

文章编号 : 0253-2239(2001)08-1022-03

GdCOB 晶体非线性光学系数的完全标定 及空间分布*

王正平 宋仁波 许心光 孙 洵 王继扬 魏景谦 邵宗书

(山东大学晶体材料国家重点实验室, 济南 250100)

摘要: 实验确定了 GdCOB 晶体的全部非线性系数, 并用不同切向的 GdCOB 晶体验证了由此决定的有效非线性系数的空间分布。实验表明, GdCOB 晶体的有效非线性系数在 $\theta = 66.8^\circ$, $\varphi = 132.6^\circ$ 处具有最大值, 为 1.68 pm/V 。当长度为 6 mm 时, 该切向晶体的倍频转换效率达到 48% 。

关键词: GdCOB 晶体; 非线性光学系数; 倍频转换效率

中图分类号: O437 文献标识码: A

1 引 言

作为一种新型的非线性光学晶体, GdCOB 是由 Norrestam 等人于 1992 年首次合成的^[1]。1996 年, Aka 等人第一次报道了该晶体的生长和结构, 以及线性和非线性光学性质^[2]。因为 GdCOB 晶体是同成分共融化合物, 所以可用丘克拉斯基 (Czochralski) 法生长, 生长速度快、周期短, 且比较容易获得高光学质量的大块单晶, 这一优势是 KTP、KDP、LBO、 β -BBO 等晶体所无法企及的。此外, GdCOB 晶体具有透光波段宽、相位匹配范围大、损伤阈值高、不潮解等特点, 因而近年来已受到人们的广泛关注。

GdCOB 晶体中的 Gd^{3+} 被 Nd^{3+} 部分取代后, 作为激光晶体具有自倍频性能。以激光二极管 (LD) 抽运 Nd:GdCOB, 当抽运功率为 1.25 W 时可得到 115 mW 的 530.5 nm 自倍频绿光^[3]; 以波长为 829.6 nm 的钛宝石激光抽运 Nd:GdCOB, 通过自和频实现了大于 1 mW 的 465 nm 蓝光输出^[4]; Ye 等人用与 Nd:GdCOB 性质相近的 Nd:YCOB 作为激光介质, 得到了 16 mW 的 666 nm 自倍频红光^[5]。可见光中的红、绿、蓝三原色皆备, 故可以预见此类晶体有广阔的发展前景。

众所周知, 非线性系数的标定对于非线性光学晶体的研究具有决定性影响。由于 GdCOB 属于对

称性极低的单斜晶系, 在考虑克莱门 (Kleimann) 对称性后独立的非线性系数仍有 6 个, 所以标定工作比较复杂。据我们所知, 到目前为止还未见能够将它们全部实验标定的报道。这对 GdCOB 晶体在倍频、自倍频方向上的进一步开发和应用起到了阻碍作用。我们用二倍频相位匹配法 (PM SHG 法) 与迈克 (Maker) 条纹法首次结合, 测定了 GdCOB 晶体的全部非线性系数, 并且在实验上证实了由此决定的有效非线性系数 d_{eff} 的空间分布规律。实验表明, GdCOB 晶体的最大 d_{eff} 不在第一象限或主平面内, 而是在第二象限或与之等价的其他象限, 这与人们所熟悉的 KTP、LBO、 β -BBO 等晶体的规律不同。在第二象限的 $\theta = 66.8^\circ$, $\varphi = 132.6^\circ$ 处, d_{eff} 有最大测量值 1.68 pm/V , 长度为 6 mm 的晶体倍频转换效率达到 48% 。

2 非线性系数的完全标定

GdCOB 晶体的点群为 m , 空间群为 C_m , d_{eff} 的对称性为 $2/m$, 其分布需要通过两个独立的象限才能完全确定。考虑克莱门对称性后, 约化的非线性系数矩阵有如下形式

$$[d_{in}] = \begin{bmatrix} d_{11} & d_{12} & d_{13} & 0 & d_{31} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & d_{32} & 0 & d_{12} \\ d_{31} & d_{32} & d_{33} & 0 & d_{13} & 0 \end{bmatrix} \quad (1)$$

从阴离子基团理论^[6]出发, 运用完全忽略不同交叠近似法可以推断, $d_{11}, d_{12}, d_{31}, d_{32} > 0$, 而 $d_{13}, d_{33} < 0$ 。

* 国家自然科学基金 (69890235) 和教育部科学技术研究重点项目 (99182) 资助课题。

根据(1)式可得三个主平面内 d_{eff} 的表达式,如表 1 所示。由 GdCOB 的折射率拟合方程(塞迈耶方程)可知^[21],当基频光波长为 1064 nm 时,在 z - x 与 x - y 两个主平面上有 I 类相位匹配点,与之相关的非线性系数有 d_{12} 、 d_{32} 和 d_{13} 。根据慢变波与平面波近似条件下的倍频输出表达式^[7],我们用二倍频相位匹配法测量了方向分别为 $(19.7^\circ, 0)$ 、 $(19.7^\circ, 180^\circ)$ 、 $(90^\circ, 46^\circ)$ 的三块 GdCOB 晶体的 $|d_{\text{eff}}|$ (见表

