

# 多晶金刚石窗口材料的双光子激发

张 奔, 刘慎业, 刘祥明, 彭晓世

中国工程物理研究院激光聚变研究中心, 四川 绵阳 621900

**摘要** 在超短脉冲抽运光作用下, 利用双光子激发研究了多晶金刚石非线性吸收和非线性折射的动力学演化过程。在非线形吸收动力学实验中, 观察到了金刚石样品中被激发载流子的两个不同的复合过程, 时间尺度分别在百皮秒量级和纳秒量级, 精确得到了不同抽运光能量作用时两个过程各自的时间常数。在非线形折射动力学实验中, 观察到了金刚石样品中由非简并双光子吸收过程所引起的正的非线形折射率变化, 得到了样品的三阶非线形系数。

**关键词** 非线形光学; 双光子吸收; 飞秒抽运探测; 多晶金刚石; 相位物体

**中图分类号** O437 **文献标识码** A

**doi:** 10.3788/AOS201737.0419001

## Two-Photon Excitation of Polycrystalline Diamond Window Material

Zhang Ben, Liu Shenye, Liu Xiangming, Peng Xiaoshi

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

**Abstract** Under the action of ultrashort-pulse pump light, the dynamical evolution processes of nonlinear absorption and nonlinear refraction of polycrystalline diamond are studied by using two-photon excitation. In the dynamic experiment of nonlinear absorption, two different recombining processes of activated carriers are observed in the diamond sample, whose time scales are hundreds of picosecond scale and nanosecond scale, respectively, and the time constant of each process under the action of pump light with different energies is obtained accurately. In the dynamic experiment of nonlinear refraction, the positive change of nonlinear refractive index induced by the nondegenerate two-photon absorption process is observed and the third order nonlinear coefficient of the sample is obtained.

**Key words** nonlinear optics; two-photon absorption; femtosecond pump-probe; polycrystalline diamond; phase object

**OCIS codes** 190.7110; 320.7130

## 1 引 言

在惯性约束聚变(ICF)的诊断中, 金刚石由于具有高硬度<sup>[1]</sup>和高宽谱透过率而常被选作光学诊断设备的窗口材料。在 ICF 实验中, 高能脉冲驱动激光以及激光与等离子体相互作用产生的 X 射线会引起窗口材料的非线性效应, 从而改变材料的透过率和折射率等光学性质, 降低诊断精度<sup>[2]</sup>。因此, 对强脉冲激光在金刚石材料中产生的非线性光学效应进行研究很有必要。目前已有对不同形式金刚石的非线性光学现象的研究结果发表, 比如金刚石单晶、纳米薄膜金刚石等, 这些研究主要是针对材料中光激发载流子寿命的研究<sup>[3-5]</sup>以及利用光致瞬时光栅技术研究材料中载流子的扩散并测量扩散系数<sup>[6-7]</sup>。化学气相沉积(CVD)法<sup>[8]</sup>制备的光学级多晶金刚石成本相对较低, 更适合作为 ICF 诊断的窗口材料, 而目前对 CVD 光学级多晶金刚石的非线性光学性质的研究鲜有报道。

关于材料非线性光学性质的理论研究非常广泛<sup>[9]</sup>, 实验上常采用抽运探测方法。近年来由于相位物体

**收稿日期:** 2016-11-16; **收到修改稿日期:** 2016-12-27

**基金项目:** 国家自然科学基金(11575166)

**作者简介:** 张 奔(1993—), 男, 硕士研究生, 主要从事超快非线性光学方面的研究。E-mail: ben\_ustc@163.com

**导师简介:** 刘慎业(1962—), 男, 博士, 研究员, 主要从事激光聚变诊断方面的研究。E-mail: Lsye1029@163.com

(通信联系人)

的引入,材料非线性折射率的测量精度大为提高<sup>[10]</sup>。基于相位物体的皮秒抽运探测已被应用于多种材料的非线性吸收和折射的研究中<sup>[11-12]</sup>。本文基于相位物体的飞秒抽运探测平台,通过双光子激发研究了 CVD 光学级多晶金刚石的载流子动力学和非线性折射率。研究结果可为激光聚变诊断设备的研制和窗口材料的选取提供参考。

