

磺酸水杨酸二钠晶体的可调谐紫外和频*

董耕发 钱士雄 金耀根 李郁芬
(复旦大学物理系)

提 要

研究了染料激光和 $1.06 \mu\text{m}$ 激光在磺酸水杨酸二钠 (DSS) 晶体中的和频效应。计算和测量了 DSS 晶体中实现相位匹配的类型、波长和方向, 测量同计算结果一致。同时还对可调谐紫外输出的特性进行了测量。

DSS 是一种非线性光学晶体, 具有大的非线性系数 d , 利用它已获得了 $1.06 \mu\text{m}$ 光束的有效倍频。它又是一种高度各向异性的双轴晶体, 因而可以满足各种可能的相位匹配以得到非线性混频。本文讨论了对各种波长的激光实现相位匹配的条件, 得到了 I 型、II 型两种不同类型的相位匹配曲线, 在实验上对一些不同取向的晶体作了 $1.06 \mu\text{m}$ 激光和染料激光的和频输出测量, 并对结果作了分析。

一、相位匹配

为讨论相位匹配, 首先给出 DSS 晶体的折射率色散特性。从测得的折射率数据^[1], 我们由 Sellmeier 公式

$$n^2 = A + \frac{B\lambda^2}{\lambda^2 - C} + D\lambda^2 \quad (1)$$

得到了与三个主轴方向对应的 A 、 B 、 C 、 D 参数, 如表 1 所示。

表 1 DSS 晶体的色散常数
Table 1 The dispersion constants of DSS

主轴向 \ 系数	A	B	C	D	n	
					$\lambda=532 \text{ nm}$	$\lambda=405 \text{ nm}$
X	1.72205	0.485163	0.0344993	0.0112744	1.5081	1.5280
Y	2.08567	0.536959	0.0494385	0.006034	1.6541	1.6884
Z	2.00975	0.408781	0.0540979	0.015102	1.5842	1.6181

从拟合得到的参数可以知道, 它们都具有一个波长在 250 nm 左右的强的电子共振吸收, 而由它引起的吸收则开始于更长的波长处。从 DSS 的紫外透射光谱可以看到, 在波长 370 nm 处, 晶体已有明显的吸收。

收稿日期: 1983 年 12 月 23 日; 收到修改稿日期: 1984 年 3 月 27 日

* 本文曾在 '83 IOL(中国, 广州) 上宣读。

我们采用 $1.06 \mu\text{m}$ 激光为 ω_1 光束, 它的谐波光或染料激光为 ω_2 光束。它们的和频效应必须满足光波矢量的守恒, $K_1 + K_2 = K_3$, 其中 K_1 、 K_2 、 K_3 分别表示 $1.06 \mu\text{m}$ 光、谐波光或染料激光以及和频光束的波矢量。对于共线传播的情况, 则有 $K_1 + K_2 = K_3$, 这时的计算更为简单。

我们分别讨论了光束沿着主轴、光束在两个主轴组成的平面上以及光束在空间任意方向上的不同匹配情况。

在主轴方向上共线传播时, 匹配条件为

$$\left. \begin{aligned} n_1^2 \omega_1 + n_2^2 \omega_2 &= n_3^2 \omega_3 & \text{I 型,} \\ n_1^2 \omega_1 + n_2^2 \omega_2 &= n_3^2 \omega_3 & \text{II 型,} \\ n_1^2 \omega_1 + n_2^2 \omega_2 &= n_3^2 \omega_3 & \text{II 型,} \end{aligned} \right\} \quad (2)$$

其中 e_2 表示慢光的偏振方向, e_1 表示快光的偏振方向, n^{e_2} 及 n^{e_1} 都正好是主轴向上的折射率。在我们的实验中, ω_1 是不变的, 可以调谐的入射光束是 ω_2 光。利用上述的折射率色散公式可以计算得到沿各主轴方向传播时的匹配波长 λ_2 。

例如对 X 方向传播的光束, 这时相应的 e_2 光为 Y 向偏振, e_1 光为 Z 向偏振。这时存在三种匹配, 即 $Y+Y \rightarrow Z$, $Z+Y \rightarrow Z$ 及 $Y+Z \rightarrow Z$ 。计算求得它们相应的匹配波长为 560 nm , 795 nm 及 953 nm 。

