

密级:_____



中国科学院大学
University of Chinese Academy of Sciences

博士学位论文

高能量皮秒全固态中红外激光技术研究

作者姓名: _____ 徐 红 艳 _____

指导教师: _____ 许 祖 彦 _____ 研究员 _____

_____ 中国科学院理化技术研究所 _____

学位类别: _____ 理学博士 _____

学科专业: _____ 光 学 _____

培养单位: _____ 中国科学院理化技术研究所 _____

2015 年 5 月

Investigation of high energy picosecond diode-pumped
solid-state mid-infrared laser

By
Hongyan Xu

A Dissertation/Thesis Submitted to
The University of Chinese Academy of Sciences
In partial fulfillment of the requirement
For the degree of
Doctor of Sciences

Technical Institute of Physics and Chemistry
Chinese Academy of Sciences

05, 2015

致 谢

本论文的研究工作是在尊敬的导师许祖彦院士的精心安排和指导下完成的。许老师襟怀坦荡的品格、渊博精深的学识、高屋建瓴的洞察能力、严谨求实的治学态度、富于创新的科研精神和忘我的工作作风，使我在科学研究和人生哲学方面都受益匪浅，对我的一生影响极大。谆谆教诲，终身铭记。

特别感谢崔大复老师在学习和生活等多方面给予的帮助，崔老师深厚的理论功底、乐于助人及诲人不倦的精神令我钦佩不已，在此表示最衷心的感谢。

特别感谢张景园老师在学业上给予的细心指导和无私帮助。

特别感谢彭钦军老师、薄勇老师在科研学习中的大力支持，彭老师和薄老师认真投入的工作态度、敏锐的科研思维以及广博的知识都使我受益匪浅。

特别感谢师兄杨峰博士，自我进入课题组以来，一直在杨师兄的直接关怀和指导下开展科研工作。杨师兄严谨的工作态度、富于创造力的科研精神、广博的知识都直接塑造了我的科研素养，是真正的良师益友。感谢我的师姐李芳琴博士、师兄刘可博士和师妹陈莹博士，本论文的很多工作都是在他们的帮助和支持下完成的。

感谢雷文强所长、陈洪斌研究员、高宏伟副研究员、王志敏副研究员、张申金副研究员在学业上给予的大力支持和帮助。

感谢简永刚老师在机械制图和加工方面提供的大量帮助和支持。衷心感谢师兄及师姐宗楠博士、徐一汀博士、杨晶博士、王志超博士、徐建博士、张丰丰博士、申玉博士在工作、学习和生活上的帮助和指导。感谢我的同学、师弟和师妹王明强、赵巍、代世波、薛正伟、郭川、卞奇、龚柯菱、许昌、陈明、李帅、何苗、李家佳在工作上提供的支持。

特别感谢我的同窗好友涂玮博士、陈中正博士、郑建奎硕士、于海波博士五年来如同兄弟姐妹般的关爱和鼓励以及在工作生活中的大力支持，使我的博士生活更精彩。

感谢激光中心许家林博士、袁磊博士、杜仕峰博士、韩琳博士、高伟男博士、杜仕森博士、巩珂博士、左军卫博士、王保山博士、田昌勇博士、郭亚丁硕士、许凤良硕士、林延勇硕士、梁青硕士、肖云升、王秀良、杨凤图、王中文、刘钊、

冯晓瑜、李利博、王耀华、郝伟、田雅聪、赵璇、李晨龙、王浩、姚吉、赵玉玲、孙龙、赵硕在工作中给予的热情帮助。

感谢人教处贾军老师、姜柳老师、李云阁老师、丁黎老师在学业上的帮助。正是有了许多老师及朋友的帮助，本论文工作才得以顺利完成。在此向所有培养和帮助过我的老师、同学和朋友们致以深深的敬意和诚挚的感谢！衷心感谢我的父母多年来对我的培养、理解和支持。

感谢参与论文评阅和答辩评审的各位专家教授

徐红艳

2015 年 5 月

高能量皮秒全固态中红外激光技术研究

摘 要

波长介于 2-20 μm 的中红外光谱覆盖了重要的大气窗口, 并且涵盖了许多分子气体、有毒试剂、空气、水和土壤污染物、人类呼吸成分以及多种爆炸性试剂的吸收峰, 因此该波段在大气监测、光学遥感、光谱分析、空间光通信、环保、医疗、光电对抗等领域有着重大的应用价值, 已成为国内外广泛研究的热点。光学参量技术(OPG/OPA/OPO)因具有增益高、热效应低、波长调谐范围宽、放大脉冲对比度高、量子效率高、光束质量好等优点而引起了人们巨大的研究兴趣。基于成熟的 $\sim 1\ \mu\text{m}$ 近红外激光泵浦中红外非线性光学晶体实现频率下转换的光参量激光技术已成为获得精密化实用化中红外激光源的最有效方法之一。本论文围绕中红外光学参量技术进行了理论和实验研究, 基于多种中红外非线性光学晶体(KTA、PPLN、BGSe 等)的中红外激光性能表征与评估, 研制了系列化多波长/多波段中红外光参量激光器, 取得了一系列创新性先进成果:

1. 利用皮秒光参量放大理论模型, 对中红外光参量激光放大进行了数值计算和理论分析。考虑了泵光损耗、空间走离和群速失配等因素的影响, 模拟了不同泵浦能量下, 参量激光的输出能量、时间波形以及晶体长度对参量转换效率的影响。

2. 首次研制了基于 KTA 晶体的大能量 3.5 μm 皮秒中红外光参量放大器。基于 BBO-OPG/OPA 种子激光注入 KTA-OPA, 实现了大能量、高峰值功率 3.5 μm 激光产生及 2.9~3.6 μm 宽调谐激光输出。泵浦光源为脉宽 30 ps 的 Nd:YAG 激光器, 运转脉冲重复频率为 10 Hz。在注入种子能量为 230 μJ 和泵浦能量为 18.4 mJ 时, 获得 1.85 mJ、峰值功率约 92.5 MW 的 3.5 μm 激光输出, 对应闲频光转换效率 10.1%, 光子转换效率 33.1%, 实验数据与理论计算符合较好。

3. 首次研制了基于大孔径 MgO:PPLN 晶体的 3.9 μm 皮秒中红外光参量激光放大器。采用 BBO-OPG/OPA 种子注入 MgO:PPLN-OPA 结构, 在泵浦能量 15.2 mJ 时, 获得输出能量 1.14 mJ 的 3.9 μm 中红外激光输出, 对应 3.9 μm 闲频光的转换效率 7.5%, 光子转换效率 27.5%, 信号光和闲频光总的光子转换效率 55%;

进一步对比了 MgO:PPLN-OPG 与种子注入 MgO:PPLN-OPA 激光输出特性。结果表明,与 MgO:PPLN-OPG 相比,OPA 具有较低的泵浦阈值,更高的输出能量,以及较窄的光谱宽度。例如对于 5.1 mm 长的 MgO:PPLN 晶体,其 OPG 的阈值是 OPA 的 13 倍;在泵浦能量 10 mJ 时,OPA 的闲频光输出能量是 OPG 的 45 倍;产生的信号光的光谱宽度由 OPG 的 77 nm 减小到 30 nm。

4. 首次研究了新型非线性光学晶体 BGSe 的中红外光参量激光输出性能及应用前景。理论计算了 BGSe 晶体 I 类及 II 类中红外相位匹配特性曲线,并实验修正了 BGSe 晶体的相位匹配角。基于 BBO-OPG/OPA 种子注入 BGSe-OPA,实现了高效率、高峰值功率 3.9 μm 激光产生及 3~5 μm 宽调谐激光输出。其中,在泵浦能量为 1.8 mJ 时,3.9 μm 闲频光的光子转换效率达 56%;在泵浦能量为 9.1 mJ 时,获得 3.9 μm 激光输出能量 830 μJ ,峰值功率约 41.5 MW。进一步地,基于 KTP-OPG/OPA 种子注入 BGSe-OPA,实现了高效率、高峰值功率 7.8 μm 激光产生及 6.4~11 μm 宽调谐激光输出。其中,在泵浦能量为 9 mJ 时,获得 7.8 μm 激光输出能量 125 μJ ,峰值功率约 6.3 MW。证实了 BGSe 晶体在宽调谐中红外激光产生方面的优异性能。

关键词: 中红外激光, 光参量产生与放大, 非线性晶体, 可调谐激光

Investigation of high energy picosecond diode-pumped solid-state mid-infrared laser

Hongyan Xu (Optics)

Directed by Prof. Zuyan Xu

Abstract

The mid-IR spectrum, which may be defined as wavelengths between 2 μm to 20 μm , covers important atmospheric windows, and numerous molecular gases, toxic agents, air, water, and soil pollutants, components of human breath, and several explosive agents have strong absorption fingerprints in this region. So the mid-IR laser are vital for applications in atmospheric monitoring, remote sensing, spectroscopy, laser communication, environment, medicine and countermeasure, and have been intensively studied by researchers. The optical parametric technique (OPG/OPA/OPO) has attracted great interests because of its high gain, low thermal effect, wide tuning range, high signal-to-noise ratio, high quantum efficiency and high beam quality. The parametric frequency down-conversion based on nonlinear crystals pumped by a commonly available $\sim 1 \mu\text{m}$ laser has been proved to be an effective way to obtain mid-IR radiation. In this dissertation, detailed investigations on mid-IR optical parametric technique are presented in theory and experiment, and series of multiple wavelength / multiband mid-IR lasers are investigated based on the laser characterization and evaluation of many mid-IR nonlinear crystals (KTA, PPLN, BGSe). The main results are as follows:

1. The mid-IR optical parametrical laser amplifier was theoretically analyzed and studied using the theoretical model of the picosecond (ps) OPA. Taking account of pump depletion, spatial walk-off and group velocity mismatch (GVM), we calculated the output of parametrical laser, temporal waveform and the influence of crystal length on the conversion efficiency under different pump energies.
2. The high energy ps mid-IR OPA at 3.5 μm base on KTA was investigatd for the first time. A high energy and high peak power laser at 3.5 μm and a 2.9-3.6 μm

idler tuning range was demonstrated based on the KTA-OPA seeded by BBO-OPG/OPA. The pump laser was a Nd:YAG laser with pulse duration of 30 ps at a repetition rate of 10 Hz. With the seed energy of 230 μJ and a pump energy of 18.4 mJ, the output energy of 3.5 μm idler wave were obtained to be 1.85 mJ with peak power of 92.5 MW, which corresponds to an conversion efficiency of 10.1%, and a photon conversion efficiency of $\sim 33.1\%$, and the calculated results meet the experimental data well.

3. A ps MIR OPA at 3.9 μm based on large aperture MgO:PPLN crystal was demonstrated for the first time. Output energy of 1.14 mJ at 3.9 μm has been obtained based on seed-injected KTA-OPA at pump energy of 15.2 mJ, corresponding to pump-to-idler conversion efficiency of almost 7.5% and a photon conversion efficiency of 27.5%. The total OPA photon conversion efficiency, including both the signal and idler, was $\sim 55\%$. Furthermore, the performance of MIR OPG without seed injecting in MgO:PPLN was also investigated for comparing with the seeded OPA. Compared with the OPG characteristics in MgO:PPLN, the seeded-OPA configuration can reduce the pumping threshold significantly, e.g., the pump threshold of the OPA is almost 13 times lower than that of the OPG in the 5.1 mm length crystal. Moreover, its OPA idler energy is 45 times higher than OPG idler energy under pump energy of 10 mJ, and the spectral width (FWHM) of the signal spectral purity was narrowed from about 77 to 30 nm.

4. The performance and prospect of MIR OPA with a new nonlinear crystal BaGa₄Se₇ (BGSe) is demonstrated for the first time. The type-I phase matching and type-II phase matching of BGSe crystal in mid-IR was calculated, and phase-matched angles of idler generation in BGSe crystal were measured in experiment. A high efficiency and high peak power laser at 3.9 μm and a 3-5 μm idler tuning range was demonstrated based on the BGSe-OPA seeded by BBO-OPG/OPA. The maximum photon conversion efficiency of 56% has been achieved at the pump energy of ~ 1.8 mJ. A maximum idler output of 830 μJ at 3.9 μm with peak power of ~ 41.5 MW was obtained at pump energy of ~ 9.1 mJ. In addition, a high energy and high peak power laser at 7.8 μm and a 6.4-11 μm idler tuning range was demonstrated based on the BGSe-OPA injected by KTP-OPG/OPA. The maximum output energy at 7.8 μm is ~ 125 μJ with the peak power of ~ 6.3 MW under pump energy of ~ 9 mJ. The results show that the BGSe is an excellent candidate for generating widely tunable radiation

in the MIR region.

Keywords: MIR laser, optical parametric generation and amplifier, nonlinear crystal, tunable laser

目 录

致 谢..... I

摘 要.....III

Abstract..... V

目 录..... VIII

第一章 绪论.....1

1.1 中红外激光发展及现状.....1

1.2 主要中红外非线性光学晶体.....2

1.3 全固态中红外光参量激光研究现状.....6

1.4 本文主要研究内容.....9

参考文献.....10

第二章 非线性光学参量过程的理论模型.....20

2.1 非线性光学频率变换基础理论.....20

2.2 光学参量效应(OPG/OPA/OPO).....24

2.3 非线性光学晶体双折射相位匹配及准相位匹配技术.....25

2.3.1 双折射相位匹配.....25

2.3.2 准相位匹配(QPM)34

2.4 超短脉冲光参量放大数值理论模型.....37

2.5 本章小结.....41

参考文献.....41

第三章 基于 KTA 晶体的皮秒中红外光参量放大研究.....44

3.1 KTA-OPA 理论分析.....44

3.1.1 KTA 晶体简介.....44

3.1.2 KTA 晶体中红外光参量特性.....46

3.2 基于 KTA 晶体高能 3.5 μm 激光输出及 2.9~3.6 μm 调谐特性研究.....49

3.3 本章小结.....57

参考文献.....58

第四章 基于 MgO:PPLN 晶体皮秒中红外光参量放大研究61

4.1 MgO:PPLN-OPA 理论分析	61
4.1.1 MgO:PPLN 晶体简介	61
4.1.2 MgO:PPLN 晶体中红外光参量特性	65
4.2 MgO:PPLN-OPA 实验研究	69
4.2.1 MgO:PPLN-OPA 的实验装置	69
4.2.2 基于 MgO:PPLN 晶体高能 3.9 μm 激光输出研究	69
4.3 本章小结	75
参考文献	75
第五章 基于新型中红外 BGSe 晶体的皮秒中红外光参量放大研究	78
5.1 BGSe 晶体简介	78
5.1.1 BGSe 晶体简介	78
5.1.2 BGSe 晶体非线性光学特性研究	80
5.2 BGSe-OPA 实验研究	83
5.2.1 I 类相位匹配 BGSe-OPA 3.9 μm 及 3~5 μm 宽调谐激光输出研究 ...	83
5.2.2 I 类相位匹配 BGSe-OPA 7.8 μm 及 6.4~11 μm 宽调谐激光输出研究	86
5.2.3 II 类相位匹配的 BGSe-OPA 3.9 μm 激光产生	90
5.2.4 BGSe 晶体中红外光参量产生相位匹配角修正	93
5.3 本章小结	95
参考文献	95
第六章 总结	98
作者简历	100
攻读学位期间发表的学术论文与研究成果	101
学位论文声明	105

第一章 绪论

波长介于 2-20 μm 的中红外光谱覆盖了 3-5 μm 和 8-12 μm 两个重要的大气窗口，并且涵盖了许多分子气体、有毒试剂、空气、水和土壤污染物、人类呼吸成分以及多种爆炸性试剂的吸收峰，因此该波段在大气监测、光学遥感、光谱分析、空间光通信、环保、医疗、光电对抗等领域有着重大的应用价值，已成为国内外广泛研究的热点[1-5]。

1.1 中红外激光发展及现状

自从第一台激光器诞生[6]到现在激光技术已经发展了 50 多年的时间，目前产生中红外激光的方法主要可以分为两类。一类是基于激光效应实现的激光器如气体激光器、化学激光器、自由电子激光器、半导体量子级联激光器和固体激光器等。其中，(1)气体激光器，如 CO_2 激光器在 9.2~10.8 μm 具有分立谱线，产生的平均功率可大于 10 kW，其缺点是高能量输出时体积大、造价高；(2)化学激光器在 3~3.3, 3.5~4.2, 4.0~4.7 μm 波段具有分立谱线，可实现高功率输出，缺点是体积大，安全性差；(3)自由电子激光器和半导体量子级联激光器[7, 8]，理论上波长范围极宽（可覆盖整个中红外波段），但目前尚在发展；(4)固体激光器[9-11]，目前缺乏能够有效产生高功率中红外激光的增益介质是其面临的主要问题。另一类产生中红外激光的方法是基于非线性光学效应[12]如光参量变换(OPG/OPA/OPO)、差频(DFG)、倍频(SHG)、和频(SFG)等方法实现的中红外激光器。其中，利用光参量变换和差频可产生宽调谐的中红外激光，而倍频、和频可实现中红外波长内部调谐。

与其他产生中红外的激光器相比，以近红外全固态激光器(DPL)为泵浦光源，通过光参量效应实现频率下转换获得全固态中红外激光的方法具有许多优点。首先，作为泵浦光源的全固态激光器具有体积小、重量轻、结构紧凑、可靠性高、运转方式灵活（脉宽 CW-fs，重频 1Hz-GHz，窄线宽）、光束质量好、电驱动、无污染等优点。而利用非线性光学晶体的光参量效应实现频率下转换具有调谐范围宽、结构紧凑、效率高、全固化、可实现高能量或高功率的优势。所以该方法成为发展中红外激光的有效途径。1 μm 近红外全固态激光器已较为成熟，

中红外激光产生主要受限于非线性光学晶体及其相应变频激光技术。近年来,随着高质量中红外晶体生长工艺的发展,利用 OPO、OPA、OPG、DFG 等方法产生的中红外激光在功率、效率、调谐范围、光束质量等各方面取得了巨大的进步。2001 年,新加坡 DSO 国家实验室利用调 Q Nd:YALO 激光器泵浦 KTA-OPO[13],获得 4.1W 的 3.5 μm 激光输出。2004 年,德国 k. finsterbusch[14]等人利用 PPLN-OPO 种子注入的 KTP-OPA,获得 1.56-3.24 μm 的参量光输出,进一步利用 GaSe 和 CdSe 将 OPA 产生的信号光和闲频光差频,产生调谐范围 3-24 μm 的中红外输出。2014 年,意大利 Pavia 大学的 Riccardo Piccoli[15]等人利用 1064 nm 泵浦的皮秒 HgGa₂S₄-OPG,获得了调谐范围 3.85-10 μm 的闲频光输出。此外,准相位匹配(QPM)技术具有可以克服传统双折射相位匹配中的走离效应,增大非线性晶体的有效相互作用长度,并且能充分利用其最大的非线性系数的优势。近十几年来,周期极化晶体如 PPKTP、PPKTA、PPLN、PPRTA、PPLT 等,已经广泛应用于连续或中低峰值功率脉冲运转的中红外激光源中[16-18]。借助大孔径的 MgO:PPLN 晶体,ns 脉冲运转的 OPO 输出信号光和闲频光能量可达 77 mJ[19],ps-OPO 也可输出平均功率 12 W 的信号光和空闲光[20]。目前中国工程物理研究院应用电子学研究所利用 1064 nm 激光器泵浦的 3 mm 厚 MgO:PPLN-OPO,获得了 27.4 W 的 3.91 μm 闲频光输出[21]。另一方面,由于受到非线性晶体的破坏阈值、透光范围以及高质量、大尺寸中红外晶体生长技术的限制,8-12 μm 长波大气窗口的中红外激光在国内外研究还相对较少,已有报道中,基于 AgGaSe₂ 晶体的 OPO 已经实现了 8.5 μm 附近输出能量高达 6.5 mJ [22]。国内哈尔滨工业大学也成功实现了功率 170 mW、8.3 μm 的 ZGP OPO 输出[23]。另外,利用 GaSe 等晶体的 DFG 或 OPG 可以实现覆盖整个中红外波段的连续可调谐输出[24, 25]。

1.2 主要中红外非线性光学晶体

非线性晶体是中红外光参量激光器的关键,要实现中红外激光的有效运转,非线性晶体的选择要遵循以下几个原则:

- (1) 宽的红外透光范围,特别是在宽透光波段上要具有小的吸收;
- (2) 高的非线性光学系数;

- (3) 能够用成熟的 DPL 波长进行泵浦并具有宽的相位匹配范围;
- (4) 高的激光损伤阈值;
- (5) 高热导率 (高功率运转);
- (6) 良好的物理化学性能及机械稳定性;
- (7) 容易获得大尺寸优良晶体。

目前, 适用于中红外的非线性晶体很多, 如 LiNbO_3 (LN), KTiOPO_4 (KTP), KTiOAsO_4 (KTA), $\text{AgGaS}_2/\text{Se}_2$ (AGS/Se), ZnGeP_2 (ZGP), LiInS_2 (LIS)以及 GaAs 等等。周期极化的晶体有 PPLN, MgO:PPLN , PPLT, PPKTP, PPKTA 等等。表 1.1 列出了一些常见的红外晶体的光学参数。

按照晶体组成元素不同, 非线性晶体可分为氧化物晶体和半导体型非线性晶体。

(1) 氧化物晶体

① 铌酸锂(LN)和周期性极化铌酸锂(PPLN)

LN 晶体透光范围为 $0.42\text{--}5.2\ \mu\text{m}$, 具有较高的非线性系数, 较高的损伤阈值, 在 $1\text{--}4\ \mu\text{m}$ 波段吸收系数较小 $<0.06\ \text{cm}^{-1}$, 可以生长成高光学质量的晶体, 容易抛光, 物理性能稳定, 是最早应用于非线性频率变化的晶体之一[26, 27]。然而, 当 KTP、BBO 和 LBO 等更多比其效率和抗损伤阈值更高的晶体被应用后, LN 应用逐渐减少。1962 年, N.Blembergen 等人提出了周期性极化材料中的准相位匹配技术[28]。但是, 由于当时缺乏周期极化的方法而阻碍了这一技术的发展。近年来, 随着周期极化方法的发展, PPLN 材料得到了极其广泛的应用。

铌酸锂晶体最重要的缺点之一就是容易受光折变损伤的影响[29]。通常消除这一效应的方法是提高晶体的温度。另一种防止光折变损伤的方法是向晶体中掺杂 MgO (通常为 5 mol%)。掺杂后 LiNbO_3 的矫顽场数值比未掺杂 LiNbO_3 低得多, 损伤阈值比未掺杂晶体高约 100 倍[30, 31]。

② 磷酸钛氧钾(KTP)和砷酸钛氧钾(KTA)

KTP 晶体透光波段为 $0.35\text{--}4.5\ \mu\text{m}$, 属于双轴晶体, 不易潮解, 物化性能稳定, 能生长出较大尺寸, 损伤阈值较高。KTP 晶体在 $0.45\text{--}2.8\ \mu\text{m}$ 波长范围内具有较高的透过率($>85\%$), 但在 $3500\text{--}4000\ \text{nm}$ 波长范围内透过率较低, 尤其在 $2838.8\ \text{nm}$ 和 $3485.4\ \text{nm}$ 处还存在两个很严重的吸收峰, 这对于 KTP 在中红外波

段的应用是一个很大的限制。

表 1.1 红外非线性晶体特性[32-52]

非线性晶体	透光范围 (μm)	实用红 外限 (μm)	非线性系 数(pm/V)	损伤阈值	热导率 (W/mK)
KTP	0.35-4.5	3	$d_{15}=1.9$, $d_{24}=3.6$, $d_{33}=16.9$	$15\text{J}/\text{cm}^2@10\text{ns}$, 1064nm	0.4
KTA	0.35-5.3	3.5	$d_{15}=2.3$, $d_{24}=3.64$,	$15\text{J}/\text{cm}^2@10\text{ns}$, 1064nm	20
LN	0.42-5.2	3.9	$d_{22}=2.1$, $d_{31}=4.3$, $d_{33}=27.2$	$10\text{J}/\text{cm}^2@10\text{ns}$, 1064nm	5.6
PPLN	0.42-5.2	3.9	$d_{33}=27.2$	$3\text{J}/\text{cm}^2@7\text{ns}$, 1064nm	5.6
AGS	0.49-12.5	~ 8	$d_{36}=12$	$1\text{J}/\text{cm}^2@10\text{ns}$, 1064nm	1.5
AGSe	0.7-17	12	$d_{36}=33$	$1\text{J}/\text{cm}^2@10\text{ns}$, 1064nm	1.1
ZGP	0.7-12	8	$d_{14}=75$	$2\text{J}/\text{cm}^2@100\text{ns}$, 2 μm	36
LIS	0.35-13	8	$d_{33}=15$	$109\text{MW}(1.09\text{J})/\text{cm}^2$ @10ns,1064nm	6-7.5
LiGaSe ₂ (LGSe)	0.37-13	8	$d_{31}=5.8$		4.8-5.8 calc
CdSiP ₂ (CSP)	0.5-9.5	6.5	$d_{14}=84.5$		13.6
AgGaGe ₃ Se ₈	0.56-16	11	$d_{31}=29$		
GaSe	0.65-17.5	~ 13	$d_{22}=54$	$20\text{MW}/\text{cm}^2@50\text{ns}$, 750nm	2-16
BaGa ₄ S ₇ (BGS)	0.35-13.7	8	~ 6	$264\text{MW}(3.7\text{J})/\text{cm}^2$ @14ns,1064nm	
BaGa ₄ Se ₇ (BGSe, 本 论文表征)	0.47-18	13	>25	$557\text{MW}(2.8\text{J})/\text{cm}^2$ @5ns,1064nm	1

KTA 与 KTP 属于同型晶体, 透光范围为 350~5300 nm, 具有损伤阈值高, 非线性系数大, 物化性能稳定, 生长技术较成熟等优点。KTA 在 1~4 μm 波长范围内透过率较高, 而且克服了 KTP 晶体在 3.8 和 3.4 μm 附近的吸收峰问题; 1~4 μm 吸收系数 $< 0.01 \text{ cm}^{-1}$, 热导系数高, 在高功率激光泵浦时不会产生热透镜效, 适合高重频高能量中红外输出[53-55]。

(2) 半导体型非线性晶体

氧化物晶体虽然具有较好的综合性能, 但其外红截止边较短 ($\sim 5.5 \mu\text{m}$) 及存在本征红外多光子吸收峰, 在 4 μm 以上具有较严重的光学吸收, 导致其难以实现 4 μm 以上的中远红外激光输出[56]。为实现 4 μm 以上高功率中红外激光输出, 国内外发展了一系列半导体型非线性晶体:

① 硫镓银(AGS)和硒镓银(AGSe)

AGS 晶体的透光范围为 0.5-12.5 μm , 非线性光学系数 $d_{36} = 12 \text{ pm/V}$; 1-5 μm 波段的吸收系数 $< 0.09 \text{ cm}^{-1}$ 。与 AGS 相比, AGSe 具有更宽的透光范围(0.7-17 μm), 更大的非线性光学系数 $d_{36} = 33 \text{ pm/V}$ 。目前, 关于 AGS 和 AGSe OPO 的研究已取得大量进展, 一般用于 DFG 产生中远红外输出。如美国海军实验室[57]利用低温 Ho:YLF 波长为 2 μm 激光泵浦 AGS 晶体获得了 2.7~9 μm 的参量光调谐输出。N.P.Barnes[58]等人利用 Er:YLF 激光(波长为 1.73 μm)及 1.064 μm 的拉曼频移激光(1.9 μm)泵浦 AGSe, 得到了调谐范围 2.5-5.1 μm 及 3.8-4.9 μm 的参量光输出。另外 AGSe 还可以用于 CO_2 激光器的 SHG。Tochitsky[59]等人利用 1.9 μm 长的 AGSe 产生了 4.6~5.4 μm 范围约 6 mW 的 CW 二次谐波输出。

② 磷锗锌(ZGP)

ZGP 晶体透光波段为 0.7-12 μm , 为正单轴晶, 它具有大的非线性系数($d_{14} = 75 \text{ pm/V}$), 高的热导率, 宽的相位匹配范围, 高的损伤阈值, 以及良好的机械性能等诸多优点, 有利于高功率中红外激光输出。然而, 由于 ZGP 晶体对 $< 2 \mu\text{m}$ 波段激光吸收严重, 只能采用 2 μm 及以上波长泵浦。利用 ZGP 晶体可实现 DFG[60]、OPG[61]、OPA[62]和 OPO[63]等的中红外激光输出。其中, ZGP-OPO 可调谐输出 3-10 μm 激光, 并在 3~5 μm 波段保持最高的转换效率和输出功率; Alexander Hemming 等[64]基于 ZGP-OPO 已实现 27 W 级 3~5 μm 中红外激光输出, 斜效率高达 67%。

③ 磷硅镉(CSP)

CSP 晶体透光范围为 0.5-9.5 μm ，为负单轴晶体。它的非线性光学系数高达 $d_{14} = 84.5 \text{ pm/V}$ [65]，并且在 1064 nm 处双光子吸收很小，是可以利用 1064 nm 激光泵浦的非线性系数最大的红外光学材料。更为重要的是，利用 1064 nm 光源来泵浦可以实现 OPO、OPG 等非临界位相匹配(NCPM)，通过温度调谐可以输出 6.0-6.5 μm 波段的激光，表现出良好的温度调谐特性[66]。此外，CSP 晶体的热导率高达 13.6 W/mK，高的热导率有利于实现高功率激光输出。Chalus 等[67]利用 8 ps 短脉冲的 1064 nm 激光泵浦 CSP-OPG，实现了 154 mW 的 6.2 μm 激光输出。CSP 为目前最佳的产生 $\sim 6 \mu\text{m}$ 激光输出的晶体。然而由于本征多光子吸收峰的存在，难以实现 6.5 μm 以上高功率输出。

1.3 全固态中红外光参量激光研究现状

光参量振荡的理论最早是在 1962 年由 Kingston[68]、Korll [69]等人提出。Armstrong [70]分析了光学参量的产生和放大过程。1965 年 Wang 和 Racette [71]首先观察到了三波非线性作用的参量增益，同年 Giordaino [72]等人研制成功了第一台光学参量振荡器。1965 年，G.D.Boyd [73]等人提出了光学参量变换连续工作的可能性。之后在 1968 年，R.G.Smith [74]和 R.L.Byer [75]等人成功地获得连续运转的光学参量振荡器。然而，由于当时所用的 KDP、ADP、LiNbO₃、BaNaNb₅O₁₅ 等非线性材料的整体性能欠佳，缺乏具有良好光学特性及光损伤阈值的非线性晶体阻碍了光学参量变换的迅速发展。90 年代以后，随着一系列非线性系数大、透明范围扩展到中红外至远红外的优质非线性晶体的发现及生长工艺的改进（减小晶体在泵浦波长的吸收，提高损伤阈值），使得中红外光参量激光器得到快速发展。

1、KTA 光参量激光器的研究现状

利用 KTA 晶体的光参量激光器发展到今天，总的来说是种类繁多：其运转方式有脉冲、连续及准连续；输出激光脉冲宽度可从纳秒到皮秒甚至飞秒量级；其中 OPO 的腔形也从直腔到折叠环形腔。1997 年，美国伊利诺伊大学(University of Illinois at Urbana-Champaign)报道了 Ti:sapphire 激光器泵浦的 KTA-OPA 系统 [76]，调谐范围 $3650 \sim 2800 \text{ cm}^{-1}$ (2.7~3.5 μm)，能量 40~55 μJ ，脉宽 0.6~0.8 ps，

带宽 35 cm^{-1} 。2001 年,新加坡 DSO 国家实验室利用调 Q Nd:YALO 激光器泵浦 II 类非临界相位匹配 KTA-OPO[13],获得 4.1 W 的 $3.5\text{ }\mu\text{m}$ 激光输出,重频 10 kHz,光-光转换效率 20% 实验装置如图 1.1 所示。2002 年,英国 Strathclyde 大学报道了 Nd:YAG 激光器泵浦的单谐振 KTA-OPO[77],输出波长 $2.6\text{--}3.2\text{ }\mu\text{m}$,单脉冲能量大于 30 mJ,重复频率 10 Hz,脉宽 5 ns。在国内,2009 年,山东大学报道了二极管侧面泵浦声光调 Q Nd:YAG 激光器驱动的内腔式 KTA-OPO[78],信号光和闲频光波长 1534 nm 和 3472.7 nm,平均输出功率分别为 13.6 W 和 3 W,重频 18 kHz,信号光脉宽 5.46 ns。2010 年天津大学 Zhong 等人利用电光调 Q 的脉冲 Nd:YAG 激光器泵浦 V 型腔结构的 KTA-OPO[79],实现了 31 mJ 的 $3.47\text{ }\mu\text{m}$ 激光输出,脉冲宽度 5.8 ns,中红外激光的峰值功率达到 5 MW,光光转换效率 4.76%。2013 年,清华大学 Liu 等人报道了 1064 nm 泵浦的 KTA-OPO[80],实现了最高单脉冲能量 60 mJ 的 $3.75\text{ }\mu\text{m}$ 激光输出,脉宽 7 ns,这是已报道中红外 KTA-OPO 的最高输出能量。

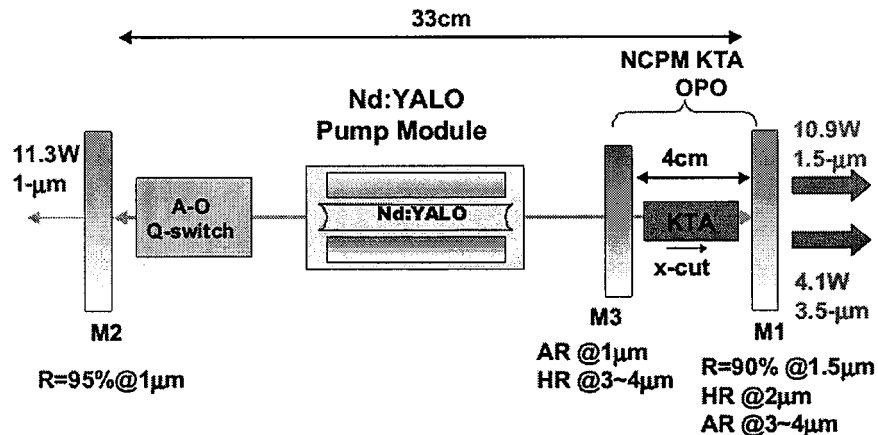


图 1.1 中红外典型的 KTA-OPO 实验装置图[13]

2、PPLN 光参量激光器的研究现状

近年来,随着准相位匹配技术的发展,PPLN 被广泛应用于 $3\text{--}5\text{ }\mu\text{m}$ 中红外激光源中。并且可以通过掺杂 MgO 的方式,进一步提高其损伤阈值。2001 年,英国 St Andrews 大学报道了钛宝石激光器泵浦的 PPLN-OPO[81],参量光调谐范围 $4.1\text{--}5.5\text{ }\mu\text{m}$,在 $4.65\text{ }\mu\text{m}$ 处闲频光输出功率 24 mW。2005 年,美国相干公司利用 ns 脉冲 1047 nm Nd:YLF 激光源泵浦的 PPLN-OPO 和内腔式 PPLN-OPA[82],获得 340 mW 的 $3.4\text{ }\mu\text{m}$ 激光输出,重频 1 kHz,转换效率 21.2%。2011 年,德国

