

# 准相位匹配技术 及其应用

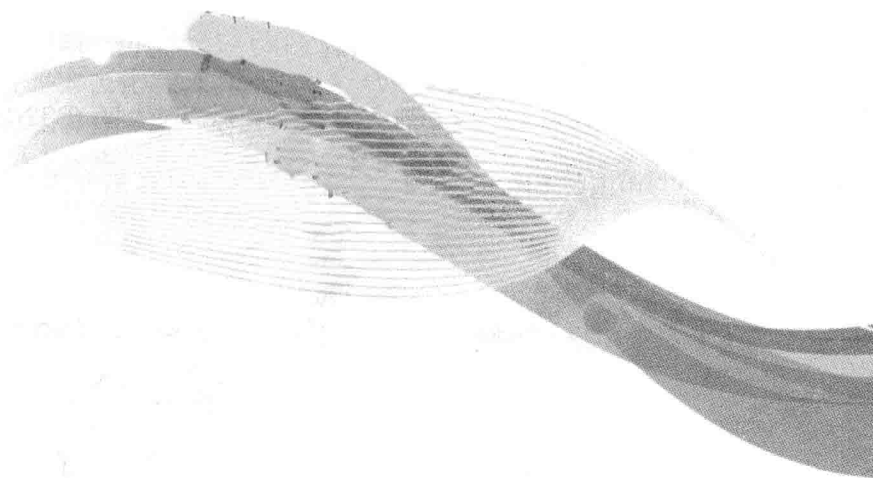
刘涛 著



中国电力出版社  
CHINA ELECTRIC POWER PRESS

# 准相位匹配技术 及其应用

刘涛 著



中国电力出版社  
CHINA ELECTRIC POWER PRESS

## 内 容 提 要

准相位匹配技术在光纤通信、非线性光学和固体激光器等领域都有着重要的应用。本书阐述了利用准相位匹配技术实现光学参量放大和全光波长转换的一些研究成果, 主要内容包括准相位匹配技术的基本原理、基于准相位匹配技术的光学参量放大和全光波长转换的研究进展、非共线光学参量放大器的调谐带宽、非共线光学参量放大器的光谱带宽和参量增益、基于分段结构周期极化铌酸锂晶体的全光波长转换器。

本书可作为普通高等院校通信与信息系统、光学工程等相关专业的教学用书, 还可作为光纤通信、非线性光学、光学材料、激光器等领域从事非线性光学工作的研究人员和工程技术人员的参考用书。



图书在版编目(CIP)数据  
准相位匹配技术及其应用/刘涛著. —北京: 中国电力出版社, 2013. 11

ISBN 978-7-5123-2394-7

I. ①准… II. ①刘… III. ①光纤通信 IV. ①TN929. 11

中国版本图书馆 CIP 数据核字 (2013) 第 319759 号

中国电力出版社出版、发行

(北京市东城区北京站西街 19 号 100005 http://www.cepp.sgcc.com.cn)

航远印刷有限公司印刷

各地新华书店经售

\*

2013 年 11 月第一版 2013 年 11 月北京第一次印刷

710 毫米×980 毫米 16 开本 6 印张 105 千字

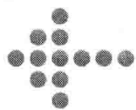
定价 20.00 元

敬告读者

本书封底贴有防伪标签, 刮开涂层可查询真伪  
本书如有印装质量问题, 我社发行部负责退换

版权专有 翻印必究

# 前言



准相位匹配 (QPM) 技术是一种通过对光学晶体非线性极化率进行周期性调制来补偿由于折射率色散所造成的光波之间相位失配的技术, 具有非线性转换效率高、可利用晶体的全部通光范围、非线性作用响应时间极短 (飞秒量级)、对光信号的速率和调制格式完全透明等优点, 因此在全光波长转换、光开关、光学参量放大过程、太赫兹波等诸多领域都有着重要的应用价值。针对准相位匹配技术及其应用这一课题, 本书通过理论和数值的分析方法, 对利用准相位匹配晶体 (PPLN) 实现光学参量放大和全光波长转换进行了深入的研究, 本书的主要贡献有以下几个方面。

(1) 理论分析和数值研究了宽带可调谐非共线光参量放大过程。首次提出了两种不同的非共线结构用以实现基于 PPLN 晶体的光学参量放大。针对超短脉冲光波, 提出了最大极化周期的概念, 用以描述非共线相位匹配和群速度匹配同时满足时晶体的极化周期所能达到的最大值, 并给出了用于计算不同温度下 PPLN 晶体的最大极化周期的数学公式, 进而确定了宽带可调谐超短脉冲光学参量放大过程应使用的最佳极化周期和最佳非共线结构。在上述基础上提出了一个用于最大化光学参量放大过程的信号光调谐带宽、确定工作温度等最佳工作参数以及简化实验操作方法的优化方案, 并证实了此方案可以被进一步扩展到其他周期极化晶体和使用不同泵浦光波长的情况中。针对纳秒脉冲光波, 同样给出了在获得相对最大的信号光调谐带宽时应使用的最佳极化周期和最佳非共线结构。

