材料、结构及工艺

DOI：10.16818/j.issn1001－5868.2022021702

高斯和平顶分布纳秒激光诱导KTP晶体损伤

张思楠[1,2]，白　芳[1]，麻云凤[1,2*]，杨学博[1]，殷晨轩[1,2]，程　旺[1]，
周家玮[3]，曹　灿[1]，郭广妍[1]，赵　鹏[1]，樊仲维[1]

（1. 中国科学院空天信息创新研究院，北京 100094；2. 中国科学院大学 光电学院，北京 100049；
3. 中国计量大学 光电学院，杭州 310018）

摘　要： KTP晶体的抗激光损伤能力影响了其在高端固体激光系统中的应用。利用波长为1.064 μm、重频为10 Hz、脉宽为10 ns和两种空间分布的光束（即高斯光束和平顶光束）的激光对KTP晶体进行了激光诱导损伤的仿真和实验。结果表明，在平顶激光和高斯激光的损伤测试中，KTP晶体的激光诱导损伤阈值分别为1.78和2.28 GW/cm^2。平顶激光辐照KTP晶体，损伤形貌为明显的烧蚀形态和裂纹，而高斯激光辐照KTP晶体时，前表面出现了典型的纳秒激光损伤形态，即熔融形成的凹坑。此外，在平顶激光测试下，观察到损伤区域边缘颜色变化。

关键词： KTP晶体；激光诱导损伤；平顶光束；高斯光束

中图分类号： TN249　**文章编号：** 1001－5868(2022)05－0903－06

Laser-induced Damage of KTP Crystal Using Nanosecond Lasers with Flat-top and Gaussian Spatial Distributions

ZHANG Sinan[1,2], BAI Fang[1], MA Yunfeng[1,2], YANG Xuebo[1], YIN Chenxuan[1,2],
CHENG Wang[1], ZHOU Jiawei[3], CAO Can[1], GUO Guangyan[1], ZHAO Peng[1], FAN Zhongwei[1]

(1. Aerospace Information Research Institute, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100094, CHN;
2. School of Optoelectronics, University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, CHN;
3. School of Optoelectronics, China Jiliang University, Zhejiang 310018, CHN)

Abstract: The laser damage resistance of KTP crystal affects its application in the high-end solid-state laser systems. This study performed the simulation and actual experiments of laser-induced damage of KTP crystal using the laser with a wavelength of 1.064 μm, a heavy frequency of 10 Hz, a pulse width of 10 ns and two spatially distributed beams, i.e., Gaussian beam and flat-top beam. Results indicate that the laser-induced damage thresholds of KTP crystals are 1.78 and 2.28 GW/cm^2 respectively for the flat-top beam and Gaussian beam. The laser-induced damage experiments show that the flat-top beam causes obvious ablation morphology and cracks in the KTP crystal while the Gaussian beam causes typical nanosecond laser damage on the front of surface: pits caused by melting. In addition, the color changes in the edge of the damage region can be observed in case of flat-top beam.

Key words: KTP crystal; laser-induced damage; flat-top beam; Gaussian beam

收稿日期：2022－02－17.
基金项目：中国科学院青年创新促进会项目(2017195).
*通信作者：麻云凤　**E-mail：**896454870@qq.com

0 引言

磷酸钛钾($KTiOPO_4$,KTP)晶体作为一种非线性光学材料,被广泛用于高端固体激光系统[1-3]。高能激光器的不断发展,对 KTP 晶体的抗激光损伤能力提出了严格的要求。因此,有必要对 KTP 晶体的损伤机制进行研究。

