

准相位匹配 (QPM) 技术研究新进展

姚江宏^{1,2} 李冠告¹ 许京军^{1,2} 张光寅^{1,2}

(1 南开大学物理科学学院光子学中心 天津 300071)

(2 中国科学院红外物理国家重点实验室 上海 200083)

摘 要 准相位匹配是一种人为地制备晶体周期结构以实现非线性频率转换技术, 它拓宽了非线性晶体应用范围, 提高了频率转换效率。本文详细介绍了准相位匹配主要技术优势, 并描述周期极化畴反转技术, 这一当前普遍用来制备准相位匹配非线性晶体的实验方法。同时总结了这一领域国内外研究的最新进展。

关键词 准相位匹配, 体周期极化, 周期极化铌酸锂晶体

1 引 言

现代光学技术的发展, 对激光提出了更新更高的要求。拓宽激光输出波长范围, 最常用、最有效的方法之一, 就是利用非线性晶体的频率变换技术。由于非线性晶体材料在进行频率转换时, 必须满足相位匹配这一条件的要求, 目前人们通常利用各向异性晶体双折射特性的二次折射相位匹配 (PM) 技术和人为地在非线性晶体上制备出周期结构的准相位匹配 (QPM) 技术来实现高效频率转换。由于准相位匹配技术有其独特的技术优势, 解决了常规 PM 难以解决的问题, 拓宽了非线性晶体应用范围, 极大地提高了频率转换效率, 已成为非线性光学材料和固体激光器等诸多领域的研究热点之一。

2 QPM 技术

在倍频、混频、光学参量振荡等非线性光学过程中, 通常由于材料的色散关系, 基波和谐波在晶体中有着不同的相速度。因此, 由两波的不同相速度引起连续相位变化导致了能流方向的交替变化。从图 1 中曲线 C 可以看出, 由于能流符号的改变而导致二次谐波强度沿互作用距离周期性地增强和减弱。人们通常把两波相位差为 π 时的作用长度称为“相干长度”, $l_c = \lambda/4(n_2 - n_1)$ (此处 n_1 、 n_2 分别为基频光和倍频光的折射率指数, λ 为基频光的波长), 能流符号的交替变换导致二次谐波强度沿基波与非线性互作用方向以 $2l_c$ 为周期交替增强和衰减。如果能使两者的折射率指数相匹配, 即 $n_2 = n_1$, 由上述公式可知相干长度 $l_c \rightarrow \infty$, 从而能保持二次谐波强度在整个晶体中以指数方式增长, 见图 1 中曲线 A, 这就是通常所言的相位匹配。过去人们主要利用各向异性晶体的双折射特性, 通过调节晶体温度和入射光的取向角, 使基波的 o 光 (或 e 光) 与谐波的 e 光 (或 o 光) 的折射率相等以实现相位匹配。但这种利用各向异性晶体双折射特性实现相位匹配方法有许多难以克服的缺点, 极大地限制了所用晶体范围和能量转换效率。

另一种能使二次谐波强度在非线性晶体中保持持续增长的方法就是准相位匹配 (QPM) 技术^[1,2]。如图 1 中曲线 B 所示, 如果能使基波和谐波在奇数的相干长度内相对相位反转, 这种

收稿日期: 1998-09-07; 修改日期: 1999-02-04

匹配的相位关系能使二次谐波强度在一些本该衰减的区段得以继续增加。因此,只需周期性地改变非线性系数的符号,实现相位周期性反转,就能使谐波保持高效非线性频率转换,这就是准相位匹配技术。在 LiNbO_3 等铁电晶体中,人们可制成自发极化率 P_s 呈周期性反转的铁电畴结构,以实现准相位匹配。

QPM 技术是一种人为设计晶体周期结构以达到满足相位匹配关系。QPM 与双折射 PM 对比,可以看到 QPM 技术有如下主要优势:

- 1) 通过人为合理控制畴反转周期,可实现理想的非线性相位匹配,使变频输出光的能量达到实际应用要求。
- 2) QPM 不再要求正交光束,这意味着非线性系数不再必须是非对角线张量元。可充分利用非线性介质的最大非线性系数,非线性效应得以显著提高。
- 3) QPM 是非临界相位匹配,不存在走离效应,对入射角要求降低,基波和谐波等相互作用光束能严格限制在非线性晶体中。因而,可以使用较长的晶体,以获得较大的变频光能量。
- 4) 只需在非线性晶体中设计制备出各种不同周期的畴结构,通过改变畴结构周期和晶体温度就能十分方便地实现输出光波长的可调谐,对透光区内任意波长的光波都不存在匹配的限制。

