



第三章 以光学超晶格为变频晶体的 光学参量振荡器

光参量振荡器(Optical Parametric Oscillators), 简称 OPO, 是一种固体激光器。能够将某个固定波长的激光转换到设定的波长或产生波长可调谐的激光。OPO 具有波长连续可调谐、调谐范围宽、无需制冷、结构紧凑、重量轻和耗能少等特点, 是一种高效的用来扩展激光器波长覆盖范围的非线性技术。OPO 激光技术早期由于受晶体材料的非线性系数小、损伤阈值低、缺少高光束质量的激光泵浦源等原因而沉寂了较长一段时间。随着 KTP、BBO 和 LBO 等为代表的优质非线性晶体的应用以及泵浦激光器光束质量的提高, OPO 激光技术得到了飞跃发展。

本章介绍了三种利用超晶格为变频晶体的 OPO 激光器。一种是以周期极化掺镁铌酸锂 (PPMgLN) 为变频材料, 1064 nm 激光为泵浦光源, 实现 1.44 μm 到 4.11 μm 近中红外光 OPO; 一种是以 PPSLT 为变频晶体, 532 nm 绿光激光为泵浦源的可见光 (0.65 μm) 到近红外光 (3 μm) OPO; 以及以 PPMgSLT 为变频晶体, 532 nm 绿光激光为泵浦源, 实现从 855 nm 到 1410 nm 连续可调谐 OPO。

§ 3.1 光学参量振荡器简介

激光具有亮度高、方向性好、相干性强等特点, 激光光谱技术已经成为当前探测物质结构的最先进的方法, 光源波长的可变化是该项技术的关键。目前可调谐激光器常用的有: 染料激光器、掺钛蓝宝石激光器、色心激光器和铅盐半导体激光器以及 OPO。OPO 在调谐范围和输出功率方面均优于染料激光器和掺钛蓝宝石激光器等, 特别是随着近年来一些新型高效率的非线性晶体的出现和工艺的发展, OPO 以其宽调谐范围、高效率、高重复频率、高分辨率, 以及小型化、固体化等特点而日益引起国际光学界的重视。



3.1.1 OPO 技术

光学参量技术是非线性光学频率变换技术之一。OPO 是利用非线性晶体的混频特性实现频率变换的器件,它既是非线性光学频率变换的器件,又是波长可调谐的光源。具有调谐范围宽、结构简单及工作可靠等特点。已被广泛应用于多种科研领域(如新材料、生物、化学及共振光谱等)。八十年代以后,非线性晶体研究的重大突破使 OPO 进入了实用阶段。涌现出许多透明范围更宽、匹配波长更长的参量振荡晶体,如 KTP、BBO、LBO、KTA (KTiOAsO_4)、 $\text{MgO}:\text{LiNbO}_3$ 、 AgGaSe_2 、 AgGaS_2 、 CdSe 、 ZnGeP_2 、Urea、 CsTiOAsO_4 等。另外,值得注意的是近些年迅速发展起来的光学超晶格材料技术,为人们呈现了一种全新的准位相匹配(QPM) OPO。到目前为止,人们采用不同的泵浦波长、非线性晶体及调谐方式,已实现 $0.2\text{--}18\text{ }\mu\text{m}$ 以上的宽调谐输出,谱线宽度一般是几个波数,激光脉宽由连续到纳秒、皮秒、甚至于飞秒量级。一般来说,单模、窄线宽、窄脉宽、高峰值脉冲泵浦的 OPO 可获得较高的转换效率。OPO 的谐振类型有单共振(SRO)和双共振(DRO)之分,位相匹配方式也有 I 类 II 类之别,OPO 已成为可调谐激光的主流,是实现可调谐激光输出的有效技术手段,它的发展趋势主要是:用组合调谐方式进行红外波段的扩展和紫外波段的延伸、光学超晶格技术、新型参量振荡晶体的开发及全固态 OPO。目前,一些技术已趋于成熟,国际上一些大光电公司也已先后推出了商品化的 OPO 产品。

总之,实践中对可调谐激光光源的强烈需求,使得 OPO 得以迅速发展,而 OPO 的飞速发展又为可调谐激光开辟了更广阔的应用领域,并且在应用过程中对 OPO 提出了更高的指标要求,随着 OPO 技术的不断成熟与发展,OPO 必将会进一步的充实激光的应用领域。^[1]

3.1.2 OPO 工作原理

OPO 的工作原理最早是由 Giordmaine 和 Miller 提出(1965)^[2]。频率 ω_p 的激光光源,向非线性晶体提供泵浦光,由于晶体中的光学非线性效应,可以设想为一个入射泵浦光光子分解为两个低频光子从晶体辐射出来。习惯上,将辐射出来的高频光子称为“信号”光(频率 ω_s),较低频率的光子则称为“闲置”光(频



率 ω_i)。将非线性晶体置于一个谐振腔内, 让 ω_s 光或 ω_s 和 ω_i 光同时在腔内产生谐振。当泵浦光 ω_p 超过某一阈值时, 非线性相互作用的增益超过腔内损耗。 ω_s 光或 ω_s 和 ω_i 光同时会在腔内建立起振荡, 这类似于激光器的情况。信号光和闲置光频率服从能量守恒条件:

$$\omega_p = \omega_s + \omega_i, \quad (3.1)$$

对于某一固定的泵浦波长, 这个方程能够满足无限多的信号和闲置光波长。然而这三个光波在晶体内也必须满足特定的位相关系, 它们可以表示为下列形式的关系式:

$$k_p = k_s + k_i, \quad (3.2)$$

$$\text{即 } n_p \omega_p = n_s \omega_s + n_i \omega_i \quad (3.3)$$

式中, k_p , k_s , k_i 分别为泵浦光、信号光和闲置光的波矢量, n_p , n_s , n_i 分别为它们在晶体中的折射率。如图 3.1 所示, 将非线性晶体置于光学谐振腔内, 泵浦光自腔外经过聚焦入射到晶体中, 构成参量振荡器。利用上述公式可以得到 ω_s 和 ω_i 之间的关系, 通过一些调节方法可以获得一定范围的可调谐参量光输出。如对双折射晶体, 除了角度调谐外, 还可以通过改变晶体的温度、电场和压力等也能实现参量光频率的改变。^[3]

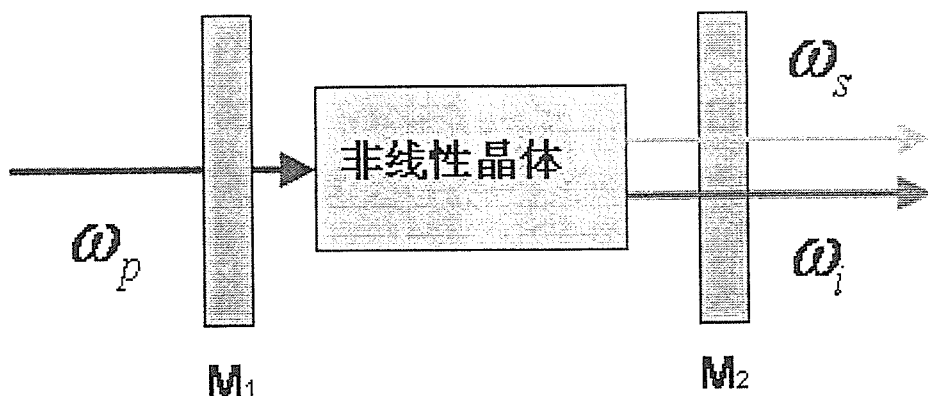


Fig. 3.1 Schematic diagram of OPO setup



如果谐振腔的两个腔镜 M_1 和 M_2 对 ω_s 和 ω_i 都具有高反射率（如， $R_s \approx 1, R_i \approx 1$ ），即 ω_s 和 ω_i 光同时在腔内建立起振荡，这时称为双共振振荡器（DRO），如果 M_1 和 M_2 仅对信号光 ω_s 具有高反射率，则只有 ω_s 光会在腔内建立起振荡，称为单共振振荡器（SRO）。对于泵浦光，腔镜应尽可能具有高透射率。振荡器在参量效应的增益恰好超过谐振腔损耗时起振，因此泵浦光的输入功率必须达到一定的阈值。双共振腔由于具有较低的阈值，可以采用连续和脉冲两类激光器作为泵浦光源，由于它的谐振腔对两种波长共振，输出光的振幅和频率稳定性较差。单共振振荡器由于具有较高的阈值（一般要高 2 个量级），因此一般只用脉冲激光器作为泵浦源，它的优点是输出比较稳定，并且对谐振腔镀膜要求也较低。^[4]

组成 OPO 的关键器件是泵浦光、非线性晶体和谐振腔。泵浦光源的选择很多，包括连续的，脉冲的（ns, ps, fs 等），波长也有很多种；目前常用的晶体有：KTP、BBO、LBO、KTA（ KTiOAsO_4 ）、MgLN、AgGaSe₂ 和 Ag₂GaS₂ 等，它们分别适用于不同的调谐范围；谐振腔有比较简单的稳定腔，半稳腔和非稳腔等等。我们可以根据不同的应用需要进行合适的选择。

3.1.3 OPO 主要性能指标

OPO 技术性能指标主要包括光子能量的转换效率、线宽、光束质量、激光光谱调谐范围、脉冲重复频率、单脉冲能量、OPO 阈值和非线性晶体的损伤阈值等。

光子能量转换效率是 OPO 在实际应用中最主要的一个技术指标，是指有多少比例的泵浦光子转换为参量光子，即有多少比例能量能够从泵浦光转换到参量光，是 OPO 的一个基本性能。因此，应尽可能提高光子转换效率。OPO 的线宽是指参量光的谱线宽度，很多 OPO 方法得到的参量光线宽大都在 $5 \sim 10 \text{ cm}^{-1}$ ，因此，如何压低参量光的线宽，尽可能提高分辨率，是 OPO 技术中的一个重要部分。通常可以用提高泵浦光光束质量、选择合适的腔镜和加入光栅等方法实现，但窄化线宽的一般又会降低转换效率、提高成本和增加整个系统复杂性等问题，所以要综合考虑应用环境选择合适的 OPO 参数。光束质量也是 OPO 在



应用中的需要考虑的重要指标,可以选择具有高光束质量的激光器作为泵浦源以提高 OPO 系统的光束质量。

3.1.4 准位相匹配光学参量振荡器 (QPM-OPO)

BPM 是 OPO 研究中实现位相匹配的一种方法,适用于具有双折射的均匀块状晶体^[5]。近些年迅速发展成熟起来的电场极化技术,引起了人们对 QPM-OPO 广泛的研究兴趣。介电体光学超晶格通过非线性系数的调制,将 QPM 引进 OPO 过程,使得 OPO 的调谐不再受晶体折射率的限制,具有更大的灵活性和可调谐范围。同时 BPM-OPO 理论在 QPM-OPO 中大都能继续适用^[6]。

