

KTP 晶体光参量过程的相位匹配

赵庆春 郭晶华 陆雨田 何慧娟 李永春 顾圣如 钱林兴 赵隆兴

(中国科学院上海光机所, 201800)

刘耀岗 王继扬

(山东大学晶体材料研究所, 250100)

摘要: 讨论了双轴晶体中参量过程的角度匹配计算方法, 计算了 KTP 晶体对于 355、532 nm 和 1064 nm 波长泵浦的光参量过程的角度匹配曲线; 对于三个主平面内的 II 类相位匹配曲线的特点作了分析和讨论。实验验证了 532 nm 波长泵浦的光参量过程, 在 X-Z 平面内的 II 类相位匹配角度值与理论计算的结果一致。

关键词: 双轴晶体相位匹配, KTP 晶体光参量过程

Phase matching of optical parametric generation in KTP crystal

Zhao Qingchun, Guo Jinhua, Lu Yutian, He Huijuan, Li Yongchun, Gu Shengru,
Qian Linxing, Zhao Longxin

(Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Academia Sinica, Shanghai)

Liu Yaogang, Wang Jiyang

(Institute of Crystals, Shandong University, Jinan)

Abstract: The calculation method of angle phase-matching for optical parametric generation (OPG) in biaxial crystals was presented. The angle phase-matching curves and their characteristics of OPG in KTP crystal pumped by 355nm, 532nm, and 1064nm radiation were calculated and analyzed. Our experiments have confirmed the optical parametric generation pumped by 532nm laser output, which is in agreement with the calculated curves for angle phase-matching of type II in X-Z plane.

Key words: phase-matching in biaxial crystals, optical parametric generation in KTP crystal

KTP (KTiOPO_4)^[1] 有很大的可实现相位匹配的非线性系数 ($d_{24} = 7.6 \text{ pm/V}$) 和很宽的透明窗 (350~4500 nm), 因此, 它是进行三光子相互作用并产生极宽波长范围可调谐激光的优质晶体, 所以近几年开展了 KTP 晶体的光参量过程研究^[2~3]。

本文讨论了 KTP 晶体的最佳相位匹配及有效非线性系数, 并编制了有关计算机程序。

一、KTP 的物理光学特性

KTP 属正交晶系, $mm2$ 点群。光轴 X, Y 和 Z (三个主轴折射率满足关系: $n_z > n_y > n_x$) 分别对应晶轴 a, b 和 c 。它不具有 Kleinman 对称性, 有 5 个非零的非线性系数: $d_{15}, d_{24}, d_{31}, d_{32}$ 和 d_{33} , 最大的可相位匹配的非线性系数为 d_{24} 。它的其它特性见参考文献[5]。

二、KTP 晶体光参量过程的相位匹配

KTP 晶体的光学角度为

$$\Omega = \sin^{-1} \left(\frac{n_x^{-2} - n_y^{-2}}{n_x^{-2} - n_z^{-2}} \right)^{1/2} \quad (1)$$

Ω 是 Z 轴与双轴晶体两个轴中任意一个的夹角。对于 532 nm 波长, $\Omega = 18.9^\circ$, 小于 45° , 为正双轴晶体。

对于三光子相互作用的光参量相互作用, 计算相位匹配角度时, 用到下面一些关系和公式:

$$\begin{aligned} 1/\lambda_3 &= 1/\lambda_2 + 1/\lambda_1 \\ n_3/\lambda_3 &= n_2/\lambda_2 + n_1/\lambda_1 \end{aligned} \quad (2)$$

分别是用波长表示的能量守恒和动量守恒关系。 λ 和 n 分别为相互作用的三个波的波长和折射率。这里假定 $\lambda_1 \geq \lambda_2 > \lambda_3$ 。对于双轴晶体也存在两类相位匹配方式。这里用角度相位匹配而不用温度相位匹配是因为 KTP 的温度宽度大 ($25^\circ\text{C} \cdot \text{cm}$)。

相位匹配计算还要用到双轴晶体的折射率曲面方程:

$$\frac{\sin^2 \theta \cos^2 \phi}{n^2 - (n_x)^{-2}} + \frac{\sin^2 \theta \sin^2 \phi}{n^2 - (n_y)^{-2}} + \frac{\cos^2 \theta}{n^2 - (n_z)^{-2}} = 0 \quad (3)$$

