

铌酸钡钠的温度匹配研究

龚正烈 刘燕明 杨乾锁

(天津大学)

提要: 本文就 BNN 主轴截面通光的情形, 将温度和角度作为两个独立变量对倍频过程进行了分析, 得到谐波功率与温度和角度的近似关系、谐波各方向的折射率随温度的变化关系以及在完全位相匹配情况下温度与角度的关系。实验结果与理论符合得较好。

Study of temperature matching in BNN crystals

Gong Zhenglie, Liu Yanming, Yang Qiansuo

(Tianjin University)

Abstract: Frequency doubling of light propagating along the main section in BNN crystals is analyzed with temperature and angle as independent variables. Following results are obtained: approximate relation of second harmonic power temperature, the relation of angle change in the refractive indices of harmonic wave with temperature and relation between temperature and angle in the case of perfect phase-matching. The experimental results are in good agreement with the theory.

一、引言

迄今所看到的关于温度匹配的文章都只给出实验结果。本文以 BNN 晶体主轴截面上通光的情形, 将温度和角度作为两个独立的变量, 对倍频过程进行了分析; 对基波的偏振状态对谐波的影响还进行了实验。实验和理论分析表明, 第 II 类匹配在我们的情况下是不存在的。因此, 合理地控制基波偏振方向对于提高倍频效率, 尤其对腔内倍频效率是有意义的。

二、理论

选取 BNN 的 a 、 b 和 c 轴分别为笛卡尔坐标的 x 、 y 和 z 轴。我们考虑 $y-z$ 面的第 I 类匹配情形。因为 BNN 晶体在常温 (25°C) 下对 1.06 微米的三个主折射率分别为^[1] $n_{1x}=2.2580$, $n_{1y}=2.2567$, $n_{1z}=2.1700$; 对 0.53 微米的为 $n_{2x}=2.3672$, $n_{2y}=2.3655$, $n_{2z}=2.2502$ 。

众所周知, 在小信号近似下, 谐波功率

收稿日期: 1983 年 11 月 23 日。

P_2 与位相匹配因子 Δk 的关系为^[3]:

$$P_2 = A \sin^2 c^2 \frac{L \Delta k}{2}, \quad (1)$$

式中 A 为与位相因子 Δk 无关的系数, L 为倍频晶体长度。显然, 温度或角度的任何变化均引起 Δk 变化。为此将 $\Delta k(T, \theta)$ 在常温 T_0 和对应的匹配角 θ_0 展开 (θ 从 z 轴量起)

$$\begin{aligned} \Delta k(T, \theta) = & \Delta k(T_0, \theta_0) \\ & + \frac{\partial \Delta k(T_0, \theta_0)}{\partial T} (T - T_0) \\ & + \frac{\partial \Delta k(T_0, \theta_0)}{\partial \theta} (\theta - \theta_0) + \dots \end{aligned}$$

$$\text{因为 } \Delta k(T, \theta) = \frac{4\pi}{\lambda_1} [n_2(T, \theta) - n_{1x}(T)],$$

所以

$$\Delta k(T_0, \theta_0) = 0, \quad (2)$$

$$\begin{aligned} \alpha = \frac{\partial \Delta k(T_0, \theta_0)}{\partial T} \\ = \frac{4\pi}{\lambda_1} \left[\frac{\partial n_2(T_0, \theta_0)}{\partial T} - \frac{\partial n_{1x}(T_0)}{\partial T} \right], \quad (3) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \beta = \frac{\partial \Delta k(T_0, \theta_0)}{\partial \theta} \\ = \frac{4\pi}{\lambda_1} \left[\frac{\partial n_2(T_0, \theta_0)}{\partial \theta} \right]. \quad (4) \end{aligned}$$

为求得 α 和 β , 我们假定在高于常温的温度 T 时, BNN 晶体各方向的折射率也由该温度下的主折射率所确定的折射率曲面来决定。实际上当温度升高至 300°C , BNN 由斜方结构变成四方结构^[2], 其对称性更强。其次, 还假定 BNN 主折射率随温度的变化是线性的。文献 [1] 的实验曲线表明, 在 300°C 以下这样的假设是合理的。