(2) 利用泰勒级数展开法和直接算法对参量带宽进行了分析。分析过程中综合考虑了非共线结构和极化周期所带来的影响。与原有的单一结构光学参量放大相比, 通过改变非共线结构可以获得更大的参量带宽。对超短脉冲而言, 使用合适的非共线结构对参量带宽的增强效果比调整极化周期更好; 对于纳秒脉冲而言, 合理地选择极化周期和非共线角更为重要。此外, 还对泰勒级数展开法和直接算法取得的结果进行了对比, 指出了这两种分析方法各自的优越性。

(3) 深入研究了非共线光学参量放大过程的增益带宽和参量增益。利用泰勒级数展开法得到了群速度匹配条件和相位匹配条件同时满足时增益带宽的解

析表达式，并分析了非共线结构和极化周期对增益带宽的影响，同时讨论了增益带宽与参量带宽的差异。系统考虑了晶体的极化周期、非共线结构、泵浦光强度和晶体长度对参量增益所带来的影响，给出了获取高增益的合理方案。

(4) 提出了不完全非共线光学参量放大的概念，并阐明了其与完全非共线光学参量放大的区别，同时给出了基于 PPLN 晶体的三种不完全非共线光参量放大形式，随后对实际中较常用的两种不完全非共线光学参量放大的信号光调谐带宽和参量带宽进行了研究。在对参量带宽和信号光的调谐范围要求不是很高的情况下，采用其中的一种不完全非共线光学参量放大形式，可以简化实验操作，而另一种不完全非共线光学参量放大形式在中红外波段有很好的结果。

(5) 研究了 PPLN 晶体的分段光栅结构对直接差频效应、单通 SHG+DFG、单通 SFG+DFG、双通 SHG+DFG 和双通 SFG+DFG 等五种不同波长转换方案的转换效率和转换带宽的影响，分别给出了每种方案相应的结构优化参数。在保证可以获得几乎相同的转换效率前提下，分段光栅结构的使用能够很好地扩展信号光的转换带宽，增强泵浦光的稳定性。综合考虑到晶体制备的复杂性、转换效率和转换带宽等因素，推荐实际的波长转换器中使用两段光栅结构的 PPLN 晶体。

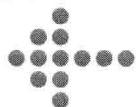
本书由华北电力大学刘涛著。本书的研究工作得到了国家自然科学基金(61302105, 61302163)、河北省自然科学基金(F2012502015)、中央高校基本科研业务费专项资金(13MS67)等课题的资助。本书的顺利完成得到了华北电力大学领导、老师和同事们的大力支持和帮助；本书在编写过程中还参考了许多专家学者的文献资料。在此一并致谢！

限于编者水平以及相关理论和技术还有待于进一步深入研究，书中难免存在疏漏和不足之处，恳请广大读者批评指正。

编者

2013年9月

# 目 录



前言

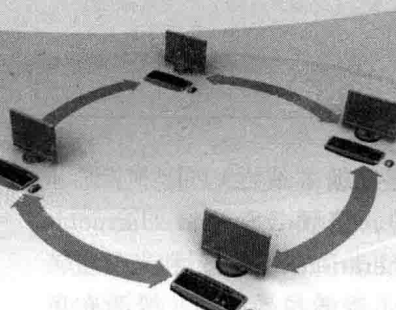
<b>1</b>	<b>准相位匹配技术</b> .....	1
1.1	准相位匹配技术简介 .....	1
1.2	周期极化晶体 .....	6
1.3	准相位匹配技术的应用概况 .....	13
1.4	本书研究内容 .....	15
<b>2</b>	<b>基于准相位匹配技术的光学参量放大和全光波长转换</b> .....	17
2.1	准相位匹配晶体中光波的相互作用 .....	17
2.2	准相位匹配技术在光学参量放大过程中的应用 .....	23
2.3	准相位匹配技术在光波长转换中的应用 .....	29
<b>3</b>	<b>非共线光学参量放大器的调谐带宽</b> .....	34
3.1	研究背景和意义 .....	34
3.2	非共线光学参量放大的基本原理 .....	35
3.3	调谐带宽和最大极化周期 .....	38
3.4	最优宽带可调谐 NOPA 方案 .....	40
3.5	纳秒脉冲时的调谐带宽 .....	43
3.6	本章小结 .....	46
<b>4</b>	<b>非共线光学参量放大器的光谱带宽和参量增益</b> .....	48
4.1	研究背景和意义 .....	48
4.2	宽带非共线光学参量放大的基本原理 .....	49
4.3	参量带宽 .....	51
4.4	增益带宽 .....	56
4.5	参量增益 .....	58
4.6	本章小结 .....	59
<b>5</b>	<b>基于分段结构周期极化铌酸锂晶体的全光波长转换器</b> .....	61
5.1	研究背景和意义 .....	61

