

聚片多畴 LiNbO_3 晶体的倍频效应

薛英华 闵乃本 朱劲松 冯 端

(南京大学物理系)

1982 年 9 月 27 日收到

提 要

通过对聚片多畴 LiNbO_3 晶体倍频效应的研究,从实验上对 Bloembergen 等人所提出的准位相匹配理论进行了细致的检验. 首先运用 Maker 条纹法在实验上直接测定了单畴 LiNbO_3 晶体在 $e^\omega \cdot e^\omega \rightarrow e^{2\omega}$ 非位相匹配下的倍频光强,并采用角度扫描和温度扫描方法,以获得满足准位相匹配条件时的不同片数的聚片多畴晶体的最大倍频强度,从而验证了聚片多畴晶体倍频相对光强与片畴数 N 成平方关系. 在 $N < 200$ 时,取得令人满意的结果. 把聚片多畴晶体的倍频光强与同质量同长度单畴晶体在 $o^\omega \cdot o^\omega \rightarrow e^{2\omega}$ 位相匹配下的倍频光强进行比较,其倍频强度提高一个数量级之多. 最后,还从实验上讨论了倍频增强效应的结构敏感性.

一、引 言

1962 年, Bloembergen 等人^[1]提出了准位相匹配理论. 理论预言了利用非线性极化系数的周期性跃变,可能大幅度增强倍频效应. 同一时期, Yariv 在 Bell 实验室的内部报告中^[2]也曾提出类似的准位相匹配的思想.

对于根本不能位相匹配的非双折射晶体,如 GaAs 等,利用非线性系数的周期性跃变,理论预期可获得较强的倍频输出. 至于能够位相匹配的双折射晶体,准位相匹配的优越性表现在可能利用某些原先不能位相匹配的非线性光学系数. 例如在 LiNbO_3 中,最大的非线性光学系数为 d_{33} , 对应于 $e^\omega \cdot e^\omega \rightarrow e^{2\omega}$ 过程,因而是无法位相匹配的,但 d_{33} 的数值约为常用的 d_{31} 的 7.5 倍,因此制造聚片多畴的 LiNbO_3 晶体来实现 d_{33} 的准位相匹配,可能获得倍频输出的增强(相对于同长度位相匹配的单畴晶体而言). 估计的最大的增强因子约为 $(7.5)^2 \times (2/\pi)^2 \simeq 23$, 因此这项工作是具有潜在的实用价值.

多年来人们尝试着运用不同的方式来实现晶体非线性极化系数的周期性跃变,以期检验理论的预言,并探讨实际应用的可能性. 例如, Miller^[2] 和 Stefenovich 等人^[3]观测到 BaTiO_3 晶体中 180° 反平行电畴对倍频效应影响的初步迹象. Dewey 和 Hocker^[4] 利用 ZnSe 中其间距是无规的旋转孪晶,观测到倍频增强效应. Van der Ziel 和 Llegems^[5] 利用分子束外延制成了 17 对 $\text{GaAs-Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$ 交替层状晶体,观察到在实现准位相匹配的条件下的倍频峰值. Thompson 等人^[6]和岡田正胜等人^[7]利用晶体薄片交替组合方法,前

1) A. Yariv, 私人通讯.

者观测到 12 片 GaAs, 后者观测到 24 片水晶和 6 片 LiNbO_3 晶体在满足准位相匹配的条件下的倍频光强, 其结果与理论预言吻合。但是在这些工作中都未能对准位相匹配理论进行细致的检验^[8], 问题在于上述作者或是只能实现非线性极化系数的非周期跃变, 或是只能得到数层或数十层的周期结构晶体。我们在成功地制备了聚片多畴 LiNbO_3 晶体后, 初步观测到准位相匹配理论所预期的倍频增强效应^[9]。本文进一步报道我们所取得的结果。

二、样品及实验装置

1. 样品制备

聚片多畴 LiNbO_3 晶体是在直拉法生长时的同成分 LiNbO_3 熔体中掺入了浓度为 0.5% 的 Y (按重量百分比计)。通过旋转生长层中的杂质浓度梯度而在晶体里诱发聚片多畴, 形成沿提拉方向的一维周期性层状电畴结构^[10]。对于这种周期性层状电畴结构可以引入倒易矢量 $|\mathbf{g}| = 2\pi/(l_p + l_n)$ 来描述其周期性, $\mathbf{g}$ 矢量的方向为畴界面的法线方向。我们可以通过对生长工艺参数的合理选择, 使倒易矢量 $|\mathbf{g}| = 2\pi/(l_p + l_n) \simeq \pi/l_c$ 。其中 l_p, l_n 分别为正畴与负畴的层厚, l_c 为 LiNbO_3 晶体的相干长度。

