

文章编号: 0253-2239(2001)02-134-05

晶体球法直接测量 KTP 晶体第 I 类 相位匹配曲线*

阎 江 谢绳武 李浩文 杨学林 夏宇兴
(上海交通大学应用物理系, 上海 200240)

摘要: 报道了 35 ps 激光脉冲射入直径为 10 mm KTP 晶体球的第 I 类相位匹配二次谐波产生实验, 根据二次谐波产生转换效率直接测量了 KTP 晶体的第 I 类相位匹配曲线及相应的有效非线性系数, 并与 6 组色散方程给出的理论匹配曲线比较, 指出 Vanherzeele 的公式优于其他五组。

关键词: 晶体球; 二次谐波产生; 色散方程; 有效非线性系数
中图分类号: O437 文献标识码: A

1 引 言

磷酸钛钾(KTiOPO₄, 简称 KTP) 是 1.06 μm 波段常用的优质倍频晶体^[1], 其他晶体的个别参数可能会优于 KTP, 但在总体性能上 KTP 是二阶非线性过程, 特别是二次谐波产生(SHG)的最佳晶体^[2]。大量文献报道了 KTP 晶体在波长 1.06 μm 波段的各种非线性效应, 但在其他波段的研究相对较少, 一个主要原因是 KTP 在波长 1.06 μm 附近以外缺乏精确的折射率数据, 从而难以预知非线性过程的相位匹配角, 无法按正确相位匹配方向切割晶体, 因而精确的和能够适用于较大波长范围的 KTP 晶体的色散方程是拓展 KTP 晶体应用范围的前提。二次谐波产生实验中要求折射率的测量精确到 10⁻⁴ 以上以保证由此计算出的相位匹配角能精确到 1°, 这样的精度要求在可见光波段可以满足, 但在红外波段则比较困难。1987 年起, 有 6 个小组报道了 KTP 晶体的色散方程^[3~8], 为 KTP 晶体的应用提供了依据, 但这六组色散方程所给出的折射率在波长 1.06 μm 和 0.532 μm 各不相同, 在长波和短波区域差别更大, 由此计算出的第 I 类相位匹配二次谐波的相位匹配角在长波和短区域相差 3°~8°^[9,10], 这给实验研究和 KTP 晶体的实际应用带来了困惑。因而采取有效的方法比较上述 6 组色散方程精确程度就十分必要。

判断色散方程精确程度的主要方法是比较二次

谐波产生或参量振荡相位匹配角实验值和计算值, 传统的方法是按相位匹配角计算值切割晶片, 再根据二次谐波产生和参量振荡的转换效率确定实际的相位匹配角。近年来文献报道了用晶体椭圆^[11]和晶体球^[12]测量晶体线性和非线性性质的实验, 本文则利用晶体球可以满足任意方向正入射的特点, 在实验中根据需要旋转晶体球, 从而在一个晶体球中实现任意相位匹配角的测量, 以此来检验色散方程的准确程度, 这一方法将优于传统的晶片法。本文以 35 ps 的激光脉冲射入直径为 10 mm 的 KTP 晶体球, 根据二次谐波产生的转换效率得到了 KTP 晶体第 I 类相位匹配曲线, 并以之与文献报道的六组色散方程计算出的理论曲线进行了比较。

2 KTP 晶体色散方程

二次谐波产生实验中需要根据折射率计算出的相位匹配角来切割晶片, KTP 晶体的折射率可以利用晶体棱镜的最小偏向角法直接测量, 但更为常见的则是根据拟合的色散方程进行计算。目前见诸文献报道的 KTP 色散方程共有 6 组:

$$n^2 = A + \frac{B}{1 - C\lambda^2} - D\lambda^{2/3}, \quad (1)$$

式中系数

	A	B	C	D
n_x	2.16747	0.83733	0.04611	0.01713
n_y	2.19229	0.83547	0.04970	0.01621
n_z	2.25411	1.06543	0.05486	0.02140

* 上海市自然科学基金和国家教委博士点基金资助项目。
收稿日期: 1999-09-16; 收到修改稿日期: 1999-12-13

$$n^2 = A + \frac{B\lambda^2}{\lambda^2 - C} + \frac{D\lambda^2}{\lambda^2 - 100.0} \quad (2)$$

