

文章编号: 1001-3806(2004)02-0141-03

## 周期极化近化学计量掺镁铌酸锂晶体倍频研究

姚江宏<sup>1,2</sup>, 颜博霞<sup>1,2</sup>, 陈亚辉<sup>1,2</sup>, 邓浩亮<sup>1,2</sup>, 陈绍林<sup>1,2</sup>, 许京军<sup>1,2</sup>, 张光寅<sup>1,2</sup>

(1. 南开大学 物理科学学院 光子学中心, 天津 300071; 2. 南开大学 泰达应用物理学院, 天津 300060)

**摘要:** 采用气相输运平衡技术, 对不同掺镁浓度的铌酸锂进行了近化学计量处理, 并检验了其抗光折变性能。实验结果表明, 掺摩尔分数为 2% 的镁的近化学计量铌酸锂晶体, 光折变阈值比同成分晶体提高了 4 个量级。通过施加 4.5kV/mm 的脉冲电场, 在上述 1.0mm 厚 *z* 切晶体上制备出了周期为 6.8 $\mu$ m 的均匀畴结构。采用声光调 *Q* Nd YAG 激光器作抽运光源, 基频光波波长为 1.064 $\mu$ m, 平均输入功率为 230mW, 在室温条件下, 得到波长为 0.532 $\mu$ m, 输出功率为 2.8mW 的倍频绿光输出, 倍频转换效率为 1.22%。

**关键词:** 倍频; 准相位匹配; 近化学计量; 掺镁铌酸锂晶体; 周期极化

**中图分类号:** O437 **文献标识码:** A

### Periodically poled second harmonic green light generation in near-stoichiometric MgO-doped LiNbO<sub>3</sub> crystal

YAO Jiang-hong<sup>1,2</sup>, YAN Bo-xia<sup>1,2</sup>, CHEN Ya-hui<sup>1,2</sup>, DENG Hao-liang<sup>1,2</sup>, CHEN Shao-lin<sup>1,2</sup>,  
XU Jing-jun<sup>1,2</sup>, ZHANG Guang-yin<sup>1,2</sup>

(1. Photonics Research Center, College of Physical Science, Nankai University, Tianjin 300071, China; 2. TEDA Applied Physics College, Nankai University, Tianjin 300060, China)

**Abstract:** LiNbO<sub>3</sub> crystal with different MgO doped concentration were processed by vapor transport equilibration. The processed crystals doped 2% (mole fraction) MgO increased the photoreactive damage resistance by at least 4 orders of magnitude compared with congruent crystal. By applying an external electric field of 4.5kV/mm, we obtained a periodically poled domain structure with a 6.8 $\mu$ m period and 1.0mm thickness in the doped MgO 2% (mole fraction) near-stoichiometric LiNbO<sub>3</sub> crystal. A *Q*-switched Nd:YAG laser was used as the fundamental beam source at 1.064 $\mu$ m. When input power was 230mW, the green SHG at 0.532 $\mu$ m was obtained with 1.22% conversion efficiency.

**Key words:** second harmonic generation; quasi phase matched; near-stoichiometric; MgO-doped LiNbO<sub>3</sub>; periodical poling

## 引 言

近年来, 准相位匹配(QPM)技术的迅猛发展, 给人们提供了一种理想的非线性频率转换方法。基于 QPM 技术的光学器件, 具有转换效率高、体积小、使用方便等特点, 展现出广阔应用前景<sup>[1~3]</sup>。众所周知, 铌酸锂晶体以其优异的光电性能, 成为制备周期极化准相位匹配光学器件的常用材料之一。但一般条件下生长出来的同成分铌酸锂晶体([Li]:[Nb]=48.5:1.5)存在着光折变引起的光损伤效应及室温下极化电场过大(通常在 21kV/mm 左右)等缺点, 这已

