

文章编号:1001-9014(2005)03-0213-04

# 高掺镁铌酸锂晶体周期极化及倍频特性研究

颜博霞<sup>1</sup>, 姚江宏<sup>1,2</sup>, 陈亚辉<sup>1</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 300457)

**摘要:**研究了掺镁(5mol%)铌酸锂晶体的周期极化特性,发现晶体的极化矫顽场仅为3kV/mm,根据镁掺杂对晶体本征缺陷的影响解释了极化矫顽场降低的原因.采用短脉冲极化电场,对极化电流的热效应进行抑制从而消除了晶体均匀性对制备周期极化光栅的影响,在1mm厚的掺镁(5mol%)铌酸锂晶体上成功制备出了均匀的周期极化光栅.在室温下,利用1.064 $\mu$ m的Nd:YAG调Q激光器对得到的周期极化掺镁铌酸锂晶体进行了倍频实验,在输入功率为75mW时,得到3.5mW的532nm倍频绿光输出,转换效率为4.6%.

**关键词:**周期极化特性;掺镁铌酸锂;倍频

**中图分类号:** O437 **文献标识码:** A

## STUDY ON PERIODICALLY POLED CHARACTERISTICS OF MgO:LiNbO<sub>3</sub> AND SECOND HARMONIC GREEN LIGHT GENERATION

YAN Bo-Xia<sup>1</sup>, YAO Jiang-Hong<sup>1,2</sup>, CHEN Ya-Hui<sup>1</sup>, XU Jing-Jun<sup>1,2</sup>, ZHANG Guang-Yin<sup>1,2</sup>

(1. Photonics Center, College of Physical Science, Nankai University, Tianjin 300071, China;

2. TEDA Applied Physics School, Nankai University, Tianjin 300457, China)

**Abstract:** The periodically poled characteristics of LiNbO<sub>3</sub> doped 5mol% MgO were investigated and the domain reversal field was found to be 3kV/mm. According to the influence of MgO doped on the crystal defect, the decrease reason of the domain reversal field was explained. By using short-pulse field, the periodically poled grating was successfully fabricated in 1.0mm thick MgO:LiNbO<sub>3</sub>. Second harmonic green light generation in periodically poled MgO:LiNbO<sub>3</sub> was demonstrated. The green light power of 3.5mW at 532nm is obtained when the fundamental power is 75mW, and the conversion efficiency is 4.6%.

**Key words:** periodically poled characteristic; MgO:LiNbO<sub>3</sub>; second harmonic generation

### 引言

紧凑、全固态的短波长激光器在光学数据存储、大屏幕显示、海底光纤通讯以及激光医疗检测等方面具有广泛的应用价值.准相位匹配(QPM)倍频技术,由于可以充分利用非线性系数大、通光范围宽的晶体实现高效频率转换,因此已成为实现短波段激光输出的重要途径之一.到目前为止,人们已经利用外场极化法,在KTP、LiNbO<sub>3</sub>和LiTaO<sub>3</sub>等晶体上制备出了周期极化QPM器件<sup>[1~3]</sup>.然而光折变效应的存在严重制约了上述QPM器件在频率转换技术中的应用.

与上述晶体材料相比,高掺镁(>4.6mol%)铌酸锂晶体由于具有大的非线性系数和高的光折变阈值<sup>[4]</sup>,更适合制备QPM倍频器件.最近Kiminor Mizuuchi等人在周期极化掺镁铌酸锂晶体波导<sup>[5]</sup>和体器件<sup>[6]</sup>上分别实现了倍频紫光输出,但周期极化体光栅结构的畴有效反转深度只有150 $\mu$ m,这说明周期极化掺镁铌酸锂工艺仍有待进一步完善.

