

文章编号: 1001-3806(2017)04-0463-04

## 双波长粉末倍频检测系统研究

林长浪<sup>1,2</sup>, 李昌立<sup>1\*</sup>, 王新<sup>1</sup>, 张戈<sup>2</sup>, 李丙轩<sup>2</sup>, 黄呈辉<sup>2</sup>, 魏勇<sup>3</sup>

(1. 长春理工大学 物理学院, 长春 130022; 2. 中国科学院 福建物质结构研究所 光电材料化学与物理重点实验室, 福州 350002; 3. 湖南理工学院 物理与电子学院, 岳阳 414006)

**摘要:** 为了测定粉末材料的倍频特性, 根据 Kurtz-Perry 粉末倍频效应理论, 采用光参量振荡技术, 获取了 130mJ@1064nm 和 20mJ@1570nm 的双波长调 Q 激光输出, 并进行了理论分析和实验验证。实现了粉末样品的 1064nm 和 1570nm 双波长倍频测试, 解决了单一波长测试时晶体粉末材料对倍频信号波长的吸收而导致难以测得倍频信号的问题, 有效非线性系数测试灵敏度达到 0.46pm/V。结果表明, KTP 粉末样品倍频信号变化趋势与理论相吻合, 该系统对晶体的非线性检测运行稳定可靠, 测试简单方便快捷。

**关键词:** 非线性光学; 粉末倍频效应; 光参量振荡器; 粉末倍频检测

**中图分类号:** O437; TN247

**文献标志码:** A

**doi:** 10.7510/jgjs.issn.1001-3806.2017.04.001

## Study on dual wavelength powder frequency doubling detection system

LIN Zhanglang<sup>1,2</sup>, LI Changli<sup>1</sup>, WANG Xin<sup>1</sup>, ZHANG Ge<sup>2</sup>, LI Bingxuan<sup>2</sup>, HUANG Chenghui<sup>2</sup>, WEI Yong<sup>3</sup>

(1. School of Physics, Changchun University of Science and Technology, Changchun 130022, China; 2. Key Laboratory of Opto-electronic Materials Chemistry and Physics, Fujian Institute of Research on the Structure of Matter, Chinese Academy of Sciences, Fuzhou 350002, China; 3. College of Physics and Electronics, Hunan Institute of Science and Technology, Yueyang 414006, China)

**Abstract:** In order to measure the frequency doubling characteristics of powder materials, according to the theory of Kurtz-Perry powder frequency doubling effect and the theory of optical parametric oscillation, dual wavelength Q-switched laser output of 130mJ@1064nm and 20mJ@1570nm was obtained. After theoretical analysis and experimental verification, the 1064nm and 1570nm dual wavelength frequency doubling test of powder sample was realized. The problem, that the absorption of crystal powder material to the wavelength of frequency doubling signal makes it difficult to measure the frequency doubling signal when testing the single wavelength, was solved. The results show that the test sensitivity of effective nonlinear coefficient reaches 0.46pm/V. the variation trend of frequency doubling signal of KTP powder samples is consistent with the theory. The system is stable, simple, convenient and reliable for nonlinear detection of crystals.

**Key words:** nonlinear optics; powder frequency doubling effect; optical parametric oscillator; powder frequency doubling test

## 引言

新型 2 阶非线性光学材料的研究一直都是热点, 尤其是探究高非线性系数、高损伤阈值、性能稳定性好的非线性材料。通过测量材料的非线性系数可以有效地判断其价值性。二次谐波法(second harmonic generation, SHG)<sup>[1]</sup>以及 Maker 条纹法<sup>[2]</sup>经常适用于测量晶体的非线性系数, 但这种方法要求样品有一定的尺寸以及高透过率。KURTZ 等人<sup>[3]</sup>发展了测定晶体非