对于拉制成的晶体进行定向后, 再经过磨制、抛光, 然后放到硝酸及氢氟酸按 2:1 混合的溶液中进行腐蚀处理, 就可以在光学显微镜下直接观察电畴的形态。聚片多畴

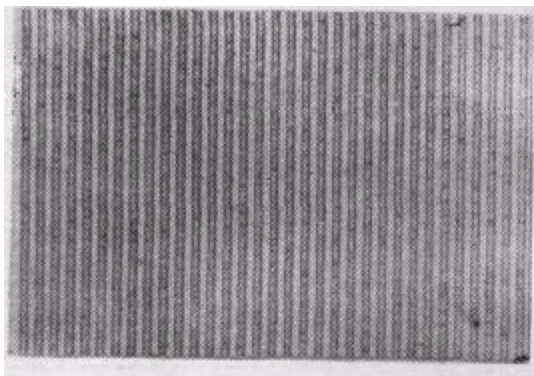


图 1

LiNbO_3 晶体的电畴组态见图 1。我们可以在显微镜中精确测量电畴的层间距, 以精选样品。我们选取 $l_p + l_n = 2l_c$ (或略小于 $2l_c$) 的区域切制样品, 样品的通光面为 X 面, 聚片多畴的畴壁亦平行于 X 面。对两个通光面进行磨制抛光, 表面的平行度 $< 1' - 2'$, 表面的平整度 $< \lambda/2$ 。

除了制备聚片多畴晶体的样品外, 还需要制备一块单畴晶体的样品。我们的单畴晶体样品, 是在同样的聚片多畴晶体中

切制出来的, 在略低于居里温度下 (1200°C) 沿着 Z 轴方向加电场 ($1 - 1.5 \text{ V/cm}$), 使其极化成为单畴晶体。该样品同样需要对通光面进行磨制、抛光, 其要求同上。

2. 实验装置

测定晶体倍频光强实验所用的装置如图 2 所示。

基波光源采用声光调 Q 的 Nd^{3+}YAG 激光器, 它输出准连续脉冲激光, 基波波长为 $1.064 \mu\text{m}$, 峰功率为千瓦级, 重复频率为 8 kHz 。由激光器输出的基波光, 通过玻璃片的部分反射光来实现基波功率监视。基波光通过玻璃片的透射光在通过格兰棱镜后, 就被起偏, 转动格兰棱镜可以改变基波光的偏振方向。

经过晶体产生的倍频光, 用分光棱镜使其与基波光分离, 只有倍频光才能进入光电倍

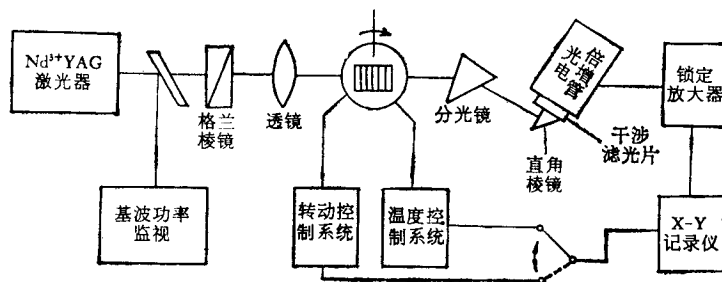


图 2

增管前面的直角棱镜。经过光电倍增管和锁定放大器放大后的讯号,最后输入 X-Y 记录仪的 Y 笔。

装置的样品台,一方面可以绕晶体 Z 轴以不同的角速度旋转,另一方面也可在垂直入射光线的平面内分别沿相互垂直的方向平动。样品台上还可以放置自动升温 and 控温的加热炉,以保持样品恒温或连续改变样品温度。温度讯号以及经过转换后的角度讯号都可输入 X 笔,这样记录仪就可以自动画出倍频光强的温度扫描曲线或角度扫描曲线。

三、实现准位相匹配晶体的倍频效应

1. 单畴 LiNbO_3 晶体的 d_{33} 倍频光强的测定

根据 Bloembergen 准位相匹配理论,聚片多畴 LiNbO_3 晶体 d_{33} 倍频光的相对强度与片畴数 N 应具有以下的关系式:

$$I(2\omega)/I_0(2\omega) = N^2 \cdot K, \quad (1)$$

其中 $I(2\omega)$ 是有 N 片的聚片多畴 LiNbO_3 晶体 d_{33} 倍频光强, $I_0(2\omega)$ 是具有一个 l_c 长度晶体的倍频光强, K 为修正系数。在理想情况下, $K = 1$; 而在实际工作中, $K < 1$, 这是根据晶体中电畴结构情况而定。

