

高掺镁铌酸锂晶体的主折射率及其 温度系数的测量

徐 浩* 曾政东 林文雄 沈鸿元

(中国科学院福建物质结构研究所, 福州 350002)

徐 观 峰

(西南技术物理研究所, 成都 610015)

提 要

本文报道掺 5 mol% MgO 的铌酸锂 (LiNbO_3) 晶体的主折射率 n_o 、 n_e 及其温度系数。用自准直法在 $0.5398 \mu\text{m}$ 、 $0.6328 \mu\text{m}$ 、 $1.0795 \mu\text{m}$ 和 $1.3414 \mu\text{m}$ 波长上, 并在 $20^\circ\text{C} \sim 160^\circ\text{C}$ 温度范围内, 测量了该晶体的主折射率, 并获得在这些波长上的折射率温度系数。修正的 Sellmeier 方程的常数也在 $20^\circ\text{C} \sim 160^\circ\text{C}$ 温度内推算出。用此结果计算室温的二次谐波 I 类临界相位匹配角与实验值符合得很好, 又计算二次谐波的非临界相位匹配温度, 其结果也与实验值较符合。

关键词 镁铌酸锂晶体, 折射率, 测量。

1 引 言

铌酸锂晶体是一种较好的非线性光学材料, 由于光致折射率变化效应及不可逆光损伤阈值的限制, 影响了该晶体的非线性应用, 为此我国提出高掺镁以解决上述问题的方案, 西南技术物理研究所已成功地生长出光学均匀性良好, 尺寸较大, 对 $0.4 \mu\text{m} \sim 4 \mu\text{m}$ 透明的高掺镁 LiNbO_3 晶体, 并发现掺 5 mol% MgO 的 LiNbO_3 晶体退光折变温度为 130°C , 比以往报道的 LiNbO_3 晶体退光折变温度为 180°C 以上, 降低了 $50^\circ\text{C}^{[1\sim 3]}$, 从而较好地解决了该种晶体的光折变问题。且掺 5 mol% MgO 的 LiNbO_3 晶体对于 $1.06 \mu\text{m}$ 倍频的临界相位匹配能在室温时实现, 由于这些优点, 掺 5 mol% MgO 的 LiNbO_3 晶体在光倍频及参量振荡方面具有广泛的运用前景。因此精密测量该晶体的主折射率 n_o 、 n_e 及上述二个主折射率随温度 T 的变化关系是很有意义的**。

2 测 量 方 法

掺 5 mol% MgO 的 LiNbO_3 晶体的空间群是 $R3C(C_{3v}^6)$, 光学上是负单轴晶体, 其三重旋转轴平行于晶体的 c 轴, 按照纽曼(Neumann)原则, 它的折射率椭球是一个以 c 轴(光轴)为回旋轴的旋转椭球面; 在居里温度以下, c 轴的方向是不随温度波长而变的, 因此将高

收稿日期: 1991年8月16日; 收到修改稿日期: 1991年10月14日

* 现在福州大学物理系工作, 福州 350000。

** 而固溶同成分共熔点组分 LiNbO_3 晶体, 需在室温以下才能实现角度匹配^[2,3]。

掺镁 LiNbO_3 晶体制成如图 1 所示的 Littrow 棱镜, 并让 c 轴在镀铝面内, 棱镜的折射面 $15 \times 10 \text{ mm}^2$, 镀铝面 $14 \times 10 \text{ mm}^2$, 因主折射率最大值在 2.3 左右, 全反射临界角为 25.6° , 所以顶角为 $\xi \approx 20^\circ$ 是恰当的. 当平行单色光向自准直棱镜以 χ 角入射, 折入棱镜并在镀铝面反射, 若沿原光路返回, 就相当于调节到最小偏向角, 有

$$n = \sin \chi / \sin \xi. \quad (1)$$

Fig. 1 Littrow prism

对应于一种单色光, 可从自准直状态得到光的 D 矢量振动垂直于光轴的主折射率 n_o 和 D 矢量的振动平行于光轴的 n_e .

测量装置由单色光源 ($0.6328 \mu\text{m}$ 的 He-Ne 激光, 高稳定度连续的 $1.0795 \mu\text{m}$ 、 $1.3414 \mu\text{m}$ TEM₀₀ 模 Nd:YAP 激光, 及 $1.0795 \mu\text{m}$ 倍频的 $0.53975 \mu\text{m}$ 激光), 自准直读数装置和样品旋转平台 (32J 、 $0.5''$ 级测角仪), 和接收系统 (接收屏或变象管) 组成, 将待测样品放在自制的恒温炉中, 并把炉放在测角仪旋转平台的中间, 炉子的温度用 DWT-702 型精密温度自动控制仪控温, 控温精度为 $\pm 1^\circ\text{C}$, 详见参考文献 [4~6].