线性特性的粉末倍频检测技术, 之后加以改进提高准确率<sup>[4]</sup>。KLGUCHI 等人<sup>[5]</sup>发展了弱信号倍频检测系统, 能够检测到当相位匹配度低或折射率色散时产生的弱信号。LIU 等人<sup>[6]</sup>实现了较大颗粒粉末倍频检测, 并简化了实验条件。LI 等人<sup>[7]</sup>改进了探测器, 采用红外光学参量振荡器(optical parametric oscillator, OPO)激光以及把倍频光及其它光效应产生的光通过谱仪分光, 结合 CCD 阵列探测器加以区分探测的新检测方案, 提高了准确度。ARAMBURU 等人<sup>[8]</sup>针对 Kurtz 理论的实际应用做了修正, 深入研究了各种相位匹配材料和非相位匹配材料在不同颗粒尺寸的倍频信号输出情况。这些努力, 使得粉末倍频检测技术成为探索非线性光学晶体材料的有效方法。

开展中、远红外材料(透过波长  $\lambda > 5000\text{nm}$ )的研

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(21427801)

作者简介: 林长浪(1990-), 男, 硕士研究生, 现主要从事激光与非线性光学方面的研究。

\* 通讯联系人。E-mail: lcl-cust@foxmail.com

收稿日期: 2016-11-21; 收到修改稿日期: 2016-12-05

究是目前2阶非线性光学材料研究的重点和前沿<sup>[9]</sup>,为了实现远红外的透过,这些材料往往采用硫属、硒属或磷属化合物<sup>[10]</sup>,其透光范围往往受到限制,如GaSe晶体(透光范围650nm~18000nm)、AgGaSe<sub>2</sub>晶体(710nm~18000nm)、4-甲基吡啶对甲基苯磺酸盐晶体(620nm~20000nm)等等<sup>[11]</sup>,如果采用常规的单一波长(1064nm)检测,其倍频检测信号(532nm)会被材料自吸收,探测器无法探测到其信号,因此本文中利用电光调Q光参量振荡器<sup>[12-13]</sup>获取的1064nm和1570nm双波长光源替代单一波长光源检测方式,利用波长1570nm的倍频信号(785nm)可以有效避免材料自吸收的特点,拓展了材料种类检测范围,尤其对红外材料的检测更有裨益。实验表明,粉末倍频检测系统能够有效判断其是否具有非线性光学特性及效应的大小,验证结构设计的可靠性,为研究或改进新材料制备提供依据。

## 1 实验检测原理

根据Kurtz-Perry晶体粉末倍频原理<sup>[3]</sup>,基频光为 $\omega$ 的光源对晶体粉末检测时得到 $2\omega$ 的倍频信号光,对于相位匹配材料和非相位匹配材料所探测到的理论值可以做如下表示。

(1) 相位匹配晶体粉末二次谐波强度:

$$I_{2\omega} = \frac{32\pi}{c} \left[ \frac{64\pi I_{\omega}}{\lambda(n_{\omega}+1)^2(n_{2\omega}+1)} \right]^2 \times d_{2\omega}^2 \left( \frac{\pi^2}{4} L \Gamma \right) \quad (1)$$

$$I_{2\omega} \propto d_{2\omega}^2 \left( \frac{\pi^2}{4} L \Gamma \right) \quad (2)$$

式中, $\Gamma = 2l_c(\theta - \theta_m)\sin\theta_m$ ,且 $r \gg \Gamma/\sin\theta_m$ , $\theta$ 是入射角, $\theta_m$ 为相位匹配角, $l_c$ 表示相干长度, $r$ 为粉末颗粒平均半径, $d_{2\omega}$ 是相位匹配粉末材料有效非线性系数, $c$ 是光速, $\lambda$ 为基频光波长, $I_{\omega}$ 是基频光强度, $n_{\omega}$ 和 $n_{2\omega}$ 表示基频光和倍频光在材料中的折射率, $L$ 为样品厚度。

(2) 非相位匹配晶体粉末二次谐波强度:

$$I_{n,2\omega} \approx \frac{32\pi}{c} \left[ \frac{64\pi I_{\omega}}{\lambda(n_{\omega}+1)^2(n_{2\omega}+1)} \right]^2 \times d_{n,2\omega}^2 \left[ L \frac{l_c^2}{r} \sin^2 \left( \frac{1}{2} \pi \frac{r}{l_c} \right) \right] \quad (3)$$

$$I_{n,2\omega} \propto d_{n,2\omega}^2 \left[ L \frac{l_c^2}{r} \sin^2 \left( \frac{1}{2} \pi \frac{r}{l_c} \right) \right] \quad (4)$$