对共线光束在主轴平面上传播的情况, 匹配公式仍如(2)式所给, 但这时 e_2 及 e_1 偏振中有一个处在主轴平面上, 而另一个偏振沿与此平面垂直的主轴方向。例如对于光束在 XY 平面上传播但靠近 X 轴的情况, 匹配类型为 $XY+XY \rightarrow Z$, $Z+XY \rightarrow Z$ 及 $XY+Z \rightarrow Z$ 。对三个主轴平面 XY , XZ 及 YZ 分别求解, 可以得到对应的相位匹配曲线, 如图1所示。

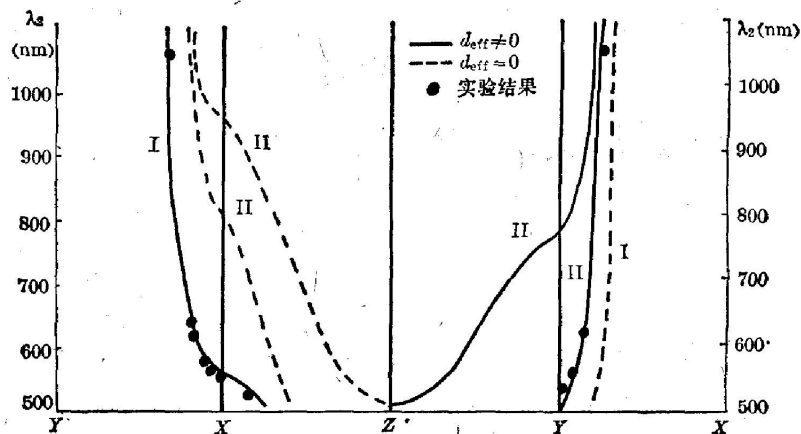


图1 DSS晶体在主轴平面上的匹配曲线

Fig. 1 Phase-matching curves of DSS crystal on the main axis plane

从图1可以看到, 由于DSS晶体高度的各向异性, 当 λ_2 在 $1.1 \sim 0.5 \mu\text{m}$ 的波长范围中, 三种匹配方式(一种I型和两种II型)都可以满足相位匹配。需要指出的是, 从相位匹配要求来讲, 在 XY 平面上可能有两种不同的I型匹配即 $XY+XY \rightarrow Z$ 及 $Z+Z \rightarrow XY$ 和四种不同的II型匹配。当然考虑到有效非线性系数, 这些相位匹配方式并不全都有效。

对共线光束在空间任意方向传播的情况, 需要解方程组。由于 DSS 晶体的 n_y 最大, n_x 最小, 所以为方便起见, 取坐标轴系统如图 2 所示, 当 K 矢量在某一 (θ, ϕ) 方向时, 可知快光及慢光的电位移矢量的方向分别为

$$e_1 = \begin{pmatrix} \cos \theta \cos \phi \cos \delta - \sin \phi \sin \delta \\ -\sin \theta \cos \delta \\ \cos \theta \sin \phi \cos \delta + \cos \phi \sin \delta \end{pmatrix}$$

$$e_2 = \begin{pmatrix} -\cos \theta \cos \phi \sin \delta - \sin \phi \cos \delta \\ \sin \theta \sin \delta \\ -\cos \theta \sin \phi \sin \delta + \cos \phi \cos \delta \end{pmatrix}$$

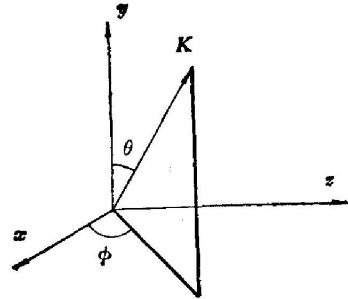


图 2 采用的坐标轴系统

Fig. 2 The coordinate system

其中 δ 是 e_1 与由 K 及 Y 轴组成的平面之间的夹角。 e_1 与 e_2 相应的折射率可以由菲涅耳方程求得。如果要求解某一组波长 $(\lambda_1, \lambda_2, \lambda_3)$ 的空间相位匹配曲线, 就需要联立三个波长的菲涅耳方程以及对应的相位匹配类型的 K 矢量公式来求解。即