对 KTP 晶体损伤的研究可以分为两类:光折变损伤和灾难性损伤。早期主要研究光折变损伤[4-8],即灰迹现象,这是一种暂时性的损伤,在退火条件下可以恢复[4]。当 KTP 晶体被激光辐照时,由于倍频效应出现色心;同时,在多光子吸收的作用下,色心进一步吸收激光能量,从而出现灰迹现象。最初研究人员认为,只有倍频光存在时才会产生灰迹,且轻微的灰迹对转换效率没有影响[7]。但之后的研究表明,在激光辐照、高温气体或直流电场的情况下,单独使用 532 nm[9] 或 355 nm[5] 激光对 KTP 晶体进行辐照也可以产生灰迹[10]。灾难性损伤是指激光辐照 KTP 晶体造成的永久性损伤,一般指由于 KTP 晶体的各向异性结构,纳秒激光导致其激光诱导损伤阈值(Laser Induced Damage Threshold,LIDT)的各向异性[11-15]。此外,KTP 晶体的 LIDT 差异性与激光传播方向无关,而与偏振方向有关[11-15]。

研究人员已经在不同的实验条件(不同波长、脉宽和晶体参数等)下研究了 KTP 晶体的损伤情况。测试样品主要是用于倍频且满足Ⅱ类相位匹配条件的 KTP 晶体。然而,在研究 KTP 晶体的损伤特性中,作用激光基本都是高斯激光[11,13,15-17]。随着激光技术的发展,平顶激光被广泛应用于微电子激光加工中,如熔融蚀刻、钎焊、钻孔等[18],因此有必要研究平顶激光对 KTP 晶体的损伤特性。本文利用平顶和高斯激光分别对 KTP 晶体进行激光诱导损伤的仿真和实验。仿真主要通过建立热传导模型,动态分析激光辐照下 KTP 晶体的温度场。然后分别搭建了基于平顶/高斯激光的损伤测试装置,比较了不同空间分布激光测试下 KTP 晶体的损伤特征,包括损伤位置和形态。

1 研究方法

1.1 仿真模型

根据传热学理论,KTP 晶体中的热传导过程可以用有限元方法来求解[19]。激光在晶体中传输时,部分能量会被晶体吸收,即

$$I(z)=(1-R)I_0(x,y)\exp(-\alpha z)=(1-R)\frac{P_0}{\pi\omega(z)^2}\exp\left[-\frac{2(x^2+y^2)}{\omega(z)^2}\right]\cdot\exp(-\alpha z) \tag{1}$$

式中,R 是晶体表面的反射率,对于 KTP 晶体,$R=0.01$;$\alpha=0.1\%/\mathrm{cm}$,表示晶体的吸收系数;$I_0(x,y)$是垂直于传播方向的晶体前表面上的激光强度空间分布;P_0 为入射激光功率;$\omega(z)$是距晶体前表面 z 距离处的光斑半径,近似等于激光辐照到晶体前表面上形成的光斑大小;z 是激光的传播方向。

根据比尔-朗伯定律,当激光与物质相互作用过程中,部分透明材料本身会发生功率沉积。当激光在晶体中传播 $\mathrm{d}z$ 距离时,晶体吸收的能量为

$$\mathrm{d}I=I_0\{\exp(-\alpha z)-\exp[-\alpha(z+\mathrm{d}z)]\}\approx I_0\exp(-\alpha z)\mathrm{d}z \tag{2}$$

吸收的激光能量部分转换为热能,故体热源为

$$Q=\beta\frac{\mathrm{d}I}{\mathrm{d}z}=\beta(1-R)\frac{P_0}{\pi\omega(z)^2}\exp\left[-\frac{2(x^2+y^2)}{\omega(z)^2}\right]\cdot\exp(-\alpha z) \tag{3}$$

式中,β 为转化成热能的能量与晶体吸收的能量之比,$\beta=30\%$。晶体的热传导过程表示为

$$\frac{\partial^2T(r,\varphi,z)}{\partial r^2}+\frac{1}{r}\frac{\partial T(r,\varphi,z)}{\partial r}+\frac{1}{r^2}\cdot\frac{\partial^2T(r,\varphi,z)}{\partial\varphi^2}+\frac{\partial^2T(r,\varphi,z)}{\partial z^2}+\frac{Q}{k}=0 \tag{4}$$