θ 角和 ϕ 角是光在晶体内传输方向的极坐标角。 θ 是该方向与 Z 轴的夹角, ϕ 是该方向在 $X-Y$ 平面内的投影与 X 轴的夹角。

如果光在三个主平面内传输, 则“快光”与“慢光”的偏振方向如表 1 所示。

方程(3)中的 n_x, n_y 和 n_z 分别为 X, Y 和 Z 方向的主轴折射率, 它们由晶体的 Sellmeier 方程给出。KTP 晶体目前由两种生长方法获得: 水热法和熔剂法。两种方法生长的晶体的折射率有所不同, 因此, 在作相位匹配计算时, 我们用了下面两个 Sellmeier 方程进行了计算。

熔剂法生长的 KTP 的 Sellmeier 方程为^[6]

$$n^2 = A_1 + \frac{B_1}{1 - C_1 \lambda^{-2}} - D_1 \lambda^2 \quad (4a)$$

水热法生长的 KTP 的 Sellmeier 方程为^[7]

$$n^2 = A_2 + \frac{B_2}{1 - (C_2/\lambda)^2} - D_2 \lambda^2 \quad (4b)$$

其中 A, B, C 和 D 为常数, 如表 2 所示。

我们编制的计算机程序, 对于给定的泵浦波长, 可以给出在 KTP 三个主平面内光参量作用的角度相位匹配曲线、信号波与伴随波的波长及有效非线性系数的大小。KTP 的透明窗在可见光到中红外波段, 因此, 我们计算了 Nd:YAG 激光的三次谐波 (355 nm)、二次谐波

Table 1. Polarization directions of "fast light" and "slow light" in three principal planes

Polarization directions	X-Z plane	Y-Z plane	X-Y plane
In the principal plane	slow light (e_1)	slow light (e_1)	fast light (e_2)
Normal to the principal plane	fast light (e_2)	fast light (e_2)	slow light (e_1)

Table 2 Sellmeier equation coefficients

	A_1	B_1	C_1	D_1	A_2	B_2	C_2	D_2
n_x	2.16747	0.83733	0.04611	0.01713	2.1146	0.89188	0.20861	0.01320
n_y	2.19229	0.83547	0.04970	0.01621	2.1518	0.87862	0.21801	0.01327
n_z	2.25411	1.06543	0.05486	0.02140	2.3136	1.00012	0.23831	0.01679

(532 nm) 和基波 (1064 nm) 作为泵浦光时的参量过程。

图 1 至图 4 是计算出的熔剂法生长的 KTP 的角度相位匹配曲线、有效非线性系数和实验结果。图 1 至图 3 是在 X-Z 和 Y-Z 平面内的角度相位匹配曲线和有效非线性系数, 分别对应 355 nm、532 nm 和 1064 nm 三个泵浦波长。图 4 是这三个泵浦波长在 X-Y 平面内的角度相位匹配曲线和有效非线性系数。图中的角度值均为晶体内部的角度, 晶体外部的角度可按折射定律公式算出

$$\alpha = \sin^{-1}(n \sin \beta) \tag{5}$$

α 是泵浦光对于晶体的入射角, β 是相应的晶体内的折射角。 β 角与 θ 角或 ϕ 角的关系则取决于晶体的切割方向。(5) 式中的折射率 n 不仅与光的波长、传输方向有关, 而且与光的偏振方向有关, 所以计算 n 时要考虑光是“快光”还是“慢光”而用 (3) 式计算。

图 5 是对于 532 nm 的泵浦波, 用两个不同的 Sellmeier 方程 (4a) 和 (4b) 计算出的在 X-

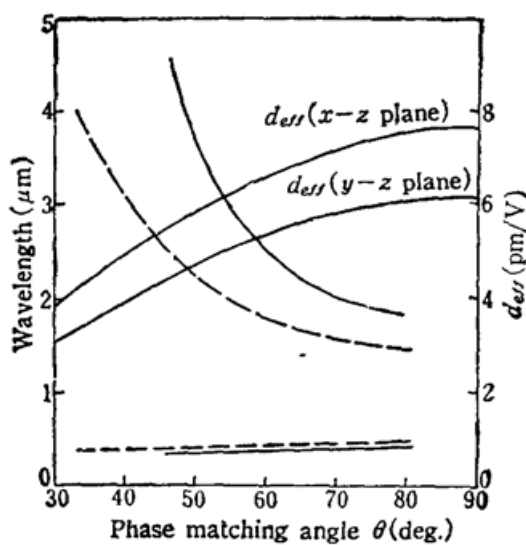


Fig. 1 Angle tuning curves of flux grown KTP in X-Z plane (solid lines) and Y-Z plane (dotted lines) for type II process pumped by 355nm light and the effective nonlinear coefficients d_{eff}