$$\frac{\sin^2 \theta \cos^2 \phi}{n_i^{-2} - n_{X_i}^{-2}} + \frac{\cos^2 \theta}{n_i^{-2} - n_{Y_i}^{-2}} + \frac{\sin^2 \theta \sin^2 \phi}{n_i^{-2} - n_{Z_i}^{-2}} = 0 \quad (i=1, 2, 3), \quad (3a)$$

$$n_1 \omega_1 + n_2 \omega_2 = n_3 \omega_3, \quad (3b)$$

其中方程(3a)可以得到 n_i 的两个解, n_i^e 和 n_i^o , 并有 $n_i^e > n_i^o$ 。

我们已经求得在几个不同的 λ_2 波长时的相位匹配曲线, 如图 3 所示。其中给出了 $\lambda_2 = 630 \text{ nm}$ 及 $\lambda_2 = 532 \text{ nm}$ 对应的曲线。

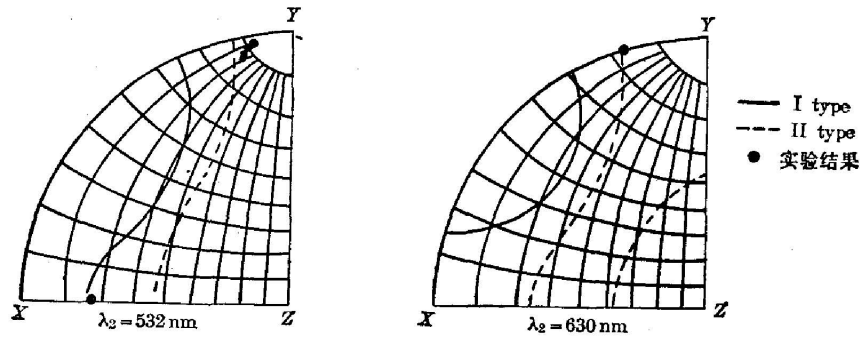


图 3 λ_2 为 532 nm 及 630 nm 的相位匹配曲线

Fig. 3 λ_2 Phase-matching curves at the wavelengths of 532 nm and 630 nm

从曲线可以见到, 对 $\lambda_2 = 630 \text{ nm}$, 三种相位匹配方式都可满足, 而对于 $\lambda_2 = 532 \text{ nm}$, 由于产生的和频光已经处于色散很大的区域, 故一种 II 型匹配已经不能满足, 由此只剩下一条 I 型曲线和一条 II 型曲线。

二、有效非线性系数 d_{eff}

DSS 晶体属于 $pc a 2_1$ 空间群及 $mm 2$ 晶体类。如果考虑到 Kleinman 对称性, 则独立

的 d 系数只有三个, 即 $d_{31}=d_{15}$, $d_{32}=d_{24}$ 及 d_{33} 。从 SHG 测量, 已经求得了 d_{31} 及 d_{32} 的值^[1]。

对于在空间任意方向 (θ, ϕ) 传播的共线光束来讲, 从相应的光电场偏振方向 e'_2, e'_1 以及其它有关量可以求得这时 I 型匹配及 II 型匹配的有效非线性系数的公式。

考虑到只有三个独立的 d 系数时, d_{eff}^I 及 d_{eff}^{II} 分别为

$$\left. \begin{aligned} d_{\text{eff}}^I &= d_{31}e'_{2Z}e'_{1X}e'_{1X} + d_{32}e'_{2Z}e'_{1Y}e'_{1Y} + d_{33}e'_{2Z}e'_{1Z}e'_{1Z} + 2d_{24}e'_{2Y}e'_{1Y}e'_{1Z} + 2d_{15}e'_{2X}e'_{1X}e'_{1Z}, \\ d_{\text{eff}}^{II} &= d_{31}e'_{2Z}e'_{1X}e'_{2X} + d_{32}e'_{2Z}e'_{1Y}e'_{2Y} + d_{33}e'_{2Z}e'_{1Z}e'_{2Z} + d_{24}e'_{2Y}(e'_{1Y}e'_{2Z} + e'_{2Y}e'_{1Z}) \\ &\quad + d_{15}e'_{2X}(e'_{1X}e'_{2Z} + e'_{2X}e'_{1Z}), \end{aligned} \right\} \quad (4)$$

