



·光学元件激光损伤·综述·

## KDP 类晶体的激光损伤研究\*

赵元安<sup>1,2,3</sup>, 连亚飞<sup>1,3</sup>, 李 婷<sup>1,3</sup>, 彭小聪<sup>1,3</sup>, 王岳亮<sup>1,3</sup>,  
吴金明<sup>1,3</sup>, 常俊秀<sup>1,3</sup>, 胡国行<sup>1,3</sup>, 邵建达<sup>1,2,3</sup>

(1. 中国科学院上海光学精密机械研究所 薄膜光学实验室, 上海 201800; 2. 中国科学院大学 材料与光电研究中心,  
北京 100049; 3. 中国科学院 强激光材料重点实验室, 上海 201800)

**摘 要:** KDP 类晶体是唯一可以满足 ICF 激光驱动装置通光口径的非线性光学晶体材料。该类晶体采用水溶液生长法生长, 易于产生宏观包裹体和微观晶格缺陷, 在高功率激光辐照下晶体内部易产生高密度 pinpoint 损伤现象, 这与其他方法生长的晶体只是受限于光学加工的表面损伤问题相比具有明显不同。KDP 类晶体内部的缺陷或前驱体诱导激光损伤与晶体切向、激光波长及偏振方向等密切相关, 使得应用于 ICF 激光驱动器中不同光学功能的、来源于同一晶坯的不同晶体元件也表现出损伤性能的差异性, 因此其损伤机理非常复杂, 迫切需要认识该类晶体的激光损伤机理问题。回顾了上海光学精密机械研究所联合福建物质结构研究所、山东大学等晶体研制单位联合开展的关于 KDP 类晶体激光诱导损伤特性的研究工作, 进行了用于光开关、倍频以及混频等功能的 KDP 和不同氘含量 DKDP 晶体的激光损伤研究, 指导了晶体生长工艺优化和过程关键因素控制, 并对仍存在的问题及解决方案进行了展望, 对于高性能 KDP 类晶体的研制以及在高功率激光系统中的合理应用具有参考价值。

**关键词:** KDP 类晶体; 激光损伤; 缺陷; 激光损伤前驱体; 热吸收; 非线性吸收; 激光预处理

中图分类号: O436

文献标志码: A

doi: 10.11884/HPLPB202335.220417

## Laser damage of KDP crystals and their analogues

Zhao Yuanan<sup>1,2,3</sup>, Lian Yafei<sup>1,3</sup>, Li Ting<sup>1,3</sup>, Peng Xiaocong<sup>1,3</sup>, Wang Yueliang<sup>1,3</sup>,  
Wu Jinming<sup>1,3</sup>, Chang Junxiu<sup>1,3</sup>, Hu Guohang<sup>1,3</sup>, Shao Jianda<sup>1,2,3</sup>

(1. Laboratory of Thin Film Optics, Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China;

2. Center of Materials Science and Optoelectronics Engineering, University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China;

3. Key Laboratory of High Power Laser Materials, Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China)

**Abstract:** KDP-family crystals are the only nonlinear optical crystal material according with the optical aperture of ICF laser drivers. As KDP-family crystals are grown by aqueous solution method, the macroscopic inclusions and microscopic lattice defects easily occur in the bulk of the crystals. The high density pinpoint damage phenomenon appears as they are irradiated by the high power laser. All the laser induced damage properties are different from the surface damage of crystals grown by other methods, which are only limited by optical processing. The laser induced damage by defects or precursors are related to the laser wavelengths and even the laser polarization direction, and the different samples from the same as-grown single crystal and applied to different optical functions in ICF laser drivers show different laser induced damage properties. Therefore, the damage mechanism is very complicated, and it is urgent to know the laser induced damage mechanism of KDP-family crystals. In this paper, the cooperated research of Shanghai Institute of Optics and Mechanics with Fujian Institute of Research on the Structure of Matter, Shandong University and other crystal research institutes is reviewed. The laser induced damage properties of KDP and DKDP crystals applied as optical switching, frequency doubling and frequency mixing optical elements were investigated. The optimization of crystal growth process and the control of key factors were guided and the existing problems and solutions were prospected. The research has reference value for the development of high-performance KDP-family crystals and their rational application in high-power laser systems

**Key words:** KDP-family crystals, laser induced damage, defect, precursor, thermal absorption, nonlinear absorption, laser conditioning

\* 收稿日期: 2022-12-21; 修订日期: 2023-03-16  
联系方式: 赵元安, yazhao@siom.ac.cn.

磷酸二氢钾(化学式  $\text{KH}_2\text{PO}_4$ , 简称 KDP)及其氙化物(化学式  $\text{KD}_x\text{H}_{(2-x)}\text{PO}_4$ , 简称 DKDP)<sup>[1]</sup>是唯一可以满足惯性约束聚变(Inertial Confinement Fusion, 简称 ICF)激光驱动装置通光口径的非线性光学晶体材料<sup>[2-6]</sup>, 在 ICF 激光装置中, Z 向切割的 KDP 晶体作为光开关<sup>[3-4]</sup>, I 类切割的 KDP 晶体作为倍频器件<sup>[3-4]</sup>, II 类切割的含氙量约 70% 的 DKDP 晶体作为混频器件<sup>[3-4]</sup>, 后两类晶体在终端光学组件中共同完成了将基频激光(波长为 1053 nm)转换为三倍频激光(波长为 351 nm)的过程<sup>[7-8]</sup>。随着聚变点火对 ICF 激光驱动器通量需求的进一步提升, 研究人员提出了利用含氙量 90% 以上(甚至 98%)的 Z 切 DKDP 作为光开关, 从而进一步降低晶体损耗<sup>[8-9]</sup>。

按照目前 ICF 驱动器的主流设计构型, 光学元件的通光口径约为 400 mm×400 mm, 根据不同元件的切割方向要求, 晶体毛坯的尺寸至少要达到 550 mm×550 mm<sup>[10]</sup>。如果 KDP 和 DKDP 晶体采用传统生长方法生长, 晶体毛坯达到 ICF 驱动器中晶体元件所需尺寸的生长时间需要一年以上<sup>[11]</sup>, 并且生长周期内存在各种导致生长失败的风险<sup>[12]</sup>, 这对于大型激光工程建设而言是难以接受的。因此, 研究人员开始考虑采用点籽晶快速生长方法<sup>[11, 13-17]</sup>来降低工程的不确定性。1997 年, 美国劳伦斯-利弗莫尔实验室(LLNL)首先突破了大口径 KDP 晶体的点籽晶快速生长技术<sup>[11]</sup>, 三个月左右的时间即可获得全尺寸的晶体毛坯, 并成功供货于美国国家点火装置, 但他们最终放弃了 DKDP 晶体的快速生长技术路线<sup>[8]</sup>。我国在成功突破了大尺寸 KDP 点籽晶快速生长技术<sup>[10, 12, 18-20]</sup>后, 又创新发展了 DKDP 晶体点籽晶横向双锥生长技术<sup>[21-22]</sup>和长籽晶快速生长技术<sup>[23-24]</sup>, 形成了多种生长技术路线共同发展的局面。

激光损伤阈值是在 ICF 激光驱动器中应用各类晶体元素的核心指标之一, 研究人员对 KDP 类晶体的损伤研究已经历了半个多世纪<sup>[25-27]</sup>, 也已经形成了诸如晶体体内损伤主要由缺陷诱导等一致认识<sup>[28]</sup>, 但是对损伤诱导源缺陷的本质特性的认识仍然不明确。KDP 类晶体采用水溶液生长法生长, 易于产生宏观包裹体和微观晶格缺陷, 在高功率激光辐照下晶体内部易产生高密度 pinpoint 损伤现象, 这与其他方法生长的晶体只是受限于光学加工的表面损伤问题相比具有明显不同。晶体生长技术的差异直接决定了晶体中缺陷的成因和类型, 缺陷的类型决定了在激光辐照下晶体的吸收机制, 这也是理解破坏诱因, 并溯源晶体缺陷来源, 从而实现生长工艺的确定性控制的重要研究内容。山东大学孙洵采用多种显微技术观察了 KDP 晶体缺陷(包裹体和散射颗粒)的形态, 认为杂质吸附阻碍晶面台阶运动, 形成宏台阶包裹进入晶体, 最终成为散射颗粒<sup>[29-30]</sup>。中国科学院上海光学精密机械研究所胡国行建立了晶体激光损伤原位在线探测技术, 研究了晶体中散射颗粒与激光损伤阈值的关系, 发现散射颗粒是低通量激光诱导晶体损伤的主要原因<sup>[31]</sup>。山东大学与上海国药集团协同攻关, 将磷酸二氢钾原材料提纯至 0.1 ppm 量级<sup>[32]</sup>, 使得生长出的晶体质量得到了一定程度的提升。福建物构所姚元根和郑国宗在点籽晶快速生长 KDP 晶体中引入连续过滤技术<sup>[33-34]</sup>, 大幅抑制了晶体中散射颗粒的形成, I 类 KDP 快长晶体达到了传统生长晶体的同等抗激光损伤能力, 同时上海光机所王岳亮解析了连续过滤的缺陷控制关键指标, 为快速生长 KDP 晶体的工程应用奠定了基础<sup>[35]</sup>。上述针对 KDP 晶体的生长工艺方案在解决了原材料纯度和生长过程缺陷控制后, I 类 KDP 晶体满足了现今 ICF 设计通量要求。但是, 基于连续过滤的同等技术路线在 DKDP 晶体研制中遇到了困难, DKDP 晶体的散射缺陷得到控制后, 损伤阈值也得到明显的提升, 但是仍然与 ICF 激光驱动器的设计通量有差距<sup>[36]</sup>, 并且高通量激光情况下, 可直接观测的散射缺陷与激光损伤不再具有直接关联关系, 高通量下诱导 DKDP 晶体损伤的缺陷(前驱体)特征缺乏表征手段<sup>[37]</sup>。KDP 类晶体的带隙在 7.2~9.0 eV 之间, 基频激光(1053 nm)的光子能量(1.2 eV)远小于带隙, 只可能通过缺陷以热吸收形式破坏晶格, 当通过连续过滤技术滤除缺陷后, 诱导基频激光损伤的诱因就不存在了, 这也是 I 类 KDP 晶体基频损伤问题得以解决的原因<sup>[37]</sup>。然而, 三倍频激光(351 nm)的光子能量为 3.5 eV, 晶体有可能通过三光子吸收完成对激光的吸收, 因此非线性吸收可能成为破坏三倍频晶体的原因之一<sup>[37-39]</sup>。2003 年, LLNL 的 Carr 等人根据 DKDP 晶体损伤阈值随波长的变化规律推测, 在价带和导带间存在电子缺陷, 因此可能通过缺陷辅助的多光子吸收破坏晶体<sup>[40-42]</sup>。DKDP 是用一定比例的氙替代氢, 降低了受激拉曼散射(SRS)对晶体的破坏效应<sup>[43-45]</sup>, 但正是由于氢和氙的交换, 晶体的能带结构发生了变化。上海光机所彭小聪基于 515 nm 波长的亚皮秒激光采用 Z 扫描技术测量了 DKDP 晶体的非线性吸收系数和吸收截面<sup>[46]</sup>, 发现非线性吸收系数和损伤阈值高低存在规律性关系<sup>[47]</sup>。到目前为止, 研究人员从基本原理角度阐述了 DKDP 晶体中的电子缺陷存在性, 但始终无法建立描述电子缺陷与晶体结构特性的直接关系, 因此, 难以给予晶体生长工艺控制最直接的指导, 这就导致了 DKDP 晶体无法依赖生长工艺优化而全面满足 ICF 激光驱动器运行通量要求。

DKDP 晶体的三倍频激光损伤问题的解决最终借助了激光预处理技术<sup>[8, 48]</sup>。美国 LLNL 在 NIF 建设初期就采用了在线激光预处理方法来提升 KDP/DKDP 晶体的损伤性能<sup>[49-50]</sup>, Liao 等通过 ADM 模型优化预处理的能流密度台阶, 将在 NIF 装置上在线预处理的发次从 9 发减少至 5 发<sup>[51-52]</sup>。M.J. Runkel 及 J. Adams 等人研究了激光预处理

的脉宽效应,认为 500 ps 左右脉冲宽度的激光预处理效果最佳<sup>[52-54]</sup>。2007 年, LLNL 建设了离线亚纳秒激光预处理系统,完成了对 DKDP 三倍频晶体的工程化激光预处理<sup>[55]</sup>。上海光机所李婷等人提出了采用波形可变的亚纳秒激光预处理方案,获得了比传统高斯型亚纳秒脉冲更优的阈值提升能力<sup>[56]</sup>。

