

# Nd:Mg:LiNbO<sub>3</sub> 单晶光学特性 的初步研究\*

孟宪林 邵宗书 孙友轩 杨兆荷  
(山东大学晶体材料研究所, 济南 250100)

刘恩泉 孙瑜铭  
(山东大学光学系, 济南 250100)

## 提 要

本文对 Nd:Mg:LiNbO<sub>3</sub> 单晶的透射光谱、光学均匀性、抗光折变特性、倍频与自倍频特性进行了初步研究。报道了染料激光泵浦的 Nd:Mg:LiNbO<sub>3</sub> 自倍频激光实验, 实现了非临界位相匹配下的自倍频运转, 获得了波长为 542.2 nm 的二次谐波输出。

关键词: Nd:Mg:LiNbO<sub>3</sub> 单晶, 光学特性, 自倍频。

## 一、引 言

掺钕铌酸锂 (Nd:LiNbO<sub>3</sub> 或 Nd:LN) 晶体集 LiNbO<sub>3</sub> 优良的电光与非线性光学特性和 Nd<sup>3+</sup> 理想的激光特性于一身, 有希望用于制作结构简单紧凑的自倍频激光器, 自 Q 开关和自调制激光器, 曾引起了人们的关注。但是, 这种材料光折变阈值低的弱点使得器件的研究与应用工作难以进展。

仲跻国等人<sup>[1,2]</sup>通过向 LiNbO<sub>3</sub> 内高掺镁的方法有效地解决了晶体的光折变问题, 致使国内外学者对镁、钕双掺的铌酸锂 (Nd:Mg:LiNbO<sub>3</sub> 或 Nd:Mg:LN) 单晶及其器件的研究产生了极大兴趣, 并开展了一些研究工作<sup>[3~6]</sup>。

作者用自己生长的 Nd:Mg:LN 晶体在国内首先实现了激光自倍频运转<sup>[7]</sup>。本文报道对晶体的光谱、光学均匀性、抗光折变性能以及激光自倍频特性进行的测试和研究的初步结果。

## 二、实验与结果

### 1. 样品制备

以高纯 Li<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>, Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>, MgO 和 Nd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 为原料, 采用射频加热的恰克拉斯基 (Czochralski) 技术从铂坩埚中生长所用的 Nd:Mg:LN 晶体。掺 MgO 量为 3~9 mol%, 掺 Nd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 量为 0.25~1.2 mol%。

用于光谱实验的晶体样品沿  $x$  方向透光, 样品厚度 1~3 cm。将相应的两  $x$  面定向并抛光。用于光学均匀性和光折变阈值测试的晶体样品需抛光两  $y$  和两  $z$  四个面。定向偏差小于

收稿日期: 1991年5月27日; 收到修改稿日期: 1991年8月5日

\* 本工作得到国家“863”计划基金的资助。

3', 晶面平行度误差小于 20", 平面度小于  $\lambda/4$ , 表面光洁度为 40 $\times$  显微镜下观察不到划痕和麻坑。

用于自倍频实验的样品尺寸为  $x \times y \times z = 4 \times 7 \times 5$  mm。泵浦光垂直于  $y$  轴射入晶体, 自倍频激光沿  $y$  方向输出。将两  $y$  面严格定向、抛光(要求同光学均匀性测试样品)之后镀对波长 1084 nm 和 542 nm 光的双增透膜。泵浦光入射面仅要求高表面光洁度。

## 2. 透射光谱

测量晶体透射光谱的主要目的在于确定其透光波段、主要吸收峰波长与半宽度以及 Nd<sup>3+</sup> 浓度对吸收峰波长的影响, 为自倍频实验用泵浦源的选择提供精确的实验依据。

用日本产 HITACHI-340 型紫外-可见-近红外记录式分光光度计测量了十种不同掺钕量的 Nd:Mg:LN 样品对  $\sigma$  偏振光( $E \perp z$ )、 $\pi$  偏振光( $E \parallel z$ )和非偏振光的透射光谱。光谱波长范围为 200~2600 nm。实验结果表明:

(1) 对波长小于 360 nm 的光波晶体是不透明的; 450~2600 nm 为晶体透明区, 但有七个明显的吸收峰, 其中最重要的在 500~840 nm 波段区间之内。

(2) 两种偏振光的透射光谱曲线形状大致相近, 但细节有若干不同。总体看,  $\pi$  偏振光透过率普遍高于相应波长  $\sigma$  偏振光透光率。有代表性的光谱曲线示于图 1(样品未镀增透膜)。