5.2 单通构型波长转换器 .....	62
5.3 双通构型波长转换器 .....	70
5.4 本章小结 .....	74

## 6

总结与展望 .....	76
-------------	----

参考文献 .....	78
------------	----



# 准相位匹配技术

光纤通信是目前最主要的信息传输技术，迄今为止尚未发现任何其他技术可以代替它。密集波分复用（Dense Wavelength Division Multiplexing, DWDM）系统的出现，为光纤通信网的进一步发展奠定了基础，到目前为止 DWDM 已经实现实用化。但在现有的基于 DWDM 的光纤通信网中，网络的各个节点都要完成光-电-光的转换，以实现节点开放，完成信号再放大等工作。然而在高速的光通信系统中存在着“电子瓶颈”的问题。为了解决这一问题，人们提出了全光网的概念，即数据从源节点到目的节点的传输过程都在光域内进行，这样就避免了在所经过的各个节点上的光-电-光转换，消除了“电子瓶颈”，实现了网络的可重构性和网络透明性<sup>[1]</sup>。由此可见，全光网是未来通信的主要方向之一。

要在全光网中实现信号的透明性、可重构性传输，必须研究和掌握全光传输的关键技术，这些关键技术包括全光波长转换、光交叉连接、光分叉复用和光放大等。近年来，准相位匹配（Quasi-Phase Matching, QPM）技术的飞速发展在实现全光波长转换、光交叉连接和光放大等方面显现出越来越强的优势<sup>[2~13]</sup>，具有很好的发展前景。除此之外，利用 QPM 技术还能为光通信，特别是 DWDM 网络提供宽带宽、高功率的光源<sup>[14]</sup>，而且基于 QPM 的光参量过程也是目前产生高功率超短脉冲激光的重要方法之一<sup>[11]</sup>。因此，QPM 技术受到了人们广泛的关注，利用 QPM 晶体所制造的各种光器件也在越来越多的领域得到了应用。

## 1.1 准相位匹配技术简介

### 1.1.1 非线性光学

在 1960 年激光诞生之前，人们对于光学的认识主要限于线性光学。随着激光的出现，陆续发现的众多新现象不能利用线性光学的观点来解释。为了解释这些新现象，非线性光学这一崭新的学科随之建立并迅速发展起来<sup>[15]</sup>。

非线性频率变换是非线性光学中的一个重要方面，根据非线性极化率的阶



数又可以把它分为二阶非线性和高阶非线性（主要是三阶非线性）。其中二阶非线性包括和频（Sum Frequency Generation, SFG）、倍频（Second Harmonic Generation, SHG）、差频（Different Frequency Generation, DFG）和光参量转换等多种方式，而三阶非线性一般会导致四波混频、受激拉曼散射、受激布里渊散射和双光子吸收等现象。从原理上来说，如果激光的强度足够大，极化强度与入射光场的关系可以展开成级数

$$\begin{aligned} P &= \epsilon_0 \chi^{(1)} E + \epsilon_0 \chi^{(2)} : EE + \epsilon_0 \chi^{(3)} : EEE + \dots \\ &= P^{(1)} + P^{(2)} + P^{(3)} + \dots \\ &= P^{(1)} + P^{(NL)} \end{aligned} \quad (1-1)$$

式中： $\chi^{(1)}$ 、 $\chi^{(2)}$ 和 $\chi^{(3)}$ 分别为一阶（线形）、二阶和三阶极化率； $P^{(1)}$ 、 $P^{(2)}$ 和 $P^{(3)}$ 分别为一阶（线形）、二阶和三阶极化强度，二阶和更高阶的极化强度可以统一的用 $P^{(NL)}$ 来表示。在光的相互作用当中，线性电极化率对极化强度的贡献是主要的，高阶电极化率只有在电场强度很大的时候才会显现出来。而在高阶非线性效应当中，利用二阶非线性效应来产生新频率是效率最高的方案，所需的光场也最弱。前人已证明，上述展开级数相邻两项的大小之比约为

$$\left| \frac{P^{(n+1)}}{P^{(n)}} \right| \approx \left| \frac{E}{E_{\text{原子}}} \right| \quad (1-2)$$

式中： $E_{\text{原子}}$ 是介质中原子内电场的大小，典型值为 $3 \times 10^6 \text{ V/cm}$ 。除了激光之外，一般光源产生的光场很难达到这么高的强度，因此在激光产生之前，很难看到非线性光学现象。

为了使非线性频率变换有更高的转换效率，除了要求材料具有内在的二阶非线性极化率，还必须使相互作用光波的相速度匹配以保证入射光波的能量单向地变换到转换光波。例如，在倍频过程中，这个相位匹配条件要求基频光波和倍频光波的折射率必须相等，即 $n_1 = n_2$ 。但是由于非线性介质内在的色散，使折射率对波长依赖 $n = n(\lambda)$ ，或者等价于波矢 $k$ 对光频率的依赖关系 $k = k(\omega)$ ，这个条件对一般的偏振方向相同的基频光和倍频光都不能满足。为了实现相位匹配，目前人们常用的有双折射相位匹配（BPM）技术和准相位匹配（QPM）技术，这两种技术的使用使得非线性相互作用的效率得到了很大的提高。

### 1.1.2 双折射相位匹配

在非线性过程中，由于材料的色散关系，基频光和谐波在晶体中有不同的相速度。比如在SHG过程中，新产生的倍频光的频率是原来基频光的两倍，由于材料色散的关系，它们在晶体里的折射率也就不一样，因此相速度也就不同，这样就会有走离效应。走离效应使得非线性过程的效率下降，如果相位差超过

