

角度对 KDP 晶体非线性光学参数的影响研究

王端良^{1,2} 李廷斌³ 王圣来^{1,2} 王继扬¹ 丁建旭⁴ 李伟东^{1,2} 刘 琳^{1,2} 黄萍萍^{1,2}

¹ 山东大学晶体材料国家重点实验室, 山东 济南 250100

² 山东大学功能晶体材料及器件教育部重点实验室, 山东 济南 250100

³ 泰山学院化学化工与材料学院, 山东 泰安 271000

⁴ 山东科技大学材料科学与工程学院, 山东 青岛 266590

摘要 采用传统溶液降温法生长了 KDP 晶体, 利用单光束 Z 扫描技术对不同取向的 KDP 晶体在 $\lambda=532$ nm 条件下的非线性折射和非线性吸收性质进行了研究; 在皮秒激光脉冲条件下, 以 KDP 晶体的应用为基础, 探讨角度与 KDP 晶体非线性光学参数的关系。在本实验条件下, KDP 晶体具有明显的非线性折射现象, 而无明显非线性吸收现象, 表现出明显的自聚焦效应。相关理论计算得到 KDP 晶体的非线性折射率 $\gamma(n_2)$ 和相应的三阶非线性极化率 $\chi_k^{(3)}$ 。结果表明: 样品的取向对 KDP 晶体的非线性光学参数 $\gamma(n_2)$, $\chi_k^{(3)}$ 的数值具有一定的影响; 在相位匹配方向(I类和II类)具有相对较小的非线性光学系数。

关键词 非线性光学; 非线性光学参数; Z 扫描; 非线性折射; 非线性吸收; 极化率

中图分类号 O436 文献标识码 A

doi: 10.3788/AOS201535.s219001

Investigation on Nonlinear Optical Parameters for Different Orientations of KDP Crystal

Wang Duanliang^{1,2} Li Tingbin³ Wang Shenlai^{1,2} Wang Jiyang¹ Ding Jianxu⁴
Li Weidong^{1,2} Liu Lin^{1,2} Huang Pingping^{1,2}

¹ State Key Laboratory of Crystal Materials, Shandong University, Jinan, Shandong 250100, China

² Key Laboratory of Functional Crystal Materials and Device, Ministry of Education, Shandong University, Jinan, Shandong 250100, China

³ Chemistry and Materials Science, Taishan University, Taian, Shandong 271000, China

⁴ College of Materials Science and Engineering, Shandong University of Science and Technology, Qingdao, Shandong 266590, China

Abstract KDP crystal is grown by the traditional temperature lowering method. From the perspective of orientations, nonlinear refraction and nonlinear absorption for KDP crystal are performed by the single Z-scan method at the wavelength of 532 nm. Based on the application of the KDP crystal, the relationship between nonlinear optical parameters and direction has been proved in the picosecond laser pulse. Under the experimental conditions, it is shown that nonlinear refraction can be clearly observed, but no obvious nonlinear absorption phenomena. Self-focusing effect has been discovered in KDP crystal. Then, nonlinear refractive index $\gamma(n_2)$ and nonlinear susceptibility $\chi_k^{(3)}$ are calculated through the relative theory. The results show that the nonlinear optical parameters $\gamma(n_2)$ and $\chi_k^{(3)}$ for KDP crystals can be affected by orientations, and the values are small for phase-matching directions (I and II types).

收稿日期: 2015-01-03; 收到修改稿日期: 2015-02-26

基金项目: 国家自然科学基金(51321091)

作者简介: 王端良(1986—), 男, 博士研究生, 主要从事 KDP/DKDP 晶体方面的研究。

E-mail: wdliang012@163.com

导师简介: 王圣来(1967—), 男, 博士, 教授, 主要从事 KDP/DKDP 晶体方面的研究。

E-mail: slwang67@sdu.edu.cn (通信联系人)

Key words nonlinear optics; nonlinear optical parameters; Z-scan; nonlinear refraction; nonlinear absorption; susceptibility