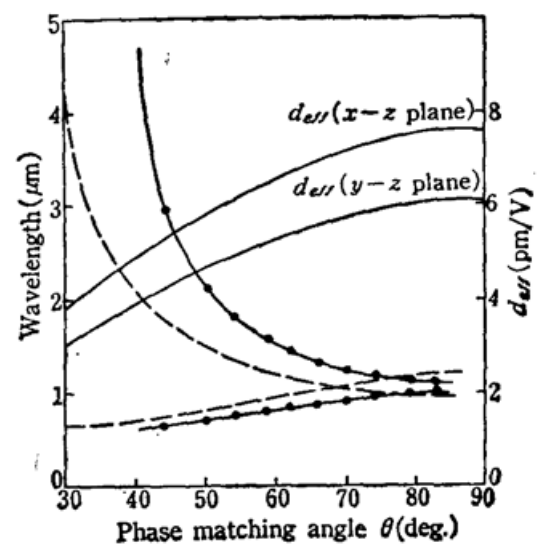


Fig. 2 Angle tuning curves of flux grown KTP in X-Z plane (solid lines) and Y-Z plane (dotted lines) for type II process pumped by 532nm light, and the effective nonlinear coefficients d_{eff}

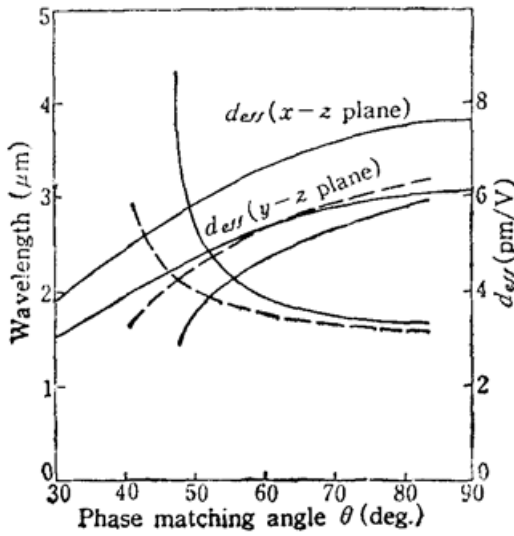


Fig. 3 Angle tuning curves of flux grown KTP in X-Z plane (solid lines) and Y-Z plane (dotted lines) for type II process pumped by 1064nm, and the effective nonlinear coefficients d_{eff}

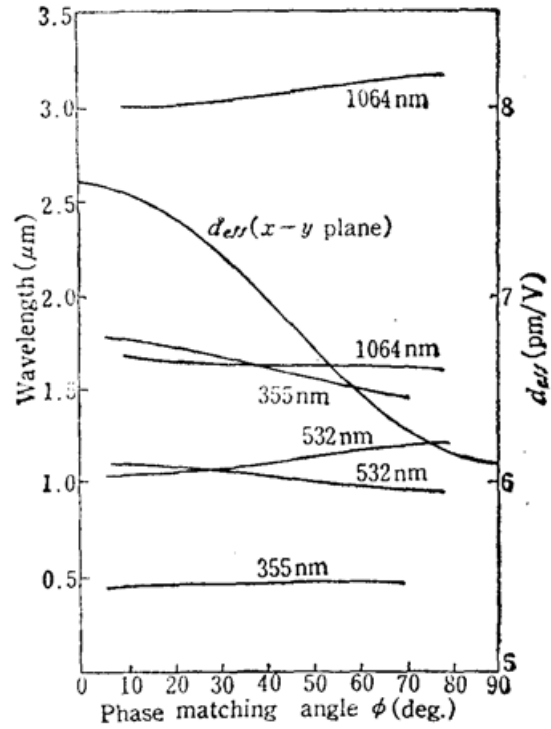


Fig. 4 Angle tuning curves of flux grown KTP in X-Y plane for type II process pumped by 355, 532 and 1064nm light respectively, and the effective nonlinear coefficients d_{eff}

Z 平面内的 II 类角度相位匹配曲线的比较。对于 600~1010nm 的信号波(相应的伴随波为 4694~1124 nm),图 5 给出不同波长、两种方法生长的 KTP 的相位匹配角度之差 $\Delta\theta$,可见两者的相位匹配角是不一致的。从图 5 可见,在 600 nm 和简并点附近的角度的差别较大,但是,在整个 600~4500nm 的调谐范围内,两者的角度差不超过 1° 。