本文对掺镁(5mol%)铌酸锂晶体的周期极化特性进行了系统研究,发现晶体的极化矫顽场仅为3kV/mm,根据镁掺杂对晶体本征缺陷的影响解释了极化矫顽场降低的原因.采用短脉冲极化电场,通过对极化电流的热效应进行抑制从而消除了晶体均

收稿日期:2004-08-21,修回日期:2004-11-24

Received date: 2004-08-21, revised date: 2004-11-24

基金项目:国家自然科学基金重大项目,(90101022)天津市自然科学基金资助项目(033600911).

作者简介:颜博霞(1980-),女,河北保定人,南开大学硕士研究生,主要从事铌酸锂晶体微结构及非线性光学性能研究.

匀性对周期极化光栅的影响,在 1mm 厚的掺镁 (5mol%) 铌酸锂晶体上成功制备出了均匀的周期极化光栅.在室温下,利用  $1.064\mu\text{m}$  的 Nd:YAG 调 Q 激光器对得到的周期极化掺镁铌酸锂晶体进行了倍频实验,在输入功率为 75mW 时,得到 3.5mW 的 532nm 倍频绿光输出,转换效率为 4.6%.

## 1 周期极化样品制备及结果

所使用的掺镁铌酸锂晶体由 Czochralski 方法生长,掺镁组分为 5mol%,样品大小为  $12(x) \times 10(y) \times 1(z)\text{mm}^3$ . 本文通过在室温下外加高压直流脉冲方法实现样品的周期极化反转.极化过程中,利用数字示波器监测极化电压和极化电流,脉冲电场的幅度,脉冲宽度和脉冲个数以及脉冲电流的大小都直接影响样品的周期畴结构<sup>[7]</sup>.

首先我们发现掺镁 (5mol%) 铌酸锂晶体的极化矫顽场为  $3\text{kV/mm}$ ,与同成分铌酸锂晶体极化矫顽场 ( $21\text{kV/mm}$ ) 相比,降低了近一个量级,这与文献[8]中报道的结果相接近.同时发现,在掺镁铌酸锂晶体中制备均匀的周期极化光栅存在着一定困难,这主要体现在由于大量镁离子的掺入使得晶体均匀性下降,导致晶体的击穿电场降低.使用脉冲宽度为 100ms,脉冲周期为 250ms 的外加电场对样品进行极化,当极化场稍微高于矫顽场时,样品就会被击穿,极化电流突然迅速增加,样品两端电压会急剧下降,导致极化过程无法继续进行.这一实验现象在文献[8]中也进行了报道,但未能对其原因进行解释.将极化处理后的样品放入加热到  $100^\circ\text{C}$  的 HF 和  $\text{HNO}_3$  (按 1:2 混合) 的腐蚀液中腐蚀 10 分钟,取出,在光学显微镜下观察畴极化生长情况.只在样品的 +z 面观察到周期畴结构, -z 面没有周期畴结构,这说明畴的极化未能贯穿样品的整个厚度.图 1 给出了样品 +z 面的周期极化畴结构.从图中可以看出,极化畴的周期为  $7.0\mu\text{m}$ ,与设计电极周期一致,但整体结构不均匀.

击穿电场与极化矫顽场接近成为制约制备均匀周期极化光栅的主要因素.我们认为这是由于掺镁后晶体均匀性的下降造成的.在晶体极化过程中,由于晶体的组分不均匀导致晶体表面的电场分布不均匀,电场强的区域首先出现极化反转.极化反转过程使晶体的电导率升高,使该区域电荷密度进一步增大,而使其他区域无法实现极化反转.如果进一步升高极化场,由于极化电流的热效应就会导致强场区域发生击穿现象.

