

# 铌酸锂晶体 75°C 附近反常性能的倍频研究

朱劲松 杨向红\* 瞿亚\* 王业宁

(南京大学固体物理研究所)

## 提 要

用声光调 Q-Nd<sup>3+</sup>:YAG 激光器的输出作为基波光, 测量了 LiNbO<sub>3</sub> 晶体中的倍频光强随温度变化的曲线, 得到热致 Maker 条纹。利用相干长度的变化研究了 LiNbO<sub>3</sub> 晶体在 75°C 附近出现的异常现象。实验结果表明: 相干长度在 75°C 附近出现反常加宽。我们对此异常现象进行了分析, 认为它是与 LiNbO<sub>3</sub> 晶体中某些离子位移而引起的折射率反常变化有关。

LiNbO<sub>3</sub> 晶体已被广泛应用于激光倍频、混频、Q 开关等单元技术上。对其性能的研究是有重要意义的。我们曾用正交偏光干涉、超声衰减、穆斯堡尔谱等方法对其性能进行了研究<sup>[1]</sup>。发现在 75°C 附近出现一系列异常现象如在此温度附近双折射率突变, 超声衰减出现峰值等现象。初步认为这些反常现象与相变有关。为了进一步证实此现象, 寻求其根源, 本文用倍频的方法进行了研究并报道了研究结果。

## 一、原理与装置

### 1. 原理

由非线性光学理论可知, 当基波光 ( $I_{\omega}$ ) 入射到晶体上时, 由于非线性作用产生二次谐波光强为

$$I_{2\omega} \propto (I_{\omega})^2 d^2 l^2 \left( \sin \frac{\Delta K l}{2} / \frac{\Delta K l}{2} \right)^2, \quad (1)$$

式中  $d$  为非线性系数,  $l$  为样品通光长度,  $\Delta K = K^{2\omega} - 2K^{\omega} = \frac{4\pi}{\lambda_1} (n^{2\omega} - n^{\omega})$ ,  $K^{2\omega}$ ,  $K^{\omega}$  为倍频光与基波光的波矢,  $n^{2\omega}$ ,  $n^{\omega}$  为其折射率。当  $\Delta K = 0$  时, 称为位相匹配, 此时  $I_{2\omega} \propto (I_{\omega})^2 d^2 l^2$  达最大值。在  $\Delta K \neq 0$ , 即失配时, 若使  $\frac{\Delta K l}{2}$  值连续变化, 即可得到倍频光强的明暗相间周期变化的 Maker 条纹。倘若这是通过改变晶体的温度实现的, 称为热致 Maker 条纹。若是通过改变基波光的入射角  $\theta$  而实现的称为角度 Maker 条纹。

由上述可知倍频光强与非线性系数及折射率有关。Maker 条纹的形成也与折射率有关, 因而在发生相变时所引起的结构及性能变化将会对倍频光强或 Maker 条纹的形状有所影响, 我们可以通过倍频的研究得到有关晶体相变的信息。

### 2. 实验装置

本实验所用装置与文献[2]相同, 声光调 Q-Nd<sup>3+</sup>:YAG 激光器输出的准连续 1.06 μm

收稿日期: 1983年11月16日; 收到修改稿日期: 1984年5月15日

\* 南京大学物理系 1982 年毕业生。

激光, 峰功率千瓦级、重复频率为 4.5 kHz。基波光一部分经分光后用于基波功率监视, 与倍频光同步记录于 X-Y 记录仪上。倍频光经棱镜分光后进入光电倍增管经锁定放大器放大后在 X-Y 记录仪上记录。样品炉温由 DWT-702 精密温度控制仪控制, 由线性电压发生器控制所需速率升、降温度。温度信号经热偶测量、记录于 X 笔。仪器工作后将全自动的在 X-Y 记录仪上得到倍频光强与温度关系曲线。