式中,$T(r,\varphi,z)$是晶体中的温度分布,k 是导热系数,(r,φ,z)是柱坐标系。晶体的前表面和后表面直接暴露在空气中,因此自然对流换热只能通过空气进行。在这两个表面上,牛顿冷却定律可以用来描述对流换热,即

$$q=h(T_S-T_L) \tag{5}$$

式中,q 为热通量,h 表示对流传热系数,$h=3\ \mathrm{W/(m^2\cdot K)}$,$T_S$ 为晶体温度,T_L 为环境温度。

基于上述模型,利用 COMSOL 软件模拟 KTP 晶体在平顶和高斯激光辐照下的温度分布。其中,KTP 晶体的热导率、密度和比热容分别设置为 $k=0.13\ \mathrm{W/(m\cdot K)}$,$\rho=3.01\ \mathrm{g/cm^3}$,$c=0.164\ 3\ \mathrm{cal/(g\cdot ℃)}$。将晶体前表面的中心作为坐标系的原点,晶体的初始温度和环境温度均设置为 293.15 K。

1.2 实验装置

样品选用桂林百瑞光电科技有限公司生产的 KTP 晶体。该晶体是专为光电开关设计的,沿主轴

线切割，即 $\theta=0°$，$\pi=90°$，端面倾斜 15′，通光面口径 8 mm×8 mm，通光长度 11 mm。图 1 和图 2 分别描述了使用平顶和高斯激光对 KTP 晶体进行 LIDT 测量的实验装置。对于平顶激光损伤测试，采用 Nd：YAG 激光器（Quanta-Ray-350，Spectra-Physics）提供波长为 1 064 nm、脉宽为 10 ns、单脉冲能量最大为 2 500 mJ、具有平顶分布、光斑直径约 13 mm（$1/e^2$）、重频为 10 Hz 的作用激光。辐照到 KTP 晶体上的激光能量由半波片和偏振片组成的衰减系统进行调节。作用光束由焦距分别为 500 和 50 mm 的平凸透镜组成的 $4f$ 系统进行缩束准直。为了获得平顶光束，应保证第一个透镜和激光器出光口之间的距离等于透镜焦距。作用光束的半径（$1/e^2$）用光束分析仪（LaserCam-HR II-2/3″，Coherent）测量，结果约为 0.5 mm，如图 3 所示。

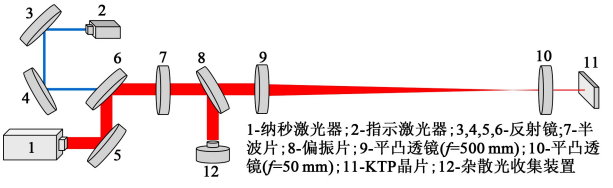


图 1　平顶激光损伤测试装置

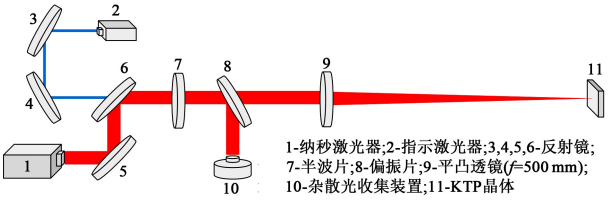
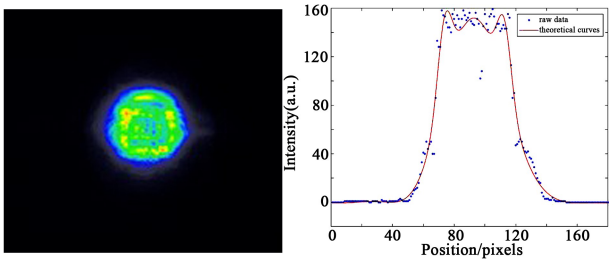


