

$\text{Gd}_x\text{Y}_{1-x}\text{Ca}_4\text{O}(\text{BO}_3)_3$ 晶体非临界 相位匹配波长的研究*

王正平[†] 许心光 孙 洵 傅 琨 宋仁波 王继扬 刘耀岗 魏景谦 邵宗书

(山东大学晶体材料国家重点实验室 济南 250100)

(2001 年 3 月 16 日收到, 2001 年 4 月 19 日收到修改稿)

根据 $\text{YCa}_4\text{O}(\text{BO}_3)_3$ (YCOB), $\text{GdCa}_4\text{O}(\text{BO}_3)_3$ (GdCOB) 的折射率拟合方程, 分析了 $\text{Gd}_x\text{Y}_{1-x}\text{COB}$ 可实现非临界相位匹配的波长范围. 利用 704-5 型光参量放大器, 测量了非临界相位匹配波长随组分 x 的变化关系.

关键词: $\text{Gd}_x\text{Y}_{1-x}\text{COB}$ 晶体, 非临界相位匹配波长

PACC: 4265K, 4270

1 引 言

近紫外及可见激光光源在光数据存储、原子吸收谱分析、光学医疗、材料加工等领域具有广泛需求. 利用体块晶体、玻璃、薄膜等材料的非线性效应, 将 Nd:YAG 等产生的近红外激光进行频率转换, 是得到此类激光光源的有效方法^[1-5]. 目前, 应用最普遍的二倍频晶体是 KTiOPO_4 (KTP). 在紫外激光的产生方面, LiB_3O_5 (LBO) 和 $\beta\text{-BaB}_2\text{O}_4$ ($\beta\text{-BBO}$) 占据主要地位. 近年来, 以 GdCOB, YCOB, $\text{Gd}_x\text{Y}_{1-x}\text{COB}$ 为代表的一族新型硼酸盐晶体逐渐引起了人们的关注. 1997 年, Aka 等人报道了 GdCOB 晶体的生长和结构, 以及线性、非线性光学性质^[6]. 随后 Iwai 等人报道了 YCOB 晶体的相应性质^[7]. 由于这类晶体属同成分共融化合物, 所以可用 Czochralski 提拉法生长, 具有生长速度快、周期短的特点, 且比较容易获得高光学质量的大块单晶. 这些优势是 KTP、KDP、LBO、 $\beta\text{-BBO}$ 等非线性光学晶体所不具备的. 现在, 我们实验室已经能够连续生长出直径为 40mm、长度为 80mm 的无任何宏观缺陷的该类晶体, 生长周期 7 天左右. 此外, 这些晶体还具有透光波段宽、相位匹配范围大、光损伤阈值高、不潮解等优点, 因而已经成为频率转换器件的研究热点.

对双轴晶而言, 非临界相位匹配是指沿折射率

主轴方向的相位匹配. 与一般方向的相位匹配相比, 它具有容许角大、走离角为 0 的特点, 因而便于使用长晶体提高倍频转换效率. 获得特定波长非临界相位匹配的方法可以有两种, 即改变温度或改变晶体组分. 我们的研究表明, GdCOB 系列晶体的温度折射率系数较小, 因而改变温度的方法并不适用. 在 YCOB 晶体主平面上的 1064nm 二倍频实验中, 我们将晶体温度由 20℃ 提升至 150℃, 相位匹配角仅改变了 6°, 而文献 [8] 的数据显示, LBO 在相同条件下相位匹配角可改变 12°, $\text{MgO}:\text{LiNbO}_3$ 的相位匹配角可改变 14° 以上. Yoshimura 等人指出, 混晶 $\text{Gd}_x\text{Y}_{1-x}\text{COB}$ 的晶格常数比随组分 x 的增加线性变化, 进而引起折射率的连续变化. 利用这一性质, 通过改变组分 x 就可实现不同波长的非临界相位匹配^[9]. Burnester 等人用 Z 向切割的 $\text{Gd}_{0.84}\text{Y}_{0.16}\text{COB}$ 晶体实现了 930nm 的二倍频非临界相位匹配^[10]. Furuya 等人用 Y 向切割的 $\text{Gd}_{0.28}\text{Y}_{0.72}\text{COB}$ 晶体实现了 1064nm 的三倍频非临界相位匹配, 他们采用提高晶体温度的方法有效地避免了晶体在高功率下的光致损伤, 当基频功率为 10.3W 时, 355nm 紫外输出达到 0.93W, 这一结果已经可与 LBO 相比^[11], 说明 $\text{Gd}_x\text{Y}_{1-x}\text{COB}$ 具有良好的应用前景. 但是, 到目前为止对 $\text{Gd}_x\text{Y}_{1-x}\text{COB}$ 的非临界相位匹配性质仍未见比较系统的报道.