3 结果与讨论

经多次仔细地测量, 得到表 1 所示的 20°C 、 74.5°C 、 116°C 、 154.5°C 四个温度时, 掺 $5 \text{ mol}\%$ MgO 的 LiNbO_3 晶体在波长 $0.53975 \mu\text{m}$ 、 $0.6328 \mu\text{m}$ 、 $1.0795 \mu\text{m}$ 、 $1.3414 \mu\text{m}$ 处的主折射率 n_o 、 n_e .

Table 1 Principal refractive indices of LiNbO_3 crystal doped with 5 mole% MgO

		20°C	74.5°C	116°C	154.5°C
$0.53975 \mu\text{m}$	n_o	2.3120	2.3129	2.3137	2.3142
	n_e	2.2194	2.2230	2.2261	2.2292
$0.6328 \mu\text{m}$	n_o	2.2792	2.2798	2.2804	2.2808
	n_e	2.1916	2.1950	2.1978	2.2003
$1.0795 \mu\text{m}$	n_o	2.2251	2.2254	2.2256	2.2257
	n_e	2.1454	2.1481	2.1504	2.1527
$1.3414 \mu\text{m}$	n_o	2.2126	2.2130	2.2132	2.2134
	n_e	2.1349	2.1376	2.1398	2.1420

表 1 的误差估计, 当置信水平为 95%, $\delta n_{\text{B}} \leq \pm 1 \times 10^{-4}$. 在此温度范围内, 考究主折射率与温度的关系, 用最小二乘法作一元线性回归, 计算相关系数 r , r 都趋近于 1, 证明把主折射率与温度的关系视为线性关系是合理的, 所以折射率温度系数等于 $\Delta n / \Delta T$, 从表 1 可见, n_o 随温度 T 的变化比 n_e 随温度 T 的变化小 4~10 倍, $1.0795 \mu\text{m}$ 、 $1.3414 \mu\text{m}$ 的 n_o 在 $\Delta T = 134.5^\circ\text{C}$ 范围内 Δn_o 是 $6 \sim 8 \times 10^{-4}$ 的量级, $0.53975 \mu\text{m}$ 、 $0.6328 \mu\text{m}$ 的 n_e 在 $\Delta T = 134.5^\circ\text{C}$ 范围内是 $8 \sim 9 \times 10^{-3}$ 的量级, 由于仪器精度的限制, $\delta n_{\text{B}} \leq \pm 1 \times 10^{-4}$, 温度控制的误差也在 $\pm 1^\circ\text{C}$, 根据误差传递定律, 折射率温度系数的误差有

$$\delta\left(\frac{\Delta n}{\Delta T}\right) = \left[2\left(\frac{\delta n}{\Delta T}\right)^2 + 2\left(\frac{\Delta n}{\Delta T^2} \delta T\right)^2\right]^{1/2}. \quad (2)$$

因此以 154.5°C 与 20°C 的主折射率的差与 $\Delta T = 134.5^\circ\text{C}$ 之比作为折射率温度系数, 以减少 $\delta(\Delta n/\Delta T)$. 以上述方法求出的折射率温度系数来求二次谐波非临界相位匹配温度, 还是能令人满意的. 折射率温度系数的数据列于表 2.

Table 2 Thermal coefficients of refractive index of LiNbO_3 crystal doped with 5 mole% MgO

	0.53975 μm	0.6328 μm	1.0795 μm	1.3414 μm
$\Delta n_o/\Delta T$	1.6×10^{-5}	1.2×10^{-5}	0.4×10^{-5}	0.6×10^{-5}
$\Delta n_e/\Delta T$	7.3×10^{-5}	6.5×10^{-5}	5.4×10^{-5}	5.3×10^{-5}

该晶体的折射率色散的 Sellmeier 方程取以下形式

$$n_i^2 = A_i + [B_i/(\lambda^2 - C_i)] - D_i\lambda^2, \quad (i = o \text{ 或 } e) \quad (3)$$

式中 A_i, B_i, C_i, D_i 均为常数, λ 是以 μm 为单位的光波长. 表 3 列出利用表 1 数据计算解得的四个温度下的 A_i, B_i, C_i, D_i 值.

Table 3 Constants of modified Sellmeier's equations in the range of $20^\circ\text{C} \sim 160^\circ\text{C}$

	A_o	B_o	C_o	D_o	A_e	B_e	C_e	D_e
20°C	4.88810	0.110312	0.0547884	0.0312103	4.54302	0.0951117	0.0465648	0.0217155
74.5°C	4.88909	0.108702	0.0612498	0.0301465	4.55258	0.0971915	0.0458041	0.0214950
116°C	4.88355	0.114031	0.0527038	0.0280968	4.56077	0.0990084	0.0440980	0.0213655
154.5°C	4.88164	0.115104	0.0523894	0.0268854	4.57071	0.0984924	0.0479860	0.0215288

由表 1 数据及 Sellmeier 方程, 根据负单轴晶体 I 类相位匹配角计算公式

$$\sin \theta_m = \frac{n_e(2\omega)}{n_o(\omega)} \left[\frac{n_o^2(2\omega) - n_o^2(\omega)}{n_o^2(2\omega) - n_e^2(2\omega)} \right]^{1/2}. \quad (4)$$

本文计算了在 20°C 时 1.0795 μm 倍频的相位匹配角为 75.08° , 1.3414 μm 倍频的相位匹配角是 54.00° , 而实验值分别为 75.30° 及 54.14° , 计算值与实验值符合得相当好, 这表明室温条件下测量的主折射率值是可靠精确的.