OCIS codes 190.3270; 190.4400; 190.5940

1 引 言

大尺寸磷酸二氢钾(KDP)是目前唯一可应用于激光约束核聚变(ICF)系统中的非线性光学晶体^[1]。近年来随着高功率激光系统的应用,人们对KDP晶体性能的研究也越来越深入^[2-3]。在强激光条件下,激光光束与晶体相互作用的关系成为研究的热点;激光束与晶体之间发生能量交换,产生光电、光热和非线性光学效应,引起晶体的光学参数和光场强度的变化,甚至可能导致晶体损伤。激光诱导晶体激发态非线性效应主要体现在非线性吸收和非线性折射。在晶体应用过程中,如果产生非线性吸收,一方面吸收能量使晶体受热,导致晶体损伤,降低激光输出能量密度,另一方面可能引起多光子电离形成等离子体,在晶体内部产生较强应力场^[4]。同时,如果激光具有足够的强度将使晶体的折射率发生明显的变化,产生自聚焦或自散焦效应;这种晶体折射率的变化将导致光束畸变,影响光束在晶体中的传播^[5]。因此探讨KDP晶体非线性光学效应,对于晶体在强激光系统中应用具有十分重要的意义和研究价值。

非线性折射率 n_2 和非线性吸收系数 β 是研究材料非线性光学效应的2个重要参数。其测量方法有非线性干涉法、光束畸变法、简并三波/四波混频以及Z扫描技术^[6-7]。与其他方法相比,Z扫描技术不仅具有简单、有效、灵敏度高的特点,而且可以直接得到材料非线性折射率(包括数值和符号)以及非线性吸收系数。

本文利用Z扫描技术测试了KDP晶体在皮秒脉冲激光波长 $\lambda=532\text{ nm}$ 条件下的非线性折射及非线性吸收,探索了晶体样品取向对晶体非线性光学参数的影响。

2 研究内容

2.1 晶体生长

本文采用“传统降温生长法”生长得到KDP晶体,生长溶液所用溶质为德国Merck公司生产的高纯 KH_2PO_4 ,溶剂为去离子水,配置 $55\text{ }^\circ\text{C}$ 的饱和溶液,经 $0.22\text{ }\mu\text{m}$ 的滤膜过滤,升温至饱和点以上过热,以提高溶液的稳定性,充分过热,自然降温接近饱和点,将Z向籽晶放入溶液,通过FP21(控温精度为 $\pm 0.02\text{ }^\circ\text{C}$)控制溶液温度,籽晶采用“正-反-正”方式旋转,转速为 77 r/min ,按照设定程序实现晶体生长。

2.2 样品制备及Z扫描原理

从生长质量良好的同一块KDP晶体获得所需样品,实验所用样品按照图1加工:一种为样品按照KDP I类相位匹配方向, $\varphi=45^\circ$, $\theta=0^\circ, 41^\circ, 59^\circ, 90^\circ$,如图1中A方式所示;另一种为样品取向分别与(001)面成 $\varphi=0^\circ$, $\theta=0^\circ, 41^\circ, 59^\circ, 90^\circ$ 角,如图1中a方式所示。样品厚度均为 2 mm ,将所得样品通光面抛光至光学平面用于Z扫描实验。

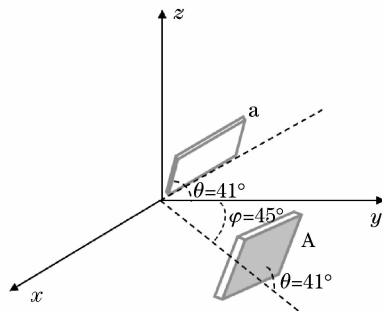


图1 KDP晶体样品加工示意图

Fig. 1 Cutting schematic diagram of specimens for KDP crystal

图2为Z扫描技术的原理示意图,其原理为激光束经分束镜被分成2束光,一束由 D_1 探测作为入射光强 I_1 ,另一束由 D_2 探测经聚焦透镜入射到待测样品后的光强 I_2 ;实验中得到相对光强 I_2/I_1 与样品位置 z 的关系,对所得数据进行进一步的处理,就可以得到所测样品非线性折射(闭孔)和非线性吸收(开孔)的相关信息。

