

YCOB 和 Nd: YCOB 晶体的倍频系数和最佳相匹配方向的确定*

陈 创 天

邵 中 书

(中国科学院北京人工晶体研究发展中心 北京 100080) (山东大学晶体材料研究所 济南 250100)

摘 要 首次报道使用理论计算和 Maker 条纹方法确定了 YCOB 晶体的 6 个倍频系数,并给出了晶体有效倍频系数(d_{eff})和相匹配角(θ, ϕ)之间的相互关系.计算出的曲线显示,YCOB 晶体的最佳有效倍频系数的位置不是在 $x-z$ 的主平面或接近于 $x-z$ 主平面的位置上,而是在($\theta = 65.9^\circ, \phi = 36.5^\circ$)和($\theta = 66.3^\circ, \phi = 143.9^\circ$)两个位置上.YCOB 晶体的倍频转换效率测量及 Nd: YCOB 晶体的自倍频转换效率测量均证实上述结果是正确的.文章的结果对于推动 YCOB 晶体倍频器件和 Nd: YCOB 晶体的自倍频器件的发展将起到重要的作用.

关键词 晶体,非线性光学,YCOB,Nd: YCOB

DETERMINATION OF THE NONLINEAR OPTICAL PROPERTIES OF YCOB AND Nd: YCOB

CHEN Chuang-Tian

(Beijing Center for Crystal Research & Development, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100080)

SHAO Zhong-Shu

(National Key Laboratory of Crystal Materials, Shandong University, Ji'nan 250100)

Abstract The second harmonic generation coefficients(d_{ij}) of YCOB have been determined for the first time and the relationship between the effective SHG coefficients(d_{eff}) and phase-matching angles has been derived. It is found surprisingly, that the direction of the largest d_{eff} of the crystal is not in the principal plane as usual but along ($\theta = 65.9^\circ, \phi = 36.5^\circ$) and ($\theta = 66.3^\circ, \phi = 143.9^\circ$) and further, its value is direction dependent in the different phase regions. This has been verified by measurements of the frequency doubling and self-frequency doubling conversion efficiencies. The demonstration of this optimum phase-matching direction of YCOB/ Nd: YCOB is an important step forward in the development of compact high-efficiency green and blue laser sources.

Key words crystal, nonlinear optics, YCOB, Nd: YCOB

$\text{YCa}_4\text{O}(\text{BO}_3)_3$ (YCOB)^[1-3]是最近几年由法国科学家新发现的一种非线性光学晶体,由于此晶体属同成分熔融化合物,因此,可以使用提拉法生长出大块高光学质量的单晶体.在光学性质方面,此晶体具有宽的透光波段(210—2760nm),而它的倍频系数同 LBO 接近,并可实现 Nd: YAG 激光(1.064 μm)的 2-3 倍频.另外,Y 离子的半径同激活离子 Nd, Yb 等离子半径接近,因此,YCOB 同样易于生长出大块的 Nd: YCOB(Yb: YCOB)自倍频晶体.目前,使用 LD 作为泵源的全固态 Nd: YCOB 绿光激光器已可输出 50 mW 功率.估计在改进泵光的波长及提高泵光的功率后,绿光的输出功率将可达到瓦级水平.由于 YCOB(Nd: YCOB)晶体具有上述优点,近来欧、美、日等国家的科学家对此晶体的兴趣与日俱增,希望此晶体在小型化三基色的器件开

发上,能发挥积极的作用.

目前此晶体在开发研究上所遇到的最大问题是晶体的倍频系数还未能测出,从而得不出晶体有效倍频系数(d_{eff})和相匹配角(θ, ϕ)之间的相互关系,因此不能确定此晶体最佳相匹配方向(即 d_{eff} 系数最大)的位置.虽然 Iwai 等^[2]认为 YCOB 在($\theta = 33^\circ, \phi = 9^\circ$)方向有最大的有效倍频系数, d_{eff} 值接近于 d_{eff} (KDP)值的两倍,但所测得的最大倍频转换效率只停留在 20%水平,这说明在这一方向,YCOB 晶体的 d_{eff} 值并没有达到 LBO 晶体水平.

