

文章编号: 1001-3806(2006)06-0578-03

Zn, Mg:LiNbO₃ 晶体的光学特性研究

张辉荣¹, 钟 杰², 徐观峰¹, 李 斌¹

(1. 西南技术物理研究所, 成都 610041; 2 海军装备部 重庆军代局, 重庆 400042)

摘要: 为了研制出结合 Zn:LiNbO₃ 与 Mg:LiNbO₃ 优点的晶体, 采用提拉法从熔体中生长了 Zn, Mg:LiNbO₃ 晶体, 并对它的配方和生长性能、光学均匀性、抗光折变以及倍频性能进行了研究, 生长出了尺寸达 $\phi 40\text{mm} \times 70\text{mm}$ 、双折射率梯度优于 $10^{-4}/\text{cm}$ 量级的 Zn, Mg:LiNbO₃ 晶体, 倍频得到了 20mJ 的 $0.532\mu\text{m}$ 的绿光输出, 转换效率达到 45%。该晶体是一种很有前途的非线性光学材料。

关键词: 材料; Zn, Mg:LiNbO₃ 晶体; 光学均匀性; 倍频

中图分类号: O 782 文献标识码: A

Study on optical property of Zn, Mg:LiNbO₃ crystal

ZHANG Hui-rong¹, ZHONG Jie², XU Guan-feng¹, LI Bin¹

(1. Southwest Institute of Technical Physics Chengdu 610041, China 2 Chongqing Military Representative Department Navy Equipment Bureau Chongqing 400042, China)

Abstract Zn, Mg:LiNbO₃ crystal was grown by the pulling method from the melt and its composition growth, optical homogeneity, photo-refraction resistance and frequency doubling were investigated. The grown crystal was 40mm in diameter and 70mm in length, the birefringence gradient of Zn, Mg:LiNbO₃ crystal was less than $10^{-4}/\text{cm}$, the frequency doubling output pulse energy was 20mJ at $0.532\mu\text{m}$ and the conversion efficiency was 45%. This crystal was a new promising nonlinear optical material.

Key words materials; Zn, Mg:LiNbO₃ crystal; optical homogeneity; frequency doubling

引 言

Zn:LiNbO₃ 是前苏联学者 VOLK 于 1990 年^[1,2]报道的抗光折变的新型 LiNbO₃ 晶体。该晶体的抗光折变阈值摩尔分数 $x(\text{ZnO})$ 为 0.04~0.06 且在倍频过程中晶体不会出现变“灰”现象。但美国学者用浮区法生长 Zn:LiNbO₃ 时发现, 该晶体较易开裂, 居里温度随 ZnO 摩尔分数的增加而降低, 接近光波导扩散使用温度 (1050°C)。高掺 MgO:LiNbO₃ 晶体抗光折变能力强^[3], 晶体不易开裂, 居里温度达 1200°C 左右, 但在热处理和单畴化时易脱熔, 严重降低了晶体的光学质量, 而 ZnO:LiNbO₃ 晶体在掺 ZnO 的摩尔分数达到 0.1 时也不易脱熔^[4]。Zn, Mg:LiNbO₃ 是用 ZnO 与 MgO 共掺到同成分熔体 ($x(\text{Li}_2\text{O}) = 0.486$) 中, 用提拉法制备出 Zn^{2+} 、 Mg^{2+} 共掺的新型铌酸锂晶体, 可望这种晶体能结合 Zn:LiNbO₃ 与 Mg:LiNbO₃ 的优点, 用于光电子领域。1994 年^[5], XU 等人在国内首先报道了 Zn, Mg:LiNbO₃ 晶

体的生长, 其后国内一些单位也相继对其光学吸收边^[6]、抗光折变性能^[7]和光学性能^[8]进行了研究。

本文中对 Zn, Mg:LiNbO₃ 晶体的配方和生长技术、光学均匀性、抗光折变、倍频性能等进行了研究, 长出了 $\phi 40\text{mm} \times 70\text{mm}$ 的优质抗光折变 Zn, Mg:LiNbO₃ 晶体。

1 关于 Zn, Mg:LiNbO₃ 晶体生长配方的研究

作者对熔体提拉法生长 Zn, Mg:LiNbO₃ 晶体的熔体组分进行了一系列研究, 根据不同的配方生长的结果如图 1 所示, 经过检测和研究得出了比较满意的熔



Fig 1 The photograph of Zn, Mg:LiNbO₃ crystals

体配方, 该配方为 $x(\text{Li}_2\text{O})/x(\text{Nb}_2\text{O}_5) = 0.486/0.514$ $x(\text{ZnO})$: 0.01~0.02 $x(\text{MgO})$: 0.045~0.05, x 表示

