

# 复合功能晶体(NYAB)实现 1.06~0.53 $\mu\text{m}$ 自倍频转换的研究

刘恩泉 侯学元 陆宝生 王 军 潘恒福 蒋民华  
(山东大学光学系) (山东大学晶体研究所)

## 提 要

四硼酸铝钇铈 $[\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{Al}_3(\text{BO}_3)_4]$ (简称 NYAB)是我国研制的一种新型激活-非线性复合功能晶体。该晶体在基频和倍频自洽情况下, I 类相位匹配的有效非线性系数是 KDP 晶体的四倍多, ( $\chi^{(2)}=4.056\times 10^{-9}$  e.s.u.), 用二次谐波法测得的实验数值与上述数值非常符合。本文利用 Datachrom-5000 型染料激光器作为泵浦光源, 在国际上首次获得以 1.06~0.53 $\mu\text{m}$  的自倍频激光输出。泵浦阈值能量小于 2mJ, 最下转换效率 14.3%, 绿光输出能量为 5mJ。

关键词: 复合功能晶体, 自倍频。

## 一、前 言

随着激光技术应用的发展, 促使人们开拓了对具有激活和非线性复合功能晶体材料和器件的研究, 特别是直接输出为绿光的小型固体激光器的研究, 近年来一直引起许多科学工作者的极大兴趣。

1980 年以前, 美国和苏联科学家曾经报道过复合功能晶体的探索工作<sup>[1,2]</sup>, 但由于当时生长的晶体材料光学均匀性差, 抗光损伤能力及转换效率低而影响了它的应用和发展。1981 年苏联科学家<sup>[3]</sup>报道了在  $\text{Nd}_{0.3}\text{Y}_{0.3}\text{Al}_3(\text{BO}_3)_4$  晶体中实现了从 1.32~0.66 $\mu\text{m}$  的激光自倍频效应, 但是该文同时指出, 由于晶体中钕离子对 0.53 $\mu\text{m}$  波长存在着自吸收现象, 因此难以实现 1.06 $\mu\text{m}$  到 0.53 $\mu\text{m}$  的激光自倍频。最近山东大学晶体研究所生长出  $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{Al}_3(\text{BO}_3)_4$  复合功能晶体(简称 NYAB), 它的物化性能良好, 倍频系数较高, 且降低了  $\text{Nd}^{3+}$  离子对 0.53 $\mu\text{m}$  波长光的吸收, 该晶体在国际上首次实现了从 1.06~0.53 $\mu\text{m}$  的激光自倍频效应。

## 二、NYAB 晶体的激活-自倍频特性

NYAB 晶体的结构与 YAP 晶体的结构相同, 属于三方晶系、空间群为  $R_{32}$ , 负单轴晶。该晶体由于采用混晶体系生长方法, 从而激活钕离子的浓度可以不受限制, 且晶体畸变较小。据分析得知,  $\text{Nd}^{3+}$  离子的  ${}^4F_{3/2}\rightarrow{}^4I_{11/2}$  能级跃迁发射 1.06 $\mu\text{m}$  波长的发射截面  $\sigma_1$  比  ${}^4F_{3/2}\rightarrow{}^4I_{13/2}$  跃迁发射 1.32 $\mu\text{m}$  的发射截面大 5 倍以上。这就说明该晶体具有良好的 1.06

$\mu\text{m}$  激活特性。考虑到  $\text{Nd}^{3+}$  离子对  $0.53 \mu\text{m}$  的自吸收现象, 本文通过对  $(\text{Nd}^{3+}/\text{Y}^{3+})$  不同摩尔比的晶体粉末样品的非线性效应测量, 找到了产生  $1.06 \mu\text{m}$  自倍频为  $0.53 \mu\text{m}$  的激光的最佳浓度比, 实现了从  $1.06 \sim 0.53 \mu\text{m}$  的激光自倍频。

NYAB 晶体的自倍频效应是由其结构上的非中心对称性决定的。我们利用文献[4]推导  $R_{32}$  点群有效非线性系数的方法, 求得其有效非线性系数为

$$\chi_{\text{eff}}^{\text{I}} = F_2(\theta_m^{\text{I}}, \varphi, d_{11}) = d_{11} \cos \theta_m^{\text{I}} \cos 3\varphi, \quad (1)$$

$$\chi_{\text{eff}}^{\text{II}} = F_1(\theta_m^{\text{II}}, \varphi, d_{11}) = d_{11} \cos \theta_m^{\text{II}} \sin 3\varphi, \quad (2)$$

式中  $d_{11}$  为该晶体的非线性系数,  $\varphi$  为晶体对  $a$  轴的方位角,  $\theta_m$  为 I 类和 II 类相位匹配角。此处的位相匹配角意味着在该方向上基频与倍频满足相干增强条件, 即要求  $\Delta k = 0$ ,  $[k = (n/c)\omega]$ 。由于采用同轴位相匹配, 基频光与倍频光的传播方向共线, 故可化为标量形式, 即  $\Delta k = 0$ , 于是得到