YCOB 晶体属于单斜晶体,空间群为 Cm ,单胞参数为: $a = 8.064 \text{ \AA}$, $b = 15.959 \text{ \AA}$, $c = 3.517 \text{ \AA}$; $\beta = 101.19^\circ$, $z = 2$ ^[4],因此根据 IEEE/ANSI 对晶体非

* 1999-09-14 收到初稿,1999-11-22 修回

线性光学系数的定义及紫外非线性光学晶体倍频系数应服从 Kleinman 对称性的要求,此晶体共有 d_{11} , d_{12} , d_{13} , d_{31} , d_{32} 和 d_{33} 6 个独立的倍频系数. 然而在测量中, 由于这些倍频系数间的相互干涉的结果, 我们很难用通常的 Maker 条纹方法和相匹配方法来测定全部 6 个倍频系数. 可是测定出全部 6 个倍频系数是计算 d_{eff} 系数和相匹配角 (θ, ϕ) 之间相互关系的必要前提.

为了确定 YCOB 晶体的全部 6 个倍频系数, 我们首先运用晶体非线性光学效应的阴离子基团理论^[5], 计算出此晶体全部 6 个倍频系数 (d_{ij}) , 计算结果由表 1 给出, 然后我们运用 Maker 条纹方法, 对其进行测定和验证, 实验的结果同样见于表 1.

表 1 YCOB 晶体的倍频系数的理论值和实验值(单位: p m/V)

晶体	d_{ij}	Gaussian' 92 计算值 ¹⁾	CNDO 计算值 ¹⁾	实验值
YCOB ²⁾	d_{11}	- 0.104	0.056	≈ 0.0
	d_{12}	- 0.015	0.128	≈ 0.0
	d_{13}	- 0.253	- 0.186	$\ll d_{33}$
	d_{31}	0.12	0.151	$\ll d_{33}$
	d_{32}	0.757	1.081	± 1.36
	d_{33}	- 1.02	- 1.236	± 0.93

1) 根据 Aka 确定的光轴^[1]; 2) $\text{Ca}_4\text{YO}(\text{BO}_3)_3$

我们看到, 除去 d_{33} 和 d_{32} 的相对值在理论和实验值之间稍有误差外, 两者之间的一致性是相当好的, 这说明我们用基团理论方法所得到的 6 个倍频系数基本上是可信的^[6].

使用表 1 中由 Gaussian' 92 程序计算出的倍频系数并使用由文献[7]所确定的 YCOB 晶体的折射率色散方程, 我们就可计算出 $d_{\text{eff}} - (\theta, \phi)$ 相匹配角之间的三维曲线图, 这由图 1 (a) 给出. 另外, 当我们对 d_{33} , d_{32} 两个主要的倍频系数用实验值代入, 而 d_{11} , d_{12} , d_{13} , d_{31} 4 个倍频系数仍用理论值代入, 则同样可计算出 $d_{\text{eff}} - (\theta, \phi)$ 三维曲线[见图 1 (b)]. 我们看到这两条三维曲线的基本形状是一样的, 唯一的不同是, 在 d_{eff} 的峰值处绝对值有稍微的差别.

图 1 清楚地示出, YCOB 晶体的最大有效倍频系数不是在 $x - z$ 主平面上, 而是在偏离主平面的 $(\theta = 65.9^\circ, \phi = 36.5^\circ)$ 和 $(\theta = 66.3^\circ, \phi = 143.4^\circ)$ 两个位置上. 例如在 $x - z$ 主平面上, 最大有效倍频系数约为 0.66 p m/V , 而在 $(\theta = 66.3^\circ, \phi = 143.4^\circ)$ 位置上, $d_{\text{eff}} = 0.87 \text{ p m/V}$, 此值已接近 LBO 晶体的水平.

为了进一步验证 YCOB 晶体的最大有效倍频系数的位置, 山东大学晶体研究所邵宗书等使用 YCOB 晶体和 Nd: YCOB 晶体对 $d_{\text{eff}} - (\theta, \phi)$ 的相

互关系进行了测量^[8], 其结果由表 2 3 给出.

表 2 YCOB 晶体 d_{eff} 系数和相匹配角 (θ, ϕ) 之间的相互关系

[单位: $d_{\text{eff}}(\text{KTP}, \theta = 90^\circ, \phi = 23.6^\circ) = 2.45 \text{ p m/V}^1, 3.2 \text{ p m/V}^2$]

匹配类型	相匹配角 (θ, ϕ)	晶体长度 / mm	$d_{\text{eff}} / \text{p m/V}$		
			实验值 ¹⁾	实验值 ²⁾	计算值 ³⁾
I	$32^\circ, 0^\circ$	2	0.528	0.689	0.55
I	$33^\circ, 9^\circ$	2	0.518	0.677	0.515
I	$64.5^\circ, 35.5^\circ$	2	0.707	0.923	0.72
I	$66.8^\circ, 35.4^\circ$	2	0.66	0.861	$(65.9^\circ, 36.5^\circ)$
I	$113.2^\circ, 35.4^\circ$	2	0.707	0.923	0.91
I	$115.5^\circ, 35.5^\circ$	2	0.754	0.985	$(113.7^\circ, 36.5^\circ)$

