

文章编号: 0258-7025(2003)09-0843-04

绿宝石激光晶体的主折射率及其 温度系数的精确测量

陈振强, 张戈, 沈鸿元, 黄呈辉, 刘文, 黄凌雄

(中国科学院福建物质结构研究所, 福建福州 350002)

摘要 报道了用自准直法在 0.488 μm , 0.53975 μm , 1.0795 μm 和 1.3414 μm 激光波长上测量了含 Cr^{3+} 离子浓度为 1.01 at.-% 的 $\text{Cr}^{3+}:\text{Be}_3\text{Al}_2\text{Si}_6\text{O}_{18}$ 晶体的主折射率及其温度系数, 得到了该晶体的 Sellmeier 方程, 用此结果反算了该晶体在上述 4 种波长下不同温度的折射率, 误差小于 1.09×10^{-4} , 最后对测量误差进行了讨论。

关键词 人工晶体; $\text{Cr}^{3+}:\text{Be}_3\text{Al}_2\text{Si}_6\text{O}_{18}$ 晶体; 折射率; 温度系数

中图分类号 O 734 **文献标识码** A

Measurement of Principal Refractive Indices and Expression of Thermal Refractive Index Coefficients of Emerald Laser Crystal

CHEN Zhen-qiang, ZHANG Ge, SHEN Hong-yuan,
HUANG Cheng-hui, LIU Wen, HUANG Ling-xiong

(Fujian Institute of Research on the Structure of Matter,
The Chinese Academy of Sciences, Fuzhou, Fujian 350002, China)

Abstract The principal refractive indices and the thermal refractive index coefficients for $\text{Cr}^{3+}:\text{Be}_3\text{Al}_2\text{Si}_6\text{O}_{18}$ crystal doped with 1.01 wt.-% Cr_2O_3 have been accurately measured by the auto-collimation method at the wavelengths of 0.488 μm , 0.53975 μm , 1.0795 μm and 1.3414 μm , and at the temperature of 308.2 K, 328.6 K, 359.1 K and 395.4 K, respectively. The sellmeier's equations and the thermal refractive index coefficients were obtained, and the result was certified to be accurate by error analysis.

Key words synthetic crystal; $\text{Cr}^{3+}:\text{Be}_3\text{Al}_2\text{Si}_6\text{O}_{18}$ crystal; refractive index; thermal coefficient

1 引言

绿宝石 ($\text{Cr}^{3+}:\text{Be}_3\text{Al}_2\text{Si}_6\text{O}_{18}$) 晶体是一种较早发现的性能优良的宽带可调谐激光晶体材料, 属于六方晶系单轴晶, 空间群为 $D_{6h}^2 (P6/mcc)$ 。和其他含 Cr^{3+} 类激光晶体一样, 激光发射均为 Cr^{3+} 的 ${}^4T_2 \rightarrow {}^4A_2$ 跃迁引起的, 但是它的激光斜率效率和量子产率在这些晶体中却是最高^[1]。和金绿宝石相比较, 该晶体的热导率仅为 $0.04 \text{ Wcm}^{-1} \text{ deg}^{-1}$, 比前者小了 6 倍多, 加上晶体生长方法和晶体尺寸的限制^[2], 从而影响了该晶体激光器的发展。

激光晶体的折射率和折射率温度系数是激光晶体研究的重要物理参数, 为设计激光器和分析研究激光的动态变化提供依据。对于绿宝石晶体而言, 至今尚未见到有关该晶体这一方面的研究报道。最近俄罗斯^[3]报道了该晶体在激光运转过程中热效应与激光腔长度的密切关系, 但未对晶体产生热效应的内在因素进行分析和量化研究。绿宝石晶体的双折率较小 (仅为 $4 \sim 8 \times 10^{-3}$), 要求的测量精度很