式中, $d_{n,2\omega}$ 为非相位匹配粉末材料有效非线性系数。

经计算,对于倍频信号强度与粉末颗粒度大小的关系如(2)式所示,对于相位匹配粉末材料, $r < 5l_c$ 倍频信

号强度随着粒度增加而增加,在 $r = 5l_c$ 时达到最大值, $r > 5l_c$ 后基本保持不变。而对于非相位匹配粉末材料,见(4)式,在 $r < 1.5l_c$ 时倍频信号强度随着粒径增加而增加,在 $r = 1.5l_c$ 时达到最大值,当 $r > 1.5l_c$ 时,倍频信号强度随着粒子尺寸的增加反而减小。

## 2 实验装置

采用磷酸钛氧钾(KTP)晶体作为光参量振荡器(OPO)的变频晶体<sup>[14-15]</sup>,实验中采取II类相位匹配。图1中给出了KTP晶体在非临界相位匹配方向(入射角 $\theta = 90^\circ$ ,波矢与 $x$ 轴的夹角 $\varphi = 0^\circ$ )上OPO抽运光与信号光、闲频光的波长关系。由图中可知,当抽运光为1064nm时,KTP-OPO的信号光为1570nm。

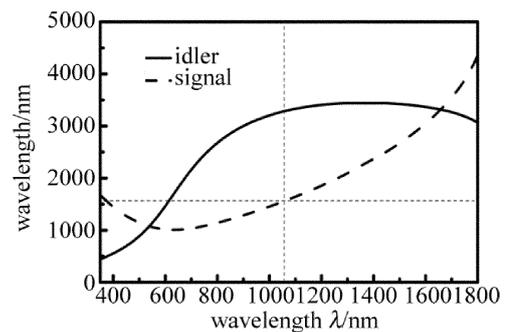


Fig. 1 KTP non-critical phase matching

此时抽运光沿 $x$ 轴传播,抽运光与信号光的偏振方向沿晶体 $y$ 轴(o光),空闲光偏振方向在 $x-z$ 面(e光),晶体有效非线性系数 $d_{\text{eff}}$ 最大(如图2所示)且无走离效应(走离角 $\alpha = 0\text{mrad}$ ,如图3所示)。

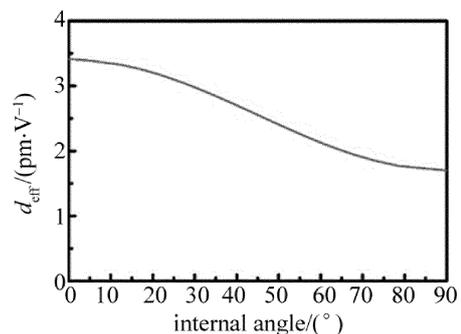


Fig. 2 Curve of KTP effective nonlinear coefficient

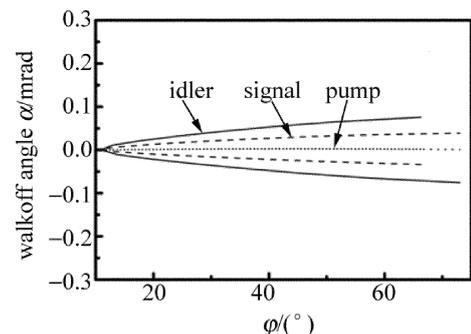


Fig. 3 Walkoff angle of KTP

双波长粉末倍频实验装置如图 4 所示。以纳秒 Nd:YAG 电光调 Q 激光器为抽运光源,以 KTP 晶体构建 OPO,获得的激光光源波长为 1064nm 和 1570nm,重复频率为 1Hz,获取了 130mJ@1064nm 和 20mJ@1570nm 的双波长调 Q 激光输出,如图 5 所示。光谱线宽为 0.43nm@1064nm,0.5nm@1570nm,如图 6a 和图 6b 所示。在 1064nm 倍频的检测光路中样品 1 和探测器间放置吸收 1064nm、透 532nm 的滤波片,同理在样品 2 和探测器间放置吸收 1570nm、透 785nm 的滤波片,以尽量减小探测器噪声干扰。探测器采用光电倍增管,把光信号转换为电信号,采用数字示波器,进行