用了三块  $\text{LiNbO}_3$  晶体, 其中一块的  $x$  方向通光长度  $L_x = 8.080 \text{ mm}$ 。  $y$  方向通光长度  $L_y = 8.000 \text{ mm}$ 。升温速率为  $0.2^\circ\text{C}/\text{min}$ 。测试温度范围  $65^\circ\text{C} \sim 85^\circ\text{C}$ 。

## 二、实验结果与分析

$\text{LiNbO}_3$  属  $3m$  点群, 在  $65^\circ\text{C} \sim 85^\circ\text{C}$  范围内分别从  $x$  方向及  $y$  方向通光时, 得到了热致 Maker 条纹。图 1 所示为倍频光强及相应的基波光强与温度关系(即热致 Maker 条纹)。从图中我们可看出在  $75^\circ\text{C}$  附近相邻两倍频光强极小值所对应的温度间隔  $\Delta T$  变宽(这一结果在所做的几块晶体中均出现), 对此结果我们作如下分析:

a) Maker 条纹相邻极小值之间间隔  $\Delta T$  与温度的关系: (由非线性光学理论可知,  $\Delta T$  是与该倍频过程的相干长度直接有关的)。

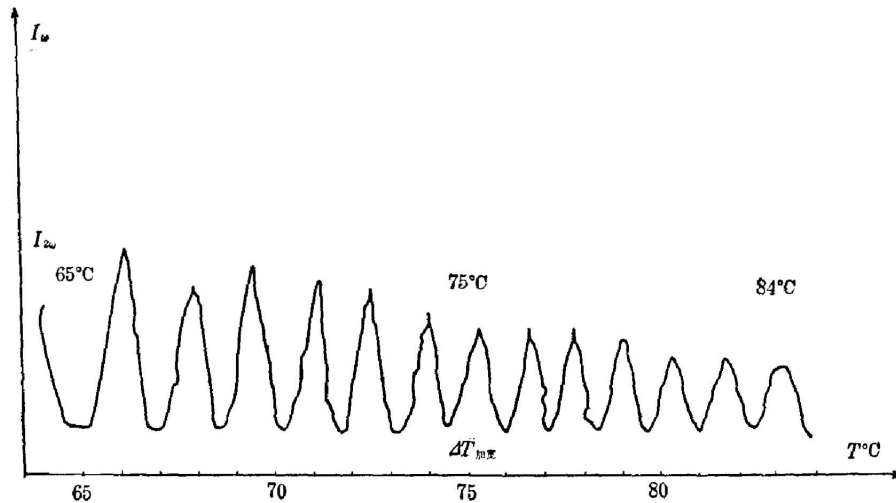


图 1  $\text{LiNbO}_3$  晶体  $I_{2\omega}$ 、 $I_{\omega} \sim$  温度曲线

Fig. 1  $I_{2\omega}$ ,  $I_{\omega}$  vs  $T$  in  $\text{LiNbO}_3$  crystal

设两相邻倍频光强极小值所对应的温度分别为  $T_1$ ,  $T_2$ ,  $\Delta T = T_2 - T_1$ 。为两极小值之间间隔, 当温度为  $T_1$  时  $\frac{\Delta K(T_1)l}{2} = n\pi$ ;  $T_2$  时  $\frac{\Delta K(T_2)l}{2} = (n+1)\pi$ ; 两式相减得

$$\frac{l}{2} [\Delta K(T_2) - \Delta K(T_1)] = \pi. \quad (2)$$

可写为:  $\frac{l}{2} \frac{d(\Delta K)}{dT} (T_2 - T_1) = \frac{l}{2} \frac{d(\Delta K)}{dT} \Delta T = \frac{l}{2} \frac{4\pi}{\lambda_1} \frac{d(n^{2\omega} - n^{\omega})}{dT} \Delta T = \pi$ , 得

$$\Delta T = \lambda_1 / 2l \frac{d(n^{2\omega} - n^{\omega})}{dT} = \lambda_1 / 2l \left( \frac{dn^{2\omega}}{dT} - \frac{dn^{\omega}}{dT} \right).$$