Ruebel 等人基于中红外皮秒 PPLN-OPO 系统[83], 获得大于 3 W 的 3 μm 波长输出, 以及 1.1 W 的 4.5 μm 输出, 单脉冲能量分别为 18.8 nJ 和 6.9 nJ。在国内, 2009 年, 中国工程物理研究院利用声光调 Q Nd:YAG 激光器泵浦的 MgO:PPLN-OPO[84], 获得闲频光和信号光波长为 3.84 和 1.47 μm , 功率分别为 16.7 W 和 46 W, 闲频光斜效率 19.1%。2012 年, 又利用脉宽 90 ns 的 1064 nm 激光器泵浦 3 mm 厚 MgO:PPLN-OPO[85], 获得了 27.4 W 的 3.91 μm 输出, 斜效率 20.9%, 单脉冲能量 2.74 mJ, 实验装置如图 1.2 所示。2011 年, 中科院半导体所报道了调 Q Nd:YAG 激光器泵浦的扇形周期的 MgO:PPLN-OPO[86], 闲频光调谐范围 3.78-4.62 μm , 并获得最大功率 3.4 W 的 3.78 μm 和 0.36 W 的 4.58 μm 参量光输出。2012 年, 浙江大学报道了 1.06 μm 调 Q 激光器泵浦的 MgO:PPLN-OPO[87], 获得 8.7 W 的 3.8 μm 闲频光输出, 重频 120 kHz, 转换效率 18.1%。

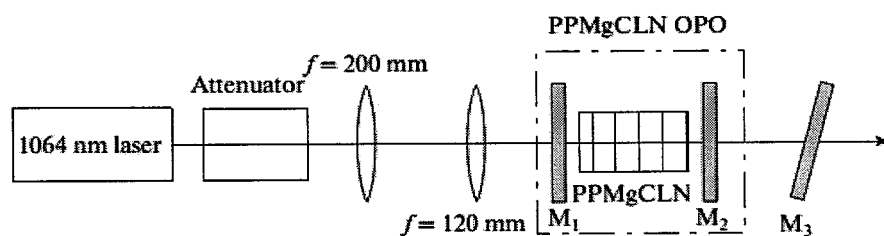


图 1.2 高功率 3.91 μm MgO:PPLN-OPO 实验装置图[21]

3、ZGP 光参量激光器的研究现状

ZGP 晶体在中红外光源中具有十分重要的应用价值, 但由于晶体缺陷和杂质的影响, ZGP 晶体在 1-2 μm 波段吸收系数较大, 一般来说最佳泵浦波长在 2 μm 及以上。目前, 常用的泵浦方法主要有两种: 一种是直接利用掺 Tm, Ho 的激光得到; 另一种是使用级联激光器得到, 如利用 1.9 μm 掺 Tm 激光泵浦掺 Ho 激光和利用 1.06 μm 激光泵浦 KTP 或周期性极化晶体(PPKTP 或 PPLN) OPO[88]。1998 年, 洛克希德·马丁公司采用 LD 泵浦调 Q 的 Tm, Ho:YLF 激光器作为泵浦源[89], 利用 I 类相位匹配的 ZGP 晶体, 实现了平均功率 10 W 的 3.5-5 μm 激光输出, 转换效率和斜效率分别达到 50%和 63%。2005 年, 挪威国防研究局的 Nicolas 等报道了一种利用高能量的 KTP OPO-OPA 泵浦的

ZGP OPO[90], 实现了单脉冲能量高达 28 mJ 的 3-5 μm 中红外激光输出。2008 年, 又利用基于 KTP 和 KTA/ZGP 的两级 MOPA 结构[91], 获得 8 μm 中红外激光的单脉冲能量高达 8 mJ, 以及 3-5 μm 波段大于 33 mJ 的能量输出, 实验装置如图 1.3 所示。2010 年, Hemming 等人利用调 Q Ho:YAG 激光器泵浦的 ZGP-OPO[92], 获得了平均功率 10.1 W、重复频率 40 kHz、脉宽 29 ns 的中红外激光输出。国内的哈尔滨工业大学、中国工程物理研究院、华北光电技术研究所等单位也对 ZGP OPO 展开了一系列的理论和实验研究工作。2008 年, 哈工大的姚宝权等人用 2.05 μm 的声光调 Q Tm:Ho 激光器泵浦 ZGP-OPO, 实现了信号光 3.7 μm 及闲频光 4.5 μm 中红外激光输出[93], 平均功率大于 1.2 W, 光光转换效率为 20%。2011 年, 中国工程物理研究院报道了 KTP-OPO 泵浦的 I 类双谐振 ZGP-OPO[94], 获得信号光和闲频光波长分别为 4.10 μm 和 4.32 μm , 输出功率 5.7 W, 斜效率 46.6%。2012 年, 华北光电技术研究所基于 Tm:YAP 激光器泵浦的 ZGP-OPO[95], 获得 4、3.88 和 4.14 μm 激光输出, 最大输出功率 7.16 W, 输出脉冲宽度 81.47 ns, 光光转换效率 49.4%, 斜效率 48.9%。

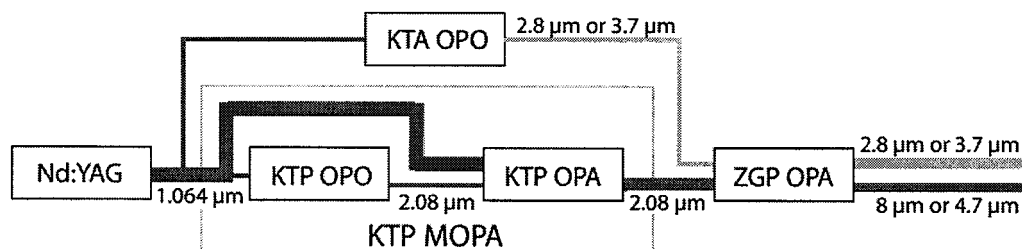


图 1.3 两级 MOPA 结构实验装置图[91]

1.4 本文主要研究内容

波长介于 2-20 μm 的中红外波段在大气监测、光学遥感、光谱分析、空间光通信、环保、医疗、光电对抗等领域有着重大的应用价值。目前, 基于 KTA、PPLN、ZGP 等非线性光学晶体的频率变换技术, 已获得最高单脉冲能量几十 mJ 或输出功率几十 W 的中红外输出, 但大多数运转在 ns 脉冲范围。另一方面, 中红外超短激光脉冲由于其特殊的光子能量和时间尺度的组合, 可广泛运用于物理学、化学、生物学、高能物理和大气探测等方面的科学研究。另外, 红外制导导弹和红外预警系统等的探测器都对该波段敏感, 而超短中红外激光脉冲可以在

瞬间提供很高的峰值功率足以损伤这些探测器件。因此,具有高能量高峰值功率的超短中红外激光脉冲在军事对抗中也将有很多潜在的应用。但是目前关于 ps 脉宽的中红外超短脉冲的研究报道非常少,单脉冲能量限制在 μJ 量级。本论文就高能量高峰值功率皮秒中红外光参量放大进行了系统的理论和实验研究工作,最终获得 mJ 量级的中红外超短脉冲输出。

本论文分为六章,第一章为绪论,综述了中红外激光的发展及现状,重点阐述了常用的中红外非线性晶体及国内外研究状况。第二章,对非线性光学频率变换三波相互作用进行了理论分析和计算,并对双折射相位匹配和准相位匹配理论进行了介绍,最后利用皮秒光参量放大理论模型,对 KTA 晶体的中红外光参量激光放大进行了数值计算和理论分析。第三章研究了基于 BBO-OPG/OPA 种子激光注入的皮秒中红外 KTA-OPA,获得 1.85 mJ、峰值功率约 92.5 MW 的 $3.5\ \mu\text{m}$ 激光输出。第四章研究了基于大孔径 MgO:PPLN 晶体的 $3.9\ \mu\text{m}$ 皮秒中红外光参量激光放大器,获得输出能量 1.14 mJ 的 $3.9\ \mu\text{m}$ 中红外激光输出;进一步对比了 MgO:PPLN-OPG 与种子注入 MgO:PPLN-OPA 激光输出特性。第五章研究了新型非线性光学晶体 BGSe 的中红外光参量激光输出性能及应用前景。基于 BBO-OPG/OPA 种子注入 BGSe-OPA,实现了高效率、高峰值功率 $3.9\ \mu\text{m}$ 激光产生及 $3\sim 5\ \mu\text{m}$ 宽调谐激光输出。其中,在泵浦能量为 9.1 mJ 时,获得 $3.9\ \mu\text{m}$ 激光输出能量 830 μJ ,峰值功率约 41.5 MW。进一步地,基于 KTP-OPG/OPA 种子注入 BGSe-OPA,实现了高效率、高峰值功率 $7.8\ \mu\text{m}$ 激光产生及 $6.4\sim 11\ \mu\text{m}$ 宽调谐激光输出。在泵浦能量为 9 mJ 时,获得 $7.8\ \mu\text{m}$ 激光输出能量 125 μJ ,峰值功率~6.3 MW。实验结果证实了 BGSe 晶体在宽调谐中红外激光产生方面的优异性能与重大应用价值。

参考文献

- [1]. 林洪沂,郭劲,檀慧明,宁大勇,陈兆兵与李殿军,泛频 CO 激光器研究进展. 激光与红外, 2009. 39(4): 第358-362页.
- [2]. 郭汝海,施龙,王思雯与吴萃婷, HF/DF 化学激光器的研究进展. 光机电信息, 2010. 27(3): 第30-35页.
- [3]. 王宇虹与任德明, TEA CO₂ 激光器倍频研究的进展. 激光与光电子学进

- 展, 2002. 39(4): 第26-29页.
- [4]. Qu, Y., Z.H. Kang, T.J. Wang, Y. Jiang, Y.M. Andreev, and J.Y. Gao, The detection of carbon monoxide by the second harmonic generation of CO₂ laser. *Laser Physics Letters*, 2007. 4(3): p. 238.
- [5]. 阮鹏与谢冀江, 中红外光参量振荡器的最新进展. *激光杂志*, 2010(4): 第1-3页.
- [6]. Maiman, T.H., Stimulated optical radiation in ruby. 1960.
- [7]. Beck, M., D. Hofstetter, T. Aellen, J. Faist, U. Oesterle, M. Illegems, E. Gini, and H. Melchior, Continuous wave operation of a mid-infrared semiconductor laser at room temperature. *Science*, 2002. 295(5553): p. 301-305.
- [8]. Yu, J.S., S.R. Darvish, A. Evans, J. Nguyen, S. Slivken, and M. Razeghi, Room-temperature continuous-wave operation of quantum-cascade lasers at $\lambda \sim 4 \mu\text{m}$. *Applied physics letters*, 2006. 88(4): p. 041111-041111.
- [9]. Sorokin, E., S. Naumov and I.T. Sorokina, Ultrabroadband infrared solid-state lasers. *Selected Topics in Quantum Electronics, IEEE Journal of*, 2005. 11(3): p. 690-712.
- [10]. Sorokina, I.T., Cr²⁺-doped II - VI materials for lasers and nonlinear optics. *Optical Materials*, 2004. 26(4): p. 395-412.
- [11]. Schneider, J., Mid-infrared fluoride fiber lasers in multiple cascade operation. *Photonics Technology Letters, IEEE*, 1995. 7(4): p. 354-356.
- [12]. Sorokina, I.T. and K.L. Vodopyanov, Solid-state mid-infrared laser sources. 89 ed. 2003: Springer Science & Business Media.
- [13]. Wu, R.F., K.S. Lai, H. Wong, W. Xie, Y. Lim, and E. Lau, Multiwatt mid-IR output from a Nd: YALO laser pumped intracavity KTA OPO. *Optics express*, 2001. 8(13): p. 694-698.
- [14]. Finsterbusch, K., A. Bayer and H. Zacharias, Tunable, narrow-band picosecond radiation in the mid-infrared by difference frequency mixing in GaSe and CdSe. *Applied Physics B*, 2004. 79(4): p. 457-462.
- [15]. Piccoli, R., F. Pirzio, A. Agnesi, V. Badikov, D. Badikov, G. Marchev, V. Panyutin, and V. Petrov, Narrow bandwidth, picosecond, 1064 nm pumped optical parametric generator for the mid-IR based on HgGa₂S₄. *Optics*

- letters, 2014. 39(16): p. 4895-4898.
- [16]. Myers, L.E., R.C. Eckardt, M.M. Fejer, R.L. Byer, W.R. Bosenberg, and J.W. Pierce, Quasi-phase-matched optical parametric oscillators in bulk periodically poled LiNbO₃. JOSA B, 1995. 12(11): p. 2102-2116.
- [17]. Xin, D., Z. Shao-Min, M. Hong-Mei, P. Ming, Y. Jian-Quan, and L. Zhuo, Continuous-wave mid-infrared intracavity singly resonant optical parametric oscillator based on periodically poled lithium niobate. Chinese Physics B, 2008. 17(1): p. 211.
- [18]. Peltz, M., U. Bäder, A. Borsutzky, R. Wallenstein, J. Hellström, H. Karlsson, V. Pasiskevicius, and F. Laurell, Optical parametric oscillators for high pulse energy and high average power operation based on large aperture periodically poled KTP and RTA. Applied Physics B, 2001. 73(7): p. 663-670.
- [19]. Ishizuki, H. and T. Taira, High-energy quasi-phase-matched optical parametric oscillation in a periodically poled MgO: LiNbO₃ device with a 5 mm× 5 mm aperture. Optics letters, 2005. 30(21): p. 2918-2920.
- [20]. Hoyt, C.W., B. Imangholi, M. Sheik-Bahae, and M. Ebrahimzadeh. High-power picosecond optical parametric oscillator based on periodically poled lithium niobate. in Lasers and Electro-Optics, 2002. CLEO'02. Technical Digest. Summaries of Papers Presented at the. 2002: IEEE.
- [21]. Peng, Y.F., X.B. Wei, D.M. Li, and W.M. Wang, High-power mid-infrared tunable optical parametric oscillator based on 3-mm-thick PPMgCLN. Laser Physics, 2012. 22(1): p. 87-90.
- [22]. Ehrlich, Y., S. Pearl and S. Fastig. High Brightness Tunable Tandem Optical Parametric Oscillator at 8-12 μ m. in Advanced Solid-State Photonics. 2004: Optical Society of America.
- [23]. Lia, L.J., B.Q. Yao, Y.L. Ju, and Y.Z. Wang, 8.30 μ m singly resonant ZnGeP₂ optical parametric oscillators pumped by a Tm, Ho: GdVO₄ laser. Laser physics, 2009. 19(10): p. 1957-1959.
- [24]. Shi, W. and Y.J. Ding, A monochromatic and high-power terahertz source tunable in the ranges of 2.7 – 38.4 and 58.2 – 3540 μ m for variety of potential applications. Applied physics letters, 2004. 84(10): p. 1635-1637.
- [25]. Vodopyanov, K.L. and V. Chazapis. Extrawide tuning range IR optical

- parametric generators. in Lasers and Electro-Optics, 1996. CLEO'96., Summaries of papers presented at the Conference on. 1996: IEEE.
- [26]. Boyd, G.D., R.C. Miller, K. Nassau, W.L. Bond, and A. Savage, LiNbO₃: an efficient phase matchable nonlinear optical material. Applied physics letters, 1964. 5(11): p. 234-236.
- [27]. Ballman, A.A., Growth of Piezoelectric and Ferroelectric Materials by the Czochralski Technique. Journal of the American Ceramic Society, 1965. 48(2): p. 112-113.
- [28]. Armstrong, J.A., N. Bloembergen, J. Ducuing, and P.S. Pershan, Interactions between light waves in a nonlinear dielectric. Physical Review, 1962. 127(6): p. 1918.
- [29]. PEPPER, D., J. Feinberg and N. KUKHTAREV, The photorefractive effect. Scientific American, 1990. 263(4): p. 34-40.
- [30]. Zhong, G., J. Jian and Z. Wu. 11th International Quantum Electronics Conference. in IEEE Cat. 1980.
- [31]. Bryan, D.A., R. Gerson and H.E. Tomaschke, Increased optical damage resistance in lithium niobate. Applied Physics Letters, 1984. 44(9): p. 847-849.
- [32]. Petrov, V., Parametric down-conversion devices: The coverage of the mid-infrared spectral range by solid-state laser sources. Optical Materials, 2012. 34(3): p. 536-554.
- [33]. Badikov, V., D. Badikov, G. Shevyrdyaeva, A. Tyazhev, G. Marchev, V. Panyutin, F. Noack, V. Petrov, and A. Kwasniewski, BaGa₄S₇: wide-bandgap phase-matchable nonlinear crystal for the mid-infrared. Optical Materials Express, 2011. 1(3): p. 316-320.
- [34]. 苏旭, 刘涛, 张刚, 陈兴国, 秦金贵与陈创天, 中红外波段二阶非线性光学晶体材料研究进展. 无机化学学报, 2006. 22(7): 第1163-1169页.
- [35]. Miyata, K., G. Marchev, A. Tyazhev, V. Panyutin, and V. Petrov, Picosecond mid-infrared optical parametric amplifier based on the wide-bandgap GaS_{0.4}Se_{0.6} pumped by a Nd: YAG laser system at 1064 nm. Optics letters, 2011. 36(10): p. 1785-1787.
- [36]. Schunemann, P.G., K.T. Zawilski, T.M. Pollak, V. Petrov, and D.E. Zelmon. CdSiP₂: A New Nonlinear Optical Crystal for 1-and 1.5-Micron-Pumped

- Mid-IR Generation. in Advanced Solid-State Photonics. 2009: Optical Society of America.
- [37]. Petrov, V., F. Noack, I. Tunchev, P. Schunemann, and K. Zawilski. The nonlinear coefficient d_{36} of CdSiP₂. in SPIE LASE: Lasers and Applications in Science and Engineering. 2009: International Society for Optics and Photonics.
- [38]. Schunemann, P.G., K.T. Zawilski, T.M. Pollak, V. Petrov, and D.E. Zelmon. CdSiP₂: A New Nonlinear Optical Crystal for 1-and 1.5-Micron-Pumped Mid-IR Generation. in Advanced Solid-State Photonics. 2009: Optical Society of America.
- [39]. Dmitriev, V.G., G.G. Gurzadyan and D.N. Nikogosyan, Optics of nonlinear crystals. 1997: p. 3-66.
- [40]. Vodopyanov, K.L., F. Ganikhanov, J.P. Maffetone, I. Zwieback, and W. Ruderman, ZnGeP₂ optical parametric oscillator with 3.8 — 12.4- μ m tunability. Optics letters, 2000. 25(11): p. 841-843.
- [41]. Vodopyanov, K.L. and P.G. Schunemann, Efficient difference-frequency generation of 7-20- μ m radiation in CdGeAs₂. Optics letters, 1998. 23(14): p. 1096-1098.
- [42]. Kaundl, R.A., D.C. Smith, M. Joschko, M.P. Hasselbeck, M. Woerner, and T. Elsaesser, Femtosecond infrared pulses tunable from 9 to 18 μ m at an 88-MHz repetition rate. Optics letters, 1998. 23(11): p. 861-863.
- [43]. Kumar, S.C., M. Jelínek, M. Baudisch, K.T. Zawilski, P.G. Schunemann, V. Kubeček, J. Biegert, and M. Ebrahim-Zadeh, Tunable, high-energy, mid-infrared, picosecond optical parametric generator based on CdSiP₂. Optics express, 2012. 20(14): p. 15703-15709.
- [44]. Hsu, Y., C. Chen, J.Y. Huang, C. Pan, J. Zhang, and C. Chang, Erbium doped GaSe crystal for mid-IR applications. Optics express, 2006. 14(12): p. 5484-5491.
- [45]. Beutler, M., I. Rimke, E. Büttner, V. Petrov, and L. Isaenko. Difference-frequency generation of femtosecond pulses in the mid-IR using LiInSe₂. in Mid-Infrared Coherent Sources. 2013: Optical Society of America.
- [46]. Das, S., C. Ghosh, S. Gangopadhyay, U. Chatterjee, G.C. Bhar, V.G.

- Voevodin, and O.G. Voevodina, Tunable coherent infrared source from 5-16 μm based on difference-frequency mixing in an indium-doped GaSe crystal. JOSA B, 2006. 23(2): p. 282-288.
- [47]. Kaindl, R.A., M. Wurm, K. Reimann, P. Hamm, A.M. Weiner, and M. Woerner, Generation, shaping, and characterization of intense femtosecond pulses tunable from 3 to 20 μm . JOSA B, 2000. 17(12): p. 2086-2094.
- [48]. Vodopyanov, K.L., Mid-infrared optical parametric generator with extra-wide (3 - 19- μm) tunability: applications for spectroscopy of two-dimensional electrons in quantum wells. JOSA B, 1999. 16(9): p. 1579-1586.
- [49]. Vodopyanov, K.L., Parametric generation of tunable infrared radiation in ZnGeP₂ and GaSe pumped at 3 μm . JOSA B, 1993. 10(9): p. 1723-1729.
- [50]. Nikogosyan, D.N., Nonlinear Optical Crystals: A Complete Survey: A Complete Survey. 2006: Springer Science & Business Media.
- [51]. 董春明, 王善朋与陶绪堂, 中红外非线性光学晶体的研究进展. 人工晶体学报, 2006. 35(4): 第785-789页.
- [52]. 张国栋, 王善朋与陶绪堂, 红外非线性光学晶体研究进展. 人工晶体学报, 2012(S1): 第17-23页.
- [53]. 魏景谦与王继扬, KTiOAsO₄ 晶体的生长和性质研究. 人工晶体学报, 1994. 23(2): 第95-101页.
- [54]. Bierlein, J.D., H. Vanherzeele and A.A. Ballman, Linear and nonlinear optical properties of flux - grown KTiOAsO₄. Applied physics letters, 1989. 54(9): p. 783-785.
- [55]. Cussat-Blanc, S., A. Ivanov, D. Lupinski, and E. Freysz, KTiOPO₄, KTiOAsO₄, and KNbO₃ crystals for mid-infrared femtosecond optical parametric amplifiers: analysis and comparison. Applied Physics B, 2000. 70(1): p. S247-S252.
- [56]. 张国栋, 王善朋与陶绪堂, 红外非线性光学晶体研究进展. 人工晶体学报, 2012(S1): 第17-23页.
- [57]. Eckardt, R.C., Y.X. Fan, R.L. Byer, C.L. Marquardt, M.E. Storm, and L. Esterowitz, Broadly tunable infrared parametric oscillator using AgGaSe₂. Applied physics letters, 1986. 49(11): p. 608-610.

- [58]. Barnes, N.P., D.J. Gettemy and J.R. Hietanen, Parametric amplification in AgGaSe 2. *Applied optics*, 1989. 28(23): p. 5162-5168.
- [59]. Tochitsky, S.Y., V.O. Petukhov, V.A. Gorobets, V.V. Churakov, and V.N. Jakimovich, Efficient continuous-wave frequency doubling of a tunable CO 2 laser in AgGaSe 2. *Applied optics*, 1997. 36(9): p. 1882-1888.
- [60]. Saikawa, J., M. Miyazaki, M. Fujii, H. Ishizuki, and T. Taira. Difference frequency generation in a ZnGeP 2 crystal pumped by a large aperture periodically poled MgO: LiNbO 3 optical parametric system. in *Advanced Solid-State Photonics*. 2007: Optical Society of America.
- [61]. Petrov, V., F. Rotermund, F. Noack, and P. Schunemann, Femtosecond parametric generation in ZnGeP 2. *Optics letters*, 1999. 24(6): p. 414-416.
- [62]. Haakestad, M.W., G. Arisholm, E. Lippert, S. Nicolas, G. Rustad, and K. Stenersen, High-pulse-energy mid-infrared laser source based on optical parametric amplification in ZnGeP 2. *Optics express*, 2008. 16(18): p. 14263-14273.
- [63]. Schunemann, P.G. Improved NLO crystals for mid-IR laser applications. in *Lasers and Applications in Science and Engineering*. 2007: International Society for Optics and Photonics.
- [64]. Hemming, A., J. Richards, A. Davidson, N. Carmody, S. Bennetts, N. Simakov, P. Davies, and J. Haub. A 27 W mid-IR laser source. in *Conference on Lasers and Electro-Optics/Pacific Rim*. 2011: Optical Society of America.
- [65]. Petrov, V., F. Noack, I. Tunchev, P. Schunemann, and K. Zawilski. The nonlinear coefficient d_{36} of CdSiP₂. in *SPIE LASE: Lasers and Applications in Science and Engineering*. 2009: International Society for Optics and Photonics.
- [66]. Petrov, V., G. Marchev, P.G. Schunemann, A. Tyazhev, K.T. Zawilski, and T.M. Pollak, Subnanosecond, 1 kHz, temperature-tuned, noncritical mid-infrared optical parametric oscillator based on CdSiP 2 crystal pumped at 1064 nm. *Optics letters*, 2010. 35(8): p. 1230-1232.
- [67]. Chalus, O., P.G. Schunemann, K.T. Zawilski, J. Biegert, and M. Ebrahim-Zadeh, Optical parametric generation in CdSiP 2. *Optics letters*, 2010. 35(24): p. 4142-4144.
- [68]. Kingston, R.H., Parametric amplification and oscillation at optical

- p>frequencies. Proceedings of the Institute of Radio Engineers, 1962. 50(4): p. 472.
- [69]. Kroll, N.M., Parametric amplification in spatially extended media and application to the design of tuneable oscillators at optical frequencies. Physical Review, 1962. 127(4): p. 1207.
- [70]. Kroll, N.M., Parametric amplification in spatially extended media and application to the design of tuneable oscillators at optical frequencies. Physical Review, 1962. 127(4): p. 1207.
- [71]. Wang, C.C. and G.W. Racette, Measurement of parametric gain accompanying optical difference frequency generation. Applied Physics Letters, 1965. 6(8): p. 169-171.
- [72]. Giordmaine, J.A. and R.C. Miller, Tunable Coherent Parametric Oscillation in LiNbO₃ at Optical Frequencies. Physical Review Letters, 1965. 14(24): p. 973.
- [73]. Boyd, G.D. and L.F. Johnson, Solid-state, continuous wave optical maser. 1965.
- [74]. Smith, R.G., J.E. Geusic, H.J. Levinstein, J.J. Rubin, S. Singh, and L.G. Van Uitert, Continuous optical parametric oscillation in Ba₂NaNb₅O₁₅. Applied Physics Letters, 1968. 12(9): p. 308-310.
- [75]. Byer, R.L., M.K. Oshman, J.F. Young, and S.E. Harris, Visible CW parametric oscillator. Applied Physics Letters, 1968. 13(3): p. 109-111.
- [76]. Deák, J.C., L.K. Iwaki and D.D. Dlott, High-power picosecond mid-infrared optical parametric amplifier for infrared Raman spectroscopy. Optics letters, 1997. 22(23): p. 1796-1798.
- [77]. Vysniauskas, G., D. Burns, E. Bente, J. Badziak, E. Woryna, P. Parys, S. Jablonski, J. Wolowski, K.Y. Platonov, and A.B. Vankov. Development of a Nanosecond High Energy KTA OPO System Operating 2.9 μ m. in Conference on Lasers and Electro-Optics. 2002: Optical Society of America.
- [78]. Dong, X., B. Zhang, J. He, H. Huang, K. Yang, J. Xu, C. Zuo, S. Zhao, G. Qiu, and Z. Liu, High-power 1.5 and 3.4 μ m intracavity KTA OPO driven by a diode-pumped Q-switched Nd: YAG laser. Optics Communications, 2009. 282(8): p. 1668-1670.
- [79]. Zhong, K., J.Q. Yao, D.G. Xu, J.L. Wang, J.S. Li, and P. Wang,

- High-pulse-energy high-efficiency mid-infrared generation based on KTA optical parametric oscillator. *Applied Physics B*, 2010. 100(4): p. 749-753.
- [80]. Liu, Q., J. Liu, Z. Zhang, and M. Gong, A high energy 3.75 μm KTA optical parametric oscillator at a critical angle. *Laser Physics Letters*, 2013. 10(7): p. 075407.
- [81]. Ebrahimzadeh, M., P.J. Phillips and S. Das, Low-threshold mid-infrared optical parametric oscillation in periodically poled LiNbO₃ synchronously pumped by a Ti: sapphire laser. *Applied Physics B*, 2001. 72(7): p. 793-801.
- [82]. Lee, I., W.J. Alford and J. Bartholomew. Improved 3.4 micron generation from a PPLN OPO with an intracavity PPLN OPA. in *Advanced Solid-State Photonics*. 2005: Optical Society of America.
- [83]. Ruebel, F., G. Anstett and J.A. L. Huillier, Synchronously pumped mid-infrared optical parametric oscillator with an output power exceeding 1 W at 4.5 μm . *Applied Physics B*, 2011. 102(4): p. 751-755.
- [84]. Peng, Y., W. Wang, X. Wei, and D. Li, High-efficiency mid-infrared optical parametric oscillator based on PPMgO: CLN. *Optics letters*, 2009. 34(19): p. 2897-2899.
- [85]. Peng, Y.F., X.B. Wei, D.M. Li, and W.M. Wang, High-power mid-infrared tunable optical parametric oscillator based on 3-mm-thick PPMgCLN. *Laser Physics*, 2012. 22(1): p. 87-90.
- [86]. Xiong, B., L. Guo, W. Hou, X.C. Lin, and J.M. Li, High-Power, high-repetition-rate operation of a period-continuously-tunable optical parametric oscillator at 3.78 - 4.62 μm based on a fan-out periodically poled MgO-doped lithium niobate. *Laser Physics*, 2011. 21(2): p. 362-366.
- [87]. Dong, Y.T., Z. Xiang, C. Liu, Z.G. Zhao, S.Q. Pan, and J. Chen, High-repetition-rate mid-infrared optical parametric oscillator based on PPMgOLN. *Laser Physics*, 2012. 22(10): p. 1459-1462.
- [88]. 刘尊洋, 卞进田, 邵立, 汪亚夫与孙晓泉, 中红外激光技术研究进展. *激光与红外*, 2013. 43(8): 第853-858页.
- [89]. Budni, P.A., L.A. Pomeranz, M.L. Lemons, P.G. Schunemann, T.M. Pollak, and E.P. Chicklis. 10W mid-IR holmium pumped ZnGeP₂ OPO. in *Advanced Solid State Lasers*. 1998: Optical Society of America.
- [90]. Nicolas, S., G. Rustad and G. Arisholm. High-energy mid-IR source based

- on two-stage conversion from 1.06 μ m. in *Advanced Solid-State Photonics*. 2005: Optical Society of America.
- [91]. Haakestad, M.W., G. Arisholm, E. Lippert, S. Nicolas, G. Rustad, and K. Stenersen. High-pulse-energy 8 μ m laser source based on optical parametric amplification in ZnGeP₂. in *Photonics Europe*. 2008: International Society for Optics and Photonics.
- [92]. Hemming, A., J. Richards, S. Bennetts, A. Davidson, N. Carmody, P. Davies, L. Corena, and D. Lancaster, A high power hybrid mid-IR laser source. *Optics Communications*, 2010. 283(20): p. 4041-4045.
- [93]. Yao, B., Y. Ju, Y. Wang, and W. He, Performance evaluation of ZnGeP₂ optical parametric oscillator pumped by a Q-switched Tm, Ho: GdVO₄ laser. *Chinese Optics Letters*, 2008. 6(1): p. 68-70.
- [94]. Peng, Y., X. Wei and W. Wang, Mid-infrared optical parametric oscillator based on ZnGeP₂ pumped by 2- μ m laser. *Chinese Optics Letters*, 2011. 9(6): p. 061403.
- [95]. 魏磊, 肖磊, 韩隆, 吴军勇与王克强, Tm: YAP 激光抽运 ZGP 晶体光参量振荡器. *中国激光*, 2012. 39(7): 第24-28页.

