文章编号:0258-7025(2001)07-0591-04

# 周期性极化准位相匹配铌酸锂波导中 二次谐波的产生\*

陈险峰 谢绳武 夏宇兴 陈玉萍 陈英礼

(上海交通大学应用物理系 光学与光子学研究所 局域光纤通信网与新型光通信系统国家重点实验室 上海 200030)

提要 报道了基波波长为 1300 nm 的准位相匹配铌酸锂质子交换波导倍频器的实验研制,在钛扩散周期性畴反转 铌酸锂波导中观测到转换效率为 22% 的二次谐波的产生。 关键词 准位相匹配,二次谐波,质子交换波导,铌酸锂 中图分类号 0 437 文献标识码 A

## Experimental Study of Quai-phase-matched Second Harmonic Generation in Annealed Proton-exchanged Lithiun Niobate Waveguides

CHEN Xian-feng XIE Sheng-wu XIA Yu-xing CHEN Yu-ping CHEN Ying-li

(Institute of Optics and Photonics, Department of Applied Physics, National Laboratory on Local Fiber-Optical Communication Networks and Advanced Optical Communication Systems, Shanghai Jiaotong University, Shanghai 200030)

Abstract In this paper, a quai-phase-matched second harmonic generation (SHG) is reported in proton-exchanged lithium niobate waveguide with the fundamental wavelength 1300 nm. 22% SHG efficiency was observed from the periodically-poled waveguide with domain inversion by Ti-indiffusion.

Key words quai-phase-matched, second harmonic generation, proton-exchanged waveguides, lithium niobate

## 1 引 言

许多商业应用,如固体激光器、光纤通信、激光 扫描、信息存储和小型激光视盘等,需要运行在蓝绿 光或更短波长光谱中的低成本的小型激光器,研制 如Ⅱ-Ⅶ族半导体激光器是一种直接的方法,但到目 前为止商业化前景还没有明朗;另一方法是利用已 有的激光器(如Ⅲ-Ⅴ族半导体激光器)进行倍频同 样达到短波长输出<sup>[1]</sup>。后者需要高倍频转换效率的 非线性光学晶体,发展这样的材料常常是长时间高 成本的工作。所以,人们的注意力集中在一些已很 成熟的材料,如铌酸锂晶体。利用铌酸锂晶体的双 折射匹配实现倍频过程受到倍频短波段限制(550 nm),也不能利用晶体本身的最大非线性系数 d<sub>33</sub>。

\* 上海市科学技术发展基金、上海市重点学科基金和上海市教委青年科学基金资助项目。

收稿日期 2000-03-22; 收到修改稿日期 2000-04-29

位相失配情况下,基波和倍频光之间的位相偏移将 导致倍频光周期性振荡而不是持续增加,这个周期 性长度称为相干长度。如果在倍频光开始减少之 前,改变晶体本身的结构以改变位相的符号,倍频光 作用长度将是晶体长度,这就是所谓准位相匹配 (QPM)技术<sup>[2,3]</sup>,即,以相干长度的偶数倍周期性改 变晶体的畴自发极化方向。与体介质相比,波导把 光束限制在很小的范围内,中等功率的激光束在波 导内就可产生很高的功率密度,因而可以获得很高 的倍频转换效率<sup>[4,5]</sup>。质子交换技术使铌酸锂晶体 表面寻常折射率增加,导波层与基板折射率差远大 于钛扩散形成的波导,而且抗光损伤能力增加<sup>[6]</sup>。

本文研制了基波波长为 1300 nm 的准位相匹配 铌酸锂质子交换波导倍频器,利用居里点附近的钛 扩散方法实现了周期性畴反转结构,在退火质子交 换波导结构中观测到转换效率为 22% 的二次谐波 的产生。

#### 2 理论分析

在波导中,描述基波和二次谐波的波动方程 为<sup>[7]</sup>

$$\nabla^2 \vec{E} = \mu_0 \varepsilon \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} + \mu_0 \frac{\partial^2 \vec{P}_{\rm NL}}{\partial t^2} \qquad (1)$$