为了从实验上来验证 (1) 式,首要的问题是关于单畴 LiNbO_3 晶体的 d_{33} 倍频光强 $I_0(2\omega)$ 的测定。由于 d_{33} 倍频系数仅在 $e^\omega \cdot e^\omega \rightarrow e^{2\omega}$ 的匹配过程中起作用,但在这样匹配过程中,晶体无法满足位相匹配条件,即 $2k_c(\omega) \approx k_c(2\omega)$, 因此倍频光很弱。过去在实验中单畴晶体 d_{33} 倍频光强是通过改变入射光的电矢量的偏振方向外推得到的^[9]。这次我们试图运用 Maker 条纹法直接测定单畴 LiNbO_3 晶体在 $e^\omega \cdot e^\omega \rightarrow e^{2\omega}$ 非位相匹配下的倍频光强^[10], 这就能更加准确地检验准位相匹配理论。实验中单畴晶体的取向如图 3 所示, 通光方向垂直 z 轴, 晶体厚度 $L = 0.6835\text{mm}$, $E(\omega) \parallel z$, $E(2\omega) \parallel z$, 旋转轴 $\parallel z$ 。在晶体中,基波光及倍频光的波矢量分别为

$$\begin{aligned} |k'_1| &= \frac{\omega}{c} n_e(\omega); \\ |k'_2| &= \frac{2\omega}{c} n_e(2\omega). \end{aligned} \quad (2)$$

上式中 ω 为基波角频率, c 为光速, $n_e(\omega)$, $n_e(2\omega)$ 分别为基波光与倍频光在晶体中的

折射率。

由于 LiNbO_3 的非线性系数 d_{33} 是不能实现位相匹配的,故 $\Delta k = k'_2 - 2k'_1 \neq 0$ 。单畴晶体的 d_{33} 倍频光强由 Jerphagnon 等人得出^[12]

$$I_0(2\omega) = I_m(\theta) \sin^2 \phi, \quad (3)$$

其中 $I_m(\theta) = \frac{8\pi c d_{33}^2}{n^2(2\omega) - n^2(\omega)} T^2 R^4 E^4(\omega)$, $\phi = \pi l / 2l_c$, 而

$$l_c = \frac{\lambda}{4} \frac{1}{[n_c(2\omega) \cos \theta'_{2\omega} - n_c(\omega) \cos \theta'_{\omega}]}. \quad (4)$$

上式中 R, T 分别为反射因子和透射因子,对给定的晶体和基波光,只是入射角 θ 的函数。

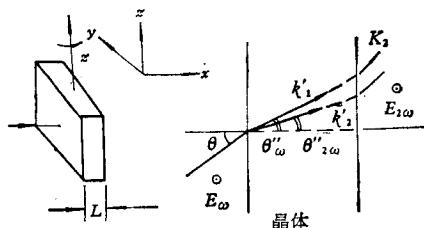


图3 基波和二次谐波在晶体中的传播

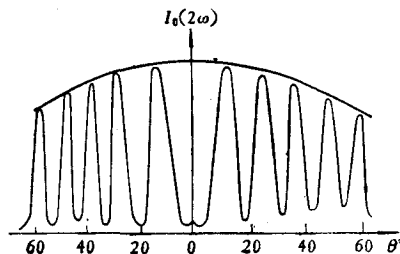


图4

从(4)式看出,由于 l_c 是入射角 θ 的函数,当晶体绕其 z 轴旋转时,位相因子 $\sin^2 \phi$ 使倍频光强呈周期性的变化。

当 $l/l_c = 2M + 1$, $\sin^2(\pi l / 2l_c) = 1$, 倍频光强呈极大。

当 $l/l_c = 2M$, $\sin^2(\pi l / 2l_c) = 0$, 倍频光强呈极小。其中 M 为正整数。

另一方面, $I_m(\theta)$ 也随 θ 角的变化而变化,使倍频光的极大值形成包络函数。包络函数反映了单畴晶体倍频光强与入射角 θ 之间的关系,对应每一个入射角 θ ,其 $I_m(\theta)$ 之值就是单畴晶体在对应入射角 θ 下所能达到的最大倍频光强,也即是单畴晶体在 θ 角时,满足了 $l/l_c = 2M + 1$ 条件时所应有的倍频光强。而包络函数在 $\theta = 0$ 时之值就是我们所要测定的单畴 LiNbO_3 晶体的 d_{33} 倍频光强^[11]。

图4为室温 16°C 时测得的单畴 LiNbO_3 晶体 d_{33} 倍频光强的角度扫描曲线(Maker 条纹)。光电倍增管的工作电压为 1400V ,基波光功率监视读数为 $2.2\text{--}2.4\text{mW}$,在前置放大 $\times 1$ 、灵敏度为 $30\mu\text{V}$ 时,单畴 LiNbO_3 d_{33} 倍频光强在 $\theta = 0$ 时,相应的锁定放大器的读数为 4.7V ,此即 $I_0(2\omega)$ 的相对值。

2. 聚片多畴 LiNbO_3 晶体的 d_{33} 倍频光强的测定

1) 实现聚片多畴 LiNbO_3 晶体的准位相匹配的两种途径

对于聚片多畴 LiNbO_3 晶体,其层状电畴的一维周期性用倒易矢量 $\mathbf{g}$ 来描述:其大小为 $|\mathbf{g}| = 2\pi / (l_p + l_n)$,方向是与畴界面的法线方向一致。设 $\Delta \mathbf{k}$ 矢量的单位矢量为 $\mathbf{K}$,且 $\Delta \mathbf{k} = \mathbf{k}'_2(2\omega) - 2\mathbf{k}'_1(\omega)$,这样准位相匹配条件就转为

$$\mathbf{g} \cdot \mathbf{K} = \Delta \mathbf{k} \cdot \mathbf{K}. \quad (5)$$

要测定聚片多畴 LiNbO_3 晶体的 d_{33} 倍频光强,就必须使晶体满足(5)式的关系。虽

然当晶体长成以后,其倒易矢量 $\mathbf{g}$ 就是一个常量,但我们可通过改变温度和入射角 θ 来使(5)式得以满足,从而实现准位相匹配,得到最大的倍频输出。