将周期极化晶体的周期波矢(即倒格矢)引入 OPO 过程,同样可以满足位相匹配条件:

$$\Delta k = k_p - k_s - k_i - k_m = 0 \quad (3.4)$$

式中 $k_m = \frac{2\pi m}{\Lambda}$, Λ 为晶体的畴周期长度, m 为 QPM 介数。

QPM-OPO 的频率调谐可以通过三种方式:调泵浦光波长,调节样品温度和改变超晶格周期。

应用多周期极化晶体实现 QPM-OPO,通过调节泵浦光束和晶体的横向相对位置和晶体温度,即可获得较大波长范围的调谐输出。其优点是调谐机制简单,输出波长范围大,可避免空间走离效应,还有 QPM 本身所有的转换效率高的特点。

以其高增益、低阈值、易于实现位相匹配等特点,利用介电体光学超晶格是实现小型化、全固态和宽调谐范围 OPO 的重要方法。

§ 3.2 多周期极化掺镁铌酸锂晶体光学参量振荡器

中红外(3-5 μm)可调谐相干光源在许多方面有着广泛的用途^[7],比如在光谱学、光化学、医学、非线性光学、大气研究、军事国防等研究领域内,都需要输出波长可调谐的中红外波段激光。在中红外波段,激光振荡对应的能级带宽较小,采用常规原理的激光增益介质,都存在由于热激励所引起的荧光寿命问题,



使得在常温下工作非常困难，实现室温下中、大功率的激光输出更是不可能。采用非线性光学频率转换技术-OPO 不涉及粒子数反转的问题，因此可以实现室温下的高功率激光输出。目前，实现 QPM-OPO 的最常见的铁电材料是 PPLN。LN 晶体由于在 d_{33} 方向具有大的非线性系数 (27pm/V) 和宽的透光范围 ($0.3 \sim 5\mu\text{m}$)，因此 PPLN 成为比较适合 OPO 应用的非线性变频晶体。本节介绍以周期极化掺镁 LN 晶体 (PPMgLN) 为变频晶体的光参量振荡器。相较于 LN，MgLN 的损伤阈值提高了两个数量级，同时降低了晶体矫顽场 (如掺 5 mol% MgO LN 晶体矫顽场约为 4.8KV/mm)，可以在低温避免光折变引起的损伤，在室温条件下可以稳定运转^[8-12]。

PPMgLN 超晶格的结构设计：在光参量作用过程中，不同频率的光子间要满足能量守恒条件式 3.1: $\omega_p = \omega_s + \omega_i$ 和 QPM 条件 3.4: $\Delta k = k_p - k_s - k_i - k_m = 0$ ，式中 $k_m = \frac{2\pi m}{\Lambda}$ ， Λ 为 PPMgLN 晶体的畴周期长度， m 为 QPM 介数。为了得到高的转换效率，选择一介 QPM 条件，即 $m=1$ 。则式 3.4 可表达为：

$$2\pi \left[\frac{n_e(\lambda_p)}{\lambda_p} - \frac{n_e(\lambda_s)}{\lambda_s} - \frac{n_e(\lambda_i)}{\lambda_i} \right] - \frac{2\pi}{\Lambda} = 0 \quad (3.5)$$

式中 $n_e(\lambda_p)$ 、 $n_e(\lambda_s)$ 和 $n_e(\lambda_i)$ 分别为泵浦光、信号光和闲置光在 MgLN 晶体中的 e 光折射率，可以由 LN 的 Sellmeier 方程^[13]来计算：

$$n_e^2(\lambda, t) = A + E \times (T^2 - H) + \frac{B + F \times (T^2 - H)}{\lambda^2 - (C + G \times (T^2 - H))^2} + D \times \lambda^2 \quad (3.6)$$

其中的参数为：

$$\begin{aligned} A &= 4.582; \\ B &= 0.09921; \\ C &= 0.2109; \\ D &= -0.02194; \\ E &= 0.00000022971; \\ F &= 0.000000052716; \\ G &= -0.000000049143; \\ H &= 88506.25; \\ T &= t + 273.15; \end{aligned}$$



考虑到 LN 晶体的热膨胀,

$$\Lambda(t) = \Lambda(25^{\circ}\text{C}) \times (1 + 1.53 \times 10^{-5} \times (t - 25) + 5.3 \times 10^{-9} \times (t - 25)^2) \quad (3.7)$$

可知在泵浦光波长固定的情况下, 通过改变 PPMgLN 晶体的温度或周期, 可方便的实现 QPM-OPO 的信号光和闲置光波长在较宽波长范围内的调谐输出。

实验中采用 LD 侧泵的 Nd:YAG 1064 nm 激光器为泵浦源, LD 侧泵的 Nd:YAG 激光模块 (CEO) 置于线性腔内, 用声光调 Q 的方法来产生准连续激光输出从而提高输出的峰值功率, 重复频率从 1~50 KHz 可调; $\phi = 1.1$ 的选模小孔用来获得基模激光输出; 因为 YAG 为光学各向同性晶体, 只能获得非偏振输出, 而高效的 QPM 过程需要基波为线偏振光, 所以我们在腔内放入一块 Brewster 片获得偏振输出; 腔长 $L = 370\text{mm}$ 。 [14]

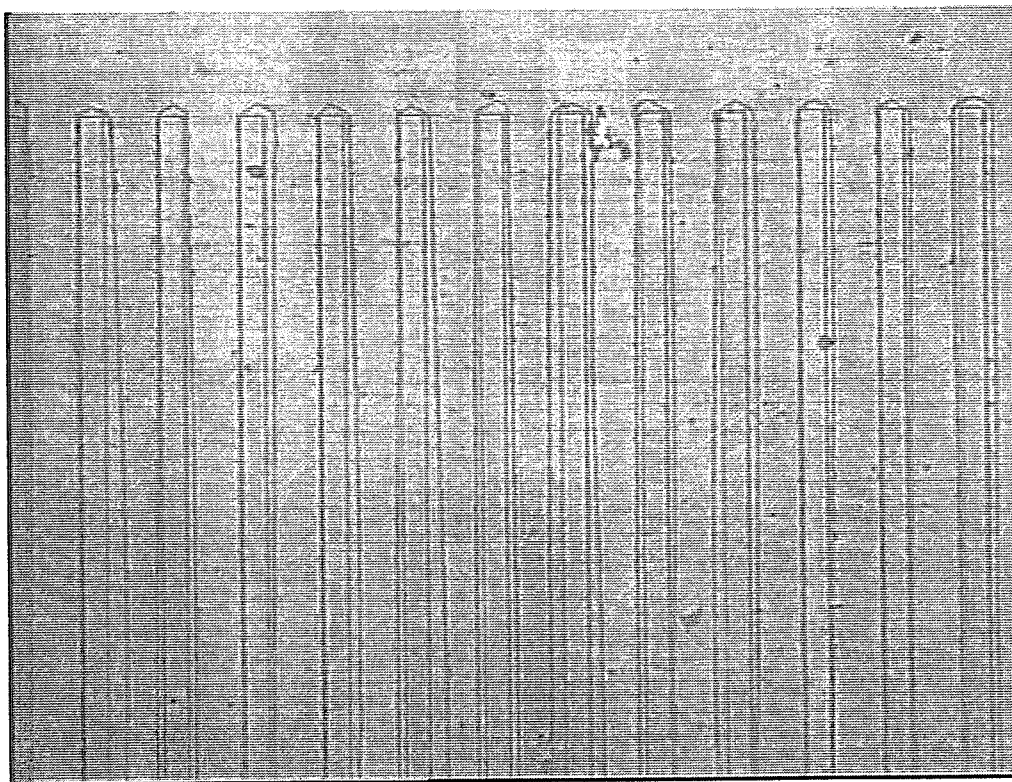


Fig. 3.2 Optical microscope micrograph of etched domain-inverted patterns on the +C surface of the PPMgLN

实验中使用的是掺镁 5mol% 的 PPMgLN 晶体, 样品尺寸是 $50\text{ mm} \times 10\text{ mm} \times 1\text{ mm}$ (长 $\times$ 宽 $\times$ 厚), 其中共有六个周期 (30, 29.76, 29.49, 29.22, 28.95 和 $28.66\text{ }\mu\text{m}$), 每个周期宽度 1.5 mm, 各周期间隔 0.1 mm。图 3.2 和 3.3 分别是 PPMgLN

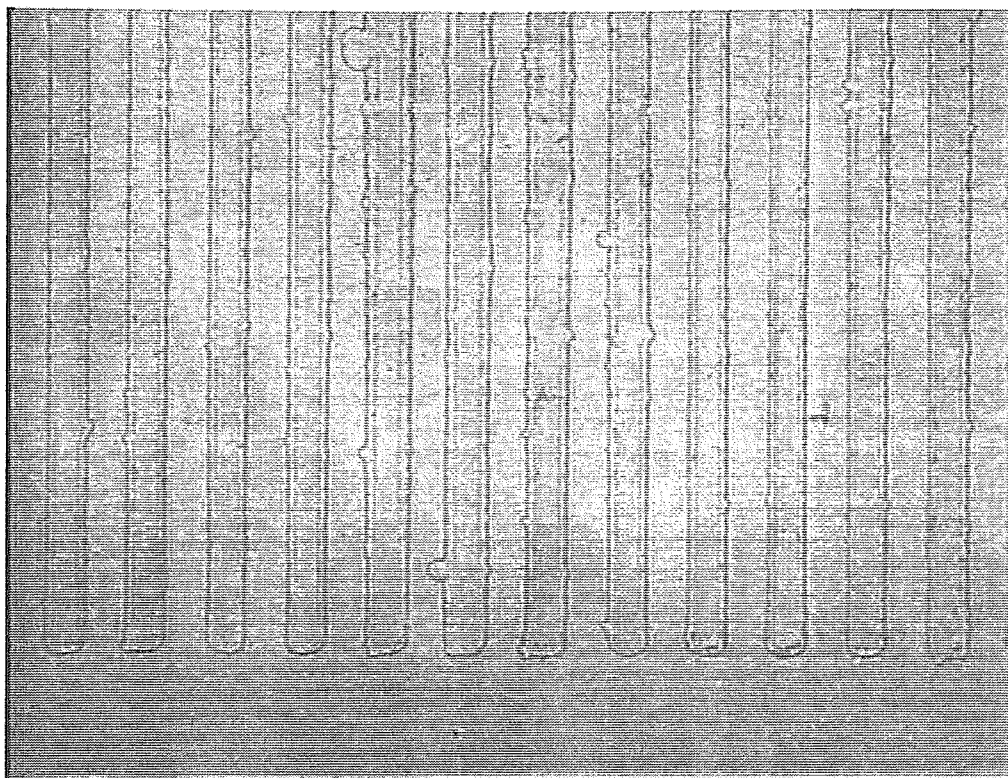


Fig. 3.3 Optical microscope micrograph of etched domain-inverted patterns on the -C surface of the PPMgLN