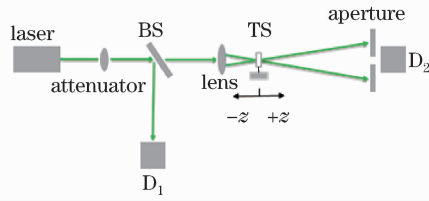


图 2 Z 扫描实验装置原理图

Fig. 2 Schematic diagram of Z-scan experimental set-up

在实验过程中,测试所用激光光源为锁模 Nd:YAG 皮秒激光器,波长 $\lambda = 532 \text{ nm}$,束腰半径 $\omega_0 = 25 \text{ }\mu\text{m}$,脉宽为 20 ps ,线性吸收系数 $\alpha_{\text{KDP}} = 1.2\% \text{ cm}^{-1}$ ^[8],线性折射率 n_0 近似为 1.49 ^[9],透射焦距为 25 cm , $I_0 = 8.12 \text{ GW/cm}^2$ 。不同取向 KDP 样品由平移台控制在 $-z$ 与 $+z$ 之间移动,从而得到相对光强 I_2/I_1 与样品位置 z 的关系。本次实验分别在开孔和闭孔条件下,探索了不同取向样品的非线性吸收和非线性折射性质。

3 结果与讨论

3.1 KDP 晶体开孔 Z 扫描性质研究

图 3 为按 a 方式加工 $(\varphi, \theta) = (0^\circ, 0^\circ)$ 样品的开孔 Z 扫描归一化透射率曲线,图中实线为测试结果,红色线为拟合曲线。从图中可以看出,样品的开孔曲线近似为水平直线,这意味着在此实验条件下没有明显的非线性吸收现象。其他不同取向样品的开孔 Z 扫描归一化透射率曲线与图 3 所示类似,均没有非线性吸收的产生。

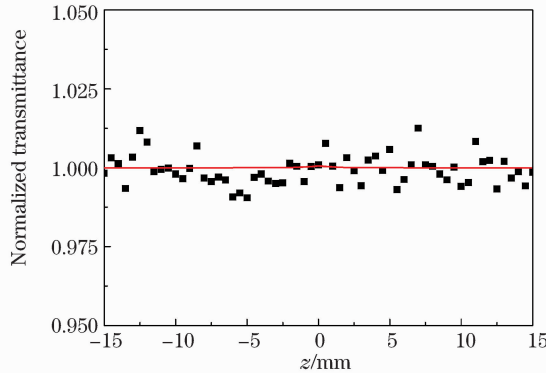


图 3 $\lambda = 532 \text{ nm}$ 时, $\text{KDP}(\varphi = 0^\circ, \theta = 0^\circ)$ 晶体开孔归一化透射率曲线

Fig. 3 Normalized transmittance curve of $\text{KDP}(\varphi = 0^\circ, \theta = 0^\circ)$ open-aperture Z-scan at $\lambda = 532 \text{ nm}$

3.2 $\text{KDP}(\varphi = 45^\circ, \theta = 0^\circ, 41^\circ, 59^\circ, 90^\circ)$ 晶体闭孔 Z 扫描性质研究

闭孔 Z 扫描对非线性折射和非线性吸收是非常敏感的,当材料非线性吸收较小或者不存在时,得到闭孔 Z 扫描曲线,可以计算非线性折射率。由 KDP 晶体开孔 Z 扫描结果可知,晶体无明显非线性吸收。闭孔 Z 扫描即可得到 $\text{KDP}(\varphi = 45^\circ)$ 晶体的非线性归一化透射率曲线,实验结果如图 4 中虚线所示。当非线性吸收可以忽略时,归一化透射率为^[9-10]