$\pi$ ，新产生的光波的振幅就不是增加而是减弱了。

在1962年，Giordmaine和Maker等人提出了利用晶体的双折射效应能够实现相互作用光波间的相速度匹配，从而提高变频效率<sup>[16,17]</sup>。这种方法是利用单轴或双轴非线性晶体的双折射效应和色散特性，通过选择光波的波矢方向和偏振方向来实现相位匹配，因此也称为角度匹配。角度相位匹配倍频发生时的相位失配因子为

$$\Delta k = \frac{4\pi}{\lambda_\omega} [n_e^{2\omega}(\theta_m) - n_o^\omega] \quad (1-3)$$

式中： $n^\omega$ 和 $n^{2\omega}$ 分别为晶体对基频光和倍频光的折射率，e和o分别代表非寻常光和寻常光， $\theta_m$ 称为倍频相位匹配角。从式(1-3)可以看出，角度相位匹配的条件是 $n_e^{2\omega}(\theta_m) = n_o^\omega$ 。对于双折射晶体，如负单轴晶体而言， $n_{2\omega} > n_\omega$ ，在倍频过程中，只要选取合适的传播方向，便可实现相位匹配。相位匹配角 $\theta_m$ 的选择如图1-1所示。

虽然双折射相位匹配的方法使得倍频效率远远高于非相位匹配时的倍频效率。但是此方法受到波矢方向和偏振方向的限制，使得只能在特定的晶体上实现固定波长的相位匹配，使用受到极大限制；并且此方法的成本高，制备难，不适合于规模生产，不能利用晶体最大非线性系数（转换效率低）以及存在短波极限等问题。

### 1.1.3 准相位匹配及其特点

由于双折射相位匹配的方法为了实现相位匹配，晶体必须按照某个特殊的方向切割，或者工作在某个特定的温度下，使得在实际的应用中此方法受到了很大的限制。为了解决这一问题，1962年Blemborgen和Armstrong等人提出了准相位匹配的概念<sup>[18]</sup>。下面仍然以倍频过程为例，对QPM的概念进行简要说明。

设基频光的角频率为 $\omega$ ，则倍频光的角频率为 $2\omega$ 。由于频率不同，基频光和倍频光有不同的相速度，其波矢失配为

$$\Delta k = k_{2\omega} - k_\omega = 2 \frac{\omega}{c} (n_{2\omega} - n_\omega) \quad (1-4)$$

则相干长度定义为

$$L_c = \frac{\pi}{\Delta k} = \frac{\pi c}{2\omega(n_{2\omega} - n_\omega)} = \frac{\lambda_\omega}{4(n_{2\omega} - n_\omega)} \quad (1-5)$$

由于 $n_{2\omega} \neq n_\omega$ ，即 $\Delta k \neq 0$ ，所以相位不匹配，倍频光功率将如图1-2所示在

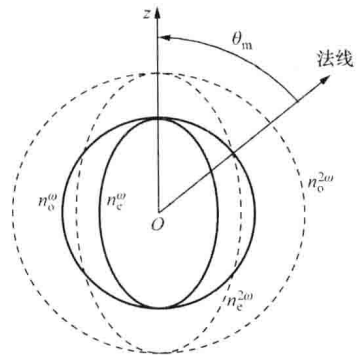


图1-1 负单轴晶体折射率球面

传输方向以  $2L_c$  为周期交替变化。在  $0 < z < L_c$  范围，相位差小于  $\pi$ ，倍频光功率处于增长阶段；在  $L_c < z < 2L_c$  范围，相位差大于等于  $\pi$ ，倍频光功率处于下降阶段； $z = L_c$  处相位差等于  $\pi$ 。

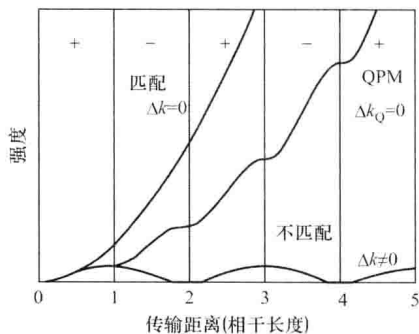


图 1-2 相位匹配、相位失配及准相位匹配示意图

所谓 QPM 技术就是通过对晶体非线性极化率的周期性调制，来补偿由于折射率色散造成的相互作用的光波之间的相位失配，以获得非线性光学效应的增强，即利用非线性极化率的周期跃变来实现非线性光学频率变换效率的增强。准相位匹配技术只有在周期极化晶体（介电体超晶格）中才能实现。周期极化晶体是指在介电晶体中引入可与经典波（光波和声波）波长相比拟的超周期结构，此种晶体也被称为光学超晶格、声学超晶格或微米超晶格。

在一般的介电体中，经典波的波矢比介电体的倒格矢小得多，经典波在介电晶体中的传播和激发行为完全等价于其在连续介质中的行为。而在周期极化晶体中，经典波实际上是在周期场中传播，超晶格倒格矢要参与经典波的波矢守恒，由此可以实现准相位匹配。通常人们用超晶格倒格矢来描述超晶格，其方向垂直于片畴，大小为  $g_m = 2\pi m / (a + b)$ ，其中  $a$ 、 $b$  分别是正负畴的厚度， $\Delta = a + b$  为超晶格的周期， $m$  为整数， $2\pi / (a + b)$  称为倒格基矢。通过调节超晶格的倒格矢，即调节超晶格的周期，可以弥补由于折射率色散而引起的波矢失配，这就是准相位匹配。