其中 e'_1 和 e'_2 是这时光电场的方向。在双轴晶体中它与电位移矢量的方向 e_1, e_2 是有区别的。光电场 E 的方向可以根据波矢量方向的单位矢量 s 及 n_x^e, n_y^e 由下列方程组求得

$$n_j^2 E_j = n^2 [E_j - s_j (\mathbf{E} \cdot \mathbf{s})] \quad j = X, Y, Z, \quad (5)$$

因为由此不能得到 e'_1 及 e'_2 的解析解, 所以不能给出一般情况下的 d_{eff}^I 及 d_{eff}^{II} 表达式。需要指出, 如果近似用 e_1 及 e_2 来代替 e'_1 及 e'_2 , 由此得到 d_{eff}^I 和 d_{eff}^{II} 的表达式与文献[2]仍有差异。这是因为文献[2]中考虑了光轴处在 XZ 平面上的情况, 而在 DSS 晶体中光轴处在 XY 平面上, 所以两者的 d_{eff} 表达式是完全不同的。

当 K 在主轴平面上传播时, 因为 θ 或 ϕ 有特殊值, 结果比较简单, 如表 2 所示。从表中可以见到, 对在 XY (近 X 轴) 及 XZ 平面上传播的光束, 只有 d_{eff}^I 不为零, 而 d_{eff}^{II} 为零; 与此相反, 在 YZ 及 XY (近 Y 轴) 平面上传播的情况, 则 d_{eff}^I 为零, 而 d_{eff}^{II} 不为零。而且从表中还可以见到, 这时的 d_{eff}^I 及 d_{eff}^{II} 都只与 d_{31} 及 d_{32} 有关, 而与 d_{33} 无关。

表 2 主轴平面上传播时对应的 d_{eff}

Table 2 d_{eff} of crystal with light waves propagating in principal planes

光传播平面	e_1 方向	δ	ϕ	θ	d_{eff}^I	d_{eff}^{II}
XY (近 X 轴)	XY	0°	0°		$d_{31} \cos^2 \theta + d_{32} \sin^2 \theta$	0
XZ	Y	0°		90°	$d_{32} \cos \phi$	0
YZ	ZY	0°	90°		0	$d_{31} \cos \theta$
YX (近 Y 轴)	Z	90°	0°		0	$d_{31} \cos^2 \theta + d_{32} \sin^2 \theta$

三、实 验

1. 实验装置

实验装置如图 4 所示。Nd:YAG 激光器的 $1.06 \mu\text{m}$ 光束先通过 KDP 晶体进行倍频, 得到的谐波光或由它所泵浦的染料激光束作为 ω_2 光束, 而余下的 $1.06 \mu\text{m}$ 光作为 ω_1 光。染料采用若丹明 6G 或若丹明 B, 相应的波长调谐范围分别为 $560 \sim 580 \text{ nm}$ 及 $615 \sim 640 \text{ nm}$ 。

两个光束经棱镜共线会合后由透镜 L_2 聚焦射入 DSS 晶体, 它们的偏振方向都可以调节。产生的和频光束再经色散棱镜与入射光束相分离, 并经紫外透射滤光片由接收器接收。采用 Boxcar 积分器就可以直接记录得到输出谱。