Table 1. Expression of d_{eff} in principal planes of GdCOB crystal

principal plane	type I	type II
y - z	$d_{13} \sin^2 \theta + d_{12} \cos^2 \theta$	$d_{31} \sin \theta$
z - x	$d_{12} \cos \theta - d_{32} \sin \theta$ ($0 \leq \theta < \Omega^*$, $\varphi = 0$)	$d_{32} \sin \theta - d_{12} \cos \theta$ ($0 \leq \theta < \Omega$)
	$-d_{12} \cos \theta - d_{32} \sin \theta$ ($0 \leq \theta < \Omega$, $\varphi = 180^\circ$)	$d_{32} \sin \theta + d_{12} \cos \theta$ ($\Omega < \theta \leq 90^\circ$, $\varphi = 0$)
	$d_{12} \cos \theta + d_{32} \sin \theta$ ($\Omega < \theta \leq 90^\circ$)	$d_{32} \sin \theta + d_{12} \cos \theta$ ($\Omega < \theta \leq 90^\circ$, $\varphi = 180^\circ$)

* Ω is angle of optical axis.

Table 2. The $|d_{\text{eff}}|$ of various GdCOB samples

No.	1	2	3	4	5	6	7	8	9
direction	$(19.7^\circ, 0)$	$(19.7^\circ, 180^\circ)$	$(90^\circ, 46^\circ)$	$(61.8^\circ, 47.8^\circ)$	$(66.8^\circ, 47.4^\circ)$	$(71.8^\circ, 47^\circ)$	$(71.8^\circ, 133^\circ)$	$(66.8^\circ, 132.6^\circ)$	$(61.8^\circ, 132.2^\circ)$
equivalent direction		$(160.3^\circ, 0)$					$(108.2^\circ, 47^\circ)$	$(113.2^\circ, 47.4^\circ)$	$(118.2^\circ, 47.8^\circ)$
$ d_{\text{eff}} $	0.50	1.01	0.59	0.82	0.68	0.44	1.43	1.68	1.60

文献 2 指出,1200 nm 在 yz 平面上 II 类匹配点的 d_{eff} 约为 0.2 pm/V,由计算可知该点的 θ 接近 90° 。结合表 1 得到 $d_{31} = 0.2$ pm/V。

GdCOB 晶体的迈克条纹显示, $d_{11} \approx 0$, $|d_{33}| \approx 0.84 |d_{32}|$ 。实验表明 d_{11} 几乎测量不出,不妨取 $d_{11} = 0.1$ pm/V。

综上所述, GdCOB 的全部非线性系数都已由实验给出,即

$$d_{11} = 0.1 \text{ pm/V}, \quad d_{12} = 0.27 \text{ pm/V},$$

$$d_{13} = -0.85 \text{ pm/V}, \quad d_{31} = 0.2 \text{ pm/V},$$

$$d_{32} = 2.23 \text{ pm/V}, \quad d_{33} = -1.87 \text{ pm/V}.$$

本实验所用的激光光源为美国 Continuum 公司生产的 PY61 型 Nd:YAG 皮秒激光器,参照样品是一块长度为 5 mm 的沿 $(90^\circ, 23.6^\circ)$ 切割的 KTP 晶体,该方向的 d_{eff} 取为 2.45 pm/V^[81]。

3 有效非线性系数的空间分布规律及证实

根据前面给出的非线性系数,我们拟合了 GdCOB 晶体有效非线性系数的空间分布,如图 1 所示。为了确认该规律,我们加工了六块空间匹配方

2)。由表 1 所列公式计算可得 $d_{12} = 0.27$ pm/V, $d_{32} = 2.23$ pm/V, $d_{13} = -0.85$ pm/V。计算中 $(19.7^\circ, 0)$ 方向的 d_{eff} 取负值,这是因为迈克条纹法表明 $d_{12} < d_{32}$ 。其他两个方向的 d_{eff} 也取负值,这是由 d_{12} 、 d_{32} 和 d_{13} 的符号决定的。Aka 等人的实验发现在 y - z 平面上存在 $d_{\text{eff}} = 0$ 的点^[21],由该平面上 $d_{\text{eff}} = d_{13} \sin^2 \theta + d_{12} \cos^2 \theta$ 可以推断 d_{13} 与 d_{12} 的符号的确相反。

