

文章编号: 0253-2239(2005)01-63-4

准相位匹配周期极化高掺镁铌酸锂 532 nm 倍频 准连续输出研究*

陈云琳¹ 罗勇锋¹ 袁建伟¹ 郭娟¹ 张万林¹ 陈绍林¹ 黄自恒¹
张光寅¹ 张百钢^{2,3} 路洋^{2,3} 丁欣^{2,3} 姚建铨^{2,3}

(¹南开大学物理科学学院, 天津 300071
²天津大学精仪学院激光与光电子研究所, 天津 300072
³南开大学、天津大学联合研究院, 天津 300072)

摘要: 对周期性极化高掺镁铌酸锂倍频过程进行了准相位匹配倍频理论研究。在室温下通过外加电场极化法, 用较低的极化开关电场 ~ 5.5 kV/mm, 在厚为 1 mm、长为 10 mm、宽为 10 mm 的掺镁铌酸锂基片上成功地制备了周期为 5.8~7.3 μm (间隔 0.3 μm)的一阶准相位匹配倍频周期性极化光学微结构。将温度控制在 70 $^{\circ}\text{C}$ 左右, 以波长为 1.064 μm 的 Nd:YAG 激光为基频光源, 对所研制的光学微结构样品进行倍频通光实验验证。当入射基频光为 920 mW 时, 可以获得约 15 mW 的 532 nm 准连续倍频蓝光输出, 其归一化转换效率高达 1.77 %/W。

关键词: 非线性光学; 倍频; 准相位匹配; 周期性极化掺镁铌酸锂

中图分类号: TN24 文献标识码: A

The Research of Quasi-Continuous-Wave Output Quasi-Phase-Matching Second Harmonic Generation at 532 nm in Periodically Poled Heavily-Doped MgO:LiNbO₃

Chen Yunlin¹ Luo Yongfeng¹ Yuan Jianwei¹ Guo Juan¹ Zhang Wanlin¹ Chen Shaolin¹
Huang Ziheng¹ Zhang Guangyin¹ Zhang Baigang^{2,3} Lu Yang^{2,3} Ding Xin^{2,3} Yao Jianquan^{2,3}

(¹Institute of Physics Science, Nankai University, Tianjin 300071
²College of Precision Instrument and Opt-Electronics Engineering, Institute of Laser and Optoelectronics, Tianjin University, Tianjin 300072
³Cooperated Institute of Nankai University and Tianjin University, Tianjin 300072)

Abstract: The double-frequency process based on periodically poled heavily doped MgO:LiNbO₃ is theoretically researched. A first order quasi-phase-matching periodically poled optical micro-structure doped MgO:LiNbO₃ for second harmonic generation with 5.8~7.3 μm period(interval of 0.3 μm), 10 mm length, 10 mm width and 1 mm thickness has been successfully fabricated by applying an external field at room temperature and under ~ 5.5 kV/mm of the lower switching field. Controlling temperature at about 70 $^{\circ}\text{C}$, the experiment on the manufactured optical micro-structure using Nd:YAG laser with wavelength of 1.064 μm as fundamental frequency is carried to validate the double frequency. About 15 mW 532 nm of quasi-continuous-wave double-frequency blue light output is obtained which is pumped by 920 mW of the fundamental power, corresponding to 1.77 %/W normalized conversion efficiency.

Key words: nonlinear optics; double frequency; quasi-phase-matched; periodically poled MgO:LiNbO₃

* 国家自然科学基金(10174040、90101022)、天津市基础重点基金(033800111)、天津市国际合作项目和教育部南开大学、天津大学科技合作基金项目资助课题。