样品±C面腐蚀图。泵浦光波长为 1064 nm，脉冲宽度 100 ns，重复频率 5 KHz，经过一个缩束系统和一个焦距 25 cm 的透镜，聚焦到 PPMgLN 晶体中，光斑束腰为 150 μm ，PPMgLN 晶体放在控温炉里置于由 M_1 和 M_2 两个平凹镜组成的双凹谐振腔中，凹面曲率 100 mm，腔长 102 mm。 M_1 和 M_2 腔镜镀有高反射 ($R > 99.5\%$) 膜（中心波长在 1.5 μm ，宽度 200 nm），使信号光能够产生共振，同时对泵浦光 ($T > 98\%$) 和闲置光 ($T > 97\%$) 高穿透。图 3.4 为 PPMgLN-OPO 实验装置图。

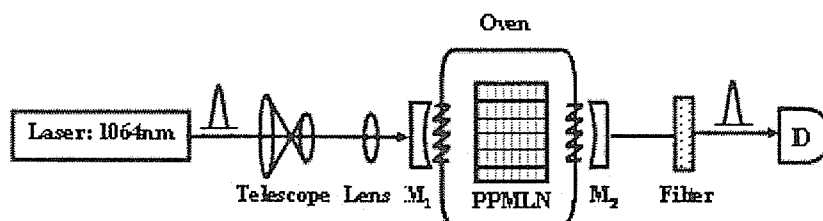


Fig. 3.4 Schematic diagram of optical layout of PPMgLN OPO experiment

在 OPO 谐振腔的后面用一个对 1064 nm 高反射的镜子将剩余泵浦光反射，因为闲置光的波长大于 2 μm ，所以只能通过光谱仪来测量到信号光的波长，再跟据能量守恒来推算闲置光的波长。

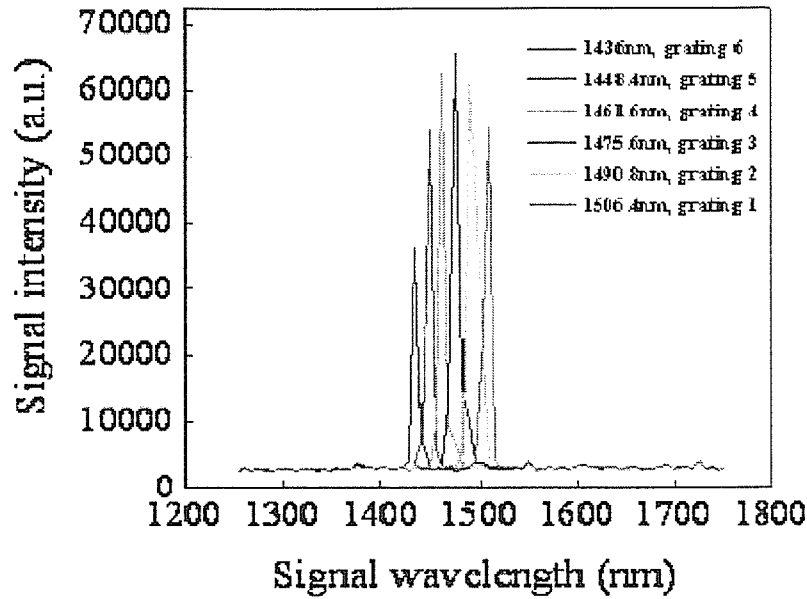


Fig. 3.5 Measured spectrum of signal beam from six gratings on PPMLN chip at room temperature

当泵浦光功率超过 OPO 的阈值时，OPO 开始工作输出稳定的信号光和闲置光，图 3.5 是在室温下测量到的六个周期分别产生的信号光光谱，信号光波长是 1506、1490、1475、1461.6、1448.4 和 1436 nm，分别对应于周期 30，29.76，29.49，29.22，28.95 和 28.66 μm 。

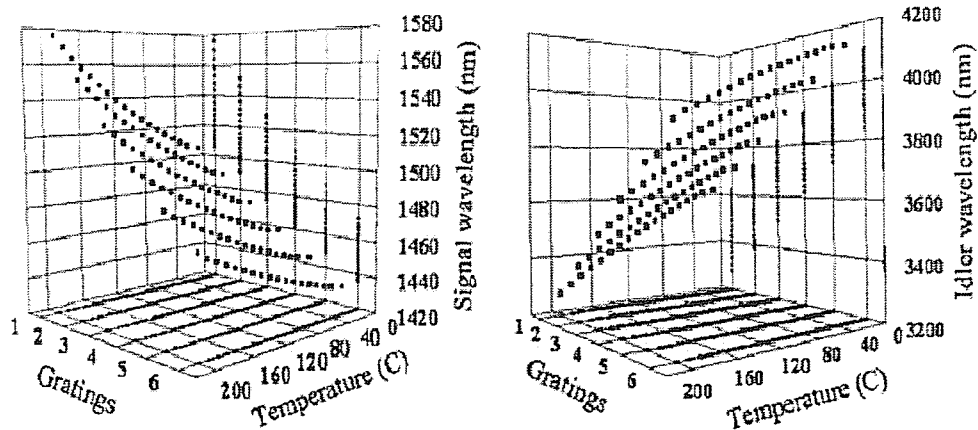


Fig. 3.6 OPO tuning performance by both changing temperature and translating QPM gratings for the signal beam (left) and idler beam (right).



改变晶体温度是进行 QPM-OPO 波长调谐的一个主要方法，通过改变 PPMgLN 晶体温度(室温到 200℃)，信号光波长可以从 1.44 μm 到 1.58 μm 可调，相应的闲光波长从 3.28 μm 到 4.11 μm 可调，闲光的调谐范围(830 nm)要比信号光的调谐范围(140 nm)大很多。从图 3.6 中周期和波长平面上，可以看出在相同的温度变化情况下，远离简并点的区域波长的调谐范围要小于接近简并点的区域。

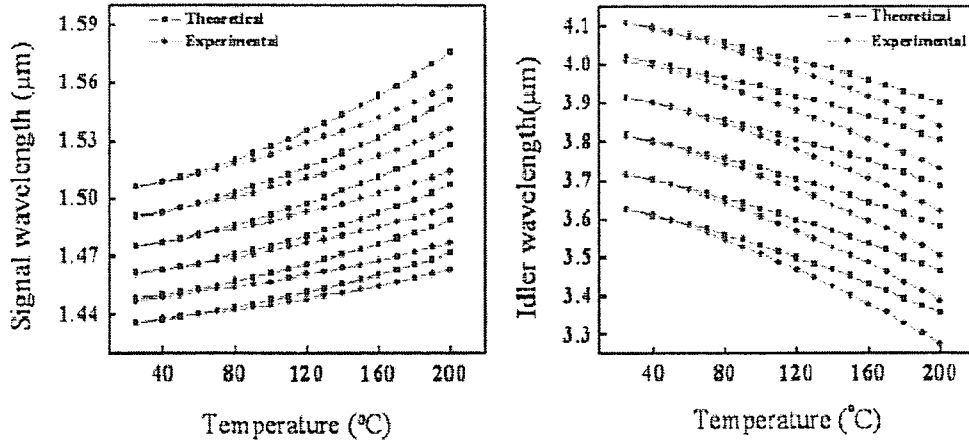


Fig. 3.7 The comparison between the measured wavelength tuning performance and the theoretical calculation results.

我们比较了实验测量的波长调谐值与最近发表的文献^[15]计算值之间的差别，文献 15 中的 Sellmeier 方程：

$$n_e^2(\lambda, t) = a_1 + b_1 \times f(T) + \frac{a_2 + b_2 \times f(T)}{\lambda^2 - a_3^2} + \frac{a_4 + b_3 \times f(T)}{\lambda^2 - a_5^2} - a_6 \times \lambda^2 \quad (3.8)$$

其中的参数为：

$$\begin{aligned} a_1 &= 5.319725; \\ a_2 &= 0.09147285; \\ a_3 &= 0.3165008; \\ a_4 &= 100.2028; \\ a_5 &= 0.01497046; \\ b_1 &= 4.753469 \times 10^{-7}; \\ b_2 &= 3.310965 \times 10^{-8}; \\ b_3 &= 2.760513; \end{aligned}$$

温度参数 $f(T) = (T - 24.5) \times (T + 570.82)$

再考虑到温度改变引起的晶体本身热膨胀(式 3.7),发现在低温区域实验值与理论值吻合的很好,但是在高温区域差别比较大(图 3.7)。造成这个差别的原因有可能是在实验中用来固定控温炉的装置并不是很稳定,在温度改变比较大时,晶体的角度发生了变化。

实验中还测量了不同周期的输入泵浦光功率与输出参量光功率之间的关系(图 3.8),用一个对 1064 nm 高反射率的 K9 玻璃材质的镜子滤掉输出端剩余的泵浦光,因为 K9 玻璃在 3 μm 以上基本就都已经吸收了,所以我们测量到的输

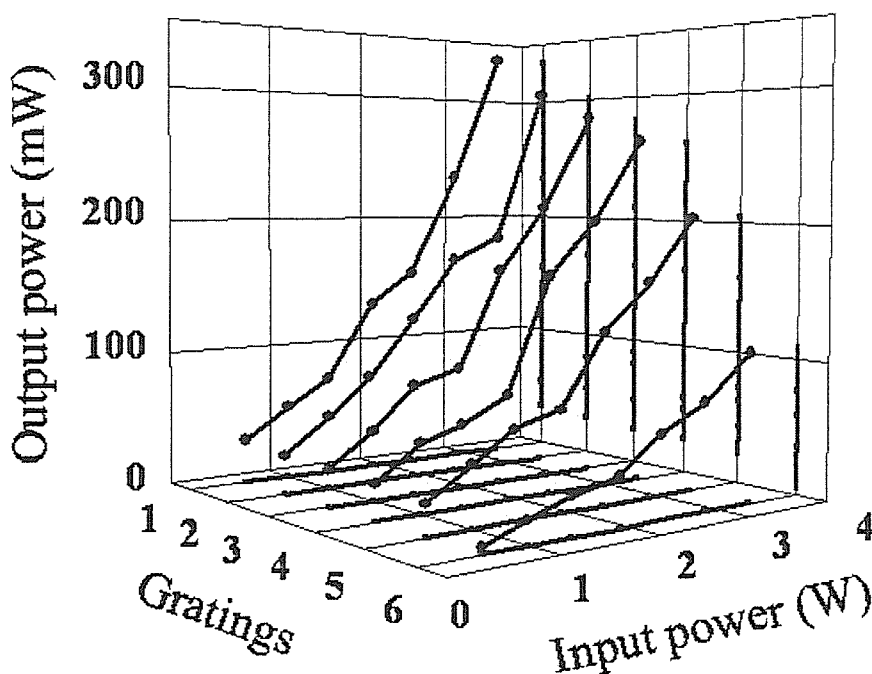


Fig. 3.8 Dependence of OPO output power on the input pump power.

