

文章编号: 1001-3806(2009)05-0466-04

## BIBO 晶体非临界相位匹配的研究

韩永飞<sup>1</sup>, 陈振强<sup>1\*</sup>, 李景照<sup>1</sup>, 林浪<sup>1</sup>, 李真<sup>1</sup>, 王国富<sup>2</sup>

(1. 暨南大学 光电工程研究所, 广州 510632; 2. 中国科学院 福建物质结构研究所, 福州 350002)

**摘要:** 为了研究 BIBO 晶体的非临界相位匹配的特点及应用, 采用 MATLAB 编程的精确计算方法, 在 BIBO 的热光色散方程的基础上, 以波长为 532nm 的绿光作为抽运光, 计算了 BIBO 在非临界相位匹配下的温度调谐、有效非线性系数和允许参量。计算得出, 当匹配角  $\theta = 90^\circ$  时, 信号光的温度调谐范围为  $0.65\mu\text{m} \sim 3.0\mu\text{m}$ ; 当信号光波长为 670nm 时, BIBO 的差频 II 类 (B) 相位匹配的最佳匹配条件为:  $T_m = 22.3^\circ\text{C}$ ,  $\varphi = 35^\circ$ ,  $d_{\text{eff}} = 1.904\text{pm/V}$ 。结果表明, BIBO 的非临界相位匹配有望应用于激光电视等可见波段激光产品。

**关键词:** 非线性光学; 非临界相位匹配; MATLAB 计算; 硼酸铋

**中图分类号:** O734 **文献标识码:** A **doi:** 10.3969/j.issn.1001-3806.2009.05.006

## Research of noncritical phase-matching of BIBO crystal

HAN Yong-fei<sup>1</sup>, CHEN Zhen-qiang<sup>1</sup>, LI Jing-zhao<sup>1</sup>, LIN Lang<sup>1</sup>, LI Zhen<sup>1</sup>, WANG Guo-fu<sup>2</sup>

(1. Institute of Optoelectronic Engineering, Jinan University, Guangzhou 510632, China; 2. Fujian Institute of Research on the Structure of Matter, Chinese Academy of Science, Fuzhou 350002, China)

**Abstract:** In order to obtain the noncritical phase-matched property of  $\text{BiB}_3\text{O}_6$  (BIBO) crystal and improve its application, based on its thermo-optical dispersion formula, with the green light at 532nm as the pump light, the temperature tuning range, efficient nonlinear coefficient and acceptance parameter of BIBO in noncritical phase-matching are calculated accurately by means of MATLAB programs. When the matched angle  $\theta = 90^\circ$ , the signal light can tune within  $0.65\mu\text{m} \sim 3.0\mu\text{m}$ . When the signal light is at 670nm, the optimal phase-matched condition of difference frequency type II (B) phase-matching is obtained:  $T_m = 22.3^\circ\text{C}$ ,  $\varphi = 35^\circ$ ,  $d_{\text{eff}} = 1.904\text{pm/V}$ . The result is promising to be applied in the laser product in visible waveband, such as laser TV.

**Key words:** nonlinear optical; noncritical phase-matched; MATLAB calculation; bismuth borate

### 引言

BIBO ( $\text{BiB}_3\text{O}_6$ ) 晶体作为一种新型的非线性光学晶体, 不仅具有不潮解、物化性能稳定、光损伤阈值高的特点, 而且其突出优势是有效非线性系数  $d_{\text{eff}}$  可达  $3.32\text{pm/V}$ , 高于目前被普遍应用的 BBO, LBO 晶体, 在 1064nm 的腔外倍频实验中其转换效率可达到近 70%<sup>[1-2]</sup>。BIBO 晶体双折率较大, 相位匹配波长随角度的变化灵敏, 因此不仅可作为高效倍频、和频器件, 而且在光参量振荡 (optical parametric oscillator, OPO) 领域也具有广阔的应用前景。

从 1962 年 LEVIN 和 McDANIEL 等人发现  $\text{BiB}_3\text{O}_6$  化合物, 到 2004 年 TENG 等人生长出重达 120g 的完

整单晶<sup>[3]</sup>, 由于高质量晶体生长的限制, 对 BIBO 的研究还一直处于初期, 主要集中在 BIBO 晶体的生长、结构、倍频特性等方面。国外主要是德国的 HELLWING 等人对晶体的生长方法和非线性性质做了相关基础理论研究<sup>[4-5]</sup>; 国内主要是山东大学和北京大学的学者对高质量晶体的生长、临界相位匹配的 2 倍频 (second harmonic generation, SHG) 和 3 倍频 (third harmonic generation, THG) 做了相关激光实验研究<sup>[3, 6-7]</sup>。但是, 对 BIBO 晶体的 3 波互作用非临界相位匹配的相关报道较少。