准相位匹配技术通过将晶体设计成周期结构以实现相位匹配条件。例如，铁电晶体铌酸锂 ( $\text{LiNbO}_3$ ) 的非线性系数  $d_{31}$  能够实现角度相位匹配，然而其最大的非线性系数  $d_{33}$  却不能实现角度相位匹配，但可以通过准相位匹配对  $\text{LiNbO}_3$  的  $d_{33}$  加以利用。把  $\text{LiNbO}_3$  制成自发极化率  $P_s$  呈周期性反转的铁电畴结构，即周期性地改变非线性系数  $d_{33}$  符号，使其半周期等于相干长度  $L_c$ ，当二次谐波光强在第一个相干长度末端达到最大值时，非线性系数  $d_{33}$  反号，则二次谐波光相位改变  $180^\circ$ ，使二次谐波强度在本该衰减的区域沿通光方向继续加强，从而获得高效率的非线性频率转换，如图 1-2 所示。实验证明，转换效率最大可超过 80%。

与双折射相位匹配技术相比，准相位匹配没有双折射相位匹配中关于波矢方向和偏振方向的限制，从而通过选择适当的极化周期就可以实现相位匹配。QPM 的主要优点包括<sup>[19,20]</sup> 以下几方面。

(1) 可以利用晶体较大的非线性系数。QPM 过程不再要求正交光束, 因此非线性系数不必为对角线张量元素, 能够利用传统双折射相位匹配过程所达不到的高非线性系数。例如, 对基于  $\text{LiNbO}_3$  晶体双折射效应的光参量振荡 (OPO) 来说, 泵浦光波需要特别的偏振 (偏振方向与晶体光轴平行), 利用非线性极化率张量元素  $d_{31} \approx 4.35 \text{ pm/V}$  的信号光和闲频光需要通常的偏振 (偏振方向垂直于晶体光轴)。然而, QPM-OPO 能够让所有光波均利用  $d_{33}$  元素而且可在通常偏振态下运转。如果周期极化铌酸锂 (PPLN) 晶体极化方向是  $z$  轴, 若三波的偏振方向均沿  $z$  轴, 则可利用铌酸锂晶体的最大有效非线性系数  $d_{33} \approx 27.2 \text{ pm/V}$ , 与  $d_{31}$  相比两者相差很大。为了提高非线性效应, 充分利用晶体的最大非线性系数是必要的。

(2) 理论上可利用晶体的全部通光范围。对于双折射相位匹配而言, 要想在整个通光范围内满足相位匹配是很困难的。而对 QPM 来说, 它是通过周期性极化结构来导引能量的转换, 与材料本身无关, 只是提供一个作用的场所。同时, 由于周期结构可以人为地根据折射率色散和所需的频率转换过程加以设计, 而无特殊的温度和角度要求, 所以它可以将匹配的范围覆盖到介质的整个透明波段。

(3) 可避免走离效应的产生。QPM 由于不受晶体双折射效应的影响, 三波偏振方向可任意选择, 只要它们沿同一晶轴方向传播, 就可以使走离角为零, 从而降低了对入射角的要求。而且还可利用较长的晶体作用距离, 基波和谐波以及相互作用光波能够严格限制在非线性晶体中, 由此获得较大的转换率。

(4) 非线性转换效率高。QPM 走离角可为零, 这意味着三波相互作用的长度可以很长, 还可设计为非临界相位匹配。同时, 虽然  $d_Q = 2d_{\text{eff}}/m\pi$ , 但 QPM 可以利用晶体大的非线性系数, 而且它以  $d^2$  的形式参与到增益表达式当中, 这使得即使包含  $2/\pi$  因子, 低阶的 QPM 的转换效率仍比双折射相位匹配大许多。

(5) 允许设计成非临界相位匹配。非临界相位匹配的优点是对基波光束发散角和晶体调整角的要求降低, 并且有较高的效率。QPM 通过选择适当的极化周期能够在任何工作点实现非临界相位匹配。而双折射相位匹配中, 非临界相位匹配仅仅在少数偶然的工作点上是不可能的。

(6) 调谐方式简单多样, 如温度调谐、角度调谐、泵浦波长调谐。只需在非线性晶体中设计制备出各种不同周期的畴反转, 通过调谐极化周期和晶体温度就能十分简单地实现输出光波长的可调谐。

总之, QPM 技术的最突出的优点是非线性转换效率高, 并且可以使那些在通常条件下无法实现相位匹配的晶体和通光波段得以实现频率变换, 拓宽了应用范围, 增加了调谐方式, 使宽波段激光的输出成为可能。由于准相位匹配技