作者简介: 陈云琳(1965~), 女, 北京市人, 博士, 主要从事非线性光学、光电材料和器件方面的研究工作。

E-mail: ylchen@nankai.edu.cn

收稿日期: 2004-02-16; 收到修改稿日期: 2004-04-19

1 引 言

在光子学和光电子学应用中,对蓝绿光源的需求日益增强,绿光和蓝光等短波段光源在海底光通信、光信息存储、光盘的读写、光学信息处理、激光打印和大屏幕显示、激光医疗及检测等方面具有广泛的应用价值。利用 Nd:YAG 激光抽运的倍频器件是获得蓝、绿光小型固体激光器的重要手段,但效率和应用受到材料的常规双折射相位匹配特性的制约,例如坡印廷矢量走离、低非线性系数及相位匹配技术中对温度和角度的要求等。早在 1962 年,Armstrong 等^[1]首次提出了利用非线性极化率在一维空间上周期性调制实现相位匹配的方法,即准相位匹配技术。经过近四十年的发展,目前已在 LiNbO₃^[2,3]、LiTaO₃^[4]及 KTP^[5]等多种材料中实现了周期极化光学微结构,并利用周期极化光学微结构晶体实现了准相位匹配(QPM)。准相位匹配技术可以代替双折射相位匹配补偿相速色散,其优点之一是在材料的光学透明范围内的任意相互作用都能够在一个特定的温度下实现非临界相位匹配,且作用距离长,这是双折射相位匹配所不能达到的;优点之二是可以选择相互作用波使其在最大二阶极化率张量的方向上耦合。在 LiNbO₃ 晶体中,输入基频光和倍频光取同一偏振方向进行准相位匹配,这样可以充分利用 LiNbO₃ 晶体的最大非线性系数 d_{33} ,同双折射相位匹配相比,有效转换效率提高了 $[2d_{33}/(\pi d_{31})]^2$ 约 20 倍。

本文在求解倍频耦合波方程基础上,对准相位匹配周期极化铌酸锂(PPLN)倍频进行了理论研究,并报道了运用外加电场极化法在厚为 1 mm 的 Z 切掺摩尔分数 0.065 镁的铌酸锂上制备周期极化光学微结构。以 1.064 μm 的 Nd:YAG 激光为基频光源,对所研制的掺镁铌酸锂光学微结构进行倍频输出实验研究。入射基频光为 920 mW 时,产生约 15 mW 的 532 nm 的倍频绿光准连续输出,其对应的归一化转换效率为 1.77 %。

2 理论推导

2.1 倍频小信号近似分析

考虑平面波倍频的情况,耦合波方程可以表达为

$$\begin{cases} \frac{\partial E_1(z)}{\partial z} = i \frac{\partial}{\partial z} d_{\text{eff}} E_2 E_1^* \exp(-i\Delta kz), \\ \frac{\partial E_2(z)}{\partial z} = i \frac{\partial}{\partial z} d_{\text{eff}} E_1^2(z) \exp(i\Delta kz), \end{cases} \quad (1)$$

式中 $\Delta k = k_2 - 2k_1$, d_{eff} 为有效非线性系数, ω 为基频

波频率, λ 为基频光波长。在小信号近似条件下,即认为基频光波在相互作用过程中损耗很小,可视为常数。假定晶体长度为 L , 并认为 $z = 0$ 处倍频波强度为零,那么在 $z = L$ 直接积分(1)式的第二项得

$$\int_0^L dE_2(z) = \frac{i\omega}{cn_2} d_{\text{eff}} E_1^2(0) \int_0^L \exp(i\Delta kz) dz, \quad (2)$$

$$E_2(L) = \frac{\omega}{cn_2} d_{\text{eff}} E_1^2(0) \frac{\exp(i\Delta kL) - 1}{\Delta k}, \quad (3)$$

由光强定义 $I_i = \frac{P_i}{A} = \frac{1}{2} n_i c \epsilon_0 |E_i|^2$, 其中 A 为光有效截面积。上式对应的光强可表示为

$$I_2 = \frac{8\pi^2 d_{\text{eff}}^2}{n_1^2 n_2 \lambda^2 c \epsilon_0} I_1^2 L^2 \text{sinc}^2\left(\frac{\Delta kL}{2}\right). \quad (4)$$

倍频转换效率为

$$\eta \equiv \frac{P_2}{P_1} = \frac{8\pi^2 d_{\text{eff}}^2}{n_1^2 n_2 \lambda^2 c \epsilon_0} L^2 \text{sinc}^2\left(\frac{\Delta kL}{2}\right) \frac{P_1}{A}. \quad (5)$$

