

# 非线性光学晶体铌酸钾锂的二次谐波产生

万尤宝, 褚君浩, 黄芳朋

(中国科学院上海技术物理研究所红外物理国家实验室, 上海 200083)

于天燕, 余丙鲲

(上海大学 物理系, 上海 201800)

潘守夔

(中国科学院上海光学精密机械研究所, 上海 201800)

**摘要:** 研究铌酸钾锂晶体的近红外透过光谱; 利用铌酸钾锂晶体对 890~960nm 的 Ti:sapphire 近红外激光进行倍频, 获得蓝绿光输出; 研究了晶体的倍频特性, 探讨了提高晶体倍频效率的方法。

**关键词:** 铌酸钾锂晶体; 透过光谱; 二次谐波发生

**中图分类号:** O734.1 **文献标识码:** A **文章编号:** 1000-7032(2000)02-0129-05

## 1 引 言

全固态蓝绿光激光器性能稳定、结构紧凑、可集成化, 在光存储、光通讯和激光医疗仪器等方面有良好的应用前景, 是当前国际上的一个研究热点。实现这个目标的一条可行途径是对半导体近红外激光倍频实现蓝绿光输出。目前能对半导体近红外激光倍频的晶体是  $\text{KNbO}_3$  (KN), 但是, KN 晶体的铁电单畴结构不稳定, 温度超过 40℃ 或受机械振动其铁电单畴结构会受到破坏, 需要重新极化后才能使用。铌酸钾锂晶体 ( $\text{K}_3\text{Li}_{2-x}\text{Nb}_5+x\text{O}_{15+2x}$ ,  $0 < x < 0.5$ ; KLN) 晶体的有效非线性系数和 KN 相近, 铁电畴结构稳定, 调节晶体组分, 有可能在最佳相位匹配条件下稳定地实现 790~980nm 半导体激光的倍频输出<sup>[1]</sup>。其主要

非线性光学性质如表 1 所示, 表中同时列出了常温下一些常见的非线性晶体的主要非线性性质。由表 1 可以看出 KLN 晶体是一个性能良好的非线性晶体。曾报道用多种生长技术生长了 KLN 晶体<sup>[2,3]</sup>, 但是晶体生长后严重开裂限制了人们对其生长特性和性能的进一步研究。我们曾用中频加热引上法和电阻加热引上法生长了透明的 KLN 晶体<sup>[4,5]</sup>, 研究了 KLN 晶体中组份离子浓度沿生长方向的变化情况和晶体的光学均匀性<sup>[6]</sup>, 结果表明在电阻加热炉中用我们的生长技术生长得到的 KLN 晶体中组份离子浓度波动小, 不会对晶体的折射率和倍频性能产生明显影响, 有良好的光学均匀性。本文研究了 KLN 晶体在倍频波段的透过光谱和晶体的二次谐波发生 (SHG) 特性。

表 1 室温下一些常见倍频晶体的非线性光学性质

Table 1 Nonlinear optical properties of some frequency doubling materials at room temperature.

Material	$d_{ij}$ (pm/V)	$n(\lambda/\text{nm})$	Transparency range/ $\mu\text{m}$	Loss coefficient ( $\alpha$ %/cm)	Properties index	
					$d^2/n^3$	$d^2/(n^3 a^2)$
KLN	$d_{31} = -14 \pm 2$	2.230(820)	0.35~5.0	$0.4 \pm 0.1^{[7]}$	17.7	110.63
$\text{KNbO}_3$	$d_{32} = -20$	2.277(860)	0.36~4.0	1.5	33.9	15.07
$\text{LiNbO}_3$	$d_{31} = 6.5$	2.230(1 064)	0.40~5.0	0.11~0.42	3.81	21.60
KTP	$d_{31} = 6.5$	1.830(1 064)	0.35~5.0	0.3~0.8	6.9	10.87
KDP	$d_{36} = 0.44$	1.439(1 064)	0.31~1.5		0.007	