从表 1 可见, 该晶体 1.0795 μm 的 n_o 在 74.5°C 时是 2.2254, 116°C 时是 2.2256, 而 0.53975 μm 的 n_e 在 74.5°C 时是 2.2230, 在 116°C 时是 2.2261, 所以 1.0795 μm 的倍频非临界相位匹配温度必在 74.5°C 到 116°C 之间, 以 74.5°C 时 1.0795 μm 的 $n_o(\omega)$ 和 0.53975 μm 的 $n_e(2\omega)$ 为基准, 根据折射率温度系数, 有

$$\left. \begin{aligned} n_o(2\omega) + (\Delta n_o/\Delta T)_{2\omega} \Delta T &= n_o(\omega) + (\Delta n_o/\Delta T)_\omega \Delta T, \\ \Delta T &= \frac{n_o(\omega) - n_e(2\omega)}{(\Delta n_o/\Delta T)_{2\omega} - (\Delta n_o/\Delta T)_\omega} \end{aligned} \right\} \quad (5)$$

将表 1, 2 的有关数据代入, 得

$$\Delta T = 34.8^\circ, \quad T_{pm} = 74.5^\circ + \Delta T (^\circ\text{C}) = 109.3^\circ\text{C}.$$

若以 116°C 时的 $n_o(\omega)$, $n_e(2\omega)$ 为基准, 同样可计算得 $T_{pm} = 109^\circ\text{C}$. 经多次实验测量, 1.0795 μm 的非临界相位匹配温度 $T_{pm} = 115 \pm 2^\circ\text{C}$, 与计算值相差 6°C 左右.

Nelson 等在文献 [7] 中提到固液同成分共溶点 LiNbO_3 晶体的 $1.1523 \mu\text{m}$ 倍频 T_{pm} 计算值为 179°C 而实验值为 174°C 作者认为计算值是很好地符合于实验值. Boyd 等在文献 [8] 中报道关于掺 MgO 重量 0.5% 的 LiNbO_3 晶体, 对 $1.0648 \mu\text{m}$ 倍频非临界相位匹配温度计算值为 102°C , 实验值是 111°C ; 对 $1.08 \mu\text{m}$ 倍频非临界相位匹配温度计算值为 134°C , 实验值是 143°C . 作者认为计算值与实验值是相适合的. 所以本文 T_{pm} 计算值与实验值较好地符合, 这说明本文对高掺镁铌酸锂主折射率及折射率温度系数的测量计算是可靠的.

参 考 文 献

- [1] 范琦康, 吴存恺等. 非线性光学. 南京: 江苏科学技术出版社, 电子工业出版社, 1989: 75~81
- [2] 仲跻国, 徐观峰等. 物理学报, 1983, **32** (6): 795~798
- [3] 王延福, 张纯玉. 中国激光, 1983, **10** (4): 198~200
- [4] 徐浩, 黄小良等. 硅酸盐学报, 1987, **15** (3): 271~275
- [5] 曾政东, 沈鸿元等. 人工晶体学, 1987, **16** (3): 274~277
- [6] Zhendong Zeng, Hongyuan Shen *et al.*, *Appl. Opt.*, 1990, **29** (9): 1281~1286
- [7] D. F. Nelson, R. M. Mikulyak, *J. Appl. Phys.*, 1974, **45** (8): 3688~3689
- [8] G. D. Boyd, W. L. Bond *et al.*, *J. Appl. Phys.*, 1967, **38** (4): 1941~1943

Measurements of principal refractive indices and their thermal coefficients of LiNbO_3 crystal heavily doped with magnesium

XU HAO ZENG ZHENGDONG LIN WENXINOG SHEN HONHUAN

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

XU GUANFENG

(*Southwest Institute of Technical Physics, Chengdu 610015*)

(Received 16 August 1991; revised 14 October 1991)

Abstract

In this paper we report the principal refractive indices n_o , n_e and their thermal coefficients of LiNbO_3 crystal doped with 5 mol % MgO . The principal refractive indices of the crystal have been measured by selfcollimating method for the wavelengths of $0.5398 \mu\text{m}$, $0.6323 \mu\text{m}$, $1.0795 \mu\text{m}$ and $1.3414 \mu\text{m}$ in the temperature range of $20^\circ \sim 160^\circ\text{C}$. The thermal coefficients of the refractive index have been obtained at these wavelengths and constants of the modified Sellmeier's equations are also evaluated in the above mentioned temperature range. The results are used to calculate the type I critical phase matching angles for SHG at room temperature, and the values obtained are in good agreement with the experimental results. Similarly calculation of noncritical phase matching temperature for SHG gives a result which also agrees with the experimental result fairly well.

Key words MgO , LiNbO_3 crystal, refractive, measurements.