术拓宽了非线性晶体的应用范围,大大提高了非线性光学转换效率,使之成为光通信、非线性光学材料和固体激光器等领域的研究热点之一。

## 1.2 周期极化晶体

在准相位匹配技术提出以后的相当长一段时间内,由于当时加工工艺的限制,无法制造出 QPM 可用的晶体,使得 QPM 仅仅停留在理论阶段,没有得到实际应用。直到 20 世纪 90 年代,随着周期极化晶体制作工艺的成熟,特别是外加电场极化法的出现,使得准相位匹配不再是理论层面的东西。其凭借着自身的优点,迅速在实验研究和各种应用领域展现出强大的潜力。铁电材料<sup>[21]</sup>是目前实现准相位匹配的最理想材料。所有的铁电晶体在居里温度以下都会表现出自发极化特性,并且在外加电场的作用下,能有效地实现铁电畴反转,改变晶体的自发极化方向。到目前为止,已有相当多的晶体应用于 QPM 元件的制作中。

### 1.2.1 周期极化晶体的制备

从图 1-2 可以看出,在第一个相干长度内,由泵浦光向参量光的转换都是呈增加趋势的。但当传播到第二个相干长度内时,如果相位失配,则光的能流方向就由参量光转向泵浦光,周而复始。于是人们想到如果把介电体的结构,以某一值(与相干长度有关)进行周期性的极化反转(周期极化),使其能流始终是由泵浦光向参量光转换。也就是说,在波的传播方向上,允许一定的相位失配,但是这一相位失配没有扩大的趋势,而是通过周期调制的介电晶体的倒格矢(超周期倒格矢)进行补偿,从而使之参与经典波的波矢守恒。由此可见,要想实现准相位匹配,制造出实际可用的周期极化晶体是关键。

铁电晶体材料<sup>[21]</sup>既可在某温度范围内具有自发极化,又可在外加电场的作用下实现自发极化强度方向的反转。它与其他电介质的不同点是,极化强度与外加电场强度间不是线性关系,而是有明显的滞后效应,这同铁磁体具有的磁滞性类似,所以人们根据电与磁相对应关系,将这类具有电滞回线的晶体称为铁电体。铁电性离不开具体的温度条件,只有当温度处于铁电体的居里温度以下时,晶体才会呈现铁电性。当温度高于居里点时,铁电体和一般电介质的行为一样,自发极化消失,没有铁电性。目前,铁电物理学的研究热点是铁电体的调制结构,特别是人工调制结构。如果在铁电体中设法形成周期性畴反转且周期与介质中光过程的特征长度相适应,此时会出现参量过程等非线性光学效应,这就是周期极化晶体的物理基础。

图 1-3 所示的是一个简单的周期极化晶体结构示意图。一般晶体沿  $z$  轴方

向极化,  $x$  轴方向为通光方向。图 1-3 中上下两个箭头代表两个不同的自发极化矢量的取向,  $\Lambda$  为周期极化晶体的一个周期, 被称为极化周期。其相邻两个畴的自发极化矢量相反, 这等效于第二个畴的坐标系统绕  $x$  轴旋转了  $180^\circ$ , 因而与奇数阶张量相联系的物理性质 (如非线性光学系数、电光系数、压电系数等物理量) 将变号。此类晶体中的物理性质不再是常数, 而是空间坐标的周期函数。当然, 与偶数阶张量相联系的物理常量 (如介电系数、弹性系数、弹光系数等) 则是连续的。周期极化晶体的制作方法主要可以分为以下几种<sup>[22~26]</sup>。

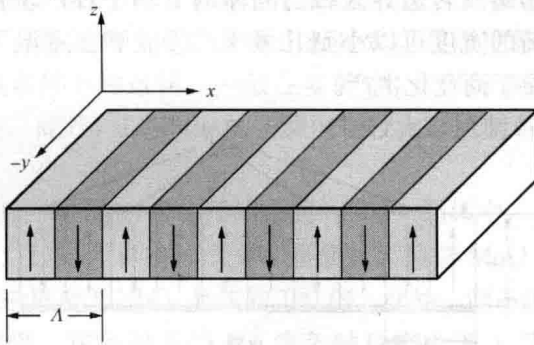


图 1-3 周期极化晶体结构示意图

(1) 散片粘接法。这是最早采用的方法之一, 先制作微米量级的薄片, 然后再按一定方式粘在一起。由于这种方法制造出的材料的厚度一般大于相干长度, 因此只能利用高阶的准相位匹配, 效率很低。并且这种方法工艺烦琐, 所以只适合对准相位匹配做探索性研究。

(2) 生长法。这种方法由南京大学固体微结构实验室冯端教授等人于 20 世纪 70 年代后期首创, 是通过控制晶体 Czochralski 提拉法中的温度起伏等因素而实现片畴反转且周期重叠生长。南京大学的闵乃本院士此后利用该方法研制出畴周期性反转的铌酸锂晶体, 并利用其进行了大量的倍频实验研究。虽然这种方法可以在较大的相互作用面积上实现通光, 但是制备出的准相位匹配介质周期不准, 畴边界不均匀, 因此转换效率较低, 且相互作用长度很难增加。