本文根据 YCOB, GdCOB 的折射率拟合方程, 绘

* 国家自然科学基金(批准号: 69890235)及山东省优秀中青年科学家科研奖励基金资助的课题.

[†] E-mail: zshao@icm.sdu.edu.cn

制了主平面内的相位匹配曲线,从而确定出 $Gd_xY_{1-x}COB$ 晶体各个晶轴上的非临界相位匹配波长范围,并在室温下实测了不同组分的 Y 切 $Gd_xY_{1-x}COB$ 的非临界相位匹配波长.我们相信此项工作将有助于该晶体尽快走向实用化.

2 $Gd_xY_{1-x}COB$ 非临界相位匹配波长的计算

根据 Iwai 等人报道的 YCOB ,GdCOB 的折射率拟合方程^[7] ,我们分别计算了两种晶体主平面内的相位匹配曲线 如图 1、图 2 所示.各晶轴上的非临界相位匹配的波长列于表 1.由于 $Gd_xY_{1-x}COB$ 是折射率连续变化的固熔体,因而对于每个晶轴而言, $Gd_xY_{1-x}COB$ 可实现非临界相位匹配的波长在纯 YCOB ,GdCOB 的相应波长之间变化.例如由表 1 可知, Y 轴上 $Gd_xY_{1-x}COB$ 的一类匹配范围应是 $0.735\text{—}0.838\mu\text{m}$,二类匹配范围应是 $1.018\text{—}1.163\mu\text{m}$.其他轴上两类匹配的波长范围可依此类推.

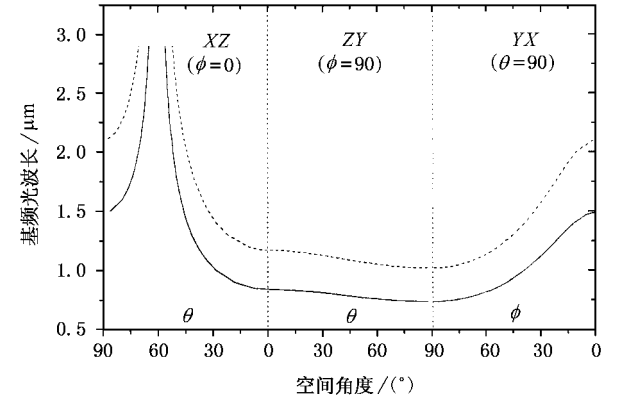


图1 YCOB 主平面内的相位匹配曲线

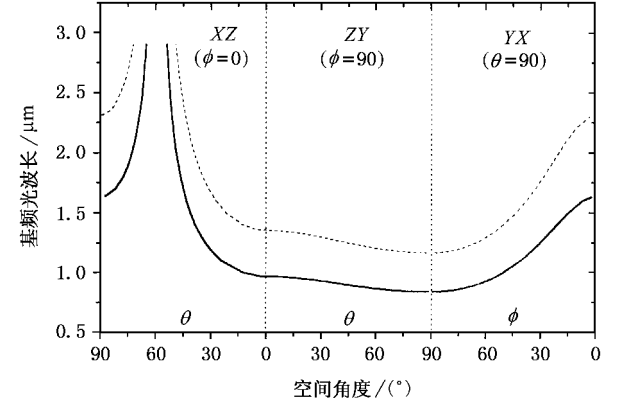


图2 GdCOB 主平面内的相位匹配曲线

表1 YCOB ,GdCOB 的非临界相位匹配波长			
晶体	主轴	一类相位匹配波长/ μm	二类相位匹配波长/ μm
YCOB	X	1.486	2.101
	Y	0.735	1.018
	Z	0.840	1.171
GdCOB	X	1.633	2.309
	Y	0.838	1.163
	Z	0.968	1.351

注 根据 Iwai 等人的折射率拟合方程.

法国的 Mougel 等人报道了另外一套 YCOB ,GdCOB 的折射率拟合方程^[6,12] ,根据他们的数据 ,我们同样计算了两种晶体各个晶轴上的非临界相位匹配波长 ,如表 2 所示.比较表 1、表 2 可知, Y 、 Z 轴上一类匹配的差别很小 ,二类匹配的差别较大 ,而 X 轴上两类匹配的差别都很大.

表2 YCOB ,GdCOB 的非临界相位匹配波长			
晶体	主轴	一类相位匹配波长/ μm	二类相位匹配波长/ μm
YCOB	X	> 2	> 2.4
	Y	0.723	1.023
	Z	0.827	1.218
GdCOB	X	> 2	> 3
	Y	0.831	1.205
	Z	0.967	1.557 2.229

注 根据 Mougel 等人的折射率拟合方程.