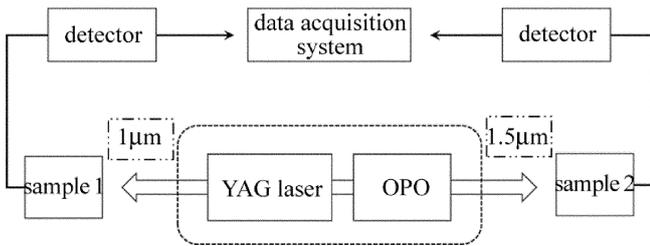


Fig. 4 Schematic diagram of dual wavelength powder frequency doubling experiment

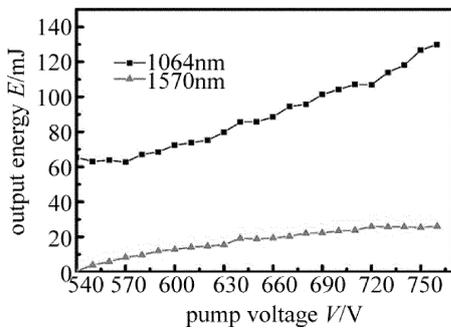


Fig. 5 Dual wavelength energy output

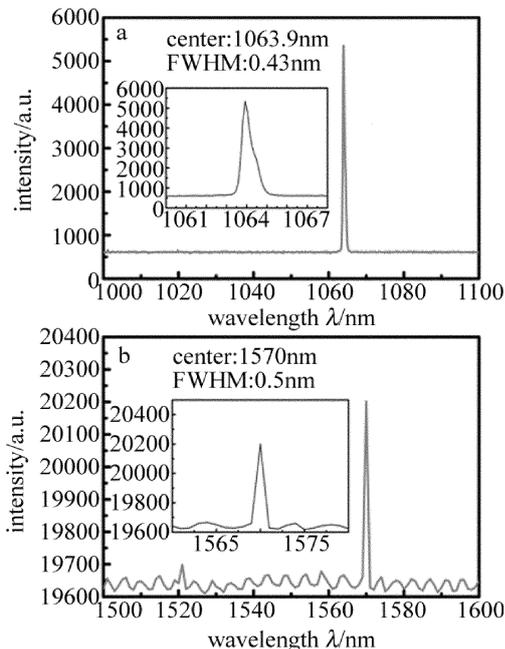


Fig. 6 Spectrogram of 1064nm output and 1570nm output

电信号采集处理。

### 3 实验结果

本实验的被测粉末样品为 KTP,属于正双轴晶体,可透光谱范围 350nm ~ 4500nm,倍频相位匹配范围 497nm ~ 1800nm(type II)。将测试样品分别放置在两个测试窗口测量,获得的测试结果如图 7 所示。图 7 中分别为 1570nm 与 1064nm 波长测试得到的 KTP 粉末不同颗粒度的倍频信号。由图可以看出,所测得的信号随颗粒度的增大而增强,然后趋于稳定,测试结果与 Kurtz-Perry 粉末倍频效应理论符合得很好,表明被测材料为相位匹配材料,这些实验结果与理论相符,证实了双波长粉末倍频检测系统的可靠性。由不同颗粒度信号强度估算得到系统的检测灵敏度达到 0.17 倍 KTP 有效非线性系数,即 0.46pm/V。以已知非线性系数的 KTP 样品作为参照样品,系统可以用于测量其它材料的粉末倍频性能。以 KTP 样品的倍频信号强度作为标准信号强度,通过检测待测样品的倍频信号强度,与 KTP 标准信号强度进行对比,从而得出被测样品的非线性系数大小。

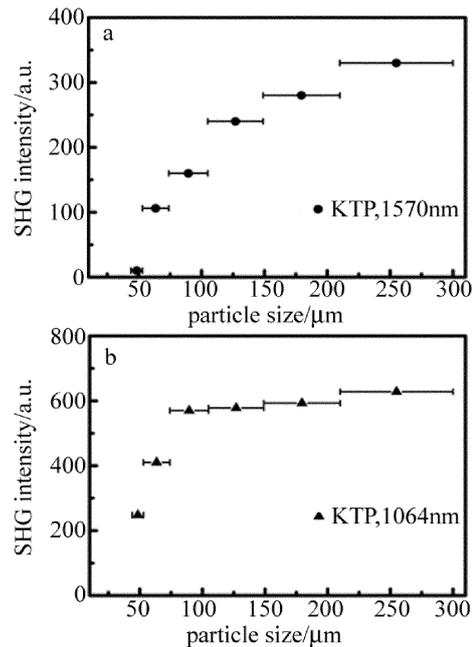


Fig. 7 KTP crystal powder frequency doubling detection signal of 1570nm and 1064nm