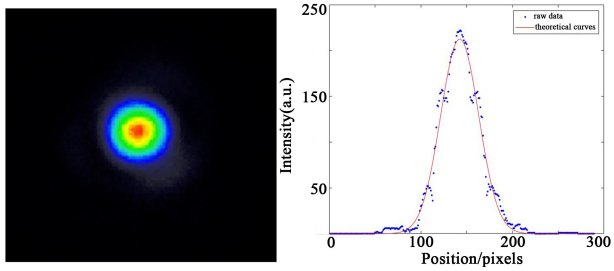
图 2　高斯激光损伤测试装置



（a）　空间分布　　（b）　拟合曲线

图 3　平顶光束光斑图

对于高斯激光损伤测试，也采用上述 Nd：YAG 激光器作为作用激光光源。与平顶激光测试装置类似，使用半波片/偏振片组合装置来控制辐照到 KTP 晶体上的激光能量，作用光束由焦距为 500 mm 的平凸透镜聚焦。为了获得高斯光束，第一个透镜与激光器出光口之间的距离不等于其焦距。经过测量，辐照到 KTP 晶体上的光斑半径（$1/e^2$）约为 0.5 mm，如图 4 所示。



（a）　空间分布　　（b）　拟合曲线

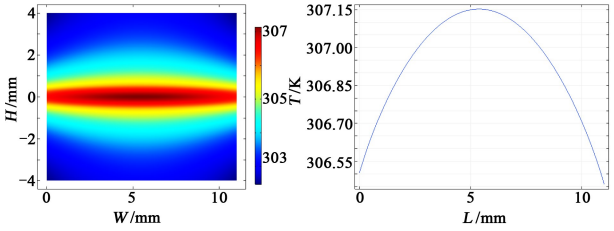
图 4　高斯光束光斑图

测试中应用的损伤判别标准是基于可见损伤，如肉眼可见的白点。为了检测并定位损伤的发生，将与作用激光同轴传播的 650 nm 激光二极管用来定位辐照到 KTP 晶体上的测试位置。此外，它还可以用来确定 KTP 晶体的损伤情况。如果晶体发生了损伤，在损伤位置会出现一个红色的亮点，以表明损伤的发生和位置。在平顶和高斯激光损伤测试中，采用了一致的实验程序。首先，在低能量下对 KTP 晶体进行辐照，每次只用一个脉冲进行辐照，辐照后，观察晶体的损伤情况。如果没有发现损伤，则继续增加能量进行测试，直到在晶体上发现损伤为止。最后在显微镜（LV100D，NIKON）下观察 KTP 晶体的损伤形貌。

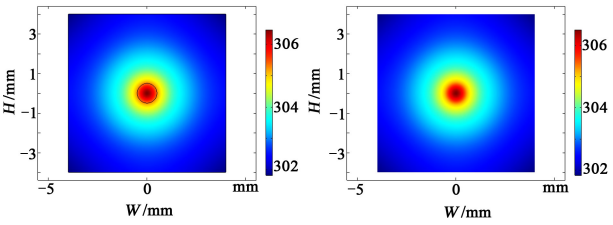
2　结果与讨论

2.1　仿真结果

当模拟激光功率为 10 W、光束半径为 0.5 mm 时，高斯激光辐照下 KTP 晶体的温度分布如图 5 所示。仿真结果说明激光辐照后，KTP 晶体温度升高，在靠近后表面的位置，温度达到最大值（307.15 K）。这种现象可以解释为，当激光辐照并在晶体中传播时，晶体在沿 z 轴方向上吸收入射激光能量，并且远离前表面，温度逐渐升高，在晶体中心位置达到最大值。相反，当激光透过晶体中心时，后表面的热耗散迅速释放能量，这使得晶体的温度分布以中心线为对称轴沿轴向几乎呈对称分布。