其中基波和二次谐波是沿 x 方向传播的谐波

 $E_{\omega}(x , y , z , t) = E_{\omega}(x , y , z) \exp[i(\omega t - \beta_{\omega} x)] (2)$   $E_{2\omega}(x , y , z , t) = E_{2\omega}(x , y , z) \exp[i(2\omega t - \beta_{2\omega} x)] (3)$ 

二次谐波极化的极化强度为

$$P_{2\omega} = 2\varepsilon_0 d_{33} (x, y, z) E_{\omega} E_{\omega}$$
 (4)

把(2)~(4)式代入(1)式,在慢变振幅近似下,二次 谐波复振幅  $E_{2\omega}(x,y,z)$ 随传输距离的演化可以描 写为

$$\frac{\partial E_{2\omega}(x,y,z)}{\partial x} = \frac{-4i\mu_0\varepsilon_0\omega^2}{\beta_{2\omega}}d_{33}(x,y,z) \times$$

 $E_{\omega}^{2}(x,y,z) \exp[-i(2\beta_{\omega} - \beta_{2\omega})x]$  (5) 在小信号近似下,把复振幅  $E_{\omega}(x,y,z)$ 和  $E_{2\omega}(x,y,z)$ 写成

$$E_{\omega}(x,y,z) = A_{0,\omega}F_{\omega}(y)G_{\omega}(z) \qquad (6)$$

 $E_{2\omega}(x, y, z) = A_{2\omega}(x)F_{2\omega}(y)G_{2\omega}(z)$  (7) 其中 *F*,*G*分别为沿 $_{y}$ 和 $_{z}$ 方向的归一化波导的导模 场分布, $A_{2\omega}(0) = 0$ 。

$$\int_{-\infty}^{+\infty} F_{\omega(2\omega)}(y) F_{\omega(2\omega)}^{*}(y) dy = 1$$
 (8)

$$\int_{-\infty}^{+\infty} G_{\omega(2\omega)}(z) F_{\omega(2\omega)}^{*}(z) dz = 1$$
 (9)

把(6)~(9)式代入(5)式,并对整个作用长度 *L*进 行积分,则二次谐波振幅为

$$A_{2\omega}(L) = -iB \int_0^L I(x) \exp(i\Delta\beta x) dx \qquad (10)$$

$$B = \frac{2\omega}{N_{2\omega}c} A_{\omega}^2(0) \left[ \int_{-\infty}^{\infty} F_{\omega}^2(y) F_{2\omega}^*(y) dy \right]$$
(11)

$$I(x) = \int_{-\infty}^{\infty} d_{33}(x,z) G_{\omega}^{2}(z) G_{2\omega}^{*}(z) dz \quad (12)$$

把非线性系数项  $d_{35}(x,z)$ 按畴反转光栅周期  $\Lambda \Delta \beta$ = mk,  $m = \frac{1}{d_{35}^2} (x,z) k = \sum_{z=0}^{\infty} 2\pi (\Lambda) k = 0$ 由(10)~(13)式,可以得到二次谐波的转换效率是

$$\eta = \frac{P_0^{2\omega}}{P_0^{\omega}} = \frac{16\pi^2 L^2 P_{\omega}^2}{N_{\omega}^2 N_{2\omega} \varepsilon_0 \lambda_{\omega}^2} \left[ \int_{-\infty}^{\infty} F_{\omega}^2(y) F_{2\omega}^*(y) \mathrm{d}y \right] \times \left[ \int_{-\infty}^{\infty} d_m(z) G_{\omega}^2(z) G_{\omega}^*(z) \mathrm{d}z \right]$$
(14.)

