

南京大学

硕士学位论文

三倍频光学超晶格的研制和全固态蓝红双色激光器

姓名：罗国珍

申请学位级别：硕士

专业：凝聚态物理

指导教师：祝世宁

2002. 6. 5

摘 要

光学超晶格是根据准位相匹配原理设计的具有人工调制结构的非线性光学材料,其特点是可以利用晶体的最大非线性系数在整个透明波段实现激光的高效变频。因为它具有增益高、阈值低、易于实现相位匹配等优异性能,近十多年受到激光与光电子技术领域研究人员的普遍重视,竞争也十分激烈。本论文根据我们自己发展的准位相匹配耦合参量理论,研究了周期与准周期 LiTaO_3 (LT)、 LiNbO_3 (LN)光学超晶格的倍频,三倍频和三基色转换功能并在此基础上研制出能同时输出蓝—红双色激光的小型全固态激光器原型。主要内容包括:

1. 研究比较了 LT 和 LN 晶体的室温极化特性,讨论了 LT 晶体 Li, Ta 原子比和 LN 晶体的 Li, Nb 原子比对各自极化性能的影响。
2. 成功极化出 LT 周期超晶格,并首次在一块周期超晶格中实现准连续 Nd:YVO_4 1342nm 的三倍频,得到较高功率水平的蓝光和红光同时输出,671nm 红光最高平均功率达 1W,447nm 蓝光最高平均功率达 130mW。在此基础上,我们以 808nm 半导体激光器为泵浦源,以 Nd:YVO_4 晶体为激光晶体,成功研制一台蓝红双色激光器原型器件。
3. 根据投影理论,设计了能实现 1342nm 基波三倍频的 LN 二组元准周期光学超晶格,以及能将 1064nm 基波转换成红绿蓝三基色的三组元准周期超晶格。
4. 通过紫外吸收边、 OH^- 红外吸收峰、差热分析和矫顽场分析,测定了近化学计量比 LN 中 Li, Nb 原子数的比值。用 Li 空位模型解释了 Li, Nb 原子比对近化学计量比铌酸锂晶体矫顽场的影响。成功极化出厚度为 1mm 用于实现 1342nm 三倍频的准周期结构近化学计量比铌酸锂。

Abstract

Optical superlattice is a new kind of nonlinear optical material with man-made modulation structure devised by the theory of Quasi-Phase Matching (QPM). The main property of optical superlattice is that it can realize efficient frequency conversion in the whole transparent range of the crystal. Because of its excellent performance including high amplification, low threshold, easiness to realize phase matching, it has been paid special attention in the fields of laser and optoelectronics in recent years, and intensive competition has arised. In this thesis, we investigated the Second Harmonic Generation (SHG), Third Harmonic Generation (THG) and three fundamental colors generation in the periodic, quasi-periodic superlattice of LiTaO_3 (LT) and LiNbO_3 (LN) crystals and built a small all-solid-state laser through the QPM coupling parametric theory developed by ourselves. The main contents are described as follows:

1. We studied and compared the poling characteristics of LT and LN crystals at room temperature, and discussed the influence of the value of $[\text{Li}]/[\text{Ta}]$ and $[\text{Li}]/[\text{Nb}]$ on the poling performance of LT and LN, respectively.
2. We poled periodic superlattice of LT. For the first time, we realized Third Harmonic Generation of quasi-continuous 1342nm of Nd:YVO_4 using this periodic superlattice. The highest average powers of red and blue light were about 1 W and 130 mW, respectively. On the basis of this experiment, we successfully built a blue-red bicolor laser pumped by laser diodes of 808nm with the laser crystal of Nd:YVO_4 .
3. We designed two-component quasi-periodic superlattice to realize THG of 1342nm in LN, and three-component quasi-periodic superlattice to get red, green and blue light by the method of projecting.
4. By the way of ultra-violet absorption edge, infrared absorption spectrum, Differential Thermal Analyzer (DTA) and coercive field, we

measured the ratio of the number of Li atom and Nb atom in the near-stoichiometric LiNbO_3 (LN) crystals. We explained the influence of this ratio on the characteristics of near-stoichiometric and congruent LN crystal with the model of Li^+ vacancy. We successfully poled quasi-periodic superlattice in the near-stoichiometric LN crystal with the thickness of 1mm to realize THG of 1342nm.

第一章 前言

1960年世界上第一台激光器的发明使非线性光学的发展成为可能。1961年, Franken等人将红宝石激光束聚焦到石英晶体上,首次观察到了红宝石激光的二次谐波辐射。这个实验证实了极化强度与入射光场的关系是非线性的,导致了新的激光频率的产生,从此开创了非线性光学这个全新的领域。

在 Franken 等人的实验中,倍频光和基波光位相是不匹配的,因此入射的基波光只有极少部分能被转换成倍频光,效率很低,大约在 10^{-8} 量级。该实验报道后不久, Kleinman 等人提出双折射相位匹配 (BPM) 理论,指出可以利用晶体的双折射效应使基波光和倍频光位相匹配,大大提高倍频效率。1962年 Bloembergen 等人和 1963年 Franken and Ward 分别独立提出准位相匹配 (QPM) 的概念:通过晶体的非线性极化率的周期性调制弥补光参量过程中由于色散造成的基波和谐波之间的位相失配,以获得非线性光学效应的增强。准位相匹配的基本原理可以从两个方面来理解。第一,从倒空间来看,非线性变频过程需要同时满足能量守恒和动量守恒。以倍频过程为例,通常情况下存在波矢失配,转换过程不满足动量守恒,因此转换很低。而准位相匹配技术则可以利用超晶格中非线性系数的调制提供适当的倒格矢,补偿转换过程中的波矢失配,以满足动量守恒条件,即

$$k_{2\omega} - 2k_{\omega} - G = 0 \quad (1.1)$$

其中 $k_{2\omega}$, k_{ω} 分别为二次谐波和基波的波矢, G 为超晶格提供的倒格矢。在光参量过程满足式(1.1),即满足准位相匹配条件的条件下,转换效率将显著提高。第二,从正空间来看,在位相失配条件下,能量在基波光和倍频光之间的传输每经过一个相干长度就改变一次方向,因此转换效率以两倍相干长度为周期振荡。而在准位相匹配条件下,晶体的非线性系数每过一个相干长度改变一次符号,同时也改变了能量流动的方向。这样,能量可以持续的由基波光流向倍频光,转换效率得以不断提高。如图 1-1 所示,图中 A、B 分别指代 BPM 和 QPM 过程。准位相匹配的思想奠定了介电体超晶格在非线性光学领域理论和应用研究的基础。

用微结构材料代替均匀材料,利用 QPM 实现激光频率转换,在技术上具有很大的吸引力。这是因为采用 BPM 受到材料本身的许多限制,如晶体需要沿特殊

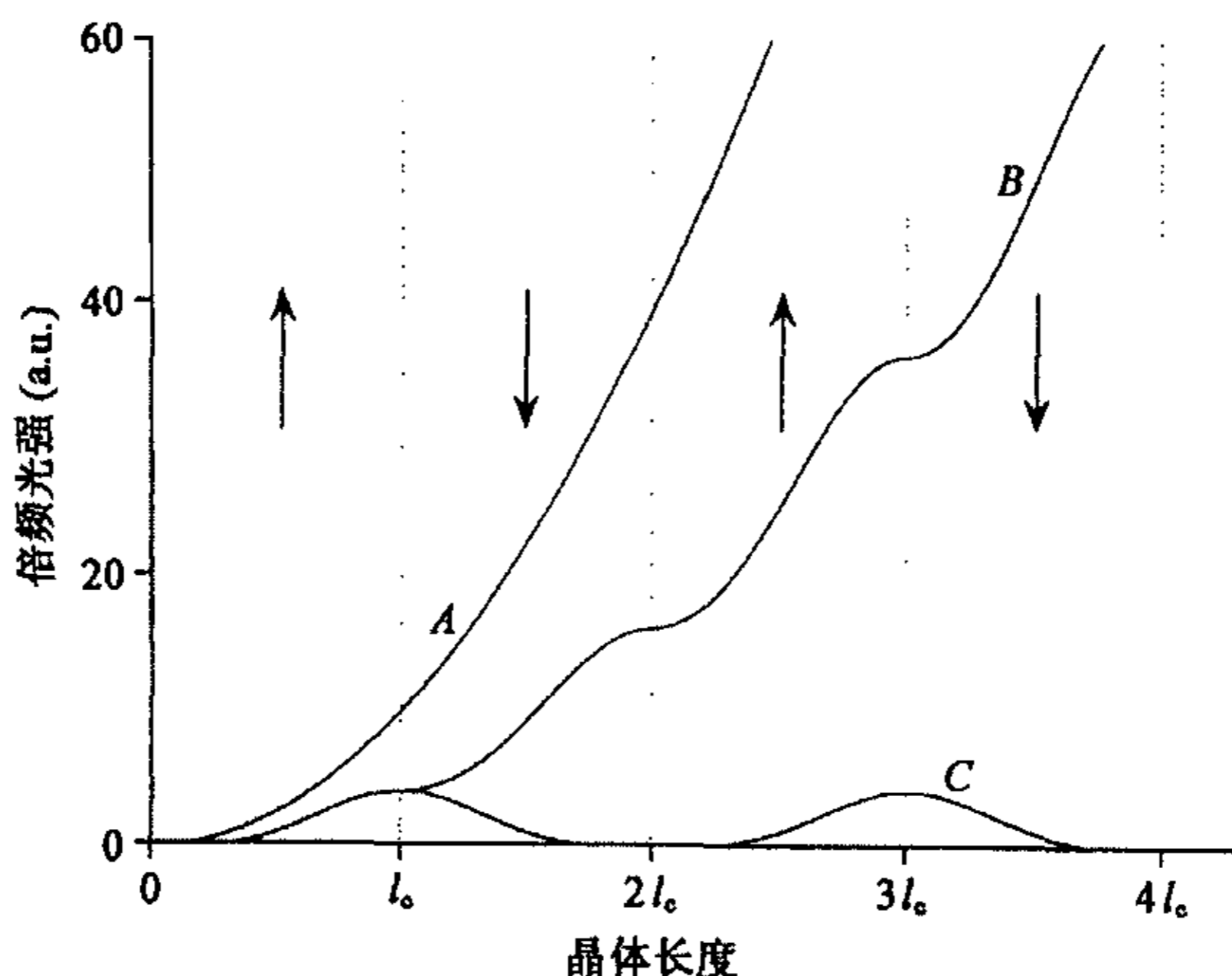


图 1-1 不同位相匹配条件下倍频转换效率示意图

方向切割，或者需要特定的工作温度，而且对于每一具体的材料，双折射也只能在一定波段范围内起补偿作用。比如铌酸锂(LN)就不能用BPM实现蓝光倍频，钽酸锂(LT)的双折射远小于自身的色散，根本就不能采用BPM完成有效的非线性光学过程。再者，BPM需要参与相互作用的光波具有不同的偏振方向，这样就只能利用晶体非线性系数较小的非对角元素，影响了频率转换的效率。而QPM需要的调制周期可以人为的根据晶体折射率色散加以设计，所以它可以将匹配的范围覆盖材料整个透明波段而无需特殊的角度、温度要求。由于基波与谐波的偏振都沿着晶体的z轴，可以利用非线性系数中较大的对角元素，并且没有走离效应，因而可获得较高的频率转换效率。对于LN晶体，采用QPM比采用BPM在理论上倍频效率要提高 $\left(\frac{2 \cdot d_{33}}{\pi \cdot d_{13}}\right)^2 \approx 20$ 倍。因此，QPM在激光频率上转换，光参量振荡和光参量放大等方面具有很高的应用价值。

虽然介电体超晶格性能十分优越，但由于超晶格的制备技术发展相对滞后，80年代以前准位相匹配技术并没有象位相匹配技术那样得到广泛的应用。1980年南京大学冯端、闵乃本领导的课题组通过在直拉法生长LN晶体过程中调制杂质钇的浓度，诱发出周期性电畴结构，用电畴的调制实现了二阶非线性系数的调制，首次制成了聚片多畴LN单晶，并且观察到了YAG激光的倍频QPM增强效

应，这可能是真正意义上的具有特定物理效应的第一种介电体超晶格材料。

介电体超晶格研究的快速发展出现在上个世纪 80 年代后期。此时，小型实用化的近红外半导体激光器的材料制备与器件技术已日臻成熟，但由于材料本身的局限，实用半导体激光器的输出波段主要在近红外区。而高技术的发展提出了对不同波段实用化激光器的需求，其中用于信息存储的紫外、近紫外光，用于水下通讯的海军蓝光，用于光纤通讯的 $1.3\sim 1.6\mu\text{m}$ 的近红外光，以及用于大气和环境监测的中远红外光，仅靠现有的激光器是不能覆盖的。利用非线性光学晶体的非线性效应展宽现有激光器所覆盖的频段，已成为物理界、光学界、材料界与技术界都非常关注的问题。由于 QPM 理论和微结构材料在光纤通讯和信息存储领域可能发挥的独特作用，具有调制结构的介电体超晶格，特别是具有周期铁电畴结构的超晶格研究取得了重要突破。在超晶格材料的制备方面，除了完善原有的 Czochralski 生长工艺外，人们又发展了激光基座法、电子束扫描、外电场诱导和杂质离子扩散等技术，先后在块状和波导 LN、LT 和 KTP 中成功制备了铁电微米超晶格，实现了高效的 QPM 倍频、和频以及光参量振荡。以光变频为目标的实用化开拓已形成新的光电子产业。

在如此多的光学超晶格制备方法中，研究最深入、最具有实用价值的仍然是脉冲电场极化技术。与别的极化方法相比，这种方法的极化图案是预先设计好做在光刻版上的，图案能够预先精确的控制，成畴质量较好，可制备各种结构的超晶格材料，甚至是二维结构。1993 年，Yamada 等人首次利用脉冲电场极化技术制备了厚 0.2mm 的周期 LN 超晶格材料。近年来，室温极化技术又有了新的发展。Shur 等人利用极化的回转效应，通过对极化电压图形的控制获得了具有纳米量级的 LN 超晶格；超晶格的结构也从一维扩展到了二维，英国南安普顿大学的 Broderick 等人首先报道了他们实验组制备的具有六角点阵形式的二维 LN 超晶格，并观察到了更加丰富多彩的非线性光学效应。

早期的人工调制超晶格研究主要涉及的是周期超晶格结构。1984 年，Shechtman 等首先在 Al-Mn 合金中发现了五次对称性，提出了准晶的概念，这是凝聚态物理学发展史上的重要里程碑。之后，大量的理论和实验工作集中于准晶的结构和谱学性质的研究。同时，准周期超晶格的研究工作也得到了迅速发展。1985、1986 年，准周期半导体超晶格和金属超晶格相继制备成功。进入 90 年代，

本实验室的研究小组首先将准周期超晶格的概念引入介电体，提出了准周期光学超晶格的构想，并且利用室温极化技术成功地制备出具有 Fibonacci 序列的铌酸锂准周期超晶格，获得高效的三倍频绿光输出。此后，本实验室对一维的准周期结构的超晶格进行了深入的研究。包括将 Fibonacci 结构推广至能对任意波长产生三倍频的两组元准周期超晶格，以及能提供任意三个倒格矢的三组元准周期超晶格。此外，我们还研究发展了各种其他各种复杂结构的超晶格，包括双周期、非周期超晶格等，并且得到了一系列丰富而有实用价值的结果。

在各种超晶格材料中，周期极化铌酸锂超晶格（PPLN）是使用的最广泛的一种。过去受生长方法所限，人们用来制作超晶格的铌酸锂晶体，多数是同成分比铌酸锂 ($[\text{Li}]/[\text{Nb}]=48.6:51.4$)。这样的铌酸锂晶体由于内部缺乏锂原子，晶格结构不完整，矫顽场大，且存在大的内偏置场。近几年来，人们发展了晶体生长的方法，利用双坩锅法，气相交换平衡法，助溶剂法等生长出近化学计量比 LN 晶体，即 $[\text{Li}]/[\text{Nb}] \approx 50:50$ 的 LN 晶体。近化学计量比 LN 晶格中的缺陷浓度比同成分比 LN 低的多，晶体的许多性能得到了改善，如矫顽场下降，电光系数变大，光折变灵敏度提高。以矫顽场为例，目前报道的最低矫顽场仅为 0.2 kV/mm ，约为同成分比 LN 的百分之一。在如此低的矫顽场下，用室温极化法制备比较厚的样品成为可能，这对于进行光学实验时增大通光孔径，提高输出功率十分有利。因此，近化学计量比 LN 的生长及极化性能的研究正成为人们关注的热点。同样的，近化学计量比的 LT 也有类似的情况。2000 年 Hatanaka 等人极化成功厚度不小于 2 mm 的 LT 光学超晶格，并在其中实现了光参量振荡；2001 年，南开大学的 Yun-Lin Chen 等人成功极化了厚度为 1 mm ， $[\text{Li}]/[\text{Li}+\text{Nb}]=49.6\%$ 的近化学计量比 LN。

在上述背景下，本论文主要进行了以下几方面的工作。第一，我们采用周期极化 LT 光学超晶格（PPLT）首次实现了 $\text{Nd}:\text{YVO}_4$ 晶体的 1342 nm 谱线的红光倍频和蓝光三倍频，并以此为基础成功研制采用半导体激光器（LD）泵浦的全固态蓝红双波长激光器原型器件。第二，介绍了使用投影法得到的二组元和三组元准周期结构，并设计了一个用来实现 1342 nm 三倍频的二组元准周期结构，和一个用来实现三基色输出的三组元准周期结构。第三，对用不同方法生长的近化学计量比 LN 中 Li, Nb 原子的相对含量及对物性的影响进行了较为系统的测定与

分析，确定三种近化学计量比 LN 中 Li、Nb 原子相对含量。并极化成功厚度为 1mm，用于 1342nm 三倍频的近化学计量比铌酸锂准周期超晶格。

参考文献：

1. F. A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing and P. S. Pershan
*Phys.Rev.*127, 1918 (1962)
2. P. A. franken and J. F. Ward, *Rev. Mod. Phys.* **35**, 23 (1963).
3. N. B. Ming, J. f. Hong, and D. Feng, *J. Mater. Sci.* **17**, 1663 (1982).
4. 张超, 朱永元, 祝世宁, 闵乃本, *物理*, **31**, 75 (2002)
5. Y. L. Lu, L. Mao, and N. B. Ming, *Opt. Lett.* **19**, 1037 (1994).
6. G. A. Magel, M. M. Fejer, and R. L. Byer, *Appl. Phys. Lett.* **56**, 108 (1990).
7. H. Ito, C. Takyu, and H. Inaba, *Electron. Lett.* **27**, 1221 (1991).
8. J. Webjorn, F. Laurell, and Garvidsson, *J. Lightwave Tech.* **7**, 1597 (1989).
9. E. J. Lim, M. M. Fejer, and R. L. Byer, *Electron. Lett.* **25**, 174 (1989).
10. M. Yamada, N. Nada, etal., *Appl. Phys. Lett.* **62**, 435 (1993).
11. V. Ya. Shur, E. L. Romyantsev, E. V. Nikolaeva, E. L. Shishkin, D. V. Fursov, R. G. Batchko, L. A. Eyres, M. M. Fefer, and R. L. Byer, *Appl. Phys. Lett.* **76** 143 (2000).
12. N.G.R.Broderick, G. W. Ross, H. L. Offerhaus, D. J. Richardson, and D. C. Hanna, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 4345 (2000).
13. Steinhardt, P. J., and Ostlund, S., (eds), *The Physics of Quasicrystals*, World Scientific, Singapore (1987).
14. R. Merlin, K. Bajema, and R. Clarke, *Phys. Rev. Lett.* **55**, 1768 (1985).
15. A. Hu, etal. *Phys. Lett. A* **119**, 313 (1986).
16. Y. Y. Zhu, N. B. Ming, *Phys. Rev. B* **42**, 3676 (1990)
17. S. N. Zhu, Y. Y. Zhu, and N. B. Ming, *Science.* **278**, 843 (1997).
18. S. N. Zhu, Y. Y. Zhu, Y. Q. Qin, H. F. Wang, C. Z. Ge and N. B. Ming, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 2752 (1997).
19. C. Zhang, H. Wei, Y. Y. Zhu, H. T. Wang, S. N. Zhu, N. B. Ming *OPTICS LETTERS*, **26**, 899 (2001).