在实验中我们分别记录到 d_{33} 倍频光强的温度扫描曲线和角度扫描曲线,如图 5 所示。

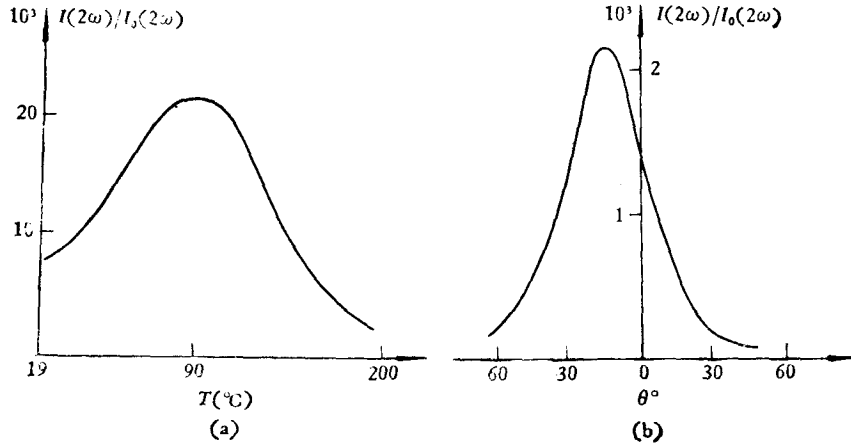


图 5

图 5 中扫描曲线的峰值表明,在峰值对应的温度或角度下,晶体满足了准位相匹配条件((5)式)而使倍频光强呈极大值。从这里我们看到,只有在实验上测得满足了准位相匹配的倍频光强,才能准确地检验准位相匹配理论。在本工作中,我们采用温度扫描方法,因为它比角度扫描更为精确。

2) 聚片多畴晶体的 d_{33} 倍频光强的测定

设有 N 层晶体, $l_p \approx l_n$, 但有 $l_p + l_n = 2l_c$ 时(参阅图 6),在小信号近似下,并且考虑了由于倍频光的产生而导致基波光的减弱¹⁾及材料对倍频光吸收的影响时,出射频光的振幅为

$$I(2\omega)/I_0(2\omega) = N^2 \cdot \cos^2 \left(\frac{|l_p - l_c|\pi}{2l_c} \right) \cdot \left\{ 1 - \frac{1}{6} Q(N-1)(2N-1) + \frac{1}{60} Q^2(N-1)[8(N-1)^3 - 3(N-1)^2 - 7(N-1) + 2] \right\}^2 \cdot e^{-\alpha l}. \quad (6)$$

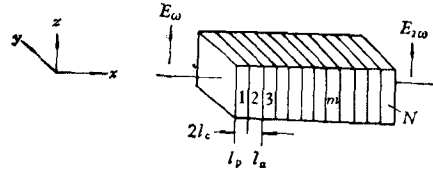


图 6 聚片多畴 LN 晶体

(6)式中出现三项修正因子是: 第一项是由于正、负电畴厚度不等而出现的; 第二项是考虑到由于倍频光的产生而导致的基波光的减弱而出现的, $Q = I(2\omega)/N^2 \cdot I_0(\omega)$, $I(2\omega)$ 为未考虑基波光减弱时的倍频光强, $I_0(\omega)$ 是入射基波光强; 第三项是考虑了材料对倍频光的吸收而出现的, 对 LiNbO_3 晶体, 在 $0.8-2.6\mu\text{m}$ 波段 $\alpha = 0.08\text{cm}^{-1}[13]$ 。我

1) 吴征、浦玉麟, 南京大学物理系毕业论文。

们估算了修正因子的影响,当 $N = 10^3$ 时修正因子综合起来的影响为减弱 15% 左右,在 $N = 10^2$ 时,修正因子除 $\cos(|l_p - l_c|\pi/2l_c)$ 一项外,其他两项都可以忽略.