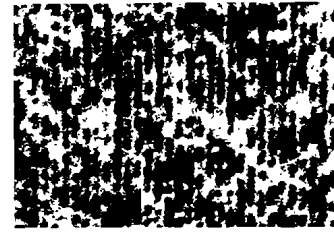


图 1 掺镁铌酸锂 +z 面周期极化畴结构.脉冲宽度 100ms,脉冲周期 250ms

Fig.1 The +z-side domain structure of periodically poled  $\text{MgO:LiNbO}_3$ , the pulse width is 100ms and pulse period is 250ms

为了克服晶体均匀性差造成的影响,我们提出短脉冲极化电流技术来消除极化电流的热效应.使用脉冲宽度为 10ms,脉冲周期为 110ms 的外加电场对样品进行了极化.由于脉冲电场的占空比远小于 1,使极化电流的热效应得到了有效弛豫,从而使晶体的击穿电场升高.图 2 给出了由短脉冲极化电场得到的样品周期畴结构,(a) 为样品的 +Z 面,(b) 为样品的 -Z 面.可以看出虽然 -Z 面极化光栅不均匀,但极化畴仍贯穿了整个样品的厚度,实现了 1mm 厚的周期极化光栅制备.

掺镁铌酸锂晶体中矫顽场的降低无疑有利于制备厚度大于 0.5mm 的周期极化光栅,进而增大激光的通光孔径提高频率转换效率.孔勇发等人系统分析了镁掺杂对铌酸锂晶体缺陷结构的影响<sup>[9]</sup>,我们据此对掺镁铌酸锂晶体极化矫顽场降低的原因进行了解释.在  $\text{LiNbO}_3$  晶体中掺入镁离子,镁离子首先取代反位铌离子形成  $\text{Mg}_L$ ,电荷补偿由锂空位  $V_{Li}$  完成.当浓度进一步增加,杂质离子在取代反位铌离子的同时还会直接取代正常锂位上的 Li 离子.当掺镁浓度达到 5mol% 时,晶体中所有的反位铌  $\text{Nb}_L$  被取代.从  $\text{LiNbO}_3$  晶体结构图上可以看出,要想实现  $\text{LiNbO}_3$  晶体的铁电畴反转,Li 离子必须通过紧束缚



图 2 掺镁铌酸锂周期极化畴结构,脉冲宽度 10ms,脉冲周期 110ms (a) +z 面 (b) -z 面

Fig.2 Domain structures of periodically poled  $\text{MgO:LiNbO}_3$ , the pulse width is 10ms and pulse period is 110ms. (a) +z side (b) -z side

的氧平面移动到相邻的氧八面体空位上去,对同成份  $\text{LiNbO}_3$  晶体来说,这些反位铌  $\text{Nb}_{\text{Li}}^{4+}$  使氧平面结构更加紧缩,从而使  $\text{Li}$  离子的移动变的更加困难,这就需要更大的动力源. 因此,在晶体极化过程中,必须要有足够大的外电场用来克服氧平面的阻碍才能形成畴反转结构. 在高掺镁  $\text{LiNbO}_3$  晶体中,由于大量镁离子的掺入造成反位铌  $\text{Nb}_{\text{Li}}^{4+}$  缺陷的减少,使其阻碍和束缚  $\text{Li}$  离子移动的能力随之减弱,从而在晶体极化过程中,所需外电场可以大大降低.

## 2 倍频实验及结果

在室温下,用  $1.064\mu\text{m}$  的 Nd:YAG 调 Q 激光器作为基频泵浦源输出,检验了周期极化掺镁铌酸锂晶体的倍频特性. 泵浦源的重复频率为  $19\text{kHz}$ ,脉冲宽度为  $60\text{ns}$ ,倍频光路如图 3 所示. 基频光经透镜聚焦后垂直样品的  $+z$  面入射,使入射光偏振方向沿晶体  $z$  轴方向,倍频相互作用长度为  $10\text{mm}$ . 入射和出射端面进行抛光处理,但未镀增透膜. 仔细调整光路,从另一端得到  $532\text{nm}$  的倍频绿光输出,经过滤光片后,基频光和倍频绿光被分开.

