

YAl₃(BO₃)₄ 晶体折射率温度系数的测量

翟乃霞^{1,2} 刘丽娟^{1*} 陈创天¹

(¹ 中国科学院理化技术研究所北京人工晶体研究与发展中心, 中国科学院功能晶体与激光技术重点实验室, 北京 100190)
² 中国科学院大学, 北京 100049)

摘要 采用最小偏向角法在 40 °C ~ 160 °C 范围内分别测量了 0.194、0.254、0.404、1.53、2.325 μm 等 9 个波长下非线性光学晶体 YAl₃(BO₃)₄ (YAB) 的折射率, 通过最小二乘法拟合得到不同温度下折射率的 Sellmeier 方程及折射率温度系数随波长变化的函数表达式。在此基础上计算出 YAB 晶体 I 类相位匹配实现 266 nm 紫外光输出时的温度带宽为 6.9 °C·cm。实验与计算结果表明, YAB 晶体具有较好的热稳定性, 有利于实现高功率、高稳定性的 266 nm 激光输出。

关键词 非线性光学; 折射率温度系数; 最小偏向角法; YAl₃(BO₃)₄ 晶体

中图分类号 O437 文献标识码 A doi: 10.3788/AOS201333.0916001

Measurement of Thermal Refractive Index Coefficients of YAl₃(BO₃)₄ Crystal

Zhai Naixia^{1,2} Liu Lijuan¹ Chen Chuangtian¹

(¹ Key Laboratory of Functional Crystals and Laser Technology, Beijing Center for Crystal Research and Development, Technical Institute of Physics and Chemistry, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China
² University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

Abstract The refractive indices of nonlinear optical crystal YAl₃(BO₃)₄ (YAB) for nine wavelengths of 0.194, 0.254, 0.404, 1.53, 2.325 μm and so on under the temperature range from 40 °C to 160 °C are measured by the prism minimum deviation method. The Sellmeier equations at different temperatures and the relationship between the thermal coefficients of refractive index and the wavelength have been obtained by the least square method. The calculated acceptance temperature for type I phase-matching of YAB crystal for 266 nm ultraviolet light generation is 6.9 °C·cm based on the above equations. Both the experimental and theoretical values show that YAB crystal may be an ideal nonlinear optical crystal for 266 nm harmonic generation with high power and high stability because of its good thermal stability.

Key words nonlinear optics; thermal refractive index coefficients; prism minimum deviation method; YAl₃(BO₃)₄ crystal

OCIS codes 190.4400; 160.4330; 140.3515

1 引 言

YAl₃(BO₃)₄ (YAB) 晶体是一种相对较新的非线性光学材料, 在 1962 年由 Ballman 发现^[1]。由于晶体生长过程中晶格中的 Y³⁺ 离子容易被其他稀土离子取代, 在过去几十年里, YAB 晶体主要作为激

光基质材料和激光自倍频材料而受到广泛关注^[2-7]。在 2008 年, Rytz 等^[8]首次提出 YAB 可作为非线性光学晶体实现紫外区的频率转换。但由于生长出的晶体在紫外波段存在吸收, 限制了其在紫外倍频方面的应用^[9-11]。2012 年, Yu 等^[12]成功生

收稿日期: 2013-03-26; 收到修改稿日期: 2013-04-22

基金项目: 国家 973 计划(2010CB630701)、国家自然科学基金重点项目(51132008)

作者简介: 翟乃霞(1987—), 女, 博士研究生, 主要从事非线性光学频率变换方面的研究。E-mail: nxzhai@mail.ipc.ac.cn

导师简介: 陈创天(1937—), 男, 中国科学院院士, 主要从事无机非线性光学晶体材料方面的研究。

E-mail: cct@cl.cryo.ac.cn

* 通信联系人。E-mail: llj@mail.ipc.ac.cn

长出了较大尺寸且无紫外吸收的 YAB 晶体,精确测量了 YAB 晶体在常温下的折射率,理论计算了 YAB 晶体的倍频匹配特性,证明 YAB 晶体能够实现 Nd:YAG 激光器四倍频。与目前常用的四倍频晶体 BBO 和 CLBO 相比, YAB 具有较大的倍频接收角、较小的走离角、适中的有效非线性系数,物化性能很稳定,不易潮解,易于机械加工^[13],作为 Nd:YAG 激光的四倍频材料具有一定优势。