出参量光功率实际上只有信号光功率。在图 3.8 中可以看出在中红外光区域 OPO 的效率明显下降了,原因是 OPO 在简并点附近效率最高,远离简并点效率就会有所下降,另外一个原因是 MgLN 晶体在中红外区域的线性吸收。铁电晶体的线性吸收主要是晶格振动与多光子相互作用引起的, MgLN 晶体在 4 μm 附近线性吸收比较明显^[16]。在输入光功率为 3.4 W, 重复频率为 5 KHz 的条件下,测量了在室温条件下, OPO 输出参量光从 3.6 μm 到 4.1 μm 以 0.1 μm 为间隔,光子的转换效率分别为 9.81%、8.86%、8.26%、7.69%、6%和 2.81%。之所以效率比较低,其中最主要的原因是我们使用的出射腔镜对信号光的反射率太高 (> 99.5%),使得产生的信号光大部分被局域在腔里面损失很大。但同时也有一个明



显的优点：OPO 的阈值非常低（15 mW）。

在这个实验中，我们以二极管泵浦的 Nd:YAG 1064 nm 激光器为泵浦源，采用 PPMgLN 为变频晶体，实现了近中红外区全固态 OPO。得到信号光从 1.44 μm 到 1.58 μm ，闲置光从 3.28 μm 到 4.11 μm 的可调范围。可以通过选用合适的输出腔镜和用更小些的泵浦光束腰得到更高的转换效率。

§ 3.3 多周期极化化学计量比钽酸锂可见光-中红外光 光学参量振荡器

近十几年来，已经有以高功率二极管激光器为泵浦光源，利用电场极化的方法制造周期介电光学超晶格如 PPLT 和 PPLN，以 QPM 方法制造结构紧凑的全固态 OPO。但是因为 CLT 和 CLN 矫顽场比较高（ $> 20\text{KV/mm}$ ），极化比较困难，特别是极化周期小于 10 μm 的结构更加困难，另外受材料本身光折变损伤和可见光引起的红外吸收的影响，制造的 OPO 激光器只能工作在红外光区^[17]。目前也有一些报道用 PPLT 和 PPLN 作为增益介质产生可见光和近红外光，但是输出功率只能处于 mW 量级^[18-20]。采用 PPSLT 样品制备具有高重复频率、高功率和可调范围从可见光到中红外的 OPO 将会是一种新的激光光源，它可以替代目前的激光器应用在从可见光到中红外这一特殊波长范围，从事线性和非线性光谱学研究及一些其它应用。

SLT 晶体^[21]已经在 SHG 和 SFG 产生红光、绿光和蓝光中有所应用^[22-24]。在这些应用中红绿蓝光的峰值功率密度都处在光折变损伤域值 2-3 MW/cm^2 之下。Takaaki Hatanaka 等人制造出了应用 PPSLT 超晶格为频率转换晶体以高功率近红外光（1064 nm）作为泵浦光源的红外 OPO 系统，重复频率为 1 KHz，样品尺寸是 18 mm $\times$ 8 mm $\times$ 1 mm（长 $\times$ 宽 $\times$ 厚），利用 28、29 和 30 μm 的周期在 100 $^\circ\text{C}$ 到 250 $^\circ\text{C}$ 可以实现 1.43-1.457 μm ，1.471-1.51 μm 和 1.533-1.589 μm 的信号光和相应波长的闲置光输出，转换效率为 27%。在该系统正常工作时并没有出现光折变损伤或光折变损伤现象并不明显^[25,26]。PPSLT 光学器件在 U.S. patent 6211999^[21] 中提到在可见光功率密度大于 15 MW/cm^2 时，仍然可以避免光折变损伤和可见光



引起的红外吸收。所以PPSLT超晶格可以作为非常好的变频晶体用来制造高功率可调范围从可见光到中红外的OPO激光器系统。

这一节介绍以 PPSLT 为变频晶体的可见光到中红外 OPO，该 OPO 采用 532 nm 激光器作为泵浦光源，通过改变周期(在周期超晶格中)，并辅助以温度调节的方法，能实现从可见光(650 nm)到中红外(3 μm)宽范围调谐激光输出。并通过设计不同的谐振腔来满足不同的应用需求。由于 SLT 晶体仍然存在比较弱的光折变效应，该 OPO 使用的温度范围在 90°C 以上。

实验中采用的样品是日本 Oxide 公司生产的 SLT 晶体，我们经过室温极化制备出多通道 PPSLT 光学超晶格。样品尺寸为 20 mm $\times$ 8 mm $\times$ 0.83 mm (长 $\times$ 宽 $\times$ 厚)。包含 7 个通道，周期分别为 8、8.5、9、9.5、10、10.5 和 11 μm 。每个周

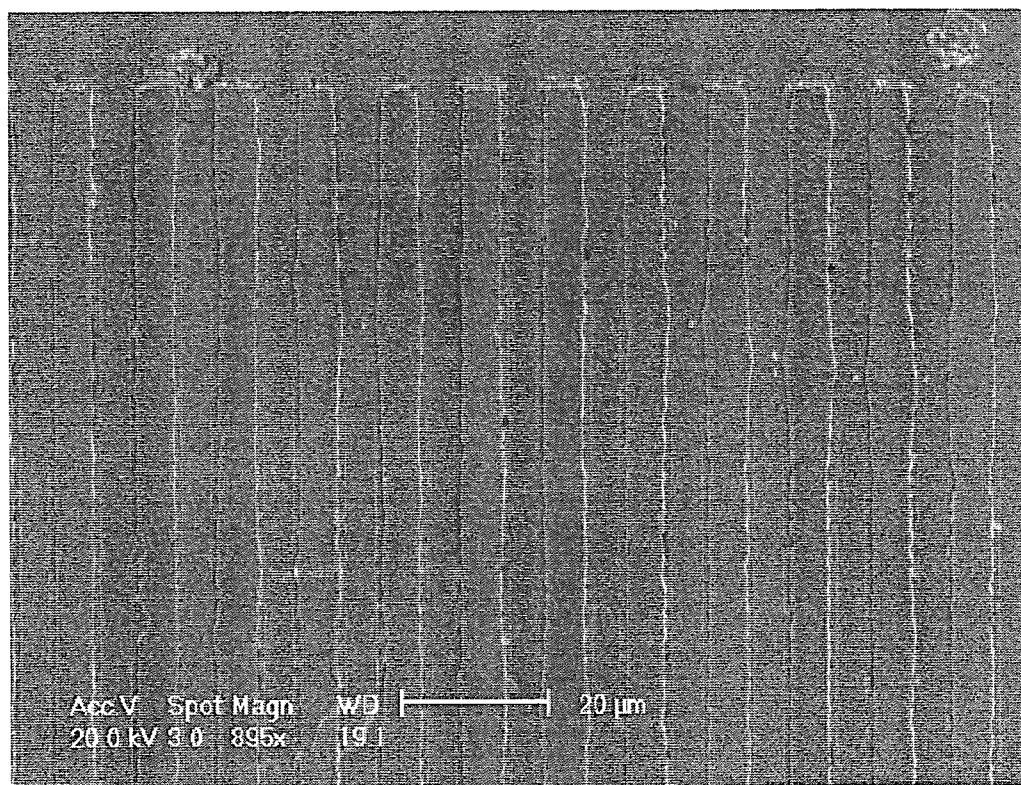


Fig. 3.9 Scanning electron microscope micrograph of etched domain-inverted patterns on the +C surface of the PPSLT in the region with a 11.0 μm grating period.

期宽度 1 mm，各周期间隔 0.1 mm。图 3.9 是 PPSLT 样品+C 面腐蚀图，周期是 11 μm 。正负畴的宽度比约为 1:1，使用了周期结构提供的一阶倒格矢，使转换效率最高。如图 3.10，在 PPSLT 样品的两个端面镀有增透膜(532nm, $R < 1.5\%$; 640-2000 nm, $R < 2\%$)。

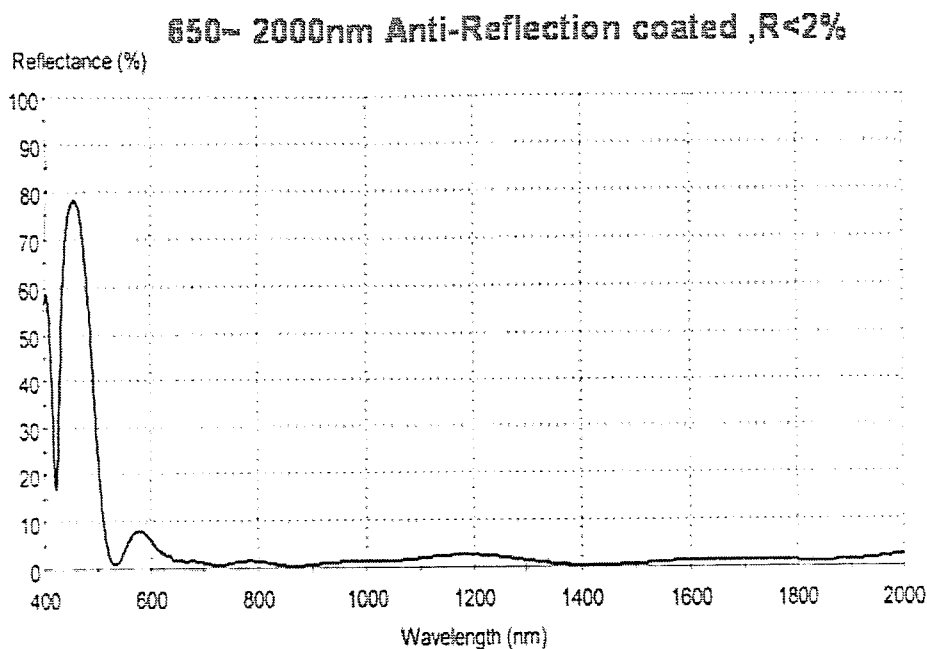


Fig. 3.10 Transparency of PPSLT sample's end face

利用如下 SLT 的 Sellmeier 方程^[27]：来计算样品对不同波长在不同温度下的折射率，

$$n_e^2(\lambda, T) = A + \frac{B + b(T)}{\lambda^2 - [C + c(T)]^2} + \frac{E}{\lambda^2 - F^2} + \frac{G}{\lambda^2 - H^2} + D\lambda^2 \quad (3.9)$$

其中的参数为：

$$A = 4.502483$$

$$B = 7.294 \times 10^{-3}$$

$$C = 0.185087$$

$$D = -2.357 \times 10^{-2}$$

$$E = 7.3423 \times 10^{-2}$$

$$F = 0.199595$$

$$G = 0.001$$

$$H = 7.99724$$

$$b(T) = 3.483933 \times 10^{-8} (T + 273.15)^2$$

$$c(T) = 1.607839 \times 10^{-8} (T + 273.15)^2$$

考虑到 LT 晶体的热膨胀^[28]，

$$\Lambda(t) = \Lambda(25^\circ \text{C}) \times (1 + 1.6 \times 10^{-5} \times (t - 25) + 7 \times 10^{-9} \times (t - 25)^2) \quad (3.10)$$