作者简介: 张辉荣 (1973-), 男, 高级工程师, 主要从事 LiNbO₃ 系列晶体材料的生长、研究和销售工作。

E-mail: zhuirong00@163.com

收稿日期: 2005-11-25 收到修改稿日期: 2006-01-09

摩尔分数, 晶体生长速度为 2.5mm/h~5mm/h, 晶体转速为 10r/min~20r/min, 晶体尺寸达 140mm×70mm。

2 Zn,Mg:LNbO₃ 晶体的透过谱

用分光光度计测试了未增透、厚度 3.7mm 的 Zn,Mg:LNbO₃ 晶体片子的光学透过特性。透过谱见图 2, 发现 Zn,Mg:LNbO₃ 晶体的透过波段为: 0.32μm~5.5μm, 截止波长有点向紫外移动。

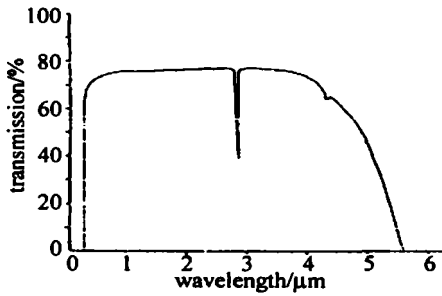


Fig 2 The transmission spectrum of Zn,Mg:LNbO₃ crystal

BRYAN 等^[9]指出, 欲提高 LNbO₃ 晶体的抗光损伤能力, MgO 的掺入量必须达到某一浓度值, 这时晶体的 OH 吸收峰位置从不掺 MgO 时的 2.87μm 移至 2.83μm, 这一现象常被用作判断 MgO 掺入浓度是否达到阈值的依据, 该依据同样适合于 Zn,Mg:LNbO₃ 晶体。由图 2 可以知道, Zn,Mg:LNbO₃ 晶体的 OH 吸收峰位置在 2.8321μm, 因此, 该晶体具有抗光折变特性, 同时亦表明该晶体掺入的 MgO 和 ZnO 浓度之和已达到阈值。

3 Zn,Mg:LNbO₃ 晶体的光学均匀性

用正交平行偏光干涉法测量了 Zn,Mg:LNbO₃ 晶体的光学均匀性, 装置简图见图 3。

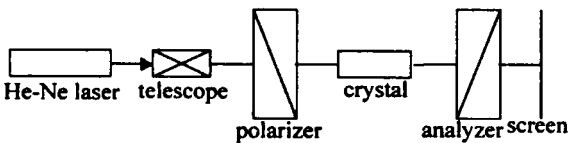


Fig 3 Schematic setup of the birefringence gradient measurement

晶体的双折射率梯度的计算公式为^[10]: $\frac{\Delta B}{\Delta Z} = \frac{N\lambda}{d} \frac{1}{l}$

其中, $\Delta B/\Delta Z$ 为双折射率梯度, N 为干涉条纹数目, λ 为 He-Ne 激光波长 (632.8nm), d 为条纹区宽度, l 为通光长度。图 4 为所测试的 Zn,Mg:LNbO₃ 晶体干涉条纹。表 1 是 4 块 Zn,Mg:LNbO₃ 晶体双折射率梯度的测量结果。

从测试结果可以看出, Zn,Mg:LNbO₃ 晶体有良好的光学均匀性, 双折射率梯度优于 $10^{-4}/\text{cm}$ 量级, 并且用这种晶体做成了倍频元件和电光 Q 开关, 电光 Q 开关元件尺寸达到 9mm(x)×9mm(y)×3mm(z), 这

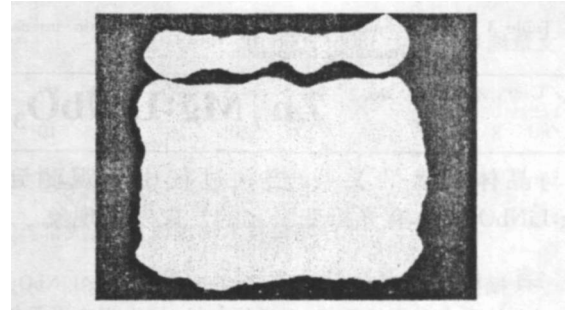


Fig 4 The interference striation photograph

Table 1 Birefringence gradient of Zn,Mg:LNbO₃ crystal

samples	size/mm	N	$(\Delta B/\Delta Z)/\text{cm}^{-1}$
1	8×8×10	1	7.91×10^{-5}
2	8×8×11	1	7.19×10^{-5}
3	8×8×12	1	6.59×10^{-5}
4	8×8×12	1	6.59×10^{-5}

