

高功率倍频输出的 铌酸钡钠晶体生长和性能

余金梁 吴耀安 唐元汾 孙金梅 冯玲英

李金龙 廖晶莹 吴惠法 徐惠德

(中国科学院上海硅酸盐研究所)

1981年2月21日收到

提 要

本文研究了铌酸钡钠晶体的生长和性能,成功地生长了直径25毫米,长30—40毫米的晶体,二次谐波输出功率达瓦级水平,最高者达到2.5瓦。

引 言

铌酸钡钠($\text{Ba}_2\text{NaNb}_5\text{O}_{15}$, 简称为 BNN)晶体是钨青铜型结构的非线性光学材料。它在室温至270℃属正交晶系,其点群为 $\text{mm}2$;在270—580℃转为四方晶系,其点群为 4mm 。它具有大的非线性电光系数,可用于二次谐波发生、参量振荡和电光调制^[1]。但 BNN 晶体的生长工艺比较困难,过去生长的 BNN 晶体尺寸不大,一般为直径10毫米左右。据报道^[2],其二次谐波的平均输出功率只达到几百毫瓦。我们研究了 BNN 晶体的生长工艺,成功地生长了直径25毫米,长30—40毫米的晶体,其二次谐波输出功率达瓦级水平,最高者达到2.5瓦。

晶 体 生 长

BNN 的二次谐波输出功率与通光光程的平方成正比^[3]。因此,作为倍频器件应尽可能增大它的通光光程。为了获得大尺寸和高质量的 BNN 晶体,我们研究了晶体生长时的组分配比、温场和操作技术。经反复试验确定,原料用4-N的 BaCO_3 , Na_2CO_3 和 Nb_2O_5 化学试剂,配比应取8.8克分子%的 Na_2O , 41.2克分子%的 BaO ,和50克分子%的 Nb_2O_5 ,接近于一致熔化组成。化学分析结果表明,原料、晶体和坩埚余料的组成彼此接近。若用生长的晶体作为原料重新拉制晶体,则更有利于获得高品质的晶体。

生长设备是用射频加热的提拉单晶炉,容器是直径50毫米的半球形铂坩埚。晶种的取向为 $\langle 001 \rangle$ 。晶体生长时,炉内的纵向温度梯度如图1所示。适当的温度梯度是通过调整坩埚罩上面的辅助加热器的位置而获得的。这个加热器又可作为晶体生长完毕后的退火炉。

从图 1 可以看出,在液面以上 0—10 毫米处温度梯度较大,这有利于控制生长晶体的形状;而在 10—70 毫米处温度梯度较小,这可避免生长中的晶体开裂。在生长操作方面,

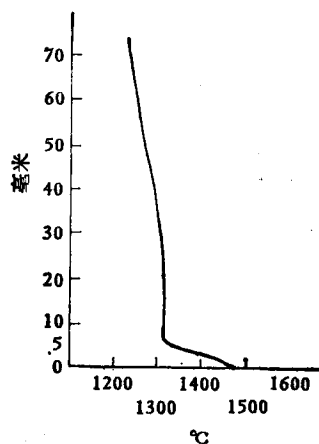


图 1 BNN 晶体生长时炉内的纵向温度梯度

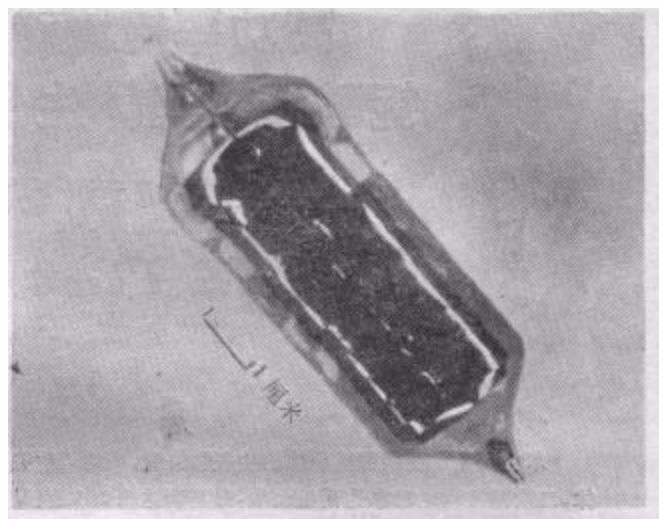


图 2 大尺寸铌酸钡钠单晶体外貌

要注意晶种接种后,先将其直径适当缩小,以消除可能由晶种引入的缺陷。扩大晶体直径时必须使晶体表面上的四条生长脊清晰对称;否则,晶体容易开裂。当晶体扩大到所需的直径后,以 4 毫米/小时的拉速和 30 周/分的转速进行等径生长。生长完成后将晶体提升到位于坩埚上面 40 毫米处的辅助加热器内进行初次退火。在 650—500°C 和 270—140°C 范围内,也就是 BNN 晶体发生相转变的温度区,降温速率要小,约为 10°C/小时,以避免晶体开裂。利用上述的工艺条件,生长出的大尺寸 BNN 晶体如图 2 所示。