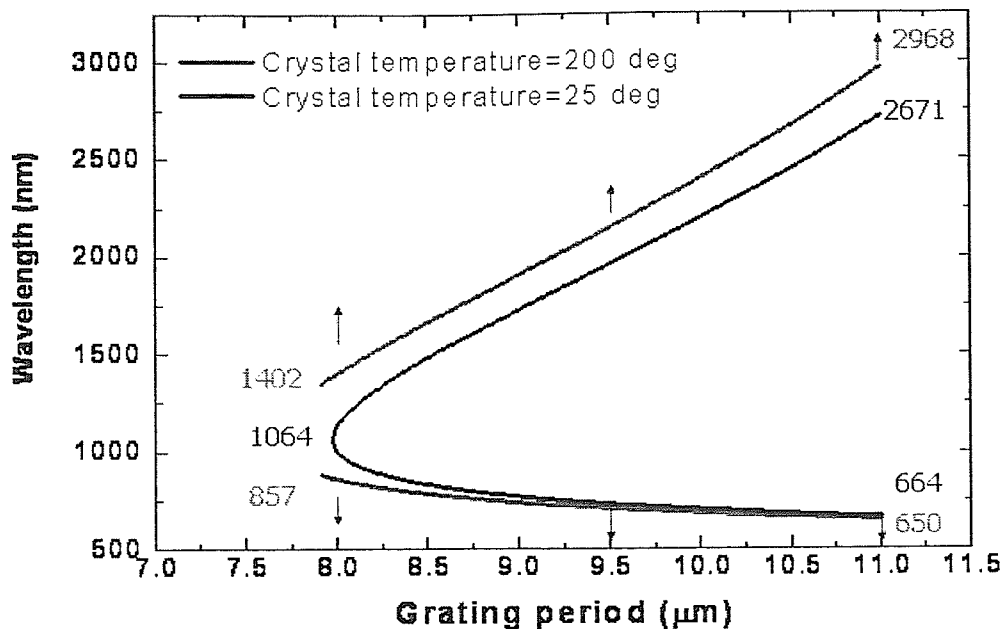


Fig. 3.11 Calculated tuning curve for a 532 nm pumped PPSLT OPO at the temperatures shown.

利用式 3.1、3.4、3.9 和 3.10 可以计算出 PPSLT 样品的温度调谐曲线如图 3.11。以 532nm 绿光为泵浦光，改变温度从 25℃到 200℃利用 7 个通道的周期结构可以实现从 650 nm 到 2968 nm 的可调谐输出。

实验中采用的泵浦源是由一台 Lightwave Electronics 公司生产的二极管泵浦 Nd:YAG 激光器 (Model 210S) 产生 1064 nm 激光，经过一块 Type II KTP 倍频晶体，在 3.5KHz 重复频率可产生 1 W 532 nm 倍频绿光，其脉冲宽度 19 ns。用一个焦距为 150 mm 的透镜将 532 nm 激光聚焦到 PPSLT 样品中，高斯光束束腰为 135 μm ，对应在样品中心的峰值功率密度约 58 MW/cm^2 。PPSLT 晶体放在一个控温炉中，温度控制精度是 $\pm 0.1^\circ\text{C}$ 。在 1 W 输入光的情况下有大约 88% 的 532 nm 光穿过样品。经过分析和计算 12% 的损失是由于菲涅耳反射 (3%)，晶体内部吸收^[20] (4%) 和晶体中的一些散射和衍射 (在长而窄的晶体通道中) 损失 (5%)^[29]造成的。

首先，用如图 3.12 中的谐振腔结构来对 OPO 的波长调谐范围进行测试。谐振腔由一个高反射率 ($R > 99.5\%$) 平面银镜和一片 SLT 晶片组成，两个腔镜之间距离是 70mm。532 nm 光束通过一个 45° 高反镜引入谐振腔，这个高反镜在

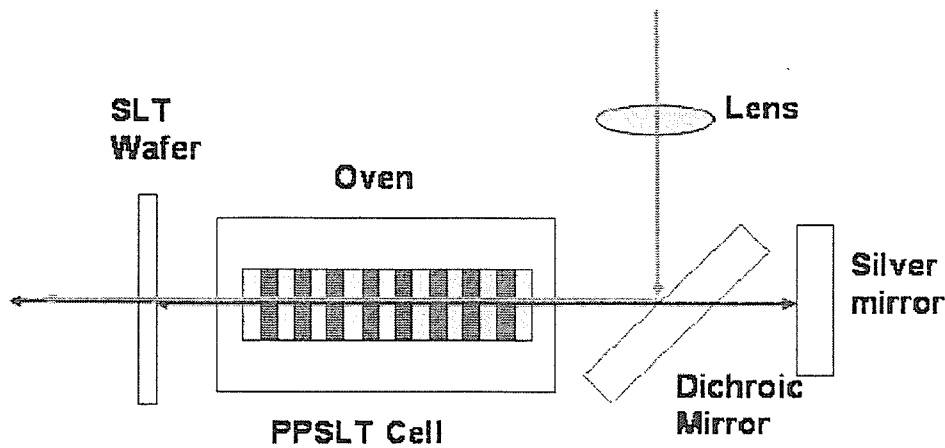


Fig. 3.12 Flat-flat cavity with dichroic mirror inside the cavity, designed for broad tuning operation.

45°入射时，对 532 nm 光反射率大于 99%，对大于 633 nm 波长透过率大于 96%。选择 SLT 晶片作为出射腔镜是因为经过检查它的±C 面抛光很好，而且每个面对可见光和近红外光的反射率基本都在 13% 左右，在这个区间反射率非常平，这个低 Q 值谐振腔很方便我们对 SLT-OPO 的调谐特性进行测试。因为在 SLT 晶体中短波长的信号光损失比长波长的闲置光少，所以这个共振是信号光单共振（SSRO）。出射光的波长用一台光谱分析仪（Agilent Model 86142B）来测量。

室温下，在大于 2 MW/cm² 532nm 光通过 PPSLT 晶体时，发现光折变现象（出射光束扭曲变形），光束的扭曲程度随着晶体温度的升高而降低。我们开始选择周期为 10.5 μm 的通道，在 200℃入射光峰值功率密度~30 MW/cm² 的条件下，产生高强度的深红色（665 nm）信号光。在温度高于 130℃时，各个通道都可以产生非常稳定的共振，低于 130℃阈值明显升高，在低于 90℃时 SLT 的光折变现象破坏了共振，OPO 停止工作。所以我们的测试都是在 130℃以上进行的。出射波长的测量是在入射光峰值功率密度等于 55 MW/cm²（2-3 倍于阈值）条件下测量的。图 3.13 是测量的 130℃和 200℃时各个周期的信号光和闲置光的波长（由于光谱分析仪的原因 1700 nm 以上闲置光波长是根据相应的信号光和泵浦光的波长计算出来的）。信号光的调节范围 648-940 nm，闲置光的调节范围 1230-2980 nm。但是在调节范围中是有间隔的，大范围连续调谐在这台 PPSLT-OPO 上不能实现。使用一个周期更加接近的多通道周期结构是可以弥补

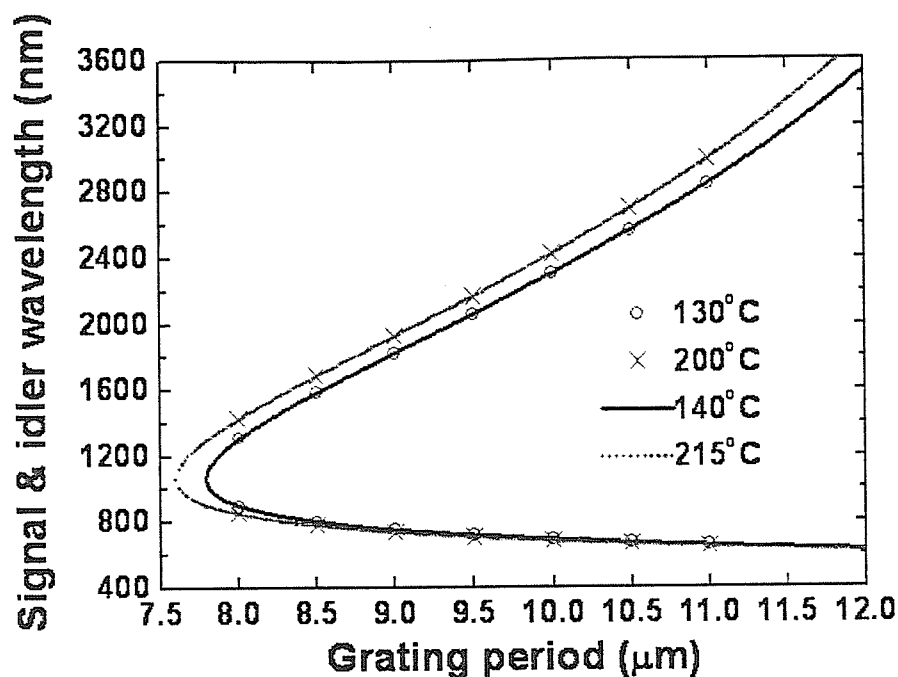


Fig. 3.13 OPO tuning versus PPSLT crystal grating period, measured data (circles and crosses) and calculated tuning curve (solid curve) for a 532.3 nm pumped PPSLT OPO at the temperatures shown. Idler wavelengths above 1700 nm were inferred from the corresponding signal wavelengths.

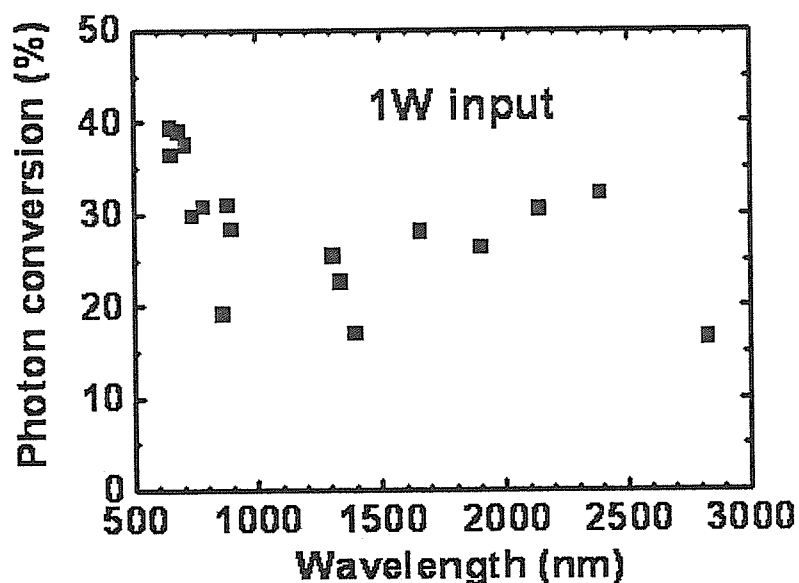


Fig. 3.14 Photon conversion efficiency obtained versus wavelength with the grating periods at 200°C.