其中  $P_0^{2\omega}$  和  $P_0^{\omega}$  分别是 m = 0基模的谐波和基波的 功率 L 是晶体作用长度。一般来说 ,由于波导尺寸 很小,则光束可以限制在很小的范围内,所以可获得 很高的转换效率(14)中最右一项是影响转换效率 主要原因,即,二次谐波的转换效率取决于基波、二 次谐波导模场和畴反转结构的傅里叶分量的重叠积 分。d<sub>n</sub>(z)由(13)式的逆傅里叶变换决定

$$d_m(z) = \frac{1}{\Lambda} \int_0^{\Lambda} d(x \, z) \exp(-imkx) dx \quad (15)$$

### 3 准位相匹配二次谐波的观测

铌酸锂质子交换倍频器的制作包括 Z-切割 LiNbO<sub>3</sub> 样品的准备、钛扩散形成畴反转及质子交换 和退火过程。

铌酸锂的钛扩散方法常用于制作条波导,工作 温度在接近居里温度下,钛扩散会导致畴反转的产 生 畴反转的形状是三角形结构<sup>8]</sup>。在制备铌酸锂 波导倍频器时 我们采用了钛扩散方法实现畴反转。 与其他方法,如电场极化、质子交换等相比,这种方 法对于波导倍频器有其独特的优点 从工艺来说 钛 扩散方法是制作铌酸锂波导器件最成熟的一种方 法 钛扩散畴反转的形状(包括畴反转周期、畴反转 深度和掩埋深度)与钛扩散的条件有关,对钛扩散过 程的表征 即钛扩散的温度、时间及金属钛条的长度 和宽度与畴反转的关系,可以优化畴反转结构,以适 应二次谐波的产生;二次谐波转换效率与基波、谐波 模场分布以及畴反转结构的傅里叶分量的重叠积分 成正比。钛扩散畴反转为三角形状,它的傅里叶分 量  $d_{m}(z) = (2/m\pi) \sin(m\pi z/D') D = 1/\Lambda$ ,为光 栅的占空比。

为了使二次谐波转换效率达到最优化,作为倍频器的质子交换波导具有以下要求(1)该波导在抽运波长附近 1.3  $\mu$ m 处是单模波导。(2)波导折射率的半宽为 2.9  $\mu$ m。这与钛扩散畴反转深度 2~4  $\mu$ m<sup>[9]</sup>吻合,根据(14)和(15)式。畴反转结构的傅里叶分量  $d_m(z)$ 与基波场和谐波场之间的重叠积分最大。

1%质量浓度的苯酸锂的苯甲酸溶液作为铌酸 锂质子交换的质子源,在190℃交换温度下交换2 h,然后在温度350℃下退火2<sup>1f9]</sup>。畴反转周期由下 式给出

$$\Lambda_n = n\Lambda = 2nl_c = \frac{n\lambda_F}{\chi N_{2\omega} - N_{\omega}}$$
(16)

其中 n 为畴反转阶数。 $TM^0_{\omega} \rightarrow TM^0_{2\omega}$ 和  $TM^1_{\omega} \rightarrow TM^1_{2\omega}$ 转换的畴反转周期分别为 11.34  $\mu$ m 和 12.16  $\mu$ m 利

用此畴反转周期数据制备出光刻掩模版。

Z-切割 LiNbO<sub>3</sub> 样品尺寸为 10 mm × 5 mm ,+ Z表 面仔细抛光 ,利用电子束蒸发镀钛 ,钛条厚度为 10 nm。光刻复制掩膜版图案后 ,用 1%稀释的 HF 水溶 液腐蚀法得到钛条图案 ;钛扩散畴反转在温度 1100℃下进行 ,加 LiNbO<sub>3</sub> 粉末和通入氧气防止二氧 化锂的外扩散 ;把样品放入 190℃温度下 1% 质量浓 度的苯酸锂的苯甲酸溶液交换 2 h ,然后在 350℃温 度下退火 2 h。最后清洗样品并进行端面抛光。

图 1 为测量倍频器二次谐波产生的实验装置示 意图。所用的激光器为 YAG 锁模激光器抽运参量 振荡器 输出波长可调。脉宽大约 200 ps ,脉冲重复 频率 82 MHz。输入端用端面耦合 ,输出端用金红石 棱镜耦合输出 ,基波和谐波的输出角度不同 ,在空间 上倍频光和基波光分离 ,分离角度超过 20° ,如图 2 所示 ,观测到二次谐波红光 m 线的输出。用能量探 测器探测输出光的脉冲能量。从照片中可以看到倍 频光的 m 线有两条 ,分别对应于 TM<sub>0</sub> 模和 TM<sub>1</sub> 模。 左面一条是 TM<sub>0</sub> 模 ,它的强度远大于 TM<sub>1</sub> 模 ,这是 由于抽运光基模场与谐波场的基模场重叠积分大于 与谐波场的高阶模场之间的重叠积分。