本文将以我国高功率激光系统对 KDP 类晶体元件的激光负载要求为牵引,研究光开关晶体(Z 切 KDP 及 98% 氘含量 DKDP 晶体)、倍频晶体(I 类 KDP 晶体)以及混频晶体(II 类 70% 氘含量 DKDP 晶体)在应用波长下的激光损伤特性,通过对典型缺陷(或激光损伤前驱体)的表征,并建立与激光损伤的关系,从而分析不同切向的晶体在不同波长激光作用下激光损伤机理的转化关系。对于光开关和 I 类 KDP 晶体,由于其工作在基频波段,热吸收是导致晶体损伤的主因。研究发现,无论是晶体的本征吸收还是晶体内缺陷的热吸收都是晶体生长要控制的核心问题,因而,光开关采用高氘掺杂降低本征吸收和 I 类 KDP 采用连续过滤技术去除晶体缺陷,在提升晶体抗激光损伤能力方面都取得了良好的效果。II 类 DKDP 晶体工作在紫外波段,非线性吸收主导了高通量激光条件下 DKDP 晶体材料的激光损伤。尽管目前还无法建立晶体微观结构组分等与非线性吸收来源的关系,但采用亚纳秒量级的紫外激光预处理可以有效降低晶体材料的非线性吸收,从而提高晶体的抗激光损伤能力。文章最后还研究了可能用于 OPCPA 系统的高氘(98%)DKDP 晶体在 532 nm 激光辐照条件下的损伤性能,为 KDP 类晶体的潜在应用领域提供了参考数据。

## 1 高功率激光驱动器中的 KDP 类晶体元件

激光惯性约束聚变(ICF)的主流技术方案是采用波长为 351 nm、时间尺度数为纳秒至数十纳秒的兆焦耳级激光脉冲压缩靶丸<sup>[8]</sup>。钕玻璃激光是这种巨型激光装置的唯一选择,其中要涉及调 Q、倍频、混频等非线性晶体的应用。KDP 类晶体是现阶段唯一可以满足 ICF 激光驱动器口径需求的晶体材料,采用不同切向实现驱动器所需的光学功能:光开关、二倍频、混频(三倍频),详见表 1。

表 1 高功率激光驱动器中的 KDP 类晶体元件<sup>[8]</sup>  
Table 1 KDP-family crystals in high power laser drivers

component function	phase matching angle and orientation angle ( $\theta, \varphi$ )	deuterium content/%	application wavelength/nm (polarization direction)
switch	(0°, 0°) <sup>[8]</sup>	0 or >90	1053 (o) <sup>[8, 57]</sup>
second harmonic generation	(41°, 45°) <sup>[8]</sup>	0	1053 (o), 527 (e) <sup>[8, 57]</sup>
third harmonic generation	(61°, 0°) <sup>[8, 58]</sup>	70	1053 (e), 527 (o), 351 (e) <sup>[8, 57]</sup>

光学材料的激光损伤与波长、偏振态以及入射角等参数具有显著的依赖性<sup>[40, 59-60]</sup>,因此 ICF 激光驱动器中的三类 KDP 类晶体元件也表现出个性化的激光损伤特性和激光负载能力。

## 2 光开关晶体的光学损耗和激光损伤

ICF 激光驱动器中的光开关由 Z 向切割的 KDP 和薄膜偏振片组合构成,激光的传输沿 Z 向切割的 KDP 类晶体光轴方向,因而不存在偏振依赖特性。随着对激光通量提升的需求,采用高氘化率 DKDP 晶体可以降低损耗,因而对氘化率大于 90%(甚至要求达到 98%)的 DKDP 提出了研制需求。

在 1064 nm 激光辐照下, KDP/DKDP 晶体体内缺陷主要通过线性吸收的方式使激光能量沉积并导致前驱体温度升高,同时以热扩散的形式将能量传递给周围基质材料,导致周围基质材料升温;当温度升至临界值时,引发材料熔融或产生等离子体等,导致晶体损伤<sup>[60-63]</sup>。通过 Z 切 KDP/DKDP 晶体的激光诱导损伤形貌能够明显推导其损伤过程。1064 nm 激光作用下, KDP 晶体体内损伤点主要由中心空洞、定向裂纹和微变区组成<sup>[64]</sup>,中心空洞尺寸在 2~30  $\mu\text{m}$  之间,其内及内壁上存在一定的熔融物,主要为电介质击穿引起,如图 1 所示。图 2 为 1064 nm 激光辐照下,高氘 DKDP 晶体体内损伤点的典型形貌<sup>[64]</sup>,通过对损伤点统计分析发现,高氘 DKDP 晶体体内主要存在三种损伤点形貌形态<sup>[64]</sup>:如图 2(a)所示,能量密度为 46.0  $\text{J}\cdot\text{cm}^{-2}$

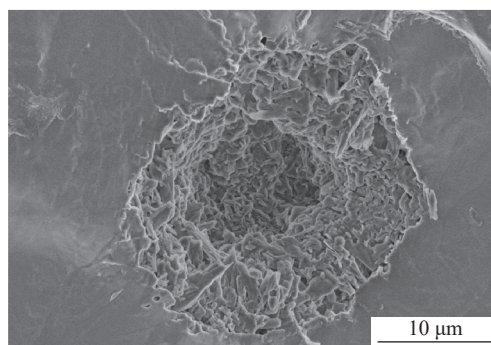


Fig. 1 Damage point morphology in Z-cut KDP crystal irradiated by 1064 nm laser

图 1 1064 nm 激光辐照下 Z 切 KDP 晶体体内的损伤点形貌



的 1064 nm 激光诱导的损伤点形貌主要由中心空洞、裂纹和微变区组成,在相对较低能量密度的激光辐照下,损伤前驱体出现“微爆炸”导致损伤点形成,在所有损伤点中所占比例较低;能量密度为  $60.0 \text{ J}\cdot\text{cm}^{-2}$  的激光诱导的典型损伤点如图 2(b)所示,其主要由中心空洞及应变区组成,中心空洞的直径为  $4\sim 5 \mu\text{m}$ ,应变区域直径约为  $6\sim 10 \mu\text{m}$ ,此类损伤点可能是由 DKDP 晶体体内的本征缺陷诱导形成,在所有损伤点中占比最高;当能量密度为  $70 \text{ J}\cdot\text{cm}^{-2}$  的激光辐照晶体后,DKDP 晶体体内存在另一种典型损伤点形貌如图 2(c)所示,即中心空洞、裂纹和球形微变区域,此类损伤点需要很高的激光能量密度诱导损伤,其在晶体体内出现的概率较低。

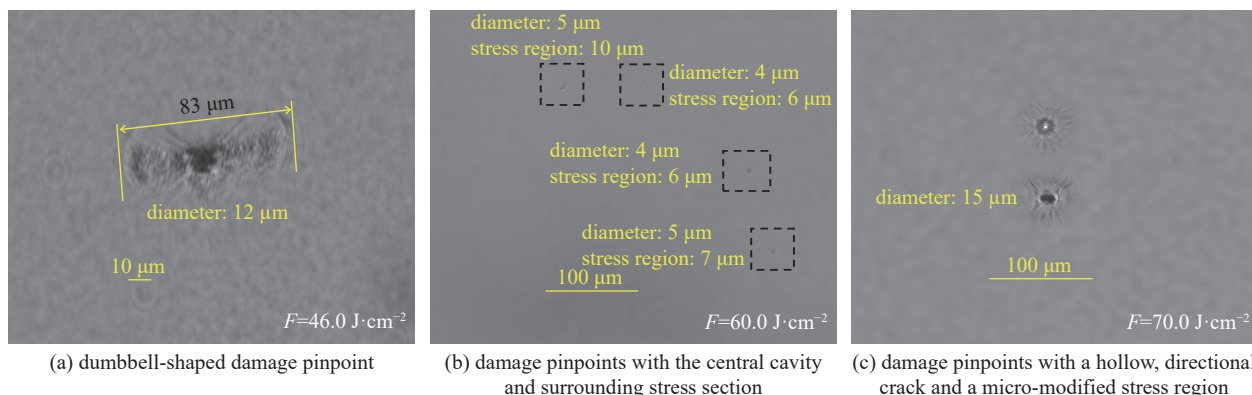


Fig. 2 Damage morphologies of Z-cut sample induced by 1064 nm laser<sup>[64]</sup>

图 2 1064 nm 激光诱导高氘 DKDP 晶体体内典型损伤点形貌<sup>[64]</sup>

课题组比较了福建物构所生长的 KDP 和氘含量 98% 的 DKDP 晶体的光学特性<sup>[64]</sup>。图 3 为 KDP 晶体及高氘 DKDP 晶体的紫外-可见透过率光谱。可知在近红外波段,高氘 KDP 晶体的透过率明显高于 KDP 晶体的透过率,这主要是因为氘原子引入晶体后,O-D 键的振动影响了晶体对红外光的吸收并导致红外截止边出现红移<sup>[65]</sup>。

不同 1064 nm 激光辐照方向及偏振方向下,Z 向切割 KDP 晶体的激光诱导损伤阈值如表 2 所示<sup>[67]</sup>。KDP 晶体在光开关的应用方向为  $c$  轴入射,由表 2 可知其在该激光入射方向具有较高的损伤阈值,如激光偏振方向平行于  $a/b$  轴时损伤阈值高达  $23.0\pm 1.0 \text{ J}\cdot\text{cm}^{-2}@1.1 \text{ ns}$ ,满足激光驱动器对激光通量的需求(美国 NIF 装置对光学元件  $1\omega$  阈值设计值为  $20 \text{ J}\cdot\text{cm}^{-2}[5,68]$ )。由高氘 DKDP 晶体的 R-on-1 激光诱导损伤测试曲线<sup>[64]</sup>(如图 4 所示)可知,光开关高氘 DKDP 晶体的零概率激光诱导损伤阈值为  $40 \text{ J}\cdot\text{cm}^{-2}@ (1064 \text{ nm}, 3 \text{ ns})$ ,其损伤性能明显优于 KDP 晶体的激光损伤性能,这主要是因为采用 Z 切 98% 氘含量的 DKDP 晶体在近红外波段的线性吸收比 KDP 的吸收降低约 7%,激光辐照下损伤前驱体的热吸收能力降低,更不易出现热致损伤。

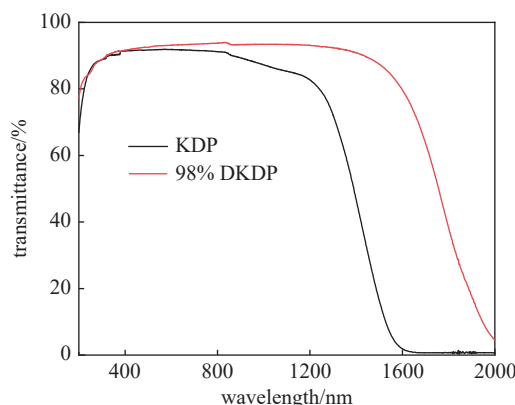


Fig. 3 Transmittance spectrum of KDP and highly-deuterated DKDP crystals<sup>[64,66]</sup>

图 3 KDP 晶体及高氘 DKDP 晶体的透过率光谱<sup>[64,66]</sup>

表 2 不同 1064 nm 激光辐照方向及偏振方向下 KDP 晶体的激光诱导损伤阈值<sup>[67]</sup>

Table 2 Laser-induced damage threshold of KDP crystal under different irradiation directions and polarization directions of 1064 nm laser<sup>[67]</sup>

wavelength/nm	laser incident direction	laser polarization direction	laser induced damage threshold /( $\text{J}\cdot\text{cm}^{-2}@1.1 \text{ ns}$ )
1064	$a(b)$	$//c$	$11.7\pm 0.5$
		$\perp c$	$12.3\pm 0.3$
	$c$	$// a(b)$	$23.0\pm 1.0$
		$\perp a(b)$	$19.5\pm 1.0$

### 3 | 类 KDP 晶体的激光损伤

在 ICF 激光驱动器中,I 类 KDP 晶体主要用作倍频光学元件,主要是将 1053 nm 激光倍频为 527 nm 激光,因此在此倍频过程中,KDP 晶体主要承受 1053 nm 及 527 nm 激光的同时作用。由于大尺寸 KDP 生长周期长,采取快速