第二章 非线性光学参量过程的理论模型

非线性光学[1-4]是相对于激光出现之前的传统线性光学而言的。在激光出现之前，光学基本上研究的是弱光在介质中传播规律的科学，如光的反射、折射、散射、干涉、衍射、吸收等效应，它们不涉及到光学频率的改变，并满足光波的线性叠加原理，不同频率的光波之间没有相互作用，不能交换能量，因而称之为线性光学。

激光出现之后，由于其光强极高，当通过介质时出现了很多新的效应，如谐波产生、光参量效应等，传统的光波线性叠加原理不再成立，不同频率的光波在介质中相互作用，产生了新的频率，光波相互之间交换能量。这类区别于传统线性光学的强光学称为非线性光学。

2.1 非线性光学频率变换基础理论

研究非线性光学的一项重要意义就是可以把常见的激光频率拓展到新的波段，提供从短波的真空紫外直到长波远红外、THz 波、毫米波波段的各种相干光源。基于二阶非线性光学效应的二次谐波产生（SHG）、和频（SFG）、差频（DFG）、光学参量技术（OPO/OPG/OPA）等是非线性光学中最容易实现，也是发展最为成熟的几种频率拓展技术。本章中，我们从麦克斯韦方程组出发，用经典电磁理论推导了光学参量过程的耦合波方程及其解的基本形式，为后面几章对光学参量放大器的理论及实验研究提供理论支持。

非线性介质中的波动方程[4]

光波是电磁波，光与物质的相互作用不论是线性的还是非线性的，均遵循麦克斯韦（Maxwell）方程组：

$$\begin{aligned}\nabla \cdot \vec{D} &= \rho \\ \nabla \cdot \vec{B} &= 0 \\ \nabla \times \vec{H} &= \vec{j} + \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} \\ \nabla \times \vec{E} &= -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t}\end{aligned}\tag{2.1}$$

其中, $\vec{E}$, $\vec{D}$, $\vec{H}$, $\vec{B}$ 分别是电场矢量、电位移矢量、磁场矢量、磁感应矢量。对于均匀、非导电和没有自由电荷的非磁性介质, 电流密度 $\vec{j} = 0$, 电荷密度 $\rho = 0$, 同时满足:

$$\begin{aligned}\vec{B} &= \mu_0 \vec{H} \\ \vec{D} &= \varepsilon_0 \vec{E} + \vec{P}\end{aligned}\quad (2.2)$$

其中, $\vec{P}$ 为介质极化强度, ε_0 为真空介电常数, μ_0 为真空磁导率。

光场 $\vec{E}$ 与电介质相互作用时, 电介质内部电荷因受 $\vec{E}$ 感应而产生电极化效应。介质的电极化强度 $\vec{P}$ 可以写成它的电场强度 $\vec{E}$ 的高次函数:

$$\vec{P} = \varepsilon_0 \chi^{(1)} \cdot \vec{E} + \varepsilon_0 \chi^{(2)} : \vec{E}\vec{E} + \varepsilon_0 \chi^{(3)} : \vec{E}\vec{E}\vec{E} + \dots \quad (2.3)$$

式中的第一项是电极化的线性项, 从第二项开始都是非线性极化项。其中 $\chi^{(1)}$ 、 $\chi^{(2)}$ 、 $\chi^{(3)}$ 分别称为一阶 (线性)、二阶、三阶电极化率, 它们分别为二阶、三阶、四阶极化张量。极化强度 $\vec{P}$ 可写为线性极化强度 $\vec{P}_L$ 与非线性极化强度 $\vec{P}_{NL}$ 之和:

$$\vec{P} = \vec{P}_L + \vec{P}_{NL} \quad (2.4)$$

当光电场强度很低时, $\vec{P}_{NL}$ 可忽略, 即可按传统线性光学处理。对于激光而言, 其光电场强度很高, $\vec{P}_{NL}$ 作用明显, 因此必须考虑 $\vec{P}_{NL}$ 的作用。此时, 电位移矢量 $\vec{D}$ 可表示为:

$$\vec{D} = \vec{D}_L + \vec{P}_{NL} \quad (2.5)$$

其中 $\vec{D}_L = \varepsilon_0 \vec{E} + \vec{P}_L = \varepsilon \vec{E}$ 是只考虑线性极化时的电位移矢量。

在非磁、非导电、无自由电荷的介质中，假定光波为平面波且为横电波（ $\nabla \cdot \vec{E} = 0$ ），将式（2.5）代入麦克斯韦方程组（2.1）便可以得到描述任意光场 $\vec{E}$ 在非线性介质中的传播规律方程：

$$\nabla^2 \vec{E} - \mu_0 \varepsilon \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial^2 \vec{P}_{NL}}{\partial t^2} \quad (2.6)$$

该方程是处理各种非线性光学问题的最基本方程。其中当 $\vec{P}_{NL} = 0$ 时，方程（2.6）即为线性光学中常见的波动方程。非线性极化 $\vec{P}_{NL}$ 可看作是产生新光场的一个源头。

三波耦合方程

对于频率为 ω_i 的光场 $E(\vec{k}_i, \omega_i)$ 及由它产生的非线性极化 $\vec{P}_{NL}(\vec{k}_i, \omega_i)$ 可表示如下：

$$\vec{E}(\vec{k}_i, \omega_i) = \vec{A}_i e^{-i(\omega_i t - \vec{k}_i \cdot \vec{r})} \quad (2.7)$$

$$\vec{P}_{NL}(\vec{k}_i, \omega_i) = \vec{P}_i e^{-i(\omega_i t - \vec{k}_i \cdot \vec{r})} \quad (2.8)$$

假设振幅 $\vec{A}_i, \vec{P}_i$ 都不含时间 t ，将式（2.7）和式（2.8）代入非线性介质中的波动方程（2.6），可得：

$$\nabla^2 \vec{E}(\vec{k}_i, \omega_i) + k_i^2 \vec{E}(\vec{k}_i, \omega_i) = -\mu_0 \omega_i^2 \vec{P}_{NL}(\vec{k}_i, \omega_i) \quad (2.9)$$

其中 $k_i = n(\omega_i) \omega_i / c$ ， $n(\omega_i) = \sqrt{\varepsilon(\omega_i) / \varepsilon_0}$ 为折射率， $c = 1 / \sqrt{\varepsilon_0 \mu_0}$ 是真空中光速。

两个频率分别为 ω_1 、 ω_2 的单色光在具有二阶非线性光学效应的晶体中传播时，会产生新的光波，频率 $\omega_3 = \omega_1 \pm \omega_2$ 。取“+”时，是和频过程（SFG）；取“-”时，为差频过程（DFG）；当 $\omega_1 = \omega_2$ 时，为倍频过程（SHG）；光参量效应（OPG/OPA/OPO）是与和频相反的过程，一个频率为 $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ 的光波产

生两个频率为 ω_1 、 ω_2 的光波。

对于以上三波相互耦合过程，我们可以考虑如下：假设三个相互作用的光波 $\vec{E}_1(\vec{k}_1, \omega_1)$ 、 $\vec{E}_2(\vec{k}_2, \omega_2)$ 、 $\vec{E}_3(\vec{k}_3, \omega_3)$ ，频率满足 $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ ，仅考虑其二阶非线性极化，则由频率分别为 ω_1 和 ω_2 的两个光波产生频率为 ω_3 的二阶非线性极化应为：

$$\vec{P}_{NL}(\vec{k}_3, \omega_3) = \varepsilon_0 \chi^{(2)}(-\omega_3, \omega_1, \omega_2) : \vec{E}_1(\vec{k}_1, \omega_1) \vec{E}_2(\vec{k}_2, \omega_2) \quad (2.10)$$

频率分别为 ω_3 和 ω_2 的两个光波产生频率为 ω_1 的二阶非线性极化应为：

$$\vec{P}_{NL}(\vec{k}_1, \omega_1) = \varepsilon_0 \chi^{(2)}(-\omega_1, \omega_3, -\omega_2) : \vec{E}_3(\vec{k}_3, \omega_3) \vec{E}_2^*(\vec{k}_2, \omega_2) \quad (2.11)$$

频率分别为 ω_3 和 ω_1 的两个光波产生频率为 ω_2 的二阶非线性极化应为：

$$\vec{P}_{NL}(\vec{k}_2, \omega_2) = \varepsilon_0 \chi^{(2)}(-\omega_2, \omega_3, -\omega_1) : \vec{E}_3(\vec{k}_3, \omega_3) \vec{E}_1^*(\vec{k}_1, \omega_1) \quad (2.12)$$

将 (2.10)，(2.11)，(2.12) 代入方程 (2.9) 可得三波耦合方程组如下：

$$\begin{aligned} \nabla^2 \vec{E}_1(\vec{k}_1, \omega_1) + k_1^2 \vec{E}_1(\vec{k}_1, \omega_1) &= -\left(\frac{\omega_1}{c}\right)^2 \chi^{(2)}(-\omega_1, \omega_3, -\omega_2) : \vec{E}_3(\vec{k}_3, \omega_3) \vec{E}_2^*(\vec{k}_2, \omega_2) \\ \nabla^2 \vec{E}_2(\vec{k}_2, \omega_2) + k_2^2 \vec{E}_2(\vec{k}_2, \omega_2) &= -\left(\frac{\omega_2}{c}\right)^2 \chi^{(2)}(-\omega_2, \omega_3, -\omega_1) : \vec{E}_3(\vec{k}_3, \omega_3) \vec{E}_1^*(\vec{k}_1, \omega_1) \\ \nabla^2 \vec{E}_3(\vec{k}_3, \omega_3) + k_3^2 \vec{E}_3(\vec{k}_3, \omega_3) &= -\left(\frac{\omega_3}{c}\right)^2 \chi^{(2)}(-\omega_3, \omega_1, \omega_2) : \vec{E}_1(\vec{k}_1, \omega_1) \vec{E}_2(\vec{k}_2, \omega_2) \end{aligned} \quad (2.13)$$

三波耦合方程的物理意义可以这样理解：由于二阶非线性极化，三个平面波相互作用，相互耦合，并通过这种相互作用进行彼此之间的能量转移。三波耦合方程组(2.13)是分析二阶非线性光学现象（如倍频、和频、差频、参量效应、...等）的基本方程。

在理想的单色均匀平面波和慢变振幅近似下，采用有效非线性极化概念[4]，可以得到沿 Z 轴共线传播的三波互作用耦合波方程为：

$$\begin{aligned}
\frac{\partial A_1}{\partial z} &= i \frac{\omega_1 d_{eff}}{n_1 c} A_2^* A_3 e^{i\Delta k \cdot z} \\
\frac{\partial A_2}{\partial z} &= i \frac{\omega_2 d_{eff}}{n_2 c} A_1^* A_3 e^{i\Delta k \cdot z} \\
\frac{\partial A_3}{\partial z} &= i \frac{\omega_3 d_{eff}}{n_3 c} A_1 A_2 e^{-i\Delta k \cdot z}
\end{aligned} \tag{2.14}$$

上式中 A_i 和 ω_i ($i=1, 2, 3$) 分别是光波的振幅和圆频率, n_i 是非线性介质的折射率, Δk 为波矢失配量, $\Delta k \cdot z = [k_3 - (k_1 + k_2)] \cdot z$ 反映了三个平面波之间的相位关系, d_{eff} 是有效非线性系数, 定义为 $\chi^{(2)} = 2d_{eff}$ 。其中, (2.14) 式中忽略了介质的损耗。

2.2 光学参量效应(OPG/OPA/OPO)

光学参量放大 (OPA) 过程的基本原理是, 在合适的非线性晶体中, 一束能量较大、频率较高的激光 (泵浦光, 频率 ω_p) 对能量较小、频率较低的另一束激光 (信号光, 频率 ω_s) 进行放大, 同时产生第三束激光 (闲频光, 频率 ω_i) (图 2.1)。光学参量放大过程中, 信号光和闲频光的地位同等, 可以互换, 通常假定 $\omega_p > \omega_s > \omega_i$ 。参量放大过程必须符合能量守恒条件 $\hbar\omega_p = \hbar\omega_s + \hbar\omega_i$ 。同时, 为了获得有效的能量转换, 需要满足动量守恒 (或者称相位匹配) 条件 $\hbar k_p = \hbar k_s + \hbar k_i$, 其中 k_p 、 k_s 和 k_i 分别为泵浦光、信号光和闲频光的波矢。实际中, 非线性光学晶体的透明波段决定了可实现光学参量放大的频率 (波长) 范围, 在简并状态下, 信号光和闲频光频率相同。总之, 在光学参量放大过程中, 能量从频率一定、能量较高的泵浦光转换到频率可变、能量较低的信号光, 同时生成第三个光闲频光。为了实现一定效率的转化, 通常需要较高的泵浦强度。

光学参量放大过程中较弱的初始信号光通常是先以某种方式产生, 并在一个或多个 OPA 晶体中对该信号光进行放大, 这样称为光学参量放大器 (OPA)。在没有初始信号光的情况下, OPA 仍然可以从量子噪声开始建立增益, 这样的参量过程称为光学参量产生 (OPG)。OPA 还有一种工作方式, 即将非线性晶体置于适当的光学谐振腔内, 并且使参量过程的增益大于损耗, 这样就可以在腔内形成像普通激光一样的振荡, 这样的方式称作光学参量振荡器 (OPO)。

OPA 和 OPO 两种方式都可以运用于连续光、纳秒脉冲、皮秒和飞秒脉冲，这两种方式的应用效果各有优势。其中，OPO 可以直接用小型的飞秒激光振荡器泵浦，可以产生高重复频率的脉冲(~ 100 MHz)，这适于在实验中探测较弱的信号、改善信噪比；但另一方面，OPO 工作时对谐振腔的长度匹配要求比较严格。其调谐性容易受谐振腔镜片的镀膜情况的限制，所以要实现大范围的调谐需要更换多组镜片。相比而言，OPA 需要的高泵浦光强只能利用放大系统提供，所以对泵浦光源的要求比较苛刻，并且输出的重复频率较低(通常为 $1\sim 100$ kHz)；但另一方面，OPA 输出的脉冲能量高，频谱的调谐范围宽，并且不存在腔的使用，可以减少装置复杂性，所以使用起来较为方便。因此 OPA 和 OPO 可以优势互补，应用到多种的场合中。因为 OPA 具有较高的稳定性和可靠性，已成为激光调谐的常用手段，本文中仅对 OPA 进行讨论。

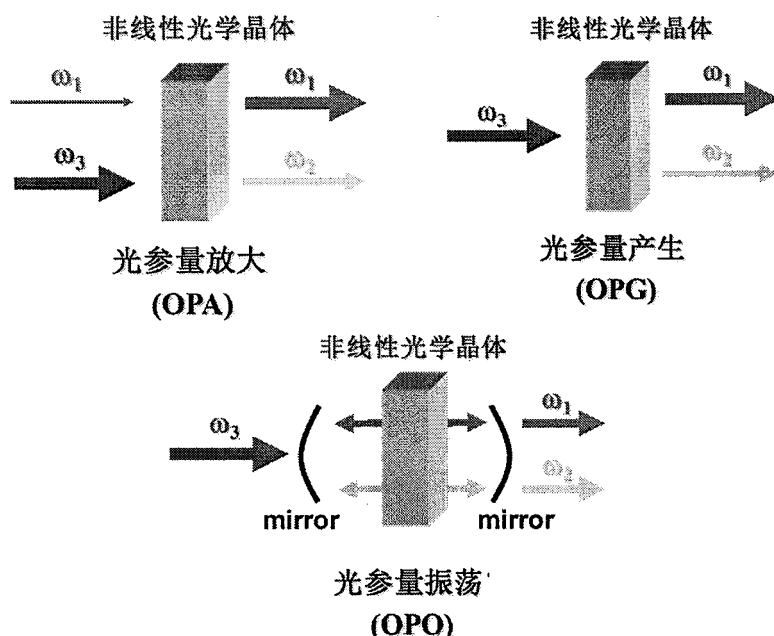


图 2.1 参量相互作用的结构

2.3 非线性光学晶体双折射相位匹配及准相位匹配技术

2.3.1 双折射相位匹配

相位匹配是非线性光学中一个非常重要的概念。相位匹配技术的使用，使得非线性作用的转化效率大大提高。

单轴晶体中, 根据 $\mathbf{D}$ 矢量的方向不同, 光波分为 o 光及 e 光, 在两种相位匹配情况下, 参与互作用的光波是 o 光还是 e 光, 由晶体的类型来决定。因为本论文中所用的晶体 KTA 和 BGS_e 是双轴晶体, 在此详细讨论双轴晶体的有关设计理论, 对单轴晶体的问题不做过多讨论。

在上一节的导出的耦合波方程中, 相位失配因子 $\Delta\vec{k}$ 起着重要作用, 若完全相位匹配 $\Delta\vec{k} = 0$, 三波非线性相互作用就会得到增强; 若 $\Delta\vec{k} \neq 0$; 三波非线性相互作用就会减弱; 甚至于若 $\Delta\vec{k}$ 很大, 三波非线性相互作用有可能不会发生。因此, $\Delta\vec{k}$ 是影响非线性光学过程的重要物理量。为获得强的非线性光学过程, 通常希望 $\Delta\vec{k} = 0$, 称为相位匹配条件。如何实现相位匹配, 是实际工作中需要解决的关键问题之一, 也是进行非线性光学实验中的首要问题[5,6]。

一般情况下, 三波相互作用都是发生在介质的透明波段区域, 也就是介质与光场无能量交换, 此时三波之间应该满足动量守恒定律与能量守恒定律[15]。其中动量守恒定律就是 $\Delta\vec{k} = 0$ 。如果三波是共线传播, 相位匹配条件为:

$$\omega_1 n_1 + \omega_2 n_2 = \omega_3 n_3 \quad (2.15)$$

$$\frac{n_1}{\lambda_1} + \frac{n_2}{\lambda_2} = \frac{n_3}{\lambda_3} \quad (2.16)$$

共线情况的相位匹配, 实质上是指参与相互作用的光波之间尽可能有相同的相速度, 从而保证光波之间同步的相互作用。下文主要讨论共线情况下, 在非线性光学晶体中三波相互作用的相位匹配问题。

通常参与相互作用的三个光波的频率是一定的。实现相位匹配的方法就是利用非线性光学晶体的双折射特性和色散特性, 来改变三光波折射率之间的相对大小, 使其满足 $\omega_1 n_1 + \omega_2 n_2 = \omega_3 n_3$ 。常用的相位匹配方式有角度相位匹配和温度相位匹配两种。在此重点讲前一种匹配方式。

1. 角度相位匹配

角度相位匹配包括 I 类相位匹配和 II 类相位匹配两种方式。如果两束入射光的偏振方向一致, 为 I 类相位匹配; 如果入射的两束光的偏振方向不一致, 为 II 类相位匹配。其中的 II 类相位匹配两束光波互相交换又包含两种情况[7]。在双

轴晶体中, 沿波矢方向上传播的两简正模均为非寻常光, 光速不同, 分别称为快光和慢光。对于和频过程 $\omega_1 + \omega_2 = \omega_3$, I 类相位匹配时, ω_1 和 ω_2 取慢光, ω_3 取快光; II 类相位匹配时, ω_1 取慢光, ω_2 和 ω_3 取快光或者 ω_2 取慢光, ω_1 和 ω_3 取快光。设三光波 $\omega_1, \omega_2, \omega_3$ 共线, 且处于晶体的同一透明区域, 相位匹配条件和相位匹配方式符号分别为[8]:

$$\text{I 类} \quad \omega_1 n_1^s + \omega_2 n_2^s = \omega_3 n_3^f, (s + s \rightarrow f) \quad (2.17)$$

$$\text{II 类} \quad \omega_1 n_1^s + \omega_2 n_2^f = \omega_3 n_3^f, (s + f \rightarrow f) \quad (2.18)$$

$$\text{II 类} \quad \omega_1 n_1^f + \omega_2 n_2^s = \omega_3 n_3^f, (f + s \rightarrow f) \quad (2.19)$$

上式中, s 和 f 分别表示慢光和快光。对于差频过程 $\omega_1 - \omega_2 = \omega_3$, I 类相位匹配时, ω_1 和 ω_2 取快光, ω_3 取慢光; II 类相位匹配时, ω_1 取快光, ω_2 和 ω_3 取慢光或者 ω_1 和 ω_3 取快光, ω_2 取慢光。相位匹配条件和相位匹配方式符号分别为[9]:

$$\text{I 类} \quad \omega_1 n_1^f - \omega_2 n_2^f = \omega_3 n_3^s, (f + f \rightarrow s) \quad (2.20)$$

$$\text{II 类} \quad \omega_1 n_1^f - \omega_2 n_2^s = \omega_3 n_3^s, (f + s \rightarrow s) \quad (2.21)$$

$$\text{II 类} \quad \omega_1 n_1^f - \omega_2 n_2^s = \omega_3 n_3^f, (f + s \rightarrow f) \quad (2.22)$$

双轴晶体的折射率是两个角度 θ 和 φ 的函数, 因此双轴晶体的相位匹配角为一对角度 θ_m 和 φ_m 。并且满足相位匹配条件的相位匹配角 (θ_m, φ_m) 有无穷多组, 可以连成一条线, 称作相位匹配曲线[10]。

光在非线性晶体中传播时, 其相速取决于光波在传播方向上的折射率, 它与光波的偏振态及传播方向有关。一般来说, 传播方向确定后, 存在两个具有确定的特征相速度与偏振方向的本征光波, 并且它们的偏振方向互相垂直。若一个光的偏振方向与这两个特征方向中的任一个平行, 则该光波通过晶体时, 它的偏振方向将保持不变。分析光波在非线性晶体中的传播, 就是求解两个特征光波的偏振方向及相应的相速度(或折射率)。光波在非线性晶体中传播, 可以由麦克斯韦方程来描述, 求解麦克斯韦方程, 可以直接给出非线性晶体中光波的偏振态及相

应的折射率[11]。为了直观地看出晶体中光波各个矢量间的方向关系，以及各个传播方向相应的光速或折射率的空间取值，利用折射率椭球、折射率曲面和射线面等来分析光波在非线性晶体中的传播规律[12]。

双轴晶体的主介电常数 $\varepsilon_x \neq \varepsilon_y \neq \varepsilon_z$ ，即 $n_x \neq n_y \neq n_z$ ，三个主轴折射率不相等 (n_x, n_y, n_z 简写为 n_1, n_2, n_3)。因此双轴晶体的折射率椭球是一个三轴椭球。

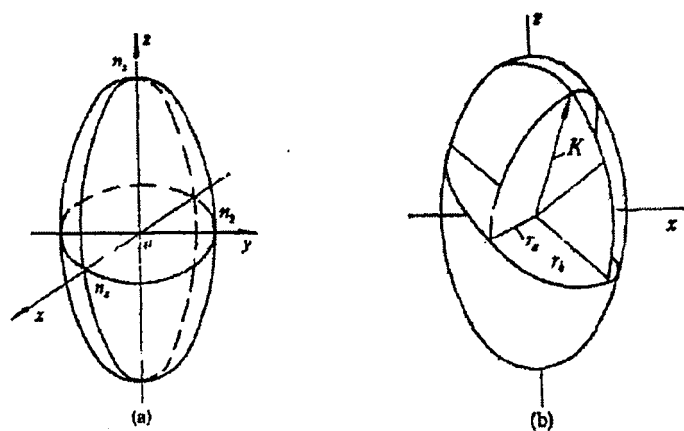


图 2.2 双轴晶体折射率椭球 (a) 折射率椭球 (b) 给定矢量 K 的情形

其方程为:

$$\frac{x^2}{n_1^2} + \frac{y^2}{n_2^2} + \frac{z^2}{n_3^2} = 1 \quad (2.23)$$

由几何定理可知，在三轴椭球中一定有两个过中心的平面与椭球的交线为圆，它们的法线应和椭圆的最长和最短轴共面。约定 $n_3 > n_2 > n_1$ ，如果两个圆形截面的法线在 x - z 平面内，折射率椭球与 x - z 面的交线方程为[12]:

$$\frac{x^2}{n_1^2} + \frac{z^2}{n_3^2} = 1 \quad (2.24)$$

以 φ' 表示椭圆上任一点的矢径 r 与 x 轴的夹角，该矢径的长度为 n' ，则上式可写成

$$\frac{(n' \cos \varphi')^2}{n_1^2} + \frac{(n' \sin \varphi')^2}{n_3^2} = 1 \quad (2.25)$$

或者是

$$\frac{1}{n'^2} = \frac{\cos^2 \varphi'}{n_1^2} + \frac{\sin^2 \varphi'}{n_3^2} \quad (2.26)$$

n' 的大小随 φ' 在 n_1 和 n_3 之间变化。既然 $n_3 > n_2 > n_1$ ，总会找到某个矢量 $\mathbf{r}_0$ ，其长度 $n' = n_2$ 。设 $\mathbf{r}_0$ 与 x 轴的夹角为 φ'_0 ，则有

$$\frac{1}{n_2^2} = \frac{\cos^2 \varphi'_0}{n_1^2} + \frac{\sin^2 \varphi'_0}{n_3^2} \quad (2.27)$$

$$\tan \varphi'_0 = \pm \frac{n_3}{n_1} \sqrt{\frac{n_2^2 - n_1^2}{n_3^2 - n_2^2}} \quad (2.28)$$

设在双轴晶体中传输的平面波波矢为 $\mathbf{K}$ ，OA 为双轴晶体的光轴 C_1 ，OB 为光轴 C_2 ，OH 为波矢 $\mathbf{K}$ 的方向。由毕奥-菲涅耳定理可证明，光波的两个允许的偏振方向分别在平面 OHA 和 OHB 的内、外角平分面上，如图中 e_1 和 e_2 所示 $n(e_1) > n(e_2)$ ， e_1 和 e_2 分别表示慢光和快光。

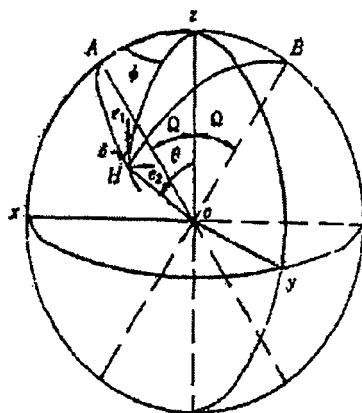


图 2.3 双轴晶体中光波偏振方向

为了形象而直观地表示每个波矢 $\mathbf{K}$ 的两个偏振方向对应的折射率，人们引入了折射率曲面，它的每个矢径 $\mathbf{r} (=n\mathbf{K})$ 方向平行于某个给定的波矢方向 $\mathbf{K}$ ，其长度等于方向 $\mathbf{K}$ 的两个光波的折射率。因此，双轴晶体的折射率面是一个双壳层的闭曲面[8]。

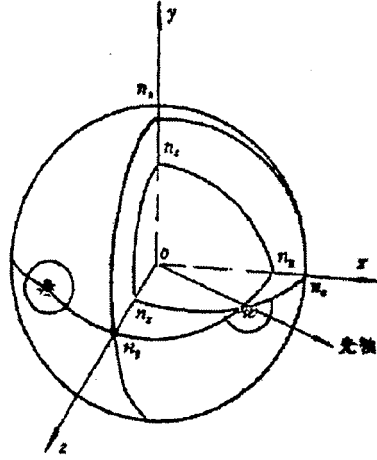


图 2.4 双轴晶体折射率曲面

折射率曲面方程可写为:

$$\frac{k_x^2}{n^{-2} - n_1^{-2}} + \frac{k_y^2}{n^{-2} - n_2^{-2}} + \frac{k_z^2}{n^{-2} - n_3^{-2}} = 0 \quad (2.29)$$

设主轴坐标系中, $\mathbf{K}$ 与 z 轴的夹角为 θ , $\mathbf{K}$ 在 $yo z$ 平面的投影与 x 轴的夹角为 φ , 则有:

$$k_x = \sin \theta \cos \varphi, \quad k_y = \sin \theta \sin \varphi, \quad k_z = \cos \theta \quad (2.30)$$

设:

$$a = n_1^{-2}, \quad b = n_2^{-2}, \quad c = n_3^{-2} \quad (2.31)$$

$$B = -\sin \theta \cos^2 \varphi (b + c) - \sin^2 \theta \sin^2 \varphi (a + c) - \cos^2 \theta (a + b) \quad (2.32)$$

$$C = \sin^2 \theta \cos^2 \varphi bc + \sin^2 \theta \sin^2 \varphi ac + \cos^2 \theta ab \quad (2.33)$$

$$x = n^{-2} \quad (2.34)$$

将式(2.30)-(2.34)代入式(2.29)可得到:

$$x^2 + Bx + C = 0 \quad (2.35)$$

解上面方程可得:

$$n = \sqrt{2} / \sqrt{-B \pm \sqrt{B^2 - 4C}} \quad (2.36)$$

式(2.36)为波矢的光波对应的两个偏振方向的折射率，式中符号取“+”或“-”时，分别对应 e_2 方向偏振的光波(快光)及 e_1 方向偏振的光波(慢光)所对应的的折射率。一般情况下，波矢方向为 $\mathbf{K}$ 的两个光波的能流方向 $\mathbf{S}$ (波印亭矢量)不相同，也不能与 $\mathbf{K}$ 重合，因此在双轴晶体中两个光波都是寻常光。求相位匹配问题实际上就是求三个光波折射率面的空间交线。

在直角坐标中，折射率面的方程为：

$$\begin{aligned} & (x^2 + y^2 + z^2)(n_1^2 x^2 + n_2^2 y^2 + n_3^2 z^2) - \\ & [n_1^2(n_2^2 + n_3^2)x^2 + n_2^2(n_1^2 + n_3^2)y^2 + n_3^2(n_1^2 + n_2^2)z^2] + n_1^2 n_2^2 n_3^2 = 0 \end{aligned} \quad (2.37)$$

如选择三个坐标平面为截面，它们与双轴晶体的折射率面的交线方程为：

$$\text{x-y 面}(z=0): \quad (x^2 + y^2 - n_3^2) \left(\frac{x^2}{n_2^2} + \frac{y^2}{n_1^2} - 1 \right) = 0 \quad (2.38)$$

$$\text{y-z 面}(x=0): \quad (y^2 + z^2 - n_1^2) \left(\frac{x^2}{n_3^2} + \frac{y^2}{n_2^2} - 1 \right) = 0 \quad (2.39)$$

$$\text{z-x 面}(y=0): \quad (x^2 + z^2 - n_2^2) \left(\frac{x^2}{n_3^2} + \frac{y^2}{n_1^2} - 1 \right) = 0 \quad (2.40)$$

按照 $n_3 > n_2 > n_1$ 的约定，式(2.38)-(2.40)三个交线方程中每一个都表示一个圆和一个椭圆，只有在 x-z 面中圆与椭圆相交，而在其它两个面中圆与椭圆不相交。

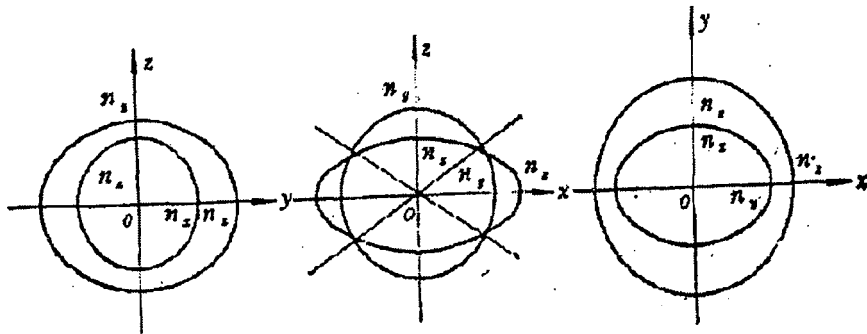


图 2.5 双轴晶体折射率曲面在三个主轴截面上的截线

求解相位匹配问题，关键是求解光波在双轴晶体中传播时的折射率，以限定光波在晶体中传播方向 (θ, φ) ，使三个光波的波矢 $\mathbf{K}_1, \mathbf{K}_2, \mathbf{K}_3$ 满足下式：

$$\Delta k = K_3 - K_1 - K_2 = 0 \quad (2.41)$$

对单色平面波在非线性晶体中的传播分析得知，光波在双轴晶体中的传播，其电场矢量 $\mathbf{E}$ 有两个可能的振动面，分别对应慢光和快光，对应的折射率分别为 $n'(\omega_i)$ 和 $n''(\omega_i)$ 。在双轴晶体的光学主轴坐标系中，按照前面的约定，就确定了双轴晶体的折射率椭球的形状是沿 z 轴拉长(与 x, y 轴比较)及沿 y 轴拉长(与 x 轴比较)的；晶体的主轴折射率随光波长的改变而改变，且如果 $\omega_i > \omega_j$ ，则 $n_x(\omega_i) > n_x(\omega_j)$ ， $n_y(\omega_i) > n_y(\omega_j)$ 及 $n_z(\omega_i) > n_z(\omega_j)$ 。这两个假设决定了双轴晶体中三波的相互作用方式有两种，按照入射基波光的偏振方向，分为第 I 类和第 II 类[13]。由于双轴晶体的快光和慢光的折射率，分别为折射率面的内壳层面及外壳层面，所以 I 类匹配的是由基波的慢光和谐波的快光折射率的空间交线；II 类相位匹配失球基波折射率面内、外二层壳面的平均壳面与谐波内壳表面的空间交线。其相位匹配条件[14]，可表示为：

$$\text{I 类} \quad \omega_1 n'(\omega_1) + \omega_2 n'(\omega_2) = \omega_3 n'(\omega_3) \quad (2.42)$$

$$\text{II 类} \quad \omega_1 n'(\omega_1) + \omega_2 n''(\omega_2) = \omega_3 n''(\omega_3) \quad (2.43)$$

双轴晶体的类型很多，而且三个主折射率 n_x, n_y, n_z 大小次序不同，决定了不同的光轴方向以及双轴晶体双层壳面大体形状及走向，在不同波段这种次序还可能有所改变。按照主轴折射率的大小次序，将相位匹配分成十四类[5]。

以第二类为例，由前面的折射率曲面方程，波矢方向 (θ, φ) 的光波对应的快光折射率为：

$$n''(\omega_i) = \sqrt{2} / \sqrt{-B_i + \sqrt{B_i^2 - 4C_i}} \quad (2.44)$$

慢光折射率为：

$$n'(\omega_i) = \sqrt{2} / \sqrt{-B_i - \sqrt{B_i^2 - 4C_i}} \quad (2.45)$$

所以双轴晶体中三波相互作用的 I, II 类相位匹配条件(2.42)-(2.43)可表示为:

$$\begin{aligned} \text{I 类} \quad & \omega_1 / \sqrt{-B_1 - \sqrt{B_1^2 - 4C_1}} + \omega_2 / \sqrt{-B_2 - \sqrt{B_2^2 - 4C_2}} \\ & = \omega_3 / \sqrt{-B_3 + \sqrt{B_3^2 - 4C_3}} \end{aligned} \quad (2.46)$$

$$\begin{aligned} \text{II 类} \quad & \omega_1 / \sqrt{-B_1 - \sqrt{B_1^2 - 4C_1}} + \omega_2 / \sqrt{-B_2 + \sqrt{B_2^2 - 4C_2}} \\ & = \omega_3 / \sqrt{-B_3 + \sqrt{B_3^2 - 4C_3}} \end{aligned} \quad (2.47)$$

式中 B 和 C 分别由(2.32)和(2.33)给出, 它们都是双轴晶体三个主轴折射率 $n_x(\omega_i), n_y(\omega_i), n_z(\omega_i)$ 的函数, 又是波长的函数。如果已知主折射率与波长的关系式(色散方程, 称 Sellmeier equations):

$$n_i^2(\lambda) = A_i + \frac{B_i}{\lambda^2 - C_i} - D_i \lambda^2, \quad i = x, y, z \quad (2.48)$$

对于给定的晶体, A_i, B_i, C_i, D_i 是常数。就可以由上式求得任意波长的的主轴折射率, 从而可以求出(2.31)中的 a_i, b_i 及 c_i , 在求出(2.32)及(2.33)中的 B_i 及 C_i (都是 θ, φ 的函数)。可以编制计算机数值计算程序, 对 θ, φ 在一定范围内进行扫描, 求出满足(2.46)及(2.47)的 θ, φ 组。满足这些方程的 θ, φ 可能有很多组, 这些点组成相位匹配曲线, 曲线上每一点表示一个相位匹配方向。每一组 (θ, φ) 都对应一个有效非线性系数 d_{eff} 通常把 d_{eff} 取得最大值时对应的 θ, φ 定义为最佳相位匹配方向(或者是最佳相位匹配角)[15]。求解在某种非线性晶体中三波相互作用的相位匹配问题就是求解最佳匹配角。

2. 温度相位匹配

有些晶体的折射率对温度变化较敏感, 可以通过改变晶体温度的方法来改变光波的折射率, 从而达到相位匹配的目的, 这就是温度相位匹配, 又称为非临界相位匹配(NCPM)。使相位匹配条件成立的晶体温度称为匹配温度, 用 t_p 表示。 t_p 与晶体生长时的成分和条件有关。晶体温度的改变是通过改变温控炉中的温度来实现的, 所以要求用于温度相位匹配的晶体的折射率对温度变化要敏感[5]。

与角度相位匹配类似, 温度相位匹配也有 I 类和 II 类两种相位匹配方式。在保证大的有效非线性系数情况下, 令入射光沿 θ 角和 φ 角所确定的方向传播, 同时改变晶体的温度, 当温度等于相位匹配温度 t_p 时, $\Delta K = 0$, 满足相位匹配条件。此时, 求解在某种非线性晶体中三波相互作用的相位匹配问题就是求解最佳匹配温度。本论文中主要采用角度相位匹配, 温度匹配不做详细讨论。

2.3.2 准相位匹配(QPM)

前面所说的相位匹配技术, 是利用晶体的双折射效应来实现的, 即双折射相位匹配技术。1962 年, 诺贝尔物理奖得主 Blembergen N 等最先提出了准相位匹配的概念。近年来, 一种能获得更高倍频的技术——周期极化晶体的准相位匹配技术发展迅速。早在 20 世纪 60 年代 Bloembergen 和 Franken 两人就提出了这种准相位匹配技术, 但由于周期性畴反转结构制备工艺上的困难, 使得准相位匹配技术没有得到真正的应用。到上世纪 90 年代中后期, 多种制备周期畴反转结构工艺技术得到突破, 准相位匹配技术才获得了高速发展, 并且现在已成为非线性光学频率变换方面的重要发展方向之一。