利用非线性光学晶体进行频率变换时,由于晶体对相互作用的光场存在吸收,导致晶体温度升高,引起折射率的改变,从而直接影响到相位匹配角的改变,产生相位失配,影响转换效率。因此测量非线性光学晶体的折射率温度系数是非常有必要的,它是研究晶体材料光学和热学性质以及评估晶体器件应用前景的重要参数。本文采用最小偏向角法测量了文献[12]中报道的 YAB 晶体在 40 °C~160 °C 之间的折射率,并拟合得到不同温度下的色散方程,建立了作为波长函数的折射率温度系数的表达式。利用拟合结果计算得到 YAB 晶体在室温下对应不同波长的折射率与文献[12]报道的实验值误差均小于 2×10^{-4} 。研究结果可为计算 YAB 晶体在 0.194~2.325 μm 波段内不同温度下任意波长的折射率提供理论依据。

2 实验方法

YAB 是负单轴晶体,实验时晶体切成顶角约为 30° 的直角棱镜,棱镜的斜面以及与锐角相邻的直角面抛光,抛光面的平面度优于 $\lambda/4$,实验时将 YAB 晶体制成的棱镜放在自制的留有通光窗口的加热炉中部,加热炉温度波动在 ± 0.2 °C 以内,把加热炉固定在宽波段、高精度折射率测量仪(SpectroMasterUV-VIS-IR,德国)的样品台上。通过电炉的加热,用自制带有负反馈电路的温度控制仪控制温度,在每个测量温度下保温 10 h 以保证晶体内部温场的均匀性。用汞灯、镉灯、铯灯作光源测量棱镜在不同温度下的偏折角和棱镜的顶角,并根据公式 $n = \sin(A + \delta) / \sin A$ 计算晶体的折射率,式中 A 为棱镜的顶角, δ 为折射光线的偏折角。

3 结果与讨论

为了便于温度控制 and 数据分析,实验测量温度采用 40 °C、70 °C、100 °C、130 °C、160 °C 5 个温度,分别测量了 YAB 晶体深紫外到近红外 0.194~2.325 μm 范围内 9 个波长的折射率,测量精度为 10^{-5} ,测量结果如表 1 所示。

表 1 YAB 晶体的折射率测量值
Table 1 Measured refractive indices of YAB crystal

$\lambda / \mu\text{m}$		40 °C	70 °C	100 °C	130 °C	160 °C
0.194	n_e	1.86034	1.86143	1.86255	1.86393	1.86500
	n_o	1.97471	1.97544	1.97661	1.97776	1.97859
0.254	n_e	1.776545	1.77738	1.77789	1.77892	1.77947
	n_o	1.86765	1.86817	1.86866	1.86948	1.87005
0.363	n_e	1.72584	1.72628	1.72690	1.72751	1.72801
	n_o	1.80583	1.80610	1.80663	1.80704	1.80744
0.404	n_e	1.71799	1.71839	1.71901	1.71958	1.720048
	n_o	1.79635	1.79659	1.79711	1.79754	1.79787
0.546	n_e	1.70302	1.70338	1.70393	1.70446	1.704872
	n_o	1.77821	1.778398	1.77886	1.77926	1.77953
0.644	n_e	1.69786	1.69823	1.69878	1.69928	1.699675
	n_o	1.77178	1.77202	1.77248	1.77283	1.77309
0.852	n_e	1.69181	1.69218	1.69267	1.69267	1.69317
	n_o	1.76386	1.76408	1.76447	1.76447	1.76486
1.53	n_e	1.68278	1.68326	1.68371	1.6843	1.68462
	n_o	1.74875	1.7492	1.74948	1.74988	1.75011
2.325	n_e	1.67252	1.67319	1.6735	1.6741	1.67456
	n_o	1.72747	1.72798	1.7283	1.7287	1.7289

折射率与波长的关系可由 Sellmeier 方程描述:

$$n^2 = P_1 + \frac{P_2}{\lambda^2 - P_3} + P_4 \times \lambda^2. \quad (1)$$

由实验测得的各波长的折射率通过最小二乘法拟

合,可解得 Sellmeier 方程常量 P_1 、 P_2 、 P_3 和 P_4 ,式中 λ 为相应测量光源的波长,单位为 μm 。表 2 中给出了这些常量在不同温度下的数值。

表 2 YAB 晶体不同温度下的 Sellmeier 方程中的常量值

Table 2 Constants of Sellmeier equations for YAB crystal under different temperatures