生长是满足大型 ICF 激光驱动器建设周期需求的重要技术途径,美国 LLNL 研发的大尺寸点籽晶 KDP 快速生长技术成为 NIF 建设的七大奇迹之一<sup>[41]</sup>。KDP 晶体快速生长过程中,由于溶液的过饱和度增加,生长溶液自发成核的概率会明显提升,这些成核颗粒会嵌入晶体体内,诱导产生散射缺陷和晶格缺陷<sup>[69]</sup>。在 KDP 晶体中,诱导损伤形成的微观缺陷一般称为损伤前驱体。与缺陷定义不同的是,一般无法在光学手段中直接获得损伤前驱体与周围基质材料的明显差异特性,且前驱体的典型尺寸可能在微米、亚微米甚至纳米量级<sup>[70]</sup>,S.G. Demos 认为前驱体可能是一类具有电子结构的本征缺陷团簇<sup>[41]</sup>,S. Reyné认为这类缺陷可能具有椭球结构<sup>[60]</sup>,但目前没有直接表征晶体损伤前驱体形态和特性的测试手段。

基于缺陷线性吸收热扩散模型对缺陷吸收激光损伤过程中的温度变化进行分析,课题组发现晶体体内各类缺陷的损伤阈值具有尺寸效应,即在相同条件激光辐照下,小尺寸的液相包裹体不易诱导损伤,而相同吸收截面或者更小吸收截面的电子缺陷却容易诱导损伤<sup>[37]</sup>,当辐照激光能量密度增加时,电子缺陷的等效吸收截面变大,更易诱导损伤。据此,研究人员提出了连续过滤技术<sup>[13,71]</sup>,可以滤除溶液中大于滤孔尺寸的杂质颗粒及胶体粒子等,大大减少嵌入杂质对晶体生长的影响,降低诱导不完美晶格缺陷的可能,有效提高 KDP 晶体的抗激光损伤能力,如图 5 所示<sup>[8]</sup>。这意味着利用连续过滤技术可以直接调控 KDP 晶体内部激光损伤前驱体的尺度,用以研究不同尺度前驱体的损伤特性。

课题组设计了采用不同滤孔的连续过滤技术生长 KDP 晶体,滤孔尺寸分别为 0.1  $\mu\text{m}$  和 0.03  $\mu\text{m}$ 。同时将非连续过滤的 KDP 晶体作为对比对象。如图 6 所示,三类晶体的损伤特性具有明显差异,0.1  $\mu\text{m}$  滤孔生长晶体的零概率损伤阈值与非连续过滤样品接近,但其高能量密度下损伤概率已明显下降;0.03  $\mu\text{m}$  滤孔生长晶体的损伤性能整体有显著提升<sup>[35]</sup>。

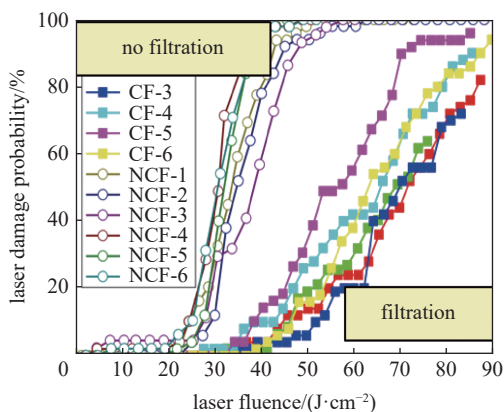


Fig. 5 Laser damage resistance enhancement of KDP crystals by continuous filtration techniques<sup>[8]</sup>

图 5 连续过滤技术用于提升 KDP 晶体抗激光损伤能力<sup>[8]</sup>

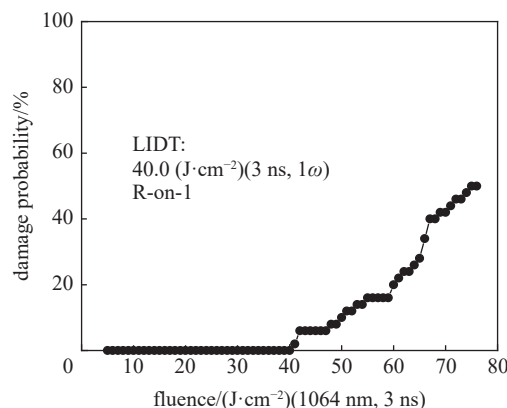


Fig. 4 Laser-induced damage results of 98% deuterium DKDP crystals in R-on-1 method<sup>[64]</sup>

图 4 98% 氘含量 DKDP 晶体的 R-on-1 激光诱导损伤概率曲线<sup>[64]</sup>

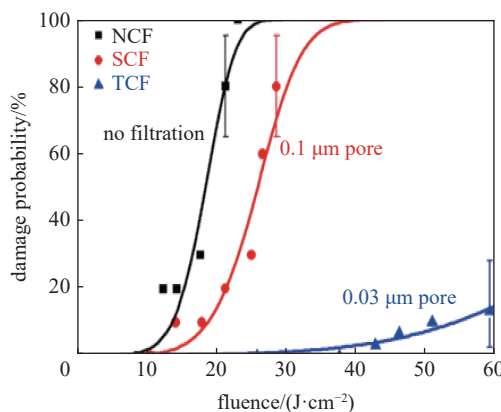


Fig. 6 Laser damage probability curves for KDP samples grown with no filter (NCF), only 0.1  $\mu\text{m}$  filter (SCF) and two levels of filter (0.1  $\mu\text{m}$  and 0.03  $\mu\text{m}$ ) (TCF) in continuous filtration unit<sup>[35]</sup>

图 6 不加连续过滤 (NCF)、0.1  $\mu\text{m}$  滤孔一级过滤 (SCF)、0.1  $\mu\text{m}$  和 0.03  $\mu\text{m}$  滤孔二级过滤 (TCF) 样品的损伤几率<sup>[35]</sup>

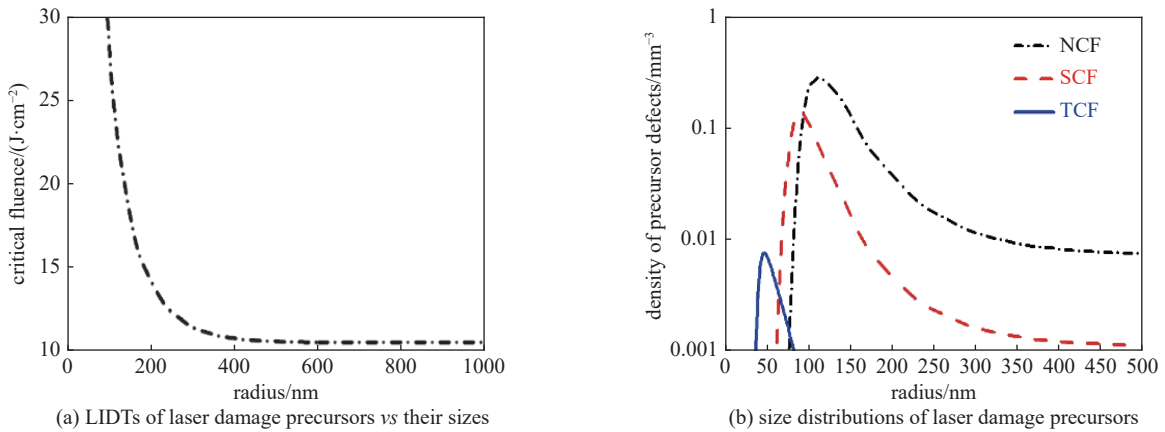
结合统计模型可以从损伤几率曲线中提取前驱体密度、阈值分布等信息,间接反映前驱体的信息。分析表明 KDP 晶体体内主要包含一种阈值分布的前驱体,采用连续过滤后样品前驱体的基频损伤阈值明显提升,总密度显著降低,如表 3 所示,其中参数  $\rho_0$  表示前驱体密度,  $T_0$  表示前驱体阈值均值,  $\Delta T$  表示阈值标准偏差。

文献中认为 KDP 晶体中的这些纳米尺度缺陷最可能是化学计量的电子缺陷团簇<sup>[72-73]</sup>,故可以认为纳米尺度缺陷的折射率实部与基质材料相等,其特征量可由其尺度和折射率虚部表示。初始损伤发生是因为纳米尺度缺陷通过吸收激光能量导致温升超过 KDP 晶体发生损伤的临界温度,一旦超过临界温度材料会融化并引发失控的吸收并损伤,这个临界温度通常假设为约 550 K。在热扩散模型的基础上,结合损伤临界温度和阈值测量结果,可以反

表 3 不同滤孔生长的 KDP 晶体中损伤先驱体的信息<sup>[35]</sup>Table 3 Information of the laser damage precursors for KDP crystals grown with differently sized filter pores<sup>[35]</sup>

sample	$\rho_0/(\text{mm}^{-3})$	$T_0/(\text{J}\cdot\text{cm}^{-2})$	$\Delta T/(\text{J}\cdot\text{cm}^{-2})$
NCF	3.75	24.8	10.5
SCF	2.59	33.3	14.6
TCF	0.42	81.4	41.3

推 KDP 晶体中纳米尺度缺陷的特征量信息与损伤的关联。模拟分析表明 NCF 样品中纳米尺度缺陷的最大消光系数约为  $4 \times 10^{-4}$ , 得到纳米尺度缺陷的阈值能量密度与尺度的关系  $T(a)$ , 如图 7(a) 所示, 尺度越小的纳米尺度缺陷的阈值越高, 且尺度较大纳米尺度缺陷的阈值相差不大。将纳米尺度缺陷的阈值能量密度随其尺度的关系  $T(a)$  代入缺陷阈值分布函数中可以获取纳米尺度缺陷的尺度分布  $\rho(a)$ , 如图 7(b) 所示, 纳米尺度缺陷的密度和尺度明显随过滤滤孔尺度减少而降低。

Fig. 7 Laser induced damage thresholds (LIDTs) and sizes of laser damage precursors in KDP crystals<sup>[35]</sup>图 7 KDP 晶体中损伤先驱体的阈值分布及尺度分布<sup>[35]</sup>

虽然不能实际测量先驱体的尺寸, 但滤孔大小对 KDP 晶体中先驱体尺度的影响趋势得到了确认, 这与缺陷热吸收模型仿真结果一致。一方面说明 KDP 晶体在基频激光辐照下的损伤主要源于数十纳米尺度先驱体对激光的热吸收, 且损伤诱导源缺陷的尺寸特性是影响 I 类 KDP 晶体抗损伤性能的关键因素, 而通过连续过滤技术可以有效地降低基频损伤诱导源尺寸并提升 I 类 KDP 晶体抗损伤性能; 另一方面也给出了不同应用激光通量条件下对晶体中先驱体吸收特性和尺度控制的量化要求, 这对于高性能 KDP 晶体的研制起到了关键指导作用。

#### 4 II 类 DKDP 晶体的激光损伤

II 类 DKDP 晶体的作用是通过混频效应产生三倍频激光, 因而晶体要承受 1053、527 和 351 nm 三个波长的激光辐照; LLNL 的研究已经表明, 晶体中损伤点密度与三倍频波长 (351 nm) 的电场分布一致, 说明三倍频波长激光主导了损伤过程<sup>[74]</sup>。由于三倍频激光的光子能量为 3.5 eV, 三倍频激光有可能通过非线性多光子吸收过程诱导 II 类切割 KDP (或 DKDP) 晶体的损伤。那么, 就有必要解析三倍频激光诱导 II 类 DKDP 晶体损伤究竟是热吸收, 还是非线性吸收问题。

课题组通过激光预处理技术改善晶体的抗激光损伤性能, 解析诱导激光损伤的先驱体发生了什么变化, 从而理解吸收机制。利用亚阈值激光能量密度辐照光学材料可以提升其抗激光损伤能力, 这种现象被称为激光预处理, 它被广泛应用于多层介质薄膜、光学镜面以及 KDP 类晶体等。关于激光预处理技术可详见本文第 5 节, 我们这里仅将其用作调控激光损伤先驱体的技术手段。课题组采用了不同脉冲宽度的三倍频脉冲激光对 II 类 DKDP 晶体进行激光预处理, 主要为数纳秒脉宽和数百皮秒脉宽两种激光, 前者是美国 LLNL 针对 II 类 DKDP 晶体元件在 NIF 装置上进行预处理的脉冲参数<sup>[8]</sup>, 后者则是 LLNL 在 NIF 装置建设后期采用的激光预处理技术路线<sup>[8]</sup>, 后者较前者获得了更好的激光预处理增强效果。这两种典型激光预处理对晶体材料中的激光损伤先驱体的影响不同, 课题组试图从这些差异中解析先驱体的吸收机制。图 8 给出的是 7.6 ns 和 500 ps 脉冲对 II 类 DKDP 晶体处理后的损伤阈值情况。可以看出, 500 ps 脉宽的激光预处理取得了比 7.6 ns 脉宽预处理高出约 20% 的阈值增强效