（a）　整个截面　　（b）　传输中心

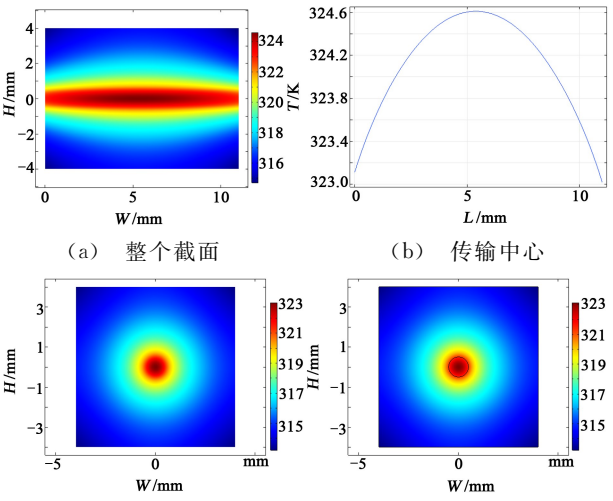


(c) 前表面 (d) 后表面

图 5 高斯激光辐照下 KTP 晶体的温度分布

温度在 x 轴和 y 轴上具有相同的标度，因此温度沿 x 轴和 y 轴呈对称分布。此外，前后表面的温度分布不均匀。光束中心温度最高，前表面最高温度达到 306.50 K，后表面最高温度达到 306.46 K。远离光束中心位置，表面温度逐渐下降。

在相同参数下，KTP 晶体在平顶激光辐照下的温度分布如图 6 所示。与高斯激光仿真可以得到较为一致的结论，即沿激光传播方向，晶体中心位置的温度达到最大值(324.61 K)，如图 6(b)所示。然而可以发现，该值高于高斯激光仿真中晶体的最高温度，因此可以假设在相同条件下平顶激光测试更有可能对晶体造成损伤。



(a) 整个截面 (b) 传输中心

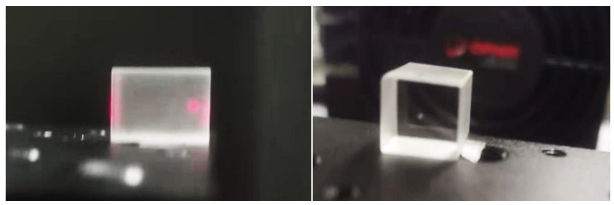
(c) 前表面 (d) 后表面

图 6 平顶激光辐照下 KTP 晶体的温度分布

仿真结果表明，激光辐照前后，KTP 晶体表面的最高温度分布在光束中心位置，但其整个光斑区域内的温度分布不同。以前表面为例，高斯激光仿真结果表明，前表面的最高温度为 306.50 K，最低温度为 302.47 K，整个光斑范围内的最低温度为 305.35 K；平顶激光仿真结果表明，KTP 晶体前表面的最高温度为 323.11 K，最低温度为 312.65 K，整个光斑范围内的最低温度为 321.36 K。可见，高斯激光仿真的整个光斑内的温度变化与平顶激光的变化趋势不一致，高斯激光变化较快，表明激光辐照下 KTP 晶体表面的温度分布受激光光束空间分布的影响。此外，可以发现，在两种情况下，KTP 晶体后表面温度均高于前表面温度。因此，通常可以假定晶体更容易在中心位置处发生体损伤，这又会随着热传递到后表面而先引起后表面损伤。