(1) 对于 I 类位相匹配 ( $o+o \rightarrow e$ )

$$n_o^\omega = n_e^{2\omega}(\theta_m^{\text{I}}), \quad (3)$$

(2) 对于 II 类位相匹配 ( $o+e \rightarrow e$ )

$$n_o^\omega + n_e^\omega(\theta_m^{\text{II}}) = 2n_e^{2\omega}(\theta_m^{\text{II}}), \quad (4)$$

式中  $\omega$  和  $2\omega$  分别表示基频光和倍频光。此时非常光的折射率与匹配角  $\theta$  的关系为

$$n_e'(\theta) = \frac{n_o' n_e'}{[(n_o')^2 \sin^2 \theta + (n_e')^2 \cos^2 \theta]^{1/2}}, \quad (5)$$

将(5)式中的  $\theta$  角分别换成相位匹配角  $\theta_m^{\text{I}}$  和  $\theta_m^{\text{II}}$  后, 再代入(3)式和(4)式中, 分别得出

$$n_o^\omega = \frac{n_o^{2\omega} n_e^{2\omega}}{[(n_o^{2\omega})^2 \sin^2 \theta_m^{\text{I}} + (n_e^{2\omega})^2 \cos^2 \theta_m^{\text{I}}]^{1/2}}, \quad (6)$$

$$n_o^\omega + \frac{n_o^\omega n_e^\omega}{[(n_o^\omega)^2 \sin^2 \theta_m^{\text{II}} + (n_e^\omega)^2 \cos^2 \theta_m^{\text{II}}]^{1/2}} = \frac{2n_o^{2\omega} n_e^{2\omega}}{[(n_o^{2\omega})^2 \sin^2 \theta_m^{\text{II}} + (n_e^{2\omega})^2 \cos^2 \theta_m^{\text{II}}]^{1/2}}, \quad (7)$$

式中  $n_o^\omega$ 、 $n_e^\omega$ 、 $n_o^{2\omega}$  和  $n_e^{2\omega}$  数值, 我们采用拟合折射率色散经验公式求出, 即

$$n^2(\lambda) = A + \frac{B_1}{\lambda^2 - B_2} - \frac{C_1 \lambda^2}{C_2 - \lambda^2}. \quad (8)$$

将  $A$ 、 $B_1$ 、 $B_2$ 、 $C_1$  和  $C_2$  五个待定系数的拟合结果代入上式(8)中, 分别求得对基频光 ( $\omega = 1.06 \mu\text{m}$ ) 和倍频光 ( $2\omega = 0.53 \mu\text{m}$ ) 的折射率值, 即为  $n_o^\omega = 1.7553$ ;  $n_e^\omega = 1.6869$ ;  $n_o^{2\omega} = 1.7808$ ;  $n_e^{2\omega} = 1.7050$ 。将这些折射率数值代入(6)式和(7)式中, 再用牛顿切线法求得满足(6)式和(7)式的角度分别为  $\theta_m^{\text{I}} = 34^\circ 33'$ ,  $\theta_m^{\text{II}} = 50^\circ 34'$ 。考虑到折射率拟合时引入的误差, 估计引起位相匹配角的最大误差不超过  $\pm 2^\circ$ 。而实际测量值为  $\theta_m^{\text{I}} = 32^\circ 54'$ ,  $\theta_m^{\text{II}} = 51^\circ 2'$ 。上述理论计算值与实验测量值还是符合的。

由(1)式和(2)式可知, 当

$$\varphi = n \frac{\pi}{3}, \quad (n=0, \pm 1, \pm 2, \dots)$$

$\chi_{\text{eff}}^{\text{I}}$  有极大值。

$$\varphi = (2n+1) \frac{\pi}{6}, \quad (n=0, \pm 1, \pm 2, \dots)$$

$\chi_{\text{eff}}^{\text{II}}$  有极大值。将  $\theta_m^{\text{I}}$  和  $\theta_m^{\text{II}}$  值代入(1)式和(2)式后, 而得到 I 类和 II 类位相匹配有效非线性系数极大值为  $\chi_{\text{eff}}^{\text{I}} = 0.8235d_{11}$ ,  $\chi_{\text{eff}}^{\text{II}} = 0.4032d_{11}$ 。从理论上计算得知, I 类位相匹配的有

效非线性系数  $\chi_{\text{eff}}^I$  是 II 类有效非线性系数  $\chi_{\text{eff}}^{\text{II}}$  的 2.04 倍, 由于倍频光强与有效非线性系数的平方成正比, 所以, I 类位相匹配的倍频光强应是 II 类位相匹配强度的 4 倍。因此, 在设计器件时, 我们采用了 I 类位相匹配方向加工晶体。