果,这种差异必然与损伤前驱体特性有关。

在纳秒量级三倍频激光脉冲(355 nm, 7.6 ns)对 II 类 DKDP 晶体激光预处理过程中,课题组集成了 355 nm 波长的激光光度计和暗场显微成像系统,实时记录处理前后晶体在 355 nm 波长处的透过率变化,并从样品侧面暗场观察是否有损伤发生,如图 9 所示<sup>[37, 75]</sup>。发现随着三倍频脉冲激光能量密度的逐步提升,晶体样品的静态透过率逐步增加,最大增幅达到约 0.3%,这表明晶体材料线性吸收的降低。即使当样品发生了损伤后(激光能量密度大于 9.6 J·cm<sup>-2</sup>时观察到有 pinpoint 损伤出现并增加),样品的透过率仍在增加,直到损伤密度达到约 10 mm<sup>-3</sup>后散射损耗显著增加,整体透过率才开始下降。从此结果可以看出,采用纳秒脉宽的三倍频激光预处理能够增强晶体激光损伤阈值,这与晶体线性吸收降低有关。说明经纳秒激光预处理后阈值的增加与晶体材料线性吸收的降低有关联。实质上,DKDP 晶体在三倍频波长处的线性吸收已经非常低,光吸收系数优于 0.003 cm<sup>-1</sup>@351 nm,纳秒激光预处理对线性吸收的降低有限。

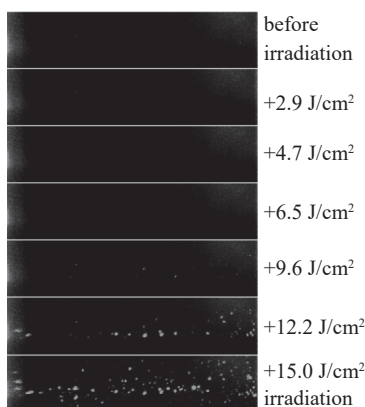


Fig. 9 Dark field observation of the generation of damage spots, the change of transmittance at 355 nm and the increase of density of damage spots in II-type DKDP crystals during the 355 nm laser conditioning process<sup>[75]</sup>

图 9 II 类 DKDP 晶体在三倍频纳秒激光预处理过程中暗场观察损伤点产生、355 nm 透过率变化以及损伤点密度增长结果<sup>[75]</sup>

亚纳秒激光预处理对 DKDP 晶体激光损伤阈值的进一步提升则可能源于非线性吸收的变化,为此,课题组比较了纳秒激光预处理和 500 ps 激光预处理后晶体样品的非线性吸收<sup>[37]</sup>。图 10 给出的是 II 类 DKDP 在用波长为 355 nm 的纳秒(7.6 ns)和亚纳秒(500 ps)脉冲激光预处理前后的非线性吸收系数测量结果,非线性吸收系数测量采用波长脉冲宽度 230 fs 的激光通过开孔 Z 扫描方法进行测量。未预辐照、纳秒激光预处理和亚纳秒激光预处理三种样品在焦点处归一化透过率分别约为 70.5%、71.3% 和 77.6%。这表明晶体的非线性吸收在 355 nm 亚纳秒激光作用下明显减弱。

由于 Z 扫描采用的激光波长为 515 nm(2.4 eV),课题组采用 4 光子吸收(4PA)模型对数据进行拟合得到的吸收系数如表 4 所示。未预处理样品的 4PA 吸收系数为 (4.90±0.99)×10<sup>-6</sup> cm<sup>5</sup>·GW<sup>-3</sup>, 4PA 吸收系数在纳秒预处理后降低了一点,而在亚纳秒预处理后几乎降低了一半,为 (2.53±0.98)×10<sup>-6</sup> cm<sup>5</sup>·GW<sup>-3</sup>。该结果表明材料内部的非线性吸收在 355 nm 亚纳秒激光预辐照后大幅降低,而激光损伤阈值

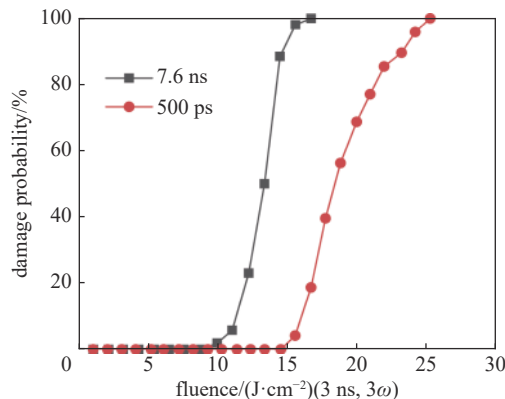


Fig. 8 Laser induced damage threshold changes of DKDP crystals by laser conditioning of 355nm laser with different pulse widths (7.6 ns and 500 ps)

图 8 不同脉宽三倍频激光(7.6 ns 和 500 ps)预处理 DKDP 晶体后的阈值变化

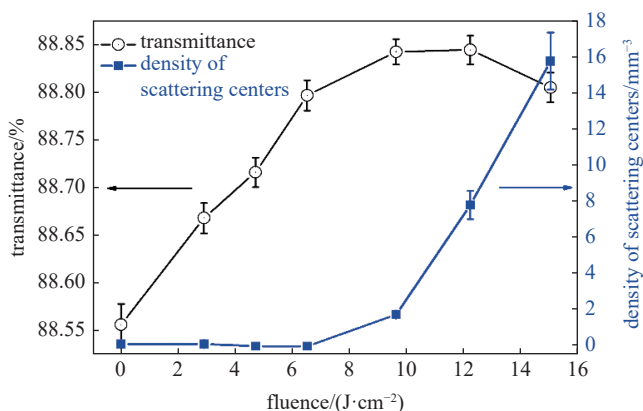


Fig. 9 II-type DKDP crystals in the triple-frequency nanosecond laser preprocessing process

图 9 II 类 DKDP 晶体在三倍频纳秒激光预处理过程中暗场观察损伤点产生、355 nm 透过率变化以及损伤点密度增长结果<sup>[75]</sup>

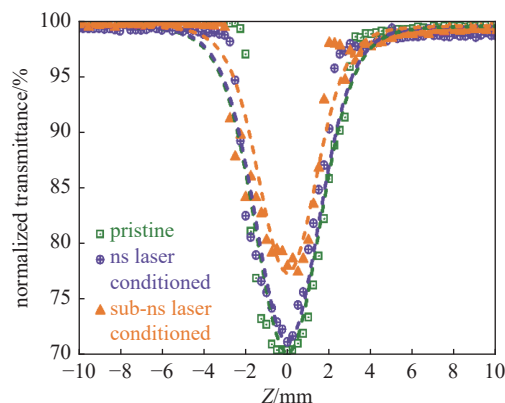


Fig. 10 Z-scan measurement results of samples after different laser conditioning<sup>[37]</sup>

图 10 不同激光预处理获得样品的 Z 扫描测量结果<sup>[37]</sup>



较纳秒激光预处理的进一步增强可能就源于非线性吸收的降低。

通过对上述采用不同激光参数的预处理,得到样品的线性吸收、非线性吸收以及损伤阈值的关系,课题组认为诱导 II 类 DKDP 晶体三倍频激光损伤的基本过程可能是:低通量激光辐照条件下,主要由晶体中的线性吸收前驱体主导诱导激光损伤过程,纳秒激光预处理可以消除(或抑制)这种前驱体;当激光通量进一步提高时,晶体内的电子缺陷将主导激光损伤过程,这种电子缺陷可以通过亚纳秒脉宽的激光预处理予以消除(或抑制)。然而,到目前为止还无法直观观测电子缺陷,KDP/DKDP 晶体体内常见的电子缺陷种类主要有氢(H)缺陷(H 间隙、H 空位等)及其团簇<sup>[76-77]</sup>、氧(O)缺陷(O 间隙、O 空位等)及其团簇<sup>[78-79]</sup>、杂质离子(如  $\text{Fe}^{3+}$ ,  $\text{Cr}^{3+}$  等)等<sup>[80-82]</sup>。强激光辐照晶体过程中,晶体通过多光子吸收效应产生电子-空穴对,其中一部分电子-空穴对演变为位于带隙内的电子缺陷态:若占据正常晶格位置的  $\text{H}^+$  离子俘获一个电子,则其成为一个偏离其原始晶格位置的中性氢原子,形成 H 间隙缺陷,而晶格中氧原子俘获 H 空位形成  $\text{HPO}_4^-$  基团,电子顺磁共振<sup>[83]</sup> 实验证实了  $\text{HPO}_4^-$  基团的空穴中心和 H 间隙的存在。理论计算<sup>[76-77]</sup> 表明,中性 H 间隙将 KDP 晶体的带隙从 5.9 eV 减小为 2.6 eV,而 H 间隙和  $\text{H}^+$  间隙将缺陷态的位置(2.6 eV)提升至 4.3 eV 和 5.1 eV; H 空位在 4.6 eV 位置引入缺陷能级,毗邻 H 空位的两个氧原子形成过氧桥导致在 3.6 eV 位置出现缺陷能级,将带隙减小至 2.5 eV。O 空位及 O 间隙点缺陷同样是引起 KDP 晶体发生损伤的关键因素:当氧空位捕获一个电子后,形成  $\text{PO}_3^{2-}$  电子缺陷,Garces 等和 Chirila 等通过电子顺磁共振证实了这种类型点缺陷的存在<sup>[84-85]</sup>。理论计算<sup>[78-79]</sup> 表明,中性 O 空位将 KDP 晶体带隙减小至 4.0 eV,去除一个电子后形成  $\text{O}^+$  空位,此时缺陷态的占据数量由两个减少至一个,并在 1.5 eV 位置处产生新的缺陷能级,导致带隙急剧减小,而  $\text{O}^{2+}$  空位没有在能隙中引入新的缺陷态。电子缺陷的存在形式是介于价带和导带间的缺陷能级,这样就可能导致缺陷能级辅助的多光子吸收,如图 11 所示<sup>[37]</sup>。按照 DKDP 的带隙估算,如果不考虑缺陷能级存在,三倍频脉冲激光的光子能量为 3.5 eV,要使一个价带电子跃迁至导带,需要同时吸收三个光子;如果存在缺陷能级,则可能发生缺陷能级辅助吸收过程,表现为 1+2 个光子或 2+1 光子吸收。根据 Keldysh 多光子离化模型<sup>[86]</sup>,课题组模拟了在 355 nm 波长、7.6 ns 脉宽激光脉冲作用下,三光子吸收(3PA)和缺陷能级辅助的 2+1 光子吸收(2PA+1PA)过程的电子数密度演化情况,结果如图 12 所示<sup>[37]</sup>。纳秒脉冲辐照过程中,缺陷辅助多光子吸收过程的最大电子数密度要比 3PA 过程高 2 个数量级,更容易诱导碰撞电离或导带电子数密度超过临界值而引发损伤,而且辐照的激光能量密度仅为  $15 \text{ J}\cdot\text{cm}^{-2}$ 。因此,可以看出缺陷激发态的引入极大降低了晶体抗激光损伤性能,这也解释了为何 DKDP 晶体难以达到其理论估算的抗激光损伤能力。

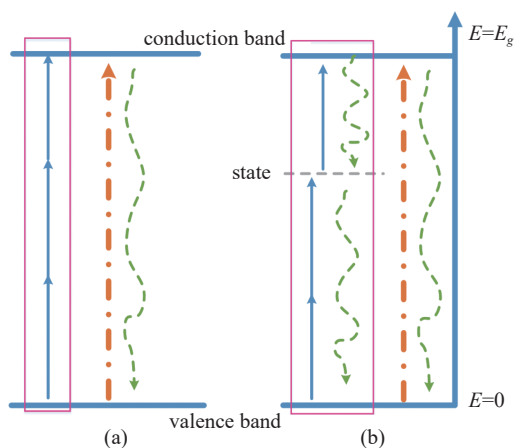


Fig. 11 Schematic diagram of valence band electron ionization of DKDP crystal under 355 nm laser

图 11 DKDP 晶体在 355 nm 激光作用下  
价带电子离化示意图<sup>[37]</sup>

表 4 不同三种处理方式样品的 4PA 系数<sup>[37]</sup>  
Table 4 4PA coefficient of samples of the  
three different samples<sup>[37]</sup>

sample	$\gamma / (10^{-6} \text{ cm}^5 \cdot \text{GW}^{-3})$
pristine	4.90±0.99
ns laser conditioned	4.81±1.37
sub-ns laser conditioned	2.53±0.98