在实验中,我们对 $N \leq 200$ 情况,对(1)式进行验证,所得结果如图 7 所示. 图中 $I(2\omega)/I_0(2\omega)$ 是聚片多畴晶体的倍频光强与单畴晶体倍频光强的相对值,实线为由(1)

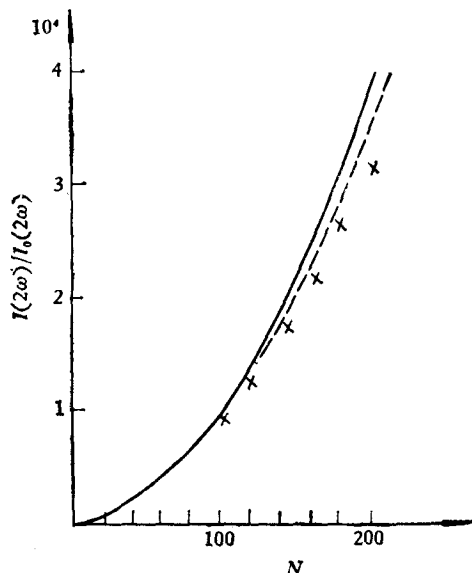


图 7 聚片多畴 LN 晶体的倍频
相对强度与片畴数的关系

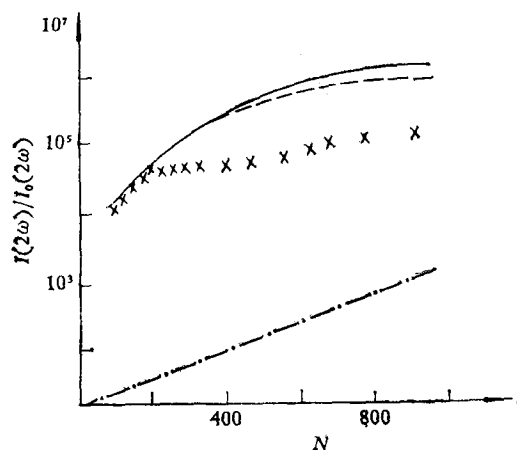


图 8 图例同图 7

式计算而得的理论曲线,虚线为在(6)式中考虑了修正因子 $\cos(|l_p - l_c|\pi/2l_c)$ 后计算而得的修正曲线,“x”为实验点. 从图中看出 N 在 200 以下的实验结果是令人满意的.

另外,我们也测量了更多片数晶体的倍频光强,实验结果如图 8 所示. 图中采用单对数坐标,点划线是按 $I(2\omega)/I_0(2\omega) \propto N$ 计算的曲线,该曲线是代表片畴厚度按无规分布时的理论曲线.

从总体上看,实验点是接近 $I(2\omega)/I_0(2\omega) \propto N^2$ 曲线,而与 $I(2\omega)/I_0(2\omega) \propto N$ 曲线的差异近两个数量级. 这也说明了具有周期性排列的聚片多畴晶体比起完全无规排列的多畴晶体来讲,倍频效应增强因子提高 N 倍左右.

实验结果在 $N < 200$ 时是令人满意的,但在 $N > 200$ 时,与理论值差距逐步增大,主要原因是片畴厚度还不够规则. 当 $N = 940$,与单畴晶体相比,倍频增强因子为 7.4×10^4 . 因此聚片多畴晶体运用准位相匹配,对 d_{33} 倍频光的增强效应是极其可观的.

为了今后进一步探讨聚片多畴 LiNbO_3 晶体在实际应用中的价值,我们还从实验上把晶体的 d_{33} 倍频光强与相同长度、相同质量的单畴晶体的 d_{31} 位相匹配的倍频光强作了对比. 实验中单畴 LiNbO_3 晶体的 d_{31} 位相匹配是运用改变晶体温度方法来达到 $(o^\omega \cdot o^\omega \rightarrow e^{2\omega})$ 匹配,入射基波光垂直晶体表面入射,入射基波光的偏振方向垂直于晶体光轴. 所得的实验结果如表 1 所示.

表 1

	晶体长度 (mm)	片 畴 数	SH 相对值 (d_{33}) 准位相匹配	SH 相对值 (d_{31}) 位相匹配	增强因子
1	0.340	100	29.7	1.75	16.9
2	0.408	120	41	2.5	16.3
3	0.476	140	57	3.4	16.6
4	0.544	160	74.6	4.5	16.6
5	0.612	180	92	5.7	16.1
6	0.680	200	96.8	7	13.8

四、聚片多畴 LiNbO_3 晶体倍频效应的结构敏感性

在测定聚片多畴 LiNbO_3 晶体倍频效应的同时, 我们还研究了倍频效应对晶体的电畴结构的依赖关系. 现从以下三个方面来说明倍频效应对电畴结构的敏感性.

1. 晶体 g 矢量的值对准位相匹配温度的影响

前面我们得到, 当样品的 g 一定时, 在晶体的倍频光强的温度扫描曲线上, 曲线的峰值有一定的准位相匹配温度 T_i 与之相对应. 当不同样品的 g 矢量有差异时, 则就会引起 T_i 值的变化.