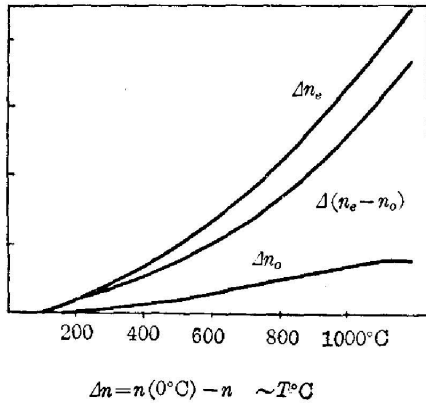


图2 LiNbO<sub>3</sub> 晶体  $\Delta n[n(0^\circ\text{C}) - n] \sim$   
温度曲线

Fig. 2  $\Delta n[n(0^\circ\text{C}) - n] \sim T$  in  
LiNbO<sub>3</sub> crystal

我们知道在 LiNbO<sub>3</sub> 晶体倍频产生过程中, 起主导作用的是基波光中的 *o* 光和倍频光中的 *e* 光(即是  $(o+o \rightarrow e)$ ), 这种匹配方式的相干长度(即在非位相匹配时能产生相长的倍频光的晶体最大长度)最长(它比其它匹配方式大一个数量级)。另外, 根据 Miller<sup>[5]</sup> 得到的  $n_e$  和  $n_o$  随温度变化的曲线(图 2)。

可知  $\frac{dn_o}{dT}$  随温度变化缓慢, 而  $\frac{dn_e}{dT}$  随温度上升逐渐变大。即  $\frac{dn_e}{dT} \propto T$ , 所以 LiNbO<sub>3</sub> 晶体的 Maker 条纹间隔  $\Delta T = \lambda_1 / 2l \left( \frac{dn_e^{2\omega}}{dT} - \frac{dn_o^\omega}{dT} \right)$  随温度升高将越来越小, 这是正常的变化。

b) Maker 条纹在 75°C 附近异常与分析

在 75°C 附近, 出现了条纹间隔  $\Delta T_{75^\circ\text{C}}$  加宽的现象如表 1、表 2 所示。

表 1 *x* 方向通光时,  $\Delta T$  值

Table 1  $\Delta T$  value light propagating along *x* axis

<i>T</i> °C	68.4	70.4	71.9	73.1	74.2	75.2	76.5	77.7	78.7	79.7	80.9	81	82.1
$\Delta T$	1.7	1.5	1.2	1.1	1.0	1.3	1.2	1.0	1.0	1.2	1.1	1.1	1.1

表 2 *y* 方向通光时,  $\Delta T$  值

Table 2  $\Delta T$  value light propagating along *y* axis

<i>T</i> °C	65.9	67.6	69.0	70.4	71.5	72.6	73.6	74.6	75.9	77.0	78.5	79.6	80.5
$\Delta T$	1.7	1.4	1.4	1.1	1.1	1.0	1.0	1.3	1.1	1.5	1.1	1.1	0.9

下面分析 75°C 附近  $\Delta T$  加宽的原因: 设根据图中得出 75°C 近邻某一极小值出现在  $T_1$  温度, 而相邻的另一极小值出现在温度  $T_2$ (如按正常变化时此极小值应出现在  $T'_2$ , 由于  $\Delta T$  加宽故  $\Delta T_{\text{加宽}} = T_2 - T_1 > \Delta T'_{\text{正常}} = T'_2 - T_1$ )。按正常变化有:  $\Delta T'_{\text{正常}} = T'_2 - T_1$  即:

$$\begin{cases} \frac{l}{2} \frac{4\pi}{\lambda_1} (n^{2\omega} - n^\omega)_{T_1} = n\pi, \\ \frac{l}{2} \frac{4\pi}{\lambda_1} (n^{2\omega} - n^\omega)_{T'_2} = (n+1)\pi. \end{cases}$$

但实验所得有反常加宽为:  $\Delta T_{\text{加宽}} = T_2 - T_1$  即

$$\begin{cases} \frac{l}{2} \frac{4\pi}{\lambda_1} (n^{2\omega} - n^\omega)_{T_1} = n\pi, \\ \frac{l}{2} \frac{4\pi}{\lambda_1} (n^{2\omega} - n^\omega)_{T_2} = (n+1)\pi. \end{cases}$$