收稿日期: 1999-09-15; 修订日期: 1999-11-19

作者简介: 万尤宝(1970-), 男, 湖北红安人, 获工学博士学位, 助理研究员, 目前主要从事铁电材料的热释电、铁电和非线性光学性质等方面的研究工作。

## 2 透过光谱

将  $\text{Li}_2\text{O}$  含量为 26mol% 的熔体中沿  $a$  方向生长的晶体加工成  $a \times b \times c = 4.1 \times 4 \times 3.7\text{mm}$  的小块, 经机械抛光成平行度为  $15''$ , 光洁度为 III 级的样品, 用 Lambda 9 UV/VIS/NIR 分光光度计测量了其吸收和透过光谱, 入射方向为  $c$  方向。其 300~1 200nm 波段的透过光谱如图 1 所示。

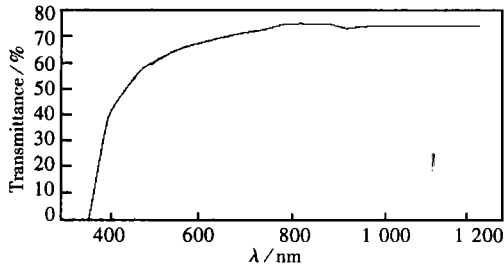


图 1 厚为 3.7mm 的 KLN 晶体的透过光谱  
Fig. 1 Transmittance of KLN crystal with thickness of 3.7mm.

由图 1 可知: 厚为 3.7mm 的 KLN 样品在倍频波段 400~1 200nm 有良好的透过性能, 其透过率最大为 74%, 透过截止波长为 360nm。文献 [8] 报道了在  $\text{Nb}/\text{Li} = 3$  的熔体中用引上法生长出的晶体的透过光谱中, 480nm 处有一吸收峰,

该作者认为是晶体中 Nb 取代 Li 格位后, Nb 在 9 配位的晶体场中所产生的吸收。而在图 1 的透过谱中没有发现这个吸收峰。其原因可能是: 我们的晶体是由  $\text{Nb}/\text{Li} = 1.7$  的熔体中生长出的, 该熔体中 Li 含量高于  $\text{Nb}/\text{Li} = 3$  的熔体中的 Li 含量, 因此我们晶体中 Li 含量应高于后者, 其晶体中 Li 格位被 Nb 取代的几率远小于后者所生长出的晶体, 在透过光谱中没有显示出上述吸收峰。由此可知: 高 Li 含量的 KLN 晶体的透过光谱优于较低 Li 含量晶体的透过光谱。

## 3 二次谐波发生

### 3.1 倍频实验

我们将上述测量透过光谱的样品在  $150^\circ\text{C}$ 、 $400\text{V}/\text{mm}$  的直流电场下极化后, 在室温下对钛宝石近红外激光进行了初步的倍频实验。实验装置如图 2 所示。所用的入射光是以声光调 Q 的 Nd: YAG 激光经 BBO 晶体倍频产生的 532nm 的绿光为光源, 泵浦钛宝石晶体产生的准连续激光, 其调谐范围为  $610 \sim 1\ 100\text{nm}$ , 脉冲重复频率为  $10\text{kHz}$ 。泵浦倍频效率与基波功率有关, 又受基波模式的好坏的影响, 因此实验时必须兼顾这两个方面。在实验前预先将钛宝石激光器调节为最佳输出。实验所用的聚焦透镜的焦距为 80mm。

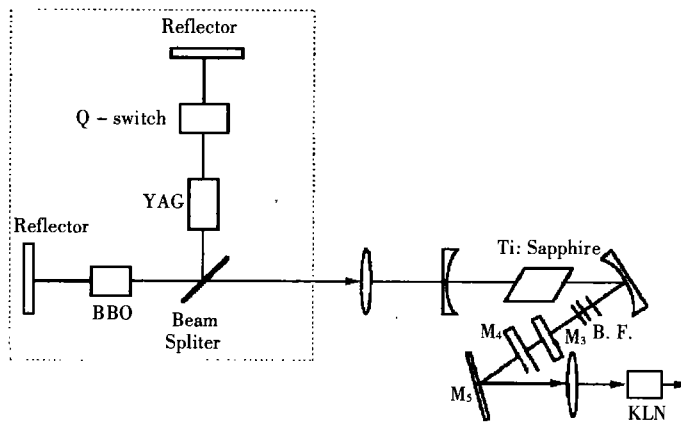


图 2 KLN 晶体对钛宝石激光倍频的实验装置图

Fig. 2 Experimental apparatus of doubling the Ti:sapphire laser using KLN crystal.