		40 °C	70 °C	100 °C	130 °C	160 °C
n_e	P_1	2.84562	2.84672	2.84864	2.85001	2.85312
	P_2	0.01653	0.01661	0.01658	0.01669	0.01599
	P_3	0.01080	0.01079	0.01095	0.01093	0.01341
	P_4	-0.00938	-0.00917	-0.00933	-0.00919	-0.00958
n_o	P_1	3.09828	3.09886	3.10050	3.09923	3.10426
	P_2	0.02009	0.02015	0.02014	0.02108	0.01971
	P_3	0.01259	0.01260	0.01270	0.01045	0.01311
	P_4	-0.02161	-0.02136	-0.02149	-0.02091	-0.02189

根据得到的不同温度下的 Sellmeier 方程,可计算相应温度下 0.194~2.325 μm 波长范围内任意波长的折射率。为了计算折射率的温度系数,在测量范围内分析测量波长下主折射率与温度的关系,

如图 1 所示,可以看出不同波长的折射率与温度呈线性关系。用最小二乘法做一元线性回归,计算得到的所有相关系数 r 均大于 0.99,由此得到不同波长下 YAB 晶体的折射率温度系数,如表 3 所示。

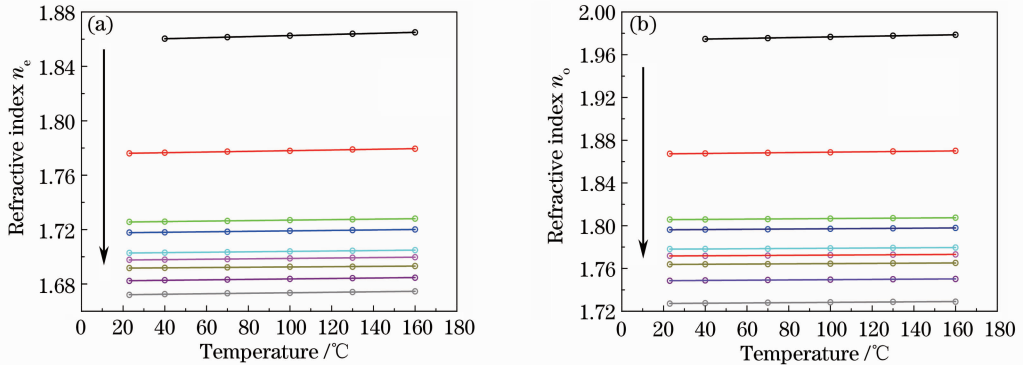


图 1 不同波长的折射率与温度的关系曲线(箭头代表波长由 0.194 增加到 2.325 μm)。(a) n_o ; (b) n_e

Fig. 1 Curves of the refractive index as a function of temperature for different wavelengths (arrows indicate the direction of the wavelength increasing from 0.194 to 2.325 μm). (a) n_o ; (b) n_e

表 3 YAB 晶体的折射率温度系数

Table 3 Thermal refractive index coefficients of YAB crystal

$\lambda / \mu\text{m}$	0.194	0.254	0.363	0.404	0.546	0.644	0.852	1.530	2.325
$\frac{dn_e}{dT} / 10^{-5}$	3.9633	2.4763	1.8566	1.7687	1.5946	1.5600	1.4940	1.5733	1.6660
$\frac{dn_o}{dT} / 10^{-5}$	3.2833	1.9933	1.3900	1.3300	1.1673	1.1480	1.0918	1.1320	1.1933

根据表 3 的数据,采用最小二乘法拟合得出折射率温度系数与波长的函数关系为

$$\begin{aligned} \frac{dn_e}{dT} &= \left(\frac{0.015218}{\lambda^4} - \frac{0.149238}{\lambda^3} + \frac{0.620498}{\lambda^2} - \frac{0.928219}{\lambda} + 1.957117 \right) \times 10^{-5}, \\ \frac{dn_o}{dT} &= \left(\frac{0.008375}{\lambda^4} - \frac{0.075946}{\lambda^3} + \frac{0.343863}{\lambda^2} - \frac{0.527674}{\lambda} + 1.356221 \right) \times 10^{-5}. \end{aligned} \quad (2)$$

折射率温度系数理论与实验值的对比如图 2 所示,可以看出两者符合得很好,说明(2)式很好地反映了折射率温度系数随波长的变化关系,并且由(2)式计算得到的 YAB 晶体在常温下对于不同波长的折射率与文献[12]报道的实验结果误差均小于 2×10^{-4} 。结合图 1 也不难看出,文献[12]的实验值与理论结果符合得很好,这充分验证了实验结果的可靠性。