若基波光垂直入射到晶体表面, 因为 $\theta = 0$, 则有 $\theta'_\omega = \theta'_{2\omega} = 0$, 所以由(4)式则有

$$l_c = \frac{\pi}{|\Delta k|} = \frac{\lambda}{4} \frac{1}{n_c(2\omega) - n_c(\omega)}. \quad (7)$$

因为 $n_c(2\omega)$, $n_c(\omega)$ 都是晶体温度 T 的函数, 所以有

$$\Delta l_c = -\frac{\lambda}{4} \frac{1}{[n_c(2\omega) - n_c(\omega)]^2} \cdot \frac{d[n_c(2\omega) - n_c(\omega)]}{dT} \Delta T. \quad (8)$$

从(8)式可以看出 Δl_c 与 ΔT 的关系, 根据 $\Delta[n_c(2\omega) - n_c(\omega)]$ 随温度变化的关系, 我们可以定性得到, 当 $\Delta l_c < 0$, 则 $\Delta T > 0$.

在晶体输出倍频光强达峰值时, 关系式(5)成立. 因此, 对于具有不同 g 矢量的样品, 就必须有不同的 Δk 与之相适应, 也就是应有不同的准位相匹配温度 T_i 来相适应.

我们分别测出样品的倍频光强温度扫描曲线, 并分别由峰值位置得到相应的准位相匹配温度 T_i 值, 表示在图 9 中. 图中“ $\circ$ ”为实验点, 实线是由(7)式计算的 $l_c - T_i$ 关系曲线. 实验证实了晶体的 g 矢量值与 T_i 的关系, 并进一步说明了在同一温度(如室温)时, 聚片多畴 LiNbO_3 晶体的倍频效应对表征聚片多畴结构的参量 g 是极其敏感的.

2. 倒易矢量 g 的分布对倍频强度的影响

基波光经过 N 层厚度为 l' 的片畴后, 所产生的倍频光的合振幅为^[7]

$$|E(2\omega)| = \frac{8\pi d_{33}}{n^2(2\omega) - n^2(\omega)} TR^2 E^2(\omega) \left| \sin\left(\frac{\pi l'}{2l_c}\right) \cdot \sum_{m=1}^N (-1)^{m-1} \right|$$

$$\cdot \exp[-i(m-1)\pi l'/l_c] \Big| . \quad (9)$$

我们看 Σ 项, 当 $l'/l_c = 1$, 则 $\sum_{m=1}^N$ 项为 N ; 当 $l'/l_c \neq 1$, 则 $\sum_{m=1}^N$ 项为 $N' < N$; 我们算 N' 为有效片畴数.

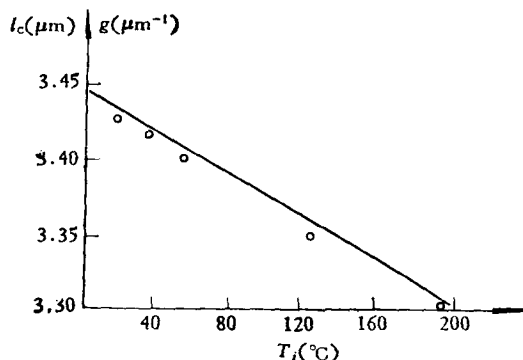


图9 聚片多畴 LN 晶体相干长度与准位相匹配峰值温度的关系

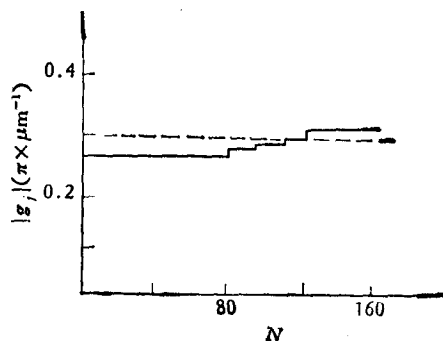


图10 聚片多畴 LN 晶体的倒易矢量的分布

用 g_i 表示样品中倒易矢量随层数 i 的分布情况, 其中 i 为 $1, 2, \dots, N$. 若样品的 g_i 有差异时, 就会有不同的有效片畴数 N' , 致使晶体的倍频强度受影响. 我们选取了两块样品, 具有相同的片畴数 ($N = 160$), 但 g_i 的分布情况不同, 如图 10 所示. 图中虚线为 01# 样品的 g_i 分布曲线, 实线为 02# 样品的 g_i 分布曲线. 从实验测得它们的倍频光相对强度分别为

$$01\# \text{ 样品: } I(2\omega)/I_0(2\omega) = 2.3 \times 10^4;$$

$$02\# \text{ 样品: } I(2\omega)/I_0(2\omega) = 2.2 \times 10^3.$$

两个样品的强度之比几乎近 10 倍.

首先分析 01# 样品, 它的电畴结构的周期性是比较完整的, g_i 的值在 g_0 值上下略有起伏, 我们把它表示为 $g_i = g_0 \pm \Delta g$, 且 $\Delta g \ll g_0$, 这样它的倍频光强只要在不考虑材料吸收和基波光减弱的条件下, 在 (6) 式中再作一个 $\cos^2 \varphi$ 的修正即可. 下面用振幅矢量合成图 (见图 11) 来阐明 φ 的求得.

若晶体的电畴排列是完全周期的, 则入射基波光经过 N 层片畴以后, 倍频光的电场合振幅矢量沿图 11 中的 OC 方向, 而且 AO 与 OC 之间的夹角为 $|l_p - l_c| \cdot \pi / 2l_c$.