基波为沿水平方向偏振的高斯光束, 模式为  $\text{TEM}_{00q}$ , 光沿晶体的  $a$  轴方向入射。890~960nm 波段范围内的基波入射功率和倍频的结果如表 2 所示。

相同的条件下, 入射波长为 906nm 时, 样品对不同功率入射波的倍频情况如表 3 所示。

将由  $\text{Li}_2\text{O}$  含量为 20mol% 和 23mol% 的熔体中生长出的 KLN 晶体, 在上述条件下进行了激光倍频实验。结果发现在  $\text{Li}_2\text{O}$  含量为 20mol% 的熔体中生长出的 KLN 晶体没有倍频效应, 不能获得蓝绿光输出,  $\text{Li}_2\text{O}$  含量为 23mol% 的熔体中生长出的 KLN 晶体的有倍频效应, 但是倍频

出的倍频光很弱,没有能够测量出功率。因此, KLN 晶体的倍频性能与晶体中 Li 离子含量有关,不是所有的铁电相的 KLN 晶体均具有倍频效应,只有当晶体中的 Li 离子浓度达到一定量时晶体才能够对近红外激光倍频,晶体中的 Li 离子含量越高,晶体的倍频性能越好。因此,提高 KLN 晶体中的 Li 离子含量,是作为非线性光学应用的 KLN 晶体的研究方向。

### 3.2 倍频实验结果与讨论

表 2 是 KLN 晶体对不同波长和功率的钛宝石激光的倍频结果。

入射光波长为 906nm 时,利用 KLN 晶体对不同入射功率的 Ti:sapphire 激光进行了倍频实验,结果如表 3 所示。

表 2 KLN 晶体对不同入射波长和功率的钛宝石激光的倍频结果

Table 2 Frequency-doubling results for KLN crystal doubling Ti:sapphire laser with different incident wavelength and power.

Incident wavelength/nm	Incident power $P_{\omega}$ /mW	SHG power $P_{2\omega}$ /mW	SHG efficiency $\eta$ /(%)
952	146	0.75	0.513
934	226	1.21	0.535
924	169	1.73	0.643
915	249	1.48	0.594
906	225	1.02	0.453
897	222	1.03	0.463
890	144	0.58	0.402

表 3 室温下入射波长为 906nm 时 KLN 晶体对不同入射功率钛宝石激光的倍频结果

Table 3 Frequency-doubling results for KLN crystal doubling 906nm Ti:sapphire laser with different incident power at room temperature.

Incident $P_{\omega}$ /mW	SHG $P_{2\omega}$ /mW	Frequency-doubling efficiency $\eta$ /(%)
215	0.71	0.330
195	0.46	0.236
180	0.36	0.200
150	0.20	0.133
123	0.14	0.113

$P_{2\omega}$  随入射功率  $P_{\omega}$  的变化曲线,由图可以看出,二次谐波功率  $P_{2\omega}$  随入射波的功率  $P_{\omega}$  的增大而非线性地增大。

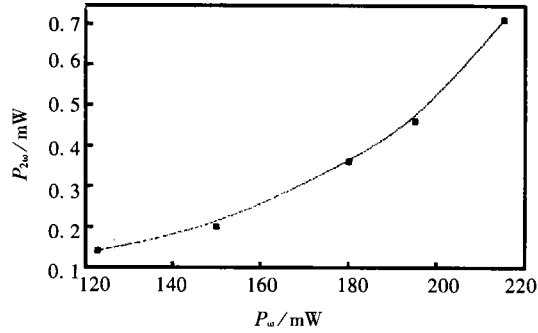


图 3 入射波长为 906nm 时 KLN 晶体二次谐波功率  $P_{2\omega}$  与基波功率  $P_{\omega}$  的关系曲线

Fig. 3 Relationship between SHG power and incident power for KLN crystal.