三、有效非线性系数

用于频率转换的光学晶体的有效非线性系数的大小只与晶体的非线性系数、光在晶体内的传输方向以及双轴晶体的光学角度大小有关,而与光的波长无关。

KTP 是双轴晶体,它的折射率曲面无旋转对称性,因此,有效非线性系数 d_{eff} 的解析表达式极为复杂和冗长^[8],但是,在主平面内则大为简化,如表 3 所示。

在 X-Y 和 Y-Z 平面内, I 类相位匹配的有效非线性系数 $d_{eff} = 0$, 无法产生三光子相互作用。在 X-Z 平面内,由于 $d_{32} < d_{24}$ (见表 3), 以及考虑到 $\sin \theta$ 的变化范围,显然有 $d_{eff}(II) > d_{eff}(I)$ 。

因此,无论在哪个主平面内,用 II 类相位匹配都比用 I 类好,有更大的 d_{eff} , 从而产生更有效的三光子相互作用。鉴此,只计算了 II 类的角度相位匹配曲线。

图 1~4 也给出了不同主平面内的 d_{eff} 变化曲线。三个主平面里,在调谐范围内 d_{eff} 的变化范围列于表 4。

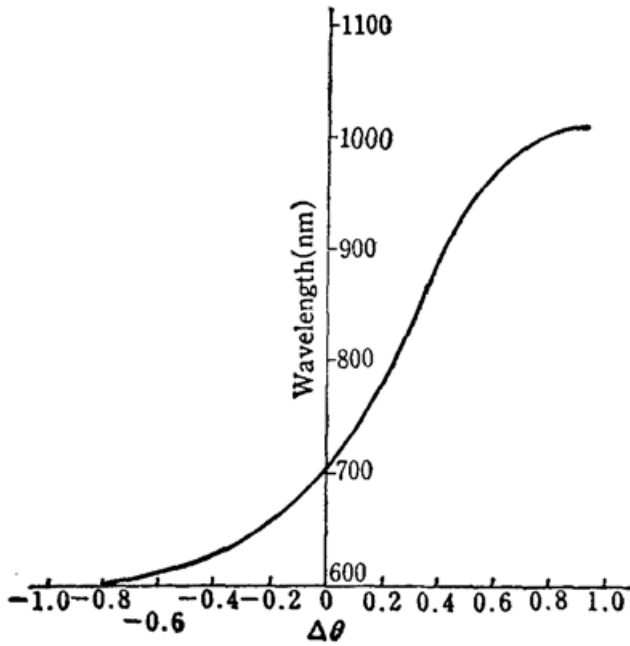


Fig. 5 Wavelength vs phase matching angle difference $\Delta\theta$ between hydrothermally grown KTP and flux grown KTP in X-Z plane for type II process pumped by 532nm light

Table 3 Effective nonlinear coefficients of KTP crystal in three principal planes

	X-Z plane ($\phi=0^\circ$)	Y-Z plane ($\phi=90^\circ$)	X-Y plane ($\theta=90^\circ$)
$d_{eff}(I)$	$d_{32} \sin \theta$ (for $0 < \theta < \Omega$)	0	0
$d_{eff}(II)$	$-d_{24} \sin \theta$ (for $\Omega < \theta < 90^\circ$)	$-d_{15} \sin \theta$	$-d_{15} \sin^2 \phi$ $-d_{24} \cos^3 \phi$

四、主平面内光参量过程的讨论与实验结果

根据图 1~4 给出的角度调谐曲线和 d_{eff} 曲线, 可按需要选择泵浦波长和工作主平面。

从图 1~4 可见, 工作在 X-Z 和 Y-Z 平面内所能获得的波长调谐范围要远大于 X-Y 平面内的调谐范围; 另外, 对于 355 nm 和 1064 nm 泵浦波长, X-Y 平面内的调谐曲线还有很大的波长间隙, 所以, 对于要求有宽调谐范围的应用不宜工作在 X-Y 平面内。对于不要求很宽调谐范围的应用, 工作在 X-Y 平面内会有较高的转换效率, 因为 X-Y 平面内的 d_{eff} 较大 (见表 4)。除这种情况外, 一般不工作在 X-Y 平面内, 因此, 下面主要讨论 X-Z 和 Y-Z 平面内的光参量特点。

Table 4 Changes of d_{eff} in tuning ranges for three principal planes at pumping wavelengths of 355 nm, 532 nm and 1064 nm

