

高掺镁铌酸锂晶体的生长和倍频性能

仲跻国 徐观峰 王廷福 张纯玉 吕玉才 吕长青 陈家容¹⁾

(西南技术物理研究所, 成都)

1982年7月28日收到

提 要

我们通过测定 MgO 在同成分 LiNbO_3 中的有效分凝系数、相位匹配温度与 MgO 浓度之间的关系, 找到了使 $\text{Mg}:\text{LiNbO}_3$ 晶体的相位匹配温度达到最高的掺 MgO 配方, 并克服了 $\text{Mg}:\text{LiNbO}_3$ 晶体在高掺杂生长时易出现生长条纹和脱溶等问题, 从而生长出了抗光折变能力强, 光学均匀性良好的 $\text{Mg}:\text{LiNbO}_3$ 晶体. 用于连续泵浦 $\text{Nd}:\text{YAG}$ 声-光调 Q 腔内倍频时, 获得了平均功率最高达 2 瓦的二次谐波输出.

一、引 言

固液同成分 LiNbO_3 晶体是一种光学性能优良和非线性系数较大的多用途材料. 但在激光倍频时易产生光折变, 严重地妨碍它在非线性光学方面的应用. 为克服光折变问题, 若采用掺入过量 Li_2O 的方法来提高相位匹配温度, 晶体的光学均匀性却随 Li_2O 含量的增加而变差^[1], 难于生长出适合倍频应用的晶体. Bridenbaugh 等人在同成分 LiNbO_3 配比中掺入 1% 克分子浓度的 MgO ^[2], 使相位匹配温度净增 40°C , 但离消除光折变的退火温度还相当远. 此后, 文献中未见有掺更高 MgO 浓度的报道.

本工作通过测定不同浓度的 MgO 在同成分 LiNbO_3 中的有效分凝系数, 相位匹配温度和 MgO 浓度之间的关系, 找到了使相位匹配温度达到最高的配方, 从而明显地提高了晶体的抗光折变能力. 在生长工艺方面, 克服了高掺 MgO 晶体易出现生长条纹和极化退火时出现脱溶等问题, 生长出了光学均匀性良好的单晶. 在连续泵浦 $\text{Nd}:\text{YAG}$ 声-光调 Q 腔内倍频实验中, 获得了高平均功率二次谐波输出.

二、晶 体 生 长

生长 $\text{Mg}:\text{LiNbO}_3$ 晶体的原料采用 4N 的 Nb_2O_5 , 3N 的 Li_2CO_3 和光谱纯的 MgO . 在同成分 LiNbO_3 的配比中(Li_2O 占 48.6% 克分子)掺入一定量的 MgO , 经过混合、压块烧结成多晶备用.

采用提拉法生长晶体. 铂坩埚装料 250—300 克, 籽晶取向为 $\langle 001 \rangle$. 为提高晶体

1) 参加本工作的还有秦洪英、熊燮清、曾祥训、邹福清、彭维清等同志.

的光学质量, 我们采用较低的炉内纵向静态温度梯度(如图 1); 减慢提拉速度来防止因 MgO 的掺入和 Li_2O 的析出引起的组分过冷现象. 保持籽晶的转速在 20—30 转/分. 这样在我们的生长系统上, 熔体内外无温度振荡现象. 生长晶体时的固液界面形状较为平坦. 生长出直径为 20—25 毫米、长 70 毫米左右的透明单晶, 在炉内退火 12 小时左右, 成品率达到 60—70%.

掺杂晶体出现生长条纹的原因是溶质的有效分凝系数 $K_{\text{有效}}$ 不为 1. 当生长参数发生变化时, $K_{\text{有效}}$ 随着变化, 引起晶体中溶质浓度起伏所致. 我们通过测定 $K_{\text{有效}}$ 与 MgO 在熔体中浓度的关系(如图 2), 发现 MgO 的克分子浓度在 5—8% 的范围内, $K_{\text{有效}}$ 接近于 1. 在该区间生长晶体, 加之严格控制生长条件, 平滑均匀地改变温度, 能有效地减少甚至完全消除生长条纹(如图 3). 显著地提高了光学质量.