对于高斯光束的倍频,在不考虑晶体的损耗时,其二次谐波功率  $P_{2\omega}$  与入射波长  $\lambda$  和入射功率  $P_{\omega}$  的关系为:

$$P_{2\omega} = \frac{8\pi^2 L^2 d_{\text{eff}}^2}{n_1^2 n_2 \lambda^2 \epsilon_0 c A} P_{\omega}^2 \text{sinc}^2\left(\frac{\Delta k L}{2}\right) \quad (1)$$

式中  $L$  为晶体在倍频方向的厚度,  $n_1$ 、 $n_2$  分别是入射波和二次谐波的主折射率,  $\lambda$  是入射波波长,  $\epsilon_0$  是真空介电常数,  $\Delta k$  为基波和谐波的角频率差,完全相位匹配时  $\Delta k = 0$ ,  $\text{sinc}\left(\frac{\Delta k L}{2}\right) = 1$ ,  $A$  为入射光光斑面积,  $d_{\text{eff}}$  为晶体的有效倍频系数, KLN 晶体室温下是  $C_{4v}$  点群、 $P4bm$  空间群、负单轴光学晶体,只能实现  $o \rightarrow o \rightarrow e$  型相位匹配,此时晶体  $d_{\text{eff}} = d_{31} \sin\theta_m$ ,其中  $d_{31}$  是 KLN 晶体的非线性光学系数,  $\theta_m$  为相位匹配角。若考虑晶体的光损耗,上式的右边应该乘上  $e^{-\alpha L}$  项,因此上式变为:

$$P_{2\omega} = \frac{8\pi^2 L^2 d_{\text{eff}}^2}{n_1^2 n_2 \lambda^2 \epsilon_0 c A} P_{\omega}^2 \text{sinc}^2\left(\frac{\Delta k L}{2}\right) e^{-\alpha L} \quad (2)$$

式中  $\alpha$  为晶体的光损耗系数。

由上式可知,在相同的情况下,当入射功率不变,不考虑晶体的光损耗系数随波长的变化时,入射波长越长,二次谐波功率  $P_{2\omega}$  越小。但是由表 2 可以看出,当入射功率相近时,入射波长越长,二次谐波功率  $P_{2\omega}$  越大。这与晶体的光损耗有关。由图 1 可知, KLN 晶体倍频时,入射波和二次谐波的波段均在晶体的吸收边附近,因此入射波和二次谐波的光损耗较为严重,波长越短,吸收越

图 3 是入射波长为 906nm 时,二次谐波功率

强,输出的二次谐波功率越小。因此出现上述结果。由此可见,提高晶体的质量、降低晶体的光损耗,是作为倍频应用的 KLN 晶体必须解决的问题。晶体的光损耗主要来源于晶体的光吸收和光散射,KLN 晶体中 Li 离子格位因为晶体结构的关系,不能完全填充<sup>[4]</sup>,留下空位,可能是引起晶体光吸收和散射的重要来源,因此,提高晶体中 Li 含量,可以减少晶体中空位浓度,减少晶体的光损耗,提高晶体的倍频输出。另外,提拉法生长 KLN 晶体,采用凸界面生长时,晶体的固液界有许多生长小面<sup>[5]</sup>,这些小面的存在,会影响晶体折射率的均匀性,引起光散射。所以,宜采用平界来生长 KLN 晶体,以避免这些小面的出现,提高晶体折射率的均匀性,减小晶体的光损耗。

由式(2)还可以知道,当其它条件不变,对于同一入射波长,二次谐波功率  $P_{2\omega}$  与入射功率呈平方关系,与图 3 实验结果基本符合。

#### 4 结 论

由 KLN 晶体的近红外透过光谱表明,高 Li 含量的晶体在倍频波段没有吸收峰,透过性能优于较低 Li 含量的 KLN 晶体。KLN 晶体的倍频实验证实,不是所有铁电相的 KLN 晶体均具有倍频性能,只有晶体中 Li 含量达到一定数值,晶体才能够对近红外结构倍频获得蓝绿光输出,晶体中的 Li 含量越高,晶体中空位浓度越小,晶体的倍频性能越好。因此,提高晶体中的 Li 含量是作为倍频应用的 KLN 晶体的研究方向。