这个缺陷的。用文献 15 中的 Sellmeier 方程我们计算了对应实验中的 PPSLT 结构的温度调谐曲线,当计算值和测量值相匹配时,测量值与理论值之间有 10°C - 15°C 的温度差别(理论值温度要高)。这个差别略大于文献 17 中关于 CLT 的报道。

虽然这是个低 Q 值的谐振腔,但还是得到了比较可观的转换效率,从图 3.14 中可以看出光子转换效率大约 $30\pm 10\%$ 。转换效率的起伏主要是因为 PPSLT 晶体各个周期的占空比控制的并不是很好(制备这个样品时还没有很好的掌握多周期的占空比控制方法)。

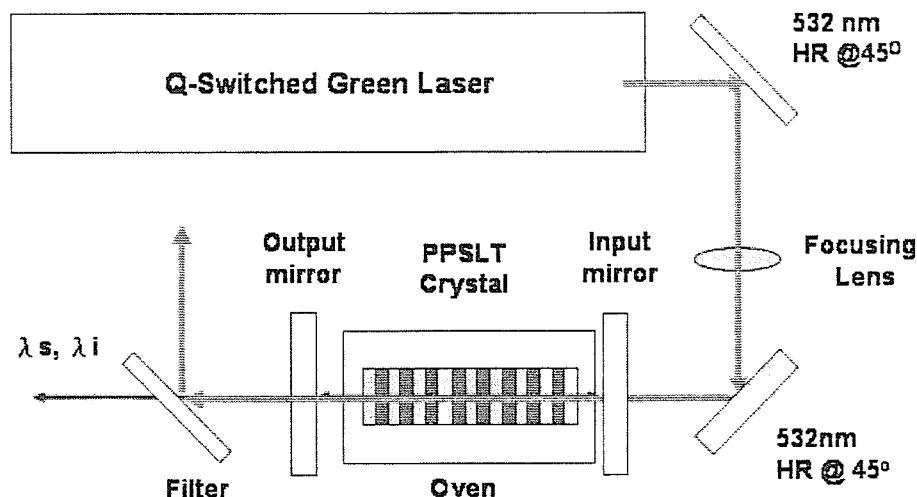


Fig. 3.15 Flat-flat cavity designed for high efficiency.

在研究了 SLT-OPO 的调谐特性之后,架设了一个短的平行平行谐振腔(图 3.15),目的是提高转换效率。入射腔镜对 532 nm 高穿透($> 96\%$)、660-760 nm 反射率 $> 99.5\%$,对闲置光穿透率 $> 90\%$,出射腔镜对 650-800 nm 反射率在 $50\pm 5\%$,腔长 35 mm,功率用一个热敏功率探头测量。在入射光功率大于 OPO 阈值时,信号光和闲置光平均功率随着入射光功率增加而线性增长(图 3.16)。图 3.16 是在信号光波长 708.3 nm,闲置光波长 2141 nm 时测量的。OPO 阈值是 257 mW ($15 \text{ MW}/\text{cm}^2$),在 1 W 泵浦光输入时,最大获得信号光平均功率 370 mW,闲置光平均功率 120 mW,信号光和闲置光的斜率效率分别是 53.5%和 15.6%,相应的泵浦光到信号光和闲置光的光子转换斜率效率是 71%和 63%,这样的转换效率在其它可实现波长上基本都可以实现。图 3.17 是分别用两组腔镜得到的光子转换效率,其中实心方框是用上面讲的一组腔镜得到的,空心圆是使用另一组腔镜(入射腔镜: 800-900 nm, $R > 99\%$; 532 nm, $T > 90\%$,出射腔镜: 800-900

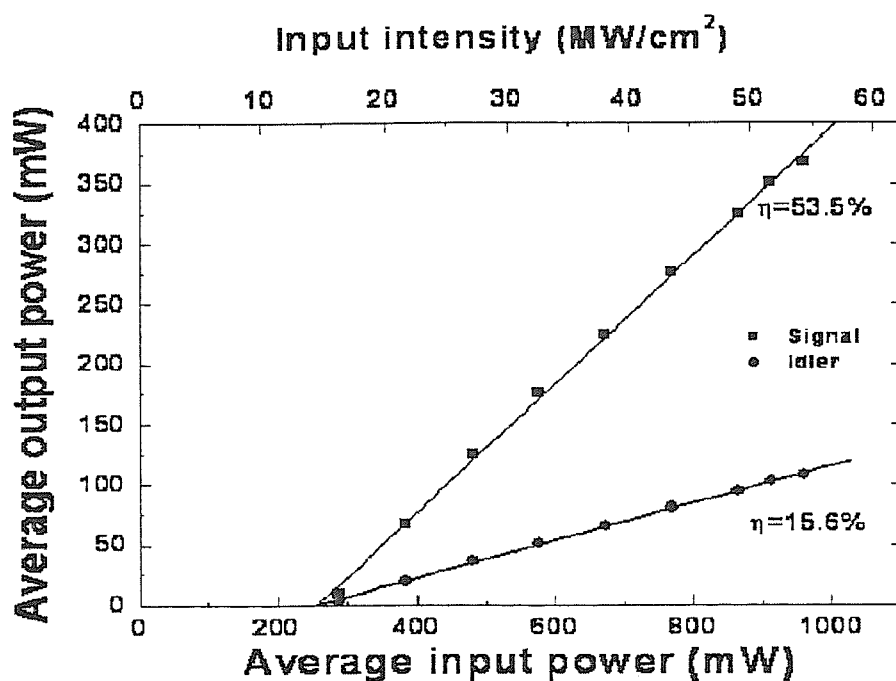


Fig. 3.16 Average signal (708.3 nm) and idler (2141 nm) output power versus the input power at 532 nm for a short optical cavity and output coupling optimized for maximum power; η is the power slope efficiency.

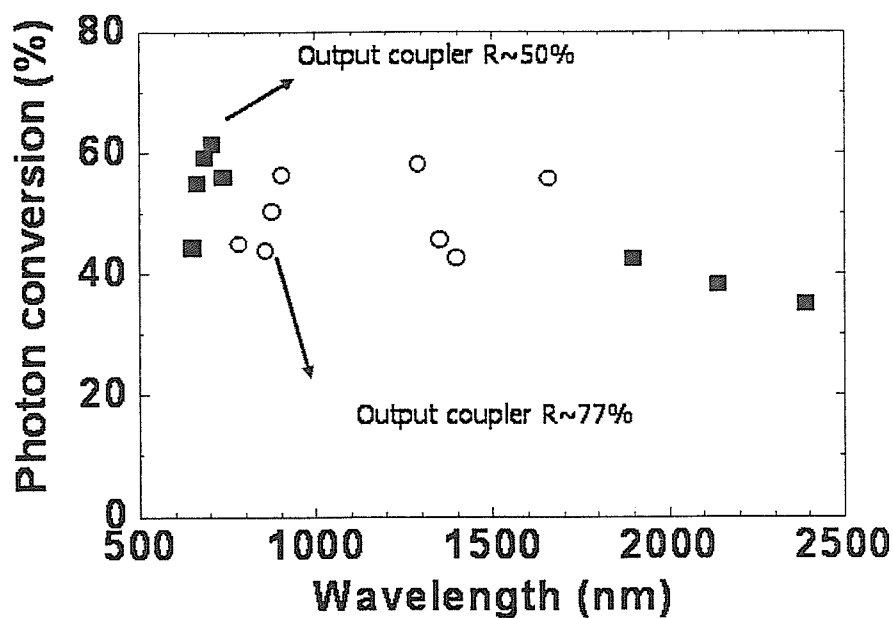


Fig. 3.17 The photon conversion efficiency for every grating period, to cover the wavelength range shown, two sets of optics (filled squares, 660–800 nm; open circles, 800–900 nm) were used.



nm, $R=75\pm2\%$) 得到的结果。

在本实验所有可调谐波长输出功率都非常稳定,在几个小时的测量中功率稳定度在 $\pm 1.8\%$ (图 3.18)。输出信号光在 650-800 nm 范围的线宽 ~ 0.2 nm, 在接近简并点(900 nm 左右)增加到 ~ 1 nm。出射光束的发散角 ~ 5.4 mrad, $M^2\sim 1.5$ 。光束指向稳定度优于 99%, 是一个非常理想的结果。图 3.19 是输出信号光光斑图。

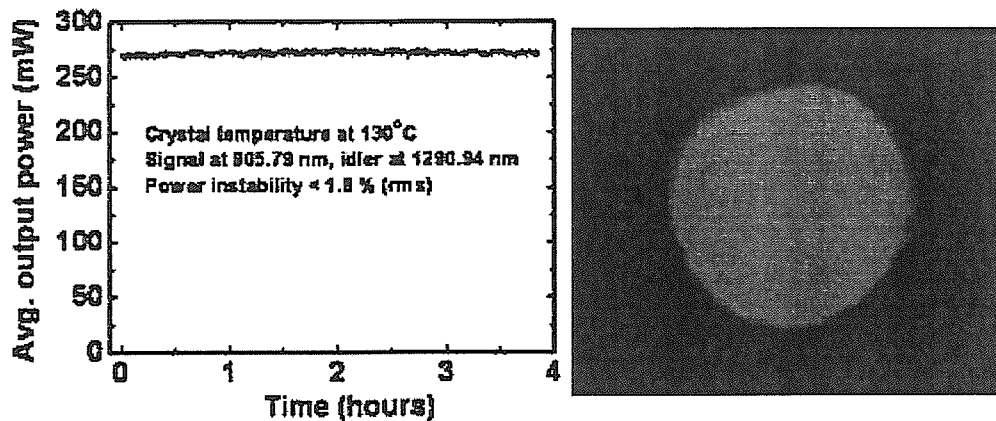


Fig. 3.18 Stability test of the SLT-OPO Fig. 3.19 The facula of the output red light

实验中即使在高温情况下,如果输入泵浦光没有产生参量共振,轻微的光折变现象仍然存在。但是 OPO 工作在两倍阈值以上时,光折变现象消失了,参量光和剩余泵浦光功率和光束稳定度都非常好。我们相信是因为在高的光子转换效率下使泵浦光的功率密度低于光折变损伤阈值,所以光折变现象消失了。使用 PPMgSLT^[30]代替 PPSLT 作为变频晶体,可以抑制在低温条件下的光折变现象,提高 OPO 的调谐温度范围,从而扩大 OPO 的可调谐波长范围,实现连续可调谐,详细情况在下一节做介绍。

线宽是衡量激光特性的一个重要指标,窄线宽激光器是光谱分析的必要仪器。我们研究了输出信号光线宽和谐振腔腔长之间的关系(图 3.20),随着腔长从 3 cm 增加到 9 cm,信号光的线宽由 0.65 nm 变化到 0.23 nm,同时输出光的功率也降低了(245 mW 降到 63 mW)。在平行平行谐振腔中,腔长增加共振角度减小,共振次数变少,所以线宽得以减小,同时 OPO 的效率也会随着降低。为了得到更窄的线宽,我们采用加入光栅的方法来压低输出信号光线宽^[31,40],如图 3.21 将一个 1800 线/mm 的光栅放在光路中的样品出射端,用一个比较大的入射