若晶体的电畴排列为 $g_i = g_0 \pm \Delta g_i$, 由于 Δg_i 的存在, 入射光经过数层片畴以后, 倍频光的电场合振幅矢量就与 OC 又有一个偏离角 θ' , 而 $\theta' = \Delta l \cdot \pi / 2l_c$, 其中 Δl 是由 Δg_i 相应引起的片畴的层厚的波动. 因为 Δg_i 的波动可以认为是一种无规的起伏, 所以经过 N 层以后, 虽然 $\sum_{m=1}^N \theta'_m = 0$, 但 $\bar{\theta}^2 = N\theta'^2$, 所以 $\sqrt{\bar{\theta}^2} = \sqrt{N}\theta'$, 而 $\varphi = \sqrt{\bar{\theta}^2} = \sqrt{N}\theta'$.

φ 反映了基波光经过 N 层聚片多畴晶体后, 其倍频光电场合振幅矢量与 OC 的夹角

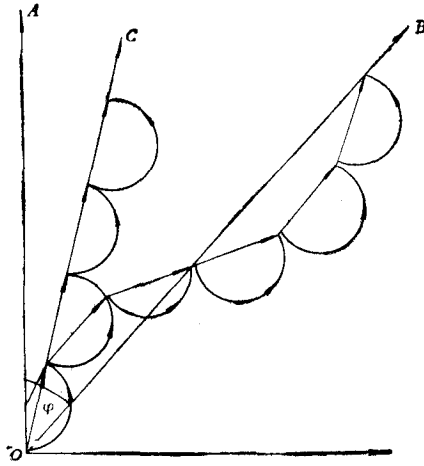


图 11 在聚片多畴 LN 晶体中
倍频光电场振幅矢量的合成

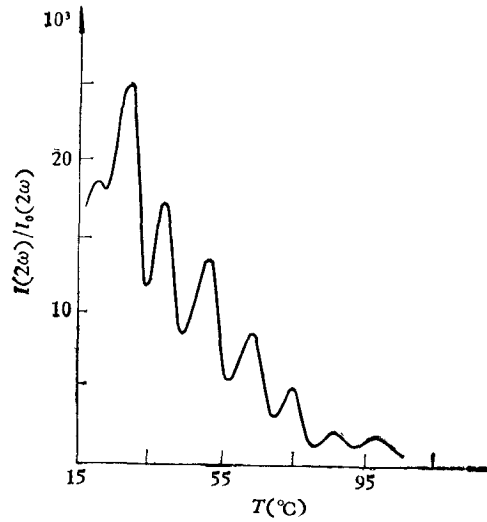


图 12

的平均效应。这样其合振幅矢量沿图 11 中 OB 方向, 对于我们的样品 φ 在 $10-15^\circ$ 左右。

对于 02# 样品, 我们采用分段阶梯近似方法来求其有效片畴数 N' 。根据晶体中电畴结构的实际情况, 我们将样品的 160 层片畴分为前 70; 70—80; 80—90; 90—100; 100—110; 110—120; 120—160 共 7 段来实现阶梯近似。这样(9)式中求和一项为

$$\sum_{m=1}^N \dots = \sum_{m=1}^{70} \dots + \sum_{m=71}^{80} \dots + \sum_{m=81}^{90} \dots + \dots + \sum_{m=121}^{160} \dots$$

对于其中每一段找一个平均层厚, 而设每一段共有层数为 K , 就有

$$\begin{aligned} \sum_{m=1}^K \dots &= 1 + \cos \pi \left(\frac{l' - l_c}{l_c} \right) + \cos 2\pi \left(\frac{l' - l_c}{l_c} \right) \\ &+ \dots + \cos (K-1)\pi \left(\frac{l' - l_c}{l_c} \right) \\ &- i \left[\sin \pi \left(\frac{l' - l_c}{l_c} \right) + \sin 2\pi \left(\frac{l' - l_c}{l_c} \right) \right. \\ &\left. + \dots + \sin (K-1)\pi \left(\frac{l' - l_c}{l_c} \right) \right]. \end{aligned} \quad (10)$$

从而可以求得有效片畴数 N' 。对于我们的样品 $N' \approx 48.7$, 因此 02# 样品的相对倍频光强计算值为 $I'(2\omega)/I_0(2\omega) = 2.4 \times 10^3$, 这一数值与实验值 2.2×10^3 就比较接近。

3. 聚片多畴 LiNbO_3 晶体畴结构对倍频光强的温度扫描曲线的影响

在聚片多畴 LiNbO_3 晶体畴结构的周期性比较完整的样品中, 作其倍频光强的温度扫描曲线, 得到的曲线形态如图 12 所示。在 $N = 200; 300$ 时都出现类似形态的温度扫描曲线。其特征是在曲线上呈现一些周期性调制效应。这些极大值的包迹基本上与通常