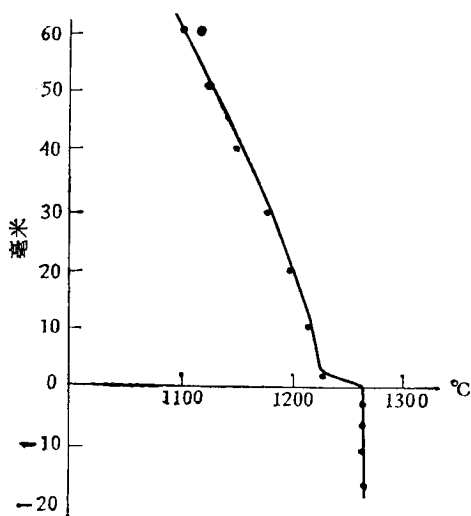


图 1 炉内纵向静态温度分布

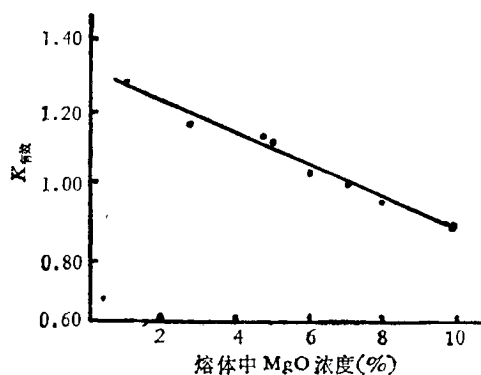


图 2 有效分凝系数与熔体中 MgO 浓度的关系

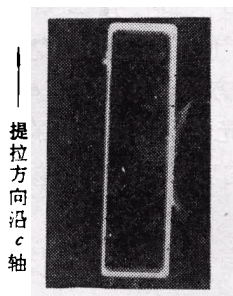


图 3 无生长条纹的 5% 克分子浓度的 $\text{Mg}:\text{LiNbO}_3$ 晶体(放大倍数 1 倍)

三、极化退火

生长高浓度 $\text{Mg}:\text{LiNbO}_3$ 晶体还受到 MgO 在同成分 LiNbO_3 晶体中固溶度的限制, 如沿用通常 LiNbO_3 晶体极化退火工艺, 对 MgO 浓度大于 5% 的晶体会出现脱溶现

象,呈乳白色,使晶体部分或者完全失透,不能应用. 我们经过长时间的摸索,找到了较佳的极化退火工艺. 采取在 1000°C 以下以较快的速度降温和低电流密度极化的方法,克服了 MgO 克分子浓度为 $5-8\%$ 的晶体脱溶现象. 经过这样极化处理后的晶体,使用多年,性能稳定. 在波长 $0.4-4$ 微米范围内,透过率约 70% 厘米 $^{-1}$ (晶体表面未镀增透膜). 极化退火后脱溶和未脱溶的晶体如图 4 照片所示.

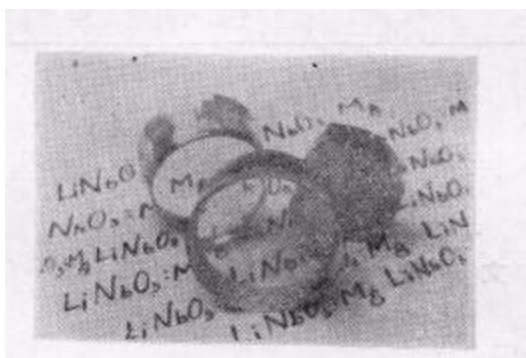


图 4 极化退火后脱溶和未脱溶晶体照片
样品厚 10 毫米

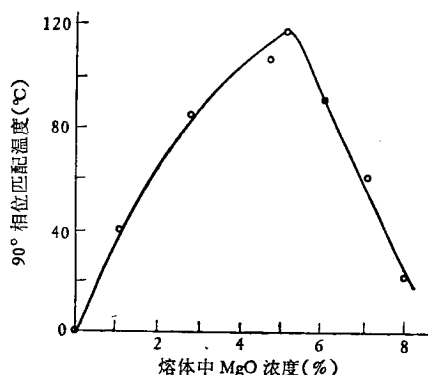


图 5 $\text{Mg}:\text{LiNbO}_3$ 晶体 1.06 微米激光倍频时相位匹配温度与熔体中 MgO 克分子百分浓度的关系

四、倍频特性

$\text{Mg}:\text{LiNbO}_3$ 晶体中 MgO 的浓度与 1.06 微米激光倍频时相位匹配温度之间的关系如图 5 所示. 各种浓度的 $\text{Mg}:\text{LiNbO}_3$ 晶体的相位匹配温度都在室温以上,而掺 MgO 克分子浓度为 5% 的晶体的相位匹配温度最高达到 120°C . 最近 Byer 等人的实验结果确认^[3],对含铁量低的晶体,温度到 120°C 已达到消除光折变的退火温度. 对角度匹配即临界相位匹配而言, $\text{Mg}:\text{LiNbO}_3$ 晶体对 1.06 微米激光倍频能在室温下进行,避免了同成分 LiNbO_3 晶体用于倍频时,需在室温以下使用的缺点.