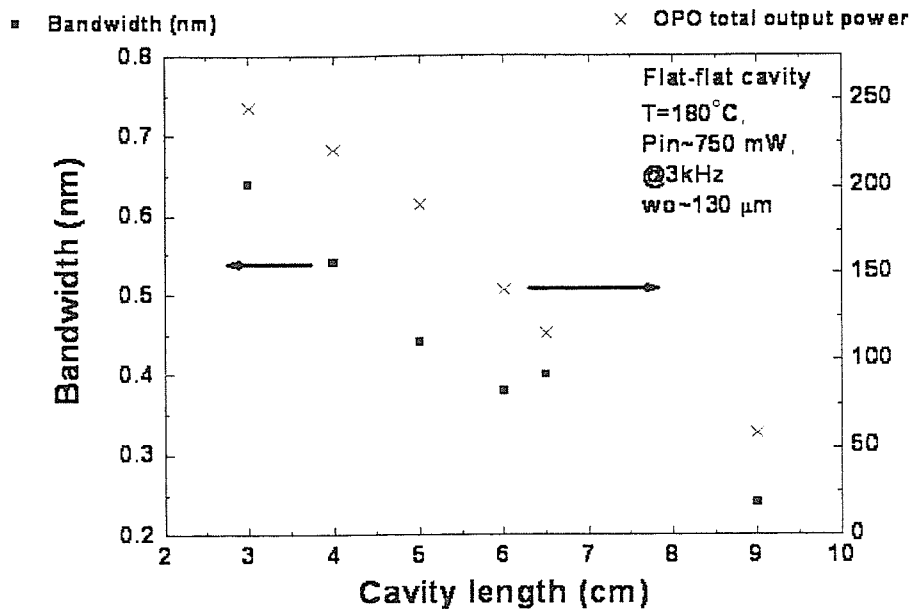


Fig. 3.20 Output signal light bandwidth and output power vs cavity length

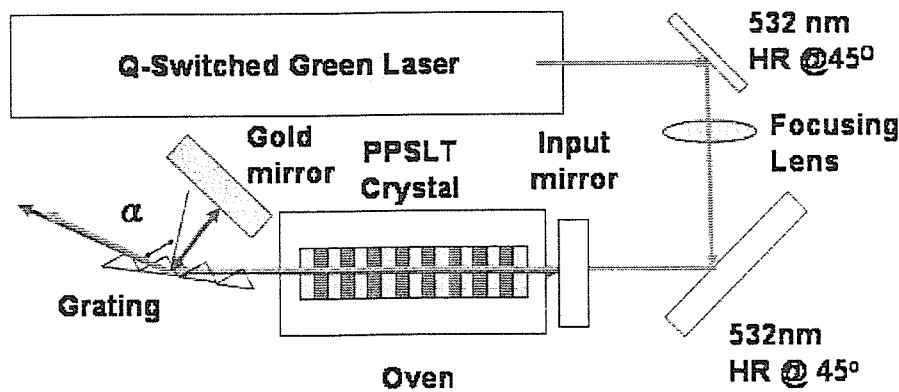


Fig. 3.21 Grazing-incidence cavity for narrow bandwidth

角来分开出射光（光栅对不同波长分光角度不同），用一个金镜将一级衍射的信号光反射回谐振腔形成共振。我们测得平行平行共振腔在信号光波长为 713.6 nm 时线宽是 0.18 nm，使用光栅压缩线宽的方法，在入射角 $\alpha=86^\circ$ 时，同样波长下可以得到 0.06 nm 的线宽（图 3.22）。因为使用的光谱分析仪最小分辨率是 0.06 nm，所以实际线宽很可能比 0.06 nm 要小。在 1 W 泵浦光输入时，输出信号光 35 mW。图 3.23 是在 45° 转角镜和镀银平面反射镜之间加一个扩束镜或一个分光光栅，这样做的好处也是可以得到比较窄的线宽，从而使整个 OPO 系统能够

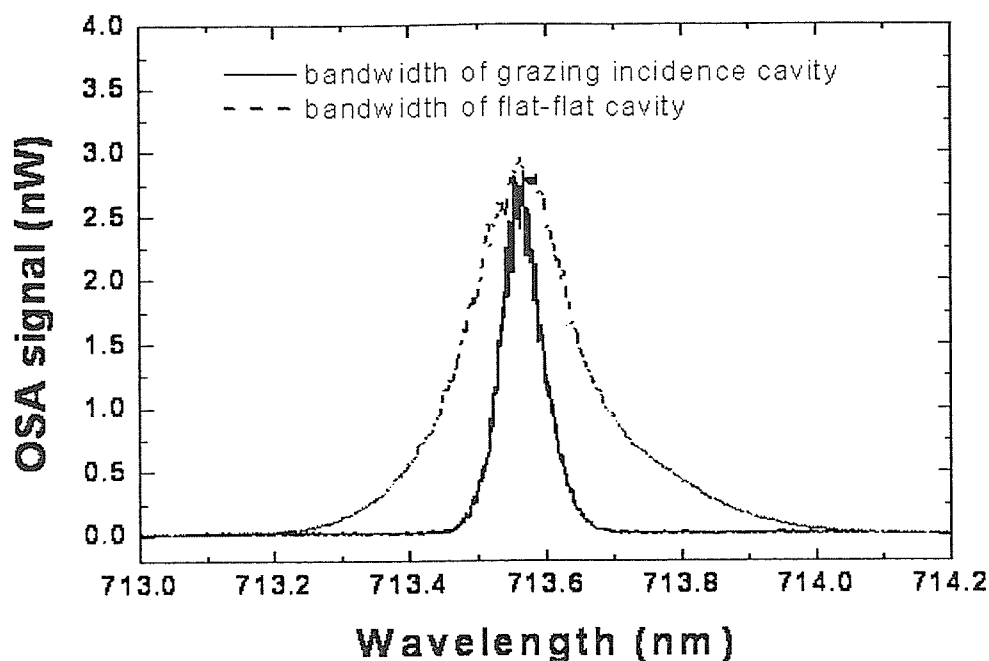


Fig. 3.22 OPO signal bandwidth compared between flat-flat cavity and grazing incidence cavity

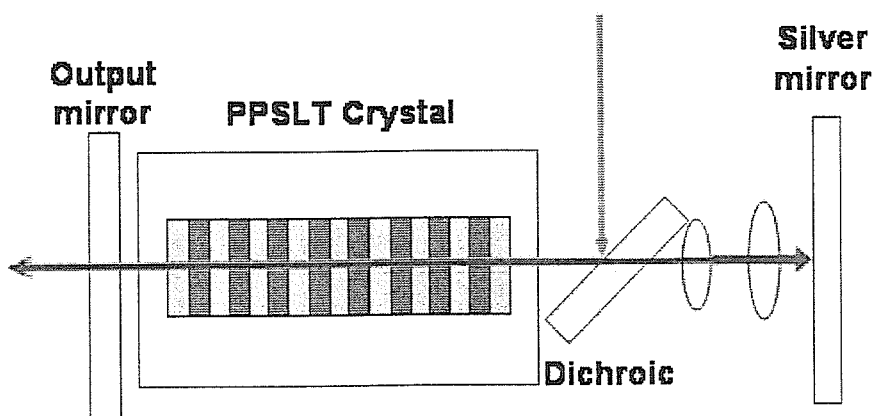


Fig. 3.23 Extender lens system for narrow bandwidth

更好的应用在光谱分析中。

以 532 nm 泵浦的 PPSLT-OPO 具有高效率、方便、环保、耐用、成本低和调节简便等优点。它可以代替现在市场上的染料激光器和钛：蓝宝石激光器作为可调谐激光光源。应用在激光光谱学、物理化学、生物科学研究和生物显微成像等方面。如需要高功率参量光，可以采用比较短的谐振腔。如果需要窄线宽的参量光输出，则可以在谐振腔中加入分光光栅或扩束透镜组的方法实现。



本实验中 PPSLT 晶体表现出了很好的非线性光学性能，OPO 实验得到了很高的转换效率，但是由于在低温区间仍然存在着光折变现象，影响了波长的可调谐范围。对此我们做了相应的改进，选择用 PPMgSLT 来代替 PPSLT 作为变频晶体，以避免光折变现象。由于时间的关系，实验正在进行中，同样采用 8、8.5、9、9.5、10、10.5 和 11 μm 七通道周期结构（图 2.14），表 3.1 是理论计算得到的在 30°C 到 230°C 的 7 个周期的波长调谐范围，在此工作温度范围内以 532 nm 绿光为泵浦光源，可得到从 0.644 μm 到 3.045 μm 的连续可调谐输出。

No.	Period (μm)	30°C signal(μm)	30°C idler(μm)	230°C signal(μm)	230°C idler(μm)
1	8	1.064	1.064	0.837	1.459
2	8.5	0.838	1.457	0.771	1.717
3	9	0.773	1.704	0.730	1.961
4	9.5	0.733	1.938	0.701	2.207
5	10	0.704	2.174	0.678	2.464
6	10.5	0.682	2.421	0.660	2.74
7	11	0.663	2.687	0.644	3.045

Table 3.1 Calculated tuning curve for a 532 nm pumped PPMgSLT OPO at the temperature from 30°C to 230°C.

§ 3.4 周期极化掺镁化学计量比钽酸锂 光学参量振荡器

上一节中介绍了 532 nm 泵浦的 PPSLT-OPO，可以实现信号光的调节范围 648-940 nm，闲置光的调节范围 1230-2980 nm^[41]。但在其调节范围里面是有间隔的，连续可调谐在这台 PPSLT-OPO 激光器上并没有实现。要想实现大范围连续调谐，一种方法是采用一个周期更加接近周期数更多 (> 16) 的多通道结构，但这样做增加了样品的尺寸，提高了成本，也不方便应用，显然并不可取。另外一种解决方法是使用 PPMgSLT 作为变频晶体。文献 43 中报道采用掺镁 1 mol% 的 PPSLT (PPMgSLT) 作为变频晶体，研制出一台 1064 nm 泵浦的红外 OPO，PPMgSLT 表现出比 PPSLT 有更好的抗光折变损伤性能。在其它报道^[23,43,44]中也



有关于 PPMgSLT 在 532 nm 峰值功率密度 21 MW/cm^2 持续照射情况下，仍然没有出现光折变损伤。所以 PPMgSLT 是一种很好的材料，可用于制造室温下工作的 532 nm 泵浦 OPO。本节主要介绍以 532 nm 泵浦的 PPMgSLT-OPO，以单周期结构 MgSLT 晶体作为变频晶体，从室温 (30°C) 到 200°C 温度变化区间，即可实现波长从 855 nm 到 1410 nm 的连续可调谐激光输出，并获得了很高的转换效率，输出信号光平均功率 $> 1\text{W}$ ，峰值功率 $> 5 \text{ KW}$ 。