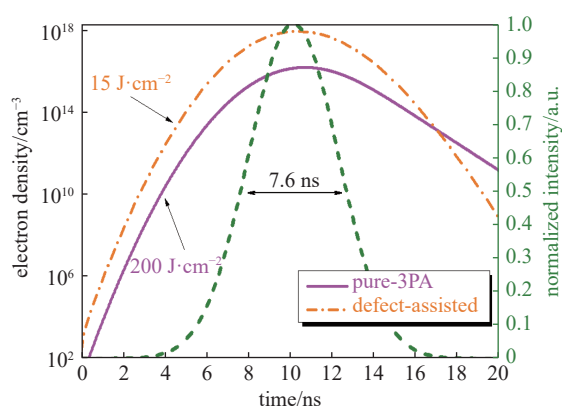


Fig. 12 Time-varying number density of conduction band electrons caused by pure 3PA (solid line) process at  $200 \text{ J}\cdot\text{cm}^{-2}$  (7.6 ns, 355 nm) and defect-assisted 3PA (dotted line) process at  $15 \text{ J}\cdot\text{cm}^{-2}$  (7.6 ns, 355 nm)<sup>[37]</sup>

图 12  $200 \text{ J}\cdot\text{cm}^{-2}$  (7.6 ns, 355 nm) 经过纯 3PA (实线) 过程和  
 $15 \text{ J}\cdot\text{cm}^{-2}$  (7.6 ns, 355 nm) 经过缺陷辅助 3PA (点划线)  
过程引起的导带电子数密度随时间变化<sup>[37]</sup>

## 5 KDP 类晶体的激光预处理技术

在 ICF 激光驱动器建设中,激光预处理技术对 DKDP 晶体的抗激光损伤能力提升发挥了不可或缺的作用。尽管已经有美国 NIF 装置建设利用在线纳秒激光预处理或离线亚纳秒激光预处理的成功经验,但美国 NIF 装置采用的 DKDP 晶体均为传统生长方法获得<sup>[8]</sup>,而我国的 DKDP 晶体研制采取了不同的晶体生长工艺方法,既有传统生长方法<sup>[87-88]</sup>,也有点籽晶横向双锥快速生长<sup>[21]</sup>、长籽晶快速生长<sup>[23-24]</sup>等多种新生长方法。因此,激光预处理对这些不同生长方法生长的晶体是否普适有效,不同生长方法是否对激光预处理的方案有影响,最终激光预处理后晶体是否能够满足 ICF 激光驱动器的运行通量要求,是研究人员要关注的问题。

激光预处理是利用亚阈值的能流密度处理晶体从而增强其抗激光损伤能力的方法,从实施的角度则需要考虑采取什么样的技术实现。美国 NIF 在建设初期是利用 NIF 装置在线纳秒激光预处理完成 DKDP 晶体的抗激光损伤性能提升<sup>[8]</sup>,从 2007 年起则采用离线的亚纳秒激光预处理完成这项任务<sup>[8]</sup>。课题组分别针对三倍频的纳秒和亚纳秒激光开展激光预处理研究,建立了离线式小光斑扫描激光预处理装置<sup>[89]</sup>。装置具有三倍频波段的纳秒激光输出和亚纳秒激光输出。纳秒激光采用 Nd:YAG 的三倍频脉冲作为光源,脉冲宽度 7.6 ns,重复频率 30 Hz,靶面光斑约 1.5 mm,最高能量密度达到  $50 \text{ J}\cdot\text{cm}^{-2}$  (@355 nm);亚纳秒激光脉冲宽度在 300 ps~1 ns 之间可调,并且可以编辑设计脉冲时间波形形状,脉冲重复频率 100 Hz,靶面最大能量密度达到  $10 \text{ J}\cdot\text{cm}^{-2}$  (@355 nm)。系统可处理  $430 \text{ mm}\times 430 \text{ mm}$  的晶体元件,具有完备的在线监控和自动化控制能力,系统实物如图 13 所示<sup>[89]</sup>。



Fig. 13 Laser conditioning platforms for large size DKDP crystals<sup>[89]</sup>

图 13 晶体元件激光预处理装置<sup>[89]</sup>

课题组开展了 DKDP 晶体的激光预处理研究,采用了波长 355 nm、脉宽 7.6 ns 和 500 ps 的脉冲分别进行小光斑扫描激光预处理实验,并利用 7.6 ns 的三倍频脉冲采用 R-on-1 方法测量了处理前后的激光损伤阈值。为了便于比较,图 14 中所有的损伤阈值数据均按  $t^{0.5}$  归一化为 5 ns。实验采用 DKDP 晶体样品来自三家不同的晶体生长单位,生长方法主要有传统生长和快速生长两种方法。从统计结果可以看出,不同生长方法得到的 DKDP 晶体在激光预处理后,其三倍频纳秒激光损伤阈值均得到增强,说明激光预处理具有普适性,并且 500 ps 脉宽的激光预处理效果优于 7.6 ns 脉冲的激光预处理。这与 NIF 报道的规律一致。

NIF 成功应用亚纳秒激光预处理技术<sup>[54]</sup>解决了 DKDP 晶体激光负载能力不足的问题,但并未继续就其原因和机理

做进一步的探讨,只是将其作为一个工程方案应用。课题组尝试了基于脉冲时间波形优化 DKDP 晶体激光预处理效果的方案<sup>[56]</sup>,通过设计四组不同时间波形的亚纳秒激光脉冲,如图 15<sup>[56]</sup>所示,探究了 DKDP 晶体激光诱导损伤和预处理特性对脉冲时间波形的依赖关系。时间波形激光预处理前后 DKDP 晶体的损伤概率曲线如图 16 所示。结果表明具有较长上升沿的 R400-F200 和 high-foot 亚纳秒激光的预处理效果更好,其中 R400-F200 预处理效果比传统高斯型 R300-F300 脉冲预处理效果高了 20%,极大地提升了晶体的抗激光诱导损伤性能。而具有更缓慢上升沿的 high-foot 脉冲预处理效果低于 R400-F200 预处理效果,可能与其上升沿持续时间为 1 ns 左右的平缓区有关,该区域占据了激光脉冲的部分能量,导致用于激光预处理的有效能量减少,从而使得其预处理效果有所减弱<sup>[56]</sup>。

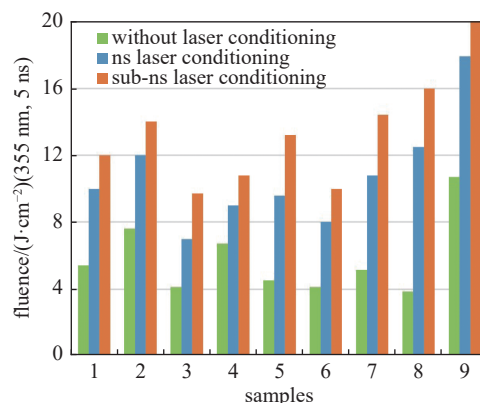


Fig. 14 Statistical results of LIDTs after laser conditioning of 355 nm laser with 7.6 ns and 500 ps

图 14 三倍频 7.6 ns 和 500 ps 脉冲激光预处理的阈值统计结果

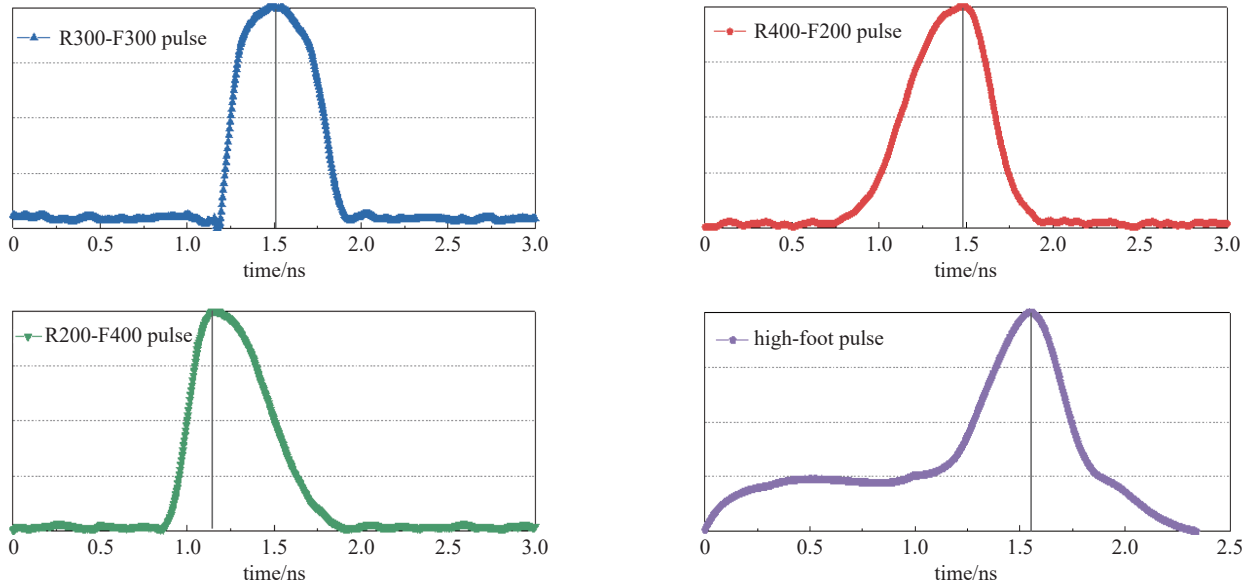


Fig. 15 Four types of temporally shaped sub-ns pulses<sup>[56]</sup>

图 15 四种波形变化的亚纳秒脉冲<sup>[56]</sup>

如图 17 所示, DKDP 晶体损伤形貌表明, 不同时间波形亚纳秒激光预处理后, 晶体体内缺陷出现了不同程度的热改性过程。激光辐照材料过程中, 材料中的缺陷吸收能量后被加热至临界温度, 熔化并形成熔体, 熔体会通过扩散、重结晶方式分散至周围基质中, 导致缺陷与材料基质混合吸收区的出现, 这类吸收区一般具有更大的体积与更小的吸收系数(缺陷分散后浓度降低), 因此当激光继续辐照材料时, 该吸收区对能量的吸收能力减弱, 更不容易诱导出损伤<sup>[90]</sup>。因此, 在本实验中, 经过具有慢上升脉冲前沿的 R400-F200 和 high-foot 激光预处理后 DKDP 晶体体内损伤点形貌无明显核心区且呈现出大的径向裂纹, 这表明在这种激光预处理过程中, 激光能够对损伤前驱体进行更彻底的热改性, 更好地提升晶体的抗激光损伤性能。

## 6 | 类 98%DKDP 在 OPCPA 中的激光损伤性能

在高功率激光装置中, 光参量啁啾脉冲放大(OPCPA)技术方案一般采用的 OPA 放大器集高增益、大带宽、良好光束质量与热效应弱等优点于一身<sup>[91-92]</sup>。不同于其他非线性光学晶体如 BBO、LBO 及 YCOB 晶体, DKDP 晶体具有能够生长出大尺寸单晶<sup>[10-11, 18]</sup>(目前的生长加工工艺已可获得 430 mm×430 mm 口径的晶体)的优势, 因此在超强超短激光装置中, 基于大口径 DKDP 晶体的 OPCPA 方案能够支持千焦耳量级的啁啾脉冲能量输出, 具有极短脉宽(小于 10 fs)及高光束质量等优点<sup>[93-94]</sup>。

研究表明, 在 OPCPA 中, DKDP 晶体具有比 KDP 晶体更大的带宽, 如以共线 526.5 nm 泵浦方式的 OPCPA 能够获得以 910 nm 为中心波长, 超过 150 nm 的带宽<sup>[95-96]</sup>。同时研究发现<sup>[97-98]</sup>, 随着 DKDP 晶体的 D 含量增加, 808 nm 中心波长处允许相位失配覆盖的波长范围增加, 增益带宽明显增加, 转换效率明显提升, 更易出现逆向转化, 如图 18 所示, 因此高氧 DKDP 晶体在 OPCPA 系统中具有重要的应用前景。

课题组研究了 OPCPA 应用的 98% 氧含量 DKDP 晶体的光学损耗及激光损伤特性<sup>[64]</sup>。图 19 为 98% 氧含量 DKDP 晶体的紫外-可见透过率光谱, 结合计算可知光开关元件在 532 nm 处的透过率及吸收系数分别为 93% 和 0.073 cm<sup>-1</sup>, 激光辐照后 98% 氧含量 DKDP 晶体的光学损耗较低。