20. Y. B. Chen, C. Zhang, Y. Y. Zhu, S. N. Zhu, H. T. Wang, N. B. Ming, *Appl. Phys. Lett.* **78**, 577 (2001).
21. H. Liu, Y. Y. Zhu, S. N. Zhu, C. Zhang, N. B. Ming, *Appl. Phys. Lett.* **79**, 728 (2001).
22. H. Wei, C. Zhang, Y. Y. Zhu, S. N. Zhu, N. B. Ming *PHYSICA STATUS SOLIDI B-BASIC RESEARCH*, **229**, 1275 (2002).
23. Z. W. Liu, S. N. Zhu, Y. Y. Zhu, H. Liu, Y. Q. Lu, H. T. Wang, N. B. Ming, X. Y. Liang, Z. Y. Xu, *SOLID STATE COMMUNICATIONS* **119**, 363 (2001).
24. T.Hatanaka, K.Nakamura, T.Taniuchi, H.Ito, Y.Furukawa, K.Kitamura, *Opt. Lett.* **25**, 651 (2000).
25. A. Grisard, E. Lallier, K. Polgar and A. Peter, *Electronic Letters*, **36**, 1043 (2000)
26. Y. L. Chen, J. J. Xu, X. J. Chen, Y. F. Kong, G. Y. Zhang, *Opt. Commu.* **188**, 359 (2001)

第二章 三倍频光学超晶格及全固态蓝红双波长激光器

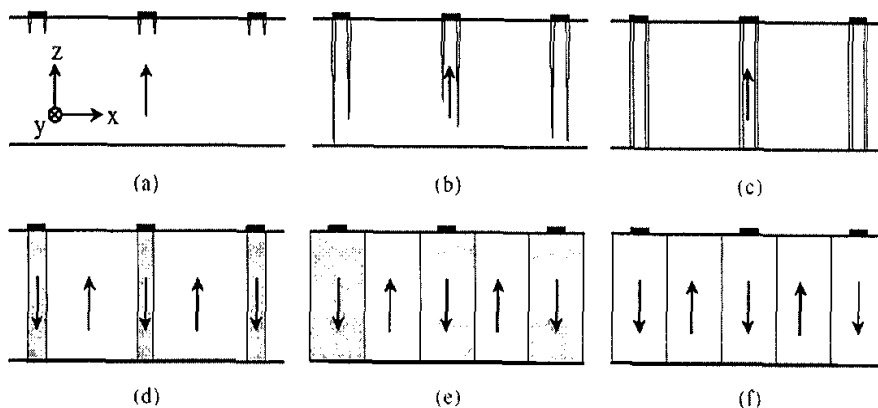
红色、绿色和蓝色是我们视觉世界的三种基本颜色，人眼能感受的各种颜色都可以通过这三种颜色以各种不同的比例混合得到。因此，对于高清晰激光打印，激光彩色全息显示等高科技领域，方便实用的全固态红绿蓝光源(RGB)是非常重要的。尽管目前二极管红光激光器已经有了广泛应用，蓝光二极管激光器也已研制出来，但二极管激光器光束质量较差，发散大，并不适合激光显示等某些应用领域。而二极管泵浦全固态激光器光束质量好，线宽窄，发散小，体积小，被越来越多的应用到光电技术中。由于准位相匹配(QPM)比起位相匹配(BPM)有许多优势，因此，使用光学超晶格，如周期极化的 LiNbO_3 ， LiTaO_3 ， KTiOPO_4 等，通过准相位匹配对 LD 泵浦的近红外光源进行频率转换以得到可见光的输出，这方面的工作正受到人们的关注。

本章主要介绍了我们如何使用钽酸锂超晶格对 1342nm 基波光源实现倍频与三倍频，在世界上首次同时得到较高功率水平的 671nm 红光和 447nm 蓝光的输出，并在此基础上设计制造出一台蓝红双色激光器的原型器件。我们的试验结果为运用全固态技术，同时产生高平均功率的蓝光和红光提供了一条可能的途径，因此具有特别重要的意义。

2.1 LiTaO_3 ， LiNbO_3 的室温极化反转特性

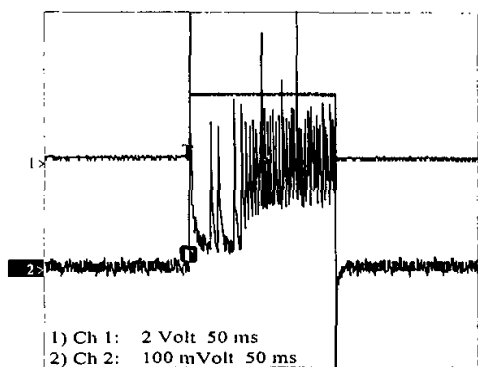
许多文献已经报道了 LT, LN 的室温极化畴反转特性，这两种晶体的畴反转基本特性和过程有很多相似之处。我们用图 2-1 统一进行说明。由于电极的边缘效应，畴的生长总是从这些区域开始。这一过程称为成核。成核后畴将沿 Z 轴向-Z 面生长，当畴尖到达 -Z 面以后，畴界的运动使得畴开始展宽，这一过程会一直持续到脉冲结束或者畴完全合并。

图 2-2 是我们测得的典型的同成分比 LN 和 LT 极化电流图(图 a 为 LN 晶体，图 b 为 LT 晶体)。可以看出，LN 的极化电流存在很多尖峰，起伏很大，而 LT 的极化电流则平缓得多。这一差异是由于 LN 和 LT 畴壁移动的不同性质造成的。在一个固定的电场下，LT 晶体的畴壁移动速度基本上是不变的，而 LN 晶体的

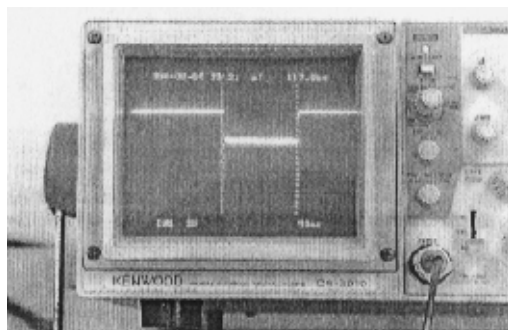


(a)在电极边缘成核, (b) 畴尖向-z面生长, (c) 畴尖到达-z面, (d) 电极两端的畴合并 (e) 畴向没有电极的区域扩展 (f) 畴稳定过程

图 2-1 周期介电超晶格极化过程的六个阶段



(a)



(b)

图 2-2 (a) LN (b) LT 极化电流图

畴壁移动速度可以从零到一个很大的值。这是 LN 和 LT 极化性质的第一个不同点。

LN 和 LT 另外一个不同点在于畴稳定时间的差异。在同成分比的 LN 和 LT 晶体中, 都存在一个与矫顽场方向相同的退极化场, 所以新生长的畴有反转回去的趋势。为了防止这种现象, 在极化结束以后, 最好将电场保持在矫顽场下一段时间, 抑制内极化场。从 LN 和 LT 的电滞回线 (图 2-3) 可以看出, LT 的内极化场为 4.5KV/mm, 大于 LN 的内场 2.7KV/mm。因此 LT 畴的稳定时间比钽酸锂

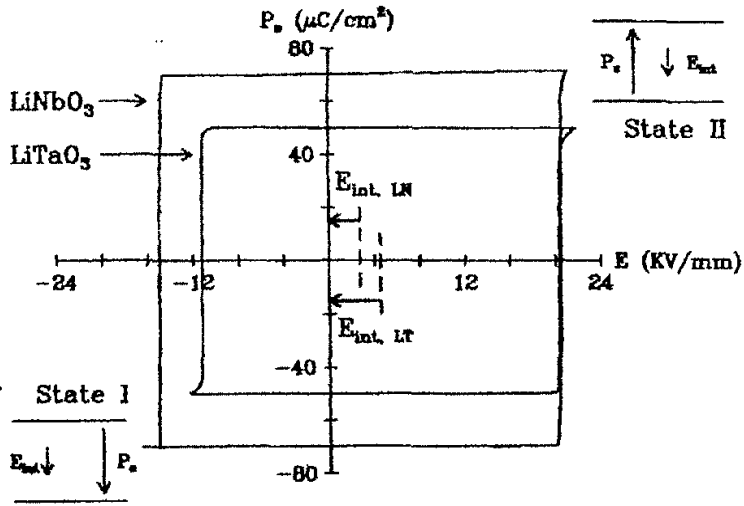


图 2-3 LT, LN 的电滞回线图

长。我们将极化前的状态定为 A，极化后的状态定为 B。极化面积为 18mm^2 时，从 A 到 B 的极化，LN 的稳定时间大约为几十毫秒的量级，而 LT 达到几秒的量级。从 B 到 A 方向的极化，LN 的稳定时间大约为几毫秒，而 LT 大约为零点几秒，约为从 A 到 B 方向的稳定时间的 1/10。因为内偏置场的方向与 A 状态下的矫顽场方向相同，而与 B 状态下的矫顽场方向相反。研究表明内偏置场的大小与晶体缺陷的浓度密切相关，因此可以认为畴的稳定时间与 $[\text{Li}]/[\text{Nb}]$ 及 $[\text{Li}]/[\text{Ta}]$ 原子比也是密切相关的。我们现在普遍认为在同成分比的 LT 和 LN 中， $[\text{Li}]/([\text{Li}+\text{Nb}]) = 48.6\% \approx [\text{Li}]/([\text{Li}+\text{Ta}]) = 48.5\%$ ，实际上，根据文献报导， $[\text{Li}]/([\text{Li}+\text{Ta}])$ 的值很可能比 48.5% 要低。可能是这一点造成钽酸锂和铌酸锂晶体的内偏置场的差异，进而影响了畴稳定时间。

同成分比 LN 和 LT 极化性质还有一个基本的不同点在于两者畴的形状不同。图 2-4 是 LN 和 LT 的畴。(a) 是光学显微镜观察到的 LN 畴的形貌，呈六边形，(b) 是用 AFM 观察到的 LT 畴的形貌，为三角形。据文献报导，在化学计量比的钽酸锂中，畴的形状也是六角形，且取向与铌酸锂相同。另外，同成分比 LN 和 LT 的畴壁存在应力和双折射，这一现象随着晶体中 $[\text{Li}]/[\text{Nb}]$ 和 $[\text{Li}]/[\text{Ta}]$ 值的提高也大大减弱。这些事实表明，畴壁的取向和畴的形状很可能与化学配比有密切关系。从能量角度来说，畴的形状由自由能最低的条件决定。可能在缺陷浓度高时，三角形的畴自由能最低；缺陷浓度越来越低，六角形的畴自由能最低，中间还

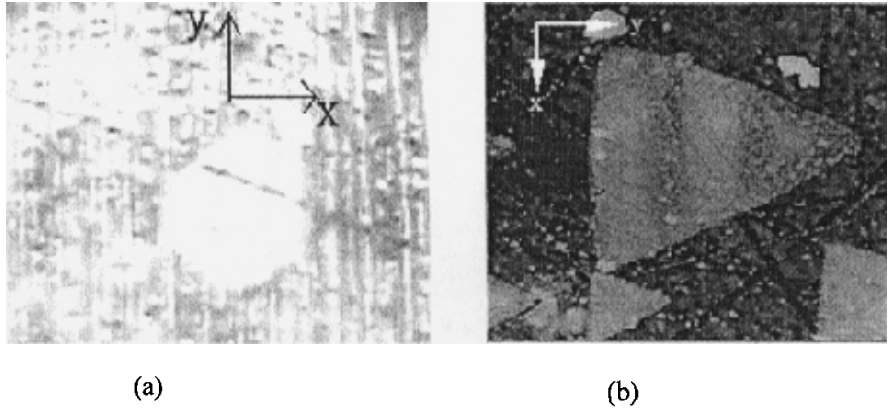


图 2-4 (a)LN (b)LT 晶体畴的形貌

可出现过渡的多边形，如在 LN 晶体中，曾经观察到四边形和五边形的畴。

可见，LN 的 $[Li]/[Nb]$ 值和 LT 的 $[Li]/[Ta]$ 值对晶体的极化性质有着极大的影响。这个值越接近 1，晶体的性能越好。因此生长高质量的近化学计量比 LN 和 LT，并以其为基质极化超晶格用于实现各种光电功能，以成为人们关注的一个新热点。

2.2 介电体超晶格的室温极化制备技术

前言中提到，在制备介电超晶格的各种方法中，由于室温极化方法设备简单，图形易于控制，可以极化各种结构的超晶格，所以近年来得到了广泛的应用，逐渐成为介电超晶格制备的主要方法。

本实验室在钽酸锂 (LT)、铌酸锂 (LN)、KTP 等材料的极化方面，做了大量的工作。特别是钽酸锂晶体的极化工艺已经基本成熟，目前我们已经能够成功极化厚度从 0.2 到 0.5mm，周期小至 $4\mu m$ ，以及各种复杂结构的 LT 光学超晶格。图 2-5 是我们进行室温极化的设备及极化电路图。用任意波发生器 (Tek AFG310) 产生我们所需要的极化波形，经脉冲电压放大器 (Trek20/20C) 将其放大 2000 倍后输出，加在负载 (所需极化的样品) 和一个串连的限流电阻上。示波器对脉冲放大器产生的电压波形进行监控和记录。限流电阻一般在 20M 左右。

预备极化的样品必须进行预处理。晶片的厚度一般在 0.5~1.5mm，z 切，经

过标准工艺的抛光清洗。在样品的+C面用光刻方法镀上预先设计的结构图案，-C面的极化区上镀上一层均匀的电极，电极厚度在100~200nm。电极所用的金属可以是铝、金、铬、钛等，我们目前使用的都是铝电极。选择不同的电极材料，对极化的最大成核率有很大的影响。图2-6是用固体和液体电极进行极化的

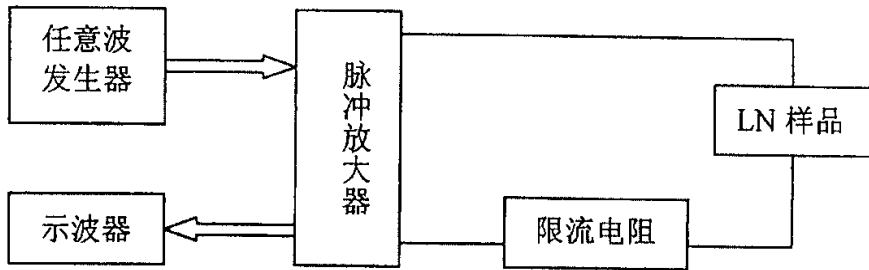


图 2-5 极化装置示意图

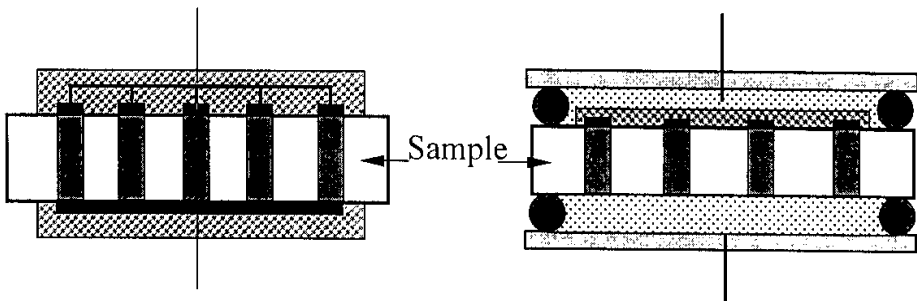


图 2-6 处理过的样品示意图

样品处理示意图。利用固体电极极化时，用导电银胶引出正负两极的导线后，再用导热绝缘胶封好样品，极化时在放在高压油中防治漏电。

利用液体电极进行极化，样品的前期处理相对简单，并且电极接触更均匀，所以国际上多用这种方法进行极化。具体做法为：将晶片用光刻胶或其他绝缘物质封装后置于密封的夹具中，在其中间灌入导电的液体作为电极（如饱和 LiCl 溶液）。夹具两端引出电极，用于施加电场。目前我们实验室主要是使用固体电极进行极化，选用液体电极也是我们正在尝试发展的方向。

在进行脉冲极化时，脉冲电源的正极接样品的+C面电极，样品的-C面电极接地。当所加电场超过样品的矫顽场时，样品中电极下方的铁电畴开始反转，极化电路中出现极化电流。极化电流大小的采样在高压放大器内部进行，我们直

接从示波器上观察测量，1V 的电压相当于 2mA 电流，可见取样电阻为 500Ω 。我们还可以根据不同材料的性质，用任意波发生器产生各种不同波形的电压脉冲，对样品进行极化。如图 2-7 所示的电压波形。根据文献报道，在极化同成分比 LN 晶体时，使用这种波形有利于提高极化质量。

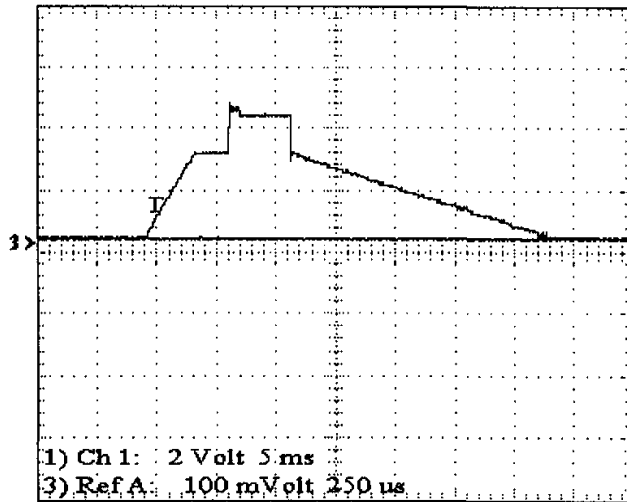


图 2-7 用来极化同成分比铌酸锂的电压波形

极化过程中，极化电流的作用是电源输送电荷给样品以中和原有屏蔽电荷并提供反向极化所需要的电荷。因此提供电荷的总量为

$$Q = \int idt = 2P_s A \quad (2.1)$$

其中 P_s 是自发极化，对于 LN 和 LT， P_s 分别为 0.78C/m^2 ， 0.5C/m^2 ， A 是畴反转区的面积。根据上面的公式，我们可以通过控制输送到样品的极化电荷总量，来控制样品畴反转的面积。

2.3 1342nm 三倍频 LiTaO₃ 光学超晶格的设计

一般来说，利用二阶非线性效应实现一个三倍频过程是经过两个步骤来实现：第一步是实现基波光的倍频(SHG)，第二步则实现基波光和倍频光的和频(SFG)。在我们的早期工作中，利用斐波那契准周期超晶格已经在实验上实现了在一块非线性晶体来产生有效的三倍频。其基本原理如下：准周期结构的超晶格提供两个倒格矢分别通过补偿了 SHG 和 SFG 过程中的波矢失配，通过级联的 QPM 过程产生了从基波到倍频，三倍频持续的能量转移，如图 2-8 所示。准周期结构中的基本单元和序列在设计上相当自由，从理论上来说，允许我们预先设

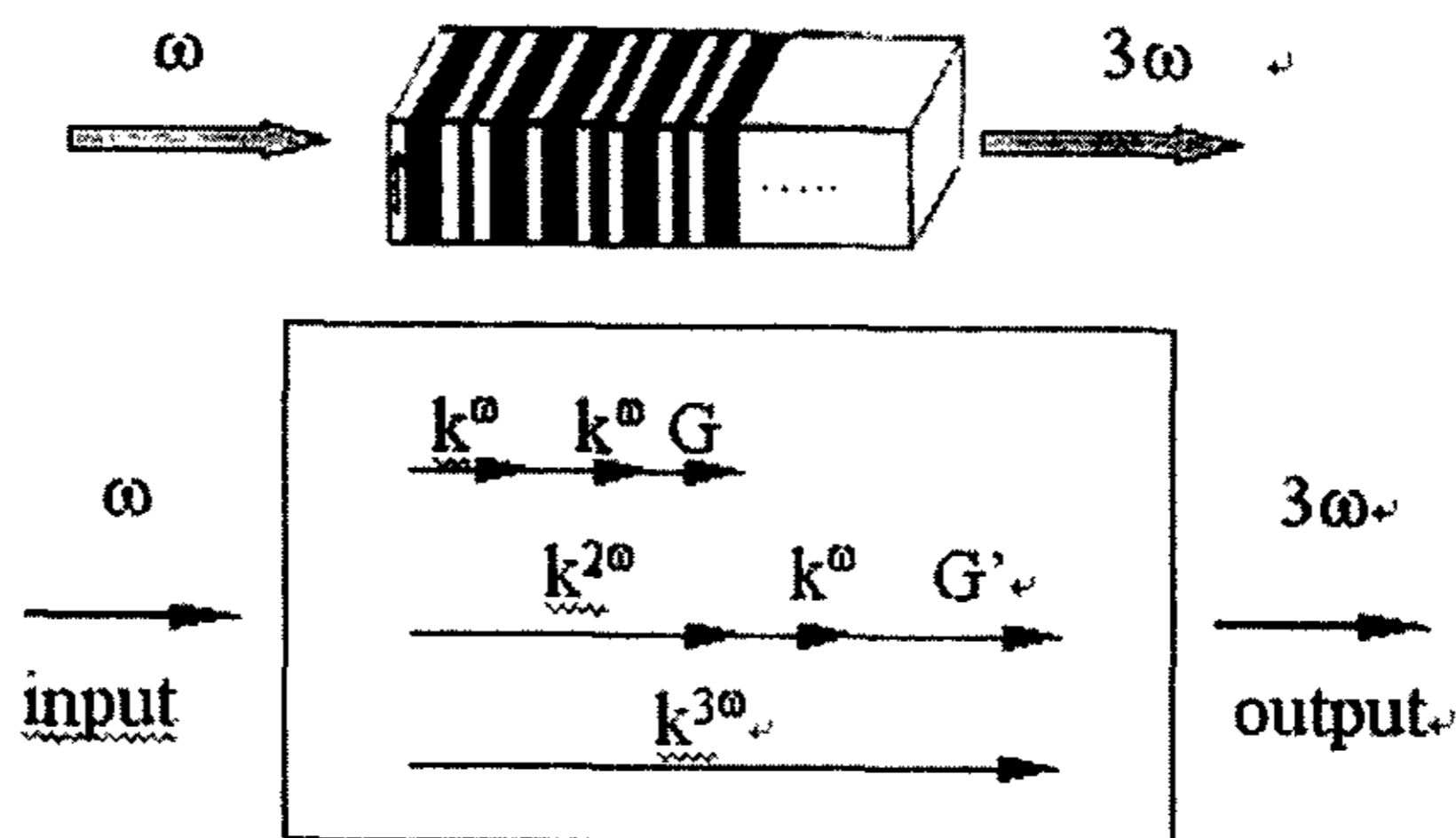


图 2-8 用一块晶体直接实现三倍频原理图

计好一个序列以提供任何 QPM 三倍频过程中所需的两个倒格矢。一个简单的周期结构通常做不到这一点，因为它所有的倒格矢都等于第一阶倒格矢 $2\pi/\Lambda$ 的整数倍，而三倍频的中间过程 SHG 和 SFG 所需要的两个倒格矢很难恰恰是整数倍。但是也存在一些例外，如我们采用的 LT 晶体，它如果以 Nd:YVO₄ 的 1342nm 谱线为基波光源，在某个特定的温度下，实现基波倍频和和频所需的倒格矢正好是 1:3，因此我们可以利用一块简单的周期极化钽酸锂超晶格(PPLT)进行倍频和三倍频来同时产生蓝光和红光。周期超晶格的一阶和三阶倒格矢分别补偿了 SHG 和 SFG 过程中的波矢失配。

我们首先考虑在 PPLT 中的 SHG 过程。为了获得最大的非线性转换效率，我们选择一阶倒格矢。共线作用下的准位相匹配条件为

$$k_s - 2k_f - \frac{2\pi}{\Lambda} = 0 \quad (2.2)$$

k_f , k_s 分别是基波波矢和二次谐波的波矢, Λ 是超晶格的周期。类似的, SFG 过程的 QPM 条件是:

$$k_t - k_s - k_f - m \frac{2\pi}{\Lambda} = 0 \quad (2.3)$$

k_t 是三次谐波的波矢, m 是倒格矢的级数。因为 SHG 过程已经使用了一阶倒格矢, 为了获得最大的有效非线性系数, PPLT 的占空比取为 0.5, 所以我们不可能选择二阶倒格矢。出于这种考虑, 在和频过程中, 我们选择三阶倒格矢。联立 (2.2) 式和 (2.3) 式有:

$$3(k_s - 2k_f) = k_t - k_s - k_f \quad (2.4)$$

由于 $k_{(f,s,t)} = \frac{2\pi n_{(f,s,t)}}{\lambda_{(f,s,t)}}$, 我们得到

$$3(2n_s - 2n_f) = 3n_t - 2n_s - n_f \quad (2.5)$$

n_t, n_s, n_f 分别是三次谐波, 二次谐波和基波的折射率, 它们与波长和温度的关系由 Sellmeier 色散方程决定。用数值方法解方程 (2.5), 当基波波长为 1342nm 时, 则温度为 74.1°C 能同时满足 SFG 和 SHG 的 QPM 条件。将这些值代入公式 (2.2) 或 (2.3), 我们得到周期 $\Lambda = 14.778 \mu\text{m}$ 。在这一结构中, 位相完全匹配下的三波耦合方程组为

$$\begin{cases} \frac{dA_1}{dx} = i\kappa_2 A_3 A_2^* - i\kappa_1 A_2 A_1^* \\ \frac{dA_2}{dx} = -i\kappa_2 A_3 A_1^* - \frac{i}{2} \kappa_1 A_1^2 \\ \frac{dA_3}{dx} = -i\kappa_2 A_1 A_2 \end{cases} \quad (2.6)$$