在给定温度 T 下, 晶体主轴截面 $y-z$ 内谐波的折射率应满足方程^[3]

$$\begin{aligned} n_2(T, \theta) \\ = n_{2y}(T) n_{2z}(T) / \{ n_{2y}^2(T) \\ - [n_{2y}^2(T) - n_{2z}^2(T)] \cos^2 \theta \}^{\frac{1}{2}}. \quad (5) \end{aligned}$$

$$\cos^2 \theta_m = \frac{1 - \left[n_{2z} + \frac{\partial n_{2z}}{\partial T} (T_m - T_0) \right]^2 / \left[n_{1x} + \frac{\partial n_{1x}}{\partial T} (T_m - T_0) \right]^2}{1 - \left[n_{2z} + \frac{\partial n_{2z}}{\partial T} (T_m - T_0) \right]^2 / \left[n_{2y} + \frac{\partial n_{2y}}{\partial T} (T_m - T_0) \right]^2}. \quad (12)$$

将该式对温度求导数, 经化简可得十分对称的关系:

$$\begin{aligned} \frac{\partial n_2(T, \theta)}{\partial T} \\ = \frac{n_{2y}^3(T) \frac{\partial n_{2z}}{\partial T} \sin^2 \theta + n_{2z}^3(T) \frac{\partial n_{2y}}{\partial T} \cos^2 \theta}{[n_{2y}^2(T) \sin^2 \theta + n_{2z}^2(T) \cos^2 \theta]^{3/2}}, \quad (6) \end{aligned}$$

式中主折射率随温度的变化由实验确定。显然, 由 (6) 可得

$$\begin{aligned} \frac{\partial n_2(T, 90^\circ)}{\partial T} &= \frac{\partial n_{2z}}{\partial T}; \\ \frac{\partial n_2(T, 0^\circ)}{\partial T} &= \frac{\partial n_{2y}}{\partial T}; \quad (7) \end{aligned}$$

正是谐波主折射率随温度的变化。

注意到在常温下的匹配角 θ_0 应满足

$$\cos^2 \theta_0 = \frac{1 - n_{2z}^2/n_{1x}^2}{1 - n_{2z}^2/n_{2y}^2}, \quad (8)$$

由 (5) 式可得

$$\begin{aligned} \frac{\partial n_2(T_0, \theta_0)}{\partial \theta} \\ = -n_{1x} [(n_{1x}^2 - n_{2z}^2) \\ \times (n_{2y}^2 - n_{1x}^2)]^{1/2} / n_{2y} n_{2z}. \quad (9) \end{aligned}$$

再在 (6) 式中代入常温下的各量即可得到 α 和 β 。于是,

$$P_2 = A \sin^2 c^2 \frac{L}{2} [\alpha(T - T_0) + \beta(\theta - \theta_0)]. \quad (10)$$

完全位相匹配要求 $\Delta k(T_m, \theta_m) = 0$, 则得

$$\frac{T_m - T_0}{\theta_m - \theta_0} = -\frac{\beta}{\alpha}. \quad (11)$$

这表明, 在一级近似下, 温度为 T_m 时的匹配角 θ_m 与 T_m 成比例。此结果对远离 θ_0 的角度将引起较大的误差。为此, 将温度为 T_m 时的诸主折射率 $n_{1x}(T_m)$ 、 $n_{2y}(T_m)$ 和 $n_{2z}(T_m)$ 分别在常温下展开并利用线性变化的假设, 仿 (8) 式的求法, 可得温度为 T_m 时的匹配角为:

可以看到,直接将(8)式推广到任意温度下也可得到该式。显然由(12)式来估计给定温度下的匹配角比(11)式准确得多。根据文献[1]的数据:

$$\frac{\partial n_{1x}}{\partial T} = -2.5 \times 10^{-5}/^{\circ}\text{C},$$

$$\frac{\partial n_{2y}}{\partial T} = -2.2 \times 10^{-5}/^{\circ}\text{C}^*,$$

$$\frac{\partial n_{2z}}{\partial T} = 8.0 \times 10^{-5}/^{\circ}\text{C},$$

可得 BNN 的 $\theta_m(T_m)$ 关系, 图 1 为其反函数 $T_m(\theta_m)$ 曲线。

很明显, 当 $T=T_0$ 时, (12) 式就是 (8) 式。在非临界匹配时, 由该式易得:

$$T_M - T_0 = \frac{n_{1x} - n_{2z}}{\frac{\partial n_{2z}}{\partial T} - \frac{\partial n_{1x}}{\partial T}}, \quad (13)$$