$$T(z) = 1 + \frac{4\Delta\varphi_0(t)x}{(x^2 + 9)(x^2 + 1)}, \quad (1)$$

式中 $\Delta\varphi_0(t)$ 为光透过样品的相位变化, $x = z/z_0 = z\lambda/\pi\omega_0^2$ 。

图 4 中红色实线即为拟合曲线,可以看出拟合曲线与测试结果基本吻合。由图 4 得到 KDP 晶体样品 $(\varphi = 45^\circ)$ 归一化透射率曲线均表现为先谷后峰的特点,这表明 KDP 晶体的非线性折射率 $\gamma(n_2)$ 为正值,具有自聚焦光效应;此外,不同取向样品之间的非线性归一化折射率曲线具有一定的差异性,主要体现在曲线的“峰-谷”差,“峰-谷”差的大小决定非线性折射率的大小。通过曲线拟合可以得到相应的 $\Delta\varphi_0(t)$ 的值^[4],

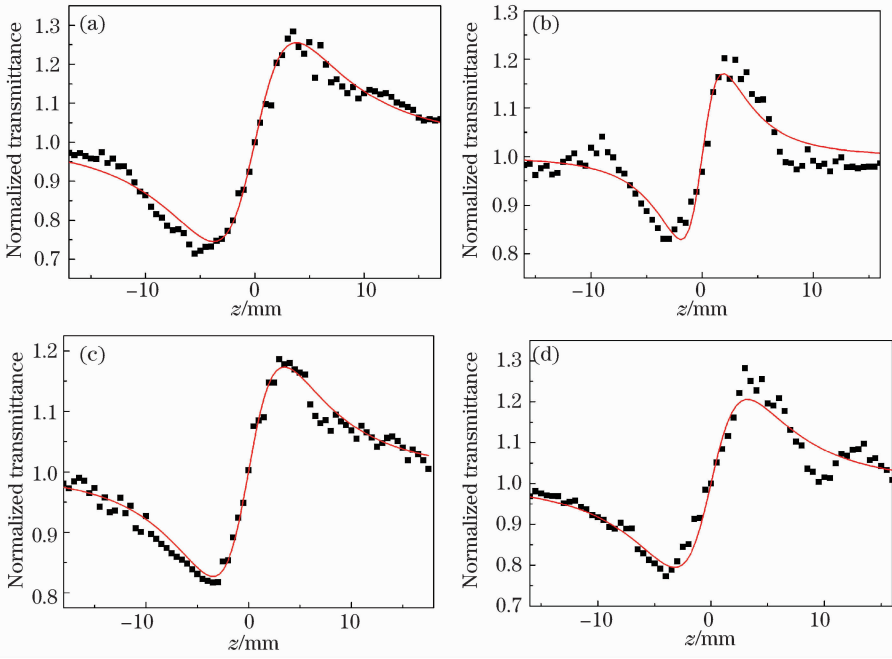


图 4 $\lambda = 532 \text{ nm}$ 时, KDP 晶体闭孔归一化透射率曲线。(a) ($\varphi=45^\circ, \theta=0^\circ$);
(b) ($\varphi=45^\circ, \theta=41^\circ$); (c) ($\varphi=45^\circ, \theta=59^\circ$); (d) ($\varphi=45^\circ, \theta=90^\circ$)

Fig. 4 Normalized transmittance curves of KDP crystal closed-aperture Z-scan at $\lambda = 532 \text{ nm}$.
(a) ($\varphi=45^\circ, \theta=0^\circ$); (b) ($\varphi=45^\circ, \theta=41^\circ$); (c) ($\varphi=45^\circ, \theta=59^\circ$); (d) ($\varphi=45^\circ, \theta=90^\circ$)

$$\Delta\varphi_0(t) = \frac{2\pi}{\lambda} I_0(t) L_{\text{eff}} \gamma, \quad (2)$$

$$L_{\text{eff}} = [1 - \exp(-\alpha L)] / \alpha, \quad (3)$$

式中 $I_0(t)$ 为功率密度, α 为线性吸收系数, L 为样品厚度。利用(2)式和(3)式即可以计算出非线性折射率 γ 的值, 然后利用 γ (m^2/W) 可以计算 n_2 (esu) 和 $\chi_k^{(3)}$ [10-12]:

$$n_2 (\text{esu}) = cn_0 \gamma / 40\pi, \quad (4)$$

$$n_2 (\text{esu}) = \frac{3\pi}{n_0} \chi_k^{(3)}, \quad (5)$$

式中 c 为光在真空中的传播速度。KDP 晶体样品($\varphi=45^\circ$)的非线性光学参数计算结果见表 1: 可以看出, 晶体非线性光学参数 $\gamma(n_2)$ 、 $\chi_k^{(3)}$ 的大小与样品的取向有关, I 类取向 KDP($\varphi=45^\circ, \theta=41^\circ$) 具有相对较小的值。因此, 相同实验条件下, KDP($\varphi=45^\circ, \theta=41^\circ$) 样品中将引起较小的自聚焦效应。

表 1 $\lambda=532 \text{ nm}$ 时, KDP($\varphi=45^\circ$) 晶体的非线性光学参数

Table 1 Measured results of nonlinear optical parameters of KDP ($\varphi=45^\circ$) at $\lambda=532 \text{ nm}$

Orientation θ	$\gamma / (10^{-19} \text{ m}^2/\text{W})$	$n_2 / (10^{-12} \text{ esu})$	$\chi_k^{(3)} / (10^{-13} \text{ esu})$
0°	6.56	2.33	3.69
41°	4.39	1.56	2.47
59°	4.45	1.58	2.50
90°	5.28	1.88	2.97

3.3 KDP($\varphi=0^\circ, \theta=0^\circ, 41^\circ, 59^\circ, 90^\circ$) 晶体闭孔 Z 扫描性质研究

同样测试了闭孔 Z 扫描 KDP($\varphi=0^\circ$) 晶体非线性归一化透射率曲线, 见图 5, 虚线为测试结果, 红色实线为拟合结果。当 $\varphi=0^\circ$ 时, KDP 晶体闭孔 Z 扫描曲线同样为先谷后峰的趋势, 表明样品的非线性折射率大于零。

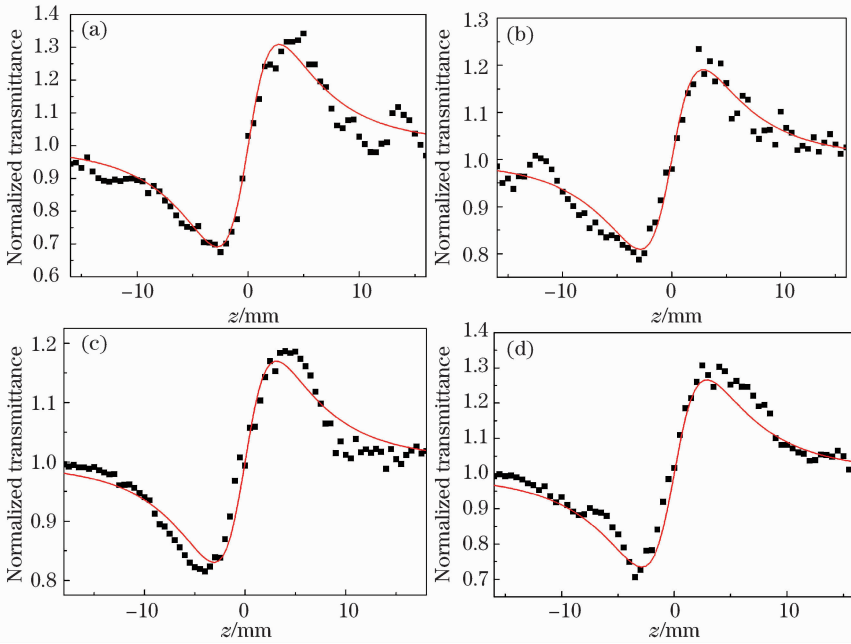


图 5 $\lambda = 532 \text{ nm}$ 时, KDP 晶体闭孔归一化透射率曲线。(a) $(\varphi=0^\circ, \theta=0^\circ)$;
(b) $(\varphi=0^\circ, \theta=41^\circ)$; (c) $(\varphi=0^\circ, \theta=59^\circ)$; (d) $(\varphi=0^\circ, \theta=90^\circ)$

Fig. 5 Normalized transmittance curves of KDP crystal closed-aperture Z-scan at $\lambda = 532 \text{ nm}$.