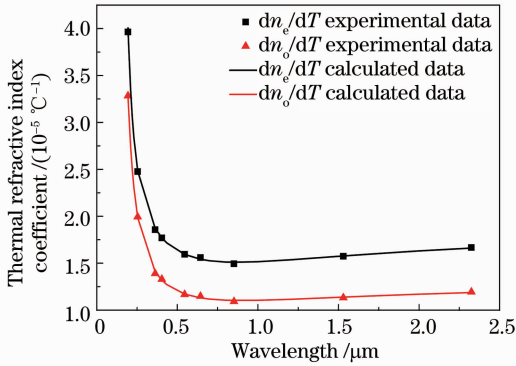


图 2 折射率温度系数曲线

Fig. 2 Curves of the thermal refractive index coefficients

由表 1 可以看出,随着温度上升,YAB 晶体的折射率增大,YAB 晶体具有正的温度系数,非常光折射率随温度的变化比寻常光要明显。通过与目前常用的 BBO、LBO、CBO 等非线性光学晶体材料折射率温度系数的对比^[14-16],YAB 晶体折射率随温度的变化并不大,它作为激光变频材料在实验过程中由于热效应所导致的相位失配就会比较小,有利于实现稳定的倍频激光输出。

小信号近似下谐波转换效率为

$$\eta = \eta_0 \left[\frac{\sin\left(\frac{\Delta k l}{2}\right)}{\frac{\Delta k l}{2}} \right]^2, \quad (3)$$

式中 η_0 为理想匹配时的效率, l 为晶体中光波相互作用长度,当三波相互作用的效率下降到 $4/\pi^2$ 时, $\Delta k = \pm \pi/l$,由此可计算出三波相互作用时的温度带宽^[17]。

根据(2)式的结果,结合小信号近似下谐波转换效率(3)式,计算了 YAB 晶体通过 I 类倍频实现 266 nm 紫外光输出时的温度带宽 $\Delta TL = 6.9 \text{ }^\circ\text{C} \cdot \text{cm}$,理论计算曲线如图 3 所示。为了证明理论计算的可靠性,根据文献[18]报道的 BBO 晶体的色散方程和折射率温度系数,计算得到 BBO 晶体实现 266 nm 输出时的温度带宽 $\Delta TL = 5.4 \text{ }^\circ\text{C} \cdot \text{cm}$,与文献报道一致。

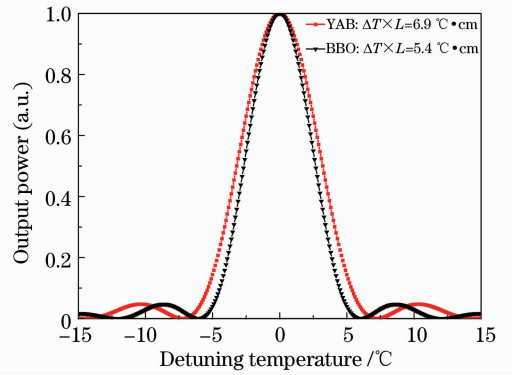


图 3 YAB 和 BBO 晶体 I 类相位匹配实现 266 nm 输出时的温度带宽理论曲线

Fig. 3 Theoretical curves of acceptance temperature of type I phase-matching of YAB and BBO crystals for 266 nm generation

4 结 论

采用最小偏向角法测量了 YAB 晶体在 $40 \text{ }^\circ\text{C} \sim 160 \text{ }^\circ\text{C}$ 范围内深紫外到中红外波段的折射率,得到了不同温度下的 Sellmeier 方程,理论拟合出 YAB 晶体折射率温度系数与波长的函数关系,为在一定精度内计算出 YAB 晶体不同温度、不同波长下的折射率数值和设计 YAB 光学倍频器件及其性能研究提供了理论依据。根据得到的折射率温度系数方程计算了 YAB 晶体 I 类倍频实现 266 nm 输出时的温度带宽为 $6.9 \text{ }^\circ\text{C} \cdot \text{cm}$,表明 YAB 晶体具有较好的热稳定性,作为紫外非线性光学倍频晶体具有一定优势。