2.2 聚焦高斯光束倍频分析

在实际的倍频器件中,通常采用聚焦高斯光束。在聚焦高斯光束条件下我们讨论近场小信号近似的情况,这可适用大多数实验条件。假定相互作用过程满足相位匹配,由(1)式中第二个方程积分得

$$E_2(x, y) = \frac{i\omega}{cn_2} d_{\text{eff}} E_1^2(x, y) L. \quad (6)$$

基波高斯光束可表示为

$$E_1(x, y) = E_1 \exp(-r^2/\omega_0^2),$$

ω_0 为基波光腰半径。因此可将倍频波写成

$$E_2(r) = \frac{i\omega}{cn_2} d_{\text{eff}} E_1^2 L \exp(-2r^2/\omega_0^2). \quad (7)$$

倍频光功率为

$$P_2 = \frac{1}{2} \epsilon_0 cn_2 \int_0^{2\pi} \int_0^\infty |E_2(r)|^2 r dr d\phi = \frac{\omega^2 d_{\text{eff}}^2 L^2}{c^3 n_1^2 n_2 \epsilon_0} \frac{P_1^2}{\pi \omega_0^2 / 2}, \quad (8)$$

则聚焦高斯光束在满足相位匹配条件下倍频转换效率的表达式为

$$\eta \equiv \frac{P_2}{P_1} = \frac{8\pi^2 L^2 d_{\text{eff}}^2}{n_1^2 n_2 \lambda^2 c \epsilon_0} \frac{P_1}{\pi \omega_0^2}. \quad (9)$$

在准相位匹配条件和满足共焦聚焦条件下, $L = \frac{2\pi\omega_0^2}{\lambda} n_1$, 所以有 $\pi\omega_0^2 = \frac{L\lambda}{2n_1}$, 倍频转换效率具有最大值并与晶体长度呈线性关系。对厚度为 1 mm 的 Z 切掺摩尔分数 0.065 镁的铌酸锂周期极化光学微结构进行理论计算,取 $\lambda = 1.064 \mu\text{m}$, 晶体长度 $L = 1 \text{ cm}$, $T = 70 \text{ }^\circ\text{C}$ 时, $d_{\text{eff}} = \frac{2}{\pi} d_{33} = 17 \times 10^{-12} \text{ m/V}$,

根据塞耳迈耶尔(Sellmeier)方程^[6]有 $n_1 = 2.157$, $n_2 = 2.236$, 继而将以上已知条件代入(8)式可求得归一化倍频转换效率 $\eta = 2.96 \%/W$ 。

3 实 验

目前对厚度为 1 mm 的同成分本征 LiNbO₃ 实现周期性极化光学微结构器件方面取得了成功,但由于常规晶体生长条件生长出来的同成分铌酸锂晶体存在着光折变引起的光损伤,特别是由于同成分本征 LiNbO₃ 晶体的电场矫顽力约为 21 kV/mm,因此周期极化所需外加极化电场通常在 21~23 kV/mm。这在周期极化制备过程中带来许多副作用,如样品易击穿,易造成铁电畴周期结构极化不均匀和不完整等,所以晶体的厚度不能过大。实验研究表明:提高铌酸锂晶体中[Li]/[Nb]克分子比,能极大地降低其铁电畴极化反转电场^[7,8],但是抗光损伤性能低于同成分铌酸锂晶体^[9]。结果表明,在铌酸锂晶体中掺入摩尔分数大于等于 0.05 的 MgO 可以增大材料的抗

光损伤能力甚至消除抗光损伤。我们研究发现,在铌酸锂晶体中掺入摩尔分数 0.065 的 MgO 能极大地降低铁电畴极化反转电场。

实验装置如图 1 所示。实验中采用外加电场极化法,在长为 10 mm、宽为 10 mm、厚为 1 mm 的已单畴化且经过光学抛光的 Z 切掺摩尔分数 0.065 镁的铌酸锂基片上制作周期为 5.8~7.3 μm (间隔 0.3 μm) 的多周期周期极化掺镁铌酸锂光学微结构。制备周期极化铌酸锂光学微结构的工艺过程详见文献^[10~12]。实验中极化开关电场约为 5.5 kV/mm,是极化本征铌酸锂晶体所需极化开关电场的四分之一,脉冲宽度为 30 ms。极化完成后将基片样品处理清洗。为了检验周期极化光学微结构的均匀性和实现极化反转的深度,将样品沿 x 方向切抛,然后放入到 1:2 的氢氟酸和硝酸混合液中腐蚀。图 2 为样品 +Z 面的周期极化微结构,图 3 是样品 x 向横截面结构。这种周期极化光学微结构是准相位匹配非线性光耦合所要求的最佳结构。