作者在 UMEMURA 等人 2007 年报道的 BIBO 热光色散方程<sup>[8]</sup>的基础上, 结合相位匹配的理论 and YAO 的精确非线性系数数值计算方法<sup>[9]</sup>, 对 BIBO 的非临界相位匹配的 3 波互作用温度调谐、有效非线性系数以及允许温度进行 MATLAB 编程计算分析, 得出了该晶体应用于非临界相位匹配方面的相关参量。

### 1 BIBO 晶体的结构、定轴模型

BIBO 晶体属对称性较低的单斜晶系, 是光学双轴

基金项目: 广东省科技攻关项目资助项目 (2003C103017)

作者简介: 韩永飞 (1983-), 男, 硕士, 主要从事人工晶体生长与性能的研究。

\* 通讯联系人。E-mail: tzqchen@jnu.edu.com

收稿日期: 2008-06-16; 收到修改稿日期: 2008-11-04

晶,其折射率主轴( $x, y, z$ )、结晶学主轴( $a, b, c$ )及压电主轴( $e_1, e_2, e_3$ )不完全一致<sup>[4]</sup>。由于该晶体点群为2,空间群为 $C_2$ ,故折射率主轴之一即为结晶学主轴 $b$ ,另外两个折射率主轴在(010)平面内,与结晶学主轴 $a, c$ 呈一定角度。通过实验测定和 $n_x < n_y < n_z$ ( $n$ 是 $x, y, z$ 方向上的折射率)的原则,将BIBO晶体定向为见图1。

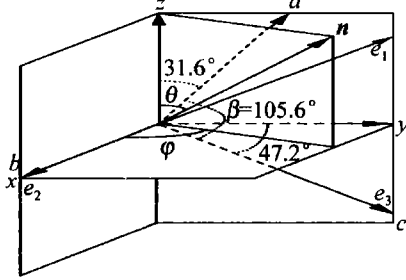


Fig. 1 The sketch map of BIBO axis system

按照传统习惯,作者以极坐标( $\theta, \varphi$ )来表示任意波矢方向 $n$ ,其中 $\theta$ 为 $n$ 与 $z$ 轴的夹角, $\varphi$ 为 $n$ 在 $x-y$ 平面上的投影与 $x$ 轴的夹角。

## 2 BIBO 晶体温度相位匹配的理论基础

根据双轴晶3波共线相互作用相位匹配条件( $\Delta K = 0$ ),相位匹配有如下6种类型。

(1) 和频:  $\omega_1 + \omega_2 = \omega_3$

I类:  $\omega_1 n_1^s + \omega_2 n_2^s = \omega_3 n_3^f, (s + s \rightarrow f)$ ;

II(A)类:  $\omega_1 n_1^s + \omega_2 n_2^f = \omega_3 n_3^f, (s + f \rightarrow f)$ ;

II(B)类:  $\omega_1 n_1^f + \omega_2 n_2^s = \omega_3 n_3^f, (f + s \rightarrow f)$ 。

(2) 差频:  $\omega_1 - \omega_2 = \omega_3$

I类:  $\omega_1 n_1^f - \omega_2 n_2^f = \omega_3 n_3^s, (f + f \rightarrow s)$ ;

II(A)类:  $\omega_1 n_1^f - \omega_2 n_2^s = \omega_3 n_3^s, (f + s \rightarrow s)$ ;

II(B)类:  $\omega_1 n_1^f - \omega_2 n_2^f = \omega_3 n_3^f, (f + s \rightarrow f)$ 。

式中, $n_i^s, n_i^f$ ( $i = 1, 2, 3$ )为入射光波 $\lambda_i$ 在晶体中对应的慢光和快光的折射率。 $s$ 代表慢光, $f$ 代表快光。

结合双轴晶折射率曲面方程和参考文献[8]中的Sellmeier方程以及热光色散方程:

$$\frac{k_x^2}{n^{-2} - n_1^{-2}} + \frac{k_y^2}{n^{-2} - n_2^{-2}} + \frac{k_z^2}{n^{-2} - n_3^{-2}} = 0 \quad (1)$$