## 2 实验安排

实验使用 Yb:KGW 飞秒激光器,输出波长为 1030 nm,脉冲时间为 190 fs,重复频率为 20 Hz。如图 1 所示,光束被分束片 BS1 分为两束,分别作为抽运光和探测光。抽运光经过光参量放大系统,波长 1030 nm 的基频光首先被转换成波长为 515 nm 的倍频光,然后通过光参量振荡器(OPO)转换为 702 nm 波长的光脉冲,再次经过倍频器件得到 351 nm 波长的光脉冲,抽运光经透镜 L2 聚焦后入射到样品上。探测光通过偏硼酸钡(BBO)倍频晶体将波长转换为 515 nm,经衰减片进行能量衰减(以确保探测光本身不会在样品中产生非线性效应)后,再经延迟线分为两束,一束作为监测光,由能量计 D3 监测;另一束经过聚焦后与抽运光以小角度(约 5°)同时入射样品的同一位置,抽运光聚焦直径为 220  $\mu\text{m}$ ,探测光聚焦直径为 30  $\mu\text{m}$ 。经过样品的探测光分束后分别由能量计 D1 和 D2 进行测量,其中 D2 之前放置一个小孔光阑。这样的装置安排可以同时测量开孔和闭孔数据。通过扫描延迟线即可实现对样品中相关过程的动力学测量。

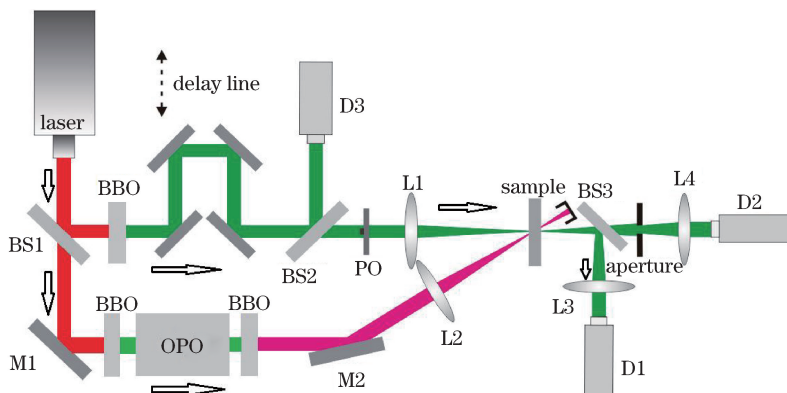


图 1 实验光路图

Fig. 1 Schematic diagram of experimental light path

探测光路中加入了一片相位物体(PO)以提高测量精度。相位物体是由玻璃板镀上透明薄膜(所镀薄膜半径为 0.5 mm)制成的,其作用是改变探测光束中心部分的相位,使光束的中心部分与其余部分发生干涉,改变光场分布,从而影响小孔之后 D2 探测到的光强。实验所用样品为 Element Six 公司生产的 CVD 光学级多晶金刚石,尺寸为 33 mm $\times$ 12 mm $\times$ 0.7 mm。所有实验均在室温下进行。

## 3 理论分析

金刚石是由正四面体型的碳—碳键组成的晶体,其晶胞为面心立方结构,具有 5.5 eV 的禁带宽度。实验中所使用的抽运光和探测光光子能量分别为 3.5 eV 和 2.4 eV。如果不存在抽运光,探测光在经过金刚石样品时光子能量低于金刚石禁带宽度且强度不足以引起非线性效应,因此只存在线性的反射和吸收。经测量,探测光在金刚石样品中的线性透过率为 70%,这是样品表面的反射和内部的散射造成的。如果探测光与抽运光同时通过样品的同一位置,由于抽运光光强足够大,光子数密度较大,会发生以下两种双光子吸收过程,如图 2 所示。第一,一个抽运光光子和一个探测光光子被同时吸收,将金刚石样品价带中的一个电子激发至导带,形成一个自由载流子,这一过程称为非简并双光子吸收(ND-TPA);第二,两个抽运光光子同时被吸收,将金刚石样品价带中的一个电子激发至导带,形成一个自由载流子,这一过程称为简并双光子吸收(TPA)。可以通过调节光路中的延迟线从而改变抽运光和探测光的相对时间延迟来实现对这些非线性动力学过程的测量。