A_1, A_2, A_3 分别代表基波光, 倍频光和三倍频光的振幅。 $\kappa_1 = \frac{d_{3,3} g_{m,n}}{c} \sqrt{\frac{\omega_2 \omega_1^2}{n_2 n_1^2}}$,

$\kappa_2 = \frac{d_{3,3} g_{m',n'}}{c} \sqrt{\frac{\omega_3 \omega_2 \omega_1}{n_3 n_2 n_1}}$ 为耦合系数。通过这一方程组, 我们给出在这一结构中

基波, 倍频光, 三倍频光转换效率与晶体长度的关系 (见图 2-9)。由图可知,

从理论说，倍频的转换效率可以达到 60%，三倍频的转换效率可以达到 30%。

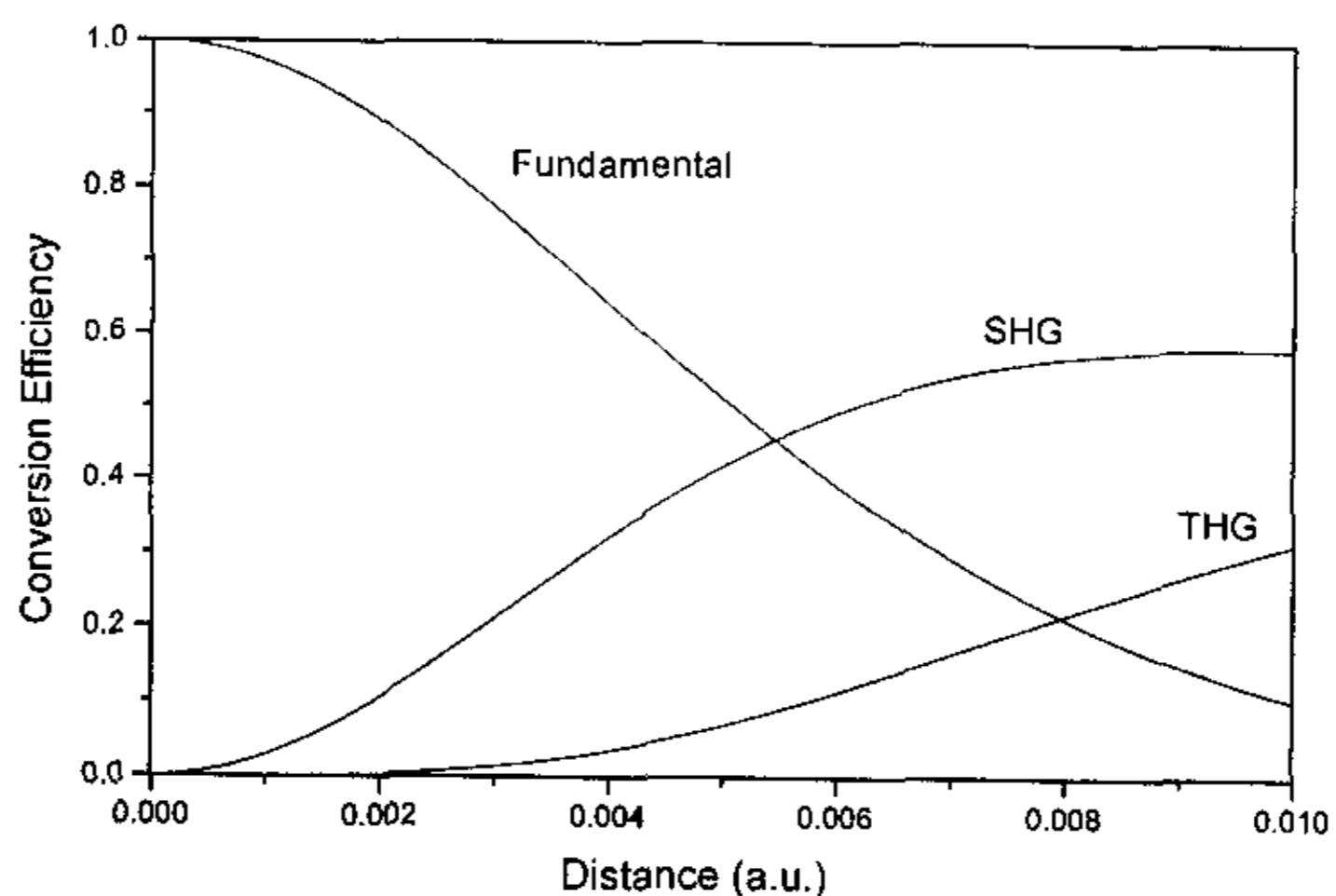


图 2-9 基波、倍频波、三倍频播转换效率与晶体长度关系图

以上的计算是基于基波长为 1342nm，也就是 Nd:YVO₄ 晶体中 Nd³⁺ 离子的 ⁴F_{3/2}—⁴I_{13/2} 的发射谱线来进行的。事实上，PPLT 中能够相位匹配的三次谐波波长并不仅限于某个特定的值，而是一段狭窄的范围。相位匹配波长，温度和周期三个参数之间是密切相关的，只要定下三个参数其中的一个，另外两个就可以被定出来。如图 2-10 表明工作温度与位相匹配基波波长和相应超晶格周期的关

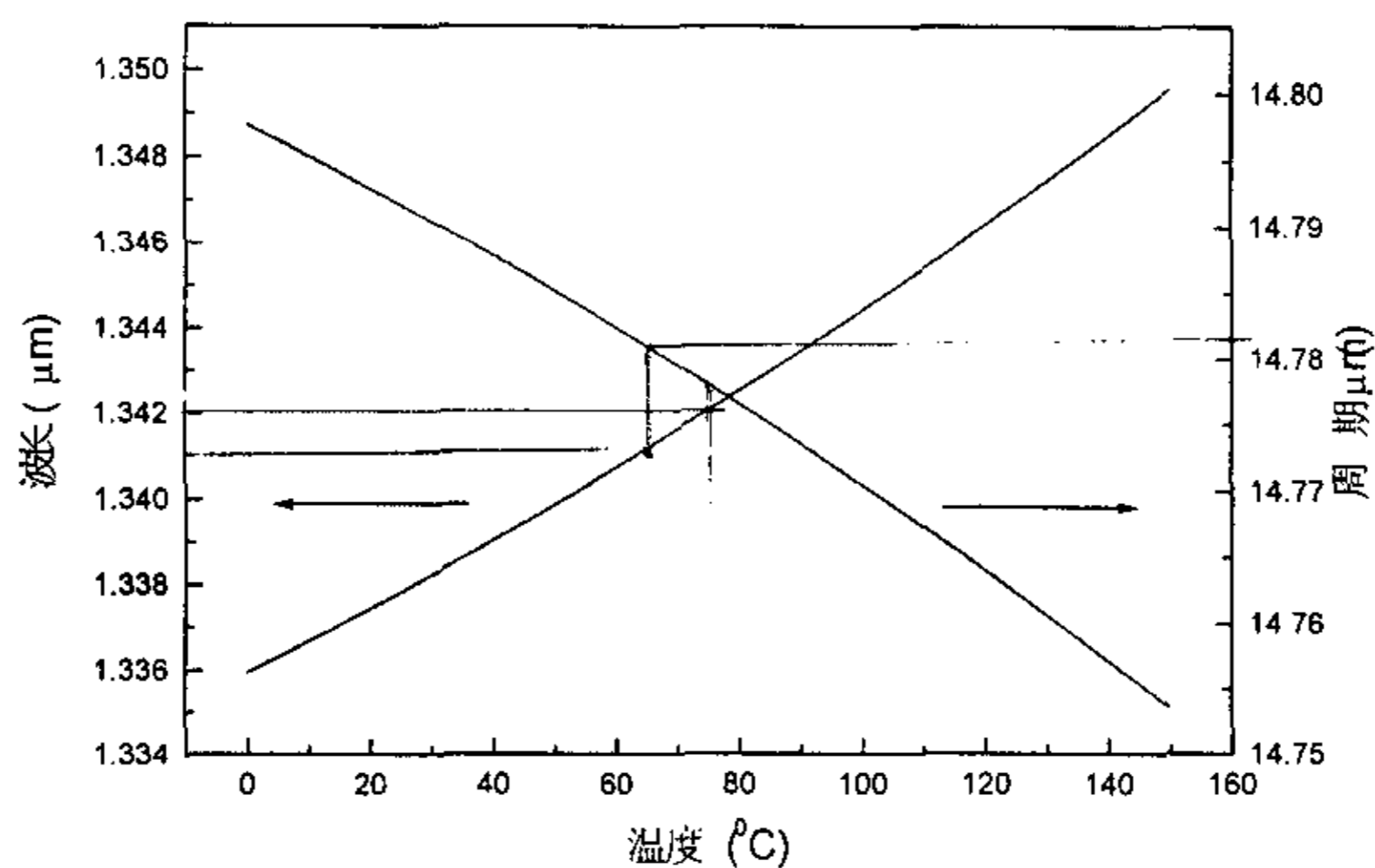


图 2-10 匹配波长和对应周期与温度的关系

系。由于其他掺 Nd 增益晶体的 Nd^{3+} 离子 $^4\text{F}_{3/2} \rightarrow ^4\text{I}_{13/2}$ 发射谱线与 Nd:YVO_4 晶体相近，例如 Nd:YAP ，它的 Nd^{3+} 离子 $^4\text{F}_{3/2} \rightarrow ^4\text{I}_{13/2}$ 发射谱线波长为 1341nm ，因而 PPLT 也可以用 Nd:YAP 作为激光晶体实现蓝光三倍频，相应的匹配温度和周期分别是 63.3°C ， $14.783\ \mu\text{m}$ 。

由以上的推导可见，只要倍频和和频过程所需倒格矢是 1:1, 1:3, 1:5 的关系，都可以用一块简单的周期极化超晶格来实现直接三倍频。如图 2-11 所示，图中曲线 1 表示基波倍频的周期，曲线 2 表示和频周期的五倍，曲线 3 表示和频周期的三倍，曲线 4 表示和频周期的一倍，计算温度为 74.1°C ，晶体为 LT。因此曲线 1 和 2、3、4 的交点分别表示能用周期结构实现三倍频的基波波长和对应的超晶格周期，所用的倒格矢分别为 1、5 阶，1、3 阶，1、1 阶。有文献报导在一个在 $3.54\sim 3.62\ \mu\text{m}$ 的一氧化碳激光器中，使用 PPLN 实现 QPM 三倍频的过程。此周期结构的一阶倒格矢同时匹配 SHG 和 SFG 过程，即倍频和和频过程的倒格矢之比为 1:1。

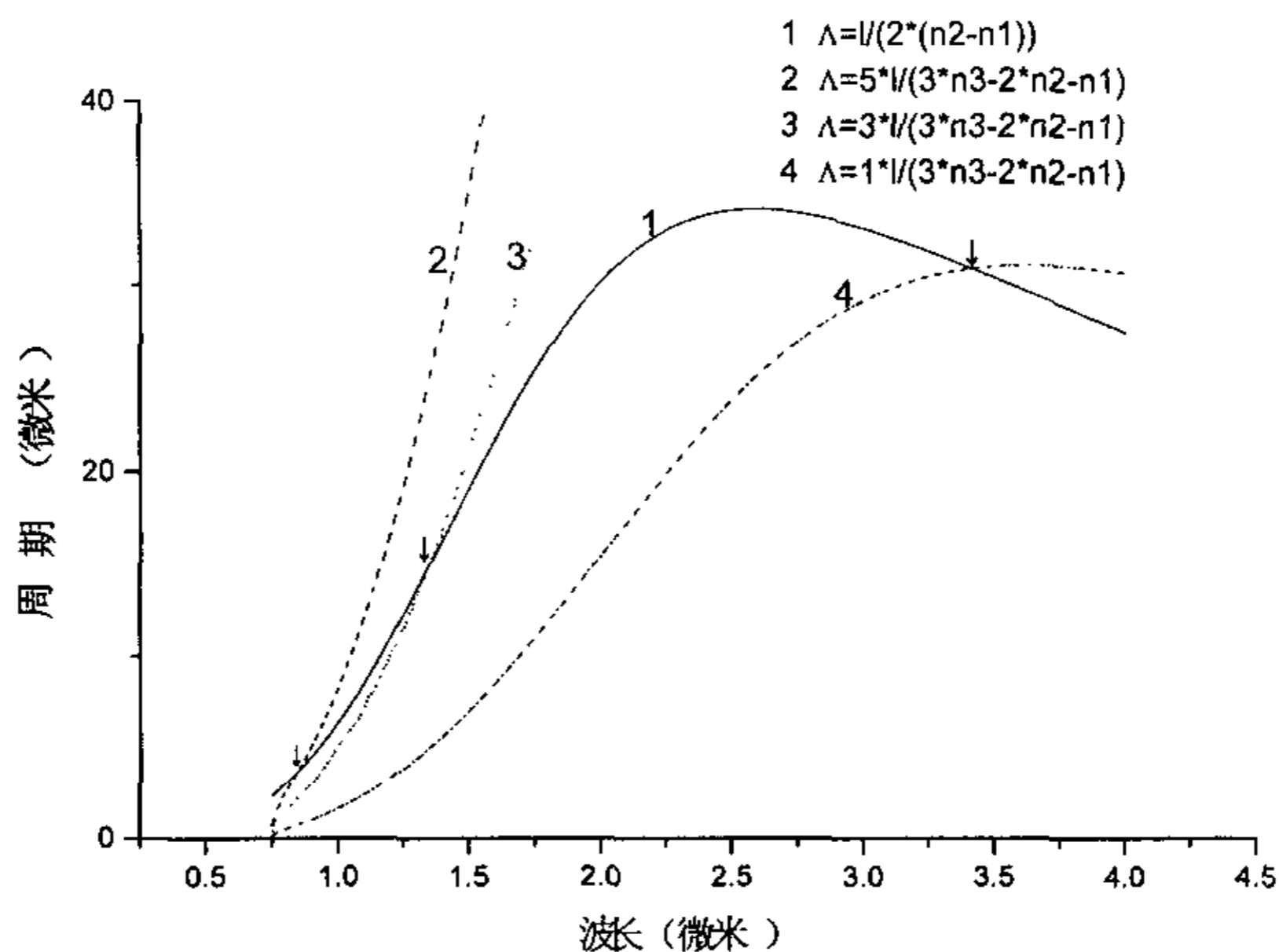


图 2-11 LT 晶体中的各级匹配图

2.4 以光学超晶格为变频晶体的准连续全固态蓝—红双色激光器

近年来, 蓝光激光的应用发展迅速, 尤其在激光显示, 激光打印, 激光彩色全息等领域, 其市场需求不断扩大。从应用的角度出发, 能够实现小型化高质量的全固态蓝光激光器显得特别重要。当然, 利用半导体激光器也能获得蓝光, 但半导体激光器光束质量较差, 发散大, 对某些应用不太适合, 另外, 现在的蓝光半导体激光器的功率水平还比较低, 如参考文献(4)报道的功率为 5mW。因此, 使用非线性晶体, 通过激光变频技术得到具有实用功率水平的蓝光仍然是人们关注的热点问题。

过去, 人们得到蓝光通常是通过倍频 Nd:YAG 的 914nm 谱线或 Nd:YVO₄ 的 946nm 谱线。我们从上一节的推导可以看出, 一块周期结构的 LT 超晶格就可以实现 1342nm 的三倍频, 由于三倍频同时可以获得倍频的输出, 我们可以同时得到 671nm 红光和 447nm 蓝光。与准周期结构相比, 周期结构有效非线性系数更大, 样品的制备也更容易。简明的结构和较高的转换效率吸引人们利用 PPLT 为变频晶体研制体积小, 效率高的红蓝双波长激发器。

首先我们使用图 2-5 所示的装置, 极化成功了周期为 14.778 μm 的 LT 超晶格, 厚度为 0.5mm, 长 12mm。晶体两端面抛光, 但未镀膜。我们用它进行光学测试。图 2-12 是实验装置图。实验用的基波光源是一台声光调 Q 的准连续 Nd:YVO₄ 激光器。该激光器由一台由型号为 OPC-DO15-809 连续输出的近红外 809nm 二极管激光器泵浦。泵浦光由焦距为 35mm 的透镜 F₁ 会聚进入 Nd:YVO₄ 晶体中, 晶体的尺寸是 3mm×3mm×5mm。激光腔一共由两面腔镜组成, 前表面腔镜为 Nd:YVO₄ 晶体输入端面, 它镀有对 1342nm 高反而对 809nm 高透的膜; 后表面腔镜镀在输出耦合镜上, 对 1342nm 的反射率为 92%。为了减少损失, Nd:YVO₄

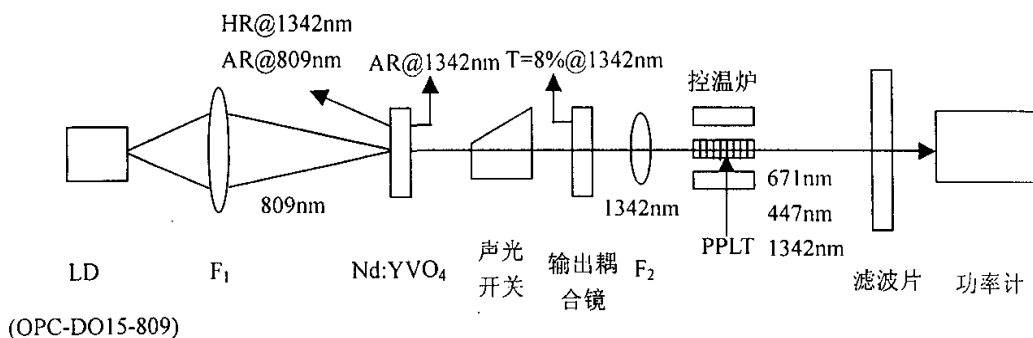


图 2-12 腔外频率转换的实验装置

晶体的输出端面对 1342nm 高透。激光腔里的声光调 Q 开关把连续输出激光变成准连续脉冲激光，每一脉冲持续时间为 90ns，重复频率为 10kHz，一个光脉冲的波形见图 2-13。1342nm 的准连续基波光经透镜 F_2 会聚进入 PPLT 晶体， F_2 焦距为 25mm。估计样品内的光束束腰半径为 $50\mu\text{m}$ 。入射在样品端面的基波平均功率为 500mW，相应的峰值功率为 0.56kW。考虑样品前表面 13% 的菲涅尔反射，实际进入到 PPLT 样品中的平均基波功率和峰值功率分别为 430mW 和 0.48kW。束腰处的峰值光强为 $24.4\text{kW}/\text{cm}^2$ 。样品在加热炉中加热到所需的位相匹配温度，精度为 0.1°C 。样品中产生的红光和蓝光在输出端用合适的滤片滤波，用功率计测量功率（型号 EPM1000，Moletron 公司出品）。

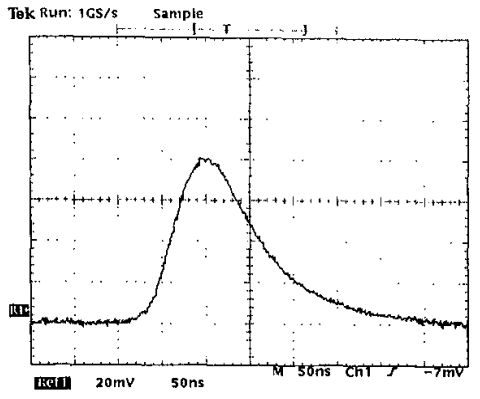


图 2-13 利用 IR 纳秒光探测器测得激光器腔内产生的 1342nm 红外光脉

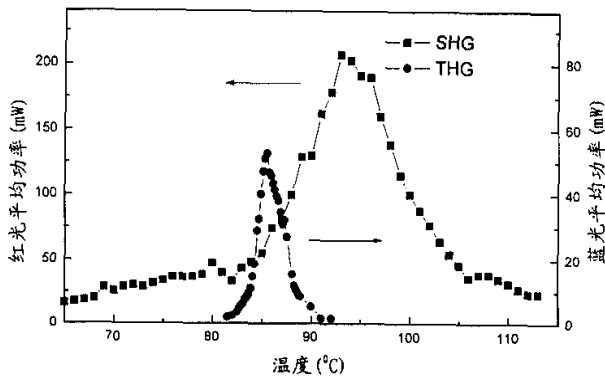


图 2-14 二次和三次谐波输出与温度的关系

图 2-14 表明 SHG 红光和 THG 蓝光的输出功率与温度关系的实验结果，测量到的 SHG 和 THG 的相位匹配温度分别为 92.5°C 和 85.6°C ，半宽度为分别为 10°C 和 3.5°C 。图 2-15 是基波、SHG 和 THG 转换随温度变化的理论计算结果。可见实验上 SHG 和 THG 的峰值没有重叠，而且两者都与理论值 74.1°C 不一致。可能是如下的两个原因导致了实验和理论值的不符。首先，本工作中的位相匹配条件是通过参考文献 20 中的 Sellmeier 色散方程得到的。此方程在接近 671nm 和