式中, $k_x = \sin\theta\cos\varphi, k_y = \sin\theta\sin\varphi, k_z = \cos\theta$ 为波矢 $k$ 的3个主轴分量。

$$\begin{cases} n_x^2 = 3.07403 + \frac{0.03231}{\lambda^2 - 0.03163} - 0.013376\lambda^2 \\ n_y^2 = 3.16940 + \frac{0.03717}{\lambda^2 - 0.03483} - 0.01827\lambda^2 \\ n_z^2 = 3.6545 + \frac{0.05112}{\lambda^2 - 0.033713} - 0.02261\lambda^2 \end{cases} \quad (2)$$

( $0.4740\mu\text{m} \leq \lambda \leq 3.083\mu\text{m}$ )

$$\begin{cases} \frac{dn_x}{dT} = \left( \frac{0.3826}{\lambda^3} - \frac{1.0868}{\lambda^2} + \frac{2.1546}{\lambda} + 3.9343 \right) \times 10^{-5} \times [1 - 5.020 \times 10^{-3}(\Delta T)] \\ \frac{dn_y}{dT} = \left( \frac{0.6614}{\lambda^3} - \frac{1.7119}{\lambda^2} + \frac{2.0856}{\lambda} + 3.7731 \right) \times 10^{-5} \times [1 - 6.664 \times 10^{-3}(\Delta T)] \\ \frac{dn_z}{dT} = \left( \frac{0.9861}{\lambda^3} - \frac{3.7512}{\lambda^2} + \frac{5.5064}{\lambda} + 4.6591 \right) \times 10^{-5} \times [1 - 11.622 \times 10^{-3}(\Delta T)] \end{cases} \quad (3)$$

( $0.4740\mu\text{m} \leq \lambda \leq 3.083\mu\text{m}$ )

由双轴晶折射率曲面普适方程和以上(1)式~(3)式可以得出一个关于波长、温度和匹配角的函数 $\Delta K = f(\lambda, \Delta T, \varphi)$ ,按照和频、差频的不同方式和条件,通过MATLAB编程计算即可得到 $\Delta K = 0$ 的点。

按照YAO的有效非线性系数精确计算方法<sup>[9]</sup>:  $d_{\text{eff}} = a^{\omega_3} d_{ijk} a^{\omega_1} a^{\omega_2}$ ,其中, $a^{\omega_i}$ 为 $\omega_i$ 光波在晶体中 $E$ 矢量的单位矢量,而 $d_{ijk}$ 是BIBO晶体的2阶非线性系数张量,它的测量值是以物理压电轴为参考的,所以在计算过程中还需要把 $d_{ijk}$ 变换到光学主轴下。

由于非临界匹配时允许参量不再是小量,按照传统的只取1阶导数近似方法会引入很大误差<sup>[10]</sup>。所以,本文中采用数值计算的精确算法来计算允许温度和允许角。编程计算在 $|\Delta K| \leq \pi/l$ 的条件下,求解在一定 $\varphi$ 角下相应 $\Delta T$ 和 $\Delta\varphi$ 的变化区间。

## 3 计算结果及对比分析

在抽运波长为 $0.532\mu\text{m}, \theta = 90^\circ$ 的前提下,根据以上的理论计算得出:双轴晶的6种匹配类型中,只有差频的I类和II(B)类能够在限定的波长范围内满足 $\Delta K = 0$ 的条件,如图2所示。从图中可以看出信号光的变化很缓慢,决定了它的允许温度必然会比较。信号光和闲光在整个温度范围内可以实现 $0.65\mu\text{m} \sim 3.0\mu\text{m}$ 的温度调谐,而且在 $20^\circ\text{C} \sim 250^\circ\text{C}$ 的低温区域,信号光可以实现 $0.65\mu\text{m} \sim 1.0\mu\text{m}$ 区间内的温度调谐,而闲光则在 $1.2\mu\text{m} \sim 2.9\mu\text{m}$ 范围内变化。

由于在 $\theta = 90^\circ$ 的条件下, $d_{\text{eff}}$ 的值在 $\varphi = 0^\circ \sim 90^\circ$ 和 $90^\circ \sim 180^\circ$ 区间对称分布,所以只有一个独立的卦限。在信号波长为 $670\text{nm}$ 并满足相位匹配的条件下,计算得出了 $d_{\text{eff}}$ 随 $\Delta T$ 和 $\varphi$ 变化的3维曲线,如图3所示。对比图3a、图3b得出,II(B)类匹配的最小 $d_{\text{eff}}$ 值 $1.33\text{pm/V}$ 都大于I类匹配的最大 $d_{\text{eff}}$ 值 $1.32\text{pm/V}$ ,而且II类匹配的最大 $d_{\text{eff}}$ 值达到 $1.91\text{pm/V}$ ,虽然小于BIBO临界匹配下的 $d_{\text{eff}}$ 值,但仍大于和接近LBO( $0.99\text{pm/V}$ ),BBO( $2.0\text{pm/V}$ )的临界匹配最大倍频系数<sup>[9]</sup>。