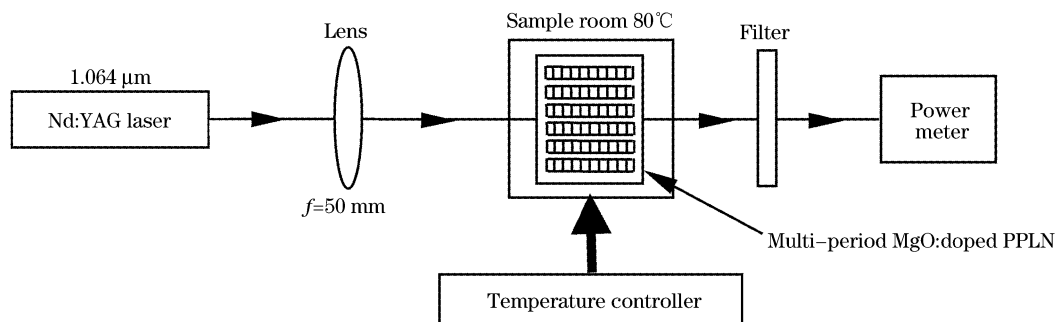


图 1 倍频实验装置示意图

Fig. 1 Experimental setup

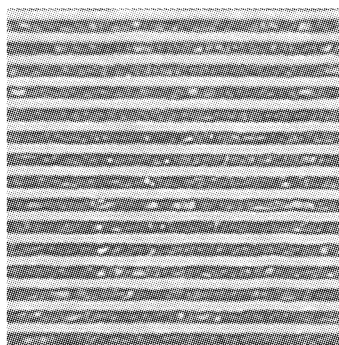


图 2 样品 +Z 面周期为 5.1 μm 的周期极化微结构

Fig. 2 +Z periodically poling optical micro-structure of the MgO:LiNbO₃ with a period of 5.1 μm

对所研制的周期为 5.8~7.3 μm 的掺镁铌酸锂光学微结构基片未镀增透膜的通光端面进行光学抛光。将实验操作温度恒定控制在 70 $^{\circ}\text{C}$, 对此微结

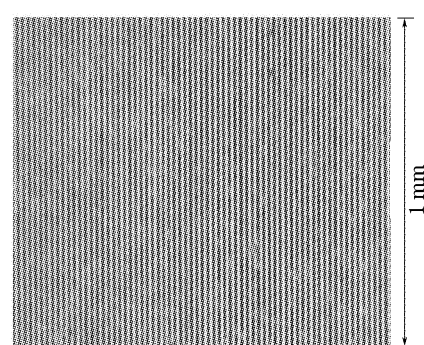


图 3 样品 X 向横截面结构

Fig. 3 Cross-sectional structure of periodically poling optical micro-structure

构样品进行一阶准相位匹配倍频实验。所用基频光源为 Nd:YAG 激光,它的波长为 1.064 μm ,输出功率为 920 mW。基频光经一焦距为 50 mm 的透镜

聚焦通过样品,在周期极化微结构中基波光腰直径约为 $56\ \mu\text{m}$,可观测到输出的倍频绿光。我们使用了对 $1.064\ \mu\text{m}$ 全反 $532\ \text{nm}$ 全透的滤波片测量倍频转换效率,在滤波片后测量基频光通过微结构样品后的二次谐波光强度,得到 $15\ \text{mW}$ 的 $532\ \text{nm}$ 倍频绿光,归一化效率为 $1.77\ \%/W$ 。实验结果与前面所计算的转换效率理论值存在一定差距,这是因为实验中晶体端面没有镀膜,而且由于工艺原因,晶体周期占空比不能刚好达到 0.5 ,周期极化不是很均匀,在实验中无法达到严格准相位匹配和共聚焦条件。只要进一步完善现有制备光学微结构的工艺条件,选取最佳的实验条件,可实现用较低的外加极化电场制作出透光孔径较大的周期极化掺镁铌酸锂光学微结构,提高制作精密度从而可以实现接近理想的倍频转换效率。