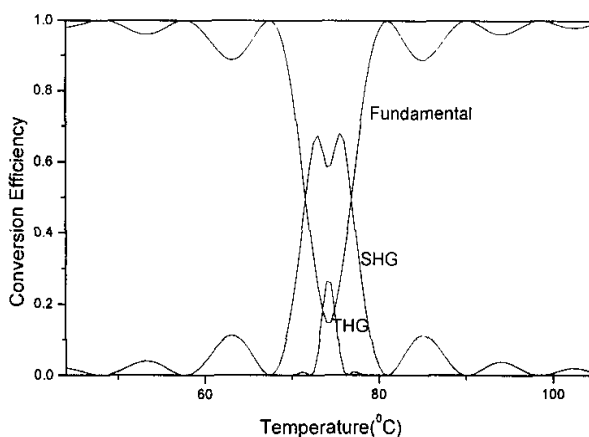


图 2-15 SHG 和 THG 转换效率与温度关系理论计算结果

1342nm 附近得到的折射率数值的精确度不如在 $532-325\text{nm}$ 范围内高。与传统的通过串联的两块晶体分别实现两个光参量过程的方法相比，通过 QPM 在一块晶体内实现 THG，对材料的折射率的精确度要求更高，输出功率对折射率也更敏感。材料折射率的理论值与实际值的细小偏差都会破坏两个过程同时实现的 QPM 条件，导致其中一个过程位相匹配时另一过程位相失配，从而使红光和蓝光的峰值分开。另外，由于光刻精度的限制，晶体中实际周期与理论上的不可能完全一致。超晶格周期的任何偏离都将引起 SHG 和 SPG 过程的位相匹配温度的改变，进而导致两者峰值的分离。倍频和和频的匹配温度相差较大，这意味着在和频的匹配点倍频过程位相失配没有得到完全的匹配。正因为如此，只有部分倍频红光参与到和频的过程。在 THG 峰值所在的位置 85.6°C ，SHG 红光的输出功率为 48mW ，因此参与和频的红光的功率只有 $82\text{mW}(48+(51/3)*2)$ ，远远低于系统能够产生的最大红光功率 207mW 。实际测得的三倍频的效率比理论值低，这是一个重要的因素。

图 2-14 所测的带宽在 SHG 中接近分别大于图 2-15 中的 7.5°C 和 1.8°C 。曲线的展览原因很多，包括计算时使用了平面波近似而实际基波被强聚焦，以及样品中的少量缺陷造成有效长度的减小等。

转换效率定义为 $\eta = \frac{P_s}{P_f}$ 。 P_s 是蓝光或红光的平均功率， P_f 是入射在晶体表面

的 1342nm 基波平均功率。在图 2-14 中，测量到的最大平均功率如下，蓝光 51mW ，红光 207mW ，效率分别为 10.2% 和 41.4% 。考虑晶体前后表面的反射，最高内部转化效率分别为 11.7% ， 47.6% 。

我们在红光和蓝光近峰值功率水平下，测量了其输出的稳定性。如图 2-16 所示。由图可见红光和蓝光功率波动小于 2% 。虽然测量只持续了几分钟到几十分钟，但是在整个实验过程中都没有观察到输出功率或光束质量有明显的降低，持续时间大约有数小时。因此在此功率和温度条件下，光折变现象可以忽略，整个激光系统工作状态稳定。

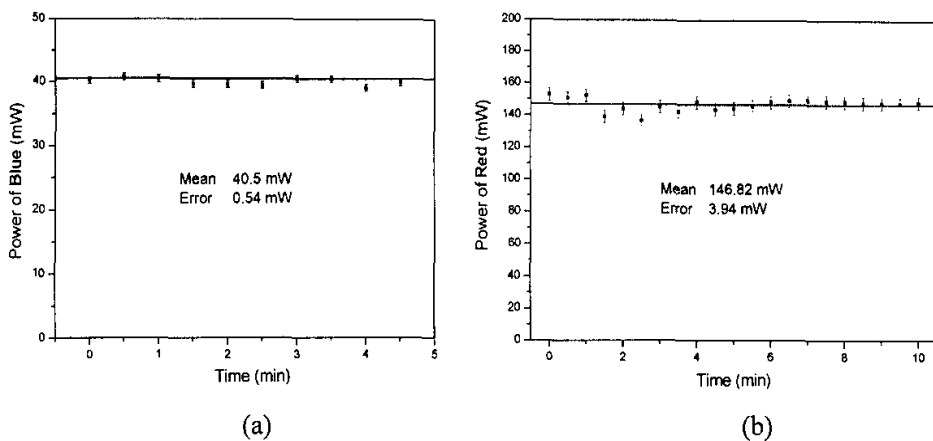


图 2-16 蓝光(a)和红光(b)稳定性示意图

在不改变系统结构的前提下，要增加蓝光的输出功率，以下两条途径可以考虑。一是将晶体的端面镀膜，使其对 671nm 高反，让二次谐波在样品中来回折返，这等效于增加和频过程的有效作用长度，使蓝光的功率增大。第二种是修正色散方程的参数并提高光刻模版的精确度，调整 SHG、SFG 的相应匹配温度使它们更加接近。在这两种情况下，由于 SFG 过程中有更多 671nm 光子的参加，

THG 的输出预计将有进一步的增加。有关这方面的理论与实验的研究，我们正在进一步深入进行。

为了进行比较，我们也设计了两个周期串接的结构序列，第一周期为 $14.770\ \mu\text{m}$ ，用以实现基波光的倍频；第二个周期为 $4.923\ \mu\text{m}$ ，用以实现和频。由于两个周期都是以第一阶倒格矢参与转换过程，和频的有效非线性系数是使用单一周期时的三倍。虽然在样品周期较小时，可以均匀极化的长度有所减小，但由于有效非线性系数的增加，在我们的实验条件下，总的效果还是优于用单一周期的测量结果。但这并不意味着使用两个周期结构串联的超晶格性能优于单周期结构。因为单周期结构简单，光路易于优化，其理论效率还远远没有达到，随着光路条件的改进，其效率还有进一步增加的潜力。我们使用了更高功率的 LD 泵浦源和更高质量的 Nd:YVO₄ 晶体，使准连续 1342nm 的基波功率大大提高，输出的红光和蓝光功率也大幅度提高。当基波光功率为 2W 时，得到的红光和蓝光功率分别为 1W 和 130mW。

以上述的实验为基础，我们研制了一台全固态蓝红双色激光器，如图 2—17 所示。

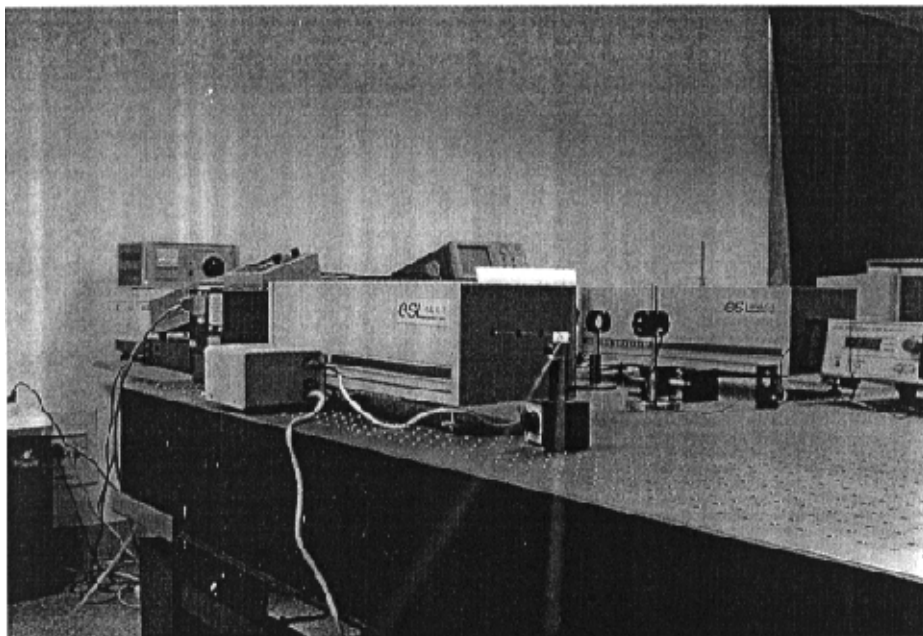


图 2—17 全固态蓝红双色激光器

我们的进一步工作就是继续改善该系统结构，使整个系统更加紧凑，体积更小，如将 Nd:YVO₄ 晶体和声光开关的水冷系统改为半导体冷却。另一方面，尝试使用新的超晶格结构、新的晶体材料，以提高转换效率和实现更高的蓝光功率。目前正在进行的工作包括尝试用 LT 的非周期结构和近化学计量比铌酸锂的准周期结构来实现 1342nm 的倍频和三倍频，我们的近期目标是实现 500mW 蓝光和几瓦的红光输出。

2.5 1342nm 的倍频红光和全固态红光激光器

在上一节中，我们主要报道了用周期极化的钽酸锂超晶格实现 1342nm 谱线三倍频的研究结果。其中，三倍频蓝光是我们主要关心的目标，倍频红光只是蓝光的一个副产品。这一节我们专门考虑用周期钽酸锂超晶格实现 1342nm 谱线的倍频。已有文献报道使用 KTP 和 LBO 两种非线性光学晶体通过位相匹配对该谱线进行倍频获得了 671nm 红光，但目前为止使用光学超晶格通过准位相匹配来实现有效的红光倍频仍未见报道。我们希望能用这一方案构建一个全固态红光激光器。由于光学超晶格有效非线性系数高于 KTP 和 LBO 晶体，利用光学超晶格构建全固态红光激光器具有技术上的优势。

一阶倍频超晶格的周期和折射率的关系为

$$\Lambda = \frac{\lambda_{\omega}}{2(n_{2\omega} - n_{\omega})} \quad (2.7)$$

其中 λ_{ω} 是基波波长， n_{ω} 和 $n_{2\omega}$ 分别是基波和二次谐波的折射率。利用参考文献(8)中的 Sellmeier 公式，我们将超晶格的周期设定为 14.77 μm ，这一周期与上一节中实现 1342nm 三倍频的周期不同，这样可以抑制红光的能量向蓝光转移，有利于提高红光的功率。

样品的极化方法与上一节相同。制备好的样品长度为厚度为 0.5mm，20mm。图 2-18 是用 SEM 拍摄的 +C 面畴的形貌，样品未腐蚀过。可见畴的扩展不如我们预计的严重，反转畴的宽度比未反转的部分窄，反转畴的占空比不到 0.5。

由于 $d_{\text{eff}} = d_{33} \frac{2}{\pi m} \sin(\pi m D)$ ，式中 D 为反转畴的占空比， $D=0.5$ 时， d_{eff} 取到最大值， D 的值偏离 0.5 将影响样品有效非线性系数，本节最后将会说明。

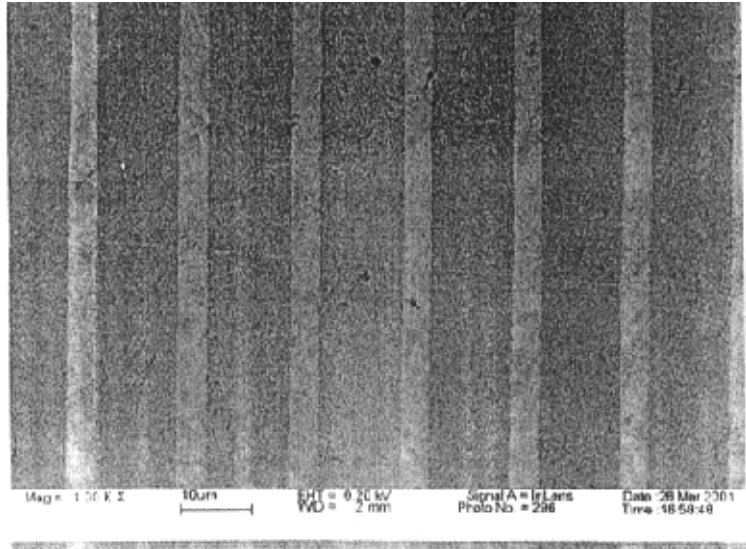


图 2-18 用 SEM 观察到的+C 面形貌图

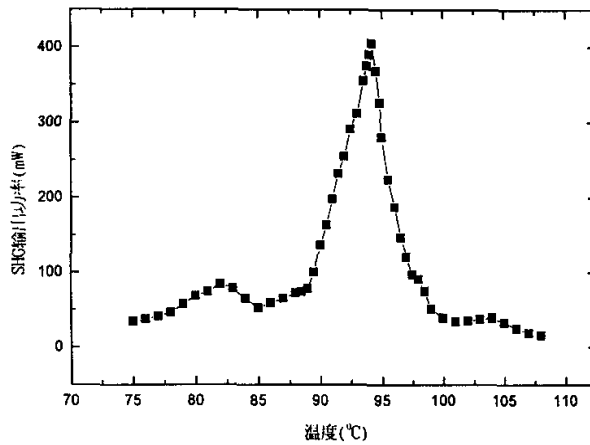


图 2-19 PPLT 晶体输出红光平均功率与温度的关系

由于基波光也是 1342nm，激光系统与上一节完全相同。实验时，入射的基波平均为 647mW，相应峰值功率为 719W，束腰处的峰值能量密度约为 36.6MW/cm²。样品用加热炉加热到位相匹配所需温度。得到的红光最高平均功率为 407mW。输出的二次谐波的平均功率和温度之间的关系如图 2-19 所示，位相匹配温度为 94.2℃，温度的带宽为 4.5℃。与上一节中的情况相似，温度带

宽比理论计算的 3.5°C 为高。原因我们认为也和上一节中的一样。

以上的测试都是在基波光为准连续的状态下进行的，为了测量晶体的有效非线性系数，我们关掉声光开关，将 PPLT 样品在 Nd:YVO₄1342nm 激光器的连续光模式下进行测量。当晶体内部基波功率为 1.8W 时，得到连续红光功率为 10mW。根据文献报导可知，有效非线性系数可按下式计算

$$d_{eff} = \frac{P_{out}}{(P_m)^2} \frac{\lambda_\omega^3 n_\omega n_{2\omega} \epsilon_0 c}{16\pi^2 l} \frac{1}{h\rho} \quad (2.8)$$

其中 P_m 是晶体内部的基波功率， P_{out} 是相应的二次谐波功率， λ_ω 为基波波长， n_ω 和 $n_{2\omega}$ 分别为基波和二次谐波的折射率， l 为样品长度， ϵ_0 是真空介电常数， c 为光速。标量因子 h 为无量纲量，用来量化聚焦和双折射的影响。在非严格的位相匹配相互作用下，作近最佳聚焦近似， h 为单位量级。考虑到基波存在多种模式，需要引入因子 ρ ，当多轴向模式 ($N \geq 10$) 存在时， ρ 接近 2。我们在计算中取定 h 和 ρ 分别为 1 和 2。显然在实际的实验条件下 h 和 ρ 要比 1 和 2 小，因此这样计算得到的 d_{eff} 会在一定程度上偏小。将测得的数据代入公式中，我们算得 d_{eff} 等于 3.8pm/V。据文献报道，LiTaO₃ 的非线性系数 d_{33} 对 1313nm 和 1064nm 的红外光分别为 10.7pm/V 和 13.8pm/V，由此作线性近似推算可以得到对 1342nm 红外光， d_{33} 等于 10.3pm/V，相应的 d_{eff} 为 6.6pm/V，测量值约为理论值的 60%。有效非线性系数的减小主要是占空比对 50% 的偏差造成的，同时样品畴结构中的少量缺陷也有一定影响。

参考文献：

1. M. Dumitrescu, M. Toivonen, P. Savolainen, S. Orsila, M. Pessa: *Optical and Quantum Electronics* **31**, 1009 (1999)
2. M. Toivonen, P. Savolainen, S. Orsila, V. Vilokkinen, M. Pessa, P. Corvini, F. Fang, R.F. Nabiev, M. Jansen: *Journal of Crystal Growth* **202**, 877 (1999)
3. F. Balembois, F. Falcoz, F. Kerboull, F. Druon, P. Georges, F. Brun: *IEEE J. of Quantum Electronics* **33**, 269 (1997)
4. S. Nakamura, M. Senoh, S. Nagahama, S. I. Nagahama, N. Iwasa, T. Matsushita, T. Mukai: *Appl. Phys. Lett.* **76**, 22 (2000)
5. G. D. Miller, R. G. Batchko, W. M. Tulloch, D. R. Weise, M. M. Fejer, and R. L.

- Byer, Opt. Lett. 22, 1834, 1997
6. G. W. Ross, M. Pollnau, P. G. R. Smith, W. A. Clarkson, P. E. Britton, and D. C. Hanna, Opt. Lett. 23, 171, 1998
 7. R. G. Batchko, M. M. Fejer, R. L. Byer, D. Woll, R. Wallenstein, V. Y. Shui, and L. Erman, Opt. Lett. 24, 1293, 1999
 8. S. N. Zhu, Y. Y. Zhu, H. F. Wang, Z. Y. Zhang, N. B. Ming, W. Z. Shen, Y. Chang, and X. C. Shen, J. Phys. D 28, 2389, 1995
 9. Y. Kitaoka, K. Mizuuchi, K. Yamamoto, M. Kato, and T. Sasaki, Opt. Lett. 21, 1972, 1996
 10. M. Pierrou, F. Laurell, H. Karlsson, T. Kellner, C. Czeranowsky, and G. Huber, Opt. Lett. 24, 205, 1999
 11. A. Englander, R. Lavi, M. Katz, M. Oron, D. Eger, E. Lebiush, G. Rosenman, and A. Skliar, Opt. Lett. 22, 1598, 1997
 12. A. Harada, Y. Nihei, Y. Okazaki, and H. Hyuga, Opt. Lett. 22, 805, 1997
 13. S. N. Zhu, Y. Y. Zhu, and N. B. Ming, Science 278, 843, 1997
 14. 奚元新, 硕士论文 (2001)
 15. 刘照伟, 硕士论文 (2001)
 16. Doctor dissertation of Gregory David Miller. Department of Electrical Engineering of Stanford University. July 1998.
 17. V. Gopalan, T. E. Mitchell, K. E. Sicakfus, Solid State Comm., 109, 111 (1999)
 18. V. Y. Shur, E. V. Nikolaeva, E. I. Shishkin, V. L. Kozhevnikov, A. P. Chemykh, A. P. L. 79, 3146 (2001)
 19. 祝世宁, 博士论文 (1996)
 20. J. P. Meyn and M. M. Fejer, Opt. Lett. 22, 1214, 1997
 21. O. Pfister, J. S. Wells, L. Hollberg, L. Zink, D. A. Van Baak, M. D. Levenson, and W. R. Bosenberg, Opt. Lett. 22, 1211, (1997)
 22. G. D. Boyd and D. A. Kleinman: J. Appl. Phys. 39, 3597 (1968)
 23. S. Helmfrid and G. Arvidsson: J. Opt. Soc. Am. B 8, 2326 (1991)
 24. I. Shoji, T. Kondo, A. Ktamoto, M. Shirane and R. Ito: J. Opt. Soc. Am. B 14, 2268 (1997)

第三章 准周期光学超晶格的设计

自准晶发现以来，人们对准周期结构的研究产生了浓厚的兴趣。准周期结构是介于周期结构和无序系统之间的一种新型结构，其能谱具有多分形性和自相似性。准周期结构的介电体超晶格在非线性光学变频领域具有广泛的应用前景。一维准周期结构可以看成是二维或更高维周期结构在一维的投影，因此它的倒格矢比周期结构丰富的多，物理效应和现象也丰富的多。一维Fibonacci光学超晶格的结构相对简单，我们课题组对其结构、线性非线性光学效应进行了系统的研究。然而，Fibonacci光学超晶格具有确定的倒空间结构和特定的二次、三次谐波谱。为了能在同一块晶体中实现任意两个或两个以上参量过程的准位相匹配，必须设计不同序列的准周期结构。本章说明了如何用投影法得到不同序列的两组元和三组元的准周期结构以及它在倒空间的傅立叶谱，并设计了一种用于实现1342nm的三倍频的二组元准周期结构，和一种用于实现在1064nm泵浦光下实现红绿蓝三基色的输出的三组元准周期结构。

3.1 准周期结构的投影理论

根据 P. K. P. Zia 在 1985 年提出的投影理论，D 维的准周期结构可以由一个 N 维 ($D < N$) 的超空间周期点阵在 D 维空间的投影得到，其中高维空间的维度对应于准周期结构中的组元数。如一维的二组元准周期结构可以由一个二维的四方点阵投影得到 (图 3-1)。投影窗口为 x 轴和 y 轴的单位长度在 η 轴上的投影之和。 θ 为投影线与 x 轴的夹角，称为投影角。当 $\text{tg}\theta = \frac{1+\sqrt{5}}{2}$ 时，得到的就是著名的 Fibonacci 序列。只要 θ 是无理数，得到的投影序列就是准周期的。不同的 θ 得到的准周期结构也不同。因此，用这种方式产生的准周期结构有无穷多个。 θ 是唯一决定准周期结构的参数。

一般的二组元准周期结构由 A、B 两个基元排列而成，每个基元由一对正负畴构成。设定 A、B 基元中的正畴宽度相等，用 l 表示。理论计算表明准周期结构倒格矢位置为：

$$G_{m,n} = 2\pi \frac{m + n\gamma}{D} \quad (3.1)$$

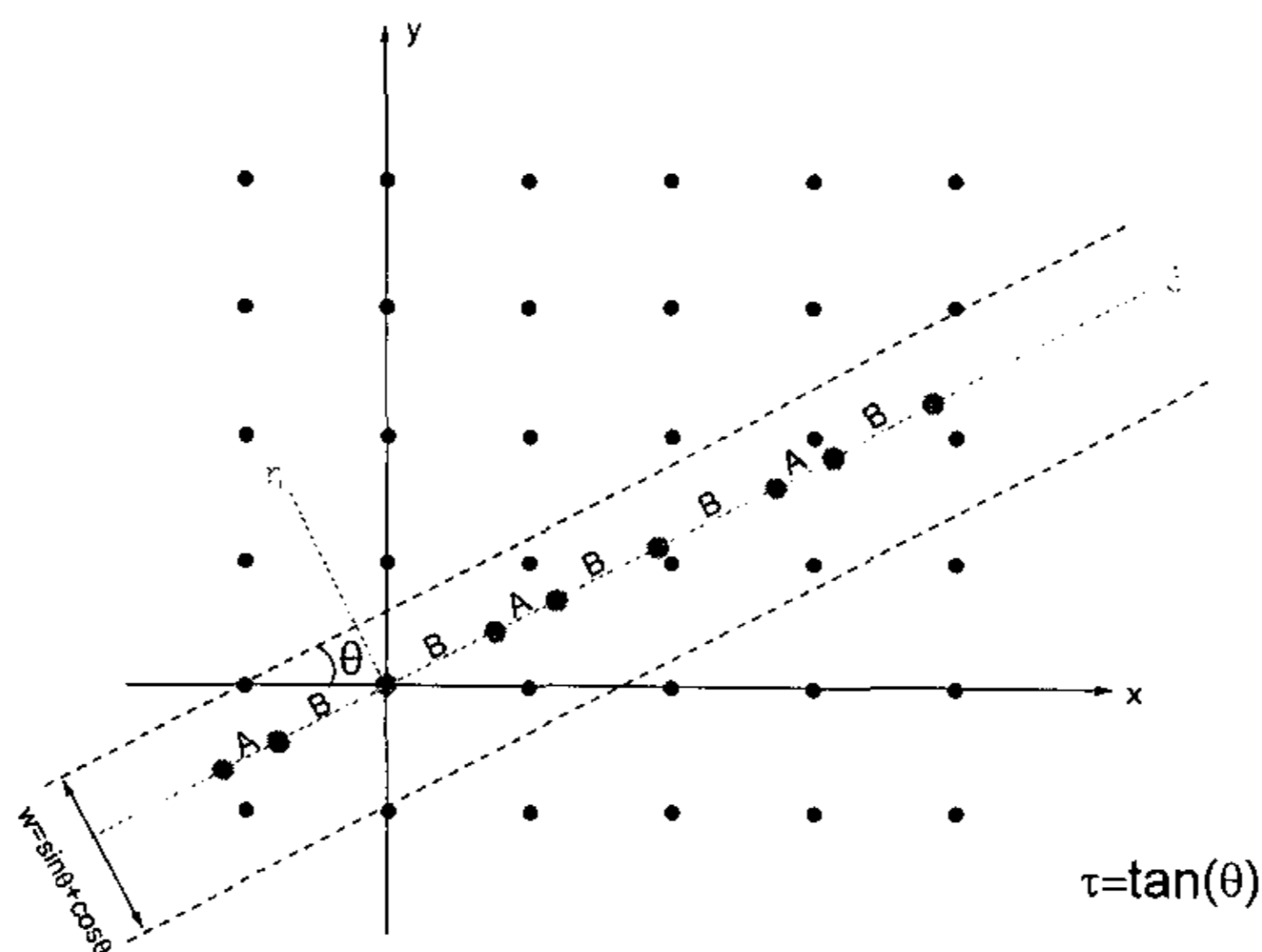


图 3-1 投影法示意图

每一个倒格矢对应的傅立叶系数和有效非线性系数分别为：

$$g_{m,n} = 2(1 + \gamma) \frac{l}{D} \text{sinc}\left(\frac{1}{2} G_{m,n} l\right) \text{sinc}(X_{m,n}) \quad (3.2)$$

$$d_{\text{eff}(m,n)} = g_{m,n} d \quad (3.3)$$

式中， $D = \gamma D_A + D_B$ ， $X_{m,n} = \pi D^{-1} (1 + \gamma) (m D_A - n D_B)$ ， d 是材料的非线性系数。