在准相位匹配作用过程中, 非线性极化率的符号每经过一个相干长度就会改变一次, 这样相互作用过程中的三波相位可回到起始状态, 同时也能获得有效的能量转换。因此, 准相位匹配的主要优点是可以通过制造周期反转的非线性极化率结构而获得有效的能量转换, 与材料的内在特性无关。这种用于准相位匹配的具有周期极化方向反向特性的晶体称为周期极化晶体。

目前最适合于进行周期极化的是铁电晶体。在外加电场的作用下, 铁电晶体能够有效地实现铁电畴反转, 从而改变晶体的自发极化方向。对晶体进行周期极化的方法很多, 其中最常用的方法是外加电压法, 即通过外加电场使铁电晶体(如 LiNbO_3 晶体、KTP 晶体等)的非线性系数的符号发生周期性变化。图 2.6 为周期极化铌酸锂微观结构示意图。图 2.7 是周期极化晶体结构及准相位匹配原理示意图, 图中的箭头方向为铁电畴的极化方向。周期极化晶体的相邻两片铁电畴的自发极化矢量方向相反。对于周期极化晶体来说, 相当于对晶体的极化方向进行了周期性调制。此外两个相邻的极化方向相反的铁电畴的电光系数、压电系数和非线性光学系数等都是同值而反号, 因此周期极化的非线性晶体的物理性质不再是常数而是空间坐标的周期函数。

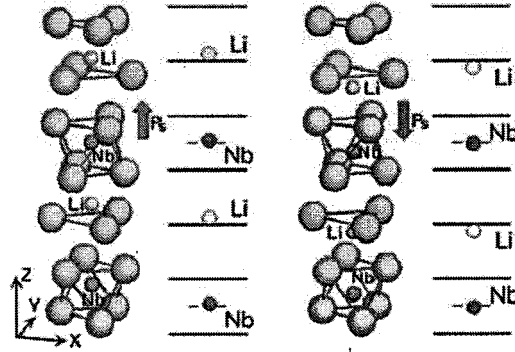
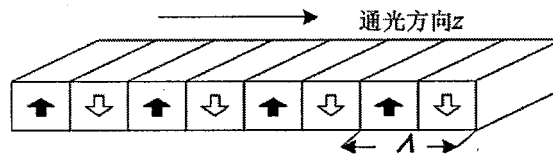
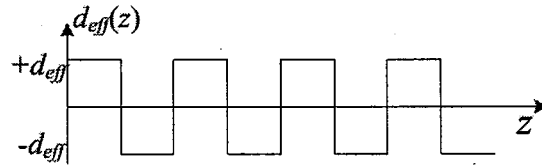


图 2.6 周期极化铌酸锂微观结构示意图



a) 周期极化晶体结构



b) 二阶非线性系数的周期调制

图 2.7 周期极化晶体结构及原理图

对于准相位匹配的光学参量激光器，需要通过重新定义有效非线性系数和波矢失配，许多传统的光学参量理论都能够利用。

我们把新的有效非线性系数用傅立叶级数表示为[16]:

$$d_{eff}(z) = d_{eff} \sum_{m=-\infty}^{+\infty} G_m e^{-ik_m z} \quad (2.49)$$

式中, z 为通光方向; $m=1, 3, 5, \dots$, 为准相位匹配阶数; k_m 是极化周期引入的参数, 称为“周期波矢”, 满足:

$$k_m = \frac{2\pi m}{\Lambda} \quad (2.50)$$

Λ 为极化周期, $G_m = \frac{2}{m\pi} \sin(m\pi D)$, D 为反转畴的占空比系数, 一般情况下

$D = 0.5$ 。如果只考虑某一阶准相位匹配, 则式(2.49)可简化为:

$$d_{eff}(z) = d_{eff} \frac{2}{m\pi} e^{-ik_m z} \quad (2.51)$$

对 QPM 来说, 其相位失配量可表示为:

$$\Delta k = k_3 - k_2 - k_1 - k_m = k_3 - k_2 - k_1 - \frac{2\pi m}{\Lambda} \quad (2.52)$$

因此, 欲实现相位匹配($\Delta k = 0$), 只需使极化周期满足:

$$\Lambda = \frac{2\pi m}{k_3 - k_2 - k_1} \quad (m \text{ 为奇数}) \quad (2.53)$$

又相干长度可表示为

$$l_c = \frac{\pi}{k_3 - k_2 - k_1} \quad (2.54)$$

$$\text{所以} \quad \Lambda = 2ml_c \quad (m \text{ 为奇数}) \quad (2.55)$$

因此, 利用周期极化晶体实现准相位匹配, 就是以 $2l_c$ (l_c 为相干长度) 的奇数倍为周期, 周期性地改变晶体材料的自发极化方向来补偿相位失配。

准相位匹配的优点

与双折射相位匹配技术相比, 准相位匹配没有双折射相位匹配中对于波矢方向和偏振方向的限制。根据具体条件, 通过选择适当的极化周期, 就可以实现相位匹配。具体来说, QPM 具有以下几个优点[19,20]:

(1) QPM 通过周期性极化结构来获得有效的能量转换, 与材料的内在特性无关, 没有双折射效应(或很小)的晶体也可以实现相位匹配。对透光区内任意波长的光波都不存在匹配的限制, 理论上能够利用晶体的整个透光范围。

(2) QPM 由于没有晶体双折射特性的限制, 三波的偏振方向可以任意选择, 所以只要它们沿同一晶轴方向传播, 就可以使走离角为零, 不存在走离效应, 这就降低了对入射光发散角的要求。同时, 可以使用较长的晶体, 获得较大的增益

和转换效率。

(3) QPM 过程不再要求正交光束，能够利用传统双折射相位匹配技术所达不到的高非线性系数，从而充分利用非线性晶体的最大有效非线性系数，使得非线性效应得以显著提高。

(4) QPM 通过选择适当的极化周期能够在任何工作点实现非临界相位匹配，而非临界相位匹配的优点是对泵浦光发散角和晶体调整角的要求降低，并且有较高的转换效率。

(5) 调谐方式丰富多样，如温度调谐、角度调谐、泵浦波长调谐等。我们只需在非线性晶体中设计制备出各种不同周期的畴反转，通过调谐极化周期和晶体温度就能十分简单地实现参量光的调谐输出。

总之，QPM 技术拓宽了非线性晶体的应用范围，大大提高了非线性光学转换效率，使光参量激光器的宽波段激光输出成为可能，已经成为非线性光学材料和固体激光器领域的研究热点之一。

2.4 超短脉冲光参量放大数值理论模型

在 2.1 节中我们阐述了非线性光学频率变换的基础理论，得到了不包含时间项的三波相互作用耦合波方程。该方程用于分析 ns 或更长脉冲的非线性过程是适用的，而对于 ps 或 fs 量级的超短脉冲，必须考虑群速失配对非线性过程的影响。在本节中我们参考了 Armstrong 在 1962 年提出的耦合波方程[19]，其中包含了空间走离、泵浦消耗和逆转换，忽略了时间走离和线性吸收，以及 Gale 提出的用来分析超短脉冲的数值模型[20]，其中包含了群速失配和高阶色散对非线性过程的影响。我们将二者结合，得到一种简化的共线高峰值功率泵浦结构的超短脉冲 OPA 耦合波方程：

$$\begin{cases} \frac{dE_1}{dz} + \left(\frac{1}{v_{g1}} - \frac{1}{v_{g3}} \right) \frac{\partial E_1}{\partial t} = i\kappa_1 E_3 E_2^* e^{i\Delta kz} \\ \frac{dE_2}{dz} + \left(\frac{1}{v_{g2}} - \frac{1}{v_{g3}} \right) \frac{\partial E_2}{\partial t} = i\kappa_2 E_3 E_1^* e^{i\Delta kz} \\ \frac{dE_3}{dz} = i\kappa_3 E_1 E_2 e^{-i\Delta kz} \end{cases} \quad (2.56)$$

其中,

$$\kappa_i = \frac{\omega_i}{n_i c \cos^2 \rho_i} d_{eff}, \quad i=1,2,3, \quad (2.57)$$

E_1, E_2 和 E_3 为信号光、闲频光和泵浦光的复电场振幅, 即 $E_i = E_i(z, t)$, $i=1,2,3$, 为包含空间坐标 z 和时间 t 的函数。 v_{gi}, ρ_i ($i=1,2,3$) 分别为群速度和空间走离角。

以 KTA-OPA 为例, OPA 泵浦源采用 30 ps、10 Hz 的 1064 nm 的 Nd:YAG 激光器。非线性晶体采用 KTA 晶体, 切割角为 $\theta = 41.4^\circ$, $\varphi = 0^\circ$, 为 II 类相位匹配 o-eo, 其中, 信号光为 e 光。

1. 时空走离效应分析

首先, 我们研究了 OPA 过程中的时空走离效应。在 II 类相位匹配的 OPA 过程中, 信号光和泵浦光之间或信号光和闲频光之间存在空间走离角 ρ 。由于该走离角的存在, 当光斑直径为 D 的三束相互作用光波在晶体中传播一定距离后, e 光将会与 o 光发生走离。走离长度 l_{spa} 等于 $D \times \cot \rho$ 。

时间走离是由三波群速失配引起。

$$v_g = \left(\frac{dk(\omega)}{d\omega} \right)^{-1} = \frac{1}{\beta_1}, \quad (2.58)$$

$$\beta_1 = \frac{d\beta}{d\omega} = \frac{n}{c} - \frac{\lambda}{c} \frac{dn}{d\lambda}, \quad (2.59)$$

β_i 为群速延迟系数。泵浦光与信号光的群速失配为 Δv_{g_sp} ，泵浦光与闲频光的群速失配为 Δv_{g_ip} [21]:

$$\begin{cases} \Delta v_{g_sp}^{-1} = v_{g_s}^{-1} - v_{g_p}^{-1} = \beta_{1s} - \beta_{1p} \\ \Delta v_{g_ip}^{-1} = v_{g_i}^{-1} - v_{g_p}^{-1} = \beta_{1i} - \beta_{1p} \end{cases}, \quad (2.60)$$

时间走离长度 l_{gvm} 由群速失配决定:

$$l_{gvm} = \frac{\tau}{\Delta v_g}, \quad (2.61)$$

其中, τ 为脉冲宽度。我们模拟了 1064 nm 泵浦的信号光调谐范围 1.45-2.25 μm 的 KTA OPA 过程的时空走离特性, 结果如图 2.8 所示。当信号光波长为 1528 nm 时, 泵浦光和信号光以及泵浦光和闲频光的时间走离是 80 fs/mm 和 51 s/mm, 对于脉宽 30 ps 的脉冲, 对应的时间走离长度分别为 375 mm 和 588 mm。所以对于长度为 10-20 mm 长的晶体, 其时间走离效应可以忽略。但是空间走离效应影响必须考虑。如图所示, 信号光 1528 nm 对应的空间走离角为 2.6° , 说明对于直径 2 mm 的光束的走离长度为 44 mm。因此, 10-20 mm 长的 KTA 晶体必须考虑光参量放大过程中的空间走离效应。

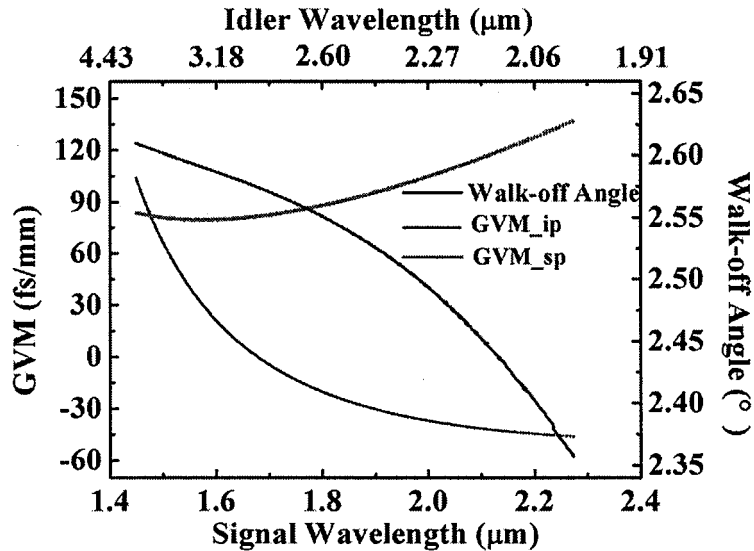


图 2.8 KTA 晶体的时空走离曲线

2. 数值计算基本思路

对于高转换效率的 OPA，不能用解析表达式进行分析。本论文采用四阶龙格-库塔（Runge-Kutta）方法对 OPA 的耦合波微分方程（2.56）进行数值求解，计算程序用 MATLAB 语言编写。起始时刻闲频光相当于噪声信号，它的单脉冲能量取为 10^{-15} 焦耳，随着光波在晶体中向前传播，泵浦光慢慢被消耗，信号光和闲频光同时增长。在计算过程中，晶体被分成长度为 dz 的多个等份， dz 对应于 Runge-Kutta 法中的步长。考虑到时间走离对光参量放大过程的影响较小，在计算过程中，我们并没有考虑群速失配，所以耦合波方程忽略时间项，简化为以下形式：

$$\begin{cases} \frac{dE_1}{dz} = i\kappa_1 E_3 E_2^* e^{i\Delta kz} \\ \frac{dE_2}{dz} = i\kappa_2 E_3 E_1^* e^{i\Delta kz} \\ \frac{dE_3}{dz} = i\kappa_3 E_1 E_2 e^{-i\Delta kz} \end{cases} \quad (2.62)$$

求解该方程的计算流程图如图 2.9 所示。

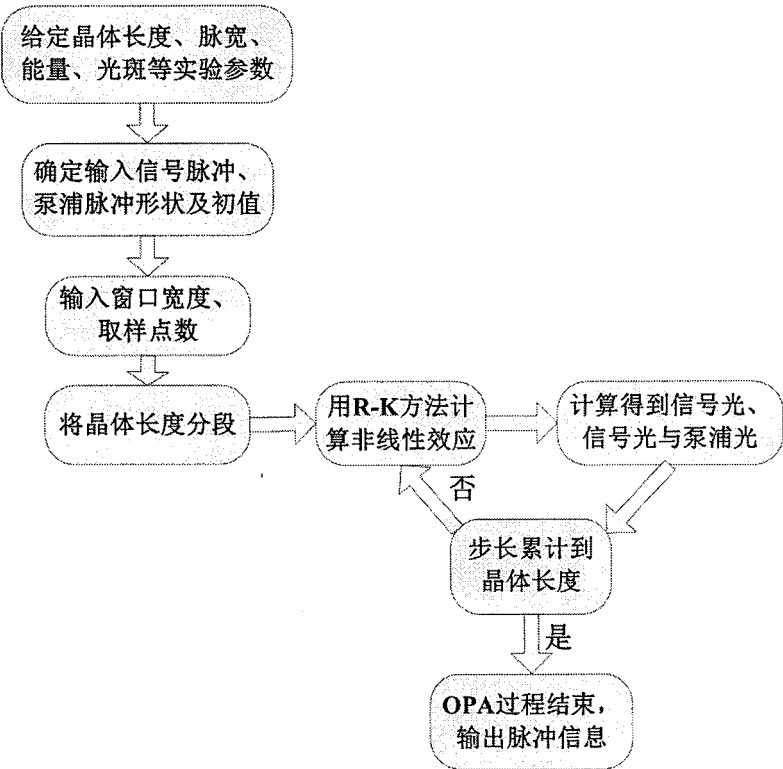


图 2.9 求解非线性耦合波方程算法的流程图

3. 单色波模型

为简便起见, 我们假设输入的初始泵浦光束为理想的高斯型脉冲:

$$E_p(t) = Ae^{4\ln 2 \left(-\frac{t^2}{T^2} \right)} \quad (2.63)$$

其中 A 为脉冲幅值, T 为脉冲半高宽度。这种模型可以用来描述光谱范围很窄的光源, 如单纵模激光光源等。优点是其计算过程简单, 计算结果非常直观。而且实际过程中的宽光谱脉冲也可以看做多个单色波脉冲的迭加, 其脉冲包络也是近高斯型的, 因此分析单色波模型中的变化规律对于我们更深入地理解参量过程是很有帮助的。

2.5 本章小结

本章介绍了非线性频率变换的基本理论, 以及光参量效应的不同结构。其次对双轴晶体的双折射相位匹配, 以及周期极化晶体的准相位匹配理论做了介绍。同时, 以 KTA 晶体的 ps 光参量放大为例, 对光参量放大过程中的时空走离特性进行了计算与讨论。下文对光参量放大器的一些理论计算和分析都是基于上述基本理论。

参考文献

- [1]. N. Bloembergen, Nonlinear optics, NY: Benjamin, 1995
- [2]. Y. R. Shen, The principles of nonlinear optics, NY: Wiley, 1984
- [3]. 叶佩弦, 《非线性光学物理》, 北京大学出版社, 2007
- [4]. 石顺祥, 陈国夫等, 《非线性光学》, 西安电子科技大学出版社, 2003
- [5]. 姚建栓. 非线性光学频率变化及激光调谐技术. 北京: 科学出版社, 1995: 161~206
- [6]. Darrell J. Armstrong, Arlee V. Smith. 150mJ 155nm KTA OPO with good beam quality and high efficiency. Nonlinear Frequency Generation and Conversion. 2004, Proc. of SPIE. vol. 5337: 71~80
- [7]. 刘敬海, 徐荣甫. 激光器件与技术. 北京: 北京理工大学出版社, 1995, 120~140

- [8]. 柳强,巩马理,闰平等.光学参量振荡器的相位匹配.激光杂志.2002,23(2):1-3
- [9]. 李春,安毓英,曾小东等. 3-5 μm 角度调谐 LiNbO₃ 光参量振荡器的理论设计. 激光与红外. 2001,31(6):348-350
- [10]. Valdas Pasiskevicius, Jonas Hellstrom, Shunhua Wan, et al. Broadly Tunable Noncollinear optical Parametric oscillator with Periodically Poled KTiOPO₄. In Nonlinear Materials, Devices, and Applications, Proceedings of SPIE Vol. 3928 (2000)
- [11]. 郁道银,谈恒英.工程光学.北京:机械工业出版社, 2004, 322~335
- [12]. 波恩,沃耳夫(著),杨茂荪等译. 光学原理. 北京: 电子工业出版社, 2005, 哈尔滨工业大学学报, 2003, 35(10):1228-1231
- [13]. 姚宝权, 王月珠, 王麒等. 高效率非临界相位匹配 KTP 光参量振荡器.中国激光.1999,26(11)
- [14]. 柳强, 巩马理, 闰平等. 光学参量振荡器的相位匹配. 激光杂志. 2002, 23(2)
- [15]. 杨胜利, 陈谋智. 双轴晶体主平面上倍频的相位匹配. 光电子. 激光. 2002, 13(6)
- [16]. Myers L E, Eckardt R C, Fejer M M, et al. Quasi-Phase-Matched Optical Parametric Oscillators in Bulk Periodically Poled LiNbO₃ [J]. Journal of the Optical Society of America B(JOSA B), 1995, 12(11): 2102-2116.
- [17]. 姚江宏, 李冠告, 许京军 等. 准相位匹配(QPM)技术研究新进展[J]. 量子电子学报, 1999, 16(4): 289-294.
- [18]. 张百钢, 姚建铨, 王鹏 等. 周期极化晶体倍频的允许极化周期的研究[J]. 光电子·激光, 2002, 13(4): 405-408.
- [19]. J. A. ARMSTRONG, N. BLGEMEERGEN, J. DUCUING, and P. S. PERSHAN. Interactions between Light Waves in a Nonlinear Dielectric. Physical Review. 1962, 127(6):1918-1939
- [20]. G. M. Gale, M. Cavallari, and F. Hache. Femtosecond visible optical parametric oscillator, 1998, *J. Opt. Soc. Am. B* 15 (2):702-714
- [21]. Ying Deng, Qi-hua Zhu , Xiao-ming Zeng, Ying Zhang, Xiao Wang, Feng-rui Wang, Xiao-jun Huang, Xu-dong Xie, Yan-lei Zuo, Generation of ultra short mid-infrared pulses by super continuum seeded OPA in a MgO:

LiNbO₃ crystal, 2007, Proc. of SPIE, 6835

第三章 基于 KTA 晶体的皮秒中红外光参量放大研究

3-5 μm 的中红外波段激光在光谱学、遥感、医疗及军事等领域具有十分重要的用途[1-3]。基于非线性光学晶体的频率下转换是产生 3-5 μm 全固态中红外激光的有效方法之一。许多中红外晶体,例如 KTiOPO_4 (KTP)、 KTiOAsO_4 (KTA)、 LiNbO_3 (LN)、 ZnGeP_2 (ZGP)和 AgGaS_2 (AGS)等, 以及周期性极化晶体 PPLN 和 PPKTP 都可以产生中红外辐射。在 3-5 μm 波段, KTA 是一种综合性能十分优秀的非线性光学晶体材料,它具有良好的物理、光学特性,宽的透光范围,特别是, KTA 晶体在波长小于 3.5 μm 时的吸收非常小。许多文献报道了基于 KTA 晶体的纳秒量级中红外输出[4, 5], 例如清华大学报道了基于 KTA-OPO[6], 获得 60 mJ 的 3.75 μm 激光输出。虽然在纳秒量级中红外波段, 基于 KTA 晶体已经可以获得几十毫焦的能量输出, 但是, 关于 KTA 晶体中红外超短脉冲的报道却非常少。1998 年, Ruffing 等人报道了脉宽 7 ps 的锁模 Nd:YVO₄ 激光器泵浦的 KTA-OPO[7], 获得 6.4 W 的 3.47 μm 的闲频光输出, 但是, 单脉冲能量只有 76.7 nJ。在本章中, 我们基于 BBO-OPG/OPA 种子注入 KTA-OPA, 首次实现了中红外 KTA-OPA mJ 量级能量输出, 获得了大能量、高峰值功率 3.5 μm 激光产生及 2.9~3.6 μm 宽调谐激光输出。

3.1 KTA-OPA 理论分析

3.1.1 KTA 晶体简介

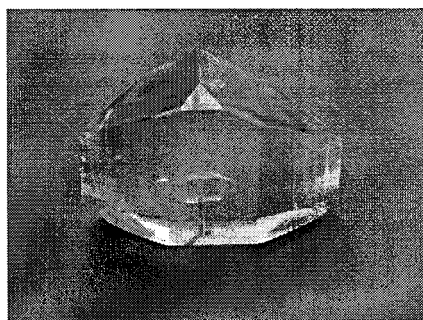


图 3.1 KTA 晶体

KTA 晶体属于双轴晶体，不易潮解，能生长出较大尺寸；与 KTP 属于同型晶体，具有损伤阈值高，非线性系数大，物化性能稳定，生长技术成熟等优点；透光范围为 350~5300 nm，其透过率曲线如图 3.2 所示。可以看出，KTA 在 1~3.5 μm 波长范围内透过率较高，而且克服了 KTP 晶体在 2.8 μm 附近的吸收峰问题；1~3.5 μm 吸收系数 $< 0.01 \text{ cm}^{-1}$ ，热导系数高，在高功率激光泵浦时不会产生热透镜效应，适合高重频高能量中红外输出[8-20]；其折射率色散方程为[21]：

$$\begin{aligned} n_x^2 &= 3.1533 + \frac{0.04029}{\lambda^2 - 0.04932} - 0.01320\lambda^2 \\ n_y^2 &= 3.1775 + \frac{0.04353}{\lambda^2 - 0.05640} - 0.01444\lambda^2 \\ n_z^2 &= 3.4487 + \frac{0.06334}{\lambda^2 - 0.05887} - 0.01646\lambda^2 \end{aligned} \quad (3.1)$$

色散曲线如图 3.3 所示。从图中可以看出，在 1~4 μm 波长范围内，KTA 晶体的双折射率 Δn 差别较大，所以，在理论上这一波长范围内具有合适的相位匹配角，便于利用角度调谐实现可调谐参量光输出。

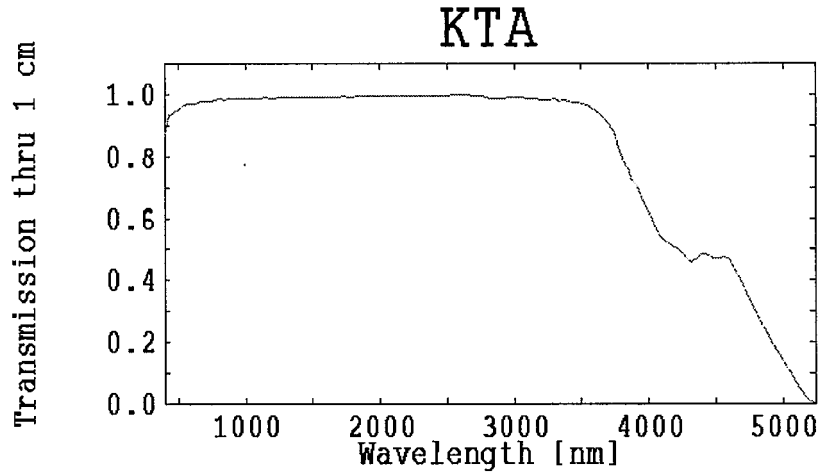


图 3.2 KTA 晶体的透过率曲线

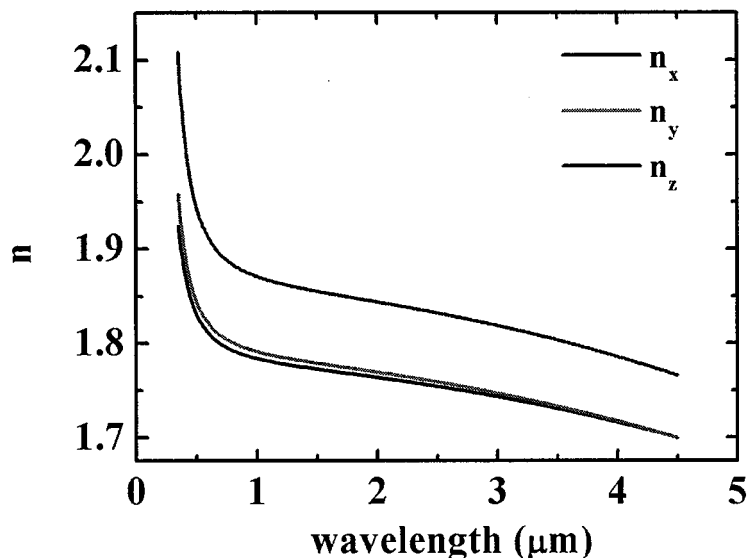


图 3.3 KTA 晶体的折射率曲线

3.1.2 KTA 晶体中红外光参量特性

对于 KTP 及其同构体来说, I 类相位匹配的有效非线性系数远小于 II 类相位匹配方式, 所以基本不用 I 类相位匹配。对 II 类相位匹配的非线性光学频率变换, 如倍频、参量振荡、参量放大等, 其有效非线性系数可以表示为:

$$d_{eff}(\text{II}) = (d_{24} - d_{15}) \sin 2\phi \sin 2\theta - (d_{15} \sin^2 \phi + d_{24} \cos^2 \phi) \sin \theta \quad (3.2)$$

根据文献[22]中测得的有效非线性系数值, KTP 和 KTA 晶体中 $d_{24} > d_{15}$, 由公式(3.2)可以看出在 x-z 面内 ($\phi = 0^\circ$) 三波互作用的有效非线性系数大于在 x-y 面内 ($\phi = 90^\circ$) 的有效非线性系数。我们以 x-z 面内的三波互作用为例, 对 1064 nm 和 532 nm 激光器泵浦的 KTA 的 II 类相位匹配曲线、有效非线性系数和走离角进行了计算。

晶体的匹配角与输出波长的关系曲线参见图 3.4 和 3.5。其中, 图 3.4 给出了 1064 nm 泵浦的 KTA 晶体 II 类相位匹配曲线。图中红、黑曲线分别表示闲频光(o)和信号光(e)波长。从图中可以看出, 对于 KTA 晶体在 x-z 面内的 II 类相位匹配, 当相位匹配角 θ 从 46.3° 到 90° 变化时, 相应的闲频光的调谐范围为 $4.495 - 1.6 \mu\text{m}$, 信号光的调谐范围为 $1.42 - 3.176 \mu\text{m}$ 。

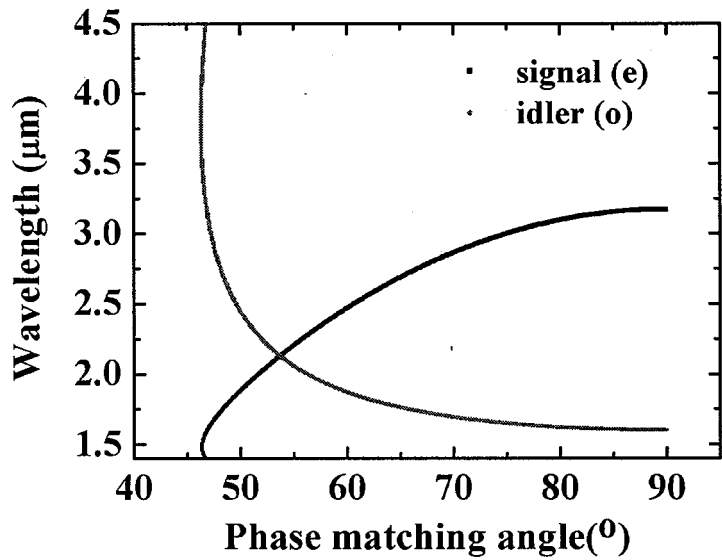


图 3.4 1064nm 泵浦 KTA 晶体 II 类相位匹配曲线

图 3.5 为 532 nm 泵浦的 KTA 晶体 II 类相位匹配曲线。其中，红、黑曲线分别表示闲频光(o)和信号光(e)波长。从图中可以看出，对于 532 nm 泵浦 KTA 晶体在 x-z 面内的 II 类相位匹配，当相位匹配角 θ 从 41.8° 到 90° 变化时，相应的闲频光的调谐范围为 $4.463 - 1.209 \mu\text{m}$ ，信号光的调谐范围为 $0.604 - 0.95 \mu\text{m}$ 。

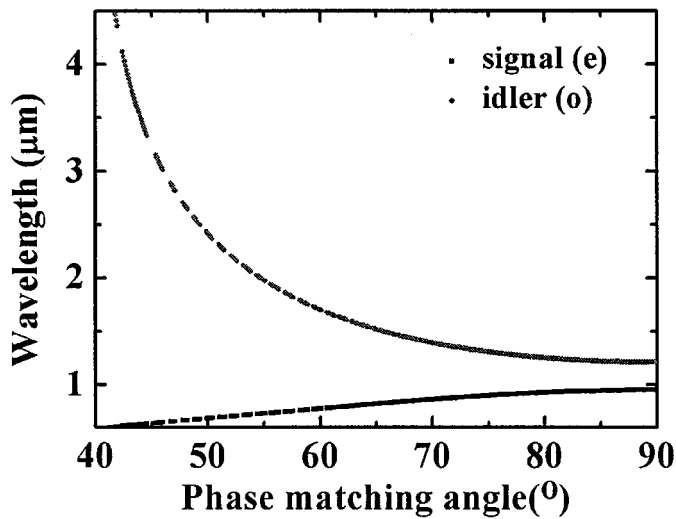


图 3.5 532nm 泵浦 KTA 晶体 II 类相位匹配曲线

图 3.6 是根据式(3.2)计算的 KTA 晶体在 x-z 面的有效非线性系数。从图中可以看出，有效非线性系数随着相位匹配角 θ 的增加逐渐增大。在 θ 等于 40° 时，

有效非线性系数为 1.91 pm/V, 当 θ 等于 90° 时, 有效非线性系数取得最大值 2.96 pm/V。

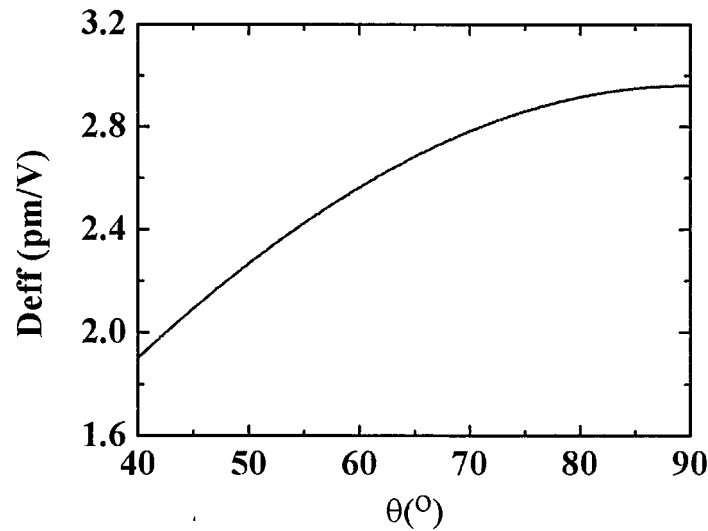


图 3.6 KTA 晶体在 x-z 面的有效非线性系数曲线

图 3.7 是 KTA 晶体 II 类相位匹配时 e 光的走离角。从图中可以看出，走离角随着相位匹配角 θ 的增加逐渐减小。在 θ 等于 46.3° 时，走离角为 2.6° ，而当 θ 等于 90° 时，走离角为零。从图 3.6 和 3.7 的计算结果可以看出，对于 KTA 晶体 II 类相位匹配，在 $\theta=90^\circ$ ， $\Phi=0^\circ$ 即非临界相位匹配时，KTA 晶体的有效非线性系数最大，走离角为零。

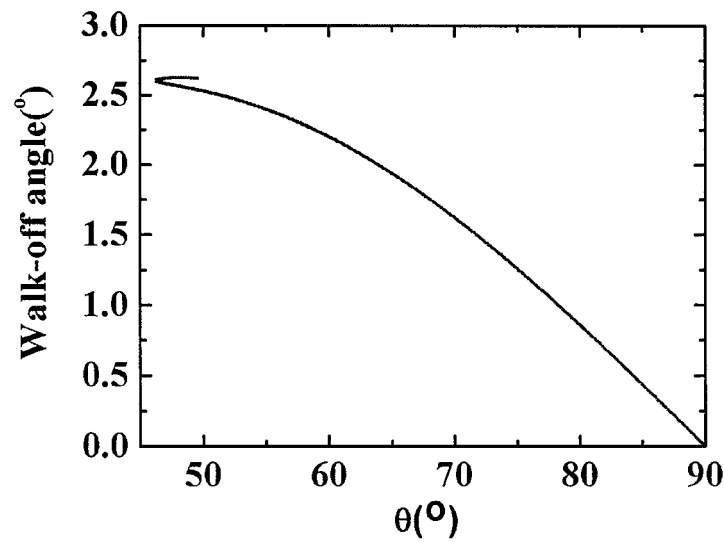


图 3.7 KTA 晶体 II 类相位匹配的走离角

另外，我们计算了长度 20 mm 的 KTA 晶体中的允许角 θ ，如图 3.8 所示。当信号光的波长在 3.25~3.5 μm 之间变化时，允许角 θ 随波长的变化而发生剧烈变化，当信号光波长小于 3 μm 时，允许角 θ 随波长的变化趋势变得比较缓慢。