总之, QPM 技术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,使宽波段激光输出成为可能。图 2 是 $1.064 \mu\text{m}$ 光波输入产生 $2.128 \mu\text{m}$ 变频输出的准相位匹配 LiNbO_3 晶体结构示意图。因为输入光和输出光都能沿同一极化方向,可充分利用 LiNbO_3 晶体的最大非线性系数 d_{33} ,它同双折射相位匹配(只能利用 d_{31} 非线性系数)相比,有效非线性转换效率提高了 $(2d_{33}/\pi d_{31})^2 \sim 20$ 倍。

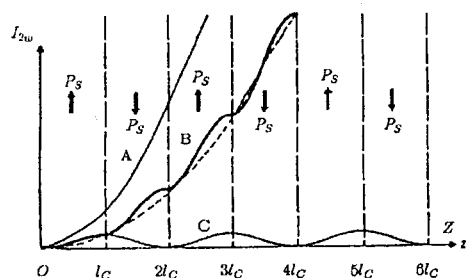


Fig.1 The change of the second-harmonic as a function of interaction distance.

A: ideal PM, B: QPM, C: no-PM

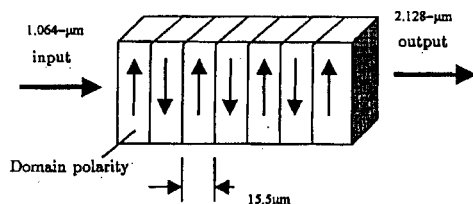


Fig.2 The schematic diagram of periodically poled lithium niobate crystal QPM structure

3 周期极化 QPM 晶体制备技术

早在 1962 年, Armstrong 和 Franken 等人^[1,2]就分别提出了使用周期光栅实现相位匹配这一概念,但真正将此想法付诸实现,制成可用器件却存在很大困难。为此,科学家们进行了不懈努力,直到九十年代后,利用外加周期电场调制非线性极化率技术的日趋成熟,周期极化材料的制备才取得突破性进展。这里以 LiNbO_3 晶体为例,简单介绍一下周期极化畴反转晶体的制备方法。

典型实验装置如图 3 所示,首先在双面抛光 LiNbO_3 晶体 z 轴表面镀一层金属导电膜,通

常使用 Ti、Al 和 Cr 等金属,膜厚保持在 100~300 nm 左右;然后,利用半导体光刻工艺制备出周期图案的金属条纹;随后,在金属条纹电极上涂一层薄的绝缘胶,使各金属电极之间保持良好的绝缘隔离。外加电场通过液体电极加在 LiNbO₃ 晶体的金属电极上,也可将外电场直接加在 LiNbO₃ 晶体的金属电极上,所有这些都保证外电场和金属电极有良好欧姆接触。为防止高压对空气击穿,极化过程通常都是在高真空 (1.33×10^{-5} Pa 以上) 或高压绝缘油中完成。所用外电场为脉冲高压电场,对 LiNbO₃ 晶体,脉冲电压要大于 23 kV/mm,脉冲周期长短与次数依具体实验条件而定。当晶体表面输运电荷达到 $Q \geq 2PsA$ 时 (其中 P_s 为 LiNbO₃ 晶体自发极化强度, A 为极化面积),开始缓慢降低脉冲电压,持续一段时间,保证已极化反转的畴不会再自行返回,最后关掉脉冲电压,完成周期极化过程。目前采用上述方法不仅成功制备出了极化厚度达 0.5 mm、通光长度超过 50 mm 的均匀周期畴结构的 LiNbO₃ 晶体。同时也在 KTP、KN、BaTiO₃ 以及 RbTiOAsO₄ 等多种非线性晶体材料上实现了周期极化畴反转,取得了全面突破。