课题组分别利用不同偏振态的 532 nm 脉冲激光对晶体进行了 R-on-1 激光损伤阈值测试, 其损伤概率曲线如图 20 所示, s 偏振和 p 偏振激光的损伤概率曲线基本重合, 尽管存在小概率损伤的差异导致不同偏振态的零概率

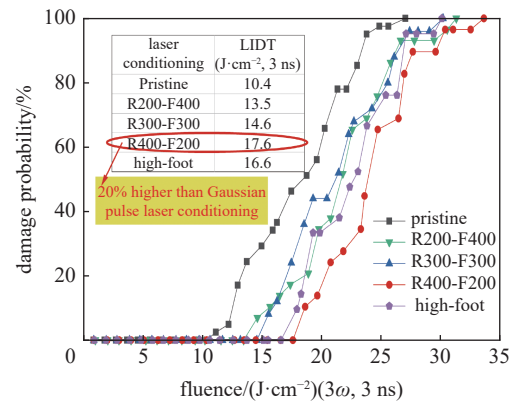


Fig. 16 R-on-1 damage probabilities in 8-ns Gaussian pulse, tested after laser conditioning with different temporally shaped pulses<sup>[56]</sup>

图 16 时间波形亚纳秒激光预处理前后 DKDP 晶体 R-on-1 损伤概率曲线<sup>[56]</sup>



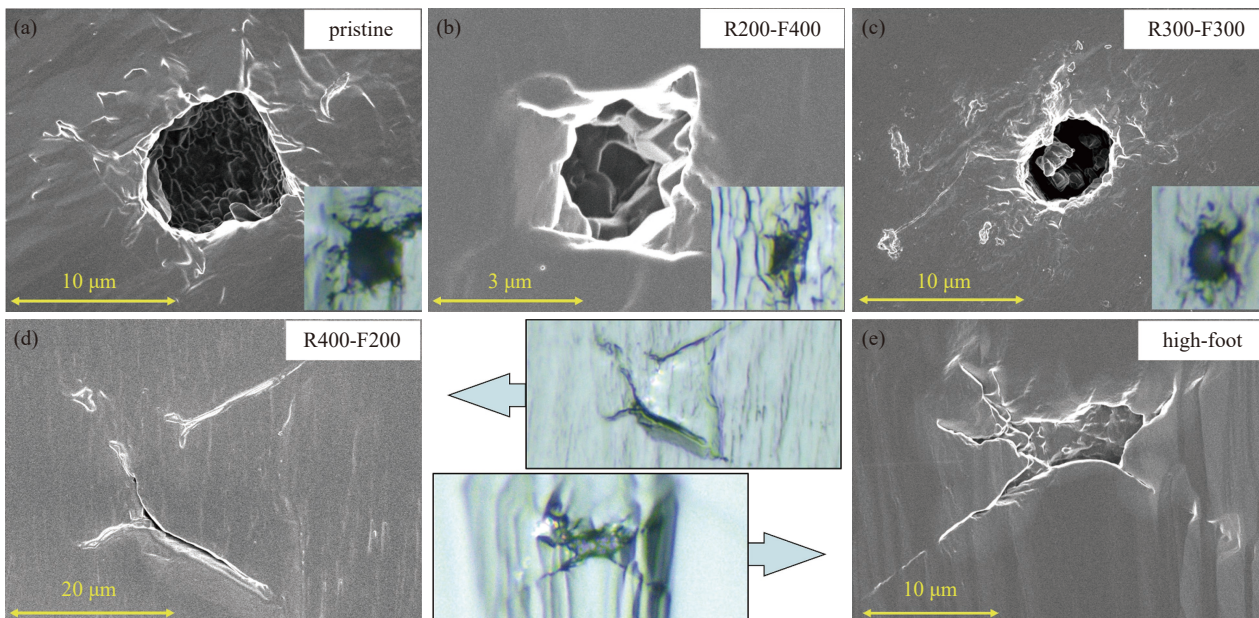


Fig. 17 SEM images of typical damage morphology initiated with 8 ns and  $23 \text{ J}\cdot\text{cm}^{-2}$  laser. The laser conditioning parameters are marked in the upper right corners of (a)–(e). The two images with an arrow and the insets in (a)–(c) indicate the damage morphologies detected via the optical microscopy<sup>[56]</sup>

图 17 不同时间波形亚纳秒激光预处理后, DKDP 晶体的纳秒激光 ( $8 \text{ ns}, F=23 \text{ J}\cdot\text{cm}^{-2}$ ) 诱导损伤典型 SEM 形貌。(a)–(e) 图右上角为亚纳秒激光预处理条件, 带有箭头的图像及插图均为光学显微镜下损伤点形貌<sup>[56]</sup>

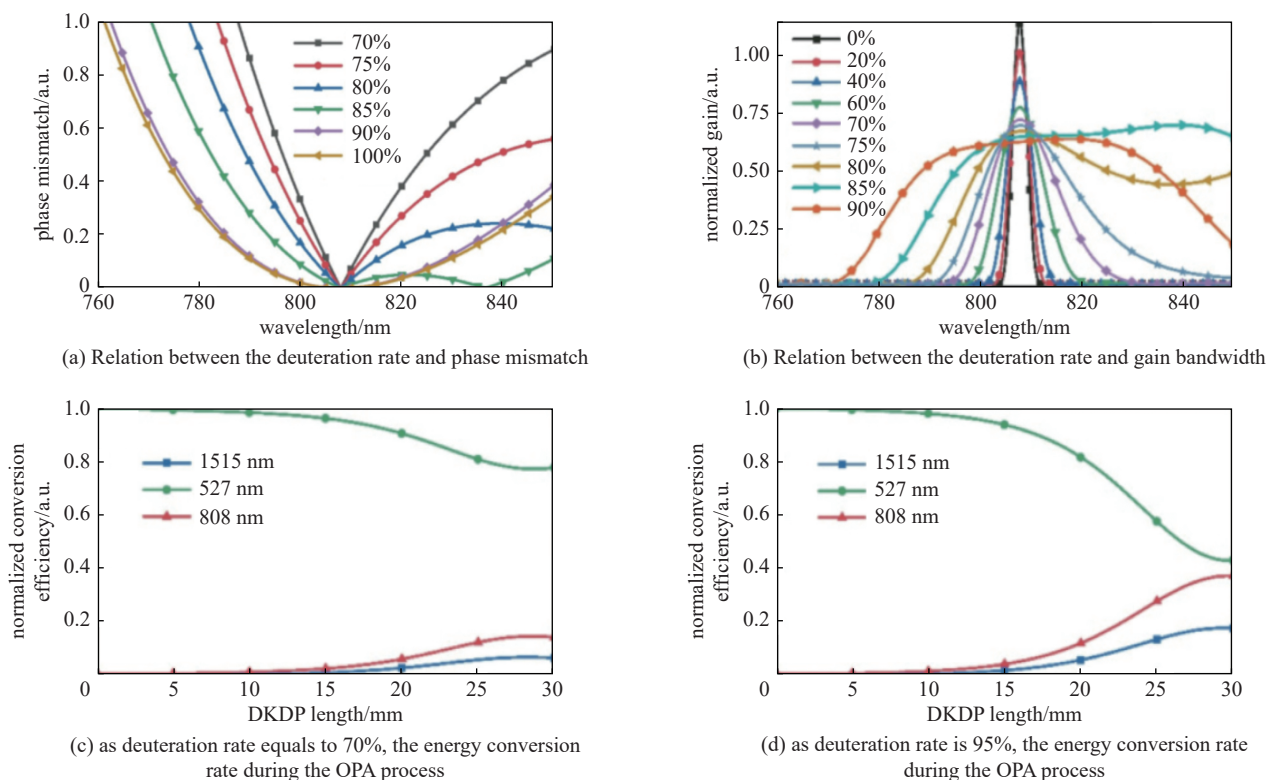


Fig. 18 Relationship between the deuteration rate of DKDP crystal and the OPA parameters<sup>[98]</sup>

图 18 DKDP 晶体氘化率与 OPA 参数之间关系<sup>[98]</sup>

激光诱导损伤阈值有差异, 分别为  $24.2 \text{ J}\cdot\text{cm}^{-2}@ (532 \text{ nm}, 3 \text{ ns}, \text{P})$  和  $19.9 \text{ J}\cdot\text{cm}^{-2}@ (532 \text{ nm}, 3 \text{ ns}, \text{S})$ , 但从整体情况看, 没有表现出明显的偏振依赖特征。损伤阈值的数据也表明, 98% 氘含量的 DKDP 晶体具有良好的抗激光损伤性能, 在 OPCPA 超强超短激光装置中具有极好的应用前景。

## 7 结论

KDP 类晶体作为现今唯一满足 ICF 激光驱动器建设需求的非线性光学晶体, 其抗激光损伤性能与晶体切向和

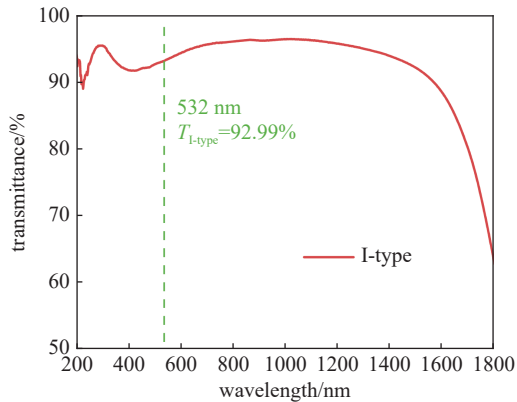


Fig. 19 Transmittance spectrum of the high deuterium DKDP crystals<sup>[64]</sup>

图 19 高氘 DKDP 晶体的透过率光谱<sup>[64]</sup>

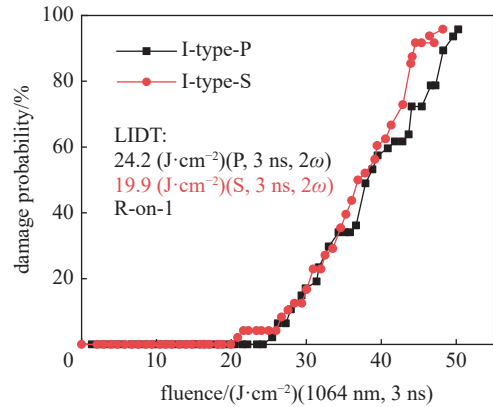


Fig. 20 Laser-induced damage results of high deuterium DKDP crystals in R-on-1 method<sup>[64]</sup>

图 20 98% 含氘量 DKDP 晶体的激光损伤概率 (R-on-1 测量方法)<sup>[64]</sup>

应用的激光参数如波段具有密切的关系。本文从高功率 ICF 激光驱动器应用的几类典型 KDP 及不同含氘量 DKDP 元件的实际高通量激光应用需求出发,研究了光开关晶体、倍频晶体、混频晶体以及用于 OPCPA 系统的晶体在工作激光条件下的激光损伤特性和损伤机理,用于指导晶体生长工艺优化和关键因素控制。光开关晶体和倍频晶体工作在  $1\ \mu\text{m}$  波段,热吸收是诱导晶体损伤的主要机制,采用 Z 切 98% 氘含量的 DKDP 晶体比 KDP 的吸收降低约 7%,损伤阈值可以达到  $40\ \text{J}\cdot\text{cm}^{-2}$  (1064 nm, 3 ns);而快速生长 I 类 KDP 内的亚微米尺度前驱体是激光损伤诱因,前驱体尺度与抗激光损伤性能相关,通过晶体生长过程的连续过滤将前驱体控制在 10 nm 量级则可获得优于  $20\ \text{J}\cdot\text{cm}^{-2}$  (1064 nm, 3 ns) 的抗激光损伤性能。70% 氘含量 DKDP 混频晶体的激光损伤源于紫外三倍频激光,在低通量下与晶体热吸收有关,而在高通量激光下则转化为电子缺陷辅助多光子非线性吸收,激光损伤前驱体的特征尚无有效方案表征,也还不能建立晶体结构与前驱体形成的关系。激光预处理技术可以有效抑制 DKDP 晶体的前驱体,从而提高损伤阈值,课题组创新建立了非对称波形的亚纳秒激光预处理装置,获得了比对称波形亚纳秒激光预处理更优的阈值提升性能,达到  $17\ \text{J}\cdot\text{cm}^{-2}$  (355 nm, 3 ns)。此外,快速生长的 98% 氘含量 DKDP 晶体具有良好的抗激光损伤性能,达到  $20\ \text{J}\cdot\text{cm}^{-2}$  (532 nm, 3 ns),在 OPCPA 超强超短激光装置中具有极好的应用前景。到目前为止,对 DKDP 混频晶体的紫外激光损伤仍存在前驱体无法溯源,以及晶体生长工艺控制缺乏有效指导的困难,发展纳观尺度前驱体的直接表征技术以及开展皮秒量级的损伤动力学将是今后突破这类激光损伤瓶颈问题的重要研究内容。