成为制约其作为光频转换器件高效转换和大功率输出的主要障碍, 极大限制了器件的实用化<sup>[4,5]</sup>。

最近作者注意到, 通过提高铌酸锂晶体中的 [Li]/[Nb] 的值, 能极大地降低其铁电畴的极化反转电场, 较低的极化电场无疑有利于提高晶体极化厚度和周期畴结构<sup>[6]</sup>; 同时, 提高铌酸锂晶体中的 [Li]/[Nb] 的值, 也可以大大降低抗光损伤铌酸锂晶体的掺镁阈值, 只需少量的镁掺入就能极大地提高晶体的抗光损伤能力<sup>[7]</sup>。作者将降低畴极化电场和提高晶体的抗光损伤能力有机结合起来, 采用气相输运平衡(vapor transport equilibration)技术, 对掺镁 LiNbO<sub>3</sub> 晶体进行近化学计量处理, 不仅使其光折变阈值提高了 4 个量级, 同时使极化电场降低到 4.5kV/mm 以下。使用上述极化电场, 作者成功制备出了 1.0mm 厚的周期为 6.8 $\mu$ m 的准相位匹配光学微结构, 在室温下实现了绿光倍频输出, 其倍频转换

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(90101022)

作者简介: 姚江宏(1967-), 男, 博士, 副教授, 现从事非线性光学材料和光电技术的研究。

E-mail: yaojh@nankai.edu.cn

收稿日期: 2003-05-23; 收到修改稿日期: 2003-11-19

频率为 1.22 %。

## 1 实验样品制备

采用气相输运平衡法对同成分掺镁铌酸锂晶体进行近化学计量处理,准备掺镁(摩尔分数分别为 0,1%,2%,3%)的同成分  $\text{LiNbO}_3$  晶体。在富锂的气氛中对掺镁铌酸锂晶体薄片进行锂扩散,提高晶体中的锂含量,并使锂、铌及掺杂镁元素的分布趋于均匀化,处理时间依赖于晶体厚度和成分。对处理后的样品进行抛光,并对其组份进行测定,经气相平衡处理后的晶体  $[\text{Li}]/[\text{Li} + \text{Nb}] = 49.92\%$ 。

## 2 实验结果与分析讨论

用大功率 Nd:YAG 倍频激光器检验了近化学计量处理样品的抗光折变性能。图 1 中给出了近化学计量铌酸锂样品光折变阈值随掺镁浓度的变化,为了便于比较,同时给出了掺不同摩尔分数的镁的同成分晶体光折变阈值。作者注意到,与同成分铌酸锂晶体相似,近化学计量晶体的光折变阈值随掺镁浓度增加而提高。对于掺摩尔分数为 2% 的镁的样品,光强达到  $10\text{MW}/\text{cm}^2$  时,仍然没有光斑扭曲现象发生,即没有光折变效应发生。与未掺镁同成分样品相比,其光折变阈值至少提高了 4 个量级。可见对于近化学计量晶体,由于本征缺陷浓度的减少,晶体质量得到了很好改善,少量的镁掺入就可以极大地提高抗光折变性能。故文中选用掺摩尔分数为 2% 的镁的近化学计量样品作周期极化准相位匹配倍频实验。

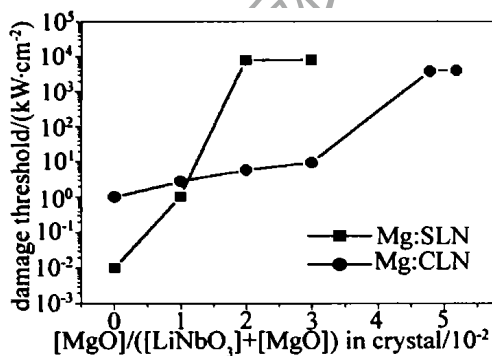


Fig. 1 Photorefractive damage threshold behavior as a function of MgO concentration

周期结构畴极化反转是通过外加高压直流脉冲电场实现的。将大小为  $10\text{mm} \times 10\text{mm} \times 1\text{mm}$  的  $z$  切掺镁摩尔分数为 2% 的近化学计量铌酸锂晶体双面抛光后,采用半导体光刻工艺技术样品  $+z$  面形成周期为  $6.8\mu\text{m}$  金属电极。实验中极化电路主要