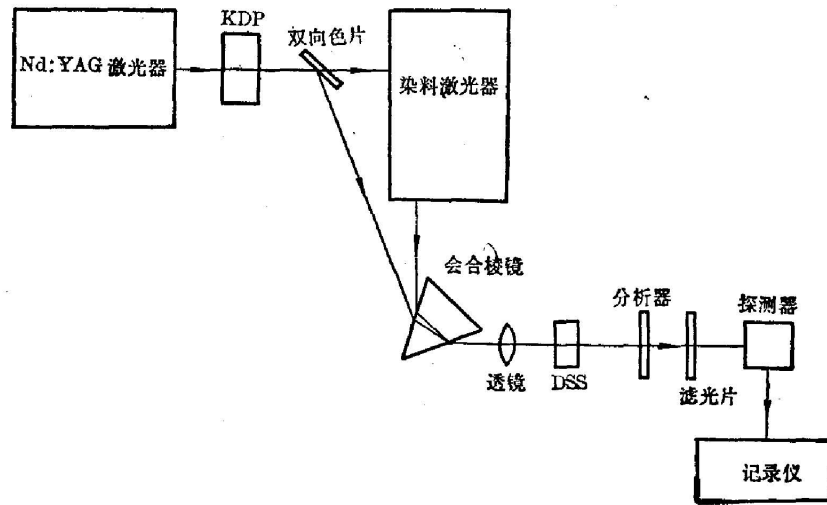


图 4 实验装置

Fig. 4 Experimental set up

实验中使用的 $1.06 \mu\text{m}$ 光的脉冲能量为 20 mJ , 谐波光的脉冲能量为 1 mJ , 染料激光的脉冲能量为几十 μJ 量级。

2. 实验结果

测量了采用不同 λ_2 波长为入射光束时的相位匹配角, 与计算结果取得很好一致。在主轴平面上得到的结果列于表 3, 从表中可以见到, 在 XY (近 X 轴) 平面及 XZ 平面上未观测到 II 型匹配, 而在 YZ 平面及 XY (近 Y 轴) 平面则未见到 I 型匹配。在 II 型匹配中, 采用 532 nm 光作为 ω_2 光束时, 虽然在 ZY 或 YX 平面上沿 Y 方向可以观察到有和频光输出, 但这时的和频输出不强, 光斑也有散开, 而且在 θ 为 $\pm 3^\circ$ 的范围中都可有输出。对空间相位匹配曲线的计算和测量都表明, 这时并不严格满足相位匹配条件。

表 3 相位匹配类型及匹配角

Table 3 The phase-matching types and the corresponding phase-matching angles

传播平面	$\lambda_2(\text{nm})$	面 XY (近 X 轴)	XZ	ZY	YX (近 Y 轴)
匹配类型		$XY + XY \rightarrow Z$	$Y + Y \rightarrow XZ$		
I 型	532	—	$\phi \sim 18^\circ$	—	—
	560	$\theta \sim 90^\circ$	$\phi \sim 0^\circ$	—	—
	640	$\theta \sim 74^\circ$	—	—	—
				$X + ZY \rightarrow X$	$XY + Z \rightarrow XY$
II 型	532	—	—	$\theta \sim 0^\circ$	$\theta \sim 0^\circ$
	560	—	—	—	$\theta \sim 13^\circ$
条 I 型曲线和一条 II 型曲线				—	$\theta \sim 13^\circ$

对确定的 λ_2 波长, 和频输出对角度有明显的依赖关系。如对 I 型匹配, 当 $\lambda_2 = 630 \text{ nm}$ 时, 相位匹配角 $\theta \sim 75^\circ$, 测量到这时输出的角度半宽度为 1° 左右, 如图 5 所示。