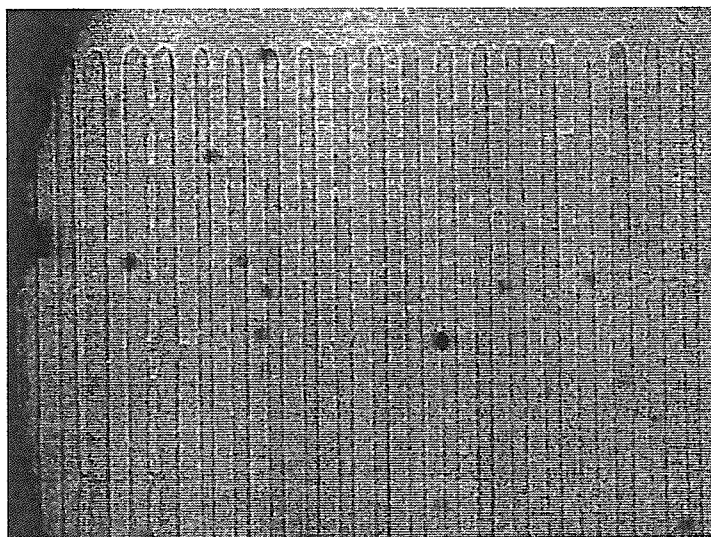


Fig. 3.24 Optical microscope micrograph of etched domain-inverted patterns on the +C surface of PPMgSLT

本实验使用的样品是日本 Oxide 公司生产的 MgSLT 晶体，经过室温脉冲极化方法制备出 PPMgSLT 光学超晶格。样品尺寸为 $20 \text{ mm} \times 1.4 \text{ mm} \times 0.5 \text{ mm}$ (长 $\times$ 宽 $\times$ 厚)，周期为 $8 \mu\text{m}$ ，在光学显微镜下观察极化质量很好 (图 3.24)。在 PPMgSLT 样品的两个端面镀有增透膜 (532 nm : $R < 1\%$; $840\text{-}1400 \text{ nm}$: $R < 1\%$)。PPMgSLT 样品放在一个控温炉中，温度控制精度是 $\pm 0.1^\circ\text{C}$ 。由一台 Lightwave Electronics 公司生产的二极管泵浦 Nd:YAG 激光器产生 1064 nm 激光，经过一块 Type II KTP 倍频晶体，在 6 KHz 重复频率产生 1.65 W 532 nm 的倍频绿光，脉冲宽度为 22 ns 。用一个焦距为 150 mm 的透镜将 532 nm 激光聚焦到 PPMgSLT 样品中，高斯光束束腰为 $115 \mu\text{m}$ ，在样品中心处对应的峰值功率密度约 60 MW/cm^2 。以这样的峰值功率密度打在 PPSLT 样品上时，即使在 200°C 时也造成样品的光折变损伤，但是在 PPMgSLT 上并没有损伤发生。将入射光束移进样品极化区域，在 70°C 也没有发现出射光束的散射和扭曲，虽然在 30°C 时有轻微的扭曲现象，但并没有对

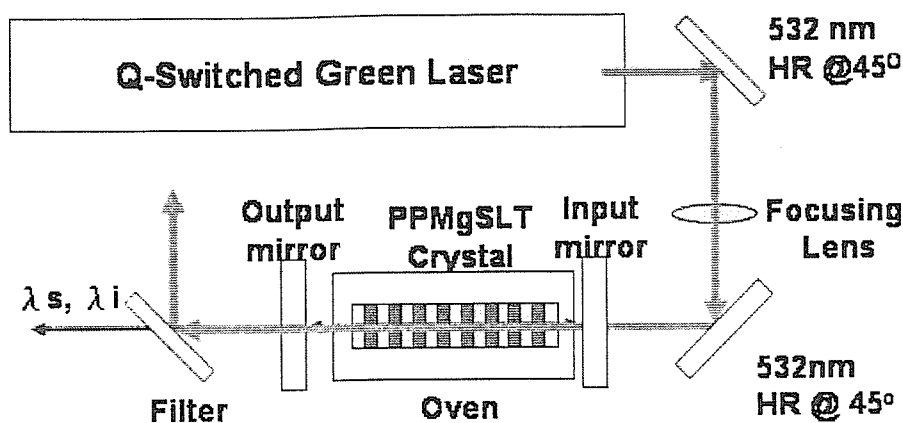


Fig. 3.25 Flat-flat cavity of the PPMgSLT OPO system

OPO 过程产生严重影响,所以 PPMgSLT 是一种非常理想的作为 532 nm 泵浦 OPO 的变频晶体。

实验中采用一个短的平行平行谐振腔来实现共振,腔长 26.5 mm。为了覆盖整个调谐范围,分别使用两个用在不同信号光波段共振的入射腔镜,它们对 532 nm 都是高透射,分别对 800-900 nm 和 900-1000 nm 高反射。两个出射腔镜,一个以 852 nm 为中心最高反射率 75%,在 950 nm 处降到反射率 60%,在 980 nm 处降到反射率 20%,另外一个出射腔镜以 950 nm 为中心最高反射率 50%,用来实现简并点附近的信号光共振。在谐振腔出射端用一个 Pellin Broca 棱镜实现信号光和闲置光的分离,用热敏功率探头来测量平均功率,图 3.25 是 PPMgSLT-OPO 的架构示意图。

用光谱分析仪 (HP86142B) 测量了信号光和闲置光波长随晶体温度变化的调谐情况 (图 3.26)。在这个测量中入射光平均功率保持在 1 W,晶体温度从 30 °C 变化到 200 °C,PPMgSLT-OPO 可以有一个非常宽的连续可调谐范围,从 855 nm 到 1410 nm (包括信号光和闲置光)。使用所选择的腔镜,PPMgSLT-OPO 的效率在整个调谐范围基本是恒定的 (图 3.27)。用光谱分析仪测量了信号光的线宽,因为是腔长很短的平行平行谐振腔,所以出射光的线宽比上面一节介绍的 PPSLT-OPO^[41]稍大。在 855-925 nm 线宽约 0.5 nm,在 1037 nm 处线宽增加到 3.1 nm。在四个温度点 (36 °C、70 °C、135 °C 和 200 °C) 测量了从泵浦光到信号光的转换效率,在 OPO 过程中,很多因素都会影响到系统的转换效率,如出射腔镜的选择 (腔镜的类型,对共振光的反射率等)、谐振腔的结构和信号光的波长都

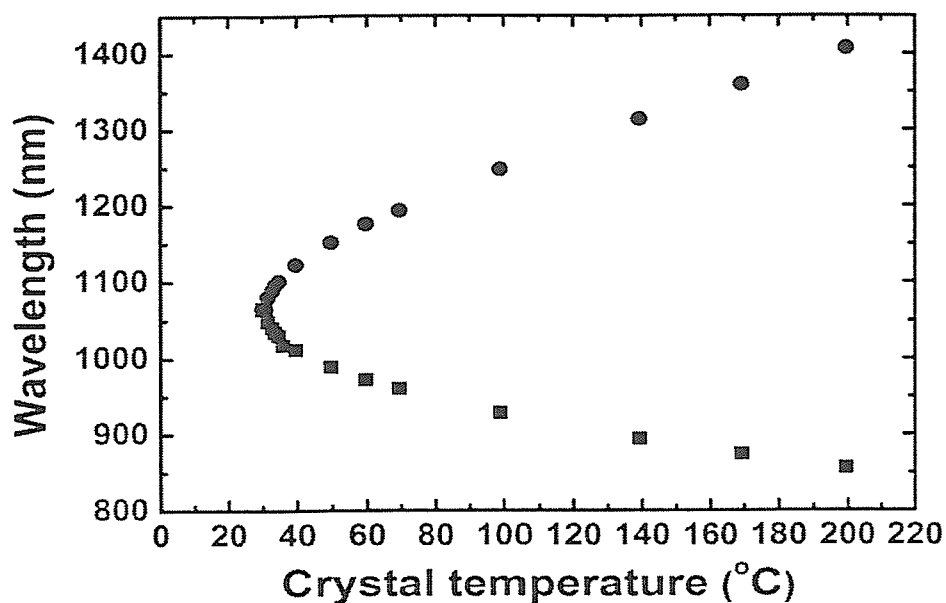


Fig. 3.26 Measured tuning curve of a PPMgSLT OPO with an 8 μm domain period.

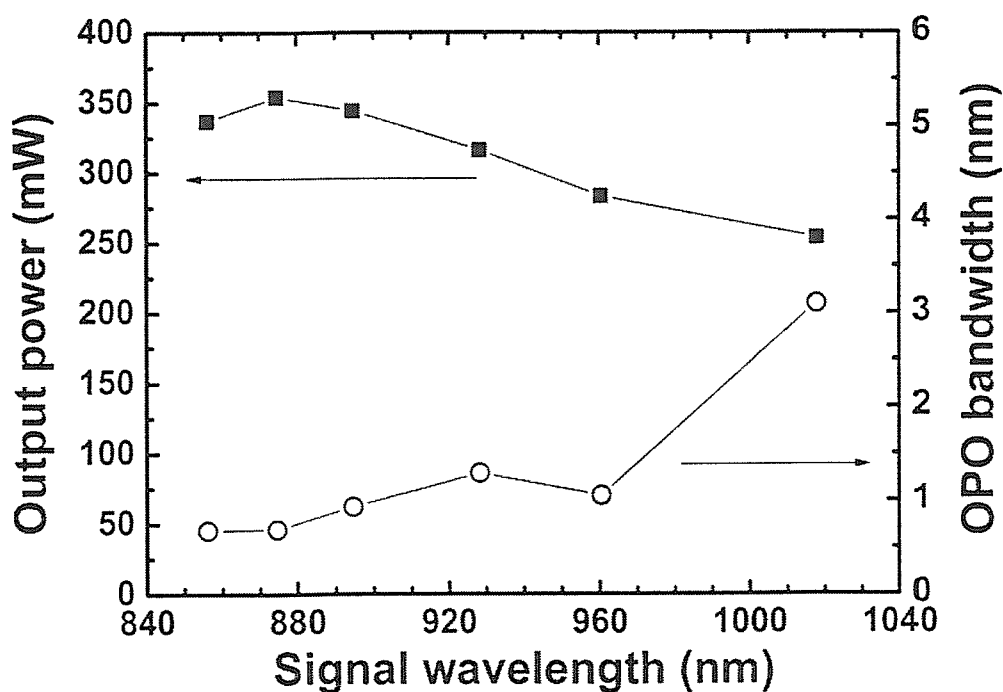


Fig. 3.27 Signal power and bandwidth variation of PPMgSLT OPO at a 1.0 W 532 nm input.

会影响到转换效率，在使用的谐振腔结构条件下，所有的波长可调谐范围效率都很高。从图 3.28 中得到 PPMgSLT-OPO 的阈值大约 7 MW/cm^2 ，温度 36°C 、 70°C 、 135°C 和 200°C 时对应信号光波长是 1017、959、898 和 856 nm，在 1.6 W 的