γ 为投影角的正切， m, n 为任意整数。 γ, D 可以任意设定，因此一个二组元超晶格可以提供两个完全独立的倒格矢。我们实验室从理论上对二组元的准周期结构做了深入细致的研究，并已将其应用到激光变频实验中来。实验用的基波光波长为 1440nm，得到的 480nm 三倍频蓝光转换效率为 27%。

从二组元的准周期结构出发，我们进一步推广了投影的思想，用投影法得到一般三组元准周期序列，并以和二组元类似的方法，推导出倒格矢的位置和高度的解析表达式。三组元准周期序列包含三个基本单元 A, B, C ，每个单元都由一对正负畴组成（见图 3-2）。 D_A, D_B, D_C 分别表示 A, B, C 的长度，设定 A, B, C 中的正畴长度相等，用 l_C 表示。定义

$$\eta_1 = \lim_{n \rightarrow \infty} \frac{|A|_n}{|C|_n}; \quad \eta_2 = \lim_{n \rightarrow \infty} \frac{|B|_n}{|C|_n}; \quad \eta_3 = \lim_{n \rightarrow \infty} \frac{|C|_n}{|C|_n} = 1 \quad (3.4)$$

$|A|_n$ 、 $|B|_n$ 和 $|C|_n$ 分别表示单元 A、B、C 在序列中的数目，n 表示序列的总单元数。

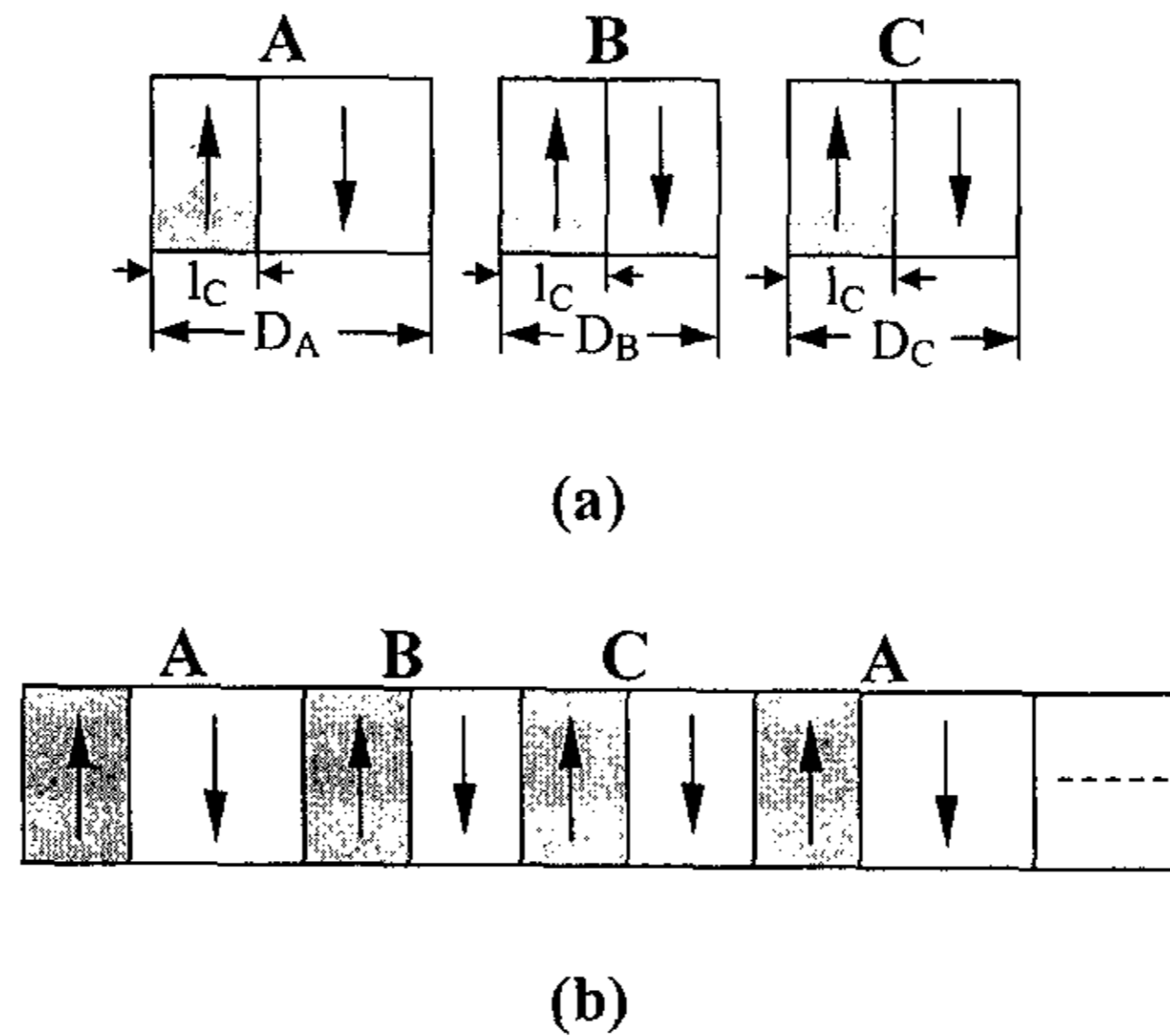


图 3-2 (a) 三组元准周期三个基本单元 A、B、C。箭头表示畴的取向。
(b) 三组元准周期结构示意图

与二组元准周期超晶格相似，三组元准周期超晶格可以由一个三维立方点阵向一条直线投影得到。投影示意图见图 3-3。我们首先定义一个直角坐标系 $X: \{x, y, z\}$ ，原点为 O 。在这个坐标系中分布着周期的立方点阵，其晶格常数设为 1。定义另一个直角坐标系 $X': \{\eta, \xi, \gamma\}$ ，原点也在 O 处，并选择 γ 轴为投影线。定义 α_1 、 α_2 、 α_3 为投影线分别与 x 、 y 、 z 轴的夹角。如果 η_1 、 η_2 为无理数，则除了 O 点外，立方点阵的其他格点都不会落在投影线上。这样得到的投影结构将是一个准周期序列。

立方点阵的格点可以用 $U_0(x,y,z)$ 来表示：

$$U_0(x, y, z) = \sum \delta(x - m)\delta(y - n)\delta(z - l)/(2\pi)^3 \quad (3.5)$$

其中的求和也包括对所有的格点 (m, n, l) 。

接下来确定投影的窗口即范围。只有在这个窗口内的格点才可以被投影到 γ 轴上。在二维情况时，窗口大小是 $2w = (\sin\theta + \cos\theta)$ ，可以认为是由 x 、 y 轴分别向 η 轴投影的和。由此我们联想到三维情况也应该类似。二维情况的窗口是由

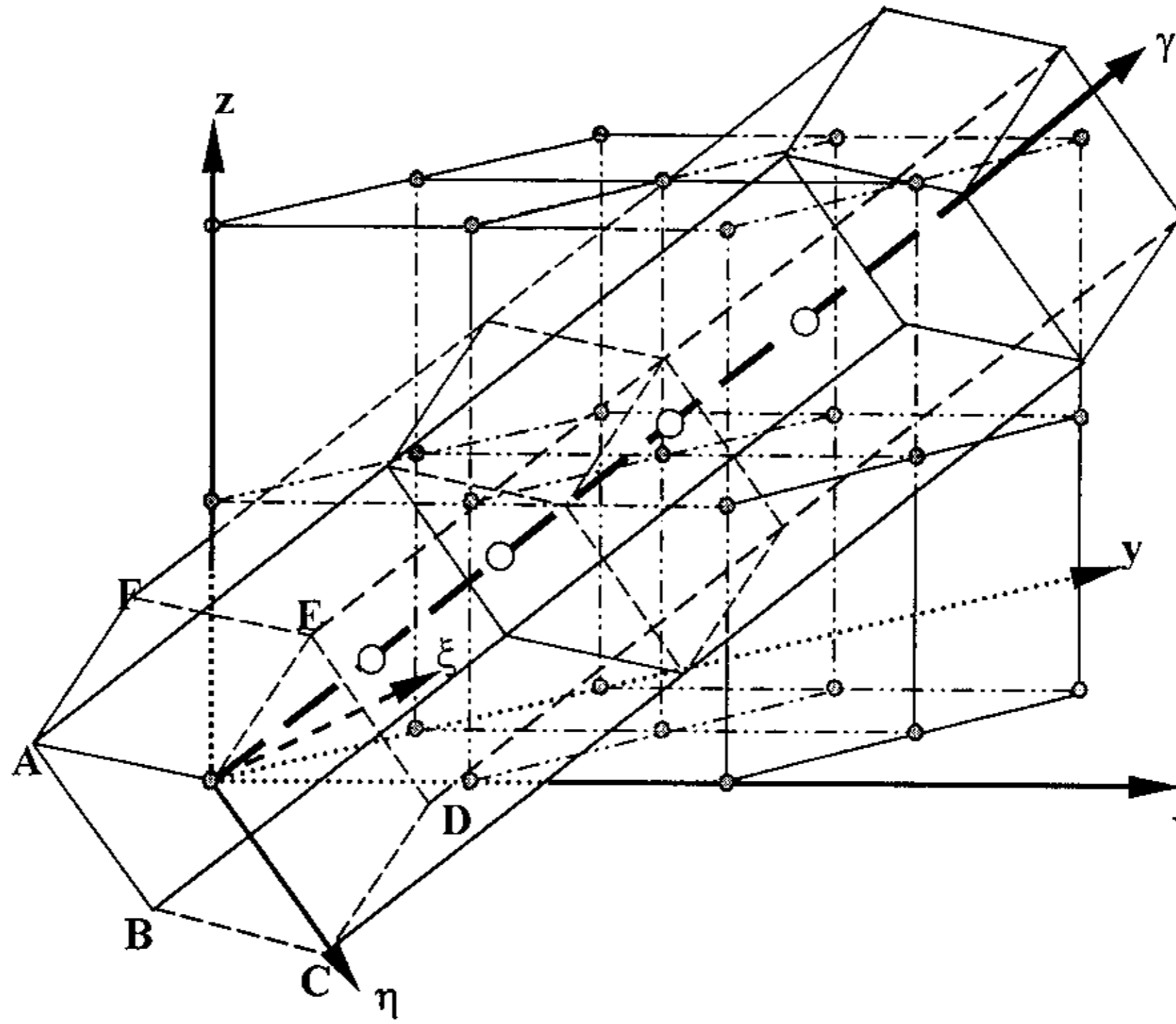


图 3-3 三组元准周期超晶格投影示意图

两根轴在垂直投影线的方向投影所形成的一条线段，那么三维情况就应该是由三根轴在垂直投影线的平面那投影形成的一个六边形 ABCDEF（见图 3-4）。其中 X' 、 Y' 、 Z' 分别表示 X 、 Y 、 Z 轴在 $\xi-\eta$ 面上的投影。将这个六边型 ABCDEF 沿着 γ 方向延伸形成一个六边柱，所有落在这个柱内的格点都可以投影到 γ 轴上。这个六边柱就是投影的窗口。投影得到的序列是由三个长度不等的基本单元构成的，并且其长度满足 $D_A : D_B : D_C = \eta_1 : \eta_2 : \eta_3$ 。这个序列就是三组元的准周期序列，其投影点的分布是准周期的。

接下来推导三组元准周期序列的倒格矢位置 and 高度。投影方程可以写为：

$$R(\eta, \zeta) = \begin{cases} 1 & (\text{if } (\eta, \zeta) \in PA) \\ 0 & (\text{otherwise}) \end{cases}, \quad (3.6)$$

则三组元准周期序列可以表示为：

$$Q(\gamma) = \int d\eta d\xi R(\eta, \xi) U(\eta, \xi, \gamma) = S(p, k) * M(\gamma, p, k) \quad (3.7)$$

其中， S 、 M 分别是 R 和 U 的傅里叶变换。

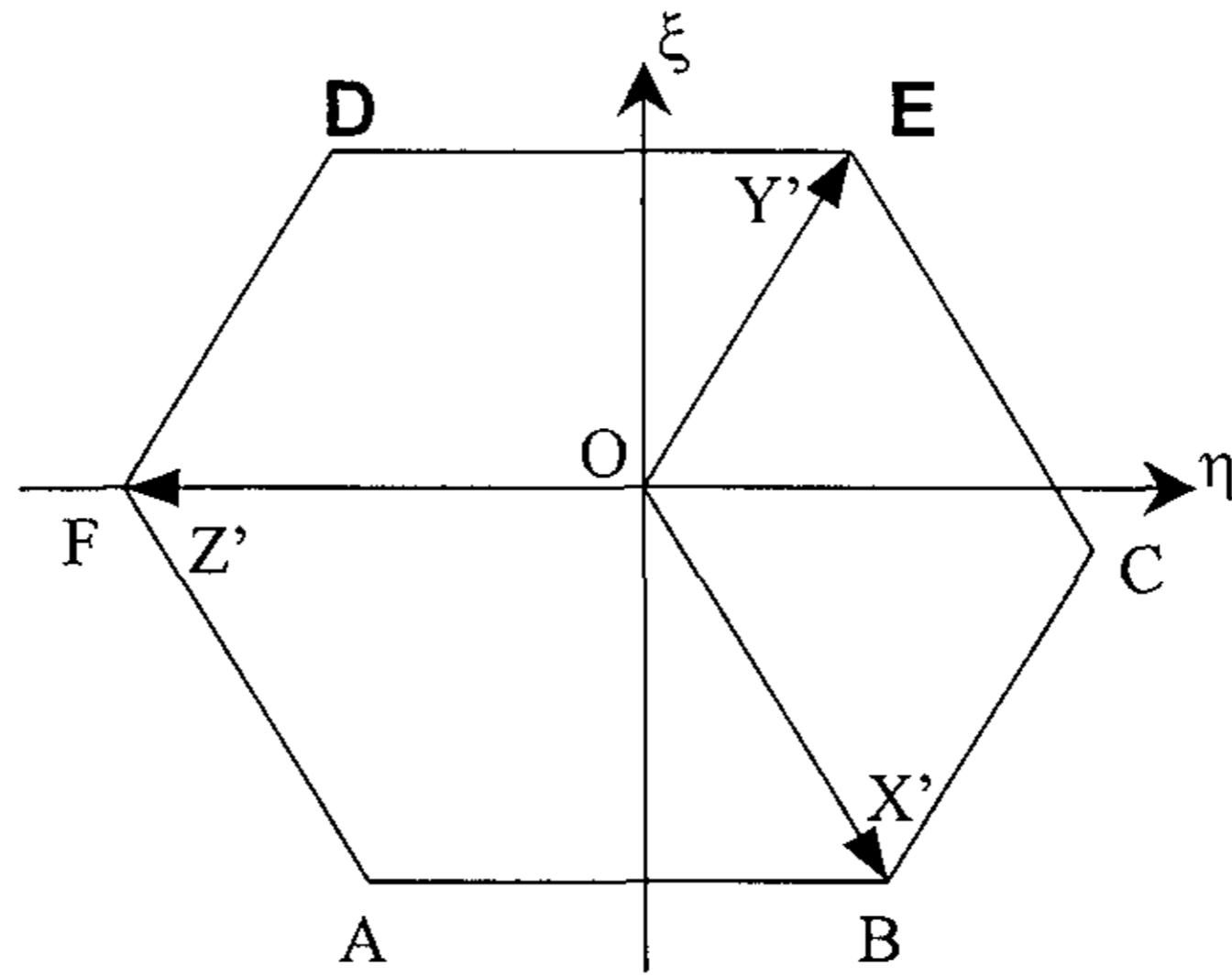


图 3-4 投影窗口示意图

通过根据直角坐标系的坐标变换可求得：

$$\begin{cases} \eta = x \cos \phi \cos \psi + y \sin \phi \cos \psi - z \sin \psi \\ \xi = -x \sin \phi + y \cos \phi \\ \gamma = x \sin \psi \cos \phi + y \sin \phi \sin \psi + z \cos \psi \end{cases} \quad (3.8)$$

$$\sin \phi = \frac{\cos \alpha_2}{\sqrt{1 - \cos^2 \alpha_3}}$$

$$\sin \psi = \sqrt{1 - \cos^2 \alpha_3}$$

同样定义 $F(G)$ 为 $Q(\gamma)$ 的傅里叶变换，则 $F(G)$ 可表示为：

$$\begin{aligned} F(G) &= \iiint S(p, k) M(\gamma, p, k) e^{iG\gamma} dp dk d\gamma \\ &= \iint S(p, k) V(G, p, k) dp dk \end{aligned} \quad (3.9)$$

$$\begin{aligned} V(G, p, k) &= \int M(\gamma, p, k) e^{iG\gamma} d\gamma = \iiint U_o(\eta, \xi, \gamma) e^{ip\eta} e^{ik\xi} e^{iG\gamma} d\eta d\xi d\gamma \\ &= \sum_{n,m,l} \delta [k - 2\pi(m \cos \psi \cos \phi - n \sin \phi + l \sin \psi \cos \phi)] \cdot \delta [p - 2\pi(-m \sin \psi + l \cos \psi)] \\ &\quad \cdot \delta [G - 2\pi(m \cos \psi \sin \phi + n \cos \psi + l \sin \psi \sin \phi)] \end{aligned} \quad (3.10)$$

很明显，只有在

$$\begin{cases} k = k_{n,m,l} = 2\pi(m \cos \psi \cos \phi - n \sin \phi + l \sin \psi \cos \phi) \\ p = p_{n,m,l} = 2\pi(-m \sin \psi + l \cos \psi) \\ G = G_{n,m,l} = 2\pi(m \cos \psi \sin \phi + n \cos \psi + l \sin \psi \sin \phi) \end{cases} \quad (3.11)$$

时, $F(G)$ 才不为零。

$S(p, k) = \iint R(x, y) e^{-ip\eta} e^{-ik\xi} d\eta d\xi$ 是对投影面 ABCEDF 的完全二重傅里叶积分。最后的计算结果是:

$$S_{m,n,l} = \frac{|S_1 + S_2 + S_3|}{2\pi(-m \cos \alpha_2 + n \cos \alpha_1)(\cos \alpha_1 + \cos \alpha_2 + \cos \alpha_3)}; \quad (3.12)$$

$$\begin{aligned} S_1 &= \cos \alpha_1 \cos \alpha_3 (\beta - \gamma) \operatorname{sinc} \frac{\alpha}{2} \operatorname{sinc} \frac{\beta - \gamma}{2}; \\ S_2 &= \cos \alpha_2 \cos \alpha_3 (\gamma - \alpha) \operatorname{sinc} \frac{\beta}{2} \operatorname{sinc} \frac{\gamma - \alpha}{2}; \\ S_3 &= (1 - \cos^2 \alpha_3) (\alpha - \beta) \operatorname{sinc} \frac{\gamma}{2} \operatorname{sinc} \frac{\alpha - \beta}{2}. \end{aligned} \quad (3.13)$$

最后 $F(G)$ 可以写为:

$$F(G) = \sum_{m,n,l} S_{m,n,l} \delta[G - 2\pi D^{-1}(m\eta_1 + n\eta_2 + l\eta_3)] \quad (3.14)$$

这就表示三组元准周期的傅里叶谱是由一系列的 Delta 函数构成的。Delta 函数的位置是:

$$G_{n,m,l} = 2\pi D^{-1}(m\eta_1 + n\eta_2 + l\eta_3). \quad (3.15)$$

$D = \eta_1 D_A + \eta_2 D_B + \eta_3 D_C$ 为平均结构参数。

上式中出现的 α, β, γ 分别代表:

$$\begin{aligned} \alpha &= 2\pi[m(\cos^2 \alpha_2 + \cos^2 \alpha_3) - n \cos \alpha_1 \cos \alpha_2 - l \cos \alpha_1 \cos \alpha_3] \\ \beta &= 2\pi[-m \cos \alpha_1 \cos \alpha_2 + n(\cos^2 \alpha_1 + \cos^2 \alpha_3) - l \cos \alpha_2 \cos \alpha_3] \\ \gamma &= 2\pi[-m \cos \alpha_1 \cos \alpha_3 - n \cos \alpha_2 \cos \alpha_3 + l(\cos^2 \alpha_1 + \cos^2 \alpha_2)] \end{aligned} \quad (3.16)$$

考虑每个单元内的正负畴, 最后的傅里叶变换的表达式可以写为:

$$g_{m,n,l} = 2S_{m,n,l} \frac{l_c(\eta_1 + \eta_2 + \eta_3)}{D} \operatorname{sinc}\left(\frac{G_{m,n,l} l_c}{2}\right) \delta[G_{m,n,l} - 2\pi D^{-1}(m\eta_1 + n\eta_2 + l\eta_3)] \quad (3.17)$$