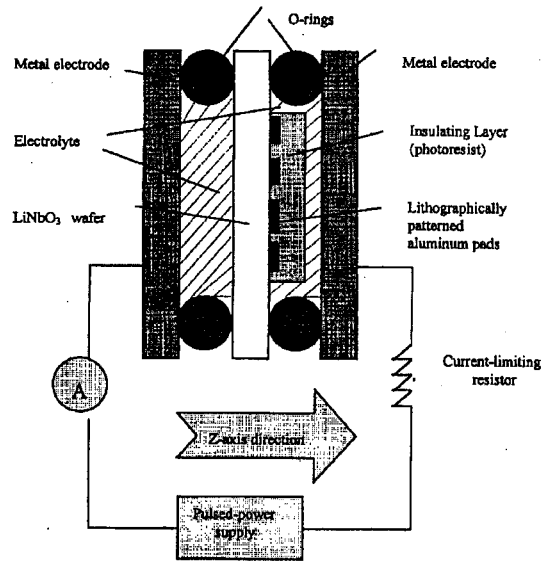


Fig.3 Periodically poled lithium niobate is produced by a high-voltage pulse

4 周期极化准相位匹配技术的最新研究动态

由于外加电场极化方法的成功使用大大降低了极化难度和成本,进入九十年代,这一领域研究取得突破性进展。特别是对体周期极化材料,由于它通光范围大,转换效率高,发展更为迅速。目前,利用准相位匹配技术已实现了脉冲、准连续以及连续光的频率转换。QPM 技术已从最初实现倍频发展到混频、OPO 以及光脉冲整形等多种非线性光学应用领域。

4.1 周期极化 LiNbO₃ 晶体 (PPLN) 用于红外光学参量振荡器 (OPO)

实现准相位匹配的最为理想的非线性材料为 LiNbO₃ 晶体,该晶体通光范围在 0.4~4.5 μm 区间,覆盖了近、中红外区域。实验证实,采用周期极化 LiNbO₃ 晶体,非常适合于制备中红外波段的 OPO 器件,而这正是常规 PM 难以实现高效输出的波段,国际学术界对此开展大量研究,取得了许多有意义的进展。现在利用二极管泵浦的 Nd:YAG (1.064 μm) 激光器入射 PPLN,已制成光学参量振荡器,通过调整该极化晶体的周期畴大小,就能实现光谱范围在 1.45~4 μm 之间的高效脉冲或连续光输出,它具有高光谱纯度和极好的频率及功率稳定性^[3~5]。据报道,利用 PPLN 晶体制成的大功率连续可调单谐振光学参量振荡器 (SRO),通过参量振荡能实现稳定的高功率的连续可调的红外激光输出,量子转换效率高达 83%,接近理论极限值^[6]。这种 OPO 产生的红外波段光子源,在军事对抗、大气环境监测、医学、特殊环境远距离监控以及光谱学研究等诸多领域都有十分重要的应用价值。目前利用 PPLN 制成的红外 OPO 激光探测器^[7],在室温下,产生连续可调的红外激光源,可调范围为 2.16~2.32 μm ,用以探测大气中 CO、

N_2O 和 CO_2 等有毒、有害气体的含量,灵敏度非常高。发展这种方便、快捷、有效的大气环境监测仪器,对提高人们的环保意识、切实有效地控制大气污染是非常有意义的。

4.2 短波段相干光源转换

随着周期极化技术进一步成熟与发展,大面积均匀畴结构的短周期极化反转晶体制备已成为可能。这使得原来需要三阶甚至更高阶 QPM 方能实现的短波段转换现在能用一阶 QPM 得以实现,极大地提高了能量转换效率。目前周期极化技术已完全能制备出长度超过 50 mm 以上,畴结构小于 $2\text{ }\mu\text{m}$ 的短周期体极化晶体。现在利用二极管泵浦 Nd:YAG 激光源,通过上述短周期极化晶体倍频后,已实现了大功率绿色、蓝色光源输出,能量转换效率均在 40% 以上^[8,9]。目前,有关利用二极管泵浦倍频 QPM 晶体实现紫外波段激光输出也已实现^[10],上述各种简便轻巧的短波段激光器如能实现商品化,必将在高密度光存储、生物医学等方面做出应有的贡献。