### 三、实验装置和结果

#### 1. 光泵的选择

图 1 给出了日立-340 型分光光度计测量样品的吸收光谱曲线。样品厚度为 1.4 mm, 沿(001)方向通光。从图 1 可知, 在可见光范围内该晶体的吸收光谱主要由三个吸收带组成, 其峰值波长分别为 588 nm, 748 nm 和 808 nm, 其中 588 nm 吸收度最大。因此我们选用了输出波长为 5879 Å 的染料激光作为泵浦光源。

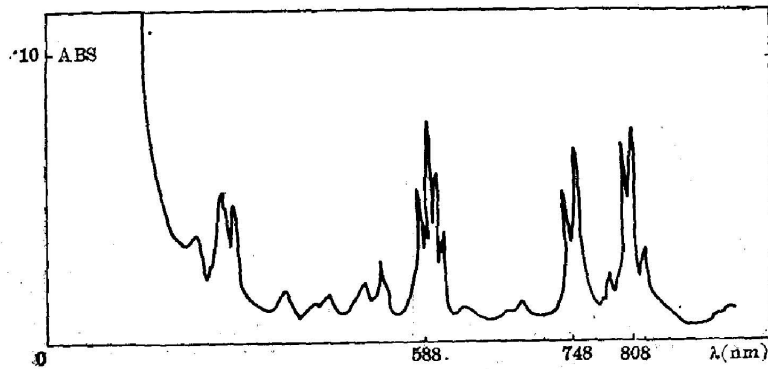


Fig. 1 Absorption spectrum of NYAB crystal

#### 2. 实验装置

实验装置如图 2 所示。NYAB 晶体(尺寸,  $5 \times 4 \times 3$  mm)置放于由  $M_1$  和  $M_2$  反射镜\*组成的平-平腔内, 腔长  $l \leq 3$  cm。来自染料脉冲激光器 ( $\lambda = 58.79$  nm) 脉宽 10 ns, 重复率 10 pps) 的光束, 经  $f = 5$  cm 透镜  $L$  会聚在 NYAB 晶体上, 落在晶体上泵浦光斑直径  $\phi 1 \sim 2$  mm 左右。为减少晶体对泵浦光的反射损失, 实验中泵浦光以布儒斯特角方向入射到晶体上, 当 NYAB 晶体受到波长为  $\lambda = 587.9$  nm 光泵浦时, 在反射镜  $M_1$  和  $M_2$  组成的平-平腔内产生 1.06 μm 基频振荡, 由于该反射镜对 1.06 μm 的基频光均为高反, 故基频光振荡遗漏到腔外的部分占很小比例, 反射镜  $M_1$  对 0.53 μm 绿光高反, 而反射镜  $M_2$  对 0.53 μm 绿光高透, 故自倍频激光由反射镜  $M_2$  输出。输

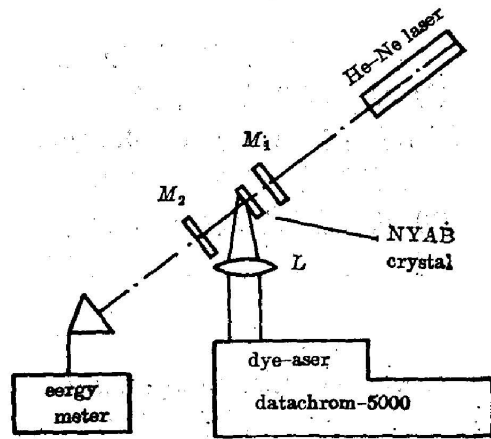


Fig. 2 Experimental setup for 1.06~0.53 μm self-frequency doubling effect

\*  $M_1, M_2$  对 1.06 μm 波均为高反, 而对 0.53 μm 波,  $M_1$  高反,  $M_2$  为高透。

出能量值由 Scientech-362 型能量计接收测定。

### 3. 测试结果

图 3 示出了该晶体输出能量随泵浦能量的变化关系。由于输入的泵浦能量, 受到染料激光器最大输出能量值的限制, 本实验中所测得的最大自倍频输出能量值为 5 mJ, 最大转换效率为 14.3%。

图 4 给出了泵浦波长从 584 nm~594 nm 变化时, 自倍频输出能量随泵浦波长的变化曲线, 其输出能量的两个峰值与 NYAB 晶体在波长 588 nm~594 nm 处的两个吸收峰相对应。当改变泵浦光透镜  $L$  的焦距时, 测得自倍频输出的泵浦光阈值能量小于 2 mJ, 抗光损伤阈值功率  $>170 \text{ MW/cm}^2$ 。