式中 T_M 为非临界匹配温度。

上述结果适用于常用的负单轴晶第 I 类位相匹配, 只需将 $n_{1x}(T)$ 、 $n_{2y}(T)$ 和 $n_{2z}(T)$ 换为 $n_1^0(T)$ 、 $n_2^0(T)$ 和 $n_3^0(T)$ 就可以了。

三、实验结果及分析

倍频光源为 BDN 调 Q 的 YAG 激光器, 输出脉宽为 10 毫微秒。中央放有 BNN 晶体

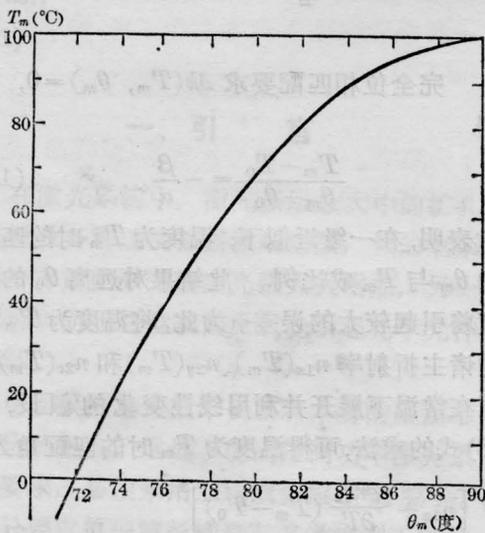


图 1

的加热炉置于带有刻度的可转动圆盘座上, 炉温由 DWT-702 精密温度自动控制仪控制。经滤光后倍频光由硅光电池和光点检流计检测, 因为我们仅关心倍频光的变化, 所以测量的是相对强度。考虑到 BNN 晶体的破坏阈值较低, 故将 BNN 放在腔外, 且基波光束不聚焦。

在不同温度下改变晶体 y 轴与通光方向的夹角(在主截面内), 得到二次谐波相对光强如图 2 所示。在温度较低时, 存在着明显的两个峰, 虽然由于加热炉通光孔径的限制未能充分观察到曲线边缘的变化。在常温下这两个峰与 z 轴的夹角(绝对值)可由(8)或(12)式求得为 74.38° (与 y 轴夹角为 15.62°), 这正是常温下的匹配角 θ_0 。随着温度的升高两峰逐渐靠近, 最后合成单峰。此时的温度正是非临界匹配温度 T_M 。由(12)式可求得 $T_M=99.29^{\circ}\text{C}$, 与实验所差无几(沿 x 轴通光, $T_M=88.73^{\circ}\text{C}$)。按理论, 在这个温度以后应该观察不到倍频光。这相当于(12)式中的 θ_m 取虚数, 或基波与谐波的折射率曲面不再相交。然而, 实际上谐波强度并不为零, 我们认为这种现象是由于晶体折射率不均匀

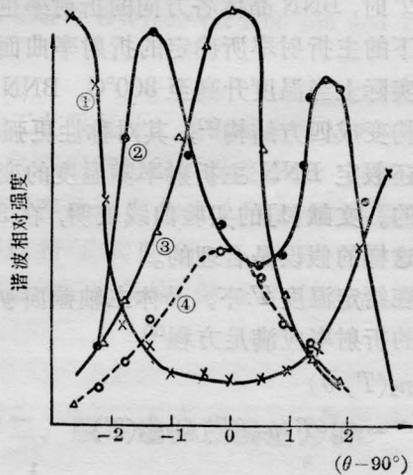


图 2

①— 97.4°C ; ②— 98.6°C ; ③— 100.2°C ; ④— 101.0°C

* $\frac{\partial n_{2y}}{\partial T}$ 值根据文献[1]的曲线求得。

性导致折射率曲面并非理想几何曲面所致。

上述实验相当于在(10)式中固定一个温度 T ，在不同 θ 值下测量 P_2 。如果温度足够低，使两峰分开得足够远，则应该得到一个关于 θ 的 $\sin c$ 函数图形。另一方面固定 θ 改变 T ，同样得到一个关于 T 的 $\sin c$ 函数图形。图 3 便是这样的实验曲线，在曲线两翼实验点有较大的起伏也说明了这点。