其中的 $2S_{m,n,l} \frac{l_c(\eta_1 + \eta_2 + \eta_3)}{D} \operatorname{sinc}\left(\frac{G_{m,n,l} l_c}{2}\right)$ 是傅里叶系数, Delta 函数表示每个倒格矢

$$\text{的位置是 } G_{m,n,l} = \frac{2\pi(m\eta_1 + n\eta_2 + l\eta_3)}{D} \quad (3.18)$$

二组元结构可以认为是三组元结构的特例，因此得到的三组元的结果应该也同样适用于二组元结构。事实上也是如此，只要令 $D_B=0$ ，公式(3.17)就可以简化为

$$g_{m,n} = 2(1+\tau)D^{-1} \text{sinc}\left(\frac{G_{m,n}l}{2}\right) \text{sinc}(X_{m,n}) \delta[G_{m,n} - 2\pi D^{-1}(n\tau + m)] \quad (3.19)$$

与公式(3-2)完全相同。

同样，当 $D_A=D_B=D_C$ 时，退化为周期结构，公式(3.17)进一步简化为：

$$g_m = \frac{2}{m\pi} \sin\left(\pi m \frac{l_c}{D}\right) \delta(G_m - 2\pi D^{-1}m) \quad (3.20)$$

可以看出，前面得到的三组元准周期结构倒格矢位置和高度解析式与二组元准周期、周期结构的解析式完全统一。一般的三组元准周期超晶格可以提供三个自由的倒格矢，同时匹配三个任意的光参量过程。

3.2 用于实现 1342nm 的三倍频的二组元准周期超晶格的设计

在上一章中我们用 LT 周期超晶格实现了 Nd:YVO₄1342nm 谱线的倍频和三倍频。因为 LN 晶体的非线性系数比 LT 大，使用 LN 光学超晶格能够得到更大的转换效率和更高的激光功率。但是，由于 LN 的色散不同于 LT，使用周期结构 LN 超晶格不能实现 1342nm 谱线的三倍频。因此我们考虑采用准周期结构，本节将讨论这样一种 LN 的二组元准周期结构。

耦合三倍频过程中包括 SHG 和 THG 两个过程，其位相失配分别是

$$\Delta k_1 = 4\pi / \lambda(n_{2\omega} - n_\omega) \quad (3.21)$$

$$\Delta k_2 = 2\pi / \lambda(3n_{3\omega} - 2n_{2\omega} - n_\omega) \quad (3.22)$$

λ 是基波波长， n_ω , $n_{2\omega}$, $n_{3\omega}$ 分别为基波，倍频与三倍频的折射率。根据 QPM 理论，我们可以利用准周期结构的两个倒格矢来分别补偿倍频和和频的位相失配：

$$\begin{aligned} G_{m,n} &= \Delta k_1 \\ G_{m',n'} &= \Delta k_2 \end{aligned} \quad (3.23)$$

分别把(3.21),(3.22)和(3.1)代入(3.23)，得到：

$$\begin{aligned} 2\pi \frac{m+n\gamma}{D} &= 4\pi / \lambda (n_{2\omega} - n_{\omega}) \\ 2\pi \frac{m'+n'\gamma}{D} &= 2\pi / \lambda (3n_{3\omega} - 2n_{2\omega} - n_{\omega}) \end{aligned} \quad (3.24)$$

调整参数 γ 、 D 、 m 、 n 、 m' 、 n' ，当以上方程组得到满足时，耦合三倍频过程中的 SHG 和 SFG 过程能够同时满足准位相匹配，从而产生高效的三倍频输出。

超晶格的基质材料为 LN，为了消除光折变的影响，我们设定工作温度为 150°C 。入射波长为 1342nm ，倍频和和频的波矢失配分别为 $\Delta k_1 = 0.489\mu\text{m}^{-1}$ 和 $\Delta k_2 = 1.536\mu\text{m}^{-1}$ 。为了得到最大的有效非线性系数，我们选取 $G_{1,1}$ 匹配倍频过程， $G_{3,4}$ 匹配和频过程，即 $m=1, n=1, m'=3, n'=4$ 。代入方程(3.23)可得 $\gamma = 0.16078$ ， $D = 14.886\mu\text{m}$ 。这个结构的一部分可以表示成： $BABBBBBBA\cdots$ 。保持 γ 和 D 不变，调节 D_A ， D_B ， l 。计算表明，当 $D_A = 14.8\mu\text{m}$ ， $D_B = 12.5065\mu\text{m}$ ， $l = 6.2\mu\text{m}$ 时，两个有效非线性系数的乘积最大。图 3-5 为用数值积分方法得到的傅立叶谱。

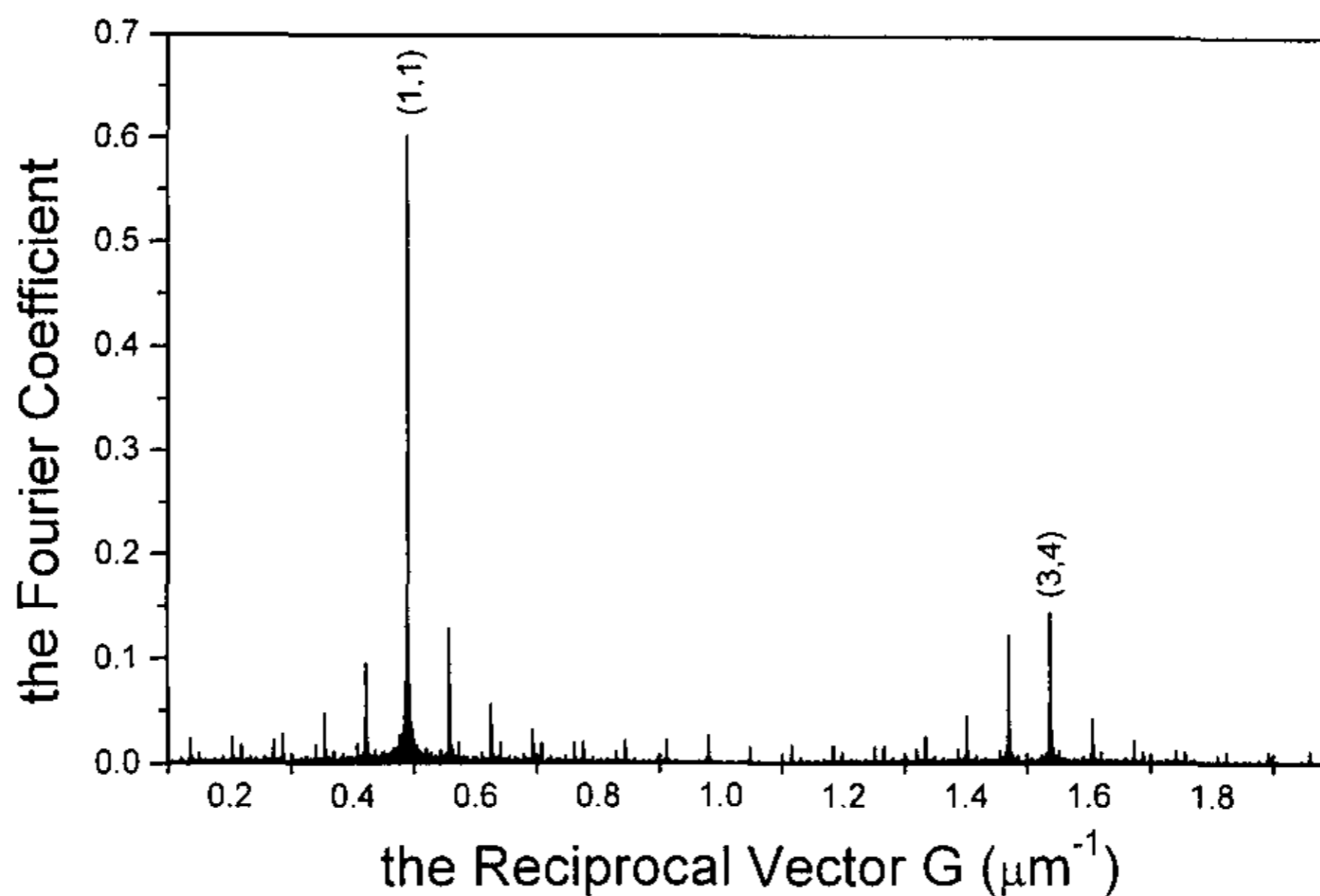


图 3-5 二组元准周期结构的傅立叶谱

从介质中的 Maxwell 方程组出发，在缓变振幅近似下（即舍去振幅的二阶微分项），考虑基波、二次谐波、三次谐波之间 $\omega_1 + \omega_1 \leftrightarrow \omega_2$ ， $\omega_1 + \omega_2 \leftrightarrow \omega_3$ 的能量耦合过程，在位相失配 Δk_1 和 Δk_2 完全被倒格矢 $G_{m,n}$ 和 $G_{m',n'}$ 补偿时，可以得

到下列耦合方程组：

$$\begin{cases} \frac{dA_1}{dx} = i\kappa_2 A_3 A_2^* e^{-i\Delta k_2 x} - i\kappa_1 A_2 A_1^* e^{-i\Delta k_1 x} \\ \frac{dA_2}{dx} = -i\kappa_2 A_3 A_1^* e^{-i\Delta k_2 x} - \frac{i}{2} \kappa_1 A_1^2 e^{i\Delta k_1 x} \\ \frac{dA_3}{dx} = -i\kappa_2 A_1 A_2 e^{i\Delta k_2 x} \end{cases} \quad (3.25)$$

$$\kappa_1 = \frac{d_{m,n}}{c} \sqrt{\frac{\omega_2 \omega_1^2}{n_2 n_1^2}}$$

$$\kappa_2 = \frac{d_{m',n'}}{c} \sqrt{\frac{\omega_3 \omega_2 \omega_1}{n_3 n_2 n_1}}$$

$$d_{m,n} = d_{33} \cdot g_{m,n}$$

$$\Delta k_1' = k^{2\omega} - 2k^\omega - G_{m,n}$$

$$\Delta k_2' = k^{3\omega} - k^{2\omega} - k^\omega - G_{m',n'}$$

当位相失配 Δk_1 和 Δk_2 完全被倒格矢 $G_{m,n}$ 和 $G_{m',n'}$ 补偿时， $\Delta k_1'$ ， $\Delta k_2'$ 为零。方程 (3.25) 化简为：

$$\begin{cases} \frac{dA_1}{dx} = i\kappa_2 A_3 A_2^* - i\kappa_1 A_2 A_1^* \\ \frac{dA_2}{dx} = -i\kappa_2 A_3 A_1^* - \frac{i}{2} \kappa_1 A_1^2 \\ \frac{dA_3}{dx} = -i\kappa_2 A_1 A_2 \end{cases} \quad (3.26)$$

根据方程(3.26)，在基波衰减的条件下，我们还得到了基波光、倍频光和三倍频光转换效率随样品长度的变化关系，见图 3-6。理论上的产生 447 nm 蓝光三倍频的效率可达到 30% 以上。

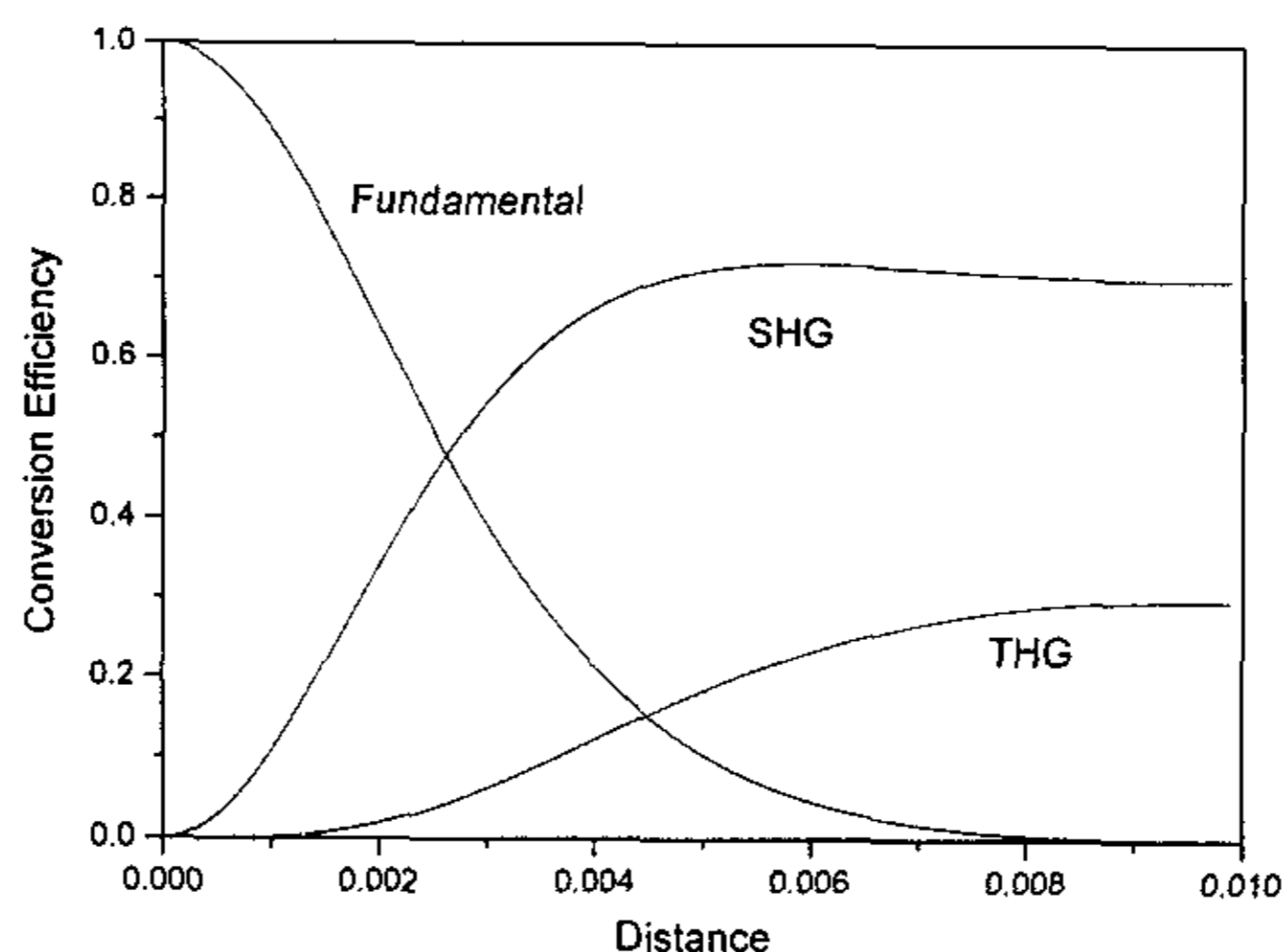


图 3-6 基波光、倍频光、三倍频光的转换效率与样品长度的关系

3.3 用于实现红绿蓝三基元输出的三组元准周期超晶格的设计

在第二章中，我们提到人眼所能感受到的颜色可以通过红绿蓝三基色以不同比例混合而成。我们还得到了一个蓝红双色激光器的原型器件。可以想象，如果能实现一个小型全固态能同时输出红绿蓝三基色的激光器将特别有意义，它必将在诸如真彩显示、高分辨率全彩色打印等光电科技中拥有广泛的应用前景。国际上在这一方面的研究也非常热门。最近，Jaque 等人在三基色激光器的研制方面取得了一定的进展。他们的方案如下：两个半导体激光器（波长分别为 807nm 和 755nm）泵浦同一块 $\text{Nd:YAl}_3(\text{BO}_3)_4$ 晶体，实现了 669nm 红光、505nm 绿光和 481nm 蓝光的的同时输出。掺 Nd^{3+} 的 YAB 晶体能够发射 1338nm 的激光，669nm 的红光是其自倍频；505nm 的绿光和 481nm 的兰光是分别通过两个泵浦光与 1338nm 激光的和频得到的。这种方法只需使用一块晶体，但需要两个泵浦源。

我们考虑只用一个泵浦源得到三基色的输出。思路是：用 1064nm 的泵浦光源，通过一个倍频过程得到 532nm 的绿光，然后绿光通过参量过程得到红色信号光和红外的闲置光，再把绿色的泵浦光和红外的闲置光进行和频获得蓝光。为了简化整个系统的结构，我们拟用一块超晶格来实现这三个参量过程。从前面的讨论可知，三组元准周期超晶格可以提供任意的三个倒格矢来达到这一目的，我

们计划用这种结构。超晶格基质晶体采用 LiTaO_3 晶体。

这一三基色激光器方案的三个过程为：

(1) 绿光产生： $1064\text{nm} \rightarrow 532\text{nm}$ (SHG)

(2) 红光产生： $532\text{nm} \rightarrow 631\text{nm} + 3392\text{nm}$ (OPG)

(3) 蓝光产生： $3392\text{nm} + 532\text{nm} \rightarrow 460\text{nm}$ (SFG)

我们采用不同数字下标代表不同波长的物理量： 1064nm 用 1, 532nm 用 2, 631nm 用 3, 3392nm 用 4, 460nm 用 5。三个过程中的波矢失配分别为 Δk_1 , Δk_2 , Δk_3 。

$$\Delta k_1 = \frac{4\pi(n_2 - n_1)}{\lambda_1}$$

$$\Delta k_2 = 2\pi\left(\frac{n_3}{\lambda_3} + \frac{n_4}{\lambda_4} - \frac{n_2}{\lambda_2}\right)$$

$$\Delta k_3 = 2\pi\left(\frac{n_5}{\lambda_5} - \frac{n_4}{\lambda_4} - \frac{n_2}{\lambda_2}\right)$$

根据 QPM 理论：

$$\begin{aligned} G_{m_1, n_1, l_1} &= \Delta k_1 \\ G_{m_2, n_2, l_2} &= \Delta k_2 \\ G_{m_3, n_3, l_3} &= \Delta k_3 \end{aligned} \quad (3.27)$$

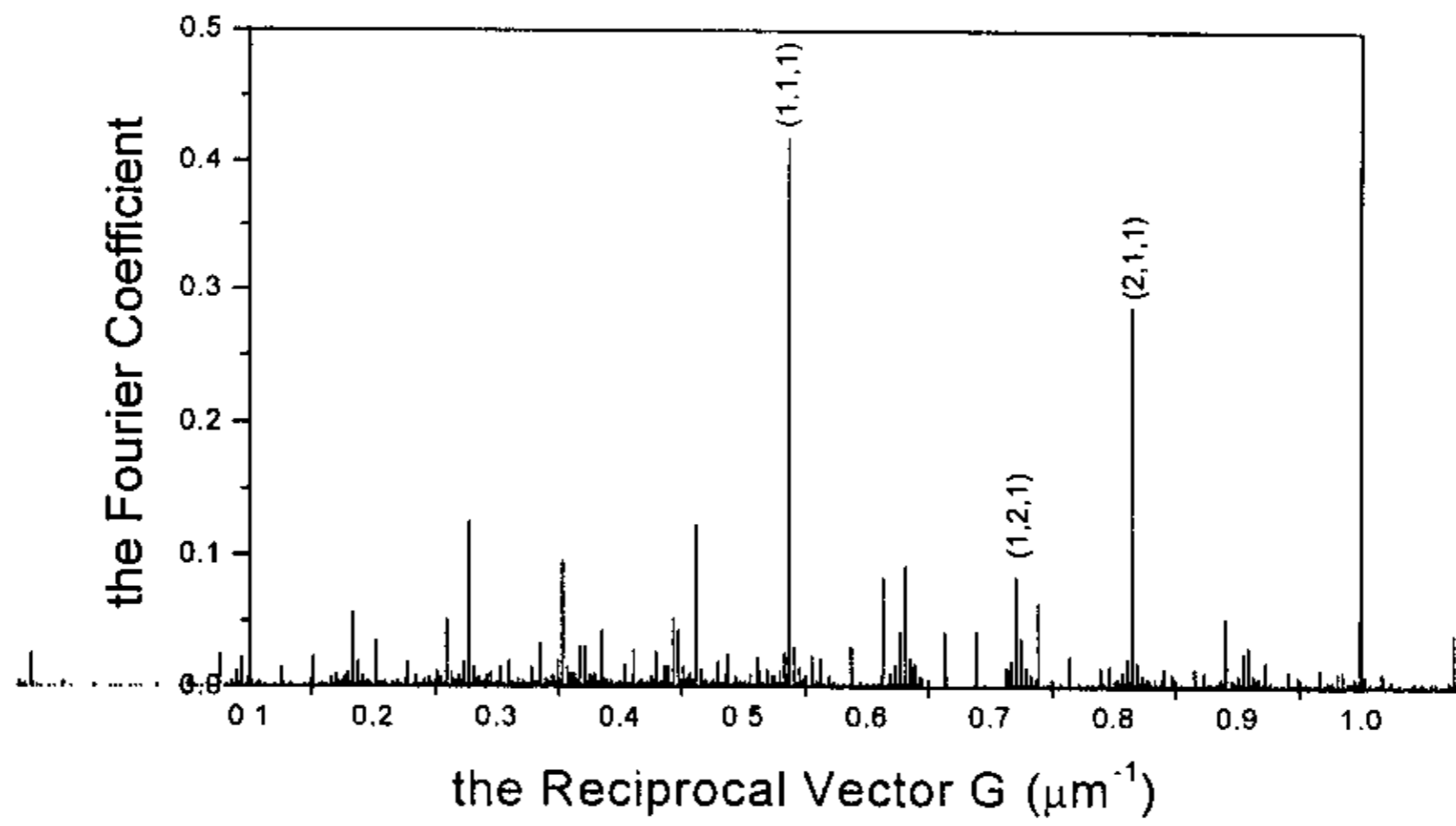
联立式(3.27)和(3.18)，得

$$\begin{aligned} 2\pi \frac{m_1 \eta_1 + n_1 \eta_2 + l_1}{D} &= \Delta k_1 \\ 2\pi \frac{m_2 \eta_1 + n_2 \eta_2 + l_2}{D} &= \Delta k_2 \\ 2\pi \frac{m_3 \eta_1 + n_3 \eta_2 + l_3}{D} &= \Delta k_3 \end{aligned} \quad (3.28)$$