(a) $(\varphi=0^\circ, \theta=0^\circ)$; (b) $(\varphi=0^\circ, \theta=41^\circ)$; (c) $(\varphi=0^\circ, \theta=59^\circ)$; (d) $(\varphi=0^\circ, \theta=90^\circ)$

$\varphi=0^\circ$ 的 KDP 晶体样品相应的非线性光学参数计算结果见表 2, 与 KDP($\varphi=45^\circ$) 的样品不同, 在 $\theta=59^\circ$ 时具有较小的非线性光学参数, 即 II 类相位匹配方向 KDP ($\varphi=0^\circ, \theta=59^\circ$) 样品具有相对较小的值。对比不同取向 KDP(φ, θ) 样品的非线性光学参数, 可以得到 KDP(φ, θ) 样品在相位匹配方向具有相对较小的值, 即在 I 类和 II 类相位匹配方向, 表现出较小的自聚焦效应。

表 2 $\lambda=532 \text{ nm}$ 时, KDP($\varphi=0^\circ$) 晶体的非线性光学参数

Table 2 Measured results of nonlinear optical parameters of KDP ($\varphi=0^\circ$) at $\lambda=532 \text{ nm}$

Orientation θ	$\gamma/(10^{-19} \text{ m}^2/\text{W})$	$n_2(10^{-12} \text{ esu})$	$\chi_k^{(3)}(10^{-13} \text{ esu})$
0°	7.95	2.83	4.47
41°	4.9	1.74	3.04
59°	4.36	1.55	2.45
90°	6.83	2.43	3.84

3.4 讨论

在本文的实验条件下, KDP(φ, θ) 晶体无明显的非线性吸收, 均表现出明显的非线性折射现象, 由归一化曲线确认其非线性折射率 $\gamma(n_2)$ 为正值, 即具有自聚焦效应, 这意味着强激光在其内部传播时, KDP 晶体类似于正透镜, 对光束起到会聚作用, 从而引起光束中心功率密度增大, 则光束中心位置容易引起晶体的损伤; 同时, 强激光自感应引起晶体非线性折射率变化, 对光束相位和强度分布产生影响, 甚至引起光束质量退化 (如畸变、分裂、自调制等)。

对比不同取向 KDP(φ, θ) 晶体的非线性折射计算结果, 可以看出, 当激光光束引起晶体非线性折射效应时, 这种效应的强弱与样品的取向有关, 当 $\varphi=45^\circ$ 或者 0° 时, θ 值接近于相位匹配角度时, 非线性折射的值较小, 即 KDP 晶体 I 类($\varphi=45^\circ, \theta=41^\circ$) 或者 II 类($\varphi=0^\circ, \theta=59^\circ$) 样品取向, 具有相对较弱的自聚焦效应; 当远离相位匹配方向, φ 值相同时, $\theta=0^\circ$ 的样品非线性光学参数大于其他 θ 值样品; θ 值一定时, $\varphi=0^\circ$ 样品数值大于 $\varphi=45^\circ$ 样品; 特别是, 可以得到开关晶体 Z 向 KDP($\varphi=0^\circ, \theta=0^\circ$) 样品, 非线性光学参数大于其他取向样品。晶体非线性光学参数随 φ 与 θ 值的改变而变化, 这可能与晶体的结构、分子取向有关。通过分析可以看出, 在应用过程中相位匹配方向 (I 类或者 II 类) 样品对光束相位及强度影响较弱, 更利于保持光束的质量,

