

KIO₃ 晶体的折射率和非线性光学性能*

尹 鑫 吕孟凯 程端平

(山东大学晶体材料研究所)

1986 年 12 月 5 日收到

提 要

本文在可见光波长范围内测量了未极化的 KIO₃ 晶体的三个不同方向的折射率, 用实验方法证实了 KIO₃ 晶体存在 I 类位相匹配曲面, 找到了未极化的 KIO₃ 晶体的最佳位相匹配方向。

一、引 言

KIO₃ 晶体具有优良的非线性光学性能, 它的粉末激光倍频效应不仅比目前广泛使用的 KDP, CDA, DCDA, α -LiIO₃, LiNbO₃ 等晶体高得多^[1], 而且超过了 KTP 晶体 (我们曾做过比较), 因此早已引起了国内外有关学者的极大兴趣. Winchel 等人曾测量 KIO₃ 晶体 NaD 光的折射率^[2], 但没有给出 n_y 和 n_z 折射率主轴方向. Crane 根据已知的 LiIO₃ 和 LiIO₃ 晶体的折射率, 预言了 KIO₃ 晶体折射率的 Sellmeier 常数, 并根据这些常数推算了波长为 5325 Å 和 10650 Å 的折射率和位相匹配方向^[3]. 长期以来, 由于晶体生长、结构测定和去畴去孪工作的困难, 其光学性能和非线性光学性能没有见到更多的报道. 我们用降温法成功地生长出 18 × 18 × 40mm 的无色透明的大晶体^[4], 为晶体物理性能的研究工作和开拓应用提供了必备的条件. KIO₃ 晶体存在着电畴和孪晶^[5,6], 我们用未极化的 KIO₃ 晶体, 在可见光波长范围内测量了三个不同方向的折射率, 用实验的方法证实了 KIO₃ 晶体存在 I 类位相匹配曲面, 找到了未极化的 KIO₃ 晶体的最佳位相匹配方向。

二、实验和结果

关于 KIO₃ 晶体的结构, 有立方、三方、单斜和三斜的不同报道^[3,6,7], 即使认为该晶体属三斜晶系的学者, 报道的晶胞参数的差别也很大. 这对采用一个统一的坐标系来描述晶体物理性能带来很大的困难, 我们不得不借助于晶体的外形来规定一个参考坐标系. KIO₃ 晶体是无色透明的六方柱体, 其外形如文献[4]中图 9 所示. 柱体的棱向与晶体的极轴方向平行, 我们选取坐标系 $ox_1x_2x_3$, x_1 平行 KIO₃ 晶体柱体的棱向, x_3 平行于最明显的一组解理面的法线方向, 这组解理面平行于一对柱面, 从晶体外形上看是 m 对称面, 这可能就是文献[3]中提到的 m 对称性的对称面. x_2 垂直于 x_1 和 x_3 . 以下提到的 x_1 面、

* 国家自然科学基金资助的课题。

x_2 面和 x_3 面分别是以 x_1 , x_2 和 x_3 轴为法线的平面。

1. 折射率测量

用 2mm 厚的 x_1 切片, 在 3—4mm² 的无畴无孪区域内, 用文献[8]中所介绍的方法, 在正交偏光下, 测得了波长为 6328 Å 的 KIO_3 晶体的视见光轴角为 $2V_{\text{视}} = 37^\circ \pm 6'$, x_1 方向正是两光轴角的锐角等分线。

我们将样品加工成三块直角棱镜, 其直角棱分别平行于 KIO_3 晶体柱体的棱向, 直角面之一分别为柱体的三个不同侧面, 另一直角面分别与它们垂直。以钠灯作为光源, 用 V 棱镜仪测量了 x_1 方向偏振光的折射率。三块棱镜测得的结果都只有一个折射率, 并且基本相同。

以上实验说明, x_1 方向是 KIO_3 晶体的一个折射率主轴方向。

用以 x_1 轴为直角棱、 x_2 面和 x_3 面为直角面的 90° 棱镜, 在可见光波长范围内测量得 x_1 方向的折射率 (n_1) 列于表 1。

我们又加工了六块棱镜, 其直角棱分别平行于 KIO_3 晶体的三对柱面的法线方向和三对柱角的对角线方向, 直角面之一为 x_1 面, 直角面之二分别为三个不同的柱面及其垂直面。用类似的方法, 测量了偏振方向基本平行于直角棱方向的光的折射率。发现, x_1 面和 x_2 面、 x_3 面构成直角的两块棱镜只存在一个折射率。其它四块都存在两个差值不等的折射率。在可见光波长范围内, 用前两块棱镜测量的折射率 (n_2 和 n_3) 也列于表 1 中。