些元件已得到用户接受。

4 Zn,Mg:LNbO₃ 晶体的激光倍频

4.1 测试原理和装置

所用的 Zn,Mg:LNbO₃ 晶体为表 1 中的 3 号样品, 通光长度为 12mm, 通光方向为 x 轴, 采用非临界位相匹配类: $o+o_e$ 实验装置如图 5 所示。

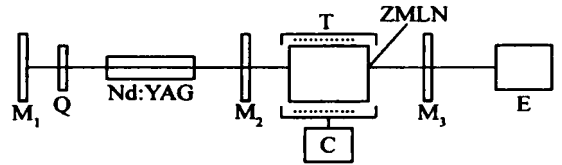


Fig 5 Schematic diagram of the experimental setup

图中, M_2 是对波长 1.064μm 部分反射的介质膜片, M_1 是对 Nd:YAG 激光器 1.064μm 辐射全反的介质膜片, M_3 是对波长 1.064μm 全反、对波长 0.532μm 全透的介质膜片, Q 为调 Q 染料片, ZMLN 为倍频晶体 Zn,Mg:LNbO₃ 晶体, T 为调温加热炉, C 为控温系统, E 为能量计。先按图示, 测出二次谐波输出 $E_{2\omega}$, 去掉 M_3 后, 使 Zn,Mg:LNbO₃ 晶体完全失配, 测出参加倍频过程的 1.064μm 的基波能量 E_w , 并计算了倍频能量转换效率, 上述方式是脉冲腔外倍频。

4.2 Zn,Mg:LNbO₃ 晶体倍频结果

测量结果如表 2 所示, 其中, T_{pm} 为位相匹配温度, η 是倍频能量转换效率, D 是基波功率密度, ΔT 为容

Table 2 Results of non-critical phase matching of Zn,Mg:LNbO₃

sample	$T_{pm}/^\circ\text{C}$	$E_{2\omega}/\text{mJ}$	E_w/mJ	$D/(\text{MW} \cdot \text{cm}^{-2})$	$\eta/\%$	$\Delta T/^\circ\text{C}$
3 [#]	96.5	20	44	39	45	1

承温度带宽。

表 3 是反映 Zn,Mg:LNbO₃ 晶体 0.532μm 倍频光

Table 3 The relationship between second harmonic intensity and phase-matching temperature

$T_{pm}/^{\circ}\text{C}$	95.8	96	96.2	96.4	96.5	96.6	96.8	97	97.2
E_{2w}/mJ	8	11	15	17	20	18	14	10	7

强与晶体温度的关系, 倍频过程中未观测到 Zn Mg:L N b O_3 晶体有光折变引起的光束发散现象。

5 结论

通过对 Zn Mg:L N b O_3 晶体的生长和性能的研究, 得到了合适的配方, 生长出了抗光折变、尺寸达 $140\text{mm} \times 70\text{mm}$ 、双折射率梯度优于 $10^{-4}/\text{cm}$ 量级的 Zn Mg:L N b O_3 晶体, 并利用它进行 $1.064\mu\text{m}$ 激光倍频, 得到了 20mJ 的 $0.532\mu\text{m}$ 的绿光输出, 倍频转换效率达到 45% 。目前, Zn Mg:L N b O_3 晶体已被用作电光开关元件、倍频元件、光波导基片, 因此, Zn Mg:L N b O_3 晶体是一种新的有应用前景的电光和非线性光学材料。

感谢四川大学王琇教授在晶体测试方面的积极帮助和支持。

参考文献

[1] VOLK T R, PRYALKIN V I, RUBIN A N M. Optical-damage-resistant Zn:L N b O_3 crystal [J]. Opt Lett 1990, 15(18): 996~998

[2] VOLK T R, KRASNOKOV V V, PRYALKIN V *et al*. Nonlinear optical properties of zinc-doped lithium niobate crystals [J]. Soviet Journal Quantum Electron 1990, 20(3): 204~205

[3] GRABMAIER B C, OTTO F. Growth and investigation of MgO-doped L N b O_3 [J]. Journal of Crystal Growth 1986, 79(1~3): 682~688

[4] XU G F, ZHANG H R, LI B *et al*. Growth and property of ZnO-doped L N b O_3 crystal [J]. Journal of Synthetic Crystals 2000, 29(5): 58 (in Chinese).