式中系数

	A	B	C	D
n_x	2.029809	0.9737485	0.04093072	1.1048585
n_y	2.079195	0.9412874	0.04595899	0.9320789
n_z	2.006239	1.2965213	0.04807691	1.1329810

$$n^2 = A + \frac{B}{1 - C/\lambda^2} - D\lambda^{2[5]}, \quad (3)$$

式中系数

	A	B	C	D
n_x	2.1146	0.89188	0.20861	0.01320
n_y	2.1518	0.87862	0.21801	0.01327
n_z	2.3136	1.00012	0.23831	0.01679

$$n^2 = A + \frac{B}{\lambda^2 - C} - D\lambda^{2[6]}, \quad (4)$$

式中系数

	A	B	C	D
n_x	3.0129	0.38070	0.04283	0.01664
n_y	3.0333	0.04106	0.04946	0.01695
n_z	3.3209	0.05305	0.05960	0.01763

$$n^2 = A + \frac{B}{\lambda^2 - C} D\lambda^{2[7]}, \quad (5)$$

	A	B	C	D
n_x	2.9971	0.041030	0.038368	0.012568
n_y	3.0197	0.044090	0.042035	0.012046
n_z	3.3055	0.063289	0.044783	0.013987

$$n^2 = A + \frac{B\lambda^2}{\lambda^2 - C} + \frac{D\lambda^2}{\lambda^2 - E}, \quad (6)$$

	A	B	C	D	E
n_x	2.1239	0.14274	18.477	0.87370	0.045906
n_y	2.0649	0.15529	19.373	0.95463	0.045505
n_z	1.6539	0.34767	29.378	1.6482	0.038825

上述色散方程拟合中所用的 KTP 晶体,除(3)式为水热法生长外,其他都是融盐法生长,(2)式对这两种方法生长的 KTP 晶体都适用。折射率的测量方法上,(1)式、(3)式、(5)式采用了棱镜最小偏向角法,(2)式、(4)式、(6)式则分别利用了二次谐波产生和光学参量振荡的相位匹配法。Vanherzeele 和

Bierlein 考查了不同方法生长的 KTP 晶体的线性和非线性特性,指出 KTP 晶体的性质与其生长方法无关^[5,13],色散方程拟合的准确程度仅取决于折射率测量的波长范围、波长个数及测量精度。(1)式在测量范围 0.4 μm ~ 1.064 μm 内共 16 个波长,精度为 10^{-3} ^[3]。(3)式在测量范围 0.35 μm ~ 2.4 μm 内共 47 个波长^[5]。(5)式在测量范围 0.53 μm ~ 1.34 μm 内共 8 个波长,精度为 1.5×10^{-4} ^[7]。折射率测量的波长范围越大,个数越多,拟合公式越准确。此外棱镜法测得的折射率精度高于相位匹配法,所拟合出的色散方程精度也更好。

色散方程准确程度的检验主要是依据二次谐波产生或光参量振荡实验中的相位匹配角与计算值的比较,在已报道的 KTP 晶体二次谐波产生和光参量振荡的实验中,常用(1)式给出的主轴折射率作为相位匹配角计算和晶体切割的依据,因为 KTP 晶体在第 II 类相位匹配中二次谐波产生的转换效率较高,1.064 μm →0.532 μm 倍频的最佳相位匹配方向在 xoy 平面上,光参量振荡的最佳相位匹配方向在 xoy 和 xoz 平面上,所以文献中常根据 KTP 晶体在上述主轴截面上二次谐波产生或光参量振荡的相位匹配方向判断色散方程的精确程度。受测量或计算得到的折射率精度的限制,实验中常常不得不切割多块晶片并转动晶片以获得最大的二次谐波产生或光参量振荡输出信号,从而在相位匹配角计算值的附近确定真正的相位匹配角。然而,转动晶片将破坏正入射条件,晶体的双折射效应将使 o 光和 e 光的波矢分离,产生非共线相位匹配,实际相位匹配必须根据非共线相位匹配效应对内角进行修正。

因为晶体球能够实现任意方向正入射,可以有效地避免非共线相位匹配,并在一个晶体球中测量所有可能的相位匹配方向;即使根据色散方程计算出的相位匹配角误差较大,仍可以转动晶体球根据二次谐波产生的转换效率直接得到准确的相位匹配角。由此得到的完整的光参量振荡曲线实验值可以用来检验上述六组色散方程的准确程度,不但测量简便,而且结论的可靠性也大大优于晶片中二次谐波产生或光参量振荡给出的结果。