表 1 KIO_3 晶体的折射率 ($c15^\circ$)

$\lambda(\text{\AA})$	n_1		n_2		n_3	
	测量值	计算值	测量值	计算值	测量值	计算值
4358	1.7295	1.7294	1.8824	1.8824	1.8874	1.8875
4861	1.7150	1.7151	1.8598	1.8601	1.8645	1.8646
5321	1.7058	1.7059	1.8463	1.8462	1.8503	1.8502
5461	1.7036	1.7036	1.8431	1.8428	1.8470	1.8467
5893	1.6977	1.6976	1.8340	1.8340	1.8377	1.8377
6328	1.6929	1.6930	1.8272	1.8272	1.8307	1.8307
6563	1.6909	1.6909	1.8240	1.8241	1.8273	1.8275
10642		1.6743		1.8005		1.8034

表 2 Sellmeier 方程的系数

系数	A	B	C
n_1	2.77161	3.49636	3.05368
n_2	3.19439	5.16792	4.17808
n_3	3.20385	5.27384	4.29426

用计算机进行拟合, KIO_3 晶体的折射率的 Sellmeier 方程可表示为

$$n_i^2 = A + \frac{B_i}{\lambda^2 - C_i} \quad (i = 1-3).$$

式中 λ 以 $1 \times 10^{-4}\mu$ 为单位。方程的系数列于表 2。

折射率的计算值与测量值的最大误差不超过 3×10^{-4} , 见表 1。

2. 激光倍频实验

首先规定,在 $ox_1x_2x_3$ 坐标系中, KIO_3 晶体的位相匹配方向和 x_1 方向所成的夹角为 θ 角,位相匹配方向在 x_2-x_3 平面内的投影,和 x_3 轴所成的夹角为 ϕ 角。

KIO_3 晶体的激光倍频实验是在声光调 Q 的 Nd:YAG 连续激光器上进行的。样品固定在菲氏台上,连续改变 ϕ 角,当 ϕ 角不等于 0° 和 90° , θ 角在 $32-35^\circ$ 之间,存在着两个位相匹配曲面。对应同一 ϕ 角,两个位相匹配曲面 θ 角的差值在 3° 以内。而且不管沿哪个位相匹配曲面连续改变 ϕ 角,倍频光输出强度随 ϕ 角的增大而逐渐减弱。在 $\phi=0^\circ$ 时,只存在 $\theta=33.7^\circ$ 一个位相匹配方向,并且有最强的倍频光输出,在 $\phi=90^\circ$ 时,也只存在 $\theta=32.2^\circ$ 一个位相匹配方向,且倍频光输出最弱。在样品前的光路中插入一尼克尔棱镜,尼克尔棱镜转 360° ,倍频光两次消光。这说明两个位相匹配曲面都是 I 类位相匹配曲面。

我们用 $\phi=0^\circ$, $\theta=33.7^\circ$, 长为 5.3mm 的 KIO_3 晶体和同样长度的 KTP 晶体作了倍频光强度的比较。KTP 晶体的位相匹配方向是最强倍频光输出的 II 类位相匹配方向。尼克尔棱镜的偏振方向与 KIO_3 晶体的 x_2 方向平行,而和 KTP 晶体的两个互相垂直的基频光偏振方向成 45° 。在连续激光器输出为 1W 的情况下, KIO_3 晶体的倍频光强度是 KTP 晶体的 82%。

在菲氏台上,用不同切形的晶体连续改变 ϕ 角和 θ 角,没有发现 KIO_3 晶体有 II 类位相匹配的倍频光输出。这和文献[3]的作者所预料的结果是一致的。

三、讨 论

1. KIO_3 晶体可能存在着两种不同取向的电畴区或孪晶区,且以 x_3 面或 x_2 面为光学对称面。这两种不同取向的电畴区或孪晶区的 n_x 方向是一致的,而 n_y 和 n_z 的方向则不相同。所以在 x_2-x_3 平面内,除 x_2 和 x_3 方向外,其它方向都存在着两个大小不同的折射率。在 $\phi=0^\circ$ 和 90° 以外的其它方向,都存在两个不同的 I 类位相匹配方向。

2. 值得指出的是: n_1 是 KIO_3 晶体的一个主折射率, n_2 和 n_3 并不是另外两个主折射率 n_y 和 n_z 。因为 n_3-n_2 比 n_3-n_1 和 n_2-n_1 小两个数量级,近似按照负单轴晶 o 光折射率测量处理, n_2 和 n_3 可以认为是位于 n_y-n_z 平面内,分别和 n_y 成 ϕ 角,和 $90^\circ+\phi$ 角的两个互相垂直方向的折射率,应符合下列关系:

$$\frac{1}{n_2^2} = \frac{\cos^2 \phi}{n_y^2} + \frac{\sin^2 \phi}{n_z^2}, \quad (1)$$

$$\frac{1}{n_3^2} = \frac{\sin^2 \phi}{n_y^2} + \frac{\cos^2 \phi}{n_z^2}. \quad (2)$$