极化和去双晶

在对晶体进行光学测试之前,必须使晶体单畴化和去双晶。首先,将晶体垂直于生长轴向切割,在抛光的 c 面上蒸镀铂电极,然后放入极化炉中加热到高于居里温度,并沿 c 轴施加直流电场进行单畴化处理。我们曾研究了电流密度和极化温度对极化程度的影响,得出的较好极化条件如表 1 所示。

表 1 BNN 晶体的极化条件

加电场方向	极化温度 (°C)	电场强度 (伏/厘米)	恒电流密度 (毫安/厘米 ²)	腐 蚀 条 件
$\langle 001 \rangle$ 和 $\langle 00\bar{1} \rangle$	580	200	1	HF:HNO ₃ = 1:2 时间: 5 分钟

按这些条件处理过的晶体,绝大部分是极化完全的,如图 3 所示。

为减少光散射,必须去双晶。双晶的去除法主要是把样品加热到由正交相向四方相

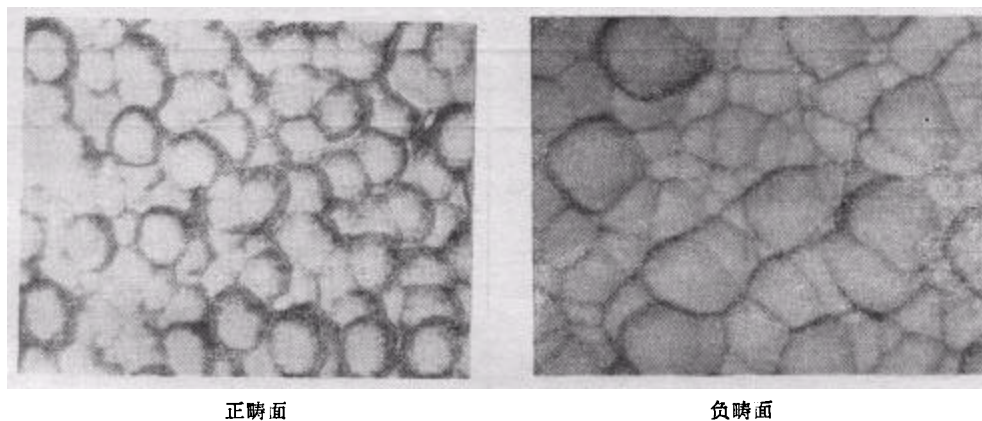


图3 极化完全的畴蚀象

转变的温度以上,一般是在 350°C 左右,并沿 a 轴或 b 轴施加 150—180 公斤/厘米² 的压力,然后缓慢降温。晶体样品的两个端面要求平行并且非常平整;否则,双晶不易去除。在上述条件下,绝大部分晶体的双晶是可去除掉的。一旦双晶被去除,则材料就成为均匀的单晶体,虽再经切割、磨抛,原来的双晶也不会再出现。图 4 是我们去双晶前后的 BNN 晶块图象。