4.3 啁啾周期极化 LiNbO_3 晶体 (CPPLN) 实现光脉冲压缩

众所周知,在超快激光系统的实际工作中,需要有效控制啁啾超短脉冲传输过程中的色散,光脉冲压缩技术已广泛应用在超快激光系统中。以往人们普遍使用线性色散体系和 $\chi^{(3)}$ 非线性效应来实现光脉冲压缩,随着人们对 QPM 技术的认识深入和制备工艺的成熟,理论研究和实验结果都表明啁啾 QPM 光栅在产生二次谐波的同时能实现光脉冲压缩^[11]。美国 Stanford 大学研究人员已成功地利用啁啾周期极化 LiNbO_3 晶体 (CPPLN) 准相位匹配技术实现超快脉冲压缩^[12],他们以 1560 nm 17 ps (FWHM) 脉冲光信号输入,通过 5 cm 长的 CPPLN 晶体倍频后能产生 780 nm 110 fs (FWHM) 的倍频脉冲输出,脉冲压缩达 150 倍。研究表明,只要设计啁啾 QPM 周期与输入脉冲相位匹配,超快脉冲激光通过简单的啁啾 QPM 晶体,就能在完成频率转换的同时实现光脉冲压缩和放大。同传统的衍射光栅和棱镜实现超快脉冲分离压缩相比,啁啾 QPM 晶体不仅能使光脉冲压缩器更紧凑、轻巧,操作更方便,而且能完成高能量光脉冲处理,这是一个全新的飞跃。

4.4 周期极化技术发展趋势

为充分利用 QPM 技术可人为设计周期结构这一优势,科学家们已研制出在一块晶体的不同区域制备出不同畴周期结构的 QPM,利用不同区域的不同畴周期,实现不同波长的相干光输出。这样,只需使用一块 QPM 晶体就能同时完成倍频、差频、混频和 OPO 等各种非线性转换,大大简化了光学系统的体积及操作难度。美国光波电子公司的研究人员^[13]在一块 PPLN 晶体不同位置上做出周期不同的极化光栅并将其串接在一起,这样使用一块 PPLN 晶体就完成了 OPO-SHG 和 OPO-SFG 过程,不仅提高了频率转换效率,增大了输出功率;同时,还大大简化了器件调试过程,减低了操作难度。我国南京大学也利用 QPM 技术在 LiTaO_3 晶体上实现了 SHG 和 SFG 的耦合^[14],通过这种耦合过程,可直接产生高效的三次谐波 (THG)。如进一步完善周期极化结构设计,使用 QPM 技术,就可以利用目前的二次非线性介质材料实现三次、四次甚至更高次谐波的输出,使原本繁琐、复杂的操作过程大大简化。也有将周期畴做成“扇形”结构^[15],周期间距保持连续增加,这样在操作中只需平行调整“扇形”畴结构晶体在 OPO 谐振腔中的位置,就可方便地实现输出光的连续可调,克服了通常利用控制晶体温度改变输出波长范围所存在的精度不高,响应缓慢,操作复杂等缺点,这种技术对 KTP 这类无法通过改变温度控制输出波长范围的晶体显得尤为重要。

当前,对于 QPM 技术的应用和周期极化畴结构的设计制备还有待于深入研究和完善。例如,对 LiNbO_3 晶体来说,由于电场极化电压要求高 (22~25 kV/mm),极化晶体的厚度大大受

到限制, 目前所报道的极化厚度大多 $\leq 0.5 \text{ mm}$ 。显然, 这个厚度影响了通光光束的截面面积, 不利于提高输出功率。如何增加晶体的极化厚度, 成为当前需要迫切解决的问题, 人们希望通过对 LiNbO_3 晶体掺杂, 以降低极化反转电压, 从而达到有效地增大晶体厚度的目的。总之, 我们相信通过对 QPM 物理机制、周期结构设计的进一步深入研究和探索, 一定会使 QPM 技术展现出更多的全新应用前景。

5 小 结

QPM 技术以其独有的技术优势解决了常规 PM 难以解决的问题, 拓宽了非线性晶体应用范围, 大大提高了频率转换效率。周期极化晶体与其它非线性晶体结合, 利用倍频、差频、OPO 以及光脉冲整形等技术实现宽波段调谐已成为一种非常有效的手段。高效便捷的二极管泵浦激光器与具有同样优点的周期极化准相位匹配技术相结合, 已成为发展全新紧凑型固体激光器的一种趋势。可以预见, 随着周期极化技术的进一步成熟, 大孔径通光周期极化晶体的制备成为可能, 这种制备工艺简单, 成本低廉, 转换效率高, 操作方便的准相位匹配可调谐光子学器件必将开拓出新的应用领域。