我们还测量了当 λ_2 变化时, 相位匹配角, 调谐波长范围以及输出光束强度的变化, 结果

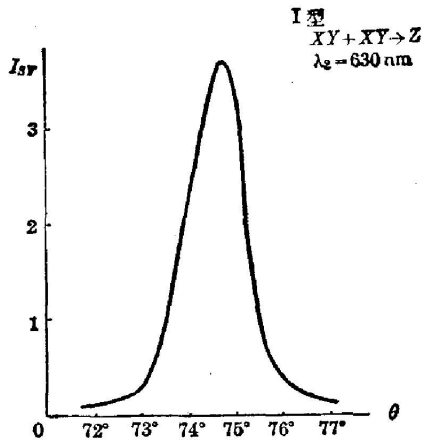


图5 和频输出的角度依赖关系
Fig. 5 Angle dependence of sum frequency output

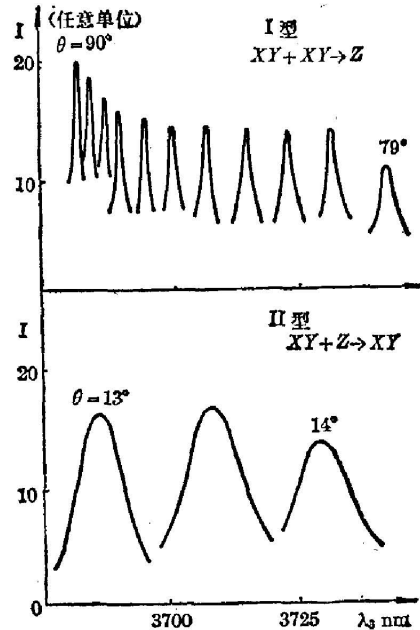


图6 可调谐和频输出的特性
Fig. 6 Characteristics of tunable sum frequency output

如图6所示。

从图可见,当 λ_2 由580nm变到561nm时,I型相位匹配的匹配角由 $\theta=79^\circ$ 变到 $\theta=90^\circ$ 。这时,对某一给定的角度 θ ,调谐的波长范围也显著变窄,调谐半宽度由1nm减小至0.1nm。这是因为在 θ 趋于 90° 时,调谐波长对匹配波长的偏离 $\Delta\lambda$ 会引起很大的 ΔK ,从而使调谐波长半宽急剧减小。而采用若丹明B染料光束作为 ω_2 光时,在总宽近30nm的范围中,匹配角的变化不到 1° 。

对II型匹配的测量也得到类似的结果。调谐 λ_2 在580~561nm之间变化时,匹配角 θ 的值在 $14^\circ\sim 13^\circ$ 之间,而调谐波长半宽则宽达3nm,这与采用若丹明B光束的I型匹配相类似。

从图6中可以见到, λ_2 趋近于561nm时,和频输出信号有增长的趋势。这个现象不能用 d_{eff} 随 θ 角的变化来解释,因为从表2见到,XY面上的 d_{eff}^I 为

$$d_{\text{eff}}^I = d_{32} \cos^2 \theta + d_{31} \sin^2 \theta.$$

由于 $d_{31} = 1.25d_{36}^{\text{KDP}}$, $d_{32} = 1.23d_{36}^{\text{KDP}}$,故当 θ 从 79° 变到 90° 时, d_{eff}^I 的变化很小,它不能说明这时和频信号的增长。我们推测,这时信号的增长,可能是由于和频信号的预共振效应。因为在 $\lambda_3 = 370\text{nm}$ 处,DSS晶体已有明显吸收。这点还有待于进一步的实验证实。

采用若丹明6G和若丹明B染料激光作为 ω_2 光束时,可以得到的紫外和频输出的波长范围为367~400nm。由于晶体在更短的紫外区域有强烈的吸收,所以采用它不可能得到强的和频输出,如采用波长在560~800nm的 ω_2 光束,就可以获得在蓝紫及近紫外区域的可调谐相干辐射输出。

四、结 束 语

DSS 晶体的和频测量表明, 由于这种晶体具有高度的各向异性和大的非线性系数, 故易于补偿正常色散从而获得在可见区域的相位匹配和和频输出。计算结果与实验测量一致。

中国科学院福建物质结构研究所的苏根博同志为我们提供了样品; 王文澄、王恭明同志同我们作了有益的讨论; 姜杏梅同志帮助我们进行样品加工, 在此一并致谢。

参 考 文 献

- [1] 苏根博, 王文澄等; 《光学学报》, 1982, 2, No. 5 (Sep), 439.
[2] H. Ito *et al.*; *J. Appl. Phys.*, 1975, 46, No. 9 (Sep), 3992.

Generation of tunable UV radiation by sum frequency mixing in disodium sulfosalicylate*

DONG GENFA QIAN SHIXIONG JIN YIAOGEN AND LI YUFEN

(Physics Department, Fudan University)

(Received 23 December 1983; revised 27 March 1984)

Abstract

We have investigated the sum-frequency generation (SFG) of the $1.06 \mu\text{m}$ beam with its harmonic beam or dye laser beam in disodium sulfosalicylate (DSS) crystal. The collinear phase-matching types, wavelengths and propagation direction of SFG in DSS crystal have been calculated and measured. The measured results are in agreement with the calculate ones, the characteristics of tunable SFG output have also been investigated.

* This paper was presented at '83 ICL (Guangzhou, China).