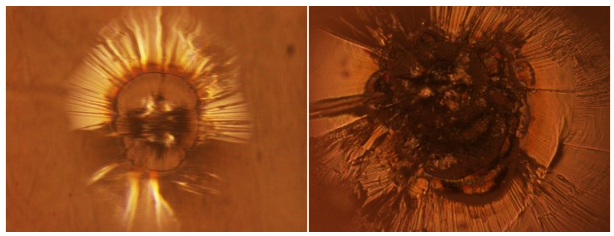
2.2 实验结果

首先在平顶激光辐照下对 KTP 晶体进行了测试。当激光功率密度为 1.78 GW/cm^2 时，晶体在指示激光下存在一个红亮点，如图 7(a)所示，且肉眼也可以观察到明显的损伤点，如图 7(b)所示。可以发现损伤发生在晶体内，且靠近后表面。2.1 节中关于平顶激光的仿真结果表明，晶体的最高温度发生在中心，所以损伤更可能发生在中心位置，而后表面的温度比前表面的温度大，所以损伤点可能更靠近后表面。分析导致损伤的主要原因可能是损伤点位置处的功率密度在整块晶体上是最高的。由于实验中使用了准直光束，再加上 KTP 晶体的自聚焦效应、折射率各向异性等非线性效应，导致焦点出现在晶体内部，使最大功率密度出现在晶体中的焦点处，所以在这个点上更容易造成损伤。将损伤后的晶体放在显微镜下观察损伤形态，如图 8(a)所示。可以发现，损伤中心呈现黑色烧蚀形态，烧蚀的外缘包含一圈向外扩散的灰色痕迹，最外层呈现裂纹损伤。灰色痕迹的中心尺寸为 0.8 mm，整个裂纹的损伤尺寸为 1.6 mm。由于损伤判别是基于观察到的明显的永久性损伤，所以没有观察到平行于主轴的裂纹损伤。



(a) 指示光定位损伤位置 (b) 肉眼观察到的损伤

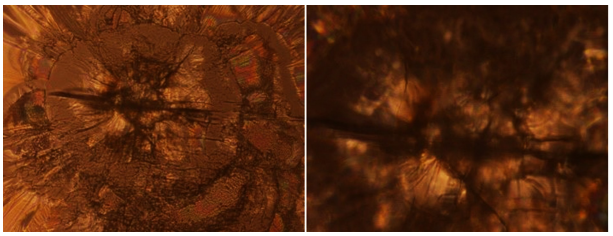
图 7 KTP 晶体损伤情况



(a) 单发测试 (b) 多脉冲测试

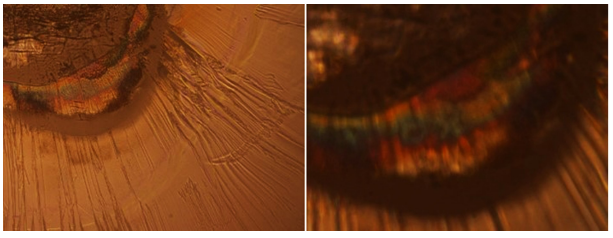
图 8 平顶激光辐照 KTP 晶体的损伤形貌

在 1.78 GW/cm^2 的激光功率密度下继续增加脉冲测试，在显微镜下观察到的损伤形态如图 8(b)所示。其中心烧蚀形貌尺寸约为 0.4 mm，整个烧蚀形貌尺寸约为 0.8 mm，并扩散到整个灰色痕迹区域，烧蚀尺寸的最中心约为 0.1 mm。在高倍显微镜下可以观察到在损伤形貌中心存在一条沿主轴的裂纹，如图 9 所示，这与文献[15]中提到的由于晶体结构的各向异性而产生的裂纹形状相似。因此，可以判断这是损伤的初始形态，由于外观上没有明显的损伤，所以无法捕捉到。进一步在显微镜下观察烧蚀和裂纹的交界处，可以观察到损伤处有明显的颜色变化，即出现红色和绿色，如图 10 所示。