收稿日期: 2002-05-13; 收到修改稿日期: 2002-08-09

基金项目: 国家自然科学基金 (编号: 60278025)、中国科学院基础局重点项目 (200286) 和福建省青年创新基金 (2001J014) 资助课题。

作者简介: 陈振强 (1965—), 男, 副研究员, 博士后, 主要研究方向为光电子材料制备、性能和激光器件。E-mail: czqiang@21cn.com

高。我们在过去的工作中曾使用自准直法测量对 KTP^[4], Nd: YAP^[5], Mg: LiNbO₃^[6], Mg: Ti: LiNbO₃^[7], Nb: KTP^[8], Nd: YVO₄^[9] 等晶体的折射率和折射率温度系数进行了研究,表明这种方法的测量精度可控制在 $\pm 2.0 \times 10^{-4}$ 以内,为本次晶体的测量打下了基础。本文是在同样的方法下,使用水热法生长的绿宝石晶体,电子探针分析晶体中 Cr³⁺ 的浓度为 1.01 at.-%, 分别在不同的高稳定性的单色波长和不同的温度下进行了主折射率的精确测量,计算了晶体的 Sellmeier 方程系数,通过对晶体的折射率与温度的线性拟合,得出不同波长下主折射率温度系数。

2 测量方法

为了测定该晶体的二个主折射率,选用晶形较完整的水热绿宝石晶体的优质部分进行了精确定向,加工成了一个直角棱镜。棱镜的长直角边为光轴方向,长度为 10.18 mm,短直角边和斜面长度分别为 2.80 mm, 10.56 mm,棱镜的宽度为 9 mm,如图 1 所示。棱镜的斜面和大直角面抛光,平面度优于 7',直角面真空蒸镀铝膜。高稳定性的单色平行光以最小偏向角 ψ 射向利特罗(Littrow)棱镜的斜面,折入棱镜中并在镀了铝膜的面反射后即以原光路返回。可按(1)式得到待测的折射率。对于入射的单色光可从棱镜对 n_e 和 n_o 得到二个自准直位置,从而得到二个主折射率的值

$$n_i = \sin\psi / \sin\phi, \quad i = e \text{ 或 } o \quad (1)$$

表 1 不同温度和波长下的绿宝石晶体的主折射率值测量

Table 1 Principal refractive indices of emerald crystal at different wavelengths and temperatures

Principal indices	Temperature /K	Wavelength 0.4880 μm	Wavelength 0.53975 μm	Wavelength 1.0795 μm	Wavelength 1.3414 μm
n_o	308.2	1.58248	1.57849	1.56616	1.55913
	328.6	1.58269	1.57891	1.56623	1.55993
	359.1	1.58289	1.57928	1.56632	1.56062
	395.4	1.58306	1.57952	1.56645	1.56127
n_e	308.2	1.57712	1.57366	1.56159	1.55489
	328.6	1.57741	1.57376	1.56175	1.55521
	359.1	1.57773	1.57398	1.56197	1.55584
	395.4	1.57789	1.57417	1.56223	1.55642

根据 N. P. Barnes 和 M. S. Piltch 的论述与温度有关的 Sellmeier's 方程参数^[10],通常有以下形式

$$X(T) = a + bT \quad (2)$$

式中 n_i 为晶体某一主折射率, ϕ 为利特罗棱镜顶角。

测量装置由单色光源(0.488 μm Ar 激光、高稳定 1.0795 μm 和 1.3414 μm TEM₀₀ 模 Nd: YAlO₃ 连续激光以及 1.0795 μm 倍频的 0.5398 μm 激光), 32 J 测角仪(0.5") 和接收系统(接收屏或变像管)组成,待测样品放在自制的恒温炉中,并将炉子放在测角仪旋转平台的中央,炉子温度用宇光 AI-708P 型精密温度自动控制仪控温与测温,使用冰点补偿,控温精度为 0.2°C 以下。

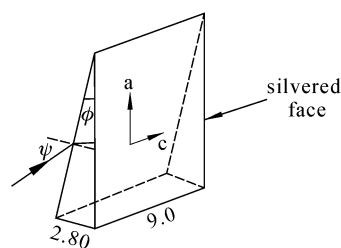


图 1 用于折射率测量的绿宝石利特罗棱镜

Fig. 1 Littrow prism used to measure principal refractive indices and their thermal coefficients

3 测量结果与计算

利用上述 4 种稳定激光波长在 4 种温度下分别测量了绿宝石晶体的主折射率 n_o 和 n_e , 结果如表 1 所示。根据表 1 中的数据通过下列公式

$$N_i^2 = A_i + \frac{B_i}{\lambda^2 - C_i} - D_i \lambda^2, \quad i = e, o \quad (1)$$