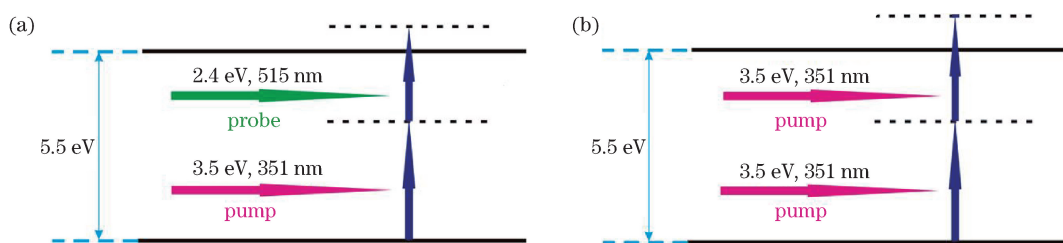


图 2 (a)非简并双光子吸收;(b)简并双光子吸收

Fig. 2 (a) Nondegenerate two-photon absorption; (b) degenerate two-photon absorption

对于 ND-TPA 过程,探测光光子被吸收,直接引起了探测光光强的下降。双光子吸收的时间尺度非常小,在百飞秒尺度上可认为是瞬时过程,因此探测光光强的下降只有在抽运光脉冲和探测光脉冲重合时才会发生,即在相对时间延迟零点附近。对于 TPA 过程,抽运光激发了样品中的自由载流子,这些自由载流子也会与探测光光子发生相互作用(如散射),也会引起探测光光强的下降。由于载流子的恢复时间在百皮秒至纳秒量级,因此在百飞秒分辨率的实验中可以观测到这一恢复过程并精确测量其恢复时间。

上述过程都是非线性吸收过程,抽运光在金刚石样品中作用的同时还会伴随着样品对探测光的非线性折射。主要有两种过程:其一是束缚电子所引起的非线性折射,这是一种三阶非线性过程;其二是自由载流子所引起的非线性折射,可以用五阶非线性过程来解释。可通过基于相位物体的抽运探测方法对金刚石样品中产生的非线性折射现象进行测量,闭孔实验样品归一化透过率的变化可反映非线性折射率的变化,详细的理论分析和数值计算见参考文献[10],这里不再赘述。

#### 4 实验结果

实验结果如图 3 所示。图 3(a)给出了开孔的非线性吸收实验结果,即开孔时样品的归一化透过率随抽运光与探测光相对延迟时间的变化情况,抽运光脉冲能量密度为  $4.5 \text{ mJ/cm}^2$ 。从图中可以看到非线性吸收动力学的几个过程。首先是 ND-TPA 过程,如前所述,这一过程只发生在相对延迟时间为  $\pm 0.3 \text{ ps}$  的区域内(考虑到光路对初始光脉冲的展宽效应)。随后可见载流子的恢复过程,包括快恢复和慢恢复两个过程。两个过程中载流子的复合均满足指数衰减规律,因此可通过指数拟合得到两个过程的时间常数分别为  $\tau_1 = (85 \pm 4) \text{ ps}$  和  $\tau_2 = (2324 \pm 38) \text{ ps}$ ,该结果与文献[3]中对 CVD 金刚石的相关报道相符。实验中还测量了不同抽运光能量情况下样品载流子的快过程和慢过程的恢复时间常数,结果见表 1。从中可明显看出金刚石载流子恢复的百皮秒量级快过程和纳秒量级慢过程。