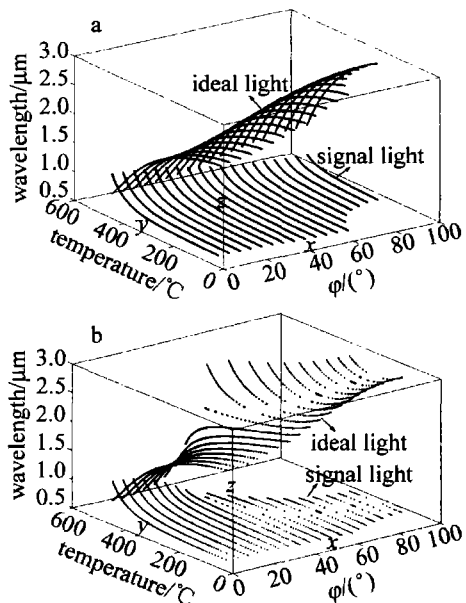


Fig. 2 The temperature tuning curve of difference frequency matched, when pump light wavelength is 532nm  
a—type I b—type II (B)

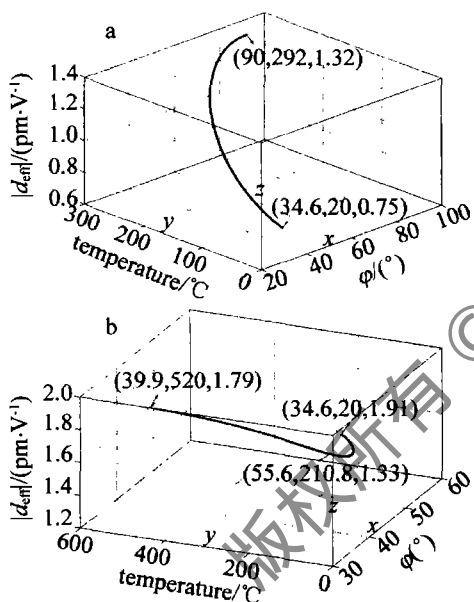


Fig. 3 The  $d_{eff}$  value of difference frequency type I and type II (B) phase-matched, when signal light wavelength is 670nm

将计算相位匹配的条件  $\Delta K = 0$  改为  $|\Delta K| \leq \pi/l$ , 取晶体长度  $l$  的单位为 cm, 则匹配条件变为  $|\Delta K| \leq 3.14 \times 10^{-4}$ , 在确定  $\varphi$  角的情况下, 求出满足新的匹配条件所有  $T$  值, 即可得到相应的允许温度  $(\Delta T \cdot l)$  的值, 如图 4a、图 4b 所示。同理, 可以在确定的  $T$  值下, 求得相应的允许角  $(\Delta \varphi \cdot l)$ , 再将温度值转换为相应的匹配角, 即可得到  $\varphi$  角下的允许角如图 4c、图 4d 所示。

纵向对比图 3、图 4 得出: I 类相位匹配虽然在  $\varphi = 90^\circ$  时  $d_{eff}$  最大为  $1.32 \text{ pm/V}$ , 但在这点的匹配温度  $(292^\circ\text{C})$  相对较高, 而且允许温度和允许角都是最小的, 所以实际应用时应适当减小  $\varphi$  角, 来降低匹配温度和增大允许参量。II (B) 类匹配的  $d_{eff}$  在  $\varphi = 34.6^\circ$