对 MgO 的克分子浓度在 $5-7\%$ 范围内的晶体,其光学均匀性用光学补偿法 (He-Ne 激光,稳定度 $\pm 3\%$,光束直径为 0.8 毫米)逐点扫描和正交偏光干涉法进行测量,测得的双折射梯度一般达到 10^{-5} 厘米 $^{-1}$ 量级.

我们对 $\text{Mg}:\text{LiNbO}_3$ 晶体进行了连续泵浦 Nd:YAG 声-光调 Q,腔内倍频实验^[4]. 在氦灯泵浦功率为 3.6 千瓦,声光调制频率为 3 千赫,输出腔镜在最佳耦合输出时,获得平均功率为 6 瓦的基波功率输出. 当 $\text{Mg}:\text{LiNbO}_3$ 晶体在非临界相位匹配时,二次谐波输出的实验结果列于表 1 中. 谐波最大功率可达到 2 瓦,对非偏振光单程倍频效率达到 34% .

腔外脉冲倍频时,用掺 5% 的 $\text{Mg}:\text{LiNbO}_3$ 晶体,在非临界相位匹配下,对基波(1.06 微米)功率密度为 50 兆瓦/厘米 2 ,重复频率为 0.5 次/秒的非偏振光脉冲倍频,获得平均倍频效率达到 $20-25\%$,工作万次以上,晶体未出现光损伤.

由实验可知,高掺 $\text{Mg}:\text{LiNbO}_3$ 晶体是一种中小功率脉冲倍频的较好材料,用于腔内

表1 声-光调Q腔内倍频实验结果

晶体编号	掺镁浓度 (克分子%)	晶体尺寸 (x, y, z 毫米)	0.53 微米平 均功率 (毫瓦)	0.53 微米脉 宽 (毫微秒)	0.53 微米峰 值功率 (千瓦)	倍频效率 (%)
1 #	4.5	11×11×25	1640	~300	1.8	27
2 #	5.0	15×15×10	2070	~300	2.3	34
3 #	5.0	20×10×10	1850	~300	2.0	31
4 #	7.0	20×10×10	1420	~300	1.6	24

高重复频率脉冲倍频,可提供强的绿光光源.

本工作曾得到李吉相同志的指导,韩凯、徐绍铃、四川大学曾传相、周业为等同志做了部分倍频实验,谨此致谢.

参 考 文 献

- [1] J. E. Midwinter, *J. Appl. Phys.*, **39**(1968), 3033.
- [2] P. M. Bridenbaugh, *J. Crystal Growth*, **19**(1973), 45.
- [3] R. L. Byer *et al.*, *Appl. Phys. Lett.*, **39**(1981), 17.
- [4] 王廷福、张纯玉, 中国激光, 待发表.

THE GROWTH AND THE FREQUENCY DOUBLING CHARACTERS OF HEAVILY DOPED Mg:LiNbO₃ CRYSTALS

Zhong Ji-guo Xu Guan-feng Wang Ting-fu Zhang Chun-yu

Lü Yu-cai Lü Chang-qin Chen Jia-rong

(South-West Institute of Technical Physics, Chengdu)

ABSTRACT

By determining the relations between the effective distribution coefficient of MgO in the congruent LiNbO₃ and the phase-matching temperature and the concentration of MgO, chemical composition which makes the Mg:LiNbO₃ to get the highest phase-matching temperature has been found. The problems frequently encountered in heavily doped Mg:LiNbO₃ crystal growth, such as growth striations and precipitation etc, have been resolved.

The Mg:LiNbO₃ crystals with high resistance to light-induced refractive index changes and good optical quality have been grown. Using the crystals for frequency doubling of a continuously pumped acousto-optical Q-switch Nd:YAG laser, second harmonic output with the highest average power of 2 W have been obtained.