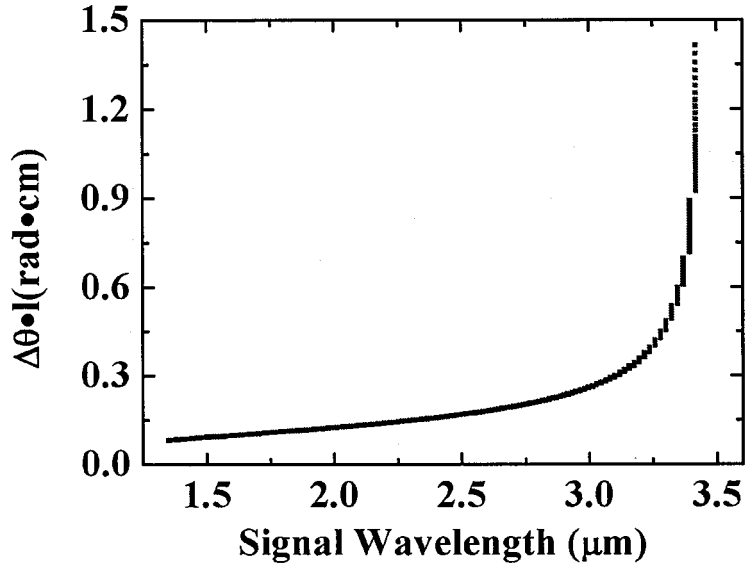


图 3.8 KTA 晶体的允许角

由于 KTA 晶体的折射率与色散量对温度变化不太敏感，因此通常不采用控制晶体温度的办法来实现输出波长的调谐。对于 II 类相位匹配的光参量过程，可以通过改变注入种子光的波长，以及相应的旋转晶体的匹配角来实现波长调谐。

3.2 基于 KTA 晶体高能 3.5 μm 激光输出及 2.9~3.6 μm 调谐特性研究

在 3.1 节中，我们对 KTA 晶体的相位匹配特性、有效非线性系数、走离角及允许角等相关特性进行了理论计算，在本小节中，我们将对基于 KTA 晶体的光参量放大输出特性进行实验研究。

KTA-OPA 实验装置如图 3.9 所示，图中所示的 OPA 系统包括两个分支：一是 1064 nm 二次谐波泵浦的基于 BBO-OPG-OPA 结构的宽调谐种子源，另一个是 1064 nm 激光泵浦的种子注入中红外 OPA。1064 nm 泵浦源采用的是脉宽 30 ps，重频 10 Hz 的锁模 Nd:YAG 激光系统 (EKSPLAPL2250)。1064 nm 泵浦光经过半波片 ($\lambda/2$) 和偏振分光镜 (PBS) 将泵浦光分成两束。反射光首先经过 LBO (尺寸 4 mm×10 mm×20 mm，切割角 $\theta=90^\circ$ ， $\phi=0^\circ$) 晶体倍频，之后通过两

个分光镜 M1 和 M2，从剩余 1064 nm 基频光中分离出倍频激光。然后 532 nm 光束被 M3 反射进入 I 类 (e-oo) 相位匹配的 BBO 晶体 (尺寸 8 mm×8 mm×12 mm，切割角 $\theta=22.3^\circ$)。

宽调谐种子源由 532 nm 泵浦的双程结构 BBO-OPG/OPA 产生。第一程通过 BBO 后，产生的信号光和剩余的 532 nm 泵浦光通过分光镜 M4 分离开，经过合适的时间延迟 (DL2)，再分别被 M5 和 M6 反射进入 BBO 晶体。第二程得到的输出光透过分光镜 M3 后包括信号光和闲频光。信号光被 M7 反射到光谱仪 (Ocean Optics, HR4000)，进行波长监测，闲频光作为种子光注入 OPA。

透过偏振分光镜的另一束 1064 nm 光束经过合适的时间延迟 (DL1)，作为 OPA 的泵浦光。通过 M8 将泵浦光和信号光耦合进 KTA 晶体。KTA 晶体通光面尺寸为 8 mm×8 mm，晶体端面抛光未镀膜。切割角 $\theta=41.4^\circ$ ， $\varphi=0^\circ$ ，对应闲频光和信号光波长都为 3.5 μm 和 1528 nm，为 o-oe 类型 II 类相位匹配 OPA。KTA 放大后的信号光和闲频光通过 M9 和 M10 分离。其中，为避免对中红外激光的吸收，M9 采用 CaF_2 基底，并镀膜 0° - 5° HR@1064 nm，HT@3-5 μm 。为进一步滤掉其他波长激光辐射，M10 采用锗滤光片，其在 3-5 μm 波段的透过率为 48 %。

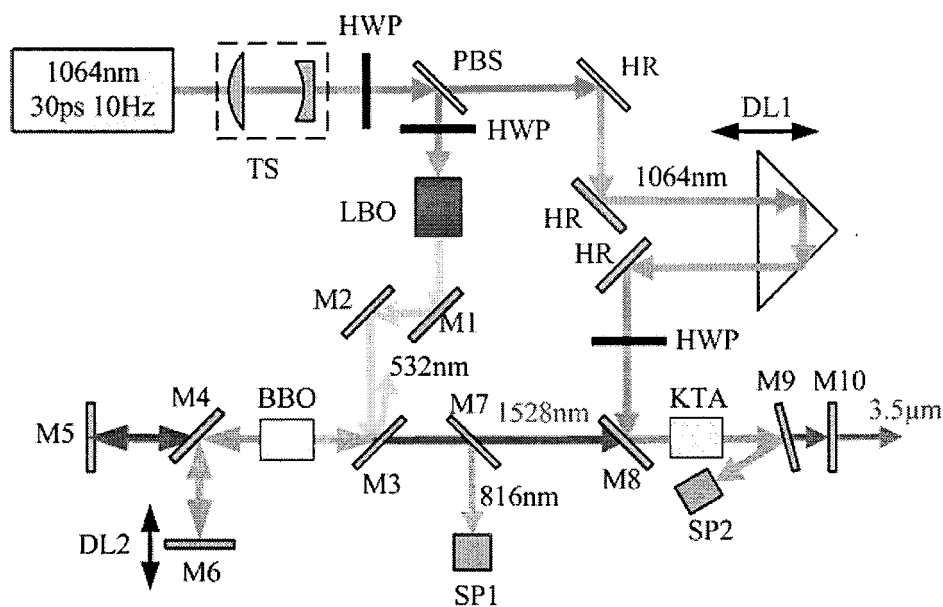


图 3.9 KTA-OPA 实验装置图

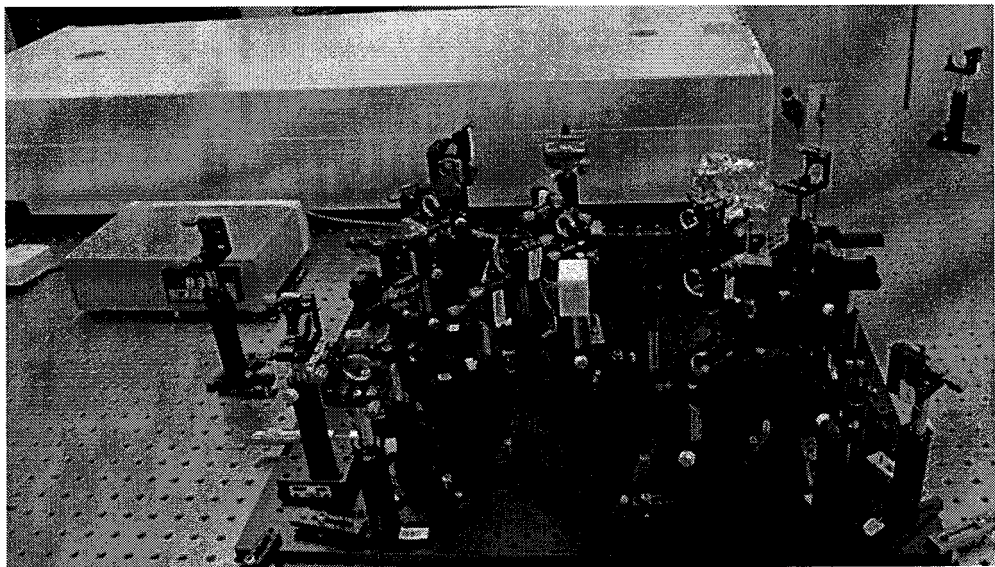


图 3.10 中红外光参量放大器实物图

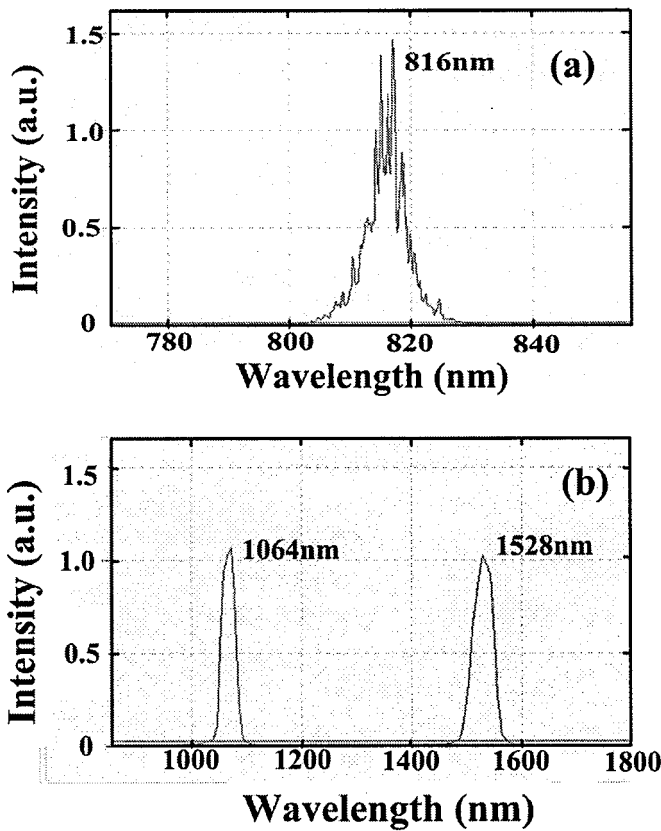


图 3.11 (a) BBO-OPG/OPA 输出 816 nm 参量光光谱图;(b) KTA-OPA 放大的 1528 nm 参量光光谱图

为表征 BBO-OPG/OPA，我们先对 BBO-OPG/OPA 产生的信号光波长进行了角度调谐，并利用光谱仪 SP1 监测其波长。如图 3.11(a)所示，为得到波长 1528 nm

的闲频光，信号光波长需调谐到 816 nm，实验测得信号光光谱宽度为 5 nm。利用光谱仪 SP2 测量了 KTA-OPA 信号光的光谱图，如图 3.11(b)所示。KTA-OPA 放大后的信号光波长为 1528 nm 处，对应闲频光波长 3.5 μm 。

1. 基于 20 mm 长 KTA 晶体的光参量放大特性研究

在注入 1528 nm 种子能量 230 μJ 情况下，实验测量了 KTA-OPA 输出 3.5 μm 闲频光能量与 1.064 μm 泵浦光能量的关系，结果如图 3.12 所示。其中，红色圆点为 20 mm 长 KTA 晶体的实验测量值，蓝色曲线为基于 2.4 节理论模型的 3.5 μm 闲频光输出能量计算结果。从图中可以看出，在低泵浦能量下，计算结果与实验数据较吻合。但是，在泵浦能量大于 8.2 mJ 时，理论与实验结果逐渐发生偏离。例如，在最大泵浦能量 18.4 mJ($\sim 9.8 \text{ GW}/\text{cm}^2$)时，20 mm 长的 KTA 晶体的理论曲线出现饱和，而测量的闲频光输出能量随泵浦能量增加单调增长，并在最大泵浦光能量处获得 1.85 mJ 的 3.5 μm 闲频光输出，峰值功率约 92.5 MW，闲频光能量转换效率和量子效率分别为 10.1%和 33.1%。另外，根据 Manley–Rowe 关系 [23]，可以估算出产生信号光能量为 4.24 mJ，所以，KTA-OPA 产生的信号光和闲频光能量之和为 6.09 mJ，总能量转换效率为 33.1%，量子效率 66.2%。高泵浦能量下，理论与实验的偏差主要是由于实验中泵浦光光斑的不均匀性以及热效应引起 KTA 晶体折射率变化造成的相位失配引起[24]。若要在高泵浦能量下获得较高的能量输出，对晶体进行热管理是必不可少的。

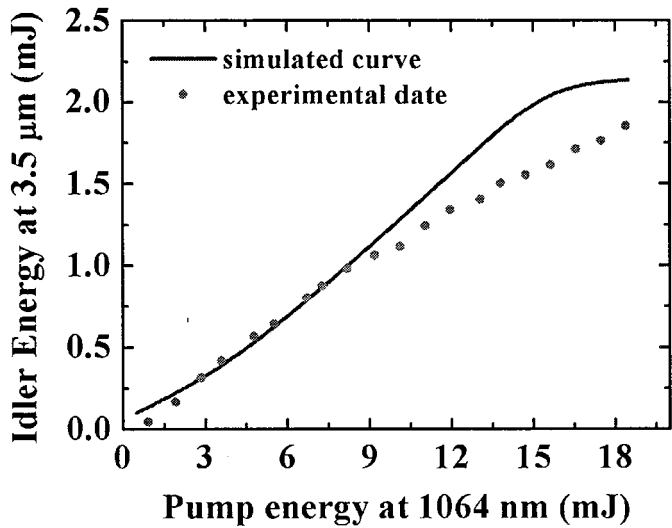


图 3.12 长度 20 mm 的 KTA 晶体输出闲频光能量与泵浦光能量的关系

实验中，我们采用的 Nd:YAG 泵浦激光器的脉宽为 30 ps，无法直接使用光电探头和数字示波器观测 KTA-OPA 输出的脉冲波形。所以，基于 2.4 节的理论模型，我们模拟了在不同泵浦能量下 KTA-OPA 消耗的泵浦光、放大的信号光和产生的闲频光的脉冲波形。由于无法直接获得 KTA-OPA 注入种子光的脉宽，我们采用一级近似，假设种子光脉宽与泵浦光脉宽相同，为 30 ps，计算的结果如图 3.13 所示。在 KTA-OPA 泵浦光为 5 mJ，即泵浦强度 2.7 GW/cm^2 ，输出的脉冲波形如图 3.13(a)所示，此时对应的能量转换效率约为 10.7%左右。当泵浦光能量增加为 10 mJ 时，如图 3.13(b)所示，与图 3.13(a)相比，信号光和闲频光脉冲强度变大，幅值更高，而剩余的泵浦脉冲在脉冲中心附近有明显的消耗，说明随着能量的增加，转换效率增大，泵浦光消耗加剧。图 3.13(c)为泵浦光为 15 mJ 时的脉冲波形。信号光和闲频光波形的中心形成一个凹陷，而相应的泵浦光在波形中心形成一个尖峰，该现象说明在泵浦能量较高时发生逆转换，即信号光和闲频光光子通过和频的方式逆转换形成泵浦光光子，导致能量转换效率降低。逆转换在较高的泵浦能量下才会发生，且最先发生在脉冲功率密度最高的部位。另外，图 3.13(d)-(f)分别为在泵浦能量为 5 mJ、10 mJ 和 15 mJ 时，用 SNLO 软件计算的脉冲波形，通过比较可以看出，用三波耦合波方程计算的脉冲波形和 SNLO 计算的结果基本一致。另外，根据我们计算的结果， $3.5 \text{ }\mu\text{m}$ 闲频光的脉宽约为 20 ps。

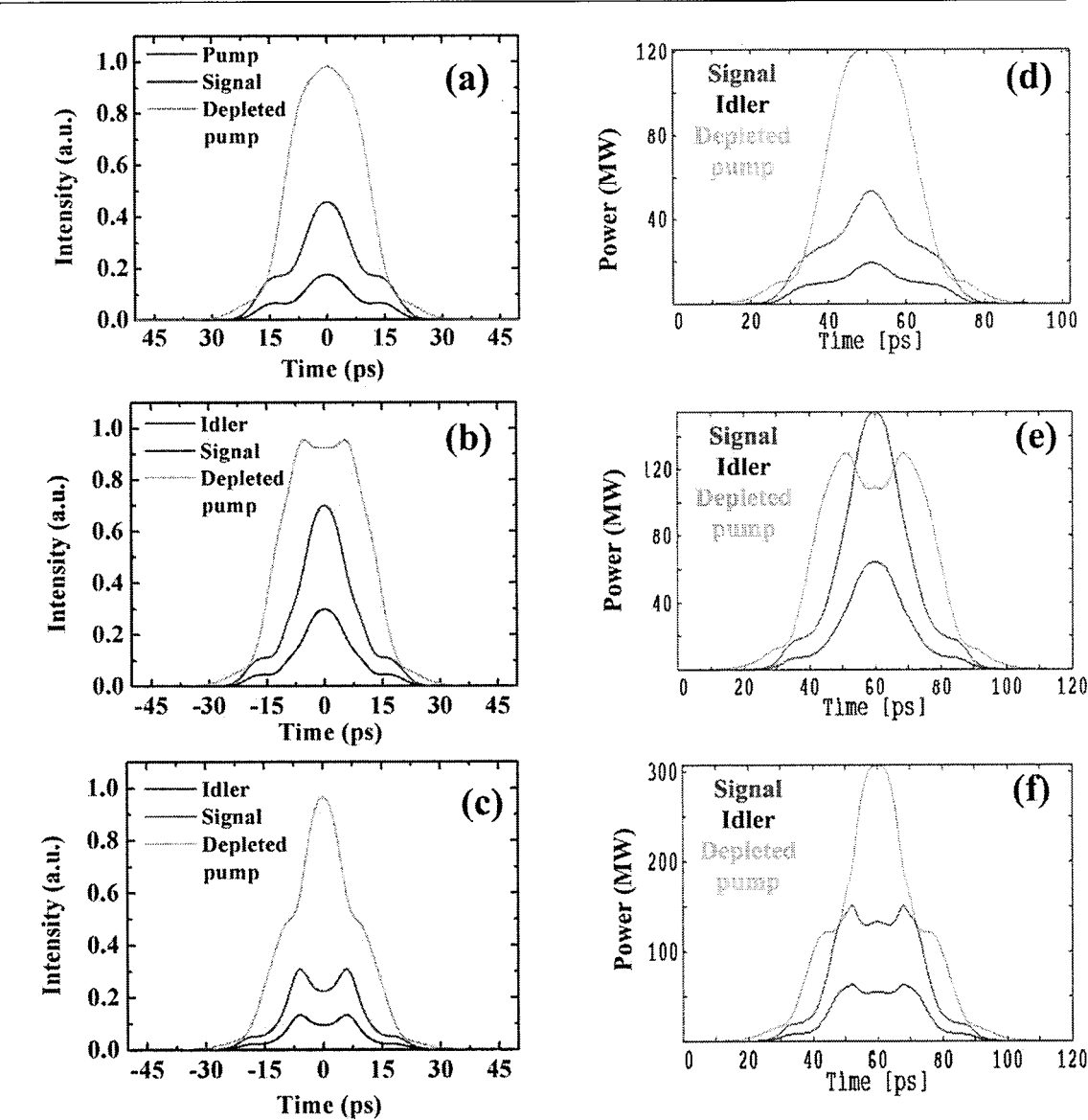


图 3.13 模拟的 20 mm 长的 KTA-OPA 输出的信号波、闲频波和剩余泵浦波的脉冲波形，其中图(a), (b), (c)分别为在泵浦能量 5 mJ，10 mJ 和 15 mJ 时用三波耦合方程计算的结果；图(d), (e), (f) 分别为在泵浦能量 5 mJ，10 mJ 和 15 mJ 时用 SNLO 软件模拟的结果

2. 基于 15 mm 长 KTA 晶体的光参量放大特性研究

研究了 20 mm 长的 KTA 晶体的 OPA 输出特性后，我们发现在高泵浦能量下，由于逆转换的发生导致了能量转换效率下降。为进一步研究转换效率与晶体长度的关系，我们利用 15 mm 长的 KTA 晶体，进行了同样的光参量放大实验。在同样注入 1528 nm 种子能量 230 μ J 情况下， KTA-OPA 输出 3.5 μ m 闲频光能量的实验结果结果如图 3.14 所示。从图中可以看出，与图 3.12 相似，在低泵浦

能量下, 理论计算值与实验值符合较好。在高泵浦能量下, 由于泵浦光光斑分布不均匀和热效应引起的相位失配, 导致理论值与实验值出现偏差, 致使在最高泵浦能量 18.4 mJ 时, 理论计算的 3.5 μm 输出能量为 2.1 mJ, 而实验测量结果却只有 1.67 mJ。另外, 与图 3.12 相比, 15 mm 长的 KTA 晶体输出能量曲线在最高泵浦能量下, 仍然呈现继续增加的趋势。根据我们计算的输出曲线可以看出, 在高泵浦能量下, 短晶体的输出特性优于长晶体。

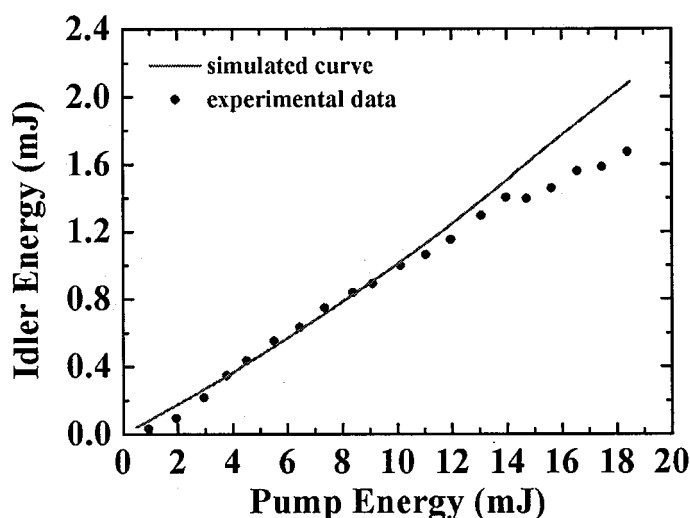


图 3.14 长度 15 mm 的 KTA 晶体输出闲频光能量与泵浦光能量的关系

下面我们结合模拟的脉冲波形进一步说明转换效率的变化以及泵浦消耗情况。如图 3.15(a)所示, 在注入泵浦能量 18.4 mJ 时, 与注入 OPA 前的泵浦光相比, OPA 过程后的泵浦光波形顶部的尖峰被消耗。若继续增加泵浦能量, KTA-OPA 将产生更多的信号光光子和闲频光光子。而当 KTA 晶体中的光子密度达到一定数值后, 如图 3.15(b)所示, 在泵浦能量 25 mJ 时, 泵浦光被消耗的程度大于图 3.15(a), 说明转换效率比在泵浦光能量 18.4 mJ 时得到进一步提高。另外, 从图中可以看出, 在消耗的泵浦脉冲波形中间出现突起, 而信号光和闲频光波形的顶部变平。表明在泵浦能量 25 mJ 时已经发生逆转换, 导致信号光和闲频光脉冲波形顶部被消耗。继续增加泵浦光能量达到 30 mJ, 结果如图 3.15(c)所示, 由于逆转换加剧, 信号光和闲频光脉冲中间形成凹陷, 而剩余的泵浦光在脉冲中心附近出现尖峰, 这将导致转换效率明显下降。

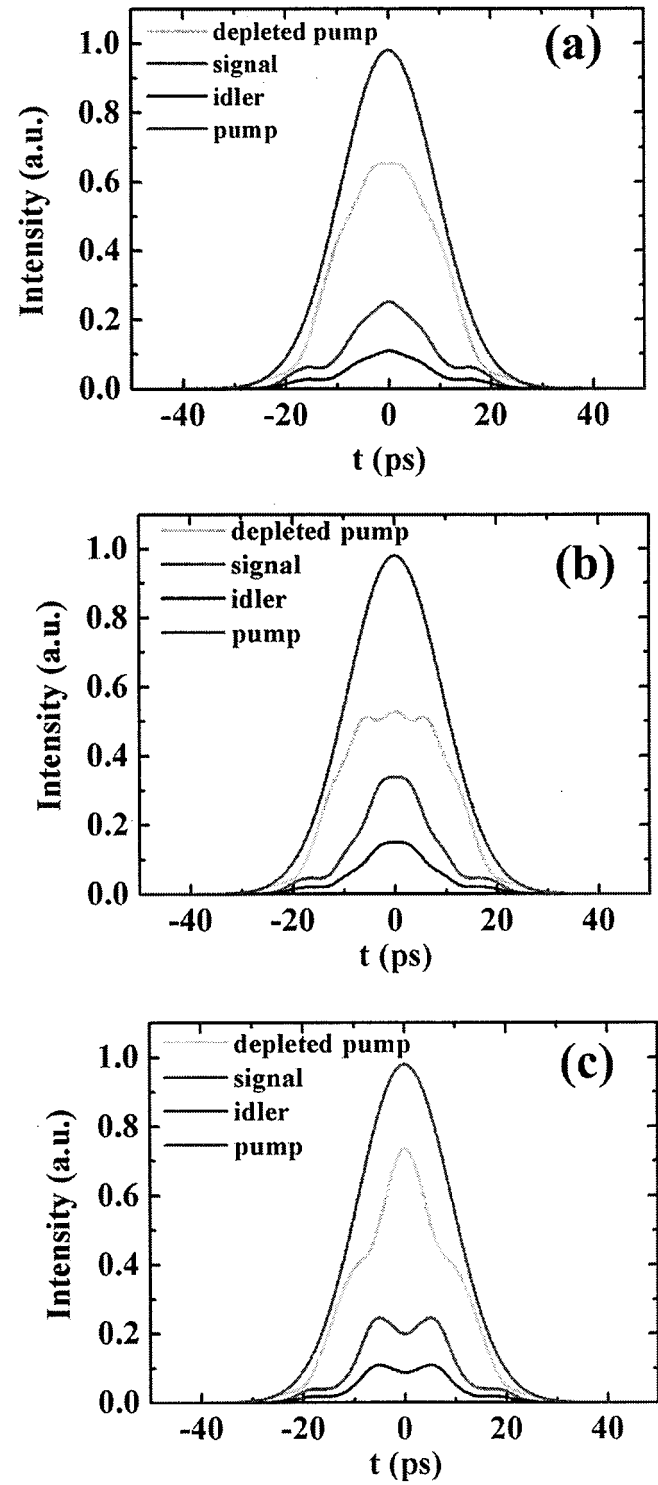


图 3.15 模拟的 15 mm 的 KTA-OPA 输出的信号波、闲频波和剩余泵浦波的脉冲波形，其中(a)泵浦能量 18.4 mJ；(b) 泵浦能量 25 mJ；(c)泵浦能量 30 mJ

另外，通过同时旋转种子产生结构中的 BBO 晶体和 OPA 结构中的 KTA 晶体，使 KTA-OPA 输出闲频光波长连续调谐，测量了 2.9-3.6 μm 范围内的调谐曲线，对应信号光调谐范围 1.681-1.51 μm 。测量结果如图 3.16 所示，该曲线是在

泵浦光能量 14 mJ，峰值功率 7.4 GW/cm^2 时测得。实验中， $3.5 \text{ }\mu\text{m}$ 闲频光能量由 $2.9 \text{ }\mu\text{m}$ 时的 $\sim 450 \text{ }\mu\text{J}$ 增加到 $3.6 \text{ }\mu\text{m}$ 时的 1.05 mJ。理论上，由于光子能量转换，闲频光输出能量应该随着波长的增加而减小，同时信号光能量应随之增加。但是，实验中闲频光能量在 $3.1\text{-}3.5 \text{ }\mu\text{m}$ 范围内变化较小，在波长小于 $3.1 \text{ }\mu\text{m}$ 波段，闲频光能量快速下降。这主要是由于空气中水和二氧化碳在 $2.7 \text{ }\mu\text{m}$ 波段的吸收 [25]，以及分光镜 M10 膜系造成的。另外，在闲频光波长大于 $3.5 \text{ }\mu\text{m}$ 后，输出能量有少量减少，这主要是由 KTA 晶体的吸收造成。

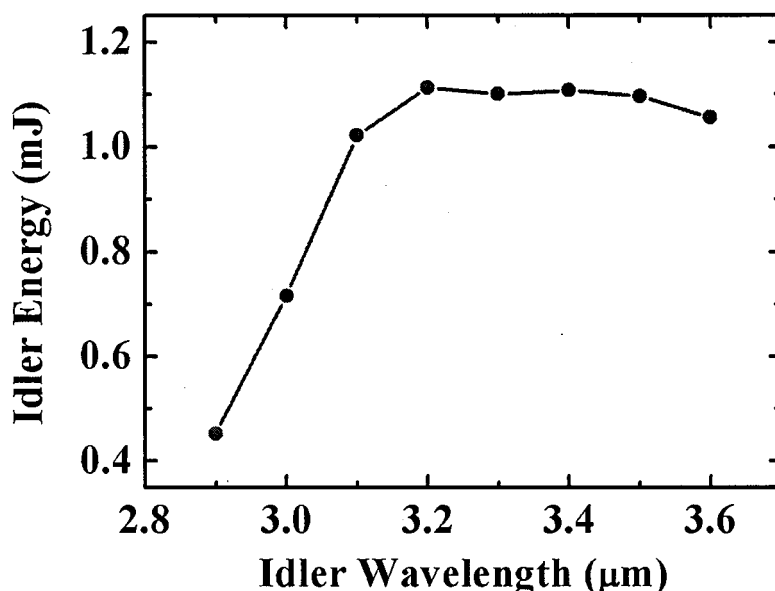


图 3.16 KTA-OPA 在 $2.9\text{-}3.6 \text{ }\mu\text{m}$ 范围内的调谐曲线，泵浦能量为 14 mJ

3.3 本章小结

(1) 介绍了中红外非线性晶体 KTA 的光学和相位匹配特性，对其角度调谐、有效非线性系数、走离和参量允许角进行了理论计算和分析。

(2) 设计了皮秒中红外种子注入 KTA-OPA，采用 1064 nm , 30 ps , 10 Hz 的 Nd:YAG 激光器作为泵浦源，以 532 nm 泵浦的双程结构 BBO-OPG/OPA 为宽调谐种子源，首次实现了 KTA-OPA 高能量、高峰值功率 $3.5 \text{ }\mu\text{m}$ 激光产生及 $2.9\text{-}3.6 \text{ }\mu\text{m}$ 宽调谐激光输出。在泵浦能量为 18.4 mJ 时，获得 1.85 mJ 、峰值功率约 92.5 MW 的 $3.5 \text{ }\mu\text{m}$ 激光输出，对应闲频光转换效率 10.1% ，光子转换效率 33.1% 。

(3) 对 KTA 晶体的光参量放大过程进行了理论模拟。结果表明，在泵浦强

度较高、晶体较长的情况下,容易发生逆转换;并且,不同泵浦情况下,都存在最佳的晶体长度。最后,结合计算的脉冲波形,对泵浦消耗和逆转换过程进行了进一步的讨论。

参考文献

- [1]. Zajac, A., M. Skorczakowski, J. Swiderski, and P. Nyga, Electrooptically Q-switched mid-infrared Er: YAG laser for medical applications. *Optics express*, 2004. 12(21): p. 5125-5130.
- [2]. Godard, A., M. Raybaut, M. Lefebvre, A. Michel, and M. Péalat, Tunable mid-infrared optical parametric oscillator with intracavity parametric amplification based on a dual-grating PPLN crystal. *Applied Physics B*, 2012. 109(4): p. 567-571.
- [3]. Petrov, K.P., L. Goldberg, R.F. Curl, F.K. Tittel, and W.K. Burns, Detection of CO in air by diode-pumped 4.6- μ m difference-frequency generation in quasi-phase-matched LiNbO₃. *Optics letters*, 1996. 21(1): p. 86-88.
- [4]. Wu, R.F., K.S. Lai, H. Wong, W. Xie, Y. Lim, and E. Lau, Multiwatt mid-IR output from a Nd: YALO laser pumped intracavity KTA OPO. *Optics express*, 2001. 8(13): p. 694-698.
- [5]. Zhong, K., J.Q. Yao, D.G. Xu, J.L. Wang, J.S. Li, and P. Wang, High-pulse-energy high-efficiency mid-infrared generation based on KTA optical parametric oscillator. *Applied Physics B*, 2010. 100(4): p. 749-753.
- [6]. Liu, Q., J. Liu, Z. Zhang, and M. Gong, A high energy 3.75 μ m KTA optical parametric oscillator at a critical angle. *Laser Physics Letters*, 2013. 10(7): p. 075407.
- [7]. Ruffing, B., A. Nebel and R. Wallenstein, All-solid-state cw mode-locked picosecond KTiOAsO₄ (KTA) optical parametric oscillator. *Applied Physics B*, 1998. 67(5): p. 537-544.
- [8]. 王克强与裴博, 3.76 μ m 中红外激光参量振荡器. *中国激光*, 2000. 27(8): 第691-693页.
- [9]. 张浩, 基于周期极化铌酸锂晶体的角度调谐光学参量振荡器, 2004, 天津大学.
- [10]. Bosenberg, W.R., L.E. Myers, R.L. Byer, A. Drobshoff, and J.I. Alexander,

- 93% pump depletion, 3.5-W continuous-wave, singly resonant optical parametric oscillator. *Optics letters*, 1996. 21(17): p. 1336-1338.
- [11]. Myers, L.E. and W.R. Bosenberg, Periodically poled lithium niobate and quasi-phase-matched optical parametric oscillators. *Quantum Electronics, IEEE Journal of*, 1997. 33(10): p. 1663-1672.
- [12]. McEwan, K.J. and J. Terry, A tandem periodically-poled lithium niobate (PPLN) optical parametric oscillator (OPO). *Optics communications*, 2000. 182(4): p. 423-432.
- [13]. van Herpen, M. A high power, continuous wave, continuous tunable, narrow linewidth infrared OPO beyond 4 μm . in *Conference on Lasers and Electro-Optics*. 2003: Optical Society of America.
- [14]. McEwan, K.J. Synchronously pumped tandem OPO and OPO/DFM devices based on a single PPLN crystal. in *High-Power Lasers and Applications*. 2003: International Society for Optics and Photonics.
- [15]. Ruifen, W., C.L. Ching Lindy and N.H. Khoon. Nanosecond > 4-micron PPLN OPO pumped by a Yb fiber laser. in *Conference on Lasers and Electro-Optics*. 2004: Optical Society of America.
- [16]. Yu, J., Y. Bai, N.P. Barnes, H.R. Lee, M. Petros, S. Chen, and B.C. Trieu. Intra-cavity pumped PPLN OPO with double ring configuration. in *Advanced Solid-State Photonics*. 2004: Optical Society of America.
- [17]. Hirano, Y., S. Yamamoto, T. Tajime, R. Taniguchi, and M. Nakamura. High-average power, room temperature operation of PPMgLN OPO. in *Lasers and Electro-Optics, 2000.(CLEO 2000). Conference on*. 2000: IEEE.
- [18]. 魏景谦与王继扬, KTiOAsO₄ 晶体的生长和性质研究. *人工晶体学报*, 1994. 23(2): 第95-101页.
- [19]. Bierlein, J.D., H. Vanherzeele and A.A. Ballman, Linear and nonlinear optical properties of flux - grown KTiOAsO₄. *Applied physics letters*, 1989. 54(9): p. 783-785.
- [20]. Cussat-Blanc, S., A. Ivanov, D. Lupinski, and E. Freysz, KTiOPO₄, KTiOAsO₄, and KNbO₃ crystals for mid-infrared femtosecond optical parametric amplifiers: analysis and comparison. *Applied Physics B*, 2000. 70(1): p. S247-S252.
- [21]. Kato, K., Second-harmonic and sum-frequency generation in KTiOAsO₄.