且  $T_2 > T'_2$ , 说明在  $T_1$  与  $T_2$  之间某处  $n^{2\omega} - n^\omega$  突然变小, 使得  $\frac{l}{2} \frac{4\pi}{\lambda_1} (n^{2\omega} - n^\omega)_{T_1} < (n+1)\pi$ , 只有温度继续上升到  $T_2$  时才有  $\frac{l}{2} \frac{4\pi}{\lambda_1} (n^{2\omega} - n^\omega)_{T_2} = (n+1)\pi$ 。因此条纹间隔在 75°C 附近变宽 ( $\Delta T$  变大), 是由于在此温度附近 ( $n^{2\omega} - n^\omega$ ) 的反常变化所引起。近来, 我们实验室对 LiNbO<sub>3</sub> 晶体的折射率与温度的关系进行了测量<sup>[6]</sup>, 得出  $n_o \sim T$ ,  $n_e \sim T$  的曲线, 发现  $\frac{\partial n_o}{\partial T}$ 、 $\frac{\partial n_e}{\partial T}$  的变化总趋势与 Miller 的结果类似, 即随温度增加  $\frac{\partial n_e}{\partial T} - \frac{\partial n_o}{\partial T}$  数值越来越大。但值得注意的是: 在 75°C 附近, 可看到  $\frac{\partial n_e}{\partial T}$  与  $\frac{\partial n_o}{\partial T}$  的反常变化。前者变小, 后者变大。因而使  $(\frac{\partial n_e}{\partial T} - \frac{\partial n_o}{\partial T})$  值变小 (造成了  $\Delta T$  值变大) 与前面的分析相符很好。这些反常变化, 我们认为这是由于晶体中某些离子位移所引起。目前正用 X 光等手段作进一步的研究, 试图得出有关晶体结构变化的更详细的信息。

c) 当基波光分别从  $x$  及  $y$  方向入射时, 在 75°C 附近均观察到条纹间隔加宽的现象, 但  $y$  方向通光时条纹间隔加宽较  $x$  方向通光时的加宽明显。即在出现异常时  $\Delta(n_z^{2\omega} - n_x^\omega) \neq \Delta(n_z^{2\omega} - n_y^\omega)$ , 也即  $\Delta n_x \neq \Delta n_y$ 。由此可知在反常温度出现以前, 由于 LiNbO<sub>3</sub> 晶体是属单轴晶  $n_x = n_y$ 。出现反常时  $n_x \neq n_y$ , 折射率椭球由旋转椭球变成了一般椭球。晶体也由单轴晶变成了双轴晶。这与我们实验室用锥光干涉图所得结果相一致。(等位差干涉环已由圆变成椭圆, 消光线变为双曲线)<sup>[4]</sup>。

d) 估计一下 75°C 附近  $n_x - n_y$  值

当  $x$  方向通光时, 设条纹的加宽开始及结束温度分别为  $T_1^x$  与  $T_2^x$ , 则据 (2) 式有下述表式:

$$\frac{l_x}{2} \frac{4\pi}{\lambda_1} \{ [n_z^{2\omega}(T_2^x) - n_y^\omega(T_2^x)] - [n_z^{2\omega}(T_1^x) - n_y^\omega(T_1^x)] \} = \pi,$$

即:

$$\frac{l_x}{2} \frac{4\pi}{\lambda_1} \left[ \frac{d(n_z^{2\omega} - n_y^\omega)}{dT} (T_2^x - T_1^x) + \Delta(n_z^{2\omega} - n_y^\omega)_{T_c} \right] = \pi, \quad (3)$$