**致谢** 感谢中科院福建物构所姚元根研究员、郑国宗研究员,山东大学许心光教授、孙润教授,上海光机所齐红基研究员等在研究过程中的有益探讨。感谢上海光机所冷雨欣研究员、彭宇杰研究员在激光技术方面提供的帮助。

#### 参考文献:

- [1] Rashkovich L N, Shlakhova O. KDP-family single crystals[M]. CRC Press, 2021.
- [2] Lindl J D, Mccrory R L, Campbell E M. Progress toward ignition and burn propagation in inertial confinement fusion[J]. *Physics Today*, 1992, 45(9): 32-40.
- [3] Campbell J H, Hawley-Fedder R A, Stolz C J, et al. NIF optical materials and fabrication technologies: an overview[C]//Proceedings of SPIE 5341, Optical Engineering at the Lawrence Livermore National Laboratory II: The National Ignition Facility. 2004.
- [4] Hawley-Fedder R A, Geraghty P, Locke S N, et al. NIF Pockels cell and frequency conversion crystals[C]//Proceedings of SPIE 5341, Optical Engineering at the Lawrence Livermore National Laboratory II: The National Ignition Facility. 2004.
- [5] Moses E I, Lindl J D, Spaeth M L, et al. Overview: Development of the National Ignition Facility and the transition to a user facility for the ignition campaign and high energy density scientific research[J]. *Fusion Science and Technology*, 2016, 69(1): 1-24.
- [6] Van Wouterghem B M, Brereton S J, Burr R F, et al. Operations on the National Ignition Facility[J]. *Fusion Science and Technology*, 2016, 69(1): 452-469.
- [7] Spaeth M L, Manes K R, Bowers M, et al. National Ignition Facility laser system performance[J]. *Fusion Science and Technology*, 2016, 69(1): 366-394.
- [8] Baisden P A, Atherton L J, Hawley R A, et al. Large optics for the National Ignition Facility[J]. *Fusion Science and Technology*, 2016, 69(1): 295-351.
- [9] Xu Mingxia, Liu Bao'an, Zhang Lisong, et al. Progress on deuterated potassium dihydrogen phosphate (DKDP) crystals for high power laser system application[J]. *Light: Science & Applications*, 2022, 11: 241.
- [10] Zhuang Xinxin, Ye Liwang, Zheng Guozong, et al. The rapid growth of large-scale KDP single crystal in brief procedure[J]. *Journal of Crystal Growth*, 2011, 318(1): 700-702.

- [11] Zaitseva N P, De Yoreo J J, Dehaven M R, et al. Rapid growth of large-scale (40-55 cm)  $\text{KH}_2\text{PO}_4$  crystals[J]. *Journal of Crystal Growth*, 1997, 180(2): 255-262.
- [12] 秦梦飞. 大口径KDP晶体快速生长过程中几个关键问题的研究[D]. 济南: 山东大学, 2020. (Qin Mengfei. Research on several key problems during the rapid growth of large-diameter KDP crystals[D]. Ji'nan: Shandong University, 2020)
- [13] Zaitseva N, Carman L J. Rapid growth of KDP-type crystals[J]. *Progress in Crystal Growth and Characterization of Materials*, 2001, 43(1): 1-118.
- [14] Zaitseva N, Carman L, Smolsky I. Habit control during rapid growth of KDP and DKDP crystals[J]. *Journal of Crystal Growth*, 2002, 241(3): 363-373.
- [15] Sasaki T, Yokotani A. Growth of large KDP crystals for laser fusion experiments[J]. *Journal of Crystal Growth*, 1990, 99(1-4): 820-826.
- [16] Nakatsuka M, Fujioka K, Kanabe T, et al. Rapid growth over 50 mm/day of water-soluble KDP crystal[J]. *Journal of Crystal Growth*, 1997, 171(3-4): 531-537.
- [17] Maunier C, Bouchut P, Bouillet S, et al. Growth and characterization of large KDP crystals for high power lasers[J]. *Optical Materials*, 2007, 30(1): 88-90.
- [18] 庄欣欣, 叶李旺, 汪剑成, 等. 点籽晶降温法快速生长大尺寸磷酸二氢钾晶体[J]. *强激光与粒子束*, 2010, 22(12): 2857-2859. (Zhuang Xinxin, Ye Liwang, Wang Jiancheng, et al. Rapid growth of large size KDP crystal by temperature reduction method[J]. *High Power Laser and Particle Beams*, 2010, 22(12): 2857-2859)
- [19] 张力元, 王圣来, 刘慧, 等. 超大尺寸KDP/DKDP晶体研究进展[J]. *人工晶体学报*, 2021, 50(4): 724-731. (Zhang Liyuan, Wang Shenglai, Liu Hui, et al. Research progress of oversized KDP/DKDP crystals[J]. *Journal of Synthetic Crystals*, 2021, 50(4): 724-731)
- [20] Li Guohui, Zheng Guozong, Qi Yingkun, et al. Rapid growth of a large-scale (600 mm aperture) KDP crystal and its optical quality[J]. *High Power Laser Science and Engineering*, 2014, 2: e2.
- [21] 蔡序敏, 祁英昆, 赵元安, 等. 横向双锥快速生长35% DKDP晶体的研究[J]. *人工晶体学报*, 2019, 48(4): 587-591,597. (Cai Xumin, Qi Yingkun, Zhao Yuan'an, et al. Study on the growth of 35% DKDP crystals by rapid horizontal growth method[J]. *Journal of Synthetic Crystals*, 2019, 48(4): 587-591,597)
- [22] Xie Xiaoyi, Qi Hongji, Wang Bin, et al. The performance studies of DKDP crystals grown by a rapid horizontal growth method[J]. *Journal of Crystal Growth*, 2018, 487: 45-49.
- [23] Chen Duanyang, Wang Bin, Wang Hu, et al. Rapid growth of a cuboid DKDP ( $\text{KD}_2\text{H}_{2-x}\text{PO}_4$ ) crystal[J]. *Crystal Growth & Design*, 2019, 19(5): 2746-2750.
- [24] Chen Duanyang, Wang Bin, Wang Hu, et al. Rapid growth of a long-seed KDP crystal[J]. *High Power Laser Science and Engineering*, 2020, 8: e6.
- [25] Barrett J J, Weber A. Temperature dependence of optical harmonic generation in KDP and ADP crystals[J]. *Physical Review*, 1963, 131(4): 1469-1472.
- [26] Barrett J J. Investigations of nonlinear optical phenomena using a pulsed ruby laser[M]. Fordham University, 1964.
- [27] Wright J K. Non-linear optics[J]. *Contemporary Physics*, 1964, 6(1): 1-14.
- [28] Ristau D. Laser-induced damage in optical materials[M]. Boca Raton: CRC Press, 2014.
- [29] 孙洵, 顾庆天, 王圣来, 等. KDP晶体中散射颗粒形成机理的研究[J]. *人工晶体学报*, 2003, 32(6): 541-545. (Sun Xun, Gu Qingtian, Wang Shenglai, et al. Formation mechanism of scatter particles in KDP crystals[J]. *Journal of Synthetic Crystals*, 2003, 32(6): 541-545)
- [30] 孙洵. KDP(DKDP)晶体中散射颗粒的研究[D]. 济南: 山东大学, 2002. (Sun Xun. Study on scatters in KDP and DKDP crystals[D]. Ji'nan: Shandong University, 2002)
- [31] 胡国行. KDP/DKDP晶体和熔石英激光损伤及抑制技术研究[D]. 北京: 中国科学院大学, 2011. (Hu Guoxing. Laser induced damage and suppression techniques for KDP/DKDP crystal and fused silica [D]. Beijing: Chinese Academy of Sciences, 2011)
- [32] 刘征宙, 孙文伟, 王伟, 等. 强激光用KDP晶体原料批量生产纯化技术的研究[C]//强激光材料与元器件学术研讨会暨激光破坏学术研讨会论文集. 2016. (Liu Zhengzhou, Sun Wenwei, Wang Wei, et al. Study on KDP crystals raw material batch production and purification technology in strong laser application[C]. Proceedings of the Symposium on High Power Laser Materials and Components and the Symposium on Laser Destruction. 2016)
- [33] 汪剑成. 溶液连续过滤快速生长KDP(DKDP)晶体的研究[D]. 福州: 中国科学院福建物质结构研究所, 2009. (Wang Jiancheng. Study on the rapid growth of KDP(DKDP) crystal with solution continuous filtration technic[D]. Fuzhou: Fujian Institute of Research on the Structure, 2009)
- [34] 汪剑成, 苏根博, 郑国宗, 等. 溶液连续过滤快速生长KDP晶体及其品质分析[J]. *人工晶体学报*, 2010, 39(1): 1-4. (Wang Jiancheng, Su Genbo, Zheng Guozong, et al. Continuous filtration system for rapid growth and quality analysis of KDP crystals[J]. *Journal of Synthetic Crystals*, 2010, 39(1): 1-4)
- [35] Wang Yueliang, Zhao Yuan'an, Xie Xiaoyi, 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.
- [36] 谢晓义. KDP/DKDP晶体生长关键技术研究[D]. 北京: 中国科学院大学, 2018. (Xie Xiaoyi. Research study on key technologies of KDP/DKDP crystal growth[D]. Beijing: University of Chinese Academy of Sciences, 2018)
- [37] 王岳亮. I类KDP和II类DKDP晶体激光损伤机理及激光预处理特性研究[D]. 北京: 中国科学院大学, 2017: 53-66. (Wang Yueliang. Laser damage mechanisms and laser conditioning properties in I-type KDP and II-type DKDP crystals[D]. Beijing: University of Chinese Academy of Sciences, 2017: 53-66)
- [38] 彭小聪. KDP/DKDP晶体吸收特性及缺陷辅助多光子吸收机理研究[D]. 北京: 中国科学院大学, 2019. (Peng Xiaocong. Absorption properties and defect-assisted multiphoton absorption mechanism in KDP/DKDP crystals [D]. Beijing: Chinese Academy of Sciences, 2019)
- [39] 连亚飞. 短波长下ADP晶体的非线性及损伤性能研究[D]. 济南: 山东大学, 2019. (Lian Yafei. Research on nonlinear properties and laser induced damage performance of ADP crystals at short wavelengths[D]. Ji'nan: Shandong University, 2019)
- [40] Carr C W, Radosky H B, Demos S G. Wavelength dependence of laser-induced damage: determining the damage initiation mechanisms[J]. *Physical Review Letters*, 2003, 91: 127402.
- [41] Demos S G, Demange P, Negres R A, et al. Investigation of the electronic and physical properties of defect structures responsible for laser-induced damage in DKDP crystals[J]. *Optics Express*, 2010, 18(13): 13788-13804.