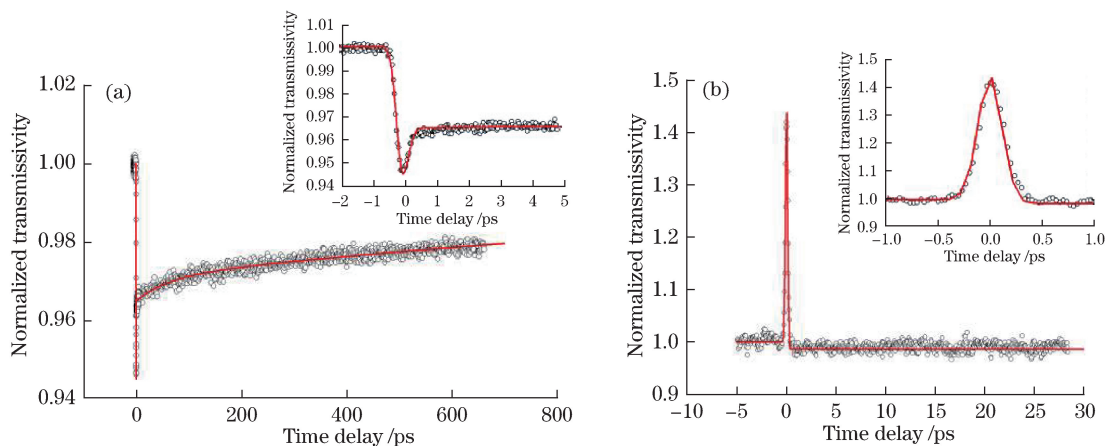


图 3 (a)开孔非线性吸收实验结果;(b)闭孔非线性折射实验结果

Fig. 3 (a) Open-aperture experiment result of nonlinear absorption;

(b) closed-aperture experiment result of nonlinear refraction

表 1 不同抽运光能量下自由载流子的寿命

Table 1 Free-carrier lifetimes with different pump pulse energies

Pump pulse energy density / (mJ/cm <sup>2</sup> )	$\tau_1$ / ps	$\tau_2$ / ps
4.5	85 ± 4	2324 ± 38
10.1	134 ± 10	963 ± 29
14.6	76 ± 3	1548 ± 24

图 3(b)给出了闭孔的非线性折射实验结果,即闭孔时样品的归一化透过率随抽运光与探测光相对延迟时间的变化情况,所采用的抽运光脉冲能量密度为 0.6 mJ/cm<sup>2</sup>。从图 3(b)可以看到,样品中在时间延迟零点附近出现了正的非线性折射率变化。与开孔非线性吸收的实验结果进行对比可以看出,这一正的非线性折射率变化是 ND-TPA 过程引起的。综合这一抽运光能量下的闭孔和开孔数据,通过数值分析可以得到多晶金刚石样品的三阶非线性系数  $n_2 = (1.4 \pm 0.2) \times 10^{-15} \text{ cm}^2/\text{W}$ ,该实验值与文献[13]中给出的对应数值  $1.3 \times 10^{-15} \text{ cm}^2/\text{W}$ 相符。

为给激光聚变诊断设备的研制和窗口材料的选取提供更深入的参考,对另一片多晶金刚石样品进行了飞秒时间分辨非线性吸收谱的研究。实验中抽运光波长仍为 351 nm,能量密度为 0.6 mJ/cm<sup>2</sup>,探测光通过蓝宝石晶体形成超连续谱白光,选取白光谱中较稳定的 480 ~ 680 nm 部分,将光学密度  $m_{\Delta OD} = -1000 \cdot \lg(T_{\text{pump-on}}/T_{\text{pump-off}})$ 以二维等高线图表示,其中  $T_{\text{pump-off}}$ 为无抽运光情况下样品的透过率,  $T_{\text{pump-on}}$ 为抽运光存在时样品的透过率,实验结果如图 4 所示。

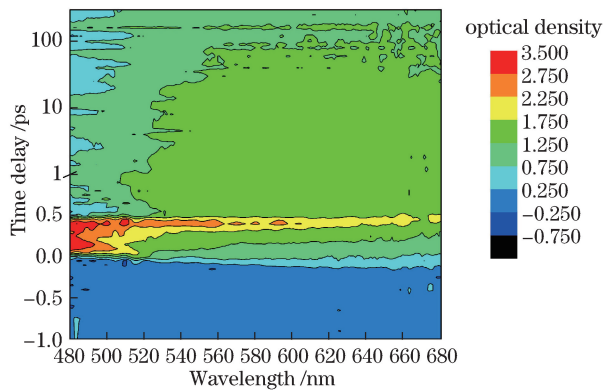


图 4 多晶金刚石时间分辨非线性吸收谱

Fig. 4 Time resolved nonlinear absorption spectra of polycrystalline diamond

从图 4 可以看出,在探测光 480 ~ 680 nm 的谱范围内,多晶金刚石样品的非线性吸收动力学过程与图 3(a)所示探测光为 515 nm 时的过程类似,都出现了 ND-TPA 和后续的载流子恢复过程,而且非线性吸收峰值(图 4 中时间延迟 0.4 ps 附近)随着波长的增加而降低。由此可知,在 351 nm 抽运光作用下,探测光波长越长,多晶金刚石材料中 ND-TPA 过程引起的非线性吸收越弱。