#### 参 考 文 献

- [ 1 ] Ouwerker M. Potassium lithium niobate: a frequency doubler for (Al, Ga)As lasers [J]. *Adv. Mat.*, 1991, 3(7/8):339 - 401.
- [ 2 ] Ferriol M, Foulon G, Brenier A, Cohen-Adad M T, Boulon G. Laser heated pedestal growth of pure and Nd<sup>3+</sup>-doped potassium lithium niobate single-crystal fibers [J]. *J. Cryst. Growth*, 1997, 173: 226 - 230.
- [ 3 ] Chen Z M, Tago M, Adachi M, *et al.* Growth and properties of tungsten-bronze ferroelectric potassium lithium niobate single crystals [J]. *Ferroelectrics*, 1997, 196:265 - 268.
- [ 4 ] Wan Youbao, Pan Shoukui, Xu Jun, *et al.* The properties and growth of nonlinear optical potassium lithium niobate crystal [J]. *J. Synth. Cryst.*, 1998, 1:34 - 38(in Chinese).
- [ 5 ] Wan Youbao, Pan Shoukui, Xu Jun. The growth of ferroelectric potassium lithium crystal [J]. *J. Synth. Cryst.*, 1999, 2:149 - 154(in Chinese).
- [ 6 ] Wan Youbao, Xu Ke, Xu Jun, *et al.* The distribution of compositional ions in nonlinear optical potassium lithium niobate crystal [J]. *Chin. J. Lasers*, 1999, A26(9):837 - 840(in Chinese).
- [ 7 ] Reid J J E. Resonantly enhance, frequency doubling of an 820nm GaAlAs diode laser in a potassium lithium niobate crystal [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 1993, 62(1):19 - 21.
- [ 8 ] Xia H R, Hu L J, Wei J Q, Wang J Y, Liu Y G. Growth and properties of tetragonal tungsten bronze type potassium lithium niobate single crystals [J]. *Cryst. Res. Technol.*, 1997, 32(2):311 - 317.

## Second Harmonic Generation of Nonlinear Optic Crystal Potassium Lithium Niobate

WAN You-bao, CHU Jun-hao, HUANG Fang-peng

(National Laboratory of Infrared Physics, Shanghai Institute of Technical Physics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 200083, China)

YU Tian-yan, YU Bing-kun

(Department of Physics Shanghai University, Shanghai 201800, China)

PAN Shou-kui

(Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China)

#### Abstract

The infrared transmission spectrum of potassium lithium niobate crystal was studied. The result showed

that the spectrum properties of the crystal grown from the melt with higher  $\text{Li}_2\text{O}$  contents is better than those of the crystal grown from the melt with lower  $\text{Li}_2\text{O}$  contents, the latter has an absorption peak at the wavelength of 480nm while the former has not, so when a laser beam pass across the crystal, the optical loss for the former is lower than that for the latter. The reasons for the result are related to the reduction of replace chance of Nb atom at Li atom site in potassium lithium niobate crystal grown from melt with higher  $\text{Li}_2\text{O}$  contents. The reduction of optical loss is very beneficial to the increasing of the second harmonic generation efficiency of the crystal. The second harmonic generation properties of potassium lithium niobate crystal were studied. It showed that the potassium lithium niobate crystal has no frequency-doubling performance unless it has necessary Li contents. The second harmonic generation properties will be improved as the Li contents in the crystal increases. The blue-green laser have been obtained by doubling quasi CW-Ti:sapphire near infrared laser in the wavelength range of 890~960nm using potassium lithium crystal grown from the melt with  $\text{Li}_2\text{O}$  26mol%, the results showed that the crystal sample has good frequency-doubling efficiency. The means of enhancing the second harmonic generation efficiency of potassium lithium niobate crystal were discussed. It is deduced that the second harmonic generation efficiency will be increased while the light loss of the potassium lithium niobate crystal reduces.

**Key words:** potassium lithium niobate crystal; transmittance spectrum; second harmonic generation