由图 1 可以看出, 存在三个透过率很低的主要吸收峰, 其特征应为选择泵浦源的依据。对  $\sigma$  偏振光, 该三吸收峰波长分别为 595, 753 和 810 nm, 透过率分别为 1.3%, 7.5% 和 9%, 考虑到晶面反射因素和样品尺寸, 换算成单位长度的吸收系数分别为 2.16, 1.23 和 1.12 cm<sup>-1</sup>。三个峰半宽度相近, 约 30 nm。

对  $\pi$  偏振光, 第一吸收峰峰端处分成两个小峰, 波长分别为 589 和 596 nm, 吸收系数大致相等, 为 1.07 cm<sup>-1</sup>; 另外两主要吸收峰波长分别为 753 和 817 nm, 吸收系数分别为 0.76 和 1.18 cm<sup>-1</sup>。这三个峰的半宽度有些差异, 分别为 20, 27 和 16 nm。

非偏振光的光谱曲线形状介于两种偏振光光谱曲线之间, 测得主要吸收峰波长分别为 598, 753 和 813 nm。

(3) 掺钕浓度与主要吸收峰波长关系的实验结果如表 1 所示。从该表可知, 不同掺钕浓度 Nd:Mg:LN 晶体的主要吸收峰波长相差  $\pm 1$  nm, 在光谱图分辨误差范围之内。可以认为晶体吸收峰波长与其含钕量无关, 故选择泵浦源时不必考虑激活离子浓度的差异。

## 3. 光学均匀性

用正交偏光干涉光强自动扫描法测量了晶体的光学均匀性。这种方法的测量装置和基本原理如文献[8]所述。测量了若干不同掺钕掺镁量晶体的光学均匀性(通光方向平行于  $y$  轴), 其有代表性的测试结果示于表 2。由表 2 看出, 在样品扫描面积相当大的范围内, 晶体双折射率梯度达  $10^{-6} \sim 10^{-5}$  数量级, 说明晶体光学均匀性优良。如后面实验所证明的那

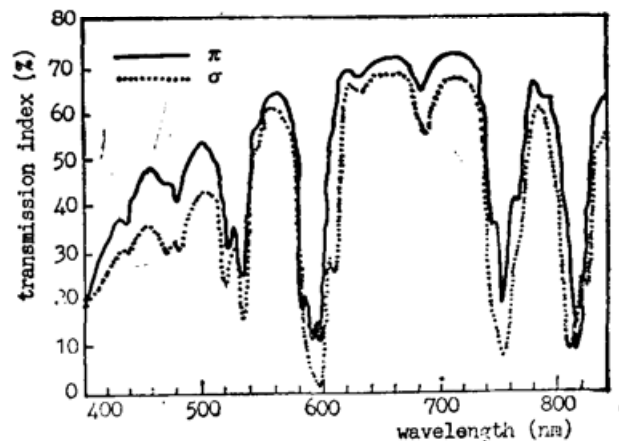


Fig. 1 Transmission spectrum for the Nd:Mg:LN crystal sample with 1.89 cm thick

Table 1 The relationship between Nd cocentration and wavelength of main peaks for Nd:Mg:LN crystal

No.	Nd concen- tration (atm%)	Wavelength for $\sigma$ polarization (nm)			Wavelength for $\pi$ polarization (nm)		
		peak 1	peak 2	peak 3	peak 1	peak 2	peak 3
1	1.0	594	753	809	590, 597	754	816
2	1.2	596	754	810	589, 597	754	816
3	1.4	595	753	809	589, 596	754	816
4	1.5	595	754	810	589, 596	754	817
5	1.6	594	753	809	589, 597	754	817
6	1.7	594	753	810	589, 597	754	816
7	1.8	594	753	809	589, 596	754	816
8	2.0	595	753	810	589, 596	753	816
9	2.2	594	753	809	589, 597	753	815
10	2.4	594	753	809	589, 596	753	815

Table 2 Optical homogeneity of Nd:Mg:LN crystal

No.	1	2	3
Composition	$\text{Nd}_{0.01}\text{Mg}_{0.05}(\text{LN})_{0.95}$	$\text{Nd}_{0.016}\text{Mg}_{0.05}(\text{LN})_{0.95}$	$\text{Nd}_{0.005}\text{Mg}_{0.07}(\text{LN})_{0.93}$
Sample size (mm)	13.2×11.8×31.0	18~24×11.3×28.3	24.6×18.5×10.3
$\frac{\Delta(n_e - n_o)}{\Delta x}$ ( $\text{cm}^{-1}$ )	$1 \sim 8 \times 10^{-5}$	$0.4 \sim 5 \times 10^{-5}$	$1 \sim 6 \times 10^{-5}$