求解,得出 Sellmeier 方程在不同温度和不同波长下的 A_i, B_i, C_i, D_i 4 个参数值,如表 2 所示。

或
$$X(T) = a + bT^2 \quad (3)$$

式中, $X(T)$ 为 Sellmeier's 方程参数, T 为以 K 为单位的绝对温度, a, b 为常数。使用表 2 中各温度

下的 Sellmeier's 方程参数分别通过(2)式和(3)式利用最小二乘法进行线性拟合,结果显示,使用(2)式拟合的相关系数均在 0.98 以上,使用(3)式拟合的相关系数均在 0.92 以下,从而证明了 Sellmeier's 方程参数与温度成线性关系的合理性。根据(1)式

和表 2 数据反过来计算不同温度和波长下的主折射率值如表 3 所示,从表 1 和表 3 的结果对比可以看出,测量的和计算的主折射率最大误差为 1.09×10^{-4} 。由此也更进一步说明表 1 所列出的测量数据是可信的。

表 2 在 308~395 K 之间的 Sellmeier 方程系数

Table 2 Constants of Sellmeier equation in the temperature range 308~395 K

Temperature	A_o	$B_o \times 10^{-3}$	C_o	$D_o \times 10^{-2}$	A_e	$B_e \times 10^{-3}$	C_e	$D_e \times 10^{-2}$
308.2 K	2.49139	1.04505	0.18824	3.39885	2.47469	1.29848	0.17408	3.21267
328.6 K	2.48560	2.16943	0.15595	2.97549	2.47418	1.35593	0.17508	3.31081
359.1 K	2.48029	3.57308	0.12454	2.60615	2.47185	1.76458	0.16553	2.90635
395.4 K	2.47577	4.90922	0.10082	2.28380	2.47029	2.10464	0.15702	2.73070

表 3 不同温度和波长下计算的绿宝石晶体的主折射率值

Table 3 Calculated principal refractive indices of emerald crystal at different wavelengths and temperatures

Principal indices	Temperature /K	Wavelength 0.4880 μm	Wavelength 0.53975 μm	Wavelength 1.0795 μm	Wavelength 1.3414 μm
n_o	308.2	1.58252	1.57860	1.56617	1.55930
	328.6	1.58266	1.57883	1.56623	1.55978
	359.1	1.58286	1.57918	1.56633	1.56051
	395.4	1.58309	1.57960	1.56645	1.56138
n_e	308.2	1.57719	1.57366	1.56159	1.55489
	328.6	1.57737	1.57378	1.56174	1.55525
	359.1	1.57764	1.57396	1.56197	1.55579
	395.4	1.57795	1.57418	1.56223	1.55644

表 4 绿宝石晶体的折射率温度系数

Table 4 Thermal refractive-index coefficients of emerald crystal

Wavelength	0.4880 μm	0.53975 μm	1.0795 μm	1.3414 μm
$\Delta n_o / \Delta T (\times 10^{-5})$	0.65	1.15	0.32	2.38
$\Delta n_e / \Delta T (\times 10^{-5})$	0.88	0.96	0.73	1.79

由上面的分析结果和表 1 的数值,通过最小二乘法线性拟合得到绿宝石晶体的主折射率温度系数如表 4 所示。随着波长的增大,主折射率温度系数增大,但在 1079.5 nm 处出现异常,可能是由于测量的误差在最小二乘法线性拟合过程中得到了放大。

此外,通过表 2 中的数据得到的 Sellmeier's 方程进行双折射率的线性拟合,如图 2 所示,在短波区色散较大,而随着波长的增大双折射率逐渐减小,表明该晶体的各向异性特点较明显,这与我们对该晶体的偏振吸收谱的测定结果是一致的。

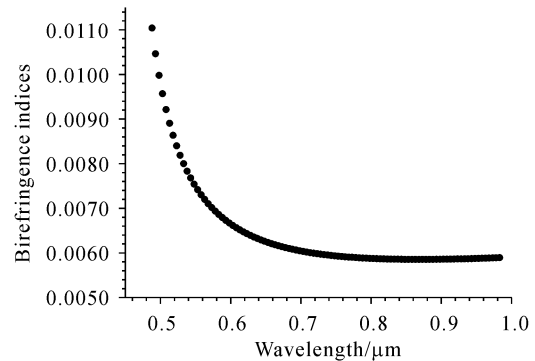


图 2 在不同波长下绿宝石晶体的双折射率的变化
Fig. 2 Birefringence variation under different wavelength