4 结 论

本文在准相位匹配周期性极化铌酸锂倍频理论计算结果的基础上,通过实验研究了厚为 $1\ \text{mm}$ 、长为 $10\ \text{mm}$ 、宽为 $10\ \text{mm}$ 的高掺镁周期性极化铌酸锂基片的倍频转换效率。以波长为 $1.064\ \mu\text{m}$ 、功率为 $920\ \text{mW}$ 的 Nd:YAG 激光为基频光源入射到掺镁周期性极化铌酸锂晶体获得约 $15\ \text{mW}$ 的 $532\ \text{nm}$ 准连续倍频蓝光输出,归一化转换效率高达 $1.77\ \%/W$ 。

参 考 文 献

- 1 Armstrong J A, Bloembergen N, Ducuing J *et al.*. Interactions between light waves in a nonlinear dielectric[J]. *J. Phys. Rev.*, 1962, **127**(6):1918~1939
- 2 Chen Yunlin, Ni Wenjun, Li Shichen *et al.*. Ferroelectric-domain-inverted gratings in LiNbO_3 fabricated by electric-field poling[J]. *Chin. J. Lasers*, 1999, **A26**(10): 889~892 (in Chinese)
陈云琳,倪文俊,李世忱等. 外加电场极化法制备 LiNbO_3 铁电畴反转光栅[J]. 中国激光, 1999, **A26**(10): 889~892
- 3 Zhang Baigang, Yao Jianquan, Zhang Hao *et al.*. Angle-tuned signal-resonated optical parametric oscillator based on periodically poled lithium niobate[J]. *Chin. Opt. Lett.*, 2003, **1**(6): 346~349
- 4 Kitaoka Y, Mizuuchi K, Yamamoto K *et al.*. Intracavity second-harmonic generation with a periodically domain-inverted LiTaO_3 device[J]. *Opt. Lett.*, 1996, **21**(24): 1972~1974
- 5 Garashi A, Arie A, Skliar A *et al.*. Continuous-wave optical parametric oscillator based on periodically poled KTiOPO_4 [J]. *Opt. Lett.*, 1998, **23**(22): 1739~1741
- 6 Zhang B G, Yao J Q, Zhang H *et al.*. Temperature tunable infrared optical parametric oscillator with periodically poled LiNbO_3 [J]. *Chin. Phys. Lett.*, 2002, **20**: 1077~1080
- 7 Chen Yunlin, Xu Jingjun, Kong Yongfa. Effect of Li diffusion on the domain inversion of LiNbO_3 prepared by vapor transport equilibration[J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2002, **81**(4): 700~712
- 8 Chen Yunlin, Xu Jingjun, Zhang Guangyin. Domain-inversion characteristics of congruent and stoichiometric LiNbO_3 crystals[J]. *Chin. J. Lasers*, 2001, **B10**(2): 4~7
- 9 Niwa K, Furukawa Y, Takekawa S *et al.*. Growth and characterization of MgO doped near stoichiometric LiNbO_3 crystals as a new nonlinear optical material[J]. *J. Cryst. Growth*, 2000, **208**(3): 493~500
- 10 Chen Yunlin, Xu Jingjun, Kong Yongfa *et al.*. Domain reversal process of near stoichiometric LiNbO_3 crystals [J]. *Opt. Commun.*, 2001, **188**(2): 359~361
- 11 Chen Yunlin, Xu Jingjun, Song Feng. Study on technology of periodic poling bulk LiNbO_3 by applying external field[J]. *Acta Optica Sinica*, 2001, **21**(5): 618~620 (in Chinese)
陈云琳,许京军,宋峰等. 外加电场极化法制备 LiNbO_3 周期性畴反转的工艺研究[J]. 光学学报, 2001, **21**(5): 618~620
- 12 Chen Yunlin, Liu Xiaojuan, Guo Juan *et al.*. The study of all-optical switching of LiNbO_3 based on cascading of second-order nonlinearity[J]. *Acta Optica Sinica*, 2004, **24**(12): 1667~1671 (in Chinese)
陈云琳,刘晓娟,郭娟等. 级联二阶非线性铌酸锂全光开关的研制[J]. 光学学报, 2004, **24**(12): 1667~1671
- 1 Armstrong J A, Bloembergen N, Ducuing J *et al.*. Interactions between light waves in a nonlinear dielectric[J]. *J. Phys. Rev.*,