向上的晶体样品,长度为 6 mm,二倍频相位匹配法测得的 $|d_{\text{eff}}|$ 如表 2、图 1 所示。图 1 说明,实验结果与预计非常吻合,从而证实了我们对非线性系数的估计。本实验说明, GdCOB 晶体的最大非线性系数位于第二象限的 $(66.8^\circ, 132.6^\circ)$ 方向上,为 1.68 pm/V。当长度为 6 mm 时,该方向晶体的倍频转换效率达到 48%。Aka 等人用 15 mm 长的晶体达到了相同水平^[21],原因在于他们所用晶体的切向并非最佳。

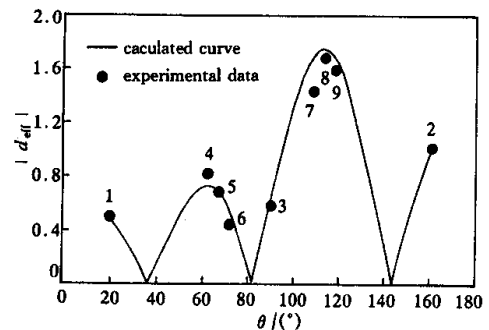


Fig. 1 The curve of $|d_{\text{eff}}|$ calculated from $[d_m]$ and experimental data

结论 利用二倍频相位匹配法和迈克条纹法,测量了 GdCOB 晶体的全部非线性系数,并且证实了由

此决定的有效非线性系数的空间分布。结果表明, GdCOB 晶体的最大非线性系数位于第二象限的 $(66.8^\circ, 132.6^\circ)$ 方向上, 达到 1.68 pm/V 。如果将有效非线性系数与受激发射截面两者综合考虑, 就可确定 Nd:GdCOB 晶体的最佳自倍频方向。本文结论对于 ReCOB ($\text{Re} = \text{Gd}, \text{Y}$) Nd:ReCOB 的进一步研究具有推动意义, 对于其他低对称性非线性光学晶体的探索也有借鉴作用。

参 考 文 献

- [1] Norrestam R, Nygren M, Bovin J O. Structure investigations of new calcium-rare earth (R) oxyborates with the composition $\text{Ca}_4\text{RO}(\text{BO}_3)_3$. *Chem. Mater.*, 1992, **4**(6):737~743
- [2] Aka G, Kahn-Harari A, Mougel F *et al.*. Linear and nonlinear optical properties of a new gadolinium calcium oxoborate crystal, $\text{Ca}_4\text{GdO}(\text{BO}_3)_3$. *J. Opt. Soc. Am. (B)*, 1997, **14**(9):2238~2247
- [3] Auge F, Mougel F, Aka G *et al.*. Efficient self-frequency-doubling Nd:GdCOB crystal pumped by a high brightness laser diode. In: *Advanced Solid-State Lasers*, paper MF7-1. Washington D C: Optical Society of America, 1999. 185~187
- [4] Mougel F, Aka G, Kahn-Harari A *et al.*. CW blue laser generation by self-sum frequency mixing in Nd:Ca₄GdO(BO_3)₃(Nd:GdCOB) single crystal. *Opt. Mater.*, 1999, **13**(3):293~297
- [5] Ye Q, Shah L, Eichenholz J *et al.*. Investigation of diode-pumped, self-frequency doubled RGB lasers from Nd:YCOB crystals. *Opt. Commun.*, 1999, **164**(1~3):33~37
- [6] Chen C T. Development of new nonlinear optical crystal in the borate series, In: Letokhov B S, Shank C V, Shen Y R eds. *Laser Science and Technology*. Chur, (Switzerland): Harwood Academic Publishers, 1993. 60~75
- [7] Shen Y R. *The Principles of Nonlinear Optics*. New York: John Wiley & Sons, 1984. 86~89
- [8] Dmitriev V G, Gurzadyan G G, Nikogosyan D N. *Handbook of Nonlinear Optical Crystals* (second revised and update edition). Berlin: Springer-Verlag, 1997

Absolute Scale and Spatial Distribution of Nonlinear-Optical Coefficients of GdCOB Crystal

Wang Zhengping Song Renbo Xu Xin'guang Sun Xun Wang Jiyang
Wei Jingqian Shao Zongshu

(National Key Laboratory of Crystal Materials, Shandong University, Jinan 250100)

(Received 30 May 2000; revised 28 July 2000)

Abstract: The whole nonlinear optical coefficients of GdCOB crystal are evaluated by phase matching SHG method and Maker fringe method. The spatial distribution of effective nonlinear coefficient d_{eff} are proved with the crystals cut in different directions in the experiments. The results show that d_{eff} reaches the maximum of 1.68 pm/V at the direction of $\theta = 66.8^\circ$, $\varphi = 132.6^\circ$. The SHG conversion efficiency reaches 48% with a 6 mm-long GdCOB crystal cut along this direction.

Key words: GdCOB crystal; nonlinear-optical coefficient; SHG efficiency