1) 使用 $d_{\text{eff}}(\text{KTP}, \theta = 90^\circ, \phi = 23.6^\circ, \text{Type II}) = 2.45 \text{ p m/V}$ 作为标准, 此值取自: V. G. Dmitriev, G. G. Gurzadyan, D. N. Nikogosyan. Handbook of Nonlinear Optical Crystals. second revised and updated edition, Berlin: Springer, 1997;

2) 使用 $d_{\text{eff}}(\text{KTP}, \theta = 90^\circ, \phi = 23.6^\circ, \text{Type II}) = 3.2 \text{ p m/V}$ 作为标准, 此值取自: R. C. Eckardt, H. Masuda, Y. X. Fan and R. L. Byer. IEEE J. Quant. Elect., 1990, 26: 922;

3) d_{32}, d_{33} 使用实验测量值

表 3 Nd: YCOB 和 KTP 晶体的倍频转换效率

(基波光波长 $\lambda_w = 1064 \text{ nm}$)

样品	长度 / mm	相匹配方向 (θ, ϕ)	转换效率	$d_{\text{eff}} / \text{p m/V}$
Nd: YCOB	7	$64.5^\circ, 35.5^\circ$	15.7%	0.75
Nd: YCOB	7	$33^\circ, -9^\circ$	2.5%	0.28
Nd: YCOB	7	$33^\circ, 9^\circ$	7.4%	0.52
KTP	4	$90^\circ, 22.5^\circ$	45%	2.45

表 2 给出了 YCOB 晶体不同相匹配位置的 d_{eff} 值, 在测量中我们使用 $d_{\text{eff}}(\text{KTP})$ 作为标准样品, 并给出两组最新 $d_{\text{eff}}(\text{KDP})$ 系数的标准值, 我们看到由图 1 (b) 给出的 d_{eff} 系数和从实验中测出的 d_{eff} 系数是完全一致的, 也就是, 实验结果完全证明, YCOB 晶体的最大 d_{eff} 系数, 确实不在 $x - z$ 主平面上^[1], 也不是像 Iwai 等^[2]所指出的在 $(\theta = 33^\circ, \phi = 9^\circ)$ 位置上, 而是在 $(\theta = 64.5^\circ, \phi = 35.5^\circ)$ 和 $(\theta = 64.5^\circ, \phi = 144.5^\circ)$ 两个位置上. 表 3 给出了 Nd: YCOB 晶体在不同相匹配位置所测得的倍频转换效率以及此位置所对应的 d_{eff} 系数值. 我们看到, 在晶体相匹配长度一致, 基波光功率密度也一样的情况下, 由我们的计算所确定出的最大有效倍频系数的方向, 确实具有最高的倍频转换效率, 因此, 山东大学晶体研究所的上述两个实验, 证实了我们所给出 $d_{\text{eff}} - (\theta, \phi)$ 的相互关系是正确的.

综上所述, YCOB(Nd: YCOB) 晶体倍频系数及其最大有效倍频系数方位的确定, 使 YCOB(Nd: YCOB) 晶体的倍频转换效率及自倍频转换效率有成倍的提高, 从而使它的自倍频转换效率有可能达