样, 在这种晶体内完全能够实现激光振荡和自倍频运转。

#### 4. 抗光折变特性

用光斑畸变法测量晶体的抗光折变性能。其基本原理是用经过聚焦的激光束辐照晶体样品, 将透过晶体的激光扩束并投影到观察屏上。比较通过晶体与不通过晶体激光束在屏上投影光斑的形状, 并根据晶体内激光束的能量密度来确定晶体抗光折变性能的优劣。使用检验光波长尽量接近于被测晶体自倍频光波长。对不同掺杂晶体进行有代表性的测量结果如表 3 所列。

Table 3 Photorefractive threshold of Nd:Mg:LN crystal

No.		1	2	3	4
Composition		$\text{Nd}_{0.01}\text{Mg}_{0.05}(\text{LN})_{0.95}$	$\text{Nd}_{0.016}\text{Mg}_{0.05}(\text{LN})_{0.95}$	$\text{Nd}_{0.005}\text{Mg}_{0.07}(\text{LN})_{0.93}$	$\text{Nd}_{0.019}\text{Mg}_{0.05}(\text{LN})_{0.95}$
Photorefractive threshold ( $\text{W}/\text{cm}^2$ )	Ar <sup>+</sup> laser (514.5 nm)	$>4 \times 10^5$	$>4 \times 10^5$	$>4 \times 10^5$	$>4 \times 10^5$
	Nd: YAG laser (532 nm)	$>10^8$	$>10^8$	$>10^8$	$>10^8$

表 3 中所写光折变阈值大于某值是指晶体样品在光能量密度为该值的激光束辐照下, 观察屏上的光斑无任何畸变。更高能量密度的实验因受激光光源功率的限制尚未进行。

表 3 所列数据说明 Nd:Mg:LN 晶体具有相当好的抗光折变特性, 完全能满足制作微型激光器件的要求。后面自倍频实验中输出方向性良好的二次谐波就是一有力证明。

### 5. 倍频相匹配温度测量

采取控制晶体温度的方式实现非临界位相匹配。用 Nd:YAG 激光器产生的波长 1064 nm 激光束沿晶体  $y$  轴方向照射置于恒温室中的 Nd:Mg:LN 样品, 用能量计检测穿过晶体又被滤掉基波的二次谐波能量。调节温度使二次谐波能量达到最大值。此时相应的样品温度即为其非临界位相匹配温度  $T_{pm}$ 。表 4 列出了 Nd<sub>0.019</sub>Mg<sub>0.05</sub>(LN)<sub>0.95</sub> 晶体样品的实验数据。

Table 4 The relationship between frequency-doubling energy and temperature for Nd<sub>0.019</sub>Mg<sub>0.05</sub>(LN)<sub>0.95</sub> crystal (fundamental wavelength: 1064 nm)

Temperature(°C)	20	60	95	98	99	100	100.4	100.9	101.5	102	110	140	165
SHG energy(μJ)	18	25	102	250	1238	4822	5537	3036	1250	714	54	36	18

由表 4 可知, 对波长 1064 nm 的基频光, 该样品的  $T_{pm}=100.4^{\circ}\text{C}$ 。在 99~101.5°C 温度区间, 二次谐波(SHG)也有较高能量。

用相同方法测得 Nd<sub>0.01</sub>Mg<sub>0.05</sub>(LN)<sub>0.95</sub> 样品的  $T_{pm}=103^{\circ}\text{C}$ ; Nd<sub>0.01</sub>Mg<sub>0.075</sub>(LN)<sub>0.925</sub> 样品的  $T_{pm}=42^{\circ}\text{C}$ 。由此可见, Nd:Mg:LN 晶体的非临界位相匹配温度与晶体掺镁浓度关系密切, 而对其掺镁量不太敏感。

### 6. 自倍频实验

#### (1) 实验装置

仍采用控制晶体温度的方式来实现非临界位相匹配。实验装置如图 2 所示。

用法国产 Datachrom-5000 型可调谐脉冲染料激光器(脉宽 10 ns)作泵浦源, 采用侧向沿晶体  $z$  或  $x$  方向辐照晶体样品, 产生的倍频光沿  $y$  方向输出。