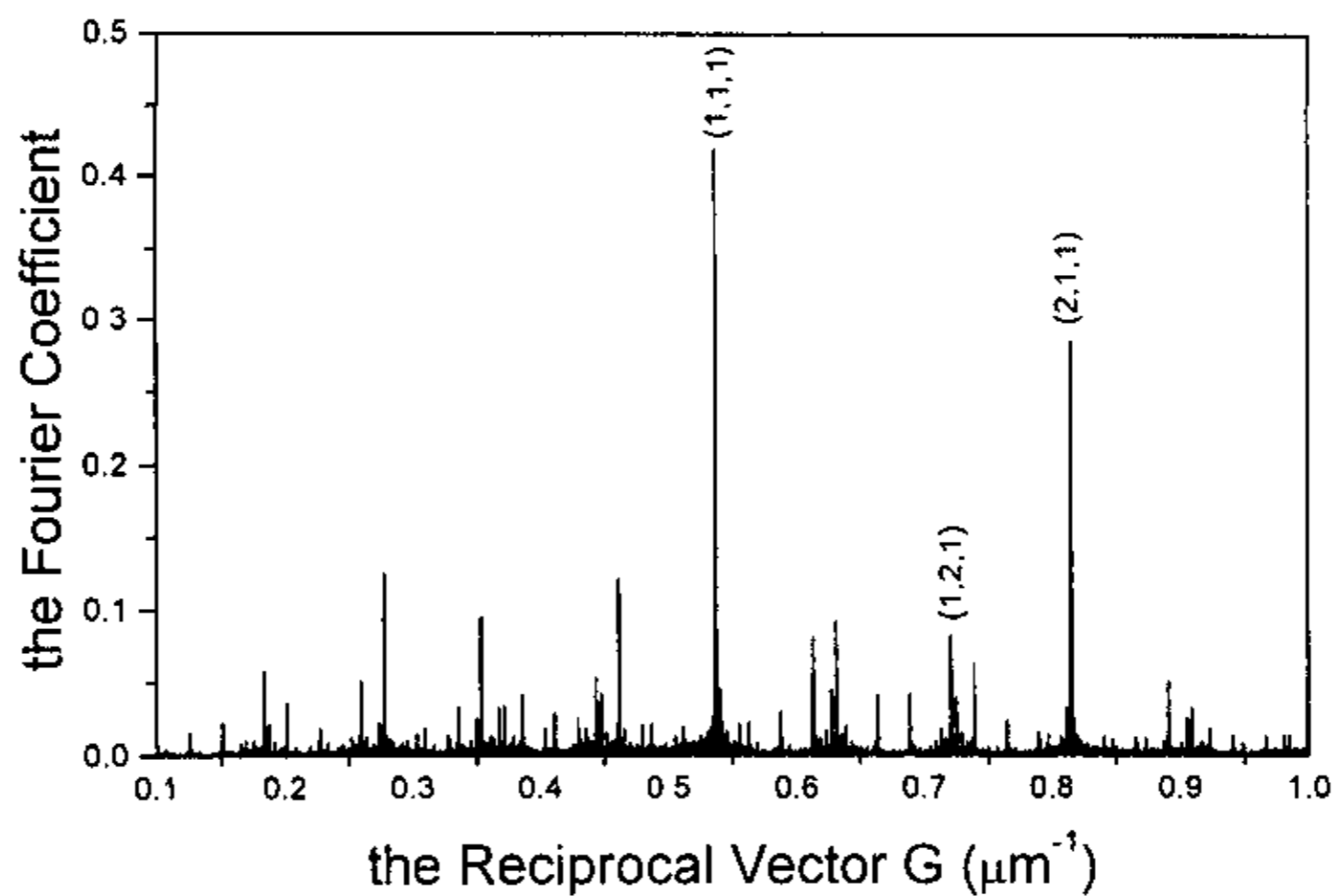
工作温度定为 100°C ，在这一温度下，三个参量过程的波矢失配分别为： $0.8153\mu\text{m}^{-1}$ ， $0.5375\mu\text{m}^{-1}$ 和 $0.7213\mu\text{m}^{-1}$ 。选择 $G_{2,1,1}$ 匹配第一个过程的波矢失配 Δk_1 ； $G_{1,1,1}$ 匹配第二个过程的失配 Δk_2 ； $G_{1,2,1}$ 匹配第三个过程的失配 Δk_3 。选择的最优结构参数为 $D=82.8\mu\text{m}$ ， $\eta_1=3.662$ ， $\eta_2=2.423$ ， $D_A=13.9\mu\text{m}$ ， D_B

$=9.4 \mu m$, $D_c=9.145 \mu m$, $l_c=4.4 \mu m$, 该结构的部分序列为 $CABAABACBA\dots$ 。

在这样的条件下，三个倒格矢傅立叶系数的乘积最大。这一结构的傅立叶谱见图 3-7, (a)(b)分别是解析公式和数值计算得到的结果。表 3-1 是我们需要用到的三个倒格矢峰的高度，即傅立叶系数的对比，可见通过解析公式和数值积分得到的倒格矢位置和高度都吻合的很好。数值计算总长度约为 $11mm$ 。可以看出，此时的展宽已经非常小，非常接近解析解 Delta 函数的情况。



(a)



(b)

图 3-7 三组元结构的傅立叶谱 (a)解析解 (b)数值积分解

	(1, 1, 1)	(1, 2, 1)	(2, 1, 1)
(a)	0.41893	0.08305	0.28737
(b)	0.41868	0.08412	0.28619

表 3-1 (a)解析解(b)数值积分解三个倒格矢高度对比

参考文献

1. P. J. Steinhardt and S. Ostlund, *The Physics of Quasicrystals* (Singapore, World Science, Singapore, 1987); Janot C, *Quasicrystals*, (Oxford, UK, Clarendon Press, 1992)
2. J.A.Armstrong; N.Bloembergen; J.Ducuing; and P.S.Pershan, *Phys, Rev.* **127**, 1918 (1962)
3. R.K.P.Zia and W.J.Dallas, *J. Phys. A.* **18**, L341 (1985)
4. 魏洪, 硕士论文, 2001年
5. 田强, 硕士论文, 1985年
6. H. Wei, C. Zhang, Y. Y. Zhu, S. N. Zhu, N. B. Ming *PHYSICA STATUS SOLIDI B-BASIC RESEARCH*, **229**, 1275 (2002)
7. C. Zhang, H. Wei, Y. Y. Zhu, H. T. Wang, S. N. Zhu, N. B. Ming *OPTICS LETTERS*, **26**, 899 (2001).
8. H. Wei, C. Zhang, Y. Y. Zhu, S. N. Zhu, N. B. Ming, *Ferroelectric* (in press)

第四章 近化学计量比铌酸锂性质的研究

准位相匹配理论在激光变频中的应用，是通过各种铁电晶体超晶格来实现的。室温极化方法是制备铁电体光学超晶格的重要方法。第二章中主要介绍我们如何在均匀的同成分比铌酸锂晶体中制备出超晶格，并将其用于激光的频率转换的研究结果。采用同成分比 LN、LT 作为超晶格的基质晶体，目前所遇到的最大挑战是由于这两种材料的高矫顽场 ($E_k > 20 \text{ kV/mm}$)。在如此之高的矫顽场下，用室温极化方法制备出的 LN、LT 超晶格厚度一般很难大于 0.5mm，这大大限制了光束的半径，阻碍了转换效率和输出功率的进一步提高，成为发展大功率应用的瓶颈。由于化学计量比 LN、LT 晶体矫顽场大为降低，能在更厚的晶片上实现铁电畴的极化反转，因而有可能制备出通光孔径更大的超晶格样品，最终实现更高功率的激光输出。这一章我们主要研究了近化学计量比铌酸锂晶体中锂原子和铌原子的相对含量对晶体物性和极化性质的影响，并成功极化了厚度为 1mm 的用于 1342nm 三倍频的近化学计量比铌酸锂准周期超晶格。

4.1 近化学计量比铌酸锂物理性质的研究和锂铌原子比的测定

目前商业上使用的 LN 晶体都是利用提拉法从同成分 LN 熔体中生长得到。虽然用此方法生长出的晶体光学质量和一致性很好，但晶体中 [Li]/[Nb] 的值约为 48.6:51.4，Li 原子严重缺乏，晶体中形成了大量的本征缺陷。当晶体中的 [Li]/[Nb] 值逐渐接近 1 时，许多物理性质将得到改善。另外，在 2.2 节中讨论过，铌酸锂晶体的 [Li]/[Nb] 值对晶体的极化性质也有着非常大的影响。当 [Li]/[Nb] 接近 1:1 时，矫顽场大大降低，目前报道的最低矫顽场为 0.2kV/mm，仅为同成分比铌酸锂的百分之一。对于用极化方法制备超晶格来说，这一点非常有利。另外，近化学计量比铌酸锂极化后畴壁更平整，畴壁的应力和双折射效应也大大减弱，有利于制作更为精细复杂的全光微结构器件。

生长高质量的近化学计量比铌酸锂晶体一直是人们十分关注的课题。近年来主要发展了三种生长方法：(1) 采用双坩锅技术从富 Li 的铌酸锂熔体中生长获得，这种方法设备较为复杂；(2) 利用气相交换平衡技术 (VTE) 对同成分比铌酸锂晶体薄片进行高温热处理后获得。这一技术把同成分比铌酸锂晶体放在富锂的气氛中进行高温热处理，使锂扩散到晶体中，提高晶体 [Li]/[Nb] 的值。这种方

法一般只能获得片状样品，很难获得大块单品；(3) 从掺入 K_2O 助溶剂的铌酸锂熔体中通过提拉法生长获得，这是目前较为实用的一种方法。 K_2O 的掺入降低了熔体的熔点，从而起到了调节晶体中 $[Li]/[Nb]$ 值的作用。本章研究中所用样品有两种就是用这种方法生长的，还有一种是用 VTE 方法获得的。

因为 $[Li]/[Nb]$ 的值对于铌酸锂晶体的性能影响很大，所以确定晶体中 $[Li]/[Nb]$ 值相当重要。最直接的方法当然是使用化学测定法。但铌酸锂晶体化学性质十分稳定，用化学方法比较困难，而且结果不够精确。另一方面，铌酸锂晶体中 $[Li]/[Nb]$ 的值发生变化时，晶体许多物理性质也会发生变化，有些还相当灵敏，因此我们可以通过测定这些物理性质反过来推算晶体中 $[Li]/[Nb]$ 的值。物理方法不如化学方法直接，但实施起来更简便，而且结果更精确。可以用来测定 $[Li]/[Nb]$ 值的方法很多，如居里温度测定法，拉曼线宽法，双折射法，倍频位相匹配温度法，红外、紫外吸收法，EPR 等。我们根据实验条件，结合各种方法的精确度，选择了紫外吸收边、 OH^{-1} 红外吸收峰、矫顽场、差热分析 (DTA) 测居里温度四种方法。

实验中使用的近化学计量比铌酸锂样品有三种，第一种是在同成分 $LiNbO_3$ 熔体中，掺入 11mol% 助熔剂 K_2O ，利用提拉法生长的近化学计量比 $LiNbO_3$ 晶体 (简称为 SLN11)，第二种是在化学配比熔体中，掺入 19mol% 助熔剂， K_2O 利用提拉法生长的近化学计量比 $LiNbO_3$ 晶体 (简称为 SLN19)，第三种为通过 VTE 处理的同成分比铌酸锂样品 (简称为 VTESLN)，作为对比，也对同成分比铌酸锂也进行了测定 (CLN)。这三种近化学计量比铌酸锂晶体样品都是由上光富晶光电材料有限公司提供的。

1. 紫外吸收边

晶体的紫外吸收边通常定义为吸收率 $\alpha = 15cm^{-1}$ 或 $\alpha = 20cm^{-1}$ 时对应的光波波长。纯铌酸锂晶体的紫外吸收边与 $[Li]/[Nb]$ 的值密切相关，随着 $[Li]/[Nb]$ 值的提高，吸收边将向短波方向移动。具体做法是先测出样品在 300nm 至 380nm 的透射率，吸收率和透射率的关系由式 (1) 决定

$$\alpha = -\frac{1}{x} \ln\left(-b + \sqrt{b^2 + \frac{1}{R^2}}\right) \quad (1)$$

式中， α 为吸收率， R 为反射率，因为是垂直入射，所以 $R = (n-1)^2 / (n+1)^2$ ，

$b = \frac{(1-R)^2}{2TR^2}$, T 为透射率。通过公式 (1) 和透射率谱可以定出样品的吸收

谱线。图 4-1 给出了四种样品的吸收谱线。四种样品在 $\alpha = 15\text{cm}^{-1}$ 及

$\alpha = 20\text{cm}^{-1}$ 处的吸收边列在表 4-1 中。可见样品 SLN19 吸收边波长最短。

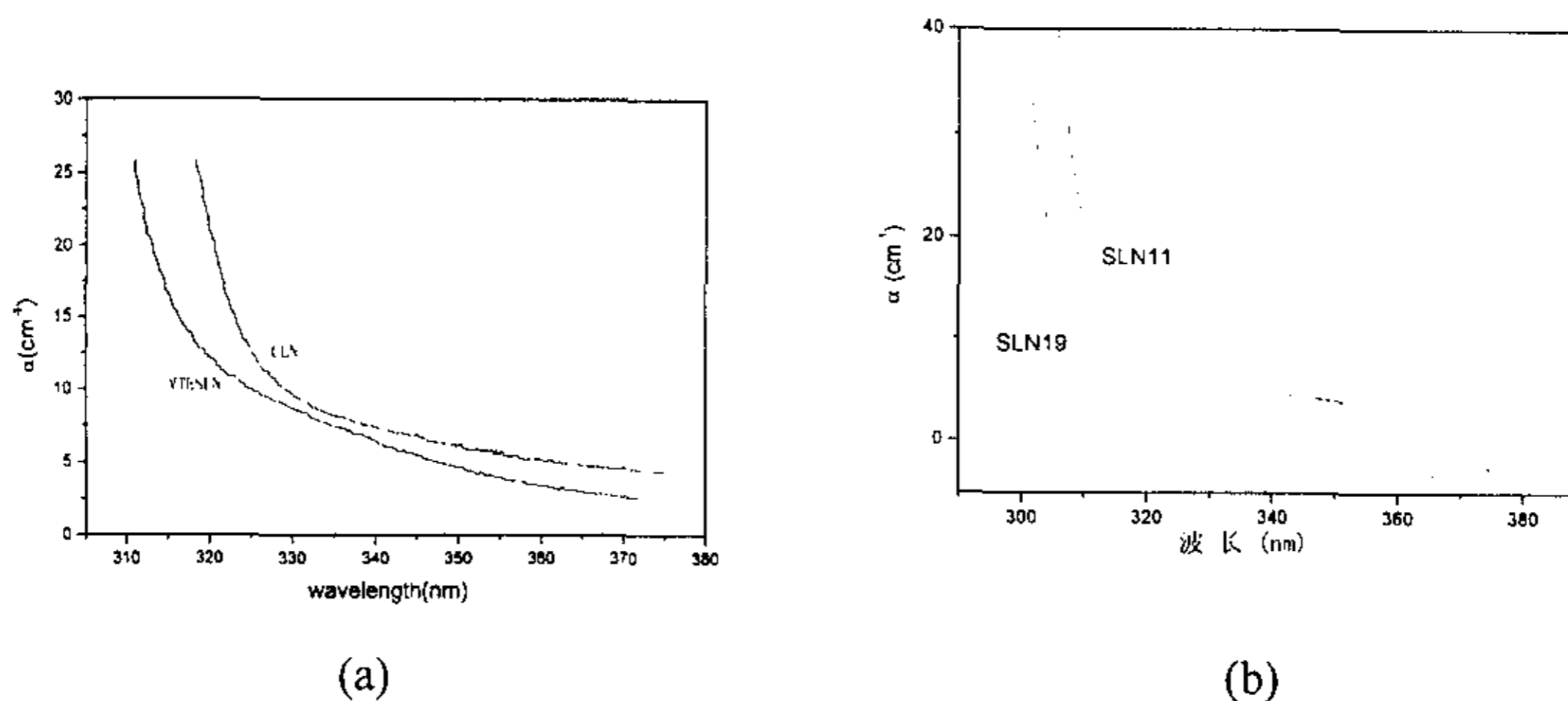


图 3-1 (a)样品 VTESLN 和 CLN (b)样品 SLN11 和 SLN19 的紫外吸收边

	CLN	VTESLN	SLN11	SLN19
$\alpha = 15\text{cm}^{-1}$	323nm	316nm	312nm	306nm
$\alpha = 20\text{cm}^{-1}$	320nm	313nm	310nm	304nm

表 4-1 四种样品的紫外吸收边

紫外吸收边和晶体中 $[\text{Li}]/[\text{Nb}]$ 的值的关系由以下两个经验公式表示：

$$\lambda_{15} = 321.9 - 1.597x - 5.745x^2$$

$$\lambda_{20} = 320.4 - 1.829x - 5.485x^2$$

式中, λ_{15} , λ_{20} 指吸收率为 15cm^{-1} 及 20cm^{-1} 时的光波波长, $x=[\text{Li}_2\text{O}]-48.38\text{mol}\%$ 。我们以吸收率为 15cm^{-1} 为准, 得到四种样品 $[\text{Li}]/([\text{Li}]+[\text{Nb}])$ 的值。列在表 4-2 中。

	CLN	VTESLN	SLN11	SLN19
[Li]/([Li]+[Nb])	48.5%	49.4%	49.6%	49.9%

表 4-2 由紫外吸收边确定的四种样品[Li]/([Li]+[Nb])值

2. 红外吸收

铌酸锂生长过程中，原料和空气中含有水份，因此不可避免的会有少量氢原子进入晶体中，与晶体中的氧原子形成 OH^- 根离子。这一离子团在 3500cm^{-1} 附近形成明显的振动吸收带。此吸收带的线宽和波形与晶体中的锂含量有密切关系。随着 [Li]/[Nb] 值的提高， OH^- 吸收带明显变窄，并向低波数方向移动。在 [Li]/[Nb] 非常接近 1 时， OH^- 吸收峰成为线宽仅为 3cm^{-1} 、峰值位于 3466cm^{-1} 的单一吸收峰。因此测量铌酸锂样品的红外吸收谱，可以定性判断铌酸锂晶体中的 [Li]/[Nb]。我们所用的四个样品实验结果如图 4-2 所示。各个样品的吸收峰半宽度和峰值的位置列在表 4-3 中。可以看出，样品 SLN19 的峰已是明显的单峰结构，半宽度也非常窄。表明这种样品中 [Li]/[Nb] 的值已经非常接近 1，这与紫外吸收边的结果相符。

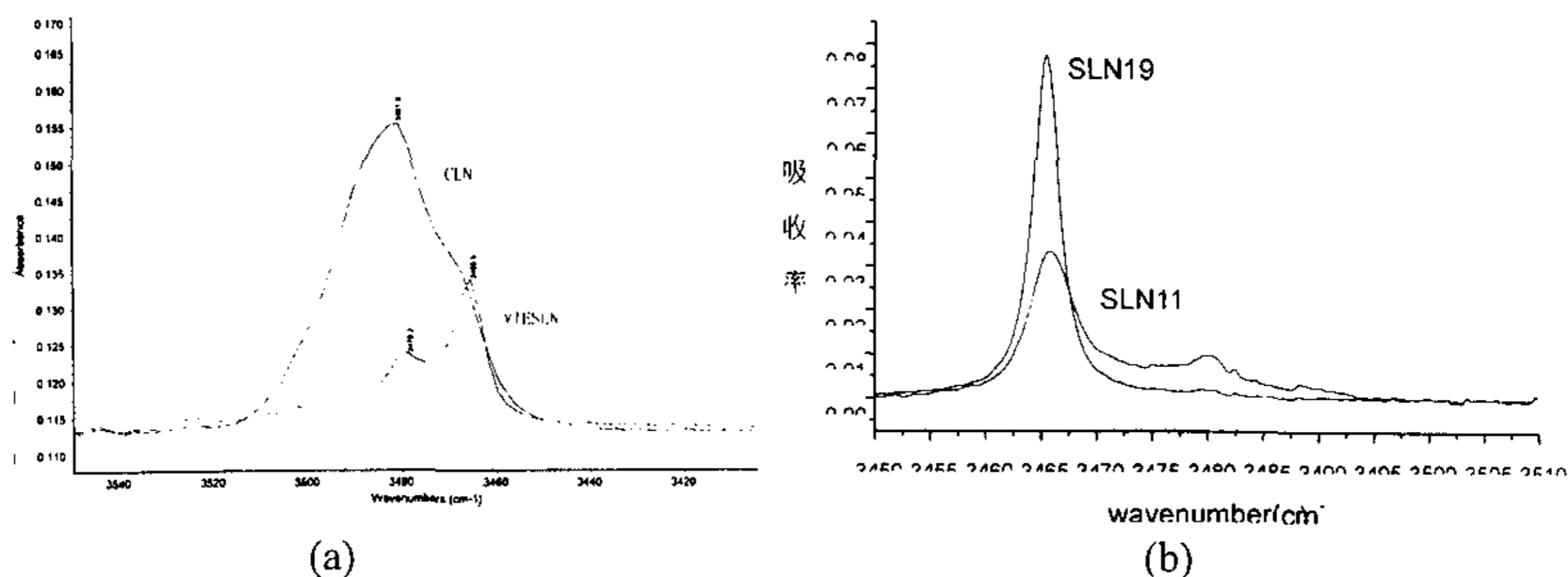


图 4-2 (a)样品 CLN 和 VTESLN(b)SLN11 和 SLN19 红外吸收谱图

	CLN	VTESLN	SLN11	SLN19
吸收峰半宽度 (cm^{-1})	43	8	5	3
峰值(cm^{-1})	3481.8	3465.8	3465.7	3465.2

表 4-3 四种样品的红外吸收半宽度和峰值

3. 矫顽场

铌酸锂的矫顽场与[Li]/[Nb]的值密切相关。矫顽场的值随着[Li]/[Nb]的增加快速下降。我们得到的四种样品的矫顽场的值见表 4-4。其中样品 SLN19 的矫顽场值 0.8kV/mm 是目前报道的最低的矫顽场之一。