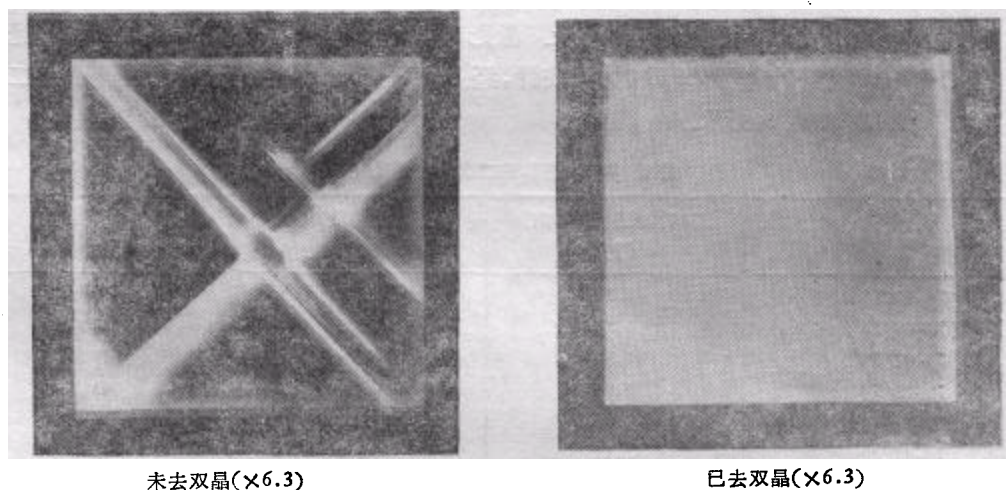


图4 去双晶前后的 BNN 样品图象

光 学 检 验

影响 BNN 晶体 SHG 功率输出的主要因素,是它的光散射和光透过以及折射率变化。BNN 晶体的光学品质可用大角度散射、双折射率梯度、透过率、台曼-格林干涉以及阴影照像等方法进行测试。表 2 是一些晶体的光学均匀性测试结果。

一般在晶体内都存在着一些生长条纹。生长条纹是由于固液界面出现的温度起伏所引起的,要完全消除它是比较困难的。不过,如能注意观察和严格控制生长条件,也可以生长出条纹较少的良好晶体。生长条纹少的晶体其二次谐波的输出功率亦高。

表 2 晶体光学均匀性测量数据

晶 体 编 号	大角度散射系数 (%)	双折射率梯度 (10^{-4} /厘米)	透 过 率 (%)
78-36(1)A	1.0	4.1	85
77-83(3)	1.1	1.2	82
78-36(2)B	1.9	5.0	82
77-98(3)	2.5	4.3	68
77-95(2)	3.3	7.9	81
78-30(1)B	3.9	7.7	65
78-36(2)A	4.6	6.1	69
77-87(2)	5.5	15.0	71

BNN 的二次谐波发生

BNN 的二次谐波发生系统是由 Nd:YAG 激光器、电源、加热装置和精密温度控制仪组成。进行倍频试验时,将 BNN 晶体置于 Nd:YAG 激光腔内,采用温度匹配方式,对 1.06 微米激光沿 *a* 或 *b* 轴通光,平行与 *b* 或 *a* 轴偏振。在相位匹配温度附近的温度控制仪精度在 $\pm 0.05^{\circ}\text{C}$ 。二次谐波输出经三稜镜分光器和透光率为 8% 的衰减片后用硅光电池接收,直接输入 X-Y 记录仪自动记录。激光功率测量是用日本的 SPD-102 型硅光电池,配 C-32- μA 型(低内阻 9.6 欧姆)微安计,经上海激光技术研究所标定后进行的。二次谐波的测量结果如表 3 所示。

表 3 BNN 晶体的二次谐波测量结果

样 品 编 号	二次谐波输出(单向) (瓦)	基 波 输 入 (瓦)	转换效率(双向) (%)
79-18(1)	1.77	7.9	45
78-44(2A)	1.80	12.2	30
79-02(1)	1.91	7.9	49
79-18(3)	1.94	7.9	49
79-02(2)	2.05	12.2	34
78-42(2)	2.11	12.2	35
79-04	2.50	7.0	71

从表 3 可以看出,用上述系统以 BNN 作为倍频材料,得到了连续二次谐波输出的功率已达瓦级水平,其中最高输出功率为 2.5 瓦。因此,用 Nd:YAG 激光通过 BNN 倍频元件可以获得高功率的连续绿光输出,为各种应用提供光源。

本文得到张绶庆、谭浩然、张道标同志的指导和帮助,特此致谢。在光学测试、电学测试和真空镀膜过程中得到王腊妹、张雁行、周永祥、华王祥、唐福娣和林雅芳等同志的技术上的帮助,谨致谢忱。

参 考 文 献

- [1] S. Singh, D. A. Draegert and J. E. Geusic, *Phys. Rev. B*, **2**(1970), 2709.
- [2] R. R. Rice, J. R. Teague and J. E. Jackson, *J. Appl. Phys.*, **49**(1978), 5750.
- [3] H. Tsuya, Y. Fujino and K. Sugibuchi, *J. Appl. Phys.*, **41**(1970), 2557.

CRYSTAL GROWTH AND CHARACTERIZATION OF BARIUM SODIUM NIOBATE WITH HIGH SH OUTPUT

YU JIN-LIANG WU YAO-AN TANG YUAN-FENG SUN JIN-MEI FENG LIN-YING
LI JING-LONG LIAO JING-YING WU HUI-FA XU HUI-DE

(*Shanghai Institute of Ceramics, Academia Sinica*)

ABSTRACT

The growth and characterization of BNN crystals had been investigated and the large BNN crystals with SH output power level greater than 1 watt (the highest output being 2.5 watt) had been grown successfully.