上式中第一项为不存在反常时, 在 75°C 附近的  $(n_z^{2\omega} - n_y^\omega)$  随温度的正常变化, 第二项为反常引起的  $(n_z^{2\omega} - n_y^\omega)$  的附加变化。  $l_x$  为通光长度、 $\lambda_1$  为基波长、 $T_c$  为反常温度。同理,  $y$  方向通光时可得:

$$\frac{l_y}{2} \frac{4\pi}{\lambda_1} \left[ \frac{d(n_z^{2\omega} - n_x^\omega)}{dT} (T_2^y - T_1^y) + \Delta(n_z^{2\omega} - n_x^\omega)_{T_c} \right] = \pi, \quad (4)$$

由 (4)、(3) 式得:

$$\Delta(n_x^\omega - n_y^\omega)_{T_c} = \frac{d(n_z^{2\omega} - n_x^\omega)}{dT} (T_2^y - T_1^y) - \frac{d(n_z^{2\omega} - n_y^\omega)}{dT} (T_2^x - T_1^x) + \frac{\lambda_1}{2} \left( \frac{1}{l_x} - \frac{1}{l_y} \right), \quad (5)$$

(5) 式中  $\frac{d(n_z^{2\omega} - n^\omega)}{dT}$  由下面给出:

$$\frac{l}{2} \frac{4\pi}{\lambda_1} \{ [n^{2\omega}(T_2) - n^\omega(T_2)] - [n^{2\omega}(T_1) - n^\omega(T_1)] \} = \pi,$$

即:  $\frac{l}{2} \frac{4\pi}{\lambda_1} \frac{d(n^{2\omega} - n^\omega)}{dT} (T_2 - T_1) = \pi$ , 得

$$\frac{d(n^{2\omega} - n^\omega)}{dT} = \frac{\lambda_1}{2l(T_2 - T_1)} = \frac{\lambda_1}{2l\Delta T}, \quad (6)$$

取  $\Delta T$  为异常加宽条纹相邻的两条纹宽度(正常宽度)的平均值, 由(6)式求出  $\frac{d(n^{2\omega} - n^\omega)}{dT}$  值, 即为不考虑反常时的  $n^{2\omega} - n^\omega$  随温度的正常变化率。由(4)及(6)式将实验得到的  $\Delta T'$  (正常),  $\Delta T'_{\text{反常}}$  (反常)的值及  $l_x, l_y, \lambda_1$  等数值代入, 可得  $\Delta(n_x^\omega - n_y^\omega) \sim 10^{-5}$ 。该数值可与用其它方法(双折射率、折射率测量)所得结果, 相互比较。估计出  $T_c$  时  $n_x$  与  $n_y$  变化的差值。综上所述, 利用倍频光强随温度变化的关系来研究晶体的相变所引起的反常现象是一种有效的手段, 它可以为我们提供有关相变的信息。

杨震同志参加部分实验工作。许自然、沈惠敏同志提供了他们部分研究结果。在此表示感谢。

### 参 考 文 献

- [1] 许自然, 王业宁等;《科学通报》, 1980, **25**, 536.  
谈云鹏, 王业宁;《科学通报》, 1982, **27**, 77.  
夏元复, 王业宁等;《科学通报》, 1983, **28**, 527.
- [2] 朱劲松, 王业宁;《物理》, 1981, **10**, 739.
- [3] Miller *et al.*; *Appl. Phys. Lett.*, 1966, **9**, 169.
- [4] 许自然, 王业宁等;《物理学报》, 待发表。

## SHG study for anomalous properties of LiNbO<sub>3</sub> crystal near 75°C

ZHU JINSONG AND YANG XIANHONG

(Institute of Solid State Physics, Nanjing University)

(Received 16 November 1983; revised 15 May 1984)

### Abstract

The intensity of SHG vs temperature scanning curve of LiNbO<sub>3</sub> crystal have been measured with an acoustic-optical Q-switch Nd<sup>3+</sup>:YAG laser. The change of coherence length of Maker finger was used to research the anomalous properties of LiNbO<sub>3</sub> crystal. Experiment result showed the coherence length broadening anomalously near 75°C.

This anomalous phenomena may be attributed to the anomalous variety of refraction index owing to some ions movement in crystal near 75°C.