在实验中,移动入射点,发现不同入射点处功率不同,这进一步说明样品的周期畴结构不完全均匀,占空比不是完全一致,掺镁铌酸锂质量和极化工艺仍有待提高. 不断增加基频光功率,倍频绿光也相应增强,图 4 给出了倍频光功率随基频光功率变化的曲线.

从图 4 中可以看出,在输入功率为  $75\text{mW}$  时,得到了  $3.5\text{mW}$  的倍频绿光输出,倍频转换效率为  $4.6\%$ . 同时,倍频光输出稳定,在室温条件下连续工作 5 小时,倍频光输出功率波动小于  $10\%$ . 实验过程中,没有观察到由于光折变效应引起的光斑扭曲现象. 这进一步表明掺镁铌酸锂晶体具有很强的抗光折变能力,从而在室温下即可实现高效率倍频激光输出,使激光器更加简易、便携.

样品的倍频转换效率较低,我们认为主要由以下几点原因造成的:(1) 样品的周期畴结构不是很

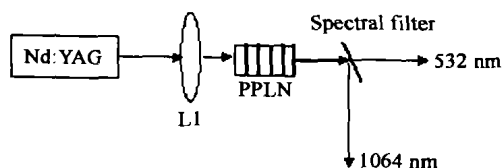


图 3 周期极化掺镁铌酸锂倍频实验装置  
Fig. 3 Experimental arrangement for generation of harmonic green light

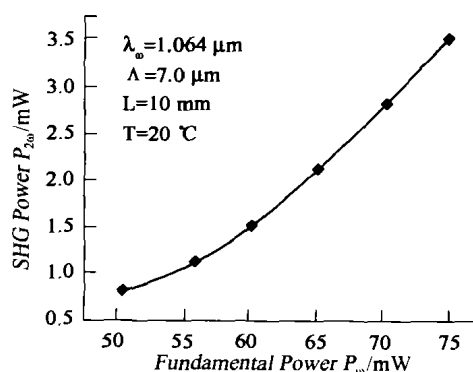


图 4 输出倍频光  $P_{2\omega}$  与基频光功率  $P_{\omega}$  的关系  
Fig. 4 The dependence of SHG power  $P_{2\omega}$  on the fundamental power  $P_{\omega}$

均匀,占空比不完全一致,有一定的偏差.(2) 在整个倍频实验中,各种透镜、分光镜等光学镜组的损耗没有计算在内.(3) 样品的光束入射和出射端面只是进行了简单的抛光处理,没有镀膜,因此存在着较强的光反射损耗. 如果给样品镀增透膜,倍频转换效率会进一步提高. 同时基频光重复率高,峰值功率低也是一个重要原因.

## 3 结论

本文通过施加  $3\text{kV/mm}$  的脉冲电场,成功地制备了厚度为  $1\text{mm}$ ,光栅周期为  $7.0\mu\text{m}$  的周期极化掺镁铌酸锂晶体. 并根据镁掺杂对铌酸锂晶体本征缺陷的影响,解释了高掺镁铌酸锂晶体周期极化畴场降低的原因. 在室温下,用  $1.064\mu\text{m}$  的 Nd:YAG 调 Q 激光器作为基频泵浦源对其进行了倍频实验,在输入功率为  $75\text{mW}$  时,得到  $3.5\text{mW}$  的  $532\text{nm}$  倍频绿光输出,倍频转换效率为  $4.6\%$ .

## REFERENCES

- [1] Aric A, Rosenman G, Mahal V, et al. Green and ultraviolet quasi-phase-matched second harmonic generation in bulk periodically-poled  $\text{KTiOPO}_4$  [J]. *Opt. Comm.*, 1997, **142**: 265—268.
- [2] Myers L E, Eckardt R C, Fejer M M, et al. Quasi-phase-matched optical parametric oscillators in bulk periodically poled  $\text{LiNbO}_3$  [J]. *J. Opt. Soc. Am. B*, 1995, **12**: 2102—2116.
- [3] Mizuuchi K, Yamamoto K. Harmonic blue light generation in bulk periodically poled  $\text{LiTaO}_3$  [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 1995, **66**: 2943—2945.
- [4] Zhong Gi-Guo, Jin Jian, Wu Zhong-Kong. Measure of optically induced refractive index damage of lithium niobate doped with different concentration of  $\text{MgO}$  [J]. *In Proceeding of 11<sup>th</sup> International Quantum Electronic Conference*, *IEEE*, 1980, **80**: 631.
- [5] Mizuuchi K, Sugita T, Yamamoto K. Efficient 340-nm light