#### (2) 泵浦光的选择

根据前面测定的 Nd:Mg:LN 晶体的透射光谱, 选用第一吸收峰波长附近的相应染料进行泵浦实验。恒定样品温度改变泵浦光波长并同时测量二次谐波能量, 根据其最大值确定相应的泵浦光波长。测量结果如下:

(a) 泵浦光束平行于  $z$  轴方向入射时, 其偏振方向垂直于  $z$  轴( $\sigma$  偏振), 合适的泵浦光波长为  $598.6 \pm 2$  nm;

(b) 泵浦光束平行于  $x$  轴方向入射时, 其偏振方向平行于  $z$  轴( $\pi$  偏振), 合适的泵浦光波长有两个, 分别为 590 nm 和 597 nm。

考虑到  $\pi$  偏振光可能导致晶体光折变而  $\sigma$  偏振光无此效应, 故选用波长 598 nm 附近

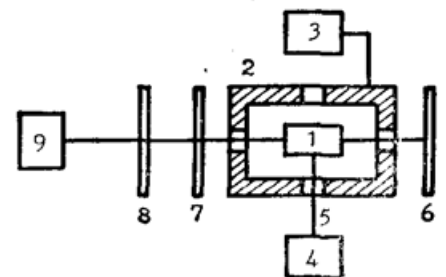


Fig. 2 Schematic diagram of Nd:Mg:LN crystal laser experimental arrangement  
1—Nd:Mg:LN crystal sample, 2—thermostat, 3—auto-control temperature system, 4—dye laser, 5—pumping light beam, 6, 7—reflective mirror, 8—color filter, 9—detector

的  $\sigma$  偏振光作泵浦光最合适。

### (3) 倍频光波长的测量

将图 2 中能量计 9 改为已标定的单色仪, 其他装置不变即可用来测定倍频光波长。对不同 Nd:Mg:LN 样品的自倍频绿光波长进行了测量, 结果均为 542.2 nm。由此推知  $\sigma$  偏振的基频光波长为 1084.4 nm。

### (4) 相匹配温度的测量

用图 2 所示装置测量了  $\text{Nd}_{0.019}\text{Mg}_{0.05}(\text{LN})_{0.95}$  晶体样品的非临界位相匹配温度。泵浦光能量为 37 mJ, 光束截面积约  $0.1 \text{ cm}^2$ 。实验数据列于表 5。表 5 数据表明, 该晶体自倍频相匹配温度为  $150^\circ\text{C}$  (基频光波长 1084.4 nm), 而同一样品对 1064 nm 波长的相匹配温度为  $100.4^\circ\text{C}$  (表 4), 两种基频光波长只差 20 nm, 相匹配温度却差近  $50^\circ\text{C}$ , 可见其  $T_{pm}$  对基频光波长十分敏感。

Table 5 The relationship between self-frequency-doubling energy and temperature for  $\text{Nd}_{0.019}\text{Mg}_{0.05}(\text{LN})_{0.95}$  crystal (Fundamental wavelength: 1084.4 nm)

Temperature ( $^\circ\text{C}$ )	140	148	150	151	152	153
Self-frequency-doubling energy ( $\mu\text{J}$ )	7	12	20	15	12	5

实验表明, 自倍频绿光具有良好的方向性, 这进一步验证了晶体优良的光学性能。

### (5) 泵浦阈值能量密度的估计

实验在图 2 所示装置上进行。泵浦光能量为 37 mJ, 去掉反射和透射部分被样品吸收的大约为 30 mJ。光束截面积为  $0.2 \text{ cm}^2$ , 光能量密度约  $150 \text{ mJ}/\text{cm}^2$ 。 $\text{Nd}_{0.019}\text{Mg}_{0.05}(\text{LN})_{0.95}$  晶体样品在室温至  $130^\circ\text{C}$  范围内有明显绿色倍频光产生。高于  $130^\circ\text{C}$ , 绿光闪动不稳, 时隐时现。

再在泵浦光路中加柱面透镜, 使晶体样品上泵浦光截面积压缩至  $0.1 \text{ cm}^2$ , 即光能量密度近  $300 \text{ mJ}/\text{cm}^2$ 。此时从  $130\sim 167^\circ\text{C}$  温度区间内均有自倍频输出。在相匹配温度 ( $150^\circ\text{C}$ ) 时, 测得二次谐波能量为  $20 \mu\text{J}$ 。由此可知, 对  $\text{Nd}_{0.019}\text{Mg}_{0.05}(\text{LN})_{0.95}$  晶体, 产生最强自倍频光的非临界位相匹配条件下泵浦光能量密度阈值当在  $150\sim 300 \text{ mJ}/\text{cm}^2$  之间。