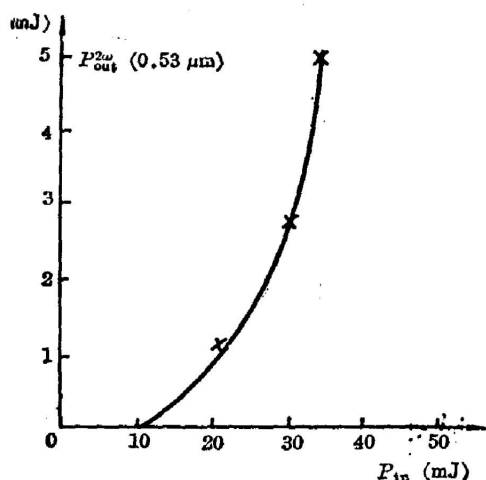


Fig. 3 Variation of  $P_{out}^{2\omega}$  with  $P_{in}$

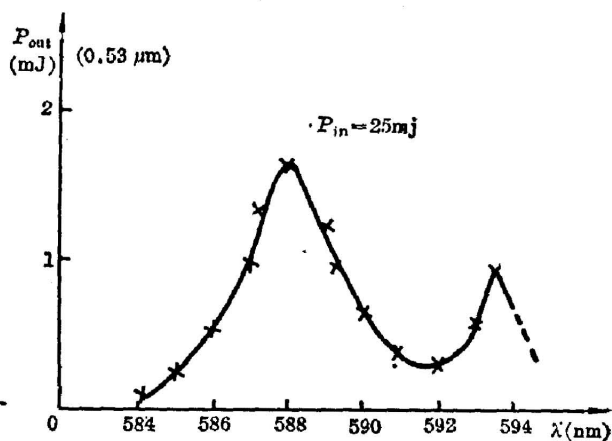


Fig. 4 Variation of the output energy with the pump-wavelength

## 四、结 束 语

从上述实验结果, 可以得到下面的结论:

(1) 在 NYAB 晶体中, 适当地控制  $\text{Nd}^{3+}$  离子浓度, 可以减少晶体对  $0.53 \mu\text{m}$  光的吸收, 从而可以实现  $1.06 \mu\text{m}$  到  $0.53 \mu\text{m}$  的自倍频转换。在基频与倍频共轴的最佳匹配方向上, 自倍频的转换效率是比较高的。

(2) 从该晶体的吸收光谱可以看出, 它与目前常用的泵浦灯光谱匹配较好, 因此, 可望在得到较大尺寸晶体的基础上, 实现高效率的激光自倍频微型器件是很有希望的。

## 参 考 文 献

- [1] L. F. Johnson, A. A. Ballman; *J. Appl. Phys.*, 1969, **40**, No. 1 (Jan), 297~299.
- [2] В. Г. Дмитриев, Е. В. Раевский; *Лазеры в ЖТФ*, 1979, **5**, вып. 22 (ноя), 1400~1402.
- [3] Л. М. Дорожников, И. И. Куратов; *Лазеры в ЖТФ*, 1981, **7**, вып. 21 (ноя), 1297~1300.
- [4] J. F. Nye; *Physical Properties of Crystals*, (Charenden Press; 1957.)
- [5] W. W. Duley; *Laser Processing and Analysis of Materials*, (New York, Plenum 1983).
- [6] 蒋民华; *晶体物理*, (山东科技出版社, 济南, 1980), 443~485.
- [7] 王保林; *硅酸盐学报*, 1984, **12**, No. 3 (Sep), 259~263.

## Study of self-frequency-doubling from 1.06 to 0.53 $\mu\text{m}$ with a multi-functional crystal NYAB

LIU ENQUAN, HOU XUEYUAN

(Optical Department, Shandong University, Jinan)

LU BAOSHENG, WANG JUN, PAN HENGFU AND JIANG MINHUA

(Institute of Crystal Materials, Shandong University, Jinan)

(Received 5 May 1986; revised 2 July 1986)

### Abstract

A new excited emission/nonlinear multi-functional crystal rare earth borate crystal  $\text{Nd}_x\text{Y}_{1-x}\text{Al}_3(\text{BO}_3)_4$  (abb. NYAB) has been developed. The effective nonlinear coefficient of type I phase matching  $\chi_{\text{eff}}^{\text{I}} = 4.056 \times 10^{-9}$  e.s.u. is 4 times more than that of the KDP crystals provided that the phase matching conditions are satisfied. The measured value by SHG method is in good agreement with this data. Using the tunable dye laser (Datachrom-5000) as pumping source, the laser self-frequency-doubling output from the NYAB crystal at 1.06  $\mu\text{m}$ ~0.53  $\mu\text{m}$  is obtained for the first time. The threshold energy measured is less than 2 mJ, maximum conversion efficiency is 14.3%; and the output energy at 0.53  $\mu\text{m}$  is 5 mJ.

**Key Words:** multi-functional crystal; self-frequency-doubling.