而 Z 向样品易产生较强的自聚焦效应影响。

4 结 论

利用 Z 扫描技术,对 KDP(φ, θ)晶体在皮秒激光波长 $\lambda=532$ nm 下的非线性折射和非线性吸收性质进行了测试。KDP(φ, θ)晶体无明显非线性吸收,但表现出明显的非线性折射现象。其非线性折射率均为正值,即高功率激光系统中具有自聚焦效应。计算结果表明:KDP(φ, θ)晶体的非线性折射率 $n_2(\gamma)$ 和非线性极化率 $\chi_k^{(3)}$ 的大小与晶体样品方向有关,其非线性折射率 n_2 为 1.55×10^{-12} esu $\sim 2.83 \times 10^{-12}$ esu;相位匹配方向(I类或者II类)KDP(φ, θ)晶体具有相对较小非线性光学参数;Z向样品数值明显大于其他方向。在实际应用过程中,相位匹配方向样品引起较小的自聚焦效应,利于保持光束的质量,而Z向样品容易影响光束的质量。

参 考 文 献

- 1 Paisner J, Manes K. The National Ignition Facility: An Overview Energy and Technology Review[R]. California: University of California, UCRL-52000-94-12, 1994.
- 2 De Yoreo J J, Burnham A K, Whitman P K. Developing KH_2PO_4 and KD_2PO_4 crystals for the world's most power laser[J]. International Materials Reviews, 2002, 47(3): 113-152.
- 3 Salo V I, Voronov A P, Tkachenko V F, *et al.*. Growth of KDP single crystal blocks in defined crystallographic direction[J]. Journal of Crystal Growth, 2011, 337(1): 13? 19.
- 4 Li Chengfu, Zhang Meizhen, Guo Juping. Research on laser-induced damage in KDP crystals at different wavelengths [J]. Chinese J Lasers, 1985, 12(1): 54-56.
李成富, 张梅珍, 郭聚平. 不同激光波长对 KDP 晶体损伤的研究 [J]. 中国激光, 1985, 12(1): 54-56.
- 5 Feng Guoying, Zhou Shouhuan. Discussion of comprehensive evaluation on laser beam quality [J]. Chinese J Laser, 2009, 36(7): 1643-1653.
冯国英, 周寿桓. 激光光束质量综合评价的探讨 [J]. 中国激光, 2009, 36(7): 1643-1653.
- 6 Barker C E, Sacks R A, Van Wontterghem B M, *et al.*. Transverse stimulated Raman scattering in KDP[C]. SPIE, 1995, 2633: 501-505.
- 7 Mansoor Sheik-Bahae, Said A A, Wei Taihui, *et al.*. Sensitive measurement of optical nonlinearities using a single beam[J]. Quantum Electron, IEEE Jou, 1990, 26(4): 760-769.
- 8 Zhuang Xinxin, Tan Qiguang, Lin Xiang, *et al.*. Impurities analysis and optical properties of KDP crystals [J]. High Power Laser and Particle Beams, 2001, 13(4): 389-392.
庄欣欣, 谭奇光, 林翔, 等. KDP 晶体的杂质与光学性能分析 [J]. 强激光与粒子束, 2001, 13(4): 389-392.
- 9 Zhu Shengjun, Wang Shenglai, Liu Lin, *et al.*. Refractive index homogeneity of large scale potassium dihydrogen phosphate crystal[J]. Acta Physica Sinica, 2014, 63(10): 107701.
朱胜军, 王圣来, 刘琳, 等. 大尺寸磷酸二氢钾晶体的折射率均一性研究[J]. 物理学报, 2014, 63(10): 107701.
- 10 Zhao Lilong, Wu Feng, Tian Wei, *et al.*. Optical nonlinear properties of CdSeS quantum dot [J]. Acta Optica Sinica, 2009, 29(5): 1332-1335.
赵立龙, 吴峰, 田玮, 等. CdSeS 量子点的光学非线性特性[J]. 光学学报, 2009, 29(5): 1332-1335.
- 11 Sheik-Bahae M, Said A A, Wei T H, *et al.*. Sensitive measurement of optical nonlinearities using a single beam[J]. Quantum Electronics, IEEE Jou, 1990, 26(4): 760-769.
- 12 R A Ganeev, I A Kulagin, A I Ryasnyansky, *et al.*. Characterization of nonlinear optical parameters of KDP, LiNbO_3 and BBO crystals [J]. Optics Communications, 2004, 229(1-6): 403-412.

栏目编辑: 史敏