Fig.1 QPM SHG experimental setup

当最大输入能量为 62.5 mJ 时,从棱镜耦合输 出的基波和二次谐波能量分别为 7.7 mJ 和 1.7 mJ, 转换效率为 22%。

当抽运波长改变时,位相失配不能由畴反转光 栅矢量抵消。转换效率由(14)式给出。它随波长的 变化由 sinc<sup>2</sup> 函数描述。我们测量了二次谐波转换 效率随抽运波长的变化,见图 3 中黑点,实线为用 (14)式计算出来的归一化结果,图中坐标为相对值。 结果与实验较好地吻合,其中的误差是由于实际的 倍频转换效率较大,不满足理论的小信号近似结果。 制备的准位相匹配倍频器的波长带宽为 3 nm,根据 (14)式,倍频器件的有效长度为 7 mm。图中的转换 效率最大对应的波长是 1300 nm,与设计一致。



图 2 质子交换波导中准位相匹配二次谐波 m 线照片

Fig. 2 Picture of QPM SHG m- lines from PE waveguide



图 3 二次谐波转换效率与抽运波长的关系 Fig.3 SHG efficiency as a function of pump wavelength

除了倍频光输出外,还观测到很明显的波长为 0.43 µm 的三倍频蓝光输出。可能是由于级联效应,即基 频和产生的倍频光提高和频作用产生三倍频光。

#### 4 结 论

从质子交换波导退火过程的研究结果出发,设 计了准位相匹配光栅周期,分别用钛扩散方法实现 了周期性畴反转和质子交换方法制作了波导。实验 中观测到 22%转换效率的倍频光产生。对于转换 效率与抽运波长关系的测量与理论预测很好地吻 合 结果显示铌酸锂质子交换波导准位相匹配倍频 过程获得有效短波长相干光源的可行性。

#### 参考文献

- 1 N. Bloebergen. Nonlinear Optics. New York : Benjamin , 1965
- 2 J. S. Armstrong, N. Bloebergenm, J. Ducuing *et al.*. Interactions between light wavess in nonlinear dielectric. *Phys. Rev.*, 1962, **127** :1918 ~ 1939
- 3 J. D. McMullen. Optical parametric interactions in isotropic materials using a phase-corrected stack of nonlinear dielectric plates. J. Appl. Phys., 1975, 46 (7) 3076 ~ 3081
- 4 Y. Ishigame, T. Suhara, H. Nishihara. LiNbO3 waveguide

Ħ

激 中 Ξ

光

second harmonic generation device phase matched with a fan-out domain-inverted grating. Opt. Lett., 1991, 16 375 ~ 377 5 E. J. Lim, M. M. Fejer, R. L. Byer. Second harmonic generation of green light in periodically poled planar lithium niobate waveguide. *Electron*. *Lett*. , 1989 , 25 :174 ~ 175

- 6 J. L. Jackel. Proton exchange : past, present, and future. SPIE, 1991, 1583 54~63
- 7 T. Isoshima, K. tada. Local Normal-mode analysis of second harmonic generation in a periodic waveguide. IEEE J.

Quantum Electron., 1997, 33:164 ~ 175

- 8 X. Cao, R. Srivastava, R. V. Ramaswamy. Efficient quasiphase matched blue second-harmonic generation in LiNbO<sub>3</sub> channel waveguides by a second-order grating. Opt. Lett. 1992, 17 592 ~ 594
- Chen Xianfeng, Xie Shengwu, Xia Yuxing et al.. Theoritical 9 modeling and characterization of annealed proton-exchanged planar waveguides in Z-cut LiNbO<sub>3</sub>. Chinese J. Lasers (中国 激光),2000,A27(7),611~615(in Chinese)