	X-Z plane	Y-Z plane	X-Y plane
355 nm	5.5~7.5 (pm/V)	3.4~6.0 (pm/V)	6.3~7.6 (pm/V)
532 nm	5.0~7.6 (pm/V)	3.0~6.1 (pm/V)	6.2~7.6 (pm/V)
1064 nm	5.6~7.6 (pm/V)	4.0~6.1 (pm/V)	6.2~7.6 (pm/V)

4.1 泵浦波长为 355 nm

从图 1 和图 4 可见, 不论工作在哪个主平面内, 参量光的波长都不可能在大范围内连续可调, 调谐曲线的中间都有一个很大的波长间隙。在 X-Z 平面和 Y-Z 平面内的波长间隙分别为 440~1838 nm 和 470~1451 nm, 在 X-Y 平面的波长间隙也是 470~1451 nm。

4.2 泵浦波长为 532 nm

在 $X-Z$ 和 $Y-Z$ 面内都可获得 600~4500 nm 的参量光(图 2)。

在 $X-Z$ 平面内, 在简并点 (1064 nm) 附近, 调谐曲线有个小的波长间隙 (1030~1100 nm)。调谐的角度范围是 40.5° 到 84.8° 。 d_{eff} 范围是 5.0~7.6 pm/V。

在 $Y-Z$ 平面内, 调谐曲线分为两部分, 在简并点左边, θ 角从 29.7° 变到 69° 可得到 600~4500 nm 连续可调参量光, d_{eff} 从 3.0 pm/V 变到 5.7 pm/V, 而简并点右边, θ 角从 69° 变到 85.6° , 调谐范围很小 (956~1200 nm), 但是 d_{eff} 变化范围是 5.7~6.1 pm/V, 比左边大。因此, 为获得宽调谐范围, 用左边合适; 而要高转换效率右边较好。

比较两个平面内的光参量过程, 可见在 $X-Z$ 平面内较好, 缺点是有个约 70 nm 的波长间隙。

4.3 泵浦波长为 1064 nm

从图 3 可见, 在 $X-Z$ 和 $Y-Z$ 平面内, 调谐曲线都被简并点分为左、右两部分。

在 $X-Z$ 平面内, 简并点左边部分的 d_{eff} 小而波长调谐范围大。右边部分的 d_{eff} 大而调谐范围小。另外, 由于左边的 $d\lambda/d\theta$ 远大于右边的, 因此左边参量光的谱线宽度要大于右边的。

在 $Y-Z$ 平面内, 简并点两边的调谐范围相差很小, 但是右边的 d_{eff} 大。参量光的谱线宽度也有 $X-Z$ 平面内的同样问题。

实际应用中, 可根据上述特性确定泵浦波长和工作主平面。上面计算的各调谐曲线的准确性需要实验证明。由于它们都是基于同一个 Sellmier 方程算出的, 所以只要证实一组调谐曲线就足够了^[7]。我们实验证实了用(4a)式算出的熔剂法生长的 KTP 的调谐曲线与实验一致。

实验用皮秒 YAG 激光的二次谐波 (532 nm) 作为泵浦光, 用 $7.7 \times 7.7 \times 15$ mm (长度) 的 KTP 晶体 (山东大学晶体所熔剂法生长), 工作在 $X-Z$ 平面内, 得到波长 650~2930 nm 的皮秒可调谐参量光, 波长间隙为 1030~1100 nm。实验结果如图 2 中黑点所示, 与计算的调谐曲线符合很好。得到的最大转换效率为 5.6% (详细计算结果见 *Opt. Commun.*, 待发表)。

参 考 文 献

- 1 F. C. Zumsteg, J. D. Bierlein *et al.*, *J. Appl. Phys.*, **47**, 4980 (1976)
- 2 F. Xie, Q. Fan, *Chinese J. Lasers*, **17**, 265 (1990)
- 3 J. T. Lin, J. L. Montgomery. *Opt. Commun.*, **75**, 315 (1990)
4. H. Vanherzeele, *Appl. Opt.*, **29**, 2246 (1990)
- 5 J. T. Lin, J. L. Montgomery *et al.*, *Opt. Commun.*, **80**, 159 (1990)
- 6 T. Fan, C. Huang *et al.*, *Appl. Opt.*, **26**, 2390 (1987)
- 7 H. Vanherzeele, J. D. Bierlein *et al.*, *Appl. Opt.*, **27**, 3314 (1988)
- 8 H. Ito, H. Naito *et al.*, *J. Appl. Phys.*, **46**, 3992 (1975)