	CLN	VTESLN	SLN11	SLN19
矫顽场 (kV/mm)	21	5.2	4.4	0.8

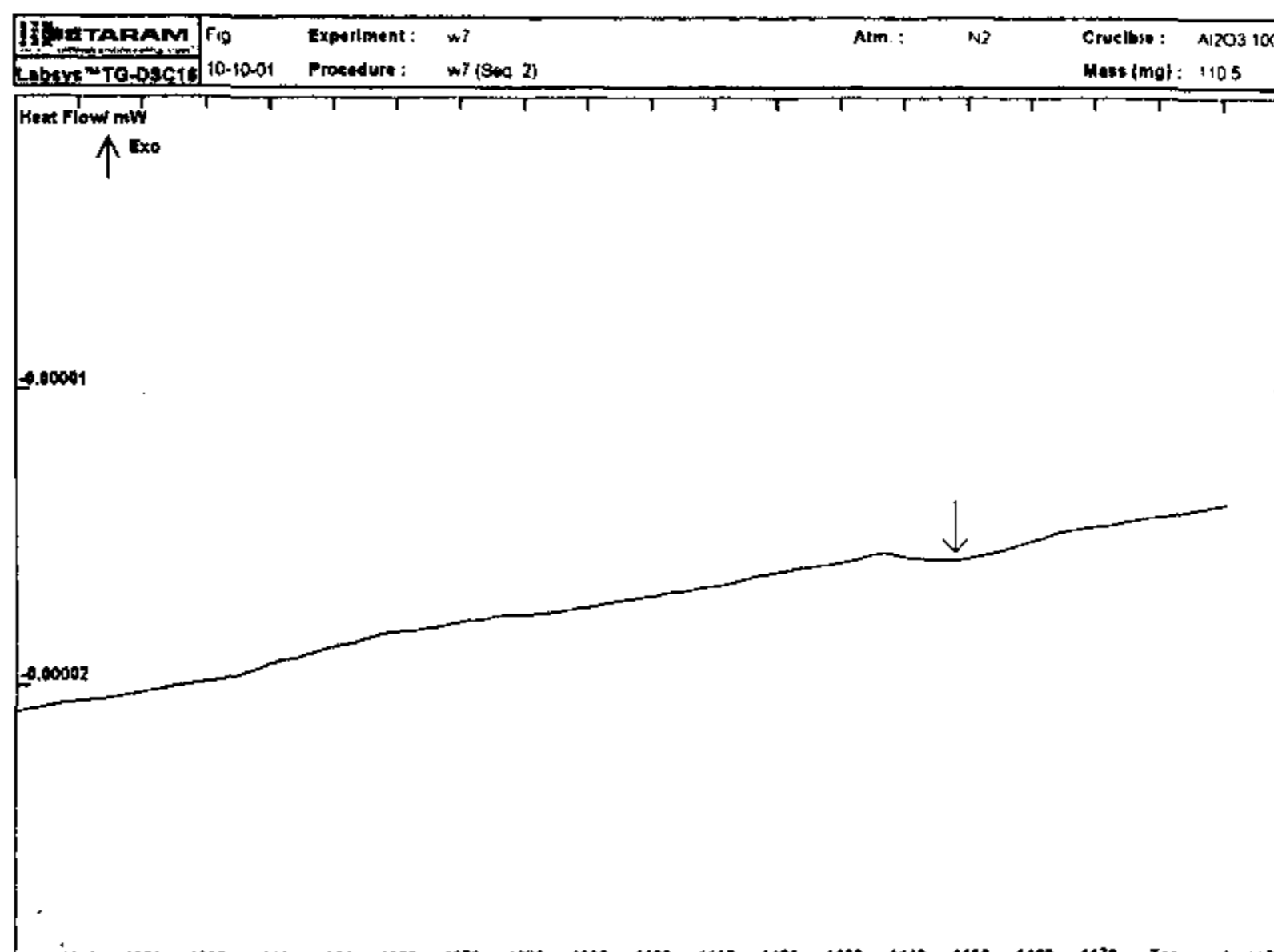
表 4-4 四种样品矫顽场的值

4. DTA 分析（只对 VTESLN 和 CLN 进行了分析）

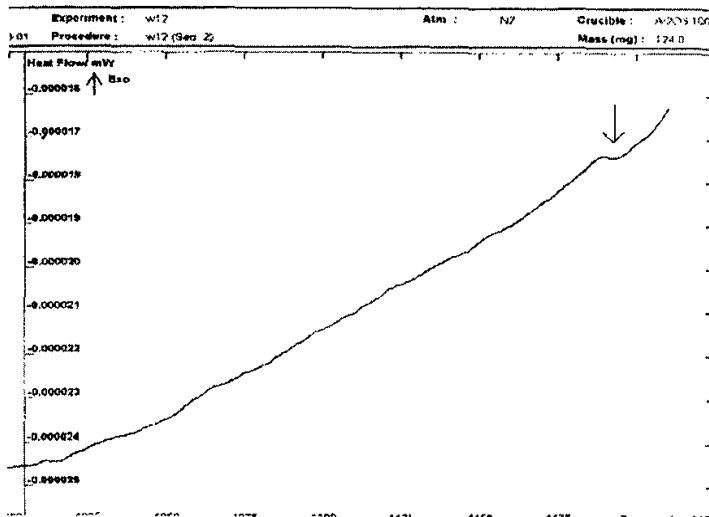
我们用 Differential Thermal Analyzer (DTA) 的方法来确定样品的居里点。实验的升温 and 降温速率为 20⁰C/min，同时通 40mL/min 的氮气流。得到的升温曲线见图 4-3。由图可以看出，样品 ^{CLN} 的居里温度为 1146⁰C，样品 ^{VTESLN} 的居里温度为 1182⁰C。在 [Li]/([Li]+[Nb])>49.0mol% 时，居里温度和 [Li]/([Li]+[Nb]) 的值关系为

$$T_c = 9095.2 - 369.05C + 4.228C^2$$

由此式可以得到样品 VTESLN 中 [Li]/[Nb] 为 49.4%。



(a)



(b)

图 4-3 样品 (a)CLN (b)VTESLN 的 DTA 分析结果

从上述的分析结果可知，用各种方法分析得到的各样品的 $[Li]/[Nb]$ 稍有不同，其中的原因是多方面的。如实验的误差，经验公式的误差，样品各个部分成分有所差异等。但总的来说，在这几种样品中，SLN19 中 Li 原子含量最高，其次为 SLN11，VTESLN 最低。

4.2 近化学计量比铌酸锂极化性质的研究和超晶格的制备

生长尽量接近理想化学配比铌酸锂晶体的主要目的之一是用它做为基质，极化出更大厚度，更高质量的铌酸锂超晶格应用于激光变频等光电领域。目前，探索近化学计量比铌酸锂的极化性质，制备近化学计量比铌酸锂超晶格的工作正在许多实验室展开。本实验室在成功极化钽酸锂（LT）晶体的基础上，也在铌酸锂晶体（包括同成分比和近化学计量比）的极化上做了大量的工作。

铌酸锂的锂铌原子比对其极化性质的重大影响我们在第二章中已经做了一些介绍。这一节主要介绍锂铌原子比究竟是如何影响晶体的极化性质在以及我们在极化近化学计量比 LN 晶体的实验中得到的一些结果。

近化学计量比铌酸锂的矫顽场有很大的降低，据文献报导，这一点可以通过锂空位缺陷理论来解释。由于铌酸锂晶体中 Li 要少于化学配比，铌酸锂晶体的

分子式实际上应该写作 $[\text{Li}_{1-x}\text{Nb}_x\text{O}_{4x}]\text{NbO}_3$ 。对于同成分比铌酸锂， $X=0.0098$ ，也就是说在同成分晶体中存在着大约 4mol% 空位缺陷和大约 1mol% 反位铌缺陷（即铌占锂位，记做 $\text{Nb}_{\text{Li}}^{4+}$ ），只有提高晶体中 Li 离子浓度，这一缺陷才会逐渐减小。反位 $\text{Nb}_{\text{Li}}^{4+}$ 与其附近氧平面上的氧离子形成较强的共价键，这将引起周围氧三角结构的收缩。从铌酸锂晶体的结构图上可以看出，要想实现铁电畴极化反转， Li^+ 离子必须通过紧束缚的氧平面移动到相邻的氧八面体空位上去。对于同成分比铌酸锂来说，一方面由于大量的 Li 空位不可避免会束缚 Li^+ 离子的移动行为，另一方面反位 $\text{Nb}_{\text{Li}}^{4+}$ 的存在会造成氧平面结构紧缩，使得极化过程中 Li^+ 离子通过结构紧凑的氧平面变得更加困难，需要更大的动力源。毫无疑问，在畴壁运动过程中，这些缺陷结构起着陷阱中心作用，阻碍铌酸锂晶体铁电畴的反转。因此，在极化过程中，必须要有足够大的外力用来克服氧平面的阻碍和 Li 空位的束缚，才能实现畴结构的反转。因此，铌酸锂晶体中 $[\text{Li}]/[\text{Nb}]$ 偏离化学计量组分，晶体中 Li 空位及反位 $\text{Nb}_{\text{Li}}^{4+}$ 缺陷越多，它对极化过程中 Li^+ 离子迁移的阻力越大，晶体的矫顽场也就越大。对于近化学计量比铌酸锂晶体，Li 离子浓度比起同成分比铌酸锂提高很多，因此晶体中的缺陷浓度大大减小，这样不仅使矫顽场大幅度下降，畴壁的光滑平整度也得以提高。

我们用来极化近化学计量比铌酸锂的实验装置和 2.1 节中极化铌酸锂晶体的相同。实验中的几种近化学计量比铌酸锂样品中的锂铌原子比有所不同，因此极化性质也有所不同。为了得到最好的极化效果，我们使用了不同波形的电压来极化不同的样品。VTESLN 样品存在一定的内偏置场，大小约为 0.4kV/mm，我们采用第二章中图 2-3 所示的用来极化同成分比铌酸锂的电压波形。开始让极化电压逐渐升高，然后加一个比较高的电压提高成核率，接着在稍低一些的电压下让核生长，最后让电压在比较长的时间内逐渐减小，以抑制内偏置场。图 4-4 是极化过程中一个典型的极化电流图。极化结束以后，为了观察得到的畴结构，处理方法与铌酸锂超晶格相同。我们在浓 NaOH 溶液中去除铝电极，如何用氢氟酸腐蚀约半小时，由于腐蚀液对正负畴的腐蚀速度不同（负畴比较快），在正负畴区形成深浅不同的腐蚀坑。图 4-5 是厚度为 0.5mm 的样品的 +C 和 y 面腐蚀形貌图，从图中可以看出均匀的周期性铁电畴的条纹，周期为 14.8 μm 。

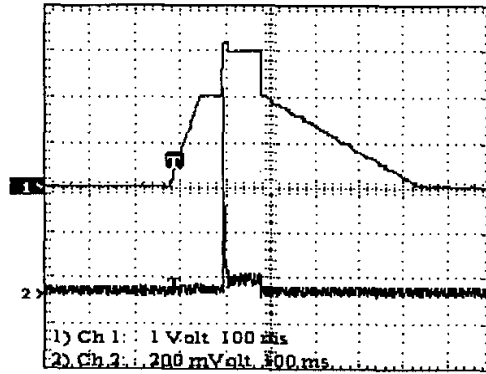


图 4-4 样品 VTESLN 的极化电流

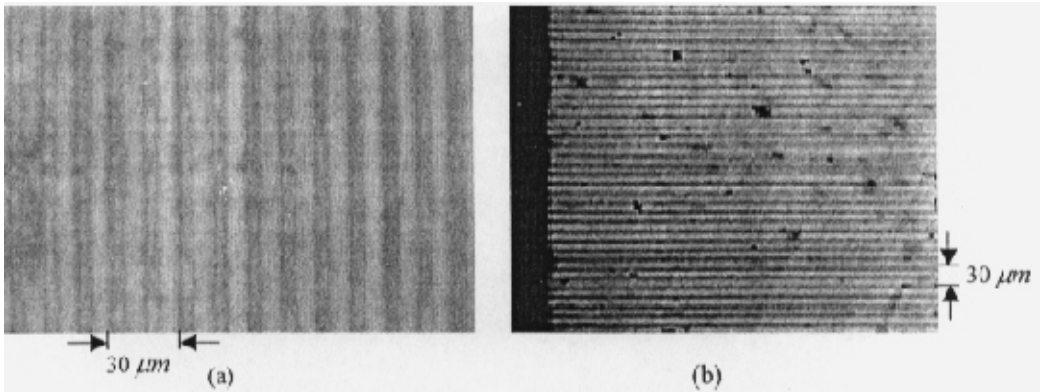


图 4-5 样品 VTESLN 的 (a)+C 面 (b)y 面腐蚀形貌图

样品 SLN19 的内偏置场比较小，因此采用方波进行极化。一个典型的极化电流如图 4-6 所示。图中电流向上的尖峰是样品的电容性质造成的，向下的尖峰是回转电流，因为内偏置场很小，所以回转电流持续时间非常短，而且电流值比较小，对于极化的质量基本上没有影响。我们已经极化成功厚度为 1 mm 的样品，图 4-7 是样品的 +C 面腐蚀形貌图。它的图案就是 3.2 节中设计的用于 1342nm 三倍频的 LN 二组元准周期结构。

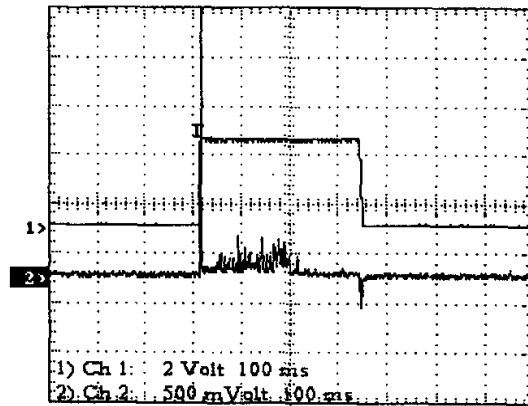


图 4-6 样品 SLN19 的极化电流

在样品腐蚀后，我们发现只有样品上只有部分图案，这一现象一方面是由于极化电荷不足，另一方面也可能是因为样品厚度不均匀造成的极化电流差异。而且在实验中使用的是固体电极，其均匀性不如液体电极。目前的实验过程还有许多可以改进的地方，如尝试液体电极、别的电极材料、绝缘层等都将是以后的研究内容。

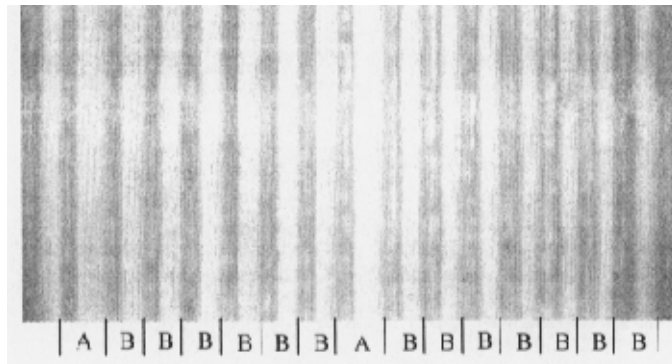


图 4-6 样品 SLN19 的+C 面腐蚀形貌图

参考文献:

1. A. Grisard, E. Lallier, K. Polgar and A. Peter, *Electronic Letters*, **36**, 1043 (2000)
2. A. Grone, S. Kapphan, *J. Phys. Chem. Solid*, **56**, 687 (1995)
3. Y. L. Chen, J. J. Xu, X. J. Chen, Y. F. Kong, G. Y. Zhang, *Opt. Commu.* **188**, 359 (2001)
4. V. Bermudez, L. Huang, D. Hui, E. Dieguez, *Applied Physics A*, **70**, 591(2000)

5. V. Gopalan and T. E. Mitchell, *Applied Physics Letters*, **72**, 1981(1998)
6. G. I. Malovichko, V. G. Grachev, E. P. Kokanyan, O. F. Schirmer, K. Betzler, B. Gather, F. Jermann, S. Klauer, U. Schlarb and M. Wohlecke, *Applied Physics A*, **56**, 103 (1993)
7. H. M. Obryan, P. K. Gallagher and C. D. Brandle, *J. Am. Ceram. Soc.*, **68**, 493 (1985)
8. L. Kovacs, G. Ruschhaupt, K. Polgar, G. Corradi, and M. Wohleche, *Appl. Phys. Lett.* **70**, 2801, (1997)
9. V. Bermudez, P. S. Dutta, M. D. Serrano and E. Dieguez, *Appl. Phys. Lett.* **70**, 729 (1997)
10. L. Kovacs, V. Szalay and R. Capelletti, *Solid State Comm.* **52**, 1029 (1984)
11. 孙敦陆, 杭寅, 张连瀚, 钱小波, 李世峰, 罗国珍, 祝世宁, 朱永元, “人工晶体学报”(已接收发表)(2002)
12. 姚江宏, 许京军, 张光寅, 朱圣星, “物理学报”,(接收发表)(2001)
13. C. Baron, H. Cheng and M. C. Gupta, *Appl. Phys. Lett.* **68**, 481 (1996)

第五章 结论

为了实现对 LD 泵浦的 Nd:YVO₄ 的 1342nm 激光进行三倍频，以获得较高功率的 671nm 红光和 447nm 蓝光，我们研制了两种类型的光学超晶格品。其一是周期结构的钽酸锂光学超晶格，其二是准周期结构的近化学计量比铌酸锂。并且利用周期极化的钽酸锂超晶格为变频晶体，研制成功首台蓝红双色全固态激光器。围绕着材料的设计、制备和器件的研制，我们得到以下结论：

1. LN 和 LT 两种晶体极化反转特性和过程基本相似，同时也在极化电流，畴稳定时间和反向畴的形状三个方面存在很大的差异。LN 晶体的 Li, Nb 原子比和 LT 晶体 Li, Ta 原子比决定了晶体中的缺陷浓度，对内偏置场，矫顽场，畴的形状影响非常大。
2. 室温极化技术和半导体平面工艺相结合，可以制备出各种复杂结构的超晶格，这是其它技术难以实现的。
3. 一般情况下，单一周期超晶格不能实现任意波长的三倍频。但在某些特殊条件下，即和频的位相失配是倍频位相失配的整数倍时，可以用一块简单周期超晶格所提供的两个倒格矢，补偿倍频和和频过程中的位相失配，实现基波光的三倍频。
4. Nd:YVO₄ 晶体是一种性能优异的激光晶体，它有 916nm, 1064nm, 1342nm 三条发射谱线。其中，1342nm 谱线在 LT 晶体的倍频与倍频光和基波光和频的位相失配正好是 1:3, 因此可以使用一块周期 LT 超晶格实现 477nm 蓝光三倍频。能完成这一位相匹配的超晶格周期 $14.778 \mu\text{m}$ ，匹配温度为 74.1°C。根据以上参数，我们制备了周期结构的 LT 光学超晶格，实现了 1342nm 激光的三倍频。在此基础上，研制出蓝红双色小型全固态激光器，其红光和蓝光的输出功率最高可以达到 1W 和 130mW。
5. 根据投影理论，一维的二组元准周期结构可以看作是二维的周期结构在一维的投影，一维三组元准周期结构可以看作是三维的周期结构在一维的投影。它们分别可以提供任意两个倒格矢和三个倒格矢，用于准位相匹配频率转换。我们设计了以 LN 为基质的二组元准周期超晶格用以实现 1342nm 的三倍频和以 LT 为基质的三组元准周期超晶格，后者以 Nd 离子激光器 1064nm 激光为泵浦光源实现红绿蓝三基色输出。

6. 测量了几种不同技术制备的近化学计量比 LN 晶体的紫外吸收边、OH⁻红外峰、居里温度和矫顽场，结果表明，从掺 19mol%K₂O、[Li]/[Nb]为 1:1 的熔体中以提拉法生长出来的铌酸锂晶体质量最好，[Li]/[Nb]的值达到 49.9%，紫外吸收边比同成分比铌酸锂蓝移了 17nm，OH⁻红外吸收峰半宽度仅为 3 cm⁻¹。
7. 近化学计量比铌酸锂的极化性质大大改善，上述 [Li]/[Nb]为 49.9% 的样品，测得的矫顽场仅为 0.8kV/mm，约为成分比铌酸锂的 1/25。降低矫顽场可以增加极化样品的厚度，提高极化质量，对提高激光的输出功率非常有利。我们成功出极化厚度为 1mm 的用于实现 1342nm 三倍频的准周期近化学计量比铌酸锂超晶格。该光学超晶格的激光变频性能研究正在进行中。

致 谢

本论文即将结束之际，谨向所有关心、帮助过我的人表示最深切的感谢。

首先要衷心的感谢我的导师祝世宁教授。本论文中的工作，从选题到每一步的具体开展，都是在祝老师的耐心指导下展开的。祝老师在科研工作方面敏锐开阔的思路，精益求精的态度让我佩服不已。同时，祝老师在生活上也给了我许多帮助。

同时要衷心的感谢朱永元教授，他深厚的理论功底和踏实的工作态度让人深感钦佩。

我还要衷心的感谢王慧田教授和何京良教授在实验和理论方面的热情指导。特别是他们在实验中一丝不苟的作风让我受益匪浅。

感谢上海光机所的杭寅教授和孙敦陆硕士提供铌酸锂晶体样品，感谢香港浸会大学的林培江教授和荣华同学在红外吸收谱测量上的帮助，感谢廖军博士和王铁邦博士在实验上的帮助。

感谢本实验室的刘辉、张超、陈延彬、刘照伟、奚元新、魏洪、杜燕、陆宏、任铁卫、王飞燕、张浩，我很高兴能在研究生阶段遇到这么多可爱的学友，无论是学术上还是生活上，他们都给我许多帮助，从他们身上我学到了很多。

最后，我要衷心的感谢我亲爱的父母，是他们全心全意的支持让我有了前进的动力。

攻读硕士学位期间发表的文章和已申请的专利目录：

一、已发表的文章

1. **G. Z. Luo**, S. N. Zhu, J. L. He, Y. Y. Zhu, H. T. Wang, Z. W. Liu, C. Zhang, and N. B. Ming, "Simultaneously efficient blue and red light generation in a periodically poled LiTaO₃", *Appl. Phys. Lett.* **78**, 3006 (2001).
2. J. L. He, **G. Z. Luo**, H. T. Wang, S. N. Zhu, Y. Y. Zhu, Y. B. Chen, and N. B. Ming, "Generation of 840 mW of red light by frequency doubling a diode-pumped 1342nm Nd:YVO₄ laser with periodically-poled LiTaO₃", accepted by *Applied Physics B*, (2002).
3. Z. W. Liu, Y. Y. Zhu, S. N. Zhu, G. Z. Luo, H. Liu, H. T. Wang, N. B. Ming, X. Y. Liang and Z. Y. Xu, "Red and blue light generating from two serial optical superlattices in LiTaO₃ crystal", *Chin. Phys. Lett.* Vol. **18**, 539 (2001).
4. 罗国珍, 祝世宁, 何京良, 朱永元, 王慧田, 李锟, 刘照伟, 张超, 闵乃本, "PPLT 光学超晶格全固态蓝红双波长激光器的研究", 《中国激光》 (已接收发表) (2001)
5. 何京良, 罗国珍, 王慧田, 祝世宁, 朱永元, 陆宏, 闵乃本, "二极管泵浦全固态 Nd:YVO₄/PPLT 红光激光器", 《中国激光》 (已接收发表) (2001)
6. 孙敦陆, 杭寅, 张连瀚, 钱小波, 李世峰, 罗国珍, 祝世宁, 朱永元, "助熔剂提拉法生长化学计量比 LiNbO₃ 晶体", 《人工晶体学报》(已接收发表) (2002)

二、已申请的专利

申请号：01108024.8

以超晶格为变频晶体的全固态蓝红双色激光器