3 $Gd_xY_{1-x}COB$ 非临界相位匹配波长的测量

我们使用中科院物理所生产的 704-5 型光参量放大器(波长在 $200\text{—}2000\text{nm}$ 内连续可调) ,实测了 YCOB ,GdCOB 的非临界相位匹配波长.两种晶体各加工了两块样品 ,通光方向分别沿它们的 Y 轴和 Z 轴 ,长度均为 10mm .由于对 X 轴而言一类匹配的非线性系数为 0 ,二类匹配的波长又超出了光参量放大器的输出范围 ,所以未加工 X 切向的样品.实验结果如表 3 所示.与表 1、表 2 所列的计算结果相比 ,表 3 中的数值与表 2 更为接近 ,除 GdCOB 晶体 Y 轴上的二类匹配波长之外 ,其他波长的差异小于 10nm .Mougel 等人认为他们的折射率拟合方程比 Iwai 的更为精确^[12] ,我们的实验证实的确如此.实验过程中没有观察到 Z 向的二类相位匹配 ,对于 GdCOB ,YCOB 均是如此.

表3 YCOB ,GdCOB 的非临界相位匹配波长(实测)			
晶体	主轴	一类相位匹配波长/ μm	二类相位匹配波长/ μm
YCOB	Y	0.725 ± 0.005	1.032 ± 0.003
	Z	0.826 ± 0.004	
GdCOB	Y	0.831 ± 0.001	1.255 ± 0.005
	Z	0.973 ± 0.002	

我们生长了不同组分的 $\text{Gd}_x\text{Y}_{1-x}\text{COB}$ 晶体 ,沿 Y 轴加工并测量了它们的一类、二类非临界相位匹配波长 ,如图 3、图 4 所示 .由两图可知 , $\text{Gd}_x\text{Y}_{1-x}\text{COB}$ 的非临界相位匹配波长随组分 x 的变化而连续变化 ,Y 轴上可实现 725—831nm 的一类相位匹配及 1032—1255nm 的二类相位匹配 ,从而获得近紫外及可见光源 .上述实验为人们提供了这样的思路 :尽管不同激光器使用不同的激光晶体 ,且发射波长随晶体所掺稀土离子的不同而存在差异 ,但当涉及到有效的频率转换过程时就可以考虑使用 $\text{Gd}_x\text{Y}_{1-x}\text{COB}$ 晶体 ,当然还要按照基频光的波长去确定折射率主轴及设计组分 x .例如 ,Nd :YAG 激光器的发射波长

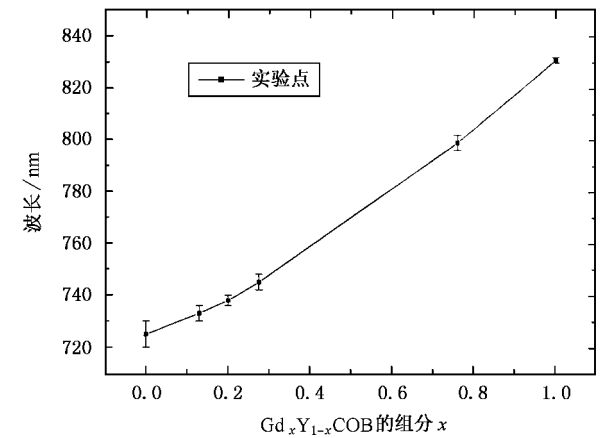


图3 Y 向 $\text{Gd}_x\text{Y}_{1-x}\text{COB}$ 的一类相位匹配波长随组分 x 的变化关系

是 1064nm ,由图 4 可知 Y 向的 $\text{Gd}_{0.2}\text{Y}_{0.8}\text{COB}$ 可实现这一波长的二类非临界相位匹配 .我们采用美国 Continuum 公司生产的 PY61 型 Nd :YAG 锁模激光器作为激光光源(重复频率 10Hz ,脉冲宽度 50ps),当入射单脉冲的能量为 11mJ 时 ,10mm 长的 Y 切 $\text{Gd}_{0.2}\text{Y}_{0.8}\text{COB}$ 倍频输出达到 4mJ ,转换效率为 36.7% .考虑到非临界相位匹配的允许角大 ,走离角为 0 ,如果使用更长的晶体将可望得到更有效的绿光输出 .