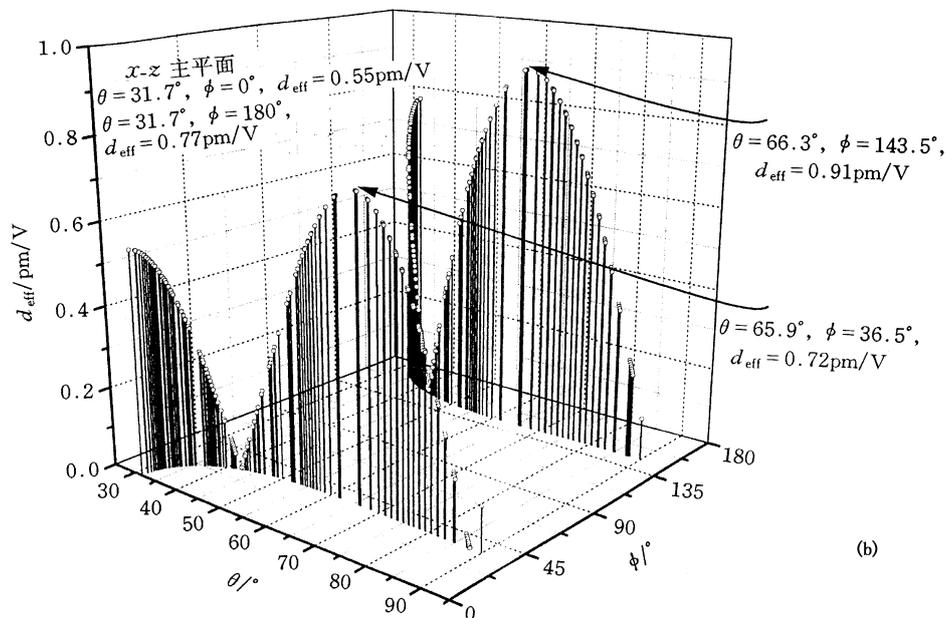
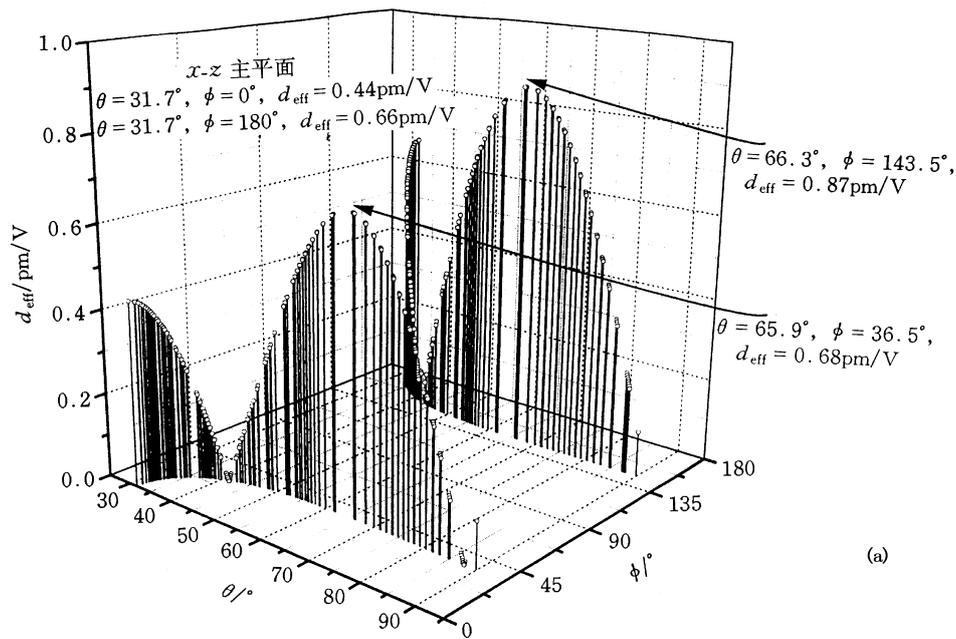


图1 YCOB晶体 $d_{\text{eff}} - (\theta, \phi)$ 三维曲线

(a) : d_{ij} 系数全部用理论值代入;(b) : d_{33}, d_{32} 系数用实验值代入,其余仍使用理论值

到实用化水平.假如进一步考虑到 YCOB(Nd:YCOB)晶体的生长较易实现规模化生产,这将促使此晶体在推动全固化三基色激光器的进程中起到越来越重要的作用.

参 考 文 献

- [1] Aka G, Kahr Harari A, Mougél F *et al.* J. Opt. Soc. Am. B, 1997, 14:2238
- [2] Makoto Iwai, Taisuke Kobeyashi, Hiroyuki Furuya *et al.* Jpn. J. Appl. Phys., 1997, 36:1276
- [3] Auge F, Mougél F, Aka G *et al.* CLEO' 98, (1998) CTHA5, 324
- [4] Norrestam R, Nygren M, Bovin J-O, Chem. Mater., 1992, 7:37.
- [5] Chen C T. Development of New Nonlinear Optical Crystals in the Borate Series, edited by Letokhov V S, Shank C V, Shen Y R *et al.* Harwood: Academic Publishers, 1993
- [6] Chen C T, Shao Z S, Wei J Q, *et al.* J. Opt. Soc. Am., 2000, 17:1
- [7] Mougél F, Aka G, Salin F, *et al.* Advance solid state Lasers, 1999, 26 of OSA Proceeding Series .709
- [8] Lu Junhua, Li Guangming, Liu Junhai *et al.* Chin. Phys. Lett., 1999, 16:651