## 5 结 论

基于相位物体的飞秒抽运探测平台,通过双光子激发研究了 CVD 光学级多晶金刚石的 nonlinear 吸收和折射动力学。观察到金刚石载流子的百皮秒和纳秒量级的两个恢复过程,并精确测量了不同抽运光能量下两个过程的时间常数。通过数据分析得到了多晶金刚石样品的三阶非线性系数  $n_2 = (1.4 \pm 0.2) \times 10^{-15} \text{ cm}^2/\text{W}$ 。实验还测量了多晶金刚石样品的飞秒时间分辨谱吸收特性,为激光聚变诊断设备的研制和窗口材料的选取提供了参考。

致谢:感谢苏州大学物理科学与技术学院宋瑛林教授提供的设备支持。

## 参 考 文 献

- [1] Eremets M I, Trojan I A, Gwaze P, *et al.* The strength of diamond[J]. Appl Phys Lett, 2005, 87(14): 141902.

- [2] Theobald W, Miller J E, Boehly T R, *et al.* X-ray preheating of window materials in direct-drive shock-wave timing experiments[J]. *Phys Plasmas*, 2006, 13(12): 122702.
- [3] Ščajev P, Gudelis V, Jarašiūnas K, *et al.* Carrier recombination and diffusivity in microcrystalline CVD-grown and single-crystalline HPHT diamonds[J]. *Phys Status Solidi A*, 2012, 209(9): 1744-1749.
- [4] Kozák M, Trojánek F, Popelář T, *et al.* Dynamics of electron-hole liquid condensation in CVD diamond studied by femtosecond pump and probe spectroscopy[J]. *Diamond and Related Materials*, 2013, 34: 13-18.
- [5] Němec P, Preclíková J, Kromka A, *et al.* Ultrafast dynamics of photoexcited charge carriers in nanocrystalline diamond[J]. *Appl Phys Lett*, 2008, 93(8): 083102.
- [6] Malinauskas T, Jarašiūnas K, Ivakin E, *et al.* Determination of carrier diffusion coefficient and lifetime in single crystalline CVD diamonds by light-induced transient grating technique[J]. *Phys Status Solidi A*, 2010, 207(9): 2058-2063.
- [7] Ščajev P, Gudelis V, Ivakin E, *et al.* Nonequilibrium carrier dynamics in bulk HPHT diamond at two-photon carrier generation[J]. *Phys Status Solidi A*, 2011, 208(9): 2067-2072.
- [8] Yi Cheng, Wang Chuanxin, Xiong Jiang, *et al.* Analysis of optical emission spectroscopy in diamond of hot filament chemical vapor deposition[J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2015, 52(10): 103003.  
易成, 王传新, 熊江, 等. 热丝 CVD 沉积金刚石薄膜过程中的发射光谱研究[J]. *激光与光电子学进展*, 2015, 52(10): 103003.
- [9] Chen Sumei, Zhao Peide, Zhang Yong, *et al.* Nonlinear transmittance based on transient behavior of an ultra-short pulse laser[J]. *Acta Optica Sinica*, 2015, 35(2): 0232001.  
陈素梅, 赵培德, 张勇, 等. 基于超快激光脉冲瞬态特征的非线性透射率[J]. *光学学报*, 2015, 35(2): 0232001.
- [10] Li Y B, Pan G F, Yang K, *et al.* Time-resolved pump-probe system based on a nonlinear imaging technique with phase object[J]. *Opt Express*, 2008, 16(9): 6251-6259.
- [11] Shui M, Jin X, Li Z G, *et al.* Investigation of nonlinear dynamics in CdS by time-resolved nondegenerate pump-probe system with phase object[J]. *J Mod Opt*, 2011, 58(11): 973-977.
- [12] Shui M, Li Z G, Jin X, *et al.* Measurement of dynamics of nondegenerate optical nonlinearity in ZnS with pulses from optical parameter generation[J]. *Opt Commun*, 2012, 285(7): 1940-1944.
- [13] Boyd R W. *Nonlinear optics*[M]. Singapore: Academic Press, 2009: 212.