefficient measurement with interferometry method based on photothermal displacement principle [J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2013, 42(12): 3353-3357. (in Chinese)
沈华, 张英聪, 朱日宏. 基于光热位移原理的 KDP 晶体光吸收系数干涉测量方法的数学模型及结构参数优化[J]. 红外与激光工程, 2013, 42(12): 3353-3357.
- [5] Ni Kaizao, Liu Shijie, Wu Zhouling, et al. Measurement of bulk defects for KDP crystal billet with focused line scanning [J]. *Optics and Precision Engineering*, 2016, 24(12): 3020-3026. (in Chinese)
倪开灶, 刘世杰, 吴周令, 等. 激光聚焦线扫描法测量 KDP 晶体坯片的体缺陷. 光学精密工程, 2016, 24(12): 3020-3026
- [6] Guo Xiaoguang, Liu Ziyuan, Zheng Guilin, et al. Micro-mechanical behavior and machining property for tripler plane of KDP crystal [J]. *Optics and Precision Engineering*, 2016, 24(2): 398-405. (in Chinese)
郭晓光, 刘子源, 郑桂林, 等. KDP 晶体三倍频晶面微观光学行为及加工性能[J]. 光学精密工程, 2016, 24(2): 398-405.
- [7] Adams J J. Results of sub-nanosecond laser-conditioning of KD₂PO₄ crystals [C]//SPIE, 2007, 6403: 64031M-1.
- [8] DeMange P, Negres R A. A multidimensional investigation of laser conditioning in KDP and DKDP crystals [C]//SPIE, 2005, 5991: 599107.
- [9] Adams J J, Weiland T L, Stanley J R. Pulse length dependence of laser conditioning and bulk damage in KD₂PO₄ [C]//SPIE, 2004, 5647: 265-278.
- [10] Negres R A, DeMange P, Demos S G. Investigation of laser annealing parameters for optimal laser-damage performance in deuterated potassium dihydrogen phosphate [J]. *Optics Letters*, 2005, 30(20): 2766-2768.
- [11] Hu Guohang, Zhao Yuan'an, Sun Shaotao, et al. A thermal approach to model laser damage in KDP and DKDP crystals [J]. *Chin Phys Lett*, 2009, 26(9): 263-266.
- [12] DeMange P, Carr C W, Negres R A, et al. Multiwavelength investigation of laser-damage performance in potassium dihydrogen phosphate after laser annealing [J]. *Opt Lett*, 2005, 30(3): 221-223.
- [13] Lynn Sheehan, Mark Kozlowski, Frank Rainer. Large-area conditioning of optics for high-power laser systems [C]//SPIE, 1994, 2114: 559-568.
- [14] Zhi M Liao, R Roussel, J J Adams, et al. Defect population variability in deuterated potassium dihydrogen phosphate crystals [J]. *Optical Materials Express*, 2012, 2(11): 1612-1623.
- [15] Koldunov M F, Manenkov A A. Theory of laser-induced inclusion-initiated damage in optical materials [J]. *Opt Engineering*, 2013, 51(12): 1-11.
- [16] Shen Chao, Cheng Xiang'ai, Zhu Zhiwu, et al. Research progress in laser conditioning of optical materials [J]. *Laser and Optoelectronics Progress*, 2014, 51: 050004. (in Chinese)
沈超, 程湘爱, 朱志武, 等. 光学材料激光预处理技术机理研究现状[J]. 激光与光电子学进展, 2014, 51: 050004.
- [17] Paul DeMange, Christopher W Carr, Raluca A Negres, et al. Laser annealing characteristics of multiple bulk defect populations within DKDP crystals [J]. *J Appl Phys*, 2008, 104(10): 103103.
- [18] Paul DeMange, Raluca A Negres, Christopher W Carr, et al. Laser-induced defect reactions governing damage initiation in DKDP crystals [J]. *Opt Express*, 2006, 14(12): 5313-5328.