的温度扫描曲线形态类似。每个极大值所对应的温度 T_i , 相邻 T_i 之间的差值基本上近似相等。

五、讨 论

1. 实验上测定聚片多畴 LiNbO_3 晶体的倍频效应, 并与单畴 LiNbO_3 晶体的倍频效应相比, 所得的实验结果, 基本上证实了 Bloembergen 关于准位相匹配理论的预言, 同时也证实了聚片多畴 LiNbO_3 晶体是实施准位相匹配的有效途径之一。聚片多畴晶体实现 $e^\omega \cdot e^\omega \rightarrow e^{2\omega}$ 准位相匹配后, 晶体的倍频效应明显增强, 与单畴晶体的非位相匹配的 d_{33} 倍频光强比, 基本上实现了与片畴数成 N^2 关系, 尤其在 $N = 200$ 以下实验结果是令人满意的。同时, 与单畴晶体位相匹配的 d_{31} 倍频光强 (相同长度) 比较, 提高一个数量级之多。因此对聚片多畴晶体的应用, 提供了确切的依据。若能继续提高生长工艺水平, 当 $N = 10^3$ 量级时, 可以期望倍频强度再提高一至两个数量级, 这样就将接近于实际应用的水平。另一方面也可以采用将若干个 200 片的周期性完整的样品组合起来的方法, 来得到具有实用意义的晶体。

2. 从分析中看到准位相匹配对倍频效应的影响是重要的。在实验上通过对晶体的倍频光强的角度扫描及温度扫描也证实了这一点。从倍频效应对畴结构的敏感性上, 看到表征聚片多畴晶体周期性的倒易矢量 g 是否满足 (5) 式是很重要的。从分析中看到, 在选择样品使 g 略大一些为好, 这样就可以方便地通过升高温度或改变入射角 θ 来实现准位相匹配, 而达到最大倍频输出光强。反之, 则要通过降低晶体温度来实现准位相匹配, 而这在实验上就比较困难一些。

参 考 文 献

- [1] J. A. Armstrong, N. Bloembergen, *Phys. Rev.*, **127** (1962), 1918.
- [2] R. C. Miller, *et al.*, *Phys. Rev.*, **134** (1964), A 1313.
- [3] S. U. Stefanovich and U. N. Venetsev, *Kristallografiya*, **20** (1975), 775.
- [4] C. F. Dewey and L. O. Hocker, *Appl. Phys. Lett.*, **26**(1975), 442; L. O. Hocker and C. F. Dewey, *Appl. Phys. Lett.*, **29**(1976), 113.
- [5] J. P. van der Ziel, M. Lilegms, *Appl. Phys. Lett.*, **28** (1976), 437.
- [6] D. E. Thompson, *et al.*, *Appl. Phys. Lett.*, **29** (1976), 113.
- [7] 岡田正胜, 滝沢国治, 家人胜吾, *NHK 技术研究*, **29**(1977), 24.
- [8] Y. R. Shen, in "Nonlinear Spectroscopy" edited by N. Bloembergen, North-Holland, (1977), 201.
- [9] Feng Duan (冯端), Min Nai-ben (闵乃本) *et al.* *Appl. Phys. Lett.*, **37**(1980), 607.
- [10] Min Nai-ben (闵乃本), *et al.*, *J. Mater. Sci.* **17**(1982), 1663; *物理学报* **31**(1982), 104.
- [11] 李荫远, 杨顺华, 非线性光学, 科学出版社.
- [12] J. Jerphagnon, *et al.*, *J. Appl. Phys.*, **41**(1970), 1667.
- [13] E. N. Volka and V. V. Fadeev, in "Nonlinear Optics", Nauka, Novosibirsk, (1968), 185.

THE SECOND HARMONIC GENERATION IN LiNbO_3 CRYSTALS WITH PERIODIC LAMINAR FERROELECTRIC DOMAINS

XUE YING-HUA MIN NAI-BEN ZHU JIN-SONG FENG DUAN

(*Department of Physics, Nanjing University*)

ABSTRACT

We studied the second harmonic generation of light in LiNbO_3 crystals with periodic laminar ferroelectric domains, in order to make a detailed experimental verification of the theory of quasi-phase-matching proposed by N. Bloembergen et al. First we determined the second harmonic light intensity of single domain LiNbO_3 crystals in the regime $e^\omega \cdot e^\omega \rightarrow e^{2\omega}$. Then by using angle-scanning and temperature-scanning, we obtained the maximum second harmonic output from crystals with periodic domains corresponding to quasi-phase-matching. We have verified experimentally the relation that the second harmonic output is proportional to N^2 (N is the number of domains in the crystal) with N up to 200. We have compared the second harmonic output of crystals with periodic laminar domains in the quasi-phase-matching regime with that of single domain crystals of the same length and optical quality under phase-matched condition $e^\omega \cdot e^\omega \rightarrow e^{2\omega}$. An order of magnitude enhancement of second harmonic light output has been found. Finally, the structure sensitivity of the second harmonic generation of LiNbO_3 crystal with periodic laminar ferroelectric domains has also been studied experimentally.