- generation by a ridge-type waveguide in a first-order periodically poled  $\text{MgO}:\text{LiNbO}_3$  [J]. *Opt. Lett.*, 2003, **28**: 1344—1346.
- [6] Mizuuchi K, Morikawa A, Sugita T, *et al.* Generation of 360-nm ultraviolet light in first-order periodically poled bulk  $\text{MgO}:\text{LiNbO}_3$  [J]. *Opt. Lett.*, 2003, **28**: 935—937.
- [7] Yao Jiang-Hong, Chen Ya-Hui, Deng Hao-Liang, *et al.* Study on periodically polarization characteristics of near stoichiometric  $\text{MgO}$ -doped  $\text{LiNbO}_3$  crystal [J]. *J. Infrared Millim. Waves* (姚江宏, 陈亚辉, 邓浩亮, 等. 近化学计量比掺镁铌酸锂晶体周期极化特性研究. *红外与毫米波学报*), 2003, **22**: 35—39.
- [8] Mizuuchi K, Yamamoto K, Kato M. Harmonic blue light generation in bulk periodically poled  $\text{MgO}:\text{LiNbO}_3$  [J]. *Electron. Lett.*, 1996, **32**: 2091—2092.
- [9] Kong Yong-Fa, Li Bing, Chen Yun-Lin, *et al.* Study on the micro-mechanism of  $\text{Mg}$ -doped lithium niobate crystals against photorefractive [J]. *J. Infrared Millim. Waves* (孔勇发, 李兵, 陈云琳, 等. 掺镁铌酸锂晶体抗光折变微观机理研究. *红外与毫米波学报*), 2003, **22**: 40—44.

## 新书快讯

### 窄禁带半导体物理学

褚君浩 著, 中国科学院上海技术物理研究所

7-03-014414-7/0. 2093 2005. 4 精装 956 页 120 元

本书主要介绍窄禁带半导体物理学的实验和理论体系, 包括窄禁带半导体材料物理和器件物理. 窄禁带半导体物理学是半导体科学的分支学科, 服从半导体科学的一般规律, 而“窄禁带”的特征又使半导体科学更为丰富多彩. 它也是红外光电子科学的重要组成部分, 窄禁带半导体是当代最重要的红外材料, 用于研制多种类型的红外器件, 从而支撑着现代红外科学技术.

本书以半导体物理研究为线条, 阐述窄禁带半导体的一般科学规律, 并结合国际国内在该领域的主要研究成果, 包括作者在内的我国科学家的研究成果. 本书既有学科体系知识的阐述, 又有如何发现规律的实验和理论方法的介绍; 既论述窄禁带半导体晶体生长及其各种物理特性和基本规律, 又介绍多种红外器件的原理. 本书将陪伴你深入窄禁带半导体物理学领域, 走进红外科学世界的大门, 架起通往科学规律探索和红外器件研制的桥梁.

本书可供从事红外物理与技术研究的科技人员参考, 也可供从事固体物理、半导体物理研究和教学的教师以及相关专业的研究生参考.

### 相关书目

半导体光谱和光学性质(第二版)	沈学础	著	7-03-002696-9	精装	784 页	88 元
半导体量子器件物理	傅英, 陆卫	著	7-03-013628-4	精装	348 页	50 元
甚短距离光传输技术	陈弘达, 左超	著	7-03-014101-6	平装	248 页	40 元