### 4 结论

基于 Kurtz-Perry 晶体粉末倍频理论,设计了 1570nm 和 1064nm 双波长粉末倍频检测装置,能够方便快捷地测出被测晶体粉末材料的倍频光信号,再通过对标样 KTP 的标准信号强度,准确地判断被测晶体粉末材料的非线性倍频性能。该测试系统成本低、

易于实现、检测速度快、稳定性高,能满足红外波段非线性光学材料的定性或是半定量检测,极大便利了非线性材料的研究工作。

#### 参 考 文 献

- [1] NIKOGOSYAN D N. Nonlinear optical crystals: a complete survey [M]. Berlin, Germany: Springer Science & Business Media, 2006: 403-405.
- [2] JERPHAGNON J, KURTZ S K. Maker fringes: a detailed comparison of theory and experiment for isotropic and uniaxial crystals[J]. Journal of Applied Physics, 1970, 41(4): 1667-1681.
- [3] KURTZ S K, PERRY T T. A powder technique for the evaluation of nonlinear optical materials[J]. Journal of Applied Physics, 1968, 39(8): 3798-3813.
- [4] DOUGHERTY J P, KURTZ S K. A second harmonic analyzer for the detection of non-centrosymmetry[J]. Journal of Applied Crystallography, 1976, 9(2): 145-158.
- [5] KIGUCHI M, KATO M, KUMEGAWA N, *et al.* Technique for evaluating second-order nonlinear optical materials in powder form[J]. Journal of Applied Physics, 1994, 75(9): 4332-4339.
- [6] LIU G X, LU Y, JIN X. Study on an improved powder SHG technique[J]. Journal of Inner Mongolia Normal University(Natural Science Edition), 2009, 38(4): 407-410(in Chinese).
- [7] LI B X, WEI Y, HUANG C, *et al.* Research on testing the nonlinear optical performance of nonlinear optical materials based on the effect of second-harmonic generation[J]. Spectroscopy and Spectral Analysis, 2014, 34(1): 6-11.
- [8] ARAMBURU I, ORTEGA J, FOLCIA C L, *et al.* Second harmonic generation by micropowders: a revision of the Kurtz-Perry method and its practical application[J]. Applied Physics, 2014, B116(1): 211-233.
- [9] ZENG J B, CHEN H X, LIANG W G, *et al.* Research of optical parametric oscillation of periodically poled MgO-doped LiNbO<sub>3</sub> crystal[J]. Laser Technology, 2016, 40(3): 409-412(in Chinese).
- [10] CHEMLA D S. Nonlinear optical properties of organic molecules and crystals[M]. Amsterdam, Netherlands: Amsterdam Elsevier, 2012: 138-143.
- [11] KHOO I C, WU S T. Optics and nonlinear optics of liquid crystals [M]. Singapore City, Singapore: Singapore World Scientific, 1993: 82-86.
- [12] PAN Y Sh, YAN Zh A, GUO W J, *et al.* Pulse laser injection seeded state detector and experimental research[J]. Laser Technology, 2016, 40(2): 153-156(in Chinese).
- [13] WANG B, REN G, LI T, *et al.* Experimental study of a potassium titanate arsenate optical parametric oscillator in the mid-infrared band [J]. Laser Technology, 2007, 31(3): 225-227(in Chinese).
- [14] WANG L, WU X Y, LI Zh, *et al.* Progress of the nonlinear mid-infrared optical crystal and device of the parametric oscillator[J]. Laser Technology, 2011, 35(4): 434-439(in Chinese).
- [15] ZHENG Q, SUN J. Laser research of output wavelength controlled common aperture 0.532 $\mu\text{m}$ /1.064 $\mu\text{m}$ /3.9 $\mu\text{m}$ [J]. Laser Technology, 2017, 41(1): 10-13(in Chinese).