- Quantum Electronics, IEEE Journal of, 1994. 30(4): p. 881-883.
- [22]. Boulanger, B., J.P. Fève, G. Marnier, and B. Menaert, Methodology for optical studies of nonlinear crystals: application to the isomorph family, and. Pure and Applied Optics: Journal of the European Optical Society Part A, 1998. 7(2): p. 239.
- [23]. Boyd, R.W., Nonlinear optics. 2003: Academic press.
- [24]. Sabaeian, M., L. Mousave and H. Nadgaran, Investigation of thermally-induced phase mismatching in continuous-wave second harmonic generation: a theoretical model. Optics express, 2010. 18(18): p. 18732-18743.
- [25]. McClatchey, R.A., R.W. Fenn, J.A. Selby, F.E. Volz, and J.S. Garing, Optical properties of the atmosphere. 1972.

第四章 基于 MgO:PPLN 晶体皮秒中红外光参量放大研究

在前一章中，我们讨论了双折射相位匹配晶体 KTA 在中红外波段的光参量输出特性。并基于 KTA-OPA，获得最高能量 1.84 mJ 的 3.5 μm 闲频光输出。除 KTA、KTP 和 LN 等常用的双折射相位匹配晶体外，另一类可以产生中红外辐射的晶体为基于准相位匹配的周期性极化晶体，例如 PPKTP、PPKTA、PPLN 等。准相位匹配技术可利用晶体较大的非线性系数，从而提高转换效率，并具有无走离效应，可利用晶体的全透光范围等优点，已成为非线性光学研究热点。在众多周期性极化晶体中，MgO:PPLN 因具有较高的非线性系数($d_{33} = 27 \text{ pm/V}$)，宽的透光范围(330-5000 nm)，以及较高的损伤阈值等优势，成为最常用的晶体，并取得了一系列成果。例如中国工程物理研究院应用电子学研究所报道了基于 MgO:PPLN 晶体的 ns 脉冲信号光振荡 OPO[1]，获得 27.4 W 的 3.91 μm 中红外输出，单脉冲能量 2.74 mJ。另一方面，皮秒或飞秒脉宽的中红外超短脉冲可应用于许多超快现象的研究[2-5]。然而，目前只有少量文献对中红外皮秒 MgO:PPLN 光参量振荡器进行了报道。例如 Ruffing 等人报道了脉宽 7 ps 的 Nd:YVO₄ 激光器泵浦的 MgO:PPLN-OPO[6]，获得 6.4 W 的 3.47 μm 激光输出，单脉冲能量 76.7 nJ。但是，至今还未有文献报道过 mJ 量级 MgO:PPLN 光参量放大器(OPA)。在本章中，我们基于大孔径 MgO:PPLN 晶体皮秒中红外光参量激光放大器，获得毫焦量级的 3.9 μm 中红外激光输出。

4.1 MgO:PPLN-OPA 理论分析

4.1.1 MgO:PPLN 晶体简介

由于非线性晶体是实现高效光学参量振荡的重要影响因素，所以光学参量转换的发展与非线性晶体发展密切相关。近年来，随着铁电晶体中周期极化技术的突破，涌现了一大批透明范围宽、匹配波长长的非线性光学晶体——周期极化晶体。目前，常见的用于准相位匹配的周期极化晶体有 PPLN(周期极化 LiNbO₃)、PPKTP(周期极化 KTiOPO₄)、PPKTA(周期极化 KTiOAsO₄)等。制备周期极化晶体的方法通常有以下几种[7]：

(1) 化学扩散法 利用这种方法虽然可以将晶体的周期结构制备得比较好，并

且制备的晶体也都较长，但是其扩散层较浅，通常只有微米量级，因此，该方法只能适用于制备波导型准相位匹配介质，不适宜制备大的通光孔径准相位匹配晶体。

(2) 生长法 它是在晶体 Czochralski 生长法中通过控制温度的起伏等因素而实现畴反转，并且是周期重叠生长的。用此种方法制备的周期极化晶体的周期不准，畴边界不均匀。因此实际应用中转换效率较低。利用生长法制备周期极化晶体只是在 LiNbO_3 、 LiTaO_3 和 KNbO_3 等晶体中取得成功。

(3) 电子扫描法 该方法可以制备大块的周期极化晶体，但是每次制备的晶体样品都不同，重复率很低，不适合批量生产。

(4) 散片粘解法 这种方法是初期制备极化晶体采用的方法之一，首先制备微米量级的单片晶片，然后再交替地把晶片旋转 180° 粘在一起，即铁电畴晶片堆积方法。该方法工艺上比较繁琐，只适合对准相位匹配作探索性研究。

(5) 高压电场极化法 高压电场极化法是近年来发展起来的最常用也是效果最好的制备周期极化晶体的方法。根据所需要的计划周期，用光刻、镀膜、腐蚀的方法，在沿 z 轴切割的 LiNbO_3 晶片的正畴面或负畴面上覆盖栅状微细电极。然后，在晶片上加上高压脉冲，通过控制一定的脉冲宽度和强度，使得晶片内部的铁电畴发生反转，并且通过控制高压脉冲对晶片的总注入电量，可控制晶片的畴反转占空比。对于一阶准相位匹配，占空比应达到 1:1，这样可达到最大的谐波转换效率。最后，可以通过氢氟酸腐蚀，观察晶体的占空比情况。1993 年，日本 Sony 公司的 Yamada [8] 等人首次利用外加电场法在室温下制备成周期极化铌酸锂晶体。目前该方法已经被普遍采用。由于该方法可以利用半导体工艺中发展起来的一些成熟技术，大大降低了极化晶体的难度和成本，使准相位匹配技术得到迅速发展，并实用化。

按照不同极化结构，PPLN 晶体可以分成不同的类型。

(1) 单周期晶体

单周期晶体就是在整块晶体上只有一个固定的极化周期，一般通过改变温度和角度来实现输出波长的调谐。

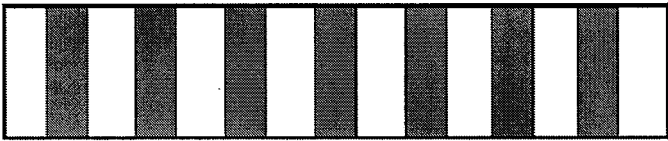


图 4.1 单周期 PPLN 晶体

(2) 多周期晶体

多周期 PPLN 晶体是指在同一块晶体上，依次极化出不同的极化周期，通常可以有十几个周期，极化周期的间隔多为 $0.2\ \mu\text{m}$ 、 $0.25\ \mu\text{m}$ 和 $0.5\ \mu\text{m}$ 。通常可以通过改变晶体极化周期或晶体温度来获得宽带调谐激光输出。

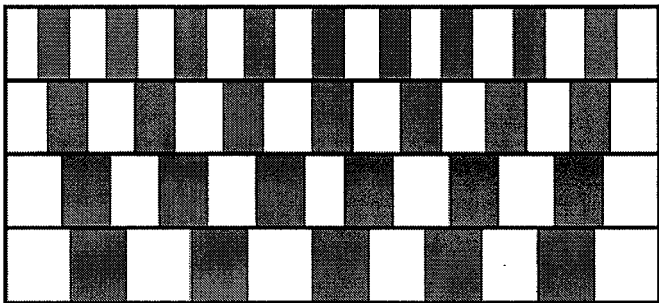


图 4.2 多周期 PPLN 晶体

(3) 混合周期晶体

混合周期就是在晶体的通光方向上生长出两段不同的周期结构，分别实现两种非线性过程。1998 年，Walter R.Bosenberg [9]等人在一块混合周期的 PPLN 晶体上进行光学参量振荡和和频的环形腔实验，获得了 $11.8\ \text{W}$ 红光输出。优点是结构紧凑，可以将多个准相位匹配过程在同一个晶体中实现。

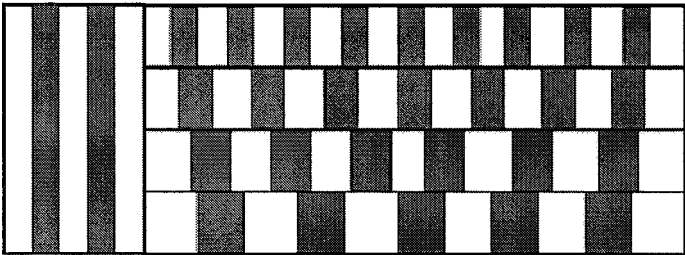


图 4.3 混合周期 PPLN 晶体

(4) 扇形周期晶体

实验中，通常采用多周期的极化晶体（如图 4.2），来实现输出波长的宽带调

谐输出。但这种方法若不加温度调谐，获得的调谐波长不连续。而且极化周期间隔通常也是固定不变的，为其使用带来了不便。在 1998 年，Powers[10] 等人采用一种新型方法设计出了扇形结构的 PPLN 晶体，其极化区域的形状犹如一把扇子（如图 4.4），即在一块晶体上就可以获得极化周期的连续变化。这样，不必改变晶体的温度，通过连续移动晶体的位置，就可以获得不同的周期，即可实现连续宽带可调谐输出。所以，不能实现温度调谐的晶体就可以采用该结构进行连续的宽带光谱输出。

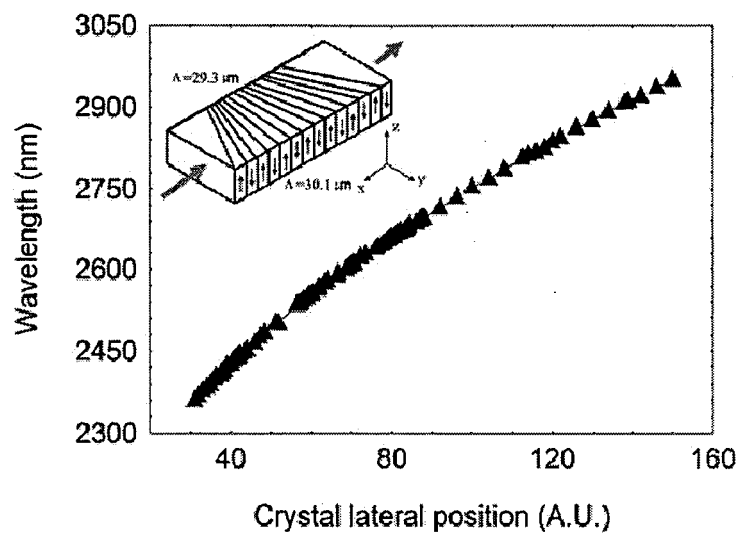


图 4.4 扇形周期晶体及其连续调谐范围

在众多极化晶体中，PPLN 是用于 QPM OPO 最为成熟、应用最广泛、转换效率最高的一种晶体。但是，由于该晶体本身的矫顽电场太大（21 kV/mm），晶体的厚度受到了限制，加上其光折变损伤阈值低等因素使得 PPLN 在高功率 OPO 的应用上逊色许多。为了解决这些问题，进一步的研究发现在 PPLN 中掺 MgO 可提高其抗损伤阈值，获得较低的矫顽电场。1980 年，仲跻国[11]等人发现高掺杂 MgO (4.6 mol%) 可提高 LiNbO₃ 晶体的抗光损伤能力，比未掺 MgO 的 LiNbO₃ 晶体提高约 100 倍。另一方面，MgO:PPLN 的极化电压也比 PPLN 低很多，只是加电场的方法与 PPLN 不同。2000 年，Y. Hirano[12]等人报道了室温下运转的 MgO:PPLN-OPO，最高平均输出功率高达 35 W。2004 年，Hideki Ishizuki[13]等人研制成功了 3 mm 厚的 MgO:PPLN。因此，MgO:PPLN 晶体克服了 PPLN 抗损伤能力差的缺点，是实现 QPM 的一种极具前景的周期极化晶体。在本章节实

验中,我们选用的是 5 mol %掺杂的 MgO:PPLN 晶体作为光参量放大非线性晶体。

4.1.2 MgO:PPLN 晶体中红外光参量特性

1997 年, Jundt D H [14]等在 LiNbO₃ 的折射率数据的基础上, 利用 PPLN-OPO 实验修正了 e 光折射率的 Sellmeier 方程, 使计算的 e 光折射率 n_e 更准确, 尤其是提高了长波长的 e 光折射率的准确度。根据修正的 e 光折射率方程得到的理论计算值与实验数据一致。修正了的 e 光折射率方程的形式为:

$$n_e^2 = a_1 + b_1 f + \frac{a_2 + b_2 f}{\lambda^2 - (a_3 + b_3 f)^2} + \frac{a_4 + b_4 f}{\lambda^2 - a_5^2} - a_6 \lambda^2 \tag{4.1}$$

$$f = (T - 24.5)(T + 570.82) \tag{4.2}$$

公式中各参数均为常数, 取值参见表 4.1。公式 (4.2) 中 T 为温度变量, 单位是℃。

表 4.1 PPLN 晶体的 Sellmeier 系数

a_1	a_2	a_3	a_4	a_5
5.35583	0.100473	0.20692	100	11.34927
a_6	b_1	b_2	b_3	b_4
1.5334×10^{-2}	4.629×10^{-7}	3.862×10^{-8}	-0.89×10^{-8}	2.657×10^{-5}

2008 年, Gayer O[15]等人通过实验方法给出了 MgO 掺杂浓度为 5 mol%的 PPLN (MgO:PPLN)对应的参数。表 4.2 列出了 MgO 掺杂浓度为 5 mol%的 PPLN 对应的 a 参数和 b 参数。图 4.5 为根据表 4.2 中的参数得到的晶体为 25℃时 o 光和 e 光折射率随波长的变化关系。

表 4.2 MgO:PPLN 晶体的 Sellmeier 系数

参数	o 光	e 光
a_1	5.653	5.756
a_2	0.1185	0.0983
a_3	0.2091	0.2020
a_4	89.61	189.32
a_5	10.85	12.52
a_6	1.97×10^{-2}	1.32×10^{-2}
b_1	7.941×10^{-7}	2.860×10^{-6}
b_2	3.134×10^{-8}	4.700×10^{-8}
b_3	-4.641×10^{-9}	6.113×10^{-8}
b_4	-2.188×10^{-6}	1.516×10^{-4}

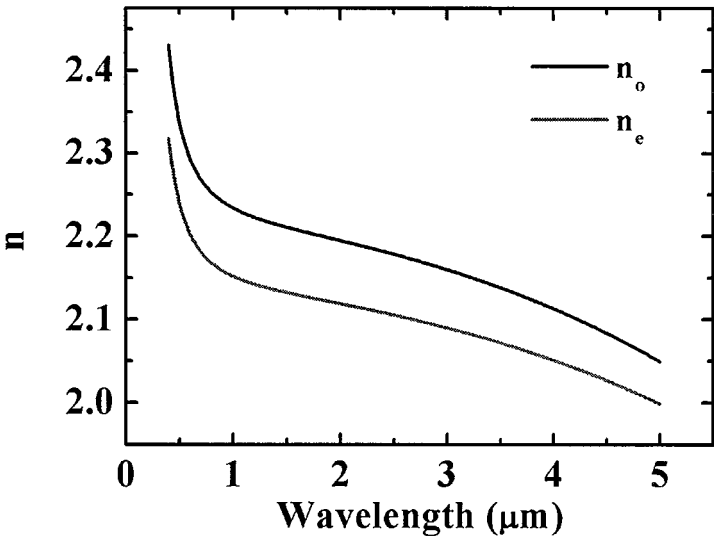


图 4.5 MgO:PPLN 晶体的折射率曲线

下面计算 MgO:PPLN 晶体的调谐特性。

在光学参量变换过程中，相互作用的泵浦光、信号光以及闲频光满足动量守恒与能量守恒条件，改为波长的形式为：

$$\frac{1}{\lambda_s} + \frac{1}{\lambda_i} = \frac{1}{\lambda_p} \tag{4.3}$$

$$\frac{n_p}{\lambda_p} - \frac{n_s}{\lambda_s} - \frac{n_i}{\lambda_i} = \frac{1}{\Lambda} \quad (4.4)$$

由式(4.1)-(4.4)可以看出, 在一定的条件下, 任意改变泵浦光波长 λ_p 、晶体温度 T (单位: $^{\circ}\text{C}$) 和晶体的极化周期 Λ 中的任一个变量, 都可以实现信号光和闲频光的改变。当其中的两个参量保持固定不变时, 都可以计算出 MgO:PPLN 调谐范围与第三个参量的变化关系。

1. 泵浦光调谐

对于固定周期 Λ 的 MgO:PPLN 晶体, 在晶体温度 T 不变情况下, 可以通过改变泵浦光波长的方式来实现信号光和闲频光的调谐。图 4.6 为晶体温度 $T = 25^{\circ}\text{C}$, MgO:PPLN 晶体周期为 $29.05\text{ }\mu\text{m}$ 时, MgO:PPLN 晶体的调谐曲线。

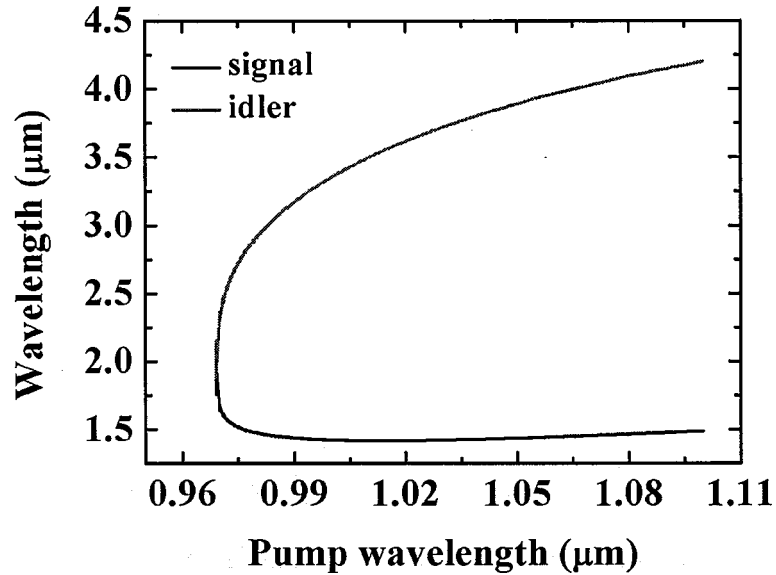


图 4.6 MgO:PPLN 晶体泵浦光调谐输出波长曲线

2. 周期调谐

周期调谐即通过改变晶体极化周期的大小来实现输出波长的调谐。通常采用多周期晶体或扇形周期晶体来实现。它的主要特点是: 调谐简单, 速度快。前面已经介绍过, 由于多周期晶体极化周期不能连续变化, 因此输出光也不能连续变化。但若和温度调谐相结合就能实现连续调谐, 且调谐范围相当的宽。但是, 较理想的扇形周期制作也比较困难。另一方面, 若使用周期连续变化的扇形结构 MgO:PPLN 晶体, 虽然具有可以克服多周期晶体调谐跳跃式变化的优势, 但由于

泵浦光不是一条线而是具有一定宽度的光束，因而当泵浦光通过 MgO:PPLN 晶体时，通过的不是同一固定周期，因光束的各个部分通过的周期不同，所以获得的光谱也不同。图 4.7 是在 $T = 25\text{ }^{\circ}\text{C}$ ，用 1064 nm 激光器作为泵浦源时，通过改变 MgO:PPLN 晶体的极化周期来实现闲频光与信号光的调谐。

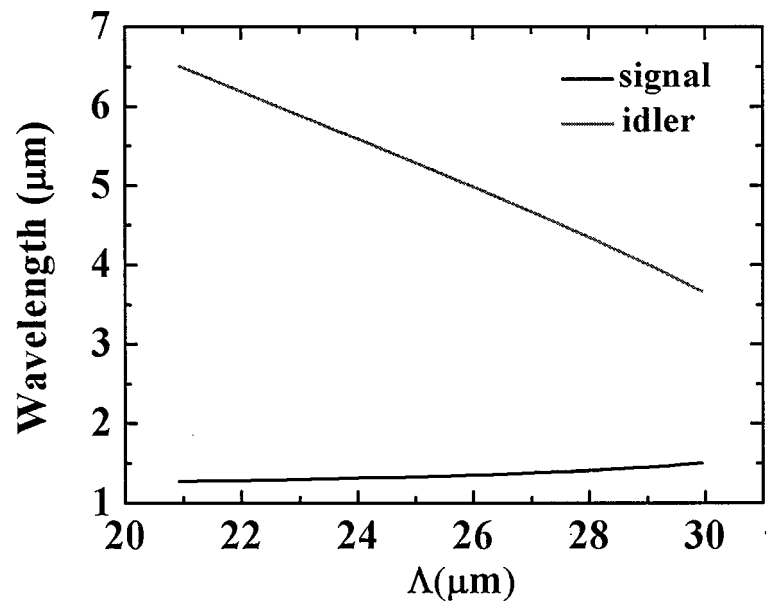


图 4.7 MgO:PPLN 晶体周期调谐输出波长曲线

3. 温度调谐

温度调谐是将 MgO:PPLN 晶体置于温控炉中，通过温度改变来实现输出波长的调谐。温度调谐的优点是温度容易控制，调谐比较容易。缺点主要有：由于受温控炉的限制，调谐速度慢，体积也较大。图 4.8 是用 1064 nm 激光器作为泵浦源，通过改变不同极化周期的 MgO:PPLN 晶体温度来实现闲频光与信号光的调谐。从曲线上可以看出，当晶体温度的变化范围一定时，晶体极化周期越大通过温度调谐的波长变化范围越大。

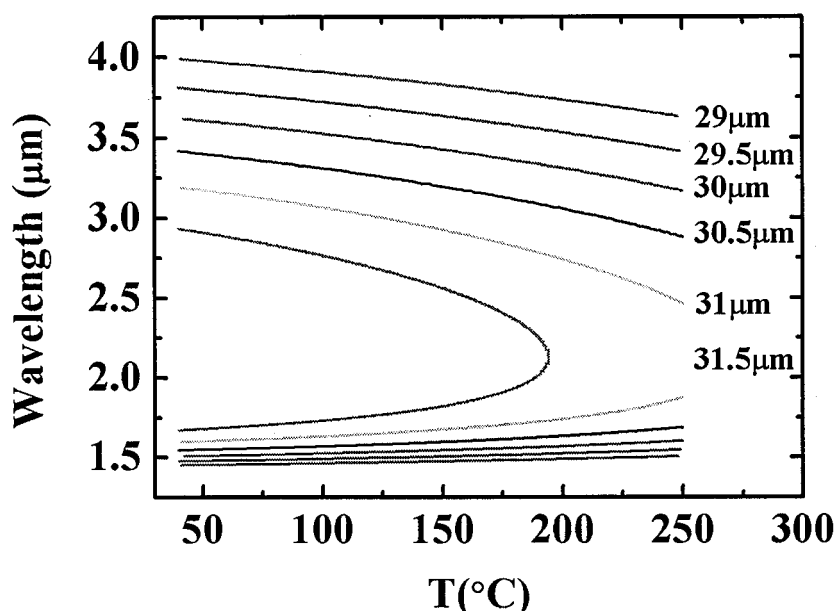


图 4.8 MgO:PPLN 晶体温度调谐输出波长曲线

4.2 MgO:PPLN-OPA 实验研究

4.2.1 MgO:PPLN-OPA 的实验装置

MgO:PPLN-OPA 的实验装置与图 3.9 类似。不同之处在于，通过调节 BBO 晶体的角度，将 BBO-OPG/OPA 产生的闲频光波长调谐到 1463 nm，作为 MgO:PPLN-OPA 的注入种子光。实验中所用的 MgO:PPLN（台湾，HCP）晶体通光面为 3 mm×10 mm，其中 3 mm 方向为厚度方向。匹配方式采用 e-ee 类型 I 类相位匹配，光束偏振方向与晶体厚度方向一致。MgO:PPLN 晶体置于晶体炉中，通过控制晶体温度，获得所需波长。实验中，将晶体温度设置为 100 °C，对应闲频光和信号光分别为 3.9 μm 和 1463 nm。

4.2.2 基于 MgO:PPLN 晶体高能 3.9 μm 激光输出研究

1. BBO-OPG/OPA 闲频光 1463 nm 输出

为表征 BBO-OPG/OPA，我们对其产生的信号光波长进行了角度调谐，并用光谱仪监测其输出波长。如 4.9(a)所示，为获得波长 1463 nm 闲频光，信号光波长调谐到 836 nm。由于 BBO 晶体的角带宽相对较大，测得的 836 nm 信号光的光谱宽度为 6 nm，但是 836 nm 的谱宽比下文中将提到的 MgO:PPLN-OPG 产生的光谱宽度要小得多。图 4.9(b)为用于泵浦 BBO-OPG/OPA 的 1064 nm 基频光能

量与输出 1463 nm 闲频光能量的关系。如图所示,BBO-OPG/OPA 输出的 1463 nm 闲频光随 1064 nm 基频光能量的增加单调增长。在泵浦光能量 6 mJ 时, 获得最大 220 μ J 的闲频光输出。显然, 从图中可以看出, 如果继续提高泵浦能量, 还将获得更高能量的闲频光输出。

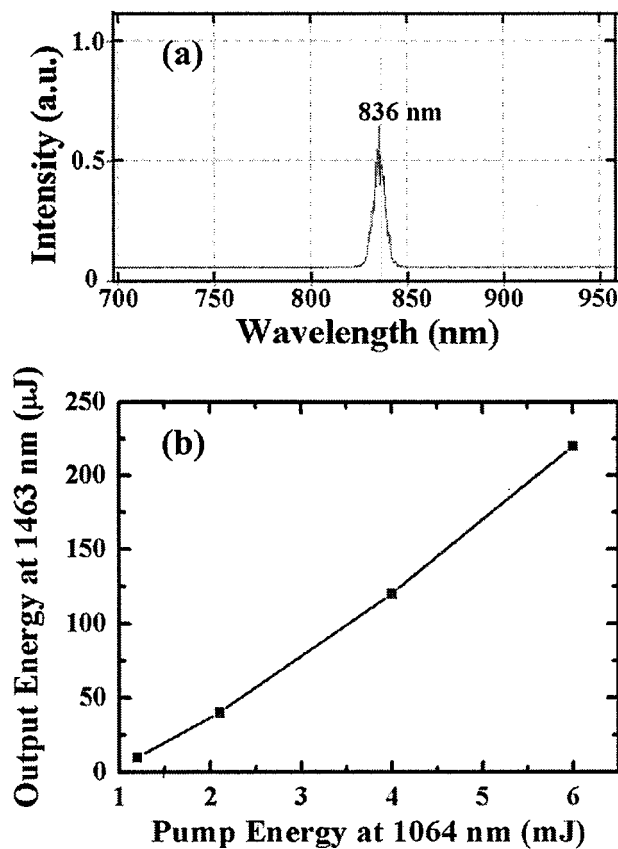


图 4.9 (a)BBO-OPG/OPA 输出 836 nm 信号光光谱图;(b)用于泵浦 BBO-OPG/OPA 的 1064 nm 基频光能量与输出 1463 nm 闲频光能量的关系曲线

2. MgO:PPLN-OPG 实验结果

为了对比 MgO:PPLN 晶体 OPG 和 OPA 的输出特性, 我们首先研究了没有种子注入的 MgO:PPLN-OPG。实验装置与前文中描述的 MgO:PPLN-OPA 实验装置类似, 只是将注入的种子光挡住。实验中, 分别对长度 20 mm、14 mm 和 5.1 mm 的三种晶体的输出特性进行了研究。如前文所述, 用光谱仪 SP2 监测 MgO:PPLN-OPG 输出信号光波长。如图 4.10 所示, 信号光中心波长为 1463 nm, 光谱宽度为 77 nm, 并且具有一个较宽的背景。由信号光波长, 可以推断出对应闲频光波长为 3.9 μ m。

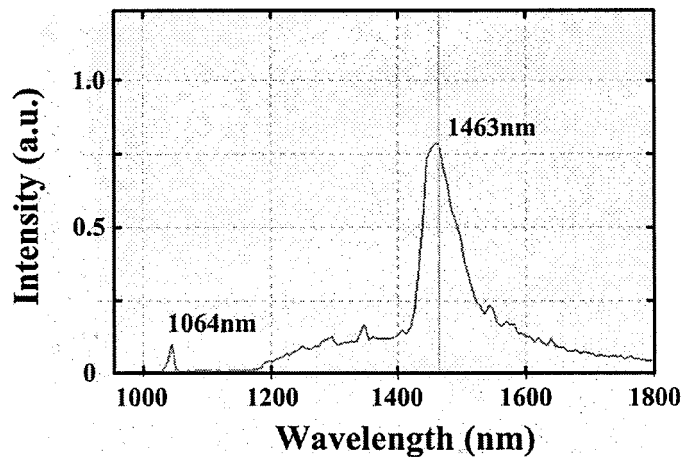


图 4.10 MgO:PPLN-OPG 输出信号光光谱

在 4.1.2 小节中，我们对 MgO:PPLN 晶体的温度调谐特性进行了理论分析，在本节中我们实验测量了 1064 nm 泵浦的 MgO:PPLN-OPG 的温度调谐曲线。实验结果如图 4.11 所示。当晶体温度由 40℃增加到 180℃,OPG 信号光波长由 1.45 μm 调谐到 1.484 μm，对应闲频光波长 4 μm 到 3.763 μm。由图可见，实验数据与理论计算曲线完全符合。

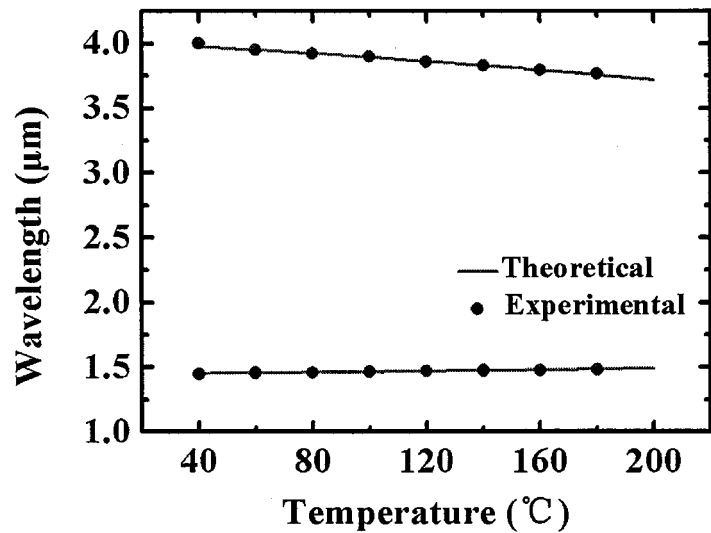


图 4.11 1.064 μm 泵浦 MgO:PPLN-OPG 温度调谐曲线

测量的 3.9 μm 闲频光输出能量与 1064 nm 泵浦光能量的关系如图 4.12 所示。从图中可以看出，由于长晶体的参量增益较大，20 mm 长晶体的泵浦阈值最低，

为 1 mJ 左右。在最大泵光能量 10 mJ (5.3 GW/cm^2) 时, 获得 51 μJ 的 3.9 μm 闲频光输出。14 mm 长晶体泵浦阈值为 1.5 mJ 左右, 在最大 10 mJ 的泵浦能量下, 获得 92 μJ 的 3.9 μm 闲频光输出。对于 5.1 mm 长的晶体, 泵浦阈值为 7.5 mJ 左右, 在同样 10 mJ 的泵浦能量下, 获得 19 μJ 的 3.9 μm 闲频光输出。显然, 14 mm 长晶体输出能量最高, 20 mm 长晶体的输出能量比 14 mm 长晶体的输出能量低了 45%。实验中, BBO-OPG/OPA 与 MgO:PPLN-OPG 两种结构相比, 我们采用了前者作为宽调谐种子源, 是由于: 首先, 如图 4.10 所示, 通常 MgO:PPLN-OPG 产生的信号光和闲频光的带宽较宽。其次, 由于 MgO:PPLN-OPG 是温度调谐, 很难通过控制晶体温度获得中红外波段某个精确的波长输出。

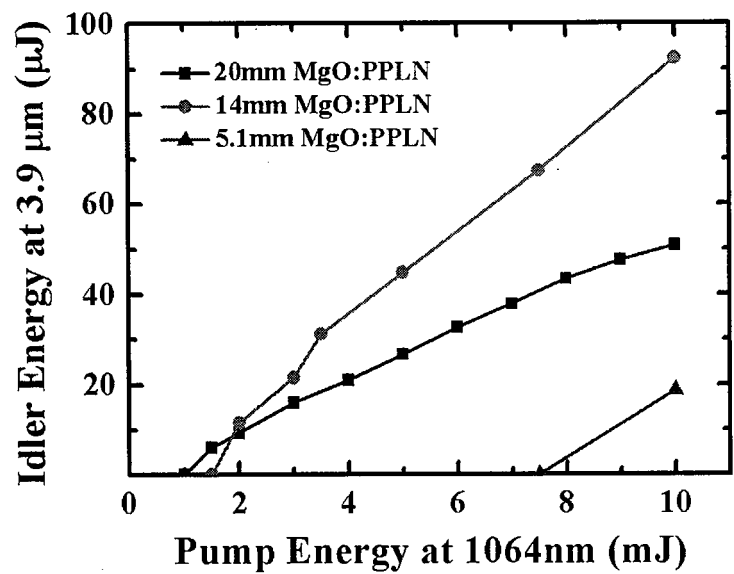


图 4.12 不同晶体长度 MgO:PPLN-OPG 输出能量曲线

3.MgO:PPLN-OPA 实验结果

前文中提到,BBO-OPG/OPA 产生的 1463 nm 信号光谱宽比 MgO:PPLN-OPG 窄, 所以我们利用 BBO-OPG/OPA 产生的 1463 nm 信号光作为 MgO:PPLN-OPA 的种子光, 从而获得高能量的中红外 3.9 μm 激光输出。在注入 200 μJ 种子光时, 不同晶体长度 MgO:PPLN-OPA 输出能量曲线如图 4.13 所示。在泵浦光能量小于 5 mJ 时, 14 mm 长的晶体性能最好, 这主要是由于 20 mm 长的晶体长度太长, 导致了 OPA 过程中的逆转换。所以, 在 OPA 过程中, 较长的晶体并不是特别适用。另一方面, 在高泵浦能量下, 较短的 5.1 mm 长晶体可以获得较高的转换效