(a)　放大倍数为 10　　(b)　放大倍数为 20

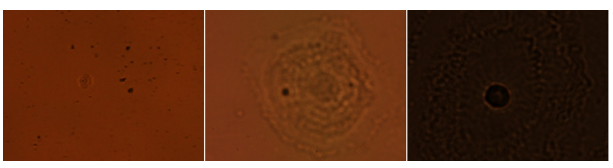
图 9　平顶激光辐照 KTP 晶体的中心损伤形貌



(a)　放大倍数为 10　　(b)　放大倍数为 20

图 10　平顶激光辐照 KTP 晶体的边缘损伤形貌

然后在高斯激光下对 KTP 晶体进行了损伤测试。当激光功率密度达到 2.28 GW/cm^2 时，在指示激光的作用下，晶体的前表面出现一个亮点。然后通过显微镜观察晶体损伤形态，如图 11 所示。可以在整个损伤中心观察到一个明亮的烧蚀点，烧蚀损伤的直径约为 0.05 mm。且损伤区域基本呈现圆形，并且存在一个中心点。这与入射激光束的空间形状相似，入射激光呈高斯分布，而中心点可能是入射激光的最高能量点，该位置的激光能量密度是最大的。从图 11 可以看出，损伤区域中心点周围被熔化或汽化，导致晶体表面出现凹坑，而熔化或汽化的晶体材料被冲击出凹坑，散落在周围，形成一个黑圈。凹坑和熔化的形成归因于热冲击和声冲击效应造成的破坏[21]。



(a)　放大倍数 5　(b)　放大倍数 10　(c)　放大倍数 10

图 11　高斯激光辐照 KTP 晶体的损伤形貌

根据 2.1 节的仿真结果，平顶激光更有可能诱导损伤发生，这与实验结果一致。此外，仿真结果表明，高斯和平顶激光测试中 KTP 晶体的损伤一般都是发生在体内，只是两者在损伤形态上有所区别。然而，在实验中发现，在平顶激光测试下发生了体损伤，而在高斯激光测试下发生了表面损伤。分析认为这可能是在平顶激光测试时采用了准直光束，这与仿真参数是一致的。而在实际光束传输过程中，由于晶体的非线性效应，损伤发生在体内靠近后表面的位置。实验结果和仿真结果在一定的误差范围内是可以接受的。然而，在高斯激光测试时，使用的是存在一定发散角的聚焦光束，焦点位于晶体前表面。可见，当聚焦光束在晶体中传播时，可能导致前表面的光斑最小，功率密度更高，导致前表面更容易发生损坏。因此，需要进一步研究以确定聚焦光束是否对损伤位置有影响，并阐明晶体对 LIDT 的非线性效应的基本机制。

3　结论

本研究旨在探讨不同测试光束对研究 KTP 晶体损伤性能的影响。首先，利用 COMSOL 软件对高斯激光和平顶激光辐照 KTP 晶体的温度分布进行了数值模拟分析。仿真结果表明，晶体损伤首先出现在体内，表面的温度分布与激光光束的空间分布相似。而平顶激光损伤实验结果表明，KTP 晶体发生了体损伤，损伤形貌存在中心的裂纹损伤和周围的烧蚀损伤。本研究中一个比较重要的发现是，在高斯激光损伤测试中发现了典型的纳秒脉冲表面损伤形态。此外，实验结果还显示，高斯激光测试下，KTP 晶体的 LIDT 较高，这与仿真结果一致。在本研究之前，不同的测试光束对 KTP 晶体的影响还没有被广泛研究过，本研究在一定程度上有益于研究人员对 KTP 晶体损伤机制的了解。

参考文献：

[1]　Zhang Kecong, Wang Ximin. Structure sensitive properties of KTP-type crystals[J]. Chinese Science Bulletin, 2001, 46(24): 2028-2036.

[2] 吴 叶，郑陈琪，陈瑞涛，等. 基于电光调 Q 1 064 nm/532 nm/570 nm 三波长固体激光器[J]. 激光技术，2019，43(5)：91-95.
Wu Ye，Zheng Chenqi，Chen Ruitao，et al. 1 064 nm/532 nm/570 nm three-wavelength solid-state lasers based on electro-optic Q-switches[J]. Laser Technol.，2019，43(5)：91-95.

[3] Bierlein J D，Vanherzeele H. Potassium titanyl phosphate properties and new applications[J]. J. of the Optical Society of America B，1989，6(4)：622-633.

[4] Tyminski J K. Photorefractive damage in KTP used as second-harmonic generator[J]. J. of Appl. Phys.，1991，70(10)：5570-5576.

[5] Blachman R，Bordui P F，Fejer M M. Laser-induced photochromic damage in potassium titanyl phosphate[J]. Appl. Phys. Lett.，1994，64(11)：1318-1320.