3 实 验

晶体球二次谐波产生的优点是可以满足任意方向正入射,因而晶体主轴的准确定向和球心与旋转中心的精确定位是旋转晶体球测量相位匹配曲线的

前提。晶轴定向较为准确的方法是利用 X 射线衍射, 我们所用的晶体球较大, 用 X 射线衍射定位有一定难度, 实验中根据晶体球在正交偏振片间的偏光干涉图确定 KTP 晶体的 z 轴和 x 轴方向^[14]。入射脉冲的基频波波长为 $1.064 \mu\text{m}$, 脉宽为 35 ps , 重复率为 6 Hz , 单脉冲最大能量为 35 mJ 。实验中为避免晶体损伤, 抽运脉冲能量衰减到 0.33 mJ , 所用 KTP 晶体是用融盐法生长的。实验中基频光脉宽为 35 ps , 群速色散效应对二次谐波产生的影响可以忽略^[15]。

我们沿色散方程 (1) 式给出的第 I 类相位匹配曲线旋转 KTP 晶体球, 根据二次谐波产生的转换效率直接测得了相位匹配角 (图 1 和图 2 中圆点所示), 实线和虚线是分别根据色散方程 (1) 式~ (6) 式计算的相位匹配曲线 (为清晰起见, 6 条理论相位匹配曲线分画在两幅图中)。从图 1 可以看见, 由 (3) 式计算出的理论曲线与实验点最为吻合, (4) 式~ (6) 式计算出的相位匹配曲线基本一致, 与实验点相差也不大 (图 2)。由于实验中晶体球定位精度的限制, ϕ 大于 60° 时相位匹配角的读数存在一定的误差。根据图 1 和图 2 实验值与 6 条理论曲线的比较, 我们认为上述色散方程中 (3) 式的准确度最高。

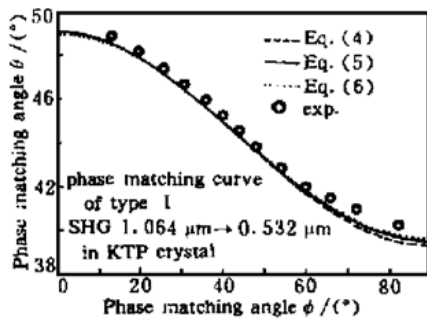


Fig. 1 Comparison of experimental PM angles with three PM curves calculated from Eq. (1), Eq. (2) and Eq. (3)

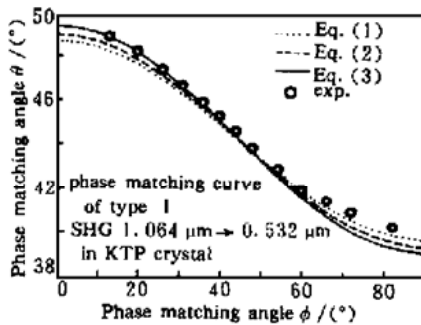


Fig. 2 Comparison of experimental PM angles with three PM curves calculated from Eq. (4), Eq. (5) and Eq. (6)

图 3 给出了在上述相位匹配方向求得的相应有效非线性系数 (d_{eff}), 理论曲线的计算利用了 (3) 式和文献 [16] 所给出的 d_{15} 和 d_{22} 的值, 实验值和理论

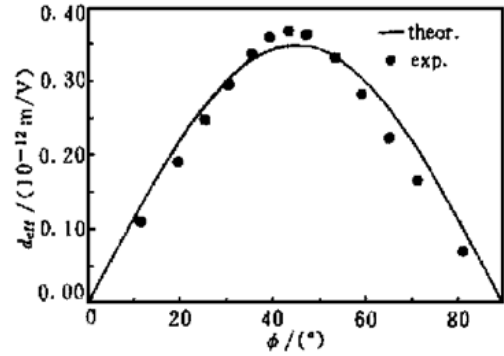


Fig. 3 Comparison of experimental and theoretical effective nonlinear optical coefficients d_{eff} versus phase-matching angle ϕ . The theoretical curve is calculated from Eq. (3) and using the value of d_{15} , d_{22} given in Ref. [13]

曲线基本吻合。 d_{eff} 实验值的计算利用了公式^[16]

$$\eta_{\text{calc}} = \frac{u^{2\omega}}{u^\omega} = \frac{P_{2\omega} \Delta t_{2\omega}}{P_\omega \Delta t_\omega} = \frac{2\omega^2 d_{\text{eff}}^2 u^\omega (\Delta t_{2\omega} / \Delta t_\omega^2) l k^\omega h(B, \xi)}{\pi n^3 \epsilon_0 c^3}$$