实验表明, 在非匹配的较低温度下出现微弱自倍频绿光的泵浦光能量密度要比上述阈值低得多。

## 三、讨 论

### 1. 关于二次谐波波长

Fan 等<sup>[3]</sup>人根据  $\text{Nd}_{0.01}\text{Mg}_{0.05}(\text{LN})_{0.95}$  晶体样品的荧光光谱计算了基频光波长与有效发射截面的关系, 计算结果表明, 对  $\sigma$  偏振的基频光, 波长 1084 nm 和 1093 nm 处分别对应有有效发射截面的两个峰值。前者对应峰值截面为  $3.7 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$ , 后者为  $5.1 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$ 。所得二次谐波波长为 547 nm, 是 1093 nm 基波 (发射截面最大者) 的倍频结果。

在本实验中,  $\text{Nd}_{0.019}\text{Mg}_{0.05}(\text{LN})_{0.95}$  样品的二次谐波波长为 542 nm, 这意味着基频光波长 1084 nm 处的  $\sigma$  偏振光有最大的有效发射截面。这一推断有待对该晶体样品所作荧光

光谱的进一步证实。与文献[3]所用样品相比,我们晶体掺铈量高一倍左右。改变掺铈量是否能导致发射截面的变化?这也有待进一步研究。

## 2. 关于泵浦方式、泵浦阈值和泵浦光源

实验采用了侧面泵浦,目的在于避免泵浦光对晶体端面增透膜和反射镜介质膜的损伤。因为本工作乃是对所生长之 Nd:Mg:LN 晶体性能的初步研究,如若进一步改善介质膜,使用更合理的谐振腔,采用纵向泵浦并相应改变样品尺寸等,估计自倍频转换效率将得到提高。

致谢:对山东大学刘训民、张爱荣、程瑞平、王瑞华、祝利、常军等同志;南开大学温金珂、李兵等同志;南京大学许自然同志在晶体生长、加工、镀膜和性能测试方面给予的大力协助,作者在此一并致谢。

## 参 考 文 献

- [1] Zhong Giguo *et al.*; *Proc. 11-th Internat. Quant. Electron. Conf., IEEE Cat.* 1980, No. 80 (Jun), CH 1561-0, 631.
- [2] 仲跻国等;《物理学报》,1983, **32**, No. 6 (Jun), 795~798.
- [3] T. Y. Fan *et al.*; *J. O. S. A. (B)*, 1986, **3**, No. 1 (Jan), 140~147.
- [4] A. Cordova-Plaza *et al.*; *IEEE J. Quant. Electron.*, 1987, **QE-23**, No. 2 (Feb), 262~266.
- [5] A. Cordova-Plaza *et al.*; *Opt. Lett.*, 1988, **13**, No. 3 (Mar), 209~211.
- [6] 张曰理等;《中国激光》,1991, **18**, No. 2 (Feb), 117~121.
- [7] 孟宪林等;《科学通报》,1990, **35**, No. 10 (May), 798~799.
- [8] 张杏奎等;《南京大学学报》,1981, **2**, No. 2, 211~218.

## Optical properties of Nd:Mg:LiNbO<sub>3</sub> single crystal

MENG XIANLIN, SHAO ZONGSHU SUN YOUXUAN, YANG ZHAOHE, LIU ENQUAN  
AND SUN YUMING

(*Institute of Crystal Materials, Department of Optics, Shandong University, Jinan, 250100*)

(Received 27 May 1991; revised 5 August 1991)

## Abstract

In this paper, the transmission spectrum, optical homogeneity, resistance of photorefraction, frequency-doubling and self-frequency-doubling properties of Nd:Mg:LiNbO<sub>3</sub> single crystal grown by us have been studied. A Nd:Mg:LiNbO<sub>3</sub> self-frequency-doubled laser pumped by dye laser has been reported. The self-frequency-doubling generation under noncritical phase matching has been realized and the second-harmonic generation with 542.2 nm wavelength has been obtained.

**Key words:** Nd:Mg:LiNbO<sub>3</sub> single crystal, optical properties, self-frequency-doubling.