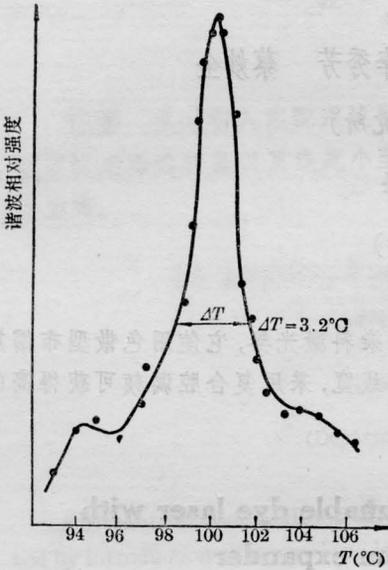


图 3

定义 P_2 取最大值和第一极小值之间的温度间隔为温度曲线宽度 $\Delta T^{[4]}$ ，则由(10)得

$$\Delta T = \frac{2\pi}{L\alpha} = \frac{\lambda_1}{2L} \left(\frac{dn_{2z}}{dT} - \frac{dn_{1z}}{dT} \right)^{-1} \quad (14)$$

式中 L 取 3 毫米，则 $\Delta T = 1.69^\circ\text{C}$ ，实验值为 $\Delta T = 3.2^\circ\text{C}$ 。这样定义的 ΔT 相当于温度曲线高度最大值的 $\frac{4}{\pi^2}$ ($\approx 40\%$) 处的宽度。

非临界匹配的角度 (90°) 和温度 T_M 并不是很容易找准的。为此，可以在稍低于由(13)式计算出的温度下进行实验，同时改变 θ 角，观察谐波光强的变化趋势(单峰还是双峰，上升还是下降)，以便进一步调整温度。

我们还观察了基波偏振特性对二次谐波光强的影响，主要目的是想了解在非临界匹配下第 II 类位相匹配是否存在。此类匹配存在的条件是：

$$\begin{cases} (n_{1x} + n_{1z}) \geq 2n_{2z}, \\ (n_{1y} + n_{1z}) \geq 2n_{2z}. \end{cases} \quad (15)$$

在常温下，例如上面第一式左方为 2.2140，小于 $n_{2z} (= 2.2502)$ ，故第 II 类匹配不存在。当温度升高时， n_{2z} 以 $8.0 \times 10^{-5}/^\circ\text{C}$ 的速度向外扩展，虽然 n_{1z} 大致也以同样的速度(忽略色散对折射率温度系数的影响)向外扩展，但 n_{1x} 却向内收缩。这样，上面的条件总不能得到满足。顺便指出，降低温度至室温以下，第 II 类匹配是可能存在的。

实验进行的方式是：通光方向沿晶体的 y 轴，在不同的温度下改变基波的偏振角 φ (φ 从与晶体 z 轴垂直的方向量起)。如果第 II 类匹配存在，应该在一个特定的温度下(或一个狭窄的温度范围内)观察到当 $\varphi = 45^\circ$ 时出现谐波峰。实际上在一定的温度范围内只观察到谐波功率随 φ 角增加而单调下降。图 4 为 T_M 时谐波相对强度随 φ 变化的图形；同时还给出了理论曲线(与 $\cos^4 \varphi$ 成比例)，以资比较。此结果表明，用 BNN 倍频时基波偏振方向应与 BNN 的 z 轴垂直，以得到最高的转换效率。

作者感谢上海硅酸盐研究所的支持。

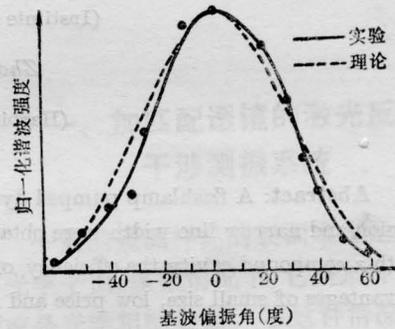


图 4

参 考 文 献

- [1] S. Singh et al.; *Phys. Rev.*, 1970, **B2**, 2709.
- [2] Frits Zernike, John E. Midwinter; *Applied Non-linear Optics*, 1973, John Wiley & Sons.
- [3] 李荫远, 杨顺华编; 《非线性光学》, 科学出版社, 1974 年, p. 29.
- [4] M. L. Stitch; *Laser Handbook*, 1979, **3**, 437.