其中, $\eta_{\text{calc}} = \eta_{\text{observed}} / (1 - \eta_{\text{observed}})$ 是对抽运耗尽下的转换效率的近似处理, η_{observed} 是在实验中测得的二次谐波产生转换效率。在近场条件下, 若忽略离散效应, 上述近似在 $\eta_{\text{observed}} < 50\%$ 时的精度高于 2% 。 $\Delta t_{2\omega}$ 和 Δt_ω 分别为谐波和基频波的有效脉宽, u^ω 为入射基波总能量, l 是晶体长度, k^ω 为基波波矢量值。 $h(B, \xi)$ 是孔径方程, 描述基波与谐波波矢间的离散效应对二次谐波产生转换效率的影响,^[17] 因为球面的会聚效应, 球内光束为高斯光束分布, 描述平面波二次谐波产生转换效率的 sinc 函数不再适用。对不同的离散参数 $B \left[B = \frac{\rho}{2} \sqrt{k^\omega l}, \rho \text{ 为离散角} \right]$ 选取适当的聚焦强度 $\xi \left[\xi = l / z_R, z_R = n\pi\omega^2 / \lambda n \text{ 为光束传播方向晶体的折射率} \right]$ 可使孔径方程 $h(B, \xi)$ 取到最大值。我们所用的晶体球直径为 10 mm , $B \approx 8$, 相应的最佳聚焦强度 $\xi_m = 1.46$, $h_m(B, \xi) = 0.091$ 。由 ξ 的定义式可以求得球内的最佳基波束腰 $w_1 = 36 \mu\text{m}$, 沿相位匹配方向 $\theta = 44.3^\circ$, $\phi = 45^\circ$ 入射 KTP 晶体球的基波折射率可由 (3) 式求得:

$$n = 1.7824,$$

令基波束腰位于晶体球中心可使第 I 类相位匹配二次谐波转换效率最大^[17], 根据这些条件和 KTP 晶体球的光线折射矩阵及高斯光束的 ABCD 定律可求出最佳的入射光束束腰半径和入射晶体球的位置^[18]。在实验中利用焦距为 257 mm 的透镜将激光器的输出光束直接聚焦在晶体球入射面上, 以满足最佳聚焦强度 $\xi_m = 1.46$ 的要求。

文献[9]的实验中测量了基频光为 773 nm ~ 834 nm 的 KTP 晶体第 I 类相位匹配二次谐波产生的相位匹配曲线, 实验值大于(1)式计算出的理论相位匹配曲线, 两者出入较大(参见文献[9]的 Fig. 1)。而我们利用(3)式计算的 773 nm、782 nm 和 797 nm 波长的相位匹配曲线大于(1)式给出的曲线, 与[9]的实验值也更为吻合, 这表明(3)式在波长较短时优于(1)式(见图 4)。此外, 文献[10]根据 KTP 晶体在 $a-c$ 平面的第 II 类相位匹配二次谐波产生的转换效率测量了基频波在 2.5 μm ~ 2.8 μm 范围内随波长变化的相位匹配角, 所得实验点与(3)式计算的理论曲线完全吻合, 证明了在长波区域(3)式在六组色散方程中准确度最高, 这与本文的结论是一致的。实际上, 上文曾提出色散方程中(3)式采用棱镜法直接测量了多达 47 个波长的折射率, 测量的波长范围也最大, 因而较其他公式更为准确。

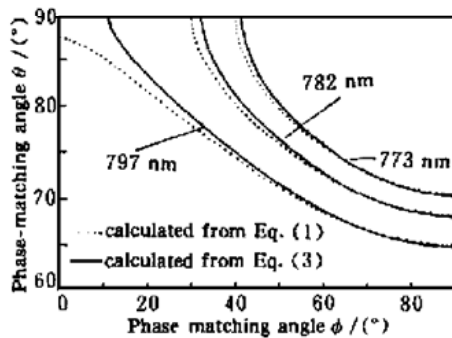


Fig. 4 Comparison of type I SHG PM curves versus PM angle ϕ of KTP crystal calculated from Eq. (1) and Eq. (3)

结论 利用 KTP 晶体球的二次谐波产生的转换效率测量了第 I 类相位匹配曲线和相应的有效非线性系数, 与文献报道的 6 组色散方程给出的理论相位匹配曲线相比较的结果表明, 由 Vanherzeele 和 Bierlein 给出的第 3 组 KTP 色散方程最准确, 从而澄清了 6 组色散方程的报道所引发的困惑之处, 这为 KTP 晶体在更大波长范围的应用打下了良好的基础。本文提出的晶体球二次谐波产生法在色散方程准确程度的检验中相对于传统的晶片二次谐波产生法更为简便和准确, 这也表明了利用晶体球的特殊几何特征进行非线性光学研究的良好前景。