参 考 文 献

- 1 A A Ballman. A new series of synthetic borates isostructure with the carbonate mineral huntite [J]. Am Mineral, 1962, 47(11-12): 1380-1383.
- 2 N I Leonyuk. Recent developments in the growth of $\text{RM}_3(\text{BO}_3)_4$ crystals for science and modern applications [J]. Prog Cryst Growth Charact Mater, 1995, 31(3-4): 279-312.
- 3 D Jaque, J Capmany, J G Sole. Red, green, and blue laser light from a single Nd:YAl₃(BO₃)₄ crystal based on laser oscillation at $1.3 \text{ } \mu\text{m}$ [J]. Appl Phys Lett, 1999, 75(3): 325-327.
- 4 H D Jiang, J Li, J Y Wang, et al.. Growth of Yb:YAl₃(BO₃)₄ crystals and their optical and self-frequency-doubling properties [J]. J Cryst Growth, 2001, 233(1-2): 248-252.
- 5 P Dekker, J M Dawes, J A Piper, et al.. 1.1 W CW self-frequency-doubled diode-pumped Yb:YAl₃(BO₃)₄ laser [J]. Opt Commun, 2001, 195(5-6): 431-436.
- 6 N I Leonyuk, E V Koporulina, V V Maltsev, et al.. Growth and characterization of (Tm, Y) Al₃(BO₃)₄ and (Yb, Y) Al₃(BO₃)₄ crystals [J]. J Cryst Growth, 2005, 277(1-4): 252-257.
- 7 N I Leonyuk, V V Maltsev, E A Volkova, et al.. Crystal growth and laser properties of new RAl₃(BO₃)₄ (R = Yb, Er) crystals [J]. Opt Mater, 2007, 30(1): 161-163.
- 8 D Rytz, A Gross, S Vernay, et al.. YAl₃(BO₃)₄: a novel NLO

- crystal for frequency conversion to UV wavelengths [C]. SPIE, 2008, 6998: 699814.
- 9 Chen Xiao, Liu Hua, Ye Ning. Growth of $\text{YAl}_3(\text{BO}_3)_4$ crystals with low absorbance in the UV region [J]. *J Synth Cryst*, 2009, 38(3): 544–546.
陈 啸, 刘 华, 叶 宁. 紫外低吸收 $\text{YAl}_3(\text{BO}_3)_4$ 晶体生长 [J]. *人工晶体学报*, 2009, 38(3): 544–546.
- 10 X S Yu, Y C Yue, J Y Yao, *et al.*. $\text{YAl}_3(\text{BO}_3)_4$: crystal growth and characterization [J]. *J Cryst Growth*, 2010, 312 (20): 3029–3033.
- 11 Yu Xuesong. Research on Two Important Ultraviolet Nonlinear Optical Borate Crystals [D]. Beijing: Technical Institute of Physics and Chemistry, Chinese Academy of Sciences, 2010. 91–93.
余雪松. 两种重要的紫外非线性光学硼酸盐晶体研究[D]. 北京: 中国科学院理化技术研究所, 2010. 91–93.
- 12 J Q Yu, L J Liu, N X Zhai, *et al.*. Crystal growth and optical properties of $\text{YAl}_3(\text{BO}_3)_4$ for UV applications [J]. *J Cryst Growth*, 2012, 341(1): 61–65.
- 13 Q Liu, X P Yan, M L Gong, *et al.*. High-power 266 nm ultraviolet generation in yttrium aluminum borate [J]. *Opt Lett*, 2011, 36(14): 2653–2655.
- 14 Huang Yichuan, Wu Baichang. Measurements of refractive index and its temperature coefficient of $\beta\text{-BaB}_2\text{O}_4$ crystal [J]. *J Synth Cryst*, 1992, 21(4): 398–401.
黄奕川, 吴柏昌. $\beta\text{-BaB}_2\text{O}_4$ 晶体的折射率和折射率温度系数的测量[J]. *人工晶体学报*, 1992, 21(4): 398–401.
- 15 G Ghosha. Temperature dispersion of refractive indices in $\beta\text{-BaB}_2\text{O}_4$ and LiB_3O_5 crystals for nonlinear optical devices [J]. *J Appl Phys*, 1995, 78(11): 6752–6760.
- 16 G C Zhang, S S Liu, L X Huang, *et al.*. Thermal refractive index coefficients of nonlinear optical crystal CsB_3O_5 [J]. *Opt Lett*, 2013, 38(10): 1594–1596.
- 17 Yao Jianquan. Technique of Nonlinear Optical Frequency Conversion and Laser Tuning [M]. Beijing: Science Press, 1995. 44.
姚建铨. 非线性光学频率变换及激光调谐技术[M]. 北京: 科学出版社, 1995. 44.
- 18 D Eimerl, L Davis, S Velsko, *et al.*. Optical, mechanical, and thermal properties of barium borate [J]. *J Appl Phys*, 1987, 62 (5): 1968–1983.

栏目编辑: 韩 峰