(3) 电子束扫描法。这种方法可以制备大块的准相位匹配介质, 但是畴反转的连续性不好, 重复率很低, 且造价高, 因此不适宜大批量生产。

(4) 化学扩散法 (主要是质子交换法)。这种方法通过使某种离子 (如 Ti 离子) 从铁电材料的正畴表面扩散, 以及铁电材料正离子 (如 Li 离子) 的外扩散, 然后通过加热, 由质子交换在晶体表面正畴面诱发畴反转。这种方法可以制备质量较好的周期结构, 而且制备的介质都较长。但扩散层较浅, 为微米量

级，只能制备波导型准相位匹配介质，不宜制作大尺寸的周期极化晶体。

(5) 高压电场极化法。这种方法是目前应用最广、效果最好的制备周期极化晶体的一种方法，1992年由 Yamada 等人首次提出。它通过将非线性光学晶体加工成薄片，利用类似于制作半导体集成电路的工艺，在薄片表面光刻上光栅式电极，然后在适当的环境下在薄片的两个表面加上脉冲高压，使得处于光栅电极部分的材料实现畴反转，最后再用氢氧化钠等物质除去表面的薄膜电极，制备方法示意图如图 1-4 所示。这种方法具有四个主要优点：①畴反转深度可以贯穿整个晶体；②畴反转边界区域与晶体的  $z$  轴平行；③利用集成光学工艺和平版印刷技术，畴的宽度可以小到几微米；④能够在室温下极化反转，重复性好，工艺简单，便于商业化生产。

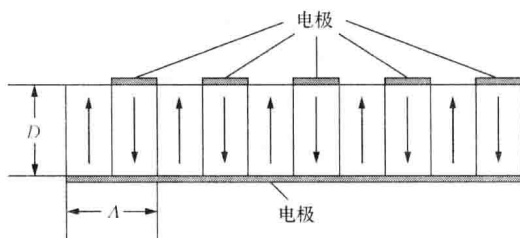


图 1-4 高电压电场极化法实现铁电畴反转示意图

### 1.2.2 周期极化晶体的分类

经过十几年的发展，周期极化晶体的品种越来越多，形式也各不相同。大致可以按照材料和周期结构来对它们进行分类。

#### 1. 按材料分类

虽然有机材料也可以实现极化反转，满足准相位匹配，但是实践证明，铁电材料才是目前实现准相位匹配的最理想材料。在用于非线性光学频率变换的不同铁电晶体中，由于材料本身性质各异，不同晶体在不同的应用方面存在着各自的优势和不足。一般情况下，当选取一块非线性光学晶体用于频率变换时，需要考虑以下几个主要因素：①高转换效率；②高损伤阈值；③宽透光波段和相位匹配范围；④大尺寸光学均匀结构；⑤易生长且价格低；⑥物化性能稳定且不潮解。此外，对周期极化晶体来说，还有两个非常重要的因素：一个因素是非线性系数  $d_{33}$  的大小，因为它直接关系到非线性转换效率的高低；另一个因素是铁电体的矫顽电场强度的大小，它决定了周期极化晶体制作时所需极化电压的大小，矫顽电场强度过大则晶体厚度受限，减小了通光光束的截面面积，直接影响输出功率的提高。基于以上原则，通常用来制作周期极化晶体的材料有  $\text{LiNbO}_3$ 、KTP 和  $\text{LiTaO}_3$  等。

(1) PPLN。铌酸锂 ( $\text{LiNbO}_3$ ) 晶体是一种无色或者带有黄绿色的透明晶体, 在居里温度 ( $1210^\circ\text{C}$ ) 以下为铁电相, 晶体属三方晶系  $3m$  点群, 具有良好的压电性、热释电性、铁电性和非线性光学性能<sup>[15]</sup>。在非线性频率变换领域中,  $\text{LiNbO}_3$  是应用最广泛的晶体材料, 被人们称为“非线性光学的硅”。基于  $\text{LiNbO}_3$  制成的周期极化铌酸锂 (PPLN) 是目前准相位匹配技术中应用最广的非线性晶体, 它具有较大的非线性系数  $d_{33}$ , 透射光谱范围宽, 价格便宜, 物化性能稳定且不易潮解<sup>[27]</sup>。虽然 PPLN 具有如上的诸多优点, 但是其光折变阈值较低, 在较强的激光照射下, 容易产生光折变效应, 严重破坏相位匹配条件, 使激光光束被散射。并且 PPLN 的这种光折变效应受温度影响较大, 这大大限制了 PPLN 在室温条件下的运转。一般在实验中, PPLN 需加热到  $100^\circ\text{C}$  以上, 以避免光折变损伤。此外,  $\text{LiNbO}_3$  的矫顽电场较大, 给制备较厚的 PPLN 带来了困难。