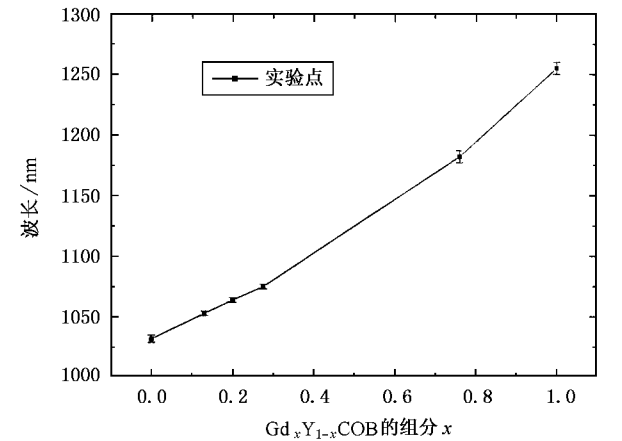


图4 Y 向 $\text{Gd}_x\text{Y}_{1-x}\text{COB}$ 的二类相位匹配波长随组分 x 的变化关系

4 结 论

本文比较系统地研究了 $\text{Gd}_x\text{Y}_{1-x}\text{COB}$ 晶体的非临界相位匹配波长 .根据两套不同的 YCOB ,GdCOB 的折射率拟合方程 ,分别计算了 $\text{Gd}_x\text{Y}_{1-x}\text{COB}$ 每个晶轴上的非临界相位匹配波长范围 ,并在室温下对不同组分的 Y 切 $\text{Gd}_x\text{Y}_{1-x}\text{COB}$ 进行了实测 .实验证实 , $\text{Gd}_x\text{Y}_{1-x}\text{COB}$ 的非临界相位匹配波长随组分连续变化 ,是一种有较宽应用前景的非线性光学晶体 .

[1] X. F. Wei , X. M. Zhang , Z. Sui *et al.* , *Chin. J. Lasers* , **17** (1990) 737 in Chinese [魏晓峰、张小民、随展等 ,中国激光 , **17**(1990) , 737].

[2] Z. L. Xu , P. Yang , L. Y. Liu *et al.* , *Acta Physica Sinica* , **49** (2000) 1503 in Chinese [徐志凌、杨鹏、刘丽英等 ,物理学报 , **49**(2000) , 1503].

[3] Q. M. Liu , X. J. Zhao , F. X. Gan , *Acta Physica Sinica* , **49**(2000) , 1726 in Chinese [刘启明、赵修建、干福熹 ,物理学报 , **49** (2000) , 1726].

[4] L. Y. Liu , L. Xu , Z. J. Hou *et al.* , *Acta Physica Sinica* , **48** (1999) 69 in Chinese [徐志凌、杨鹏、刘丽英等 ,物理学报 , **48** (1999) , 69].

[5] Z. L. Xu , L. Y. Liu , P. Yang *et al.* , *Acta Physica Sinica* , **48** (1999) 2076 in Chinese [徐志凌、杨鹏、刘丽英等 ,物理学报 , **48**(1999) , 2076].

[6] G. Aka , A. Kahn-Harari , F. Mougél *et al.* , *J. Opt. Soc. Am.* , **B14**(1997) , 2238.

[7] M. Iwai , T. Kobayashi , H. Furuya *et al.* , *Jpn. J. Appl. Phys.* , **36**

(1997), L276.

[8] V. G. Dmitriev , G. G. Gurzadyan , D. N. Nikogosyan , Handbook of Nonlinear Optical Crystals , 2nd edition (Springer , Berlin , 1997) , p. 74 , 161 .

[9] M. Yoshimura , H. Furuya , T. Kobayashi *et al.* , *Opt. Lett.* , **24** (1999) , 193 .

[10] P. B. W. Burnester , T. Kellner , K. Petermann *et al.* , *Appl. Phys.* , **B68** (1999) , 1143 .

[11] H. Furuya , H. Nakao , I. Yamada *et al.* , *Opt. Lett.* , **25** (2000) , 1588 .

[12] F. Mougél , G. Aka , F. Salin *et al.* , *Advanced Solid-State Lasers* , **WB1K** (1999) , 332 .

RESEARCH ON THE NON-CRITICAL PHASE-MATCHING
WAVELENGTH OF $Gd_xY_{1-x}Ca_4O(BO_3)_3$ CRYSTAL^{*}

WANG ZHENG-PING XU XIN-GUANG SUN XUN FU KUN SONG REN-BO WANG JI-YANG
LIU YAO-GANG WEI JING-QIAN SHAO ZONG-SHU
(State Key Laboratory of Crystal Materials , Shandong University , Jinan 250100 , China)
(Received 16 March 2001 ; revised manuscript received 19 April 2001)

ABSTRACT

Using the Sellmeier equations of GdCOB and YCOB , we determined the wavelength range in which non-critical phase matching in Gd_xY_{1-x} COB can be realized. Using a 704 – 5 type optical parametric amplifier , we measured the non-critical phase-matching wavelengths in several Gd_xY_{1-x} COB crystals with different compositional parameter x .

Keywords : Gd_xY_{1-x} COB crystal ; non-critical phase-matching wavelength
PACC : 4265K , 4270

^{*} Project supported by the Key Program of the National Science Foundation of China (Grant No.69890235) and the Research Award Foundation for Prominent Youth Scientists of Shandong Province of China.