[5] XU G F, GUO Y J, LI B *et al*. Study on growth and property of Zn Mg: L N b O_3 crystals [J]. Journal of Synthetic Crystals 1994, 23(S0): 122 (in Chinese).

[6] YANG X L, XU G F, LI H P *et al*. Optical absorption edge of Mg+Zn: L N b O_3 [J]. Journal of Sichuan University of Science and Technology, 2000, 19(2): 136~140 (in Chinese).

[7] ZHU Zh B, XU Y H, WANG R. Investigation on photorefractive resistance property and mechanism of Zn Mg: L N b O_3 crystal [J]. Journal of Synthetic Crystals 2000, 29(5): 170 (in Chinese).

[8] MA C X, XU Y L. Study of Mg Zn: L N b O_3 crystal of optics function [J]. Natural Sciences Journal of Harbin Normal University 2001, 17(1): 30~33 (in Chinese).

[9] BRYAN D A, GERSON R, TOMASCHKE H E. Increased optical-damage resistance in lithium niobate [J]. A P L, 1984, 44(9): 847~849

[10] XU G F, GUO Y J, CHEN J R *et al*. The property, refractive index and frequency doubling investigation at room-temperature of heavily MgO-doped L N b O_3 crystal [J]. Laser Technology 1992, 16(4): 197~201 (in Chinese).

(上接第 563 页)

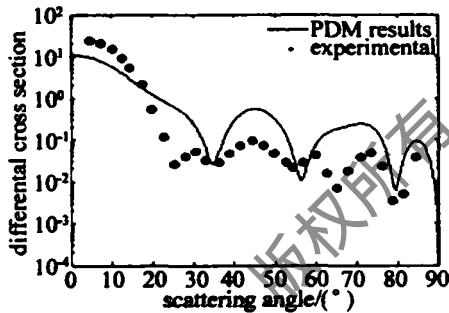


Fig 6 Same as Fig 5 except that the particle diameter is $1.6\mu\text{m}$

5 小结

用 PDM 推导了硅片表面球形粒子在任意线偏振入射光照射下的散射光光强的空间分布, 并给出了实验结果和计算机模拟结果的比较, 模拟计算的结果和实验结果很符合, 这对实际的实验具有一定的指导意义。但是可以看见计算机模拟结果比实验结果偏高, 这主要是因为本文中只考虑了光滑表面球形粒子的光散射情况, 即理想状况, 而实际中硅片表面不可能是光滑的, 会存在由于傅里叶衍射及周围环境对结果的影响, 这些影响因素正在研究中。

参考文献

[1] YOUNG R P. Low-scatter mirror degradation by particle contamination

[J]. Opt Engng 1976, 15(6): 516~520

[2] VIDEEN G, TURNER M G, IAFELICE V J *et al*. Scattering from a small sphere near a surface [J]. J O S A, 1993, 10(1): 118~126

[3] EREM N Y, ORLOV N. Simulation of light scattering from a particle upon a wafer surface [J]. Appl Opt 1996, 35(33): 6599~6603

[4] GERMER T A. Angular dependence and polarization of out-of-plane optical scattering from particulate contamination, subsurface defects and surface microroughness [J]. Appl Opt 1997, 36(33): 8798~8805

[5] NAHM K B, WOLFE W L. Light-scattering models for spheres on a conducting plane: comparison with experiment [J]. Appl Opt 1987, 26(15): 2995~2999

[6] BORN M, WOLFE E. Principles of optics [M]. 7th ed, Cambridge Cambridge University Press, 1999, 759~789

[7] WISCOMBE W J. Improved Mie scattering algorithms [J]. Appl Opt 1980, 19(9): 1505~1509

[8] YANG Y, ZHANG Zh X, JIANG D Z. Numerical calculation of Mie scattering [J]. Journal of Applied Optics 1997, 18(4): 17~19 (in Chinese).

[9] ZHENG G, CAI X Sh, WANG N N. Numerical calculation of Mie scattering [J]. Applied Laser 1992, 12(5): 220~222 (in Chinese).

[10] SCHMEHL R, NEBEKER B M, HRLEMAN E D. Discrete-dipole approximation for scattering by features on surfaces by means of a two-dimensional fast Fourier transform technique [J]. J O S A, 1997, 14(11): 3026~3036

[11] JOHNSON R. Calculation of light scattering from a spherical particle on a surface by the multipole expansion method [J]. J O S A, 1996, 13(2): 326~337