率，这与文献[16]中报道的当泵浦强度较高时，OPA 过程中较短的晶体更能获得较高的能量转换效率的理论与实验结果一致。在高泵浦强度和晶体较长情况下，由于信号光光子和闲频光光子发生和频，逆转换产生泵浦光光子，导致 OPA 的能量转换效率较低。同样的现象在文献[17, 18]中也提到过。在最大泵浦能量 15.2 mJ，即泵浦强度 $\sim 8.1 \text{ GW/cm}^2$ 下，5.1 mm 长的 MgO:PPLN 晶体产生闲频光能量 1.14 mJ，对应能量转换效率 7.5%，光子转换效率 27.5%。与 MgO:PPLN-OPG 相比，种子注入的 OPA 结构可以显著降低泵浦阈值。例如，对于 5.1 mm 长的 MgO:PPLN 晶体，OPG 的阈值是 OPA 的阈值的 13 倍。并且，在泵浦能量 10 mJ 时，OPA 的闲频光输出能量是 OPG 的 45 倍。很明显，种子注入的 OPA 可以有效提高输出能量。根据 Manley-Rowe 关系，可以估算出信号光能量大概为 3.04 mJ。所以，对于 5.1 mm 长的 MgO:PPLN 晶体来说，包含信号光和闲频光的总的 OPA 输出能量为 4.18 mJ，对应能量转换效率 27.5%，量子转换效率 55%。对于其他两个长度为 14 mm 和 20 mm 的晶体的 OPA 结构，在同样的泵浦能量下，闲频光能量分别为 965 μJ 和 730 μJ ，相应的转换效率为 6.3% 和 4.8%。显然，短的 OPA 晶体更适用于高泵浦能量下。另外，从图 4.13 可以看出，种子注入 OPA 输出能量并没有出现下降或饱和现象，说明如果进一步增加泵浦能量可以获得更高的能量输出。但是，考虑到 MgO:PPLN 的损伤阈值，实验中我们并没有继续增加泵浦强度。

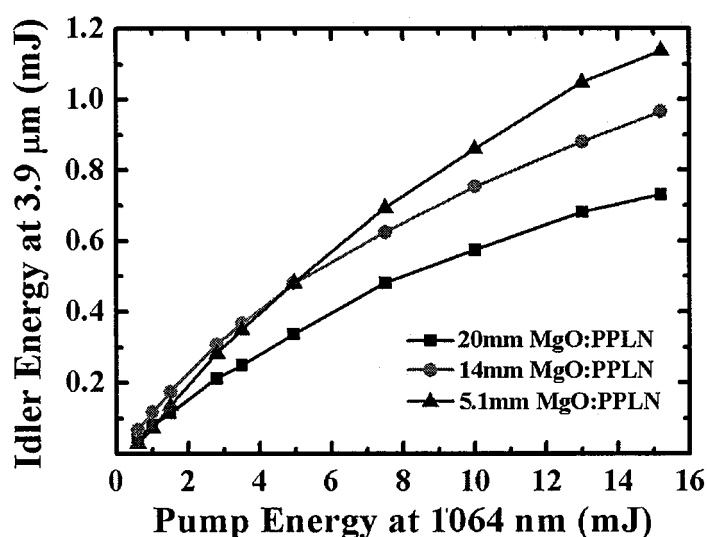


图 4.13 不同晶体长度 MgO:PPLN-OPA 输出能量曲线

在晶体温度 100℃时，利用光谱仪 SP2 测量了 OPA 信号光的光谱特性。如

图 4.14 所示，MgO:PPLN-OPA 产生的信号光中心波长为 1463 nm，继而可以计算出对应的闲频光波长为 3.9 μm 。另外，MgO:PPLN-OPA 输出的信号光光谱没有图 4.9 所示的 OPG 的信号光光谱所示的较宽的背景，并且，由于种子注入 OPA 结构的增益窄化效应，信号光的光谱宽度由 OPG 的 77 nm 减小到 OPA 的 30 nm。同样的信号光光谱宽度窄化现象在文献[19]中也有报道。从 OPA 输出的信号光光谱可以推断中红外 3.9 μm 闲频光也具有窄带的光谱。另外，从图 4.13 中还可以看到 OPA 剩余的 1064 nm 基频光。

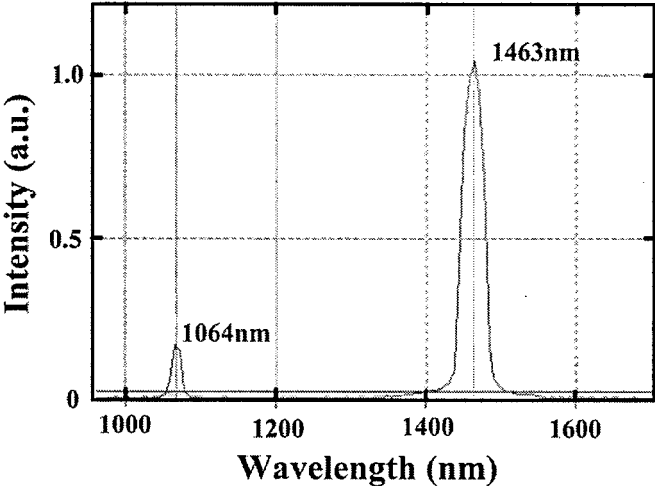


图 4.14 MgO:PPLN-OPA 放大的信号光和剩余的泵浦光光谱

基于 2.4 节中的数值模型，在泵浦能量 15 mJ 时，我们对 MgO:PPLN-OPA 产生的信号光以及剩余的泵浦光的波形进行了理论模拟，结果如图 4.15 所示。从 OPA 入射前和透射后的泵浦波形可以看出，泵浦光在 OPA 过程后具有明显的损耗，尤其是在脉冲中心处，透射后的泵浦波形出现凹陷，泵波损耗最为明显。

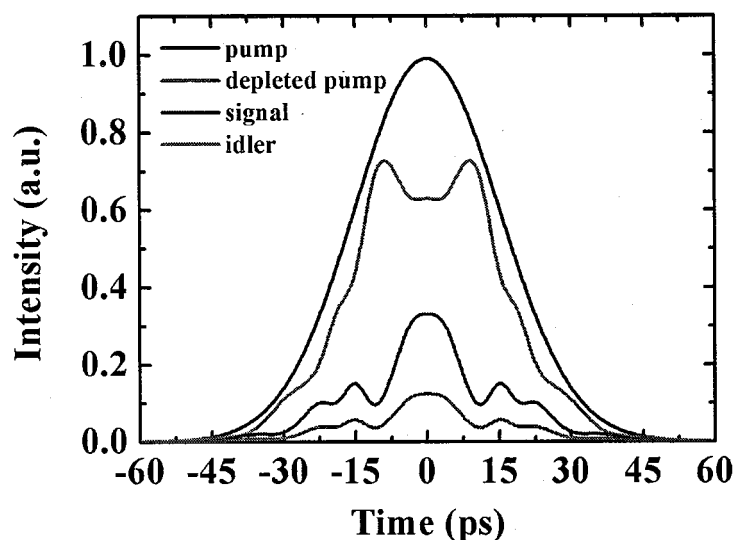


图 4.15 MgO:PPLN-OPA 放大的信号光和消耗的泵浦光波形

4.3 本章小结

(1) 对 MgO:PPLN 晶体的泵浦光调谐、周期调谐和温度调谐特性进行了理论计算和分析。

(2) 对 MgO:PPLN-OPA 开展了实验研究，测量了其输出特性。首次研制了基于大孔径 MgO:PPLN 晶体的 $3.9\ \mu\text{m}$ 皮秒中红外光参量激光放大器。采用 BBO-OPG/OPA 种子注入 MgO:PPLN-OPA 结构，在注入种子光能量 $200\ \mu\text{J}$ ，泵浦能量 $15.2\ \text{mJ}$ 时，获得输出能量 $1.14\ \text{mJ}$ 的 $3.9\ \mu\text{m}$ 中红外激光输出输出；

(3) 理论计算了 MgO:PPLN-OPA 的脉冲波形，分析了泵浦消耗的情况。

(4) 进一步对比了 MgO:PPLN-OPG 与种子注入 MgO:PPLN-OPA 激光输出输出特性。结果表明，与 MgO:PPLN-OPG 相比，OPA 具有较低的泵浦阈值，更高的输出能量，以及较窄的光谱宽度。例如对于 $5.1\ \text{mm}$ 长的 MgO:PPLN 晶体，其 OPG 的阈值是 OPA 的 13 倍；在泵浦能量 $10\ \text{mJ}$ 时，OPA 的闲频光输出能量是 OPG 的 45 倍；产生的信号光的光谱宽度由 OPG 的 $77\ \text{nm}$ 减小到 $30\ \text{nm}$ 。

参考文献

- [1]. Peng, Y.F., X.B. Wei, D.M. Li, and W.M. Wang, High-power mid-infrared tunable optical parametric oscillator based on 3-mm-thick PPMgCLN. Laser

- Physics, 2012. 22(1): p. 87-90.
- [2]. Shah, J., B. Deveaud, T.C. Damen, W.T. Tsang, A.C. Gossard, and P. Lugli, Determination of intervalley scattering rates in GaAs by subpicosecond luminescence spectroscopy. *Physical review letters*, 1987. 59(19): p. 2222.
- [3]. Lin, W., R.W. Schoenlein, J.G. Fujimoto, and E.P. Ippen, Femtosecond absorption saturation studies of hot carriers in GaAs and AlGaAs. *Quantum Electronics, IEEE Journal of*, 1988. 24(2): p. 267-275.
- [4]. Tomita, A., J. Shah, J.E. Cunningham, S.M. Goodnick, P. Lugli, and S.L. Chuang, Femtosecond hole relaxation in n-type modulation-doped quantum wells. *Physical Review B*, 1993. 48(8): p. 5708.
- [5]. Nisoli, M., A. Cybo-Ottone, S. De Silvestri, V. Magni, R. Tubino, S. Luzzati, A. Musco, and D. Comoretto, Femtosecond transient bleaching decay in poly (alkyl-thiophene-vinylene) s in solution and in film. *Solid state communications*, 1993. 86(9): p. 583-588.
- [6]. Ruffing, B., A. Nebel and R. Wallenstein, All-solid-state cw mode-locked picosecond KTiOAsO₄ (KTA) optical parametric oscillator. *Applied Physics B*, 1998. 67(5): p. 537-544.
- [7]. 姚建铨等, 全固态激光及非线性光学频率变换技术. 2007: 科学出版社.
- [8]. Yamada, M., N. Nada, M. Saitoh, and K. Watanabe, First - order quasi - phase matched LiNbO₃ waveguide periodically poled by applying an external field for efficient blue second - harmonic generation. *Applied Physics Letters*, 1993. 62(5): p. 435-436.
- [9]. Bosenberg, W.R., J.I. Alexander, L.E. Myers, and R.W. Wallace, 2.5-W, continuous-wave, 629-nm solid-state laser source. *Optics letters*, 1998. 23(3): p. 207-209.
- [10]. Powers, P.E., T.J. Kulp and S.E. Bisson, Continuous tuning of a continuous-wave periodically poled lithium niobate optical parametric oscillator by use of a fan-out grating design. *Optics letters*, 1998. 23(3): p. 159-161.
- [11]. Zhong, G., J. Jian and Z. Wu. 11th International Quantum Electronics Conference. in *IEEE Cat*. 1980.
- [12]. Hirano, Y., S. Yamamoto, T. Tajime, R. Taniguchi, and M. Nakamura. High-average power, room temperature operation of PPMgLN OPO. in

- Lasers and Electro-Optics, 2000.(CLEO 2000). Conference on. 2000: IEEE.
- [13]. Ishizuki, H., T. Taira, S. Kurimura, J.H. Ro, and M. Cha, Periodic poling in 3-mm-thick MgO: LiNbO₃ crystals. Japanese journal of applied physics, 2003. 42(2A): p. L108.
- [14]. Jundt, D.H., Temperature-dependent Sellmeier equation for the index of refraction, n_e , in congruent lithium niobate. Optics Letters, 1997. 22(20): p. 1553-1555.
- [15]. Gayer, O., Z. Sacks, E. Galun, and A. Arie, Temperature and wavelength dependent refractive index equations for MgO-doped congruent and stoichiometric LiNbO₃. Applied Physics B, 2008. 91(2): p. 343-348.
- [16]. Huang, J.Y., J.Y. Zhang, Y.R. Shen, C. Chen, and B. Wu, High - power, widely tunable, picosecond coherent source from optical parametric amplification in barium borate. Applied physics letters, 1990. 57(19): p. 1961-1963.
- [17]. Zhang, J.Y., J.Y. Huang, Y. Shen, and C. Chen, Optical parametric generation and amplification in barium borate and lithium triborate crystals. JOSA B, 1993. 10(9): p. 1758-1764.
- [18]. Zhang, J., Z. Xu, Y. Kong, C. Yu, and Y. Wu, Highly efficient, widely tunable, 10-Hz parametric amplifier pumped by frequency-doubled femtosecond Ti: sapphire laser pulses. Applied optics, 1998. 37(15): p. 3299-3305.
- [19]. Powers, P.E., K.W. Aniolek, T.J. Kulp, B.A. Richman, and S.E. Bisson, Periodically poled lithium niobate optical parametric amplifier seeded with the narrow-band filtered output of an optical parametric generator. Optics letters, 1998. 23(24): p. 1886-1888.

第五章 基于新型中红外 BGSe 晶体的皮秒中红外光参量放大研究

如前所述, 波长介于 2-20 μm 波段的中红外激光在大气监测、光学遥感、光谱分析、空间光通信、环保、医疗、光电对抗等领域有着重大的应用价值, 已成为国内外广泛研究的热点。近年来, 人们对 KTA、RTP、PPLN 和 PPLT 等大量非线性光学晶体的光参量特性进行了研究[1-5]。但是, 这些氧化物晶体的透光范围截止到 5 μm , 并且波长大于 4 μm 后晶体吸收严重。为有效产生波长大于 4 μm 的激光辐射, 人们对 $\text{AgGaS}_2/\text{Se}_2$ 、 ZnGeP_2 、 $\text{LiInS}_2/\text{Se}_2$ 、 CdSiP_2 和 BaGa_4S_7 等半导体型晶体展开了广泛的研究[6-14]。其中, $\text{AgGaS}_2/\text{Se}_2$ 和 ZnGeP_2 具有非线性系数大, 透光范围宽的优点, 但是 $\text{AgGaS}_2/\text{Se}_2$ 损伤阈值低, 而 ZnGeP_2 对~1 μm 泵浦激光具有强烈的双光子吸收。 $\text{LiInS}_2/\text{Se}_2$ 的带隙较宽, 所以激光损伤阈值较高, 但它的非线性系数适中, 激光损耗仍然较高。 CdSiP_2 非线性特性较好, 可用于非临界相位匹配, 但它的透光范围只到 9.5 μm 。 BaGa_4S_7 优点是损伤阈值高, 但是它的非线性系数只有 $\text{AgGaS}_2/\text{Se}_2$ 的一半。所以, 目前对新型中红外非线性光学晶体还存在迫切需求。在本章中, 我们研究了新型非线性光学晶体 BaGa_4Se_7 (BGSe)的中红外光参量激光输出特性及应用前景, 证实了 BGSe 晶体在宽调谐中红外激光产生方面的优异性能和重要应用价值。

5.1 BGSe 晶体简介

5.1.1 BGSe 晶体简介

由于非线性光学晶体是中红外光参量激光器的关键, 要实现中红外激光的有效运转, 在不断优化已有中红外非线性光学晶体生长条件、提高晶体质量的同时, 科技工作者也在不断探索性能优良的新型中红外非线性光学晶体材料。通过元素取代, 特别是能提高化合物带隙的轻元素取代, 发现了一系列红外非线性光学晶体, 如 LiInS_2 , LiGaSe_2 。

除碱金属元素外, 碱土金属的引入往往也能提高化合物的带隙。通过引入碱土金属元素 Ba, 科研人员也发现了一些具有应用价值的红外非线性光学晶体材料。2008 年, 叶宁[15]等人通过布里奇曼法获得了 BaGa_4S_7 单晶并测试了它的红外非线性光学效应。测试表明 BaGa_4S_7 具有较宽的光学透过范围(0.35-13.7

μm), 较大的带隙和较高的激光损伤阈值。之后, 国内外科科研人员对 BaGa_4S_7 展开了更为详细的研究。2012 年, Tyazhev [14] 等人在 1064 nm 激光泵浦下, 利用 BaGa_4S_7 晶体通过光参量振荡实现了能量 0.5 mJ 的 6.217 μm 红外激光输出。研究结果显示 BaGa_4S_7 是一种在中远红外波段具有潜在应用价值的非线性光学晶体材料。

继 2008 年获得 BaGa_4S_7 后, 我所吴以成院士研究组通过对 BaGa_4S_7 单晶的结构分析, 于 2010 年首次发现另一种新型中红外非线性光学晶体材料—— BaGa_4Se_7 (BGSe) 晶体[16]。BGSe 属于新的结构类型, 单斜晶系 Pc 空间群, 晶胞参数为 $a = 7.625(2) \text{ \AA}$, $b = 6.511(1) \text{ \AA}$, $c = 14.702(4) \text{ \AA}$, $\beta = 121.24(2)^\circ$, $Z = 2$ 。通过对该晶体进行相关测试, 显示 BGSe 晶体具有较大的非线性光学效应 (2-3 倍的 AgGaS_2); 较大的带隙 (2.64 eV); 较宽的光学透过范围 (0.47-18 μm); a , b , c 三个方向的热膨胀系数分别为 9.24×10^{-6} , 10.76×10^{-5} 和 $11.70 \times 10^{-5} \text{ K}^{-1}$, 较小的各向异性有利于晶体生长; a , b , c 三个方向的热扩散系数和热导率为 $0.35\text{-}0.50 \text{ mm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ 和 $0.60\text{-}0.90 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$, 各向异性较小; 在脉宽 5 ns, 重复频率 1 Hz, 波长 1064 nm 激光下的损伤阈值为 557 MW/cm^2 (同等条件下的 AgGaS_2 为 150 MW/cm^2)。另外, 它可以利用已成熟的商业化 $\sim 1 \mu\text{m}$ 激光器作为泵浦源, 在很大程度上避免了双光子吸收。这些结果进一步表明 BGSe 是一种具有较好应用价值的非线性光学晶体材料。

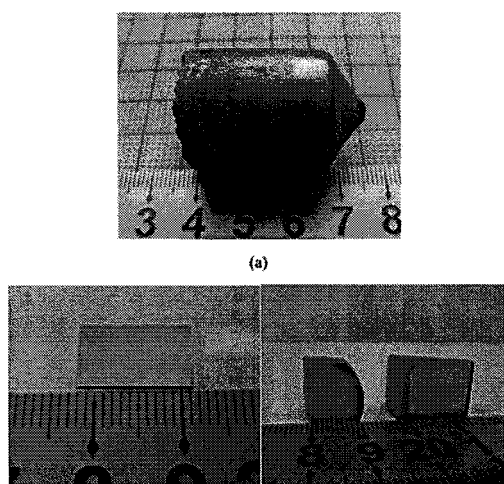


图 5.1 BGSe 晶体照片: (a) 生长出的尺寸为 $\Phi 20 \times 30 \text{ mm}$ 的 BaGa_4Se_7 单晶; (b) 透明的 BaGa_4Se_7 晶体的 (001) 面晶片; (c) 加工好的 BaGa_4Se_7 晶体棱镜

5.1.2 BGSe 晶体非线性光学特性研究

作为非线性光学晶体材料，透光范围是一个重要的参数，决定了晶体可以使用的波段。图 5.2 为 BGSe 晶体在 0.4-24 μm 波段范围的透过情况。从图中可以看到 BGSe 晶体在 1-14 μm 范围透过率较高(70%)，晶体的可见区域与红外区域的吸收边分别为 0.47 μm 和 18 μm 。同时， BaGa_4Se_7 晶体在 15 μm 附近有一个强的本征吸收峰。虽然 BGSe 晶体在 15 μm 处的吸收峰会影响它在长波段的使用，但是很幸运的是 1-14 μm 波段的透光范围已经覆盖了 3-5 μm 和 8-12 μm 这两个重要的“大气窗口”。

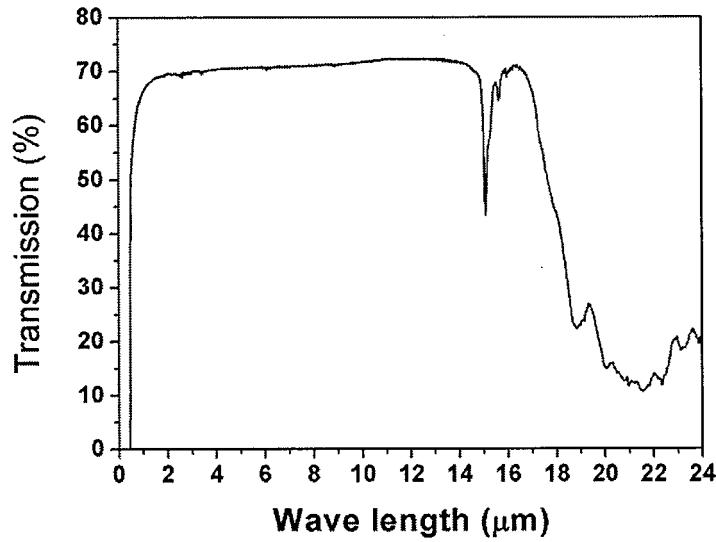


图 5.2 BGSe 晶体在 0.4-24 μm 波段透过谱

BGSe 晶体属于 Pc 空间群，在考虑 Kleinman 对称性的情况下，其二阶非线性极化率张量为：

$$\begin{pmatrix} d_{11} & d_{12} & d_{13} & 0 & d_{15} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & d_{24} & 0 & d_{12} \\ d_{15} & d_{24} & d_{33} & 0 & d_{13} & 0 \end{pmatrix} \quad (5.1)$$

BGSe 晶体共有 6 个独立的张量系数： d_{11} 、 d_{12} 、 d_{13} 、 d_{15} 、 d_{24} 、 d_{33} ，实验中只获得了 d_{11} 、 d_{12} 、 d_{13} 的准确值：

$$d_{11}(\text{BaGa}_4\text{Se}_7) = (68.57 \pm 4.11) d_{36}(\text{KDP}) = (26.74 \pm 1.60) \text{ pm/V} \quad (5.2)$$

$$d_{12}(\text{BaGa}_4\text{Se}_7) = 196.89d_{36}(\text{KDP}) = 76.8 \text{ pm/V} \quad (5.3)$$

$$d_{13}(\text{BaGa}_4\text{Se}_7) = (54.02 \pm 2.87)d_{36}(\text{KDP}) = (21.07 \pm 1.11) \text{ pm/V} \quad (5.4)$$

由此可见, BGSe 晶体非线性系数较大, 约为 BaGa₄S₇ 晶体的 3 倍以上。2011 年, V Badikov[17]等利用 auto-collimation 方法测量了该晶体折射率, 报道了 BGSe 的色散方程。最近, 我所吴以成院士研究组也利用 BGSe 棱镜样品的最小偏离角测量了 BGSe 晶体的折射率, 拟合的色散方程为:

$$\begin{aligned} n_x^2 &= 5.952953 + \frac{0.250172}{\lambda^2 - 0.081614} - 0.001709\lambda^2 \\ n_y^2 &= 6.021794 + \frac{0.256951}{\lambda^2 - 0.079191} - 0.001925\lambda^2 \\ n_z^2 &= 6.293976 + \frac{0.282648}{\lambda^2 - 0.094057} - 0.002579\lambda^2 \end{aligned} \quad (5.5)$$

色散曲线如图 5.3 所示。从图中可以看出, 在 0.4~18 μm 波长范围内, BGSe 晶体的双折射率差别较大, 因而理论上在这一波长范围内具有合适的相位匹配角, 易于用角度调谐实现可调谐参量光输出。

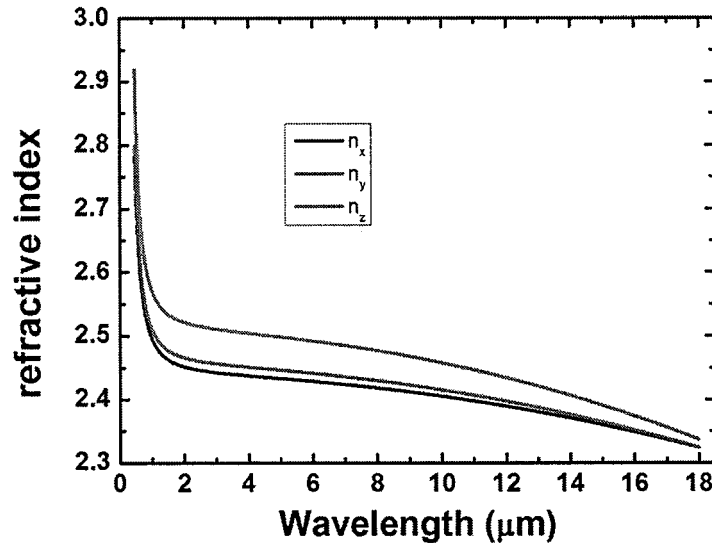


图 5.3 BGSe 晶体的色散曲线

根据式(5.5)所示的色散方程, 我们计算了泵浦波长 1064 nm 时, BGSe 晶体在 xz 主平面内的相位匹配曲线。图 5.4 和图 5.5 分别对应 Type-I 和 Type-II 相位

匹配。从图中可以看出，在 BGSe 晶体的整个红外透光波段上均可实现 Type-I 和 Type-II 相位匹配。

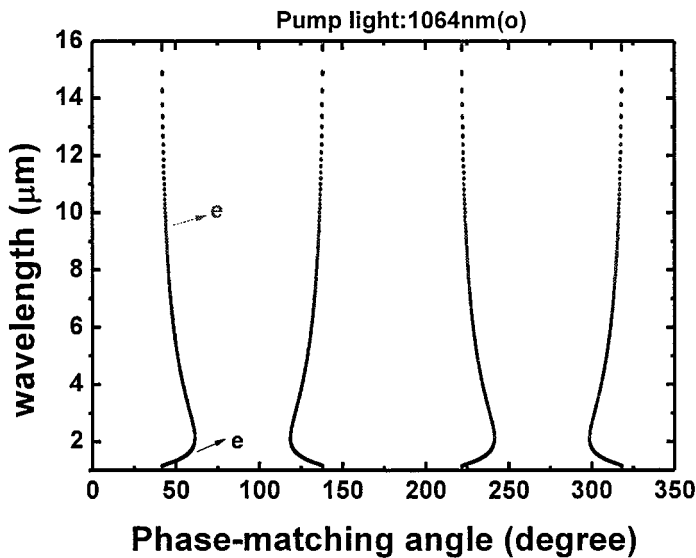


图 5.4 1064 nm 泵浦 BGSe 晶体 Type-I 相位匹配

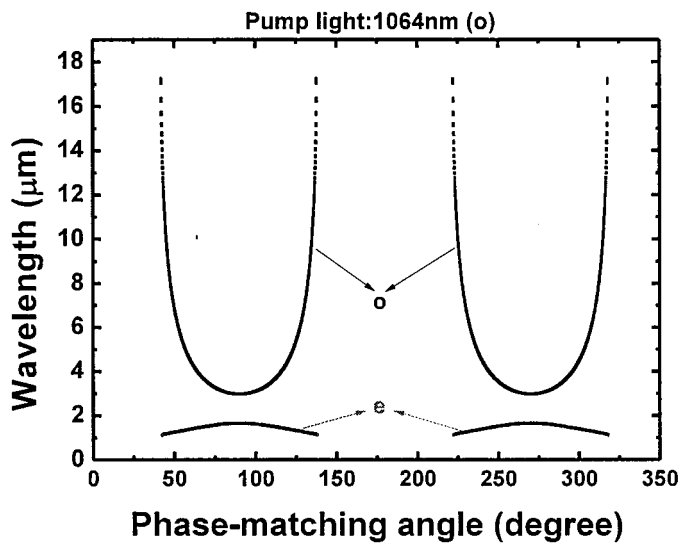


图 5.5 1064 nm 泵浦 BGSe 晶体 Type-II 相位匹配

另外，由于高损伤阈值的晶体有利于为获得高功率、高能量的激光输出，所以高激光损伤阈值成为衡量非线性光学晶体性能的重要指标。吴以成院士研究组对 BGSe 晶体进行了激光损伤测试。结果表明，在激光波长为 1064 nm，脉宽为 5 ns，重复频率是 1 Hz 时的激光损伤阈值是 557 MW/cm²，作为对比，同等

测试条件下 AgGaS₂ 晶体的损伤阈值是 150 MW/cm²。可以看出，和 AgGaS₂ 相比，BGSe 具有比较大的激光损伤阈值，有利于高功率，高能量的中红外激光的获取。

综上所述，BGSe 晶体具有以下优点：

- (1) 宽的透光范围 0.47-18 μm，虽然在 15 μm 处存在一本征多光子吸收峰，实用红外限仍可达 13 μm；
- (2) 较大的非线性系数：>70 pm/V；
- (3) 可用成熟的 1064 nm 激光泵浦，并在其整个红外透光波段可 Type-I 及 Type-II 相位匹配；
- (4) 宽的带隙 2.64 eV 及较高的激光损伤阈值 557 MW/cm²@1064 nm, 5 ns, 1 Hz。

根据以上特性，BGSe 晶体有望成为一种实现高功率宽调谐中红外激光的非线性晶体。

5.2 BGSe-OPA 实验研究

5.2.1 I 类相位匹配 BGSe-OPA 3.9 μm 及 3~5 μm 宽调谐激光输出研究

BGSe-OPA 的实验装置与图 3.9 类似，不同之处在于通过调节 BBO 晶体的角度，将 BBO-OPG/OPA 产生的闲频光调谐到 1463 nm，作为 BGSe-OPA 的种子光。实验中所用 BGSe 晶体采用 Bridgman-Stockbarger 方法生长，晶体尺寸 8 mm × 8 mm × 8.7 mm，切割角 $\theta=54.7^\circ$ ， $\phi=0^\circ$ ，为 o-ee 类型 I 类相位匹配 OPA，晶体端面抛光未镀膜。图 5.6 为根据色散方程(5.5)计算的 1064 nm 泵浦的 BGSe-OPA I 类相位匹配曲线。从图中可以看出，晶体角度在 58.5°-51.1°范围内，闲频光调谐范围为 3-5 μm，对应信号光波长 1649-1352 nm。实验中晶体切割角度 54.7°，对应闲频光和信号光波长 3.9 μm 和 1463 nm。

在种子光波长 1463 nm，最佳注入种子能量~200 μJ 情况下，我们对 BGSe-OPA 产生的中红外 3.9 μm 闲频光能量与 1064 nm 泵浦光能量的关系进行了研究，结果如图 5.7 所示。从图中可以看出，闲频光能量随泵光能量的增加单调地增长。在泵光能量~1.8 mJ 时，获得输出能量 275 μJ 的 3.9 μm 闲频光，对应最大能量转换效率~15.3%，光子转换效率为 56%。在最高泵光能量~9.1 mJ 时，获得闲频光能量高达~830 μJ，峰值功率约 41.5 MW，相应的能量转换效率为~9%，

光子转换效率 33%。将脉冲的空间和时间分布进行高斯近似，建立了考虑了泵浦消耗的数值模型，计算结果表明在较高泵浦强度下转换效率的降低主要是由泵浦消耗和逆转换造成。

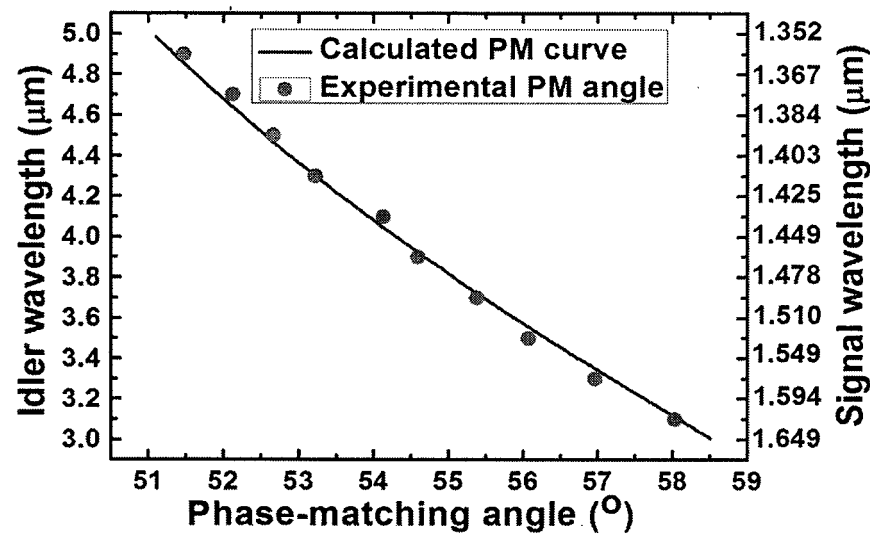


图 5.6 1064 nm 泵浦的 BaGa₄Se₇-OPA I 类相位匹配曲线

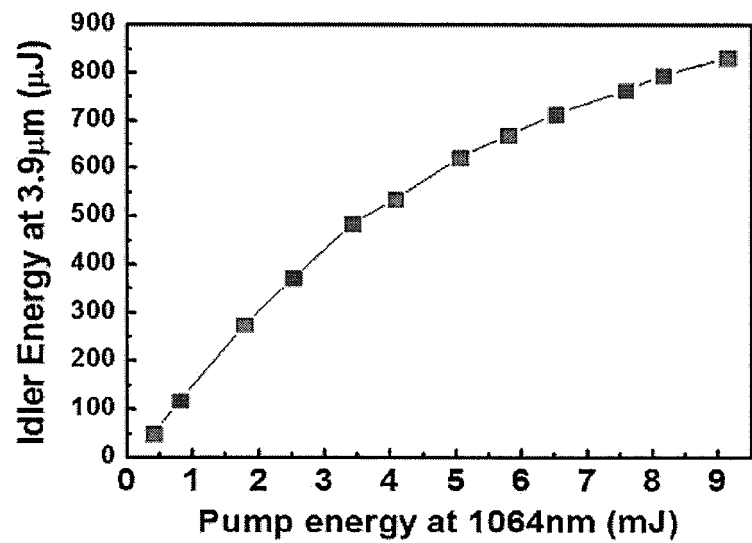


图 5.7 BGSe-OPA 3.9 μm 输出能量与 1064 nm 泵浦能量关系曲线

图 5.8 为测量的 BGSe-OPA 放大的 1463 nm 种子光的光谱图。另外，我们还进行了 BGSe 晶体的表面损伤测试，损伤阈值~0.09 J/cm²，对应泵浦强度~3 GW/cm²@1064 nm，30 ps，10 Hz。