根据文献[8]和[9], KIO_3 晶体的光轴角必须同时满足以下两个关系:

$$n_y \sin V = \sin V_{\text{光}}, \quad (3)$$

$$\operatorname{tg} V = \frac{n_x}{n_z} \left(\frac{n_z^2 - n_y^2}{n_y^2 - n_x^2} \right)^{\frac{1}{2}}. \quad (4)$$

式中 n_x , n_y 和 n_z 分别为三个主折射率。

将波长为 $6328 \text{ \AA}$ 的折射率代入(1)式和(2)式,用计算机解得,在 $\phi=21.5^\circ$, $n_y=$

1.8266, $n_z = 1.8313$ 时, (3) 式和 (4) 式同时可以满足, 且 $V = 10^\circ$. 这个结果和文献[3]所报道的光轴角在误差范围内一致.

3. 基于 KIO_3 晶体的折射率 $n_2 - n_1 \approx n_3 - n_1 \gg n_3 - n_2$, 近似单轴晶位相匹配方向的计算, 在 $\phi = 0^\circ$ 时

$$\sin^2 \theta_1 = \frac{\left(\frac{\omega}{n_2}\right)^{-2} - \left(\frac{\omega}{n_3}\right)^{-2}}{\left(\frac{\omega}{n_1}\right)^{-2} - \left(\frac{\omega}{n_3}\right)^{-2}},$$

在 $\phi = 90^\circ$ 时

$$\sin^2 \theta_2 = \frac{\left(\frac{\omega}{n_3}\right)^{-2} - \left(\frac{\omega}{n_2}\right)^{-2}}{\left(\frac{\omega}{n_1}\right)^{-2} - \left(\frac{\omega}{n_2}\right)^{-2}}.$$

将表 1 中 5321 Å 和 10642 Å 的折射率代入得: $\theta_1 = 34.3^\circ$, $\theta_2 = 32^\circ$, 与实验结果基本符合.

和 LiIO_3 晶体比较, LiIO_3 晶体的位相匹配曲面是围绕 c 轴的圆锥面, 而 KIO_3 晶体的位相匹配曲面是围绕极轴的椭圆锥面. 椭圆的长短半轴差别不大.

4. 实验结果表明, KIO_3 晶体即使在不加电的条件下, 沿 $\theta = 33.7^\circ$, $\phi = 0^\circ$ 方向通光, 也有可能制作成性能良好的倍频器件.

5. 以上实验从光学和非线性光学性能方面说明, KIO_3 晶体不属于立方和三方结构, 而是属于低对称性结构. 可能性更大的是属于三斜晶系. 如果属于单斜晶系 m 对称性, 则对称面的法线方向应是一主折射率方向, 这与实验不符.

邵宗书同志帮助测量了 KIO_3 晶体相对于 KTP 晶体的倍频强度. 在此表示感谢.

参 考 文 献

- [1] S. K. Kurtz, and T. T. Perry, *J. Appl. Phys.*, **39**(1968), 3798.
- [2] A. N. Winchel and H. Winchel, *The Microscopical Characters of Artificial Inorganic Solid Substances*, New York, London, Academic Press, (1964), p. 108.
- [3] G. R. Crane, *J. Appl. Cryst.* **5**(1972), 360.
- [4] 吕孟凯、张克从, 中国科学 A 辑, (9)(1986), 957.
- [5] N. R. Ivanov, L. A. Shuvalov and O. A. Chikhladze, *Phys. Lett.*, **45**(1973), 437.
- [6] В. Р. Калинин, В. В. Люхин, Н. В. Белов, *ДАН*, **239**(1978), 590.
- [7] B. W. Lucas, *Acta Cryst.*, **C40** (1984), 1989.
- [8] 王民, 山东大学学报(自然科学版), **4**(1980), 2.
- [9] 蒋民华, 晶体物理, 山东科学技术出版社, 济南, (1980), 238 页.

THE REFRACTIVE INDICES AND NONLINEAR OPTICAL PROPERTY OF KIO_3 CRYSTAL

YIN XIN LU MENG-KAI CHENG DUAN-PING

(Institute of Crystalline Materials, Shandong University, Jinan)

ABSTRACT

The refractive indices of unpolarized KIO_3 crystal in three different directions have been measured in the range of visible wavelength. The existence of type I phase matching surface in KIO_3 crystal has been verified by experimental method. The optimum phase matching direction in unpolarized KIO_3 crystal has been found.