[6] Hu X B，Wang J Y，Zhang H J，et al. Dependence of photochromic damage on polarization in $KTiOPO_4$ crystals[J]. J. of Crystal Growth，2003，247(1/2)：137-140.

[7] Jacco J C，Rockafellow D R，Teppo E A. Bulk-darkening threshold of flux-grown $KTiOPO_4$[J]. Opt. Lett.，1991，16(17)：1307-1309.

[8] Bocchini A，Eigner C，Silberhorn C，et al. Understanding gray track formation in KTP：Ti^{3+} centers studied from first principles[J]. Phys. Rev. Materials，2020，4(12)：124402.

[9] Loiacono G M，Loiacono D N，McGee T，et al. Laser damage formation in $KTiOPO_4$ and $KTiOAsO_4$ crystals：Grey tracks[J]. J. of Appl. Phys.，1992，72(7)：2705-2712.

[10] Satyanarayan M N，Bhat H L，Srinivasan M R，et al. Evidence for the presence of remnant strain in grey-tracked $KTiOPO_4$[J]. Appl. Phys. Lett.，1995，67(19)：2810-2812.

[11] Wagner F R，Hildenbrand A，Natoli J Y，et al. Laser damage investigation in $KTiOPO_4$ (KTP) and $RbTiOPO_4$ (RTP) crystals：threshold anisotropy and the influence of SHG[J]. Proc. of SPIE，2007，6720：672015.

[12] Favre S，Sidler T C，Salathe R P. High-power long-pulse second harmonic generation and optical damage with free-running Nd：YAG laser[J]. IEEE J. of Quantum Electron.，2003，39(6)：733-740.

[13] Hildenbrand A，Wagner F R，Natoli J Y，et al. Laser damage investigation in nonlinear crystals：study of $KTiOPO_4$ (KTP) and $RbTiOPO_4$ (RTP) crystals[J]. Proc. of SPIE，2008，6998：699815.

[14] Hidestugu Y，Takahisa J，Hisanori F，et al. Laser-induced damage in nonlinear crystals on irradiation direction and polarization[J]. Proc. of SPIE，2000，3902：418-422.

[15] Hildenbrand A，Wagner F R，Akhouayri H，et al. Laser-induced damage investigation at 1 064 nm in $KTiOPO_4$ crystals and its analogy with $RbTiOPO_4$[J]. Appl. Opt.，2009，48(21)：4263-4269.

[16] Wagner F R，Hildenbrand A，Natoli J Y，et al. Nanosecond-laser-induced damage in potassium titanyl phosphate：pure 532 nm pumping and frequency conversion situations[J]. Appl. Opt.，2011，50(22)：4509-4515.

[17] Nie Shuzhen，Yu Jin，Zhao Tianzhuo，et al. Study on flat-top shaping technology in picosecond laser micro-machining[J]. Proc. of SPIE，2019，11170：111702F.

[18] 郝 旺，李 祎，高兰兰. 复合 Nd：YAG 晶体大功率 1 064 nm 固体激光器研究[J]. 激光与红外，2018，48(1)：47-51.
Hao Wang，Li Yi，Gao Lanlan. Research on composited Nd：YAG crystal high power 1 064 nm solid-state laser[J]. Laser & Infrared，2018，48(1)：47-51.

[19] Wagner F R，Duchateau G，Natoli J，et al. Catastrophic nanosecond laser induced damage in the bulk of potassium titanyl phosphate crystals[J]. J. of Appl. Phys.，2014，115(24)：243102.

[20] Stuart B C，Feit M D，Herman S，et al. Nanosecond-to-femtosecond laser-induced breakdown in dielectrics[J]. Phys. Rev. B，1996，53(4)：1749-1761.

作者简介：

张思楠(1998—)，女，河北省辛集市人，硕士研究生，主要研究方向为激光损伤判别技术；

麻云凤(1981—)，女，博士，正高级工程师，硕士生导师，主要研究方向为激光损伤测试及激光参量测试技术。