- [42] Duchateau G, Feit M D, Demos S G. Transient material properties during defect-assisted laser breakdown in deuterated potassium dihydrogen phosphate crystals[J]. *Journal of Applied Physics*, 2014, 115: 103506.
- [43] Han Wei, Wang Fang, Zhou Lidan, et al. Suppression of transverse stimulated Raman scattering with laser-induced damage array in a large-aperture potassium dihydrogen phosphate crystal[J]. *Optics Express*, 2013, 21(25): 30481-30491.
- [44] Demos S G, Raman R N, Yang S T, et al. Estimation of the transverse stimulated Raman scattering gain coefficient in KDP and DKDP at  $2\omega$ ,  $3\omega$ , and  $4\omega$ [C]//Proceedings of SPIE 8190, Laser-Induced Damage in Optical Materials. 2011.
- [45] Kosc T Z, Huang H, Kessler T J, et al. Angular dependence of the transverse Raman scattering in KDP and DKDP in geometries suitable for beam polarization control[J]. *Optics Express*, 2022, 30(8): 12918-12928.
- [46] Peng Xiaocong, Zhao Yuan'an, Wang Yueliang, et al. Variation of the band structure in DKDP crystal excited by intense sub-picosecond laser pulses[J]. *High Power Laser Science and Engineering*, 2018, 6: e41.
- [47] Peng Xiaocong, Zhao Yuan'an, Wang Yueliang, et al. Absorption modification by laser irradiation in DKDP crystals[J]. *Chinese Optics Letters*, 2018, 16(5): 051601.
- [48] Manes K R, Spaeth M L, Adams J J, et al. Damage mechanisms avoided or managed for NIF large optics[J]. *Fusion Science and Technology*, 2016, 69(1): 146-249.
- [49] Runkel M J, Nostrand M C. Overview of raster scanning for ICF-class laser optics[C]//Proceedings of SPIE 4932, Laser-Induced Damage in Optical Materials: 2002 and 7th International Workshop on Laser Beam and Optics Characterization. 2003.
- [50] Staggs M C, Yan Ming, Runkel M J. Laser raster conditioning of KDP and DKDP crystals using XeCl and Nd: YAG lasers[C]//Proceedings of SPIE 4347, Laser-Induced Damage in Optical Materials: 2000. 2001.
- [51] Zhi M. Liao, Spaeth M L, Manes K, et al. Predicting laser-induced bulk damage and conditioning for deuterated potassium dihydrogen phosphate crystals using an absorption distribution model[J]. *Optics Letters*, 2010, 35(15): 2538-2540.
- [52] Adams J J, Bruere J R, Bolourchi M, et al. Wavelength and pulselength dependence of laser conditioning and bulk damage in doubler-cut  $\text{KH}_2\text{PO}_4$ [C]//Proceedings of SPIE 5991, Laser-Induced Damage in Optical Materials: 2005; 59911R. 2006.
- [53] Runkel M J, Burnham A K, Milam D, et al. Results of pulse-scaling experiments on rapid-growth DKDP triplers using the optical sciences laser at 351 nm[C]//Proceedings of SPIE 4347, Laser-Induced Damage in Optical Materials: 2000. 2001.
- [54] Adams J J, Jarboe J A, Carr C W, et al. Results of sub-nanosecond laser-conditioning of  $\text{KD}_2\text{PO}_4$  crystals[C]//Proceedings of SPIE 6403, Laser-Induced Damage in Optical Materials: 2006. 2007.
- [55] Honig J, Halpin J. Diode-pumped 22-W average-power uv laser with user-selectable pulse width and >50% conversion efficiency[C]//Proceedings of the Conference on Lasers and Electro-Optics. 2007.
- [56] Li Ting, Zhao Yuan'an, Lian Yafei, et al. Optimizing sub-nanosecond laser conditioning of DKDP crystals by varying the temporal shape of the pulse[J]. *Optics Express*, 2021, 29(22): 35993-36004.
- [57] 刘宝安. DKDP系统晶体制备及性质研究[D]. 济南: 山东大学, 2013. (Liu Bao'an. Study on the growth and properties of DKDP crystals[D]. Ji'nan: Shandong University, 2013)
- [58] 蔡东廷. DKDP晶体的紫外非线性及损伤特性研究[D]. 济南: 山东大学, 2020. (Cai Dongting. Research on nonlinear properties and damage characteristics of DKDP crystal in ultraviolet wavelengths[D]. Ji'nan: Shandong University, 2020)
- [59] Natoli J Y, Capoulade J, Piombini H, et al. Influence of laser beam size and wavelength in the determination of LIDT and associated laser damage precursor densities in  $\text{KH}_2\text{PO}_4$ [C]//Proceedings of SPIE 6720, Laser-Induced Damage in Optical Materials: 2007. 2007.
- [60] Reyné S, Duchateau G, Natoli J Y, et al. Laser-induced damage of KDP crystals by  $1\omega$  nanosecond pulses: influence of crystal orientation[J]. *Optics Express*, 2009, 17(24): 21652-21665.
- [61] Cross D A, Carr C W. Analysis of  $1\omega$  bulk laser damage in KDP[J]. *Applied Optics*, 2011, 50(22): D7-D11.
- [62] Burnham A K, Runkel M, Feit M D, et al. Laser-induced damage in deuterated potassium dihydrogen phosphate[J]. *Applied Optics*, 2003, 42(27): 5483-5495.
- [63] Demange P P. Laser-induced defect reactions governing the damage performance of KDP and DKDP[D]. Davis: University of California, 2006.
- [64] Lian Yafei, Zhao Yuan'an, Zheng Guozong, et al. Optical and laser damage properties of 98% deuterium DKDP crystal in different crystal orientations[J]. *Optical Materials*, 2022, 134: 113130.
- [65] 刘发付. KDP/DKDP晶体生长及其残余应力研究[D]. 济南: 山东大学, 2017. (Liu Fafu. Research on growth and residual stress of KDP/DKDP Crystals[D]. Ji'nan: Shandong University, 2017)
- [66] Cai Xumin, Lin Xiuqing, Li Guohui, et al. Rapid growth and properties of large-aperture 98%-deuterated DKDP crystals[J]. *High Power Laser Science and Engineering*, 2019, 7: e46.
- [67] Yoshida H, Jitsuno T, Fujita H, et al. Investigation of bulk laser damage in KDP crystal as a function of laser irradiation direction, polarization, and wavelength[J]. *Applied Physics B*, 2000, 70(2): 195-201.
- [68] Spaeth M L, Manes K R, Kalantar D H, et al. Description of the NIF laser[J]. *Fusion Science and Technology*, 2016, 69(1): 25-145.
- [69] Zaitseva N, Carman L, Smolsky I, et al. The effect of impurities and supersaturation on the rapid growth of KDP crystals[J]. *Journal of Crystal Growth*, 1999, 204(4): 512-24.
- [70] Hu Guohang, Zhao Yuan'an, Li Dawei, et al. Transmittance increase after laser conditioning reveals absorption properties variation in DKDP crystals[J]. *Optics*

- Express*, 2012, 20(22): 25169-25180.
- [71] Zaitseva N, Atherton J, Rozsa R, et al. Design and benefits of continuous filtration in rapid growth of large KDP and DKDP crystals[J]. *Journal of Crystal Growth*, 1999, 197(4): 911-920.
- [72] Demange P, Negres R A, Carr C W, et al. Laser-induced defect reactions governing damage initiation in DKDP crystals[J]. *Optics Express*, 2006, 14(12): 5313-5328.
- [73] Duchateau G. Simple models for laser-induced damage and conditioning of potassium dihydrogen phosphate crystals by nanosecond pulses[J]. *Optics Express*, 2009, 17(13): 10434-10456.
- [74] Zhi M. Liao, Roussell R, Adams J J, et al. Defect population variability in deuterated potassium di-hydrogen phosphate crystals[J]. *Optical Materials Express*, 2012, 2(11): 1612-1623.
- [75] Wang Yueliang, Zhao Yuanan, Hu Guohang, et al. Mitigation of scattering defect and absorption of DKDP crystals by laser conditioning[J]. *Optics Express*, 2015, 23(12): 16273-16280.
- [76] Liu C S, Kioussis N, Demos S G, et al. Electron-or hole-assisted reactions of H defects in hydrogen-bonded KDP[J]. *Physical Review Letters*, 2003, 91(1): 015505.
- [77] Liu C S, Zhang Q, Kioussis N, et al. Electronic structure calculations of intrinsic and extrinsic hydrogen point defects in  $\text{KH}_2\text{PO}_4$ [J]. *Physical Review B*, 2003, 68(22): 224107.
- [78] Liu C S, Hou C J, Kioussis N, et al. Electronic structure calculations of an oxygen vacancy in  $\text{KH}_2\text{PO}_4$ [J]. *Physical Review B*, 2005, 72(13): 134110.
- [79] Wang Kunpeng, Fang Changshui, Zhang Jianxiu, et al. First-principles study of interstitial oxygen in potassium dihydrogen phosphate crystals[J]. *Physical Review B*, 2005, 72: 184105.
- [80] Wei Liening, Li Yang, Jiang Xuanyu, et al. Electron paramagnetic resonance spectroscopy and first-principles calculations of  $\text{Cr}^{3+}$  doped KDP crystals[J]. *CrystEngComm*, 2022, 24(27): 4948-4954.
- [81] Li Yang, Liu Bao'an, Li Yanlu, et al. Hybrid density functional theory calculations for the electronic and optical properties of  $\text{Fe}^{3+}$  doped KDP crystal[J]. *CrystEngComm*, 2022, 24(46): 8082-8088.
- [82] Li Yang, Jiang Xuanyu, Wu Pengcheng, et al. Insight into the stability and properties of Zn-doped  $\text{KH}_2\text{PO}_4$  crystal by hybrid density functional theory[J]. *Crystal Research and Technology*, 2023, 58: 2200107.
- [83] Setzler S D, Stevens K T, Halliburton L E, et al. Hydrogen atoms in  $\text{KH}_2\text{PO}_4$  crystals[J]. *Physical Review B*, 1998, 57(5): 2643-2646.
- [84] Garces N Y, Stevens K T, Halliburton L E, et al. Identification of electron and hole traps in  $\text{KH}_2\text{PO}_4$  crystals[J]. *Journal of Applied Physics*, 2001, 89(1): 47-52.
- [85] Chirila M M, Garces N Y, Halliburton L E, et al. Production and thermal decay of radiation-induced point defects in  $\text{KD}_2\text{PO}_4$  crystals[J]. *Journal of Applied Physics*, 2003, 94(10): 6456-6462.
- [86] Keldysh L V. Ionization in the field of a strong electromagnetic wave[J]. *Soviet Physics JETP*, 1965, 20(5): 1307-1314.
- [87] 鲁智宽, 高樟寿, 李义平, 等. 溶液循环流动法生长大尺寸KDP晶体[J]. *人工晶体学报*, 1996, 25(1): 19-22. (Lu Zhikuan, Gao Zhangshou, Li Yiping, et al. Growth of large KDP crystals by solution circulating method[J]. *Journal of Synthetic Crystals*, 1996, 25(1): 19-22)
- [88] 房昌水, 王圣来, 李义平, 等. 大尺寸高质量KDP及DKDP单晶的研究[C]//中国硅酸盐学会2003年学术年会论文摘要集. 2003. (Fang Changshui, Wang Shenglai, Li Yiping, et al. Research on large-size and high-quality KDP and DKDP single crystals[C]//Abstracts of Papers of the 2003 Academic Annual Meeting of China Silicate Society. 2003)
- [89] 赵元安, 胡国行, 刘晓凤, 等. 激光预处理技术及其应用[J]. *光学精密工程*, 2016, 24(12): 2938-2947. (Zhao Yuan'an, Hu Guoxing, Liu Xiaofeng, et al. Laser conditioning technology and its applications[J]. *Optics and Precision Engineering*, 2016, 24(12): 2938-2947)
- [90] Dyan A, Pommiès M, Duchateau G, et al. Revisited thermal approach to model laser-induced damage and conditioning process in  $\text{KH}_2\text{PO}_4$  and  $\text{D}_2\text{xKH}_{2(1-x)}\text{PO}_4$  crystals[C]//Proceedings of SPIE 6403, Laser-Induced Damage in Optical Materials: 2006. 2007.
- [91] Strickland D, Mourou G. Compression of amplified chirped optical pulses[J]. *Optics Communications*, 1985, 56: 219-221.
- [92] Dubietis A, Jonušauskas G, Piskarskas A. Powerful femtosecond pulse generation by chirped and stretched pulse parametric amplification in BBO crystal[J]. *Optics Communications*, 1992, 88(4/6): 437-440.
- [93] Lureau F, Matras G, Chalus O, et al. High-energy hybrid femtosecond laser system demonstrating  $2 \times 10$  PW capability[J]. *High Power Laser Science and Engineering*, 2020, 8: e43.
- [94] Danson C N, Haefner C, Bromage J, et al. Petawatt and exawatt class lasers worldwide[J]. *High Power Laser Science and Engineering*, 2019, 7: e54.
- [95] Galimberti M, Hernandez-Gomez C, Musgrave I, et al. Influence of the deuteration level of the  $\text{KD}^*\text{P}$  crystal on multi-PW class OPCPA laser[J]. *Optics Communications*, 2013, 309: 80-84.
- [96] Galimberti M, Boyle A, Musgrave I O, et al. Spectral gain investigation of large size OPCPA based on partially deuterated KDP[J]. *EPJ Web of Conferences*, 2018, 167: 01006.
- [97] 梁潇, 康俊, 孙美智, 等. 基于DKDP晶体的808nm波段光参量放大研究[J]. *激光与光电子学进展*, 2016, 53: 081901. (Liang Xiao, Kang Jun, Sun Meizhi, et al. 808-nm optical parametric amplification based on DKDP crystals[J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2016, 53: 081901)
- [98] 孙子茗, 刘德安, 韩璐, 等. 基于电光调制的DKDP晶体OPCPA增益带宽特性研究[J]. *中国激光*, 2020, 47: 1008001. (Sun Ziming, Liu De'an, Han Lu, et al. Study on gain bandwidth characteristics of DKDP-OPCPA based on electro-optic modulation[J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2020, 47: 1008001)