参 考 文 献

- 1 Armstrong J A, Bloembergen N, Ducuing J *et al.* Interactions between light waves in a nonlinear dielectric. *Phys. Rev. B*, 1962, 127: 1918~1939
- 2 Franken P A, Ward J F. Optical harmonics and nonlinear phenomena. *Rev. Mod. Phys.*, 1963, 35: 23~39
- 3 Bosenberg W R, Drobshoff A, Alexander J I *et al.* Continuous-wave singly resonant optical parametric oscillator based on periodically poled LiNbO_3 . *Opt. Lett.*, 1996, 21(10): 713~715
- 4 Butterworth S D, Smith P G K, Hanna D C. Picosecond Ti:sapphire-pumped optical parametric oscillator based on periodically poled LiNbO_3 . *Opt. Lett.*, 1997, 22(9): 618~620
- 5 Schneider K, Kramper P, Schiller S *et al.* Toward an optical synthesizer: a single-frequency parametric oscillator using periodically poled LiNbO_3 . *Opt. Lett.*, 1997, 22(17): 1293~1295
- 6 Bosenberg W R, Drobshoff A, Alexander J I *et al.* Dump depletion, 3.5 W continuous-wave, singly resonant optical parametric oscillator. *Opt. Lett.*, 1996, 21(17): 1336~1338
- 7 Petron K P, Goldberg L, Burns W K *et al.* Detection of CO in air by diode-pumped $4.6 \mu\text{m}$ difference-frequency generation in quasi-phase-matched LiNbO_3 . *Opt. Lett.*, 1996, 21(1): 86~88
- 8 Miller G D, Batchko R G, Tulloch W M *et al.* Efficient single-pass cw second-harmonic generation in periodically poled lithium niobate. *Opt. Lett.*, 1997, 22(24): 1834~1836
- 9 Ross G W, Pollnau M, Smith P G R *et al.* Generation of high-power blue light in periodically poled LiNbO_3 . *Opt. Lett.*, 1998, 23(3): 171~173
- 10 Mizuuchi K, Yamamoto K, Kato M. Generation of ultraviolet light by frequency doubling of a red laser diode in a first-order periodically poled bulk LiNbO_3 . *Appl. Phys. Lett.*, 1997, 70(10): 1201~1203
- 11 Arbore M A, Mareo O, Fejer M M. Pulse compression during second-harmonic generation in a periodic quasi-phase-matching gratings. *Opt. Lett.*, 1997, 22(12): 865~867

- 12 Arbore M A, Galvanauskas A, Harter D *et al.* Engineerable compression of ultrashort pulses by use of second-harmonic generation in chirped-period-poled lithium niobate. *Opt. Lett.*, 1997, 22(17): 1341~1343
- 13 Bosenberg W R, Alexander J I, Myers L E *et al.* 2.5 W, continuous-wave, 629 nm solid-state laser source. *Opt. Lett.*, 1998, 23(4): 207~209
- 14 Zhu S M, Zhu Y Y, Ming N B. Quasi-phase-matched third-harmonic generation in a quasi-periodic optical superlattice. *Science*, 1997, 278: 843~846
- 15 Powers P E, Kulp T J, Bisson S E. Continuous tuning of a continuous-wave periodically poled lithium niobate optical parametric oscillator by use of a fan-out grating design. *Opt. Lett.*, 1998, 23(3): 159~161

New Development of Quasi-phase-matching (QPM) Technique

Yao Jianghong^{1,2} Li Guangao¹ Xu Jingjun^{1,2} Zhang Guangyin^{1,2}

(1 Photonics Research Center, College of Physics Science, Nankai University Tianjin 300071)

(2 National Laboratory for Infrared Physics, Academia Sinica Shanghai 200083)

Abstract Quasi-phase-matching is a technique for phase matching nonlinear optical interactions in which the relative phase is corrected at regular intervals using a structural periodicity built into the nonlinear medium. Comparing the phase-matching, the advantage of quasi-phase-matching is introduced. Acting as an example, electric field treatment periodically poled domain-inverted method by application of a high-voltage pulse is introduced. The recent progress of the research and development of QPM as second-harmonic generation, sum-frequency generation, optic parametric oscillation and optical pulse compression is reviewed.

Key words quasi-phase-matching, bulk periodically poled, periodically-poled LiNbO₃ crystal

姚江宏 男, 31 岁, 1997 年获物理学博士学位, 主要从事非线性光学材料及薄膜光学材料等方面的研究工作。