由高压脉冲电源和一系列限流电阻组成,正高压脉冲直接作用到具有周期条纹的晶体  $+z$  表面,通过 O 形圈中饱和氯化锂电解液接触导电,晶体  $-z$  表面与负电极相连并接地。在铌酸锂晶体铁电畴极化反转过程中,脉冲电场的幅度、脉冲宽度、脉冲个数以及脉冲电流的大小都直接影响周期畴结构<sup>[8]</sup>。通过数字示波器记录,测得本实验所用铌酸锂极化畴反转电场的大小为  $4.5\text{kV}/\text{mm}$ ,此数值比同成分铌酸锂晶体的畴反转极化场低了近 1 个量级,这对于制备厚度在  $1.0\text{mm}$  左右的周期畴结构非常有利。整个极化过程中,脉冲宽度设置为  $200\text{ms}$ ,脉冲个数为 8 个。极化完成后,用 NaOH 溶液除去样品表面的金属电极,用丙酮洗掉绝缘胶,然后将上述铌酸锂样品放入  $V(\text{HF}):V(\text{HNO}_3) = 12:$  的混合液中,用水浴加热进行腐蚀,在光学显微镜下可以观察畴极化反转情况。图 2 中给出了样品  $+z$  面腐蚀后的畴结构,畴结构比较均匀,周期为  $6.8\mu\text{m}$ ,占空比接近于 50%。

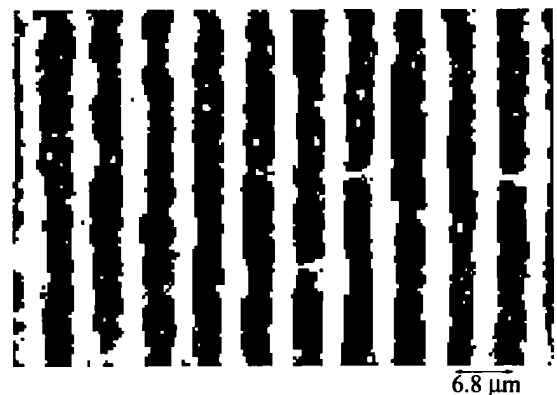
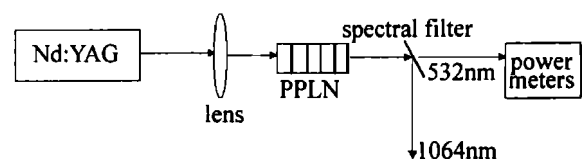


Fig. 2 Cross-sectional micro-photograph of the periodically domain inverted structure with a period of  $6.8\mu\text{m}$

周期极化准相位匹配倍频实验装置如图 3 所示。半导体激光器(LD)抽运 Nd:YAG 晶体,  $1.064\mu\text{m}$  声光调 Q 输出,重复频率为  $19\text{kHz}$ ,脉宽为  $60\text{ns}$ 。调整晶体方位,使  $1.064\mu\text{m}$  入射光偏振方向沿周期



极化晶体的  $z$  轴,经一焦距为  $45\text{mm}$  的透镜聚焦后,在晶体入射面形成直径约为  $50\mu\text{m}$  的光斑。 $1.064\mu\text{m}$  泵浦光沿晶体的  $x$  轴入射,入射和出射端面进行抛光处理,但未镀增透膜。 $1.064\mu\text{m}$  抽运激光经过仔细调整聚焦垂直通过样品,可观测到倍频绿

光从另一端输出。为了测量转换效率,用一滤光片将出射光中的  $1.064\mu\text{m}$  红外基频光和  $0.532\mu\text{m}$  倍频光分开。倍频转换实验是在室温下完成的。

在准相位匹配倍频转换实验中,测量了周期极化铌酸锂晶体横向不同位置的倍频效率,发现倍频绿光光强随光束在样品上入射点位置的不同有一定变化,说明样品的周期畴结构不完全均匀,占空比不完全一致,制作过程还有待于进一步提高。图 4 中给出了倍频绿光的平均输出功率随输入基频光功率的变化曲线。

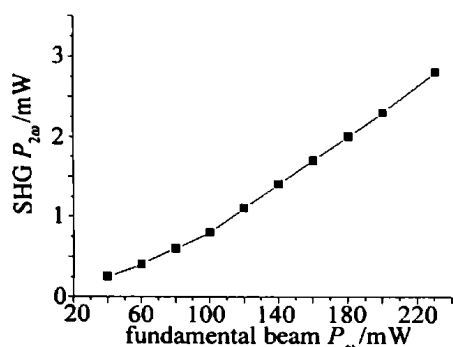


Fig. 4 SHG power  $P_{2\omega}$  dependence of the fundamental beam power  $P_{\omega}$