参 考 文 献

- [1] Belt R F, Gashurov G, Liu Y S. KTP as a harmonic generator for Nd: YAG laser. *Laser Focus/Electro-optical*, 1985, **21**(1): 110~ 124
- [2] Bierlein J, Vanherzeele H. Potassium titanyl phosphate: properties and new applications. *J. Opt. Soc. Am. (B)*, 1989, **6**(4): 622~ 633
- [3] Fan T Y, Huang C E, Hu B Q *et al.*. Second harmonic generation and accurate index of refraction measurements in flux-grown KTiOPO_4 . *Appl. Opt.*, 1987, **26**(12): 2390 ~ 2394
- [4] Anthon D W, Crowder C D. Wavelength dependent phase matching in KTP. *Appl. Opt.*, 1988, **27**(12): 2650~ 2652
- [5] Vanherzeele H, Bierlein J D, Zumsteg F C. Index of refraction measurements and parametric generation in hydrothermally-grown KTiOPO_4 . *Appl. Opt.*, 1988, **27**(12): 3314~ 3316
- [6] Kato K. Second harmonic generation and sum-frequency generation to 4950 and 4589 Å in KTP. *IEEE J. Quant. Electron.*, 1988, **24**(1): 3~ 7
- [7] Shen H Y, Ahou Y P, Lin W X *et al.*. Second harmonic generation and sum frequency mixing of dual wavelength Nd YAG laser in flux grown KTiOPO_4 crystal. *IEEE J. Quant. Electron.*, 1992, **28**(1): 48~ 51
- [8] Boulanger B, Feve J P, Mavner G. Absolute measurement of quadratic nonlinearities from phase-matched second-harmonic generation in a single KTP crystal cut as a sphere. *J. Opt. Soc. Am. (B)*, 1997, **14**(6): 1380~ 1386
- [9] van der Mooren M H, Rasing T, Bluysen H J A. Determination of type I phase matching angles and conversion efficiency in KTP. *Appl. Opt.*, 1995, **34**(6): 934~ 937
- [10] Zondy J J, Abed M, Clairon A. Type II frequency doubling at $\lambda = 1.30 \mu\text{m}$ and $\lambda = 2.53 \mu\text{m}$ in flux-grown potassium titanyl phosphate. *J. Opt. Soc. Am. (B)*, 1994, **11**(10): 2004~ 2015
- [11] Velsko S P. Direct assessment of phase matching properties of new nonlinear materials, In: *Laser and Nonlinear Optical Materials. Proc. SPIE*, 1987, **681**: 25 ~ 30
- [12] Marnier G, Boulanger B. The sphere method: a new technique in linear and nonlinear crystalline optical studies. *Opt. Commun.*, 1989, **72**(3,4): 139~ 143
- [13] Vanherzeele H, Bierlein J D. Magnitude of the nonlinear optical coefficients of KTiOPO_4 . *Opt. Lett.*, 1992, **17**(14): 982~ 984
- [14] 蒋民华. 晶体物理. 济南: 山东科学技术出版社, 1980. 299
- [15] Kothari N C, Carlotti X. Transient second-harmonic generation: influence of effective group velocity dispersion. *J. Opt. Soc. Am. (B)*, 1988, **5**(4): 756~ 764
- [16] Eckardt R C, Masuda H, Fan Y X *et al.*. Absolute and relative nonlinear optical coefficients of KDP, KD^*P , BaB_2O_4 , LiIO_3 , MgO:LiNbO_3 , and KTP measurement by phase-matched second-harmonic generation. *IEEE J. Quant. Electron.*, 1990, **26**(5): 922~ 933
- [17] Boyd G D, Kleinman D A. Parametric interaction of Gaussian light beams. *J. Appl. Phys.*, 1968, **39**(8): 3597~ 3639
- [18] 阎 江, 杨学林, 李浩文等. 晶体球中相位失配二次谐波产生及最佳聚焦条件. *光学学报*, 2000, **20**(12): 1596~ 1601

Direct Measurement of Type I Phase-Matching Curve of KTP Crystal Using Sphere Method

Yan Jiang Xie Shenwu Li Haowen Yang Xueling Xia Yuxing
(*Department of Physics, Shanghai Jiaotong University, Shanghai 200240*)

(Received 16 September 1999; revised 13 December 1999)

Abstract: Phase-matched type I second-harmonic generation in a $\phi 10$ mm KTP crystal sphere using a 35 picosecond pulse as pump laser is reported. The type I phase-matching (PM) curve of KTP crystal is measured directly according to the SHG conversion efficiency, and the corresponding nonlinear optical coefficient is calculated. By comparison of the experimental PM curve with the theoretical PM curves calculated from six Sellmeier's equations, it is found that the equation given by Vanherzeele is the best one.

Key words: crystal sphere; second-harmonic generation; effective nonlinear optical coefficient