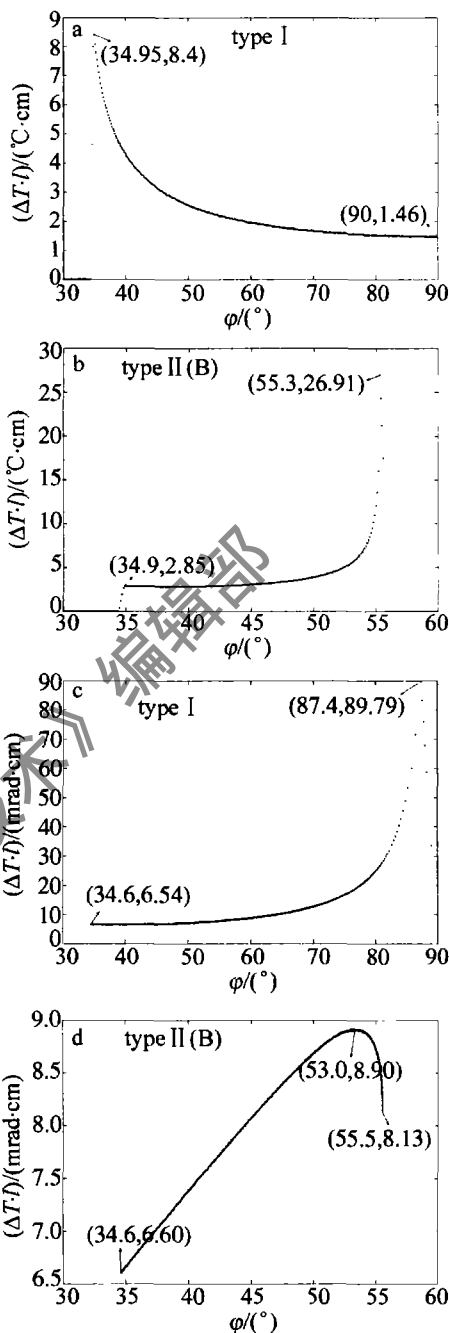


Fig. 4 The acceptance temperature and angle of difference frequency type I and type II (B) phase-matching

时最大为  $1.91 \text{ pm/V}$ , 但同样这点的允许参量最小, 所以选择  $\varphi = 35^\circ$  会更好。

横向对比图 3、图 4 得出: I 类相位匹配虽然可以在折射率主轴  $y$  轴上实现相位匹配, 但  $d_{eff}$  明显小于 II (B) 类匹配, 而且匹配温度也很高, 不易实用化; 在非临界 II (B) 类相位匹配下, 不存在走离效应的影响, 而且 II (B) 类的匹配温度、允许参量与 I 类相比较都更容易满足。所以, 差频 II (B) 类是最佳的匹配方式。

最后, 将  $532 \text{ nm}$  抽运下 BIBO 晶体差频 II (B) 类其它波长的最佳相位匹配参量列于表 1 中。对比可以得出, 信号光为  $0.72 \mu\text{m}$  以上的情况, 匹配温度都较

Table 1 The optimal parameters of difference frequency type II (B) phase-matched BIBO crystal

signal light/ $\mu\text{m}$	ideal light/ $\mu\text{m}$	$d_{\text{eff}}/(\text{pm} \cdot \text{V}^{-1})$	angle $\varphi/(\circ)$	temperature $T/^\circ\text{C}$	acceptance angle ( $\Delta\varphi \cdot l$ )/(mrad $\cdot$ cm)	acceptance temperature ( $\Delta T \cdot l$ )/( $^\circ\text{C} \cdot$ cm)
0.671	2.568	1.925	34	22	6.63	2.9
0.6758	2.5	2.014	29.5	21.5	6.98	3.4
0.7	2.217	2.289	2.2	79.5	76.79	5.1
0.7248	2.0	2.289	2	213	73.2	2.05
0.8	1.588	2.289	1.6	335	55.85	0.8
0.8244	1.5	2.29	1.18	352.5	41.02	0.7

高,很难实用化;信号光为 0.7  $\mu\text{m}$  的纯红光时,  $d_{\text{eff}}$  达到最大,允许角明显增大,只是它的匹配温度高于室温。

#### 4 结论

在考虑晶体的结晶学主轴、压电主轴和折射率主轴的基础上,结合色散方程、热光方程,计算了 BIBO 晶体非临界相位匹配的非线性光学特点,通过以上计算结果和对比分析,可得出以下几点结论:(1) 532nm 抽运时,BIBO 只有差频的 I 类和 II (B) 类可以实现非临界相位匹配,且可以实现 0.65  $\mu\text{m}$  ~ 3.0  $\mu\text{m}$  的温度调谐。(2) 信号光为 670nm 时,BIBO 的最佳匹配方式为 II (B) 类,选  $\varphi = 35^\circ$ ,则  $d_{\text{eff}} = 1.904 \text{ pm/V}$ ,匹配温度  $T_m = 22.3^\circ\text{C}$ ,允许温度 ( $\Delta T \cdot l$ ) = 2.85  $^\circ\text{C} \cdot \text{cm}$ ,允许角度 ( $\Delta\varphi \cdot l$ ) = 6.65 mrad  $\cdot$  cm。(3) BIBO 的非临界相位匹配可以利用 532nm 的绿光,差频产生 670nm 的红光,有望可以在激光电视技术等可见光范围内的广泛利用。

#### 参 考 文 献

[1] WANG Z P, TENG B, DU C L, *et al.* Frequency doubling property of the low symmetric nonlinear optical crystal BIBO [J]. *Acta Physica*

*Sinica*, 2003, 52(9): 2176-2184 (in Chinese).