4 讨 论

用上述方法进行了多个激光晶体和非线性光学晶体的折射率的测定工作,结果和世界上公认的多种晶体的主折射率和主折射率温度系数值是一致的。为了考察对绿宝石晶体的测量精度,按照文献[6]的误差分析方法,测量误差主要来自于测角仪、棱镜的加工精度、晶体的均匀性和温度控制精度等方面,通过计算总的误差 δn 在 $\pm 1.82 \times 10^{-4}$ 之间,落在测量精度范围之内。

为了更进一步验证测量结果的准确性,使用上述测量结果得到的 Sellmeier 方程式计算了 589.3 nm 波长的主折射率值,并与文献[11]报道的作为宝石晶体在 Duplex II 型折射率测量仪下(589.3 nm 波长钠光源和 20°C 温度下)的测量结果比较,表 5 所示,两者在要求的测量精度范围内是一致的。

表 5 通过 Sellmeier 方程的计算值和文献[11]报道的测量值对比

Table 5 Comparison between calculation value and measured value

Refractive indices	Calculation value from Sellmeier's equation	Measured value from Ref. [11]
n_o	1.57806	1.578
n_e	1.57295	1.573

参 考 文 献

- 1 S. A. Payne, L. L. Chase, L. K. Smith *et al.*. Laser performance of $\text{LiSrAlF}_6:\text{Cr}^{3+}$ [J]. *J. Appl. Phys.*, 1989, **66**(3):1051~1056
- 2 S. T. Lai. Highly efficient emerald laser [J]. *J. Opt. Soc. Am. B*, 1987, **4**(8):1286~1290
- 3 V. V. Antsiferov. Free-running emerald laser [J]. *Technical Physics*, 2000, **45**(8):1085~1087
- 4 H. Liao, H. Y. Shen, Z. D. Zeng *et al.*. Accurate values of the index of refraction and optimum phase match parameters in a flux grown KTiOPO_4 crystal [J]. *Opt. and Laser Technol.*, 1988, **20**(2):103~104
- 5 Z. D. Zeng, H. Y. Shen, M. L. Huang *et al.*. Measurement of the refractive indices and thermal refractive index coefficients of $\text{Nd}:\text{YAP}$ crystal [J]. *Appl. Opt.*, 1990, **29**(9):1281~1286
- 6 H. Y. Shen, H. Xu, Z. D. Zeng *et al.*. Measurement of refractive indices and thermal refractive index coefficients of LiNbO_3 crystal doped with 5 mol.-% MgO [J]. *Appl. Opt.*, 1992, **31**(31):6695~6697
- 7 Z. D. Zeng, H. Y. Shen, C. H. Huang *et al.*. Measurement of the refractive indices and thermal refractive index coefficients of the $\text{Ti}:\text{Mg}:\text{LiNbO}_3$ crystal [J]. *J. Opt. Soc. Am. B*, 1993, **10**(3):551~553
- 8 D. Y. Zhang, H. Y. Shen, W. Liu *et al.*. The principal refractive indices and nonlinear optical phase matched properties of $\text{Nb}:\text{KTP}$ crystals [J]. *Opt. Mat.*, 2000, **15**:99~102
- 9 Shi Hongsheng, Zhang Ge, Shen Hongyuan. Measurement of principal refractive indices and thermal refractive index coefficients of yttrium vanadate [J]. *J. Synth. Cryst.* (人工晶体学报), 2001, **30**(1):85~88 (in Chinese)
- 10 N. P. Barnes, M. S. Piltch. Temperature-dependent Sellmeier coefficients and coherence length for cadmium telluride [J]. *J. Opt. Soc. Am.*, 1977, **67**(5):628~629
- 11 Z. Q. Chen, J. L. Zeng, K. Q. Cai *et al.*. Characterization of Chinese new hydrothermally grown emerald [J]. *Austr. Gem.*, 2001, **20**(1):45~48