(2) PPMgOLN。将  $\text{MgO}$  等物质掺杂到  $\text{LiNbO}_3$  晶体中, 可以提高  $\text{LiNbO}_3$  晶体的抗光损伤能力。1980 年仲跻国<sup>[28]</sup> 等人证实, 高掺杂  $\text{MgO}$  (4.6%) 的  $\text{LiNbO}_3$  的抗光损能力约为未掺杂  $\text{LiNbO}_3$  晶体的 100 倍。此外, 制备出的 PPMgOLN 晶体的矫顽电场也比较低, 在室温下当 5% 掺杂时只有大于  $4.5\text{kV}/\text{mm}$ <sup>[29]</sup>, 远小于 PPLN 晶体的约  $21\text{kV}/\text{mm}$  的典型矫顽电场。因此, 利用  $\text{MgO}:\text{LiNbO}_3$  晶体制成周期极化晶体, 既可以利用  $\text{LiNbO}_3$  晶体固有的优点, 又在一定程度上克服了其抗光损伤能力差、极化电压高的缺点, 是实现 QPM 的一种极有前景的周期极化晶体。早在 2000 年, Hirano 等人<sup>[30]</sup> 就利用 PPMgOLN 的高抗光折变能力, 使用高亮度脉冲  $\text{Nd}:\text{YAG}$  激光, 在  $2\mu\text{m}$  波段获得了平均功率超过  $60\text{W}$  的参量光输出, 斜率效率高达 68%。

(3) PPLT。 $\text{LiTaO}_3$  是一种正单轴晶体, 它和  $\text{LiNbO}_3$  一样也是进行非线性频率变化的常用材料之一。二者的区别在于, 在紫外波段  $\text{LiTaO}_3$  晶体的透光范围比后者要大, 能够透过深至  $280\text{nm}$  的紫外光<sup>[31]</sup>, 这使得 PPLT 在产生紫外光源方面有着巨大的优势。除了紫外波段的透射光谱范围更宽以外,  $\text{LiTaO}_3$  的另一个优点是损伤阈值高。其缺点是  $d_{33}$  略小于  $\text{LiNbO}_3$ 。

(4) PPKTP。KTP 是非自然存在的人工晶体, 人们可以利用水热法和熔盐法来对其进行生长制备。与 PPLN 相比, PPKTP 晶体的优点很明显, 主要表现在: 抗激光损伤的能力较强, 室温下无明显的光折变效应, 因此可以工作在室温下, 无需温度控制; 极化电压低 (矫顽电场只有约  $2\text{kV}/\text{mm}$ )<sup>[32]</sup>, 可以得到较大尺寸 (如  $3\text{mm}$  厚) 的极化晶体; 折射率受温度影响较小。KTP 的主要缺点是  $d_{33}$  小于  $\text{LiTaO}_3$  和  $\text{LiNbO}_3$ , 且通光范围较小, 但在可见光和近红外波段也有足够高的透过率。



(5) PPRTA。RTA 是 KTP 的同型体，它们的特点很相似。RTA 的矫顽电场强度大约只有  $\text{LiNbO}_3$  的  $1/10^{[33]}$ ，因此易于获得大尺寸晶体；没有光折变损伤，可以在室温下工作。同  $\text{LiNbO}_3$  相比，RTA 的热效应比  $\text{LiNbO}_3$  小，并且 RTA 在  $4\sim 5\mu\text{m}$  波长范围的吸收较小，而此范围是  $\text{LiNbO}_3$  的一个吸收区域。RTA 的缺点是不同样品的离子电导率不同，有时不同方法生长出的晶体的差别可能在一个数量级以上，所以极化设备较复杂，晶体成本也较高。

为了便于更好地理解上面所介绍的这些周期极化晶体，表 1-1 和图 1-5 列出了几种常用于制造周期极化晶体的非线性光学材料的特性，并对其中几种周期极化晶体的特性进行了比较。

表 1-1 几种非线性光学材料的光学特性

晶体类型 光学特性	$\text{LiNbO}_3$	$\text{LiTaO}_3$	KTP	RTA
透光范围/ $\mu\text{m}$	0.4~5.5	0.28~6.0	0.35~4.3	0.35~5.3
非线性系数 / $(\text{pm}/\text{V})$	$d_{22}=2.10$ $d_{31}=-4.35$ $d_{33}=27.2$	$d_{22}=2.2$ $d_{31}=-1.4$ $d_{33}=-26$	$d_{31}=2.54$ $d_{32}=4.35$ $d_{33}=14.6$ $d_{24}=3.64$ $d_{15}=1.91$	$d_{31}=2.24$ $d_{32}=7.73$ $d_{33}=15.6$
损伤阈值	低	高	中	中
抗光折变能力	弱	—	强	强
极化电压	高	低	低	低

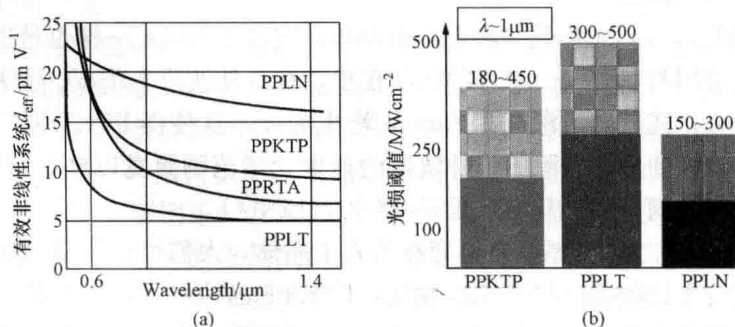


图 1-5 几种周期极化晶体的特性比较

(a) 四种晶体的有效非线性系数与波长的关系曲线；(b) 三种晶体的光损伤阈值比较