从图中可以看到,当平均输入功率为  $230\text{mW}$  时,获得的二次谐波输出功率达到  $2.8\text{mW}$ ,倍频转换效率为  $1.22\%$ 。当基频光功率低于  $30\text{mW}$  时,输出倍频绿光功率太低,无法和噪音信号分开,因此在这一区域没有数据。对于倍频转换效率较低的原因,作者认为主要有以下几点:(1)周期极化铌酸锂样品的光束入射和出射端面只是进行了简单抛光处理,并没有镀增透膜,因此存在着较强的光反射等损耗;(2)样品的周期极化畴结构不完全均匀,占空比有一定偏离;(3)在整个倍频实验中,各种透镜、分光镜等光学镜组的损耗都没有计算在内。如果考虑上述因素对测量结果的影响,实际倍频转换效率还应更高。

实验中使用的是声光调  $Q$  激光器,入射光的基频峰值功率可以达到  $10\text{MW}/\text{cm}^2$  左右,在室温条件下,连续工作  $5\text{h}$  以上,输出倍频功率基本稳定,没有发生明显变化。同时也没有观察到由于光折变效应

引起的光斑扭曲现象,这进一步表明使用的近化学计量掺镁铌酸锂晶体具有很强的抗光折变性能,这对于实现室温下大功率激光频率转化非常重要,同时也有利于提高倍频转换光的光斑质量。无疑,使用高质量近化学计量掺镁铌酸锂晶体是解决光折变损伤效应的根本途径。

### 3 结 论

利用气相输运平衡技术,对不同掺镁浓度的同成分铌酸锂进行了近化学计量处理,并检验了其抗光折变性能。实验结果表明,掺摩尔分数为  $2\%$  的镁的近化学计量铌酸锂晶体光折变阈值比同成分晶体提高了 4 个量级。通过施加  $4.5\text{kV}/\text{mm}$  的外加脉冲电场,在  $1.0\text{mm}$  厚  $z$  切铌酸锂晶体上实现了周期极化畴反转,制备出了周期为  $6.8\mu\text{m}$ 、相互作用长度为  $10\text{mm}$  的均匀周期畴结构,使用输出波长为  $1.064\mu\text{m}$  声光调  $Q$  NdYAG 激光器作抽运光源,在室温下实现了绿光倍频输出。当基频光波功率为  $230\text{mW}$  时,得到了波长为  $0.532\mu\text{m}$ 、功率为  $2.8\text{mW}$  的倍频绿光输出,倍频转换效率为  $1.22\%$ ,整个实验过程中没有观察到光折变效应造成的光损伤。无疑,近化学计量掺镁铌酸锂晶体是制备高质量周期极化准相位匹配频率转换器件的最佳材料之一。

### 参 考 文 献

- [1] GRANEME W R, MARKKUS P, PETER G R S *et al.* Opt Lett, 1998, 23(3): 171~173.
- [2] MYER L E, ECKARDT R C, FEJER M M *et al.* Opt Lett, 1996, 21(8): 591~593.
- [3] 于建,倪文俊,薛挺 *et al.* 光电子·激光, 2002, 13(4): 339~342.
- [4] FEJER M M, MAGEL G A, JUNDT D H *et al.* IEEE of Quan Electr, 1992, 28(11): 2631~2655.
- [5] 陈玉萍,陈险峰,曾祥龙 *et al.* 光学学报, 2002, 22(4): 399~401.
- [6] 姚江宏,许京军,张光寅. 中国物理快报, 2000, 17: 513~515.
- [7] FURUKAWA Y, KITAMURA K, TAKEKAWA S. A P L, 2000, 77: 2494~2996.
- [8] 姚江宏,陈亚辉,邓浩亮. 红外与毫米波学报, 2003, 22(1): 35~39.

(上接第 132 页)

### 参 考 文 献

- [1] COWER M C. SPIE, 1998, 3343: 171.
- [2] ZHANG J, SUGIOKA K, MIDORIKAWA K. Appl Phys, 1998,

A67: 499~501.

- [3] PEYRE P, FABBRO R, BERTHEL *et al.* Journal of Laser Applications, 1996(8): 135~141.
- [4] 黄杰译. 激光与光电子学进展, 2002(6): 18~20.
- [5] 杨遇春. 激光与红外, 1997, 27(6): 326~329.
- [6] 杨逸民. 激光与红外, 1997, 27(6): 333~336.