- [2] LI Ch Y, WANG Y G, HUANG L. Extra cavity 660nm SHG study of type-I noncritical phase-matched LBO crystal [J]. *Laser Technology*, 2003, 27(5): 428-430 (in Chinese).
- [3] TENG B, WANG J Y, DONG S M, *et al.* Determining the optical growth orientation of  $\text{BiB}_3\text{O}_6$  crystal [J]. *Journal of Synthetic Crystals*, 2004, 33(5): 751-754 (in Chinese).
- [4] HELLWING H, LIEBERTZ J, BOHATY L. Exceptional large nonlinear optical coefficient in the monoclinic bismuth borate  $\text{BiB}_3\text{O}_6$  [J]. *Solid State Communication*, 1999, 109(4): 249-251.
- [5] HELLWING H, LIEBERTZ J, BOHATY L. Linear optical properties of monoclinic bismuth borate  $\text{BiB}_3\text{O}_6$  [J]. *J A P*, 2000, 88(1): 240-244.
- [6] WANG Z P, DU C L, TENG B, *et al.* Third harmonic generation property of 1064nm in nonlinear optical crystal  $\text{BiB}_3\text{O}_6$  of low symmetry [J]. *Acta Optical Sinica*, 2003, 23(11): 1300-1305 (in Chinese).
- [7] ZHANG K C, CHEN X A, WANG X X. Review of study on bismuth triborate ( $\text{BiB}_3\text{O}_6$ ) crystal [J]. *Journal of Synthetic Crystals*, 2005, 34(3): 438-443 (in Chinese).
- [8] UMEMURA N, MIYATA K, KATO K. New data on the optical properties of  $\text{BiB}_3\text{O}_6$  [J]. *Optical Materials*, 2007, 30(4): 532-534.
- [9] YAO J Q, XU D G. All solid state laser and nonlinear optical frequency conversion technology [M]. Beijing: Science Press, 2007: 674-684 (in Chinese).
- [10] WANG J, YAO J Q, LI X F. Amendatory calculation of the acceptance parameters in three-wave interactions [J]. *Acta Optical Sinica*, 2001, 21(2): 139-141 (in Chinese).

(上接第 454 页)

- [2] DUAN Y F, HUANG B C, ZHANG P, *et al.* Experimental study of the all-fiber pulse fiber amplifier [J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2007, 34(10): 1379-1382 (in Chinese).
- [3] WRIGHT M W, VALLEY G C. Yb-doped fiber amplifier for deep-space optical communications [J]. *Journal of Lightwave Technology*, 2005, 23(3): 1369-1374.
- [4] PHILIPPOV V, CODEMARD C, JEONG Y. High-energy in-fiber pulse amplification for coherent lidar applications [J]. *Opt Lett*, 2004, 29(22): 2590-2592.
- [5] CHENG M Y, CHANG Y C, GALVANASKAS A, *et al.* High-energy and high-peak-power nanosecond pulse generation with beam quality control in 200mm core highly multimode Yb-doped fiber amplifiers [J]. *Opt Lett*, 2005, 30(4): 358-360.
- [6] TEODORO F D, BROOKS C D. Fiber sources reach multimewatt peak power in ns pulses [J]. *Laser Focus World*, 2006, 42(11): 94-98.
- [7] YE C G, YAN P, GONG M L, *et al.* Pulsed pumped Yb-doped fiber amplifier at low repetition rate [J]. *Chinese Optics Letters*, 2005, 3(5): 249-250.
- [8] DU S T, ZHOU J, ZHANG F P, *et al.* 20W average power, high repetition rate, nanosecond pulse with diffraction limit from an all-fiber MOPA system [J]. *Microwave and Optical Technology Letters*, 2008, 50(10): 2546-2549.
- [9] ZHAN Y, ZHENG Y, ZHAO Y H, *et al.* The gain and noise characteristics of double cladding ytterbium-doped fiber amplifiers at different pump modes [J]. *Laser Technology*, 2007, 31(1): 50-53 (in Chinese).