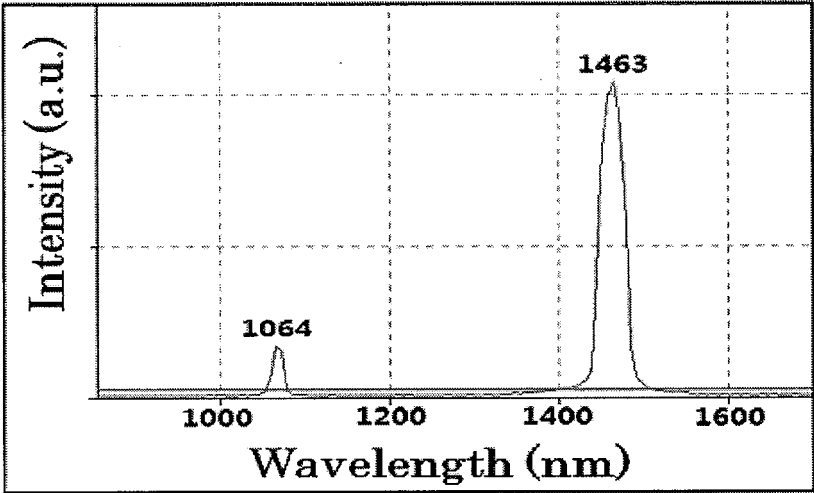


图 5.8 BGS_e-OPA 放大的 1463 nm 种子光光谱图

在正入射泵浦能量~8.2 mJ，泵浦强度~1.7 GW/cm² 条件下，通过调谐种子光波长，以及相应的旋转 BGS_e 晶体的相位匹配角，我们测量了 BGS_e-OPA 在 3-5 μm 范围内的调谐特性。种子光波长调谐范围为 1649 nm-1352 nm，BGS_e 晶体的相位匹配角从 58.5° 旋转到 51.0°，结果如图 5.9 所示。实验测量的相位匹配角与理论计算的结果符合较好，误差在±0.5°。从图中可以看出，随闲频光波长增加，闲频光输出能量呈现出一种逐渐减小的趋势，由 5 μm 时的~300 μJ 增加到 3 μm 时的 1 mJ。

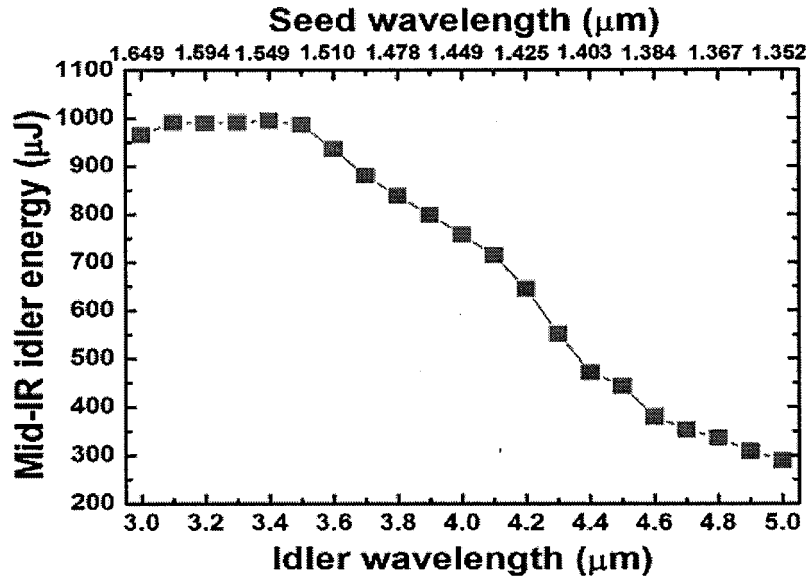


图 5.9 泵浦能量 8.2 mJ BGS_e-OPA 闲频光 3-5 μm 调谐曲线

5.2.2 I 类相位匹配 BGSe-OPA 7.8 μm 及 6.4~11 μm 宽调谐激光输出研究

继对 BGSe 晶体进行了 3.9 μm 及 3~5 μm 激光输出特性研究后,我们对 BGSe 晶体更长波长输出特性进行了相关实验研究。根据我们拟合的色散方程计算的相位匹配结果, BGSe 晶体切割角为 $\theta=44^\circ$, $\varphi=0^\circ$, 用于 1064 nm 泵浦的 I 类双折射相位匹配时, 对应的信号光和闲频光波长为 1197 nm 和 9.6 μm 。晶体如图 5.10 的嵌入图所示, 长度 8 mm, 通光孔径 10 mm $\times$ 10 mm, 两端面光学抛光, 不镀膜。另外, 图 5.10 为测量的晶体在中红外 6-18 μm 波段的光学透过率。从中可以看出, BGSe 晶体在 12 μm 之前有较好的透过率, 透过波段截止到 18 μm , 只在~15 μm 处有一个窄的本征吸收带。透过率在 9 μm 附近有所降低, 这在我们之前的研究中并没有出现, 可能是由于本实验所用晶体的某些缺陷造成的。

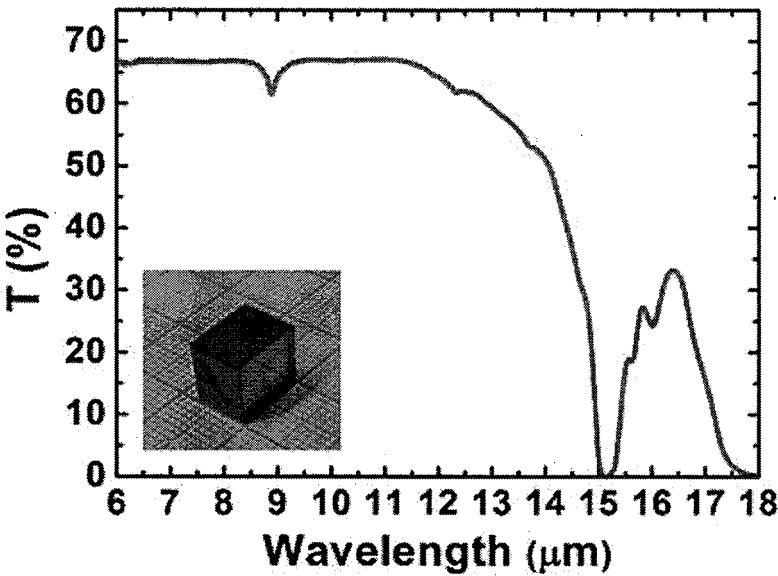


图 5.10 8 mm 厚 BGSe 晶体在 6-18 μm 波段透过率

实验装置与图 3.9 类似, 仍包含宽调谐种子结构和 1064 nm 激光泵浦的种子注入中红外 BGSe-OPA。不同的是宽调谐近红外种子光由 532 nm 泵浦的双程结构的 KTP-OPG/OPA 产生, 其中 KTP 晶体(8 mm $\times$ 8 mm $\times$ 10 mm, 切割角 $\theta=73.2^\circ$, $\varphi=0^\circ$)采用 II 类相位匹配(o $\rightarrow$ e+o)。

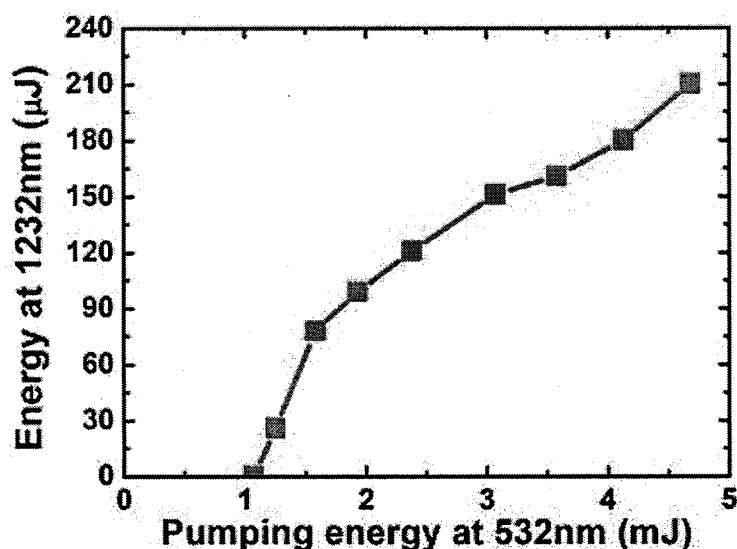


图 5.11 双程 KTP-OPG/OPA 的 1232 nm 输出种子光能量
与 532 nm 泵光能量的关系

在种子产生结构的选择方面，与 BBO 晶体相比，KTP 晶体在光参量过程中由于角带宽较小，可以产生窄带种子光，所以我们采用的是 II 类($o \rightarrow e + o$) KTP OPA 结构。在相位匹配条件下，将 KTP 晶体从 67.7° 旋转到 75.4° ，KTP-OPG/OPA 可以产生 1293 nm 到 1168 nm 较宽光谱范围的闲频种子光。图 5.11 为 1232 nm 种子光输出能量与 532 nm 泵浦能量的关系。从图中可以看出，种子输出能量随泵浦能量单调增加，在 532 nm 泵浦能量 4.5 mJ 时，得到最大种子光能量大于 200 μJ 。

通过调节 KTP-OPG/OPA 产生的 1232 nm 能量，我们研究了 BGS_e-OPA 的最佳种子能量，结果如图 5.12 的嵌入图所示。从图中可以看出，在注入种子能量小于 $\sim 90 \mu\text{J}$ 时，7.8 μm 输出能量单调增长，当种子能量超过 $\sim 90 \mu\text{J}$ ，输出能量达到饱和。图 5.12 为在种子注入能量 $\sim 100 \mu\text{J}$ 下，产生的中红外 7.8 μm 闲频光能量与 1064 nm 泵光能量的关系。如图所示，闲频光输出能量随泵光能量单调增加。在最大泵光能量 $\sim 9 \text{ mJ}$ 时，获得最高闲频光能量高达 $\sim 125 \mu\text{J}$ ，对应峰值功率 $\sim 6.3 \text{ MW}$ 。实验中，在低泵浦水平下，转换效率随泵浦强度的增加而增加，然而在进一步增加泵浦强度时，转换效率明显下降。高泵光强度下转换效率的减小主要是由泵浦光的非线性损耗和光参量放大过程中的逆转换造成的。通过优化晶体中的泵光强度，可以在最大泵光能量下获得最大转换效率。

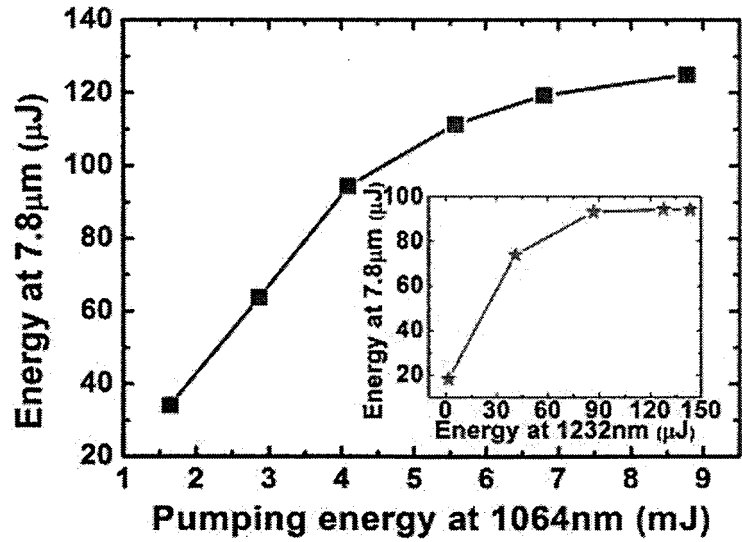


图 5.12 BGSe-OPA 中 7.8 μm 输出能量与 1064 nm 泵光能量的关系。嵌入图为在泵光 4 mJ 时，7.8 μm 输出能量与注入 1232 nm 种子光能量的关系

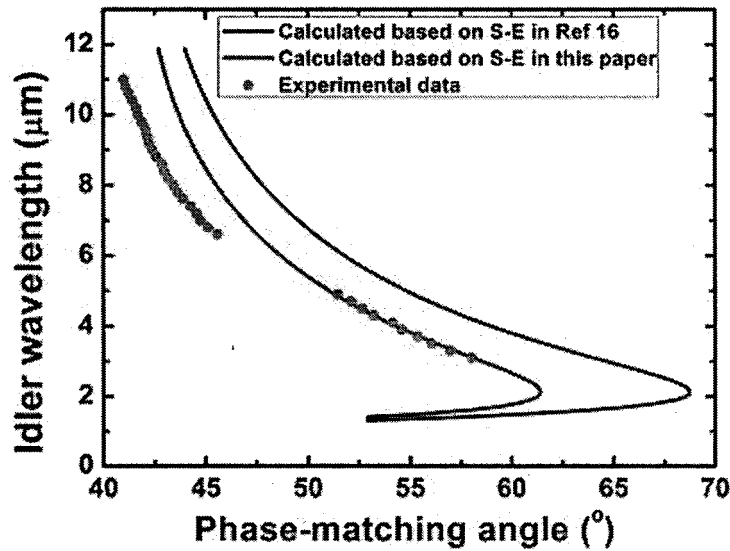


图 5.13 BGSe-OPA 的 I 类相位匹配曲线，黑线和蓝线代表基于色散方程的计算值，红点代表实验值

图 5.13 为测量的 6.4-11 μm 闲频光对应的 BGSe 晶体的相位匹配角以及之前测量的 3-5 μm 对应的相位匹配角，如图所示，6.4-11 μm 闲频光对应的 BGSe 晶体的相位匹配角为 45.6° - 41° 。图中黑色曲线是根据俄罗斯库班国立大学报道的 BGSe 晶体的色散方程[17]计算的结果，但是该单位目前只报道了 BGSe 晶体的色散方程，未见其关于 BGSe 晶体激光输出方面的报道。而蓝色曲线是根究吴

以成院士研究组报道的色散方程计算的 BGS_e I 类相位匹配曲线如图中实线所示。从图中可以看到，在中红外波段，实验测量数据和根据参考文献[17]计算的结果之间存在很大偏差。利用吴以成院士研究组报道的色散方程，在 3-5 μm 波段实验值与理论值吻合，但在 6.4-11 μm 波段存在偏差。这种偏差主要是折射率测量受光谱测量仪的限制导致。其色散方程是由 0.5-2.6 μm 波长范围内的测量数据拟合而成。对长波长，尤其是 6-11 μm 波段，该色散方程不是十分准确。为使 BGS_e 晶体的色散方程更加完善，应该进行波长至远红外的与波长有关的折射率的测量。

实验中所用晶体为切割角 $\theta=44^\circ$ ， $\varphi=0^\circ$ 的 BGS_e 晶体，理论上闲频光波长可以调谐到 12 μm ，但由于上面提到的理论偏差，闲频光波长只能调谐到 11 μm 。图 5.14 为 BGS_e-OPA 在 6.4-11 μm 的调谐特性曲线。调谐曲线是在泵光能量~4.1 mJ，泵光强度~1.7 GW/cm^2 情况下测量得到，对应的种子光调谐范围 1.27~1.18 μm ，注入 BGS_e 晶体的种子光能量~100 μJ 。产生的闲频光能量由 11 μm 时的~38 μJ 增长到 6.4 μm 时的~100 μJ 。如图 5.10 所示，BGS_e 晶体可以实现更宽的调谐范围，大于 13 μm 的吸收损耗非常小。而 ZGP 晶体由于吸收损耗较大，调谐到 12 μm 范围其转换效率较低，同时，ZGP 晶体需要 2 μm 激光泵浦。

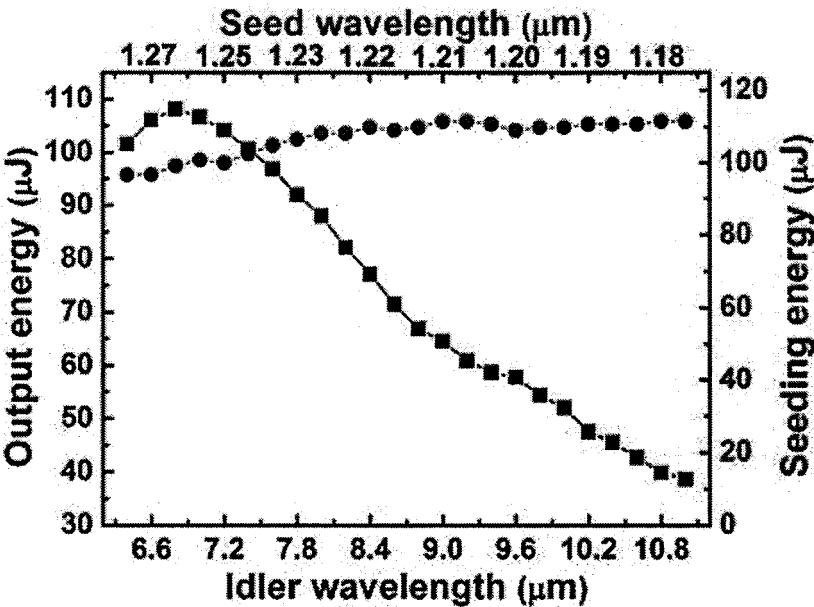


图 5.14 泵光能量 4.1 mJ 时测量的 BGS_e-OPA 在 6.4-11 μm 调谐特性
(已考虑菲涅尔损耗)

5.2.3 II 类相位匹配的 BGSe-OPA 3.9 μm 激光产生

在前面两小节我们研究了 BGSe 晶体 I 类相位匹配的输出特性，在本小节我们将讨论 BGSe 晶体 II 类相位匹配的相关特性。首先，我们对 BGSe 晶体在 xz 面 ($\varphi = 0^\circ$)和 yz 面 ($\varphi = 90^\circ$)的 II 类相位匹配情况进行了计算，结果如图 5.15 所示。其中，图 5.16 为在 3.8-4.0 μm 波长范围内的相位匹配情况，从图中可以看出，对于 type-II ($o \rightarrow e+o$) 产生 3.9 μm 激光，存在两种切割角:($\theta = 45^\circ, \varphi = 90^\circ$) 及($\theta = 65^\circ, \varphi = 0^\circ$)。

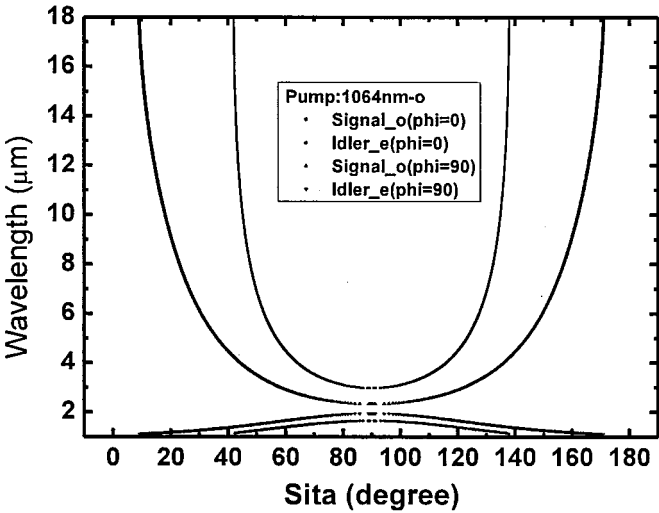


图 5.15 BGSe 在 xz 面 ($\varphi = 0^\circ$)和 yz 面 ($\varphi = 90^\circ$)的 II 类相位匹配曲线

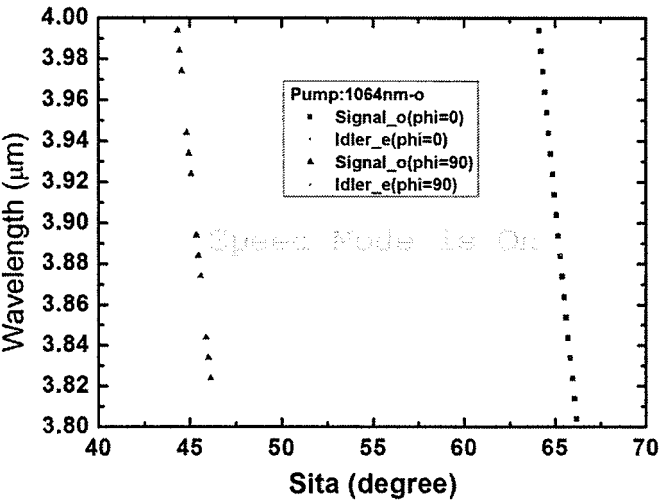


图 5.16 BGSe 在 3.8-4.0 μm 波长范围内 II 类相位匹配曲线

首先，我们对切割角 $\theta = 45^\circ, \varphi = 90^\circ$ 的 BGSe 晶体进行了相关实验，晶体尺

寸为 8 mm × 8 mm × 9mm。采用与图 3.9 类似的实验装置。II 类相位匹配的 BGSe-OPA 的种子光由 532 nm 泵浦的 BBO-OPG/OPA 产生,种子光波长 1463 nm,能量 150 μJ。输出结果如图 5.17 所示, OPA 泵光能量 8.2 mJ 时, 3.9 μm 闲频光输出能量为 460 μJ, 转换效率 5.6%。

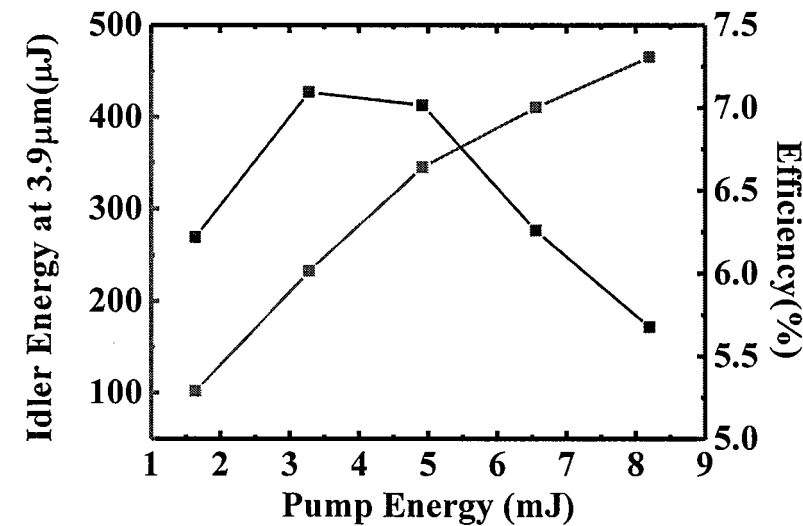


图 5.17 II 类相位匹配 BGSe-OPA 输出能量与转换效率曲线
(注入种子光由 BBO-OPG/OPA 产生)

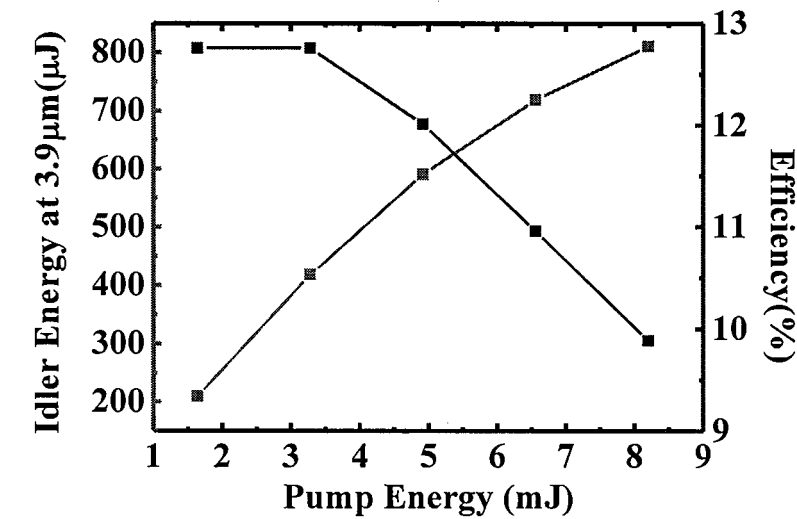


图 5.18 II 类相位匹配 BGSe-OPA 输出能量与转换效率曲线
(注入种子光由 KTP-OPG/OPA 产生)

在种子光产生的结构选择上,我们先采用了 I 类($e \rightarrow o+o$) BBO-OPG/OPA,结果如图 5.17 所示,但是 BBO 晶体在光参量过程中由于角带宽较大,产生的种

子光带宽较宽。宽带的种子光会对光参量放大的输出造成一定的影响，使转换效率降低。为了提高 BGSe-OPA 的输出能量和转换效率，我们又选用了 II 类(o $\rightarrow$ e+o) KTP-OPG/OPA 作为种子光产生结构。与 BBO 晶体相比，KTP 晶体在光参量过程中角带宽较小，可以产生窄带种子光。在同样注入 1463 nm 种子光能量 150 μ J 情况下，再次测量了 BGSe-OPA 的输出能量。结果如图 5.18 所示。OPA 泵光能量 8.2 mJ 时，3.9 μ m 闲频光输出能量为 810 μ J，转换效率 9.9%。与图 5.17 相比，3.9 μ m 闲频光输出能量由 460 μ J 增长到 810 μ J，获得明显提高。

另外，在 5.2.1 节中，我们讨论了 I 类相位匹配的 BGSe-OPA，在同样采用 BBO-OPG/OPA 作为种子光产生结构的情况下，尺寸为 8 mm $\times$ 8 mm $\times$ 8.7 mm，切割角 ($\theta=54.7^\circ$, $\varphi=0^\circ$) 的 BGSe 晶体在最大泵光能量 9.1 mJ 时，获得能量 830 μ J 的 3.9 μ m 闲频光输出，转换效率 9.1%。在泵光能量 $\sim$ 8.2 mJ 下，闲频光输出能量也有 $\sim$ 800 μ J，对应转换效率 $\sim$ 9.8%。而采用 II 类相位匹配时，尺寸为 8 mm $\times$ 8 mm $\times$ 9 mm，切割角 ($\theta=45^\circ$, $\varphi=90^\circ$) 的 BGSe 晶体在 OPA 泵光能量 8.2 mJ 时，3.9 μ m 闲频光转换效率仅 5.6%。不难发现，II 类相位匹配的 3.9 μ m 产生转换效率低于 I 类相位匹配。图 5.19 为 BGSe 在 yz 主平面内的 I 类和 II 类相位匹配曲线。

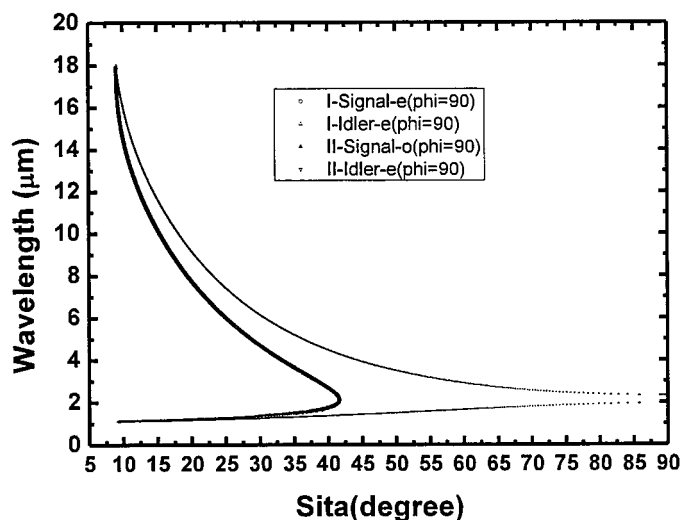


图 5.19 BGSe 在 yz 主平面内的 I 类和 II 类相位匹配曲线

5.2.4 BGSe 晶体中红外光参量产生相位匹配角修正

在前一小节中, 我们讨论了 II 类相位匹配下, 切割角 ($\theta = 45^\circ, \varphi = 90^\circ$) BGSe 晶体的 $3.9 \mu\text{m}$ 闲频光特性。但在对切割角 ($\theta = 65^\circ, \varphi = 0^\circ$) BGSe 晶体进行 II 类相位匹配的光参量放大实验时, 没有观察到明显的参量放大现象。为了找到无法实现参量放大原因, 我们首先对 BGSe 晶体的光参量产生过程进行了研究。

通过理论计算发现, 1064 nm 泵浦、I 类相位匹配产生 2128 nm 输出的相位匹配角与该 BGSe 晶体的切割角($\theta = 65^\circ, \varphi = 0^\circ$)较为接近, 理论上可以通过旋转晶体的角度实现 I 类相位匹配。光路图如图 5.20 所示。泵浦源采用波长 1064 nm , 脉宽 30 ps , 重频 10 Hz 的锁模 Nd:YAG 激光系统 (EKSPLAPL2250)。BGSe 晶体切割角为 $\theta = 65^\circ, \varphi = 0^\circ$, 尺寸为 $8 \text{ mm} \times 8 \text{ mm} \times 9 \text{ mm}$ 。通过 BGSe 晶体后产生的闲频光、信号光以及剩余的泵浦光通过分光镜实现分束输出。通过监测产生的信号光的波长, 可以推断出闲频光波长。通过旋转 BGSe 晶体的角度, 测量了 I 类相位匹配 OPG 产生信号光 $1400 - 2128 \text{ nm}$ 的相位匹配角。图 5.21 为产生的信号光的光谱图。

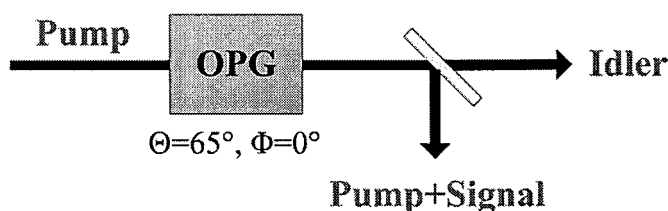


图 5.20 BGSe-OPG 光路图

根据测量产生的信号光对应的相位匹配角, 我们得到了 BGSe 晶体 I 类相位匹配曲线图 5.22, 图中包括 OPG 测得的相位匹配角, 以及 5.2.1 节和 5.2.2 节测得的 $3-5 \mu\text{m}$ 和 $6.4-11 \mu\text{m}$ 对应的相位匹配角。在 5.2.1 小节中, 我们得到了闲频光范围 $3-5 \mu\text{m}$ 的角度调谐曲线, 并且实验测量值与理论计算值符合较好。在 5.2.2 节中, 我们已经分析了在 $6.4-11 \mu\text{m}$ 波段, 实验值与理论计算值偏差较大的原因。但在本小节的信号光范围 $1400-2128 \text{ nm}$ 实验值与理论值也存在一些偏差, 进一步说明我们拟合的色散方程还需要适当的修正。

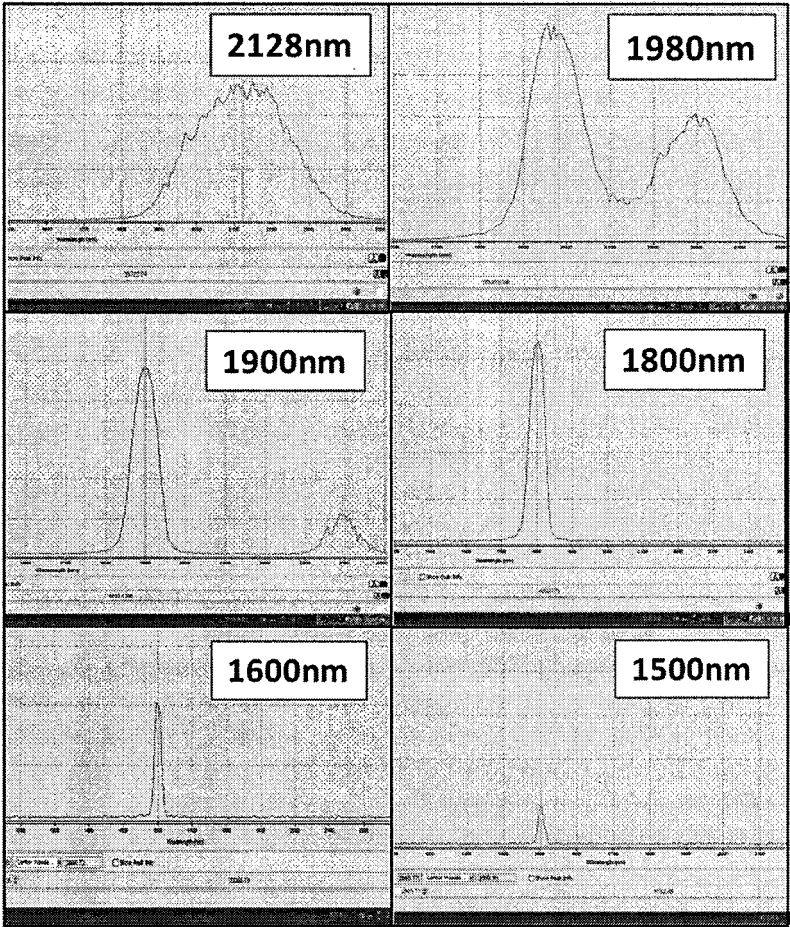


图 5.21 BGSe-OPG 产生的信号光光谱图

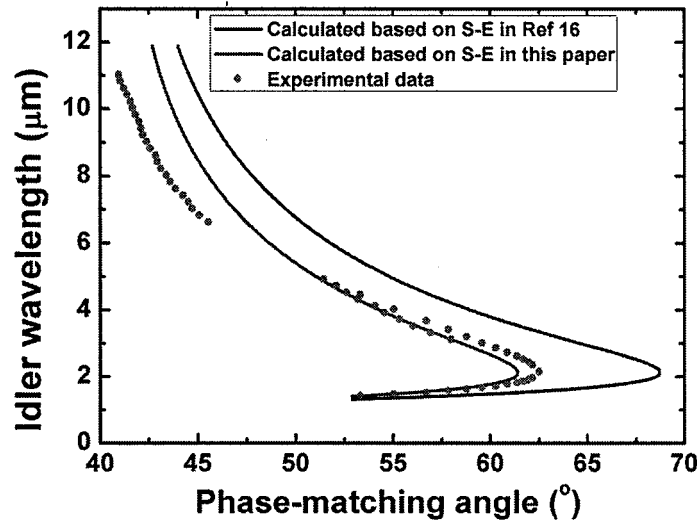


图 5.22 BGSe 晶体 I 类相位匹配图

5.3 本章小结

本章我们研究了新型非线性光学晶体 BGSe 的中红外光参量激光输出性能及应用前景。

(1) 基于 BBO-OPG/OPA 种子注入 BGSe-OPA, 实现了高效率、高峰值功率 $3.9\ \mu\text{m}$ 激光产生及 $3\sim 5\ \mu\text{m}$ 宽调谐激光输出。其中, 在泵浦能量为 $1.8\ \text{mJ}$ 时, $3.9\ \mu\text{m}$ 闲频光的光子转换效率达 56%; 在泵浦能量为 $9.1\ \text{mJ}$ 时, 获得 $3.9\ \mu\text{m}$ 激光输出能量 $830\ \mu\text{J}$, 峰值功率约 $41.5\ \text{MW}$ 。

(2) 基于 KTP-OPG/OPA 种子注入 BGSe-OPA, 实现了高效率、高峰值功率 $7.8\ \mu\text{m}$ 激光产生及 $6.4\sim 11\ \mu\text{m}$ 宽调谐激光输出。其中, 在泵浦能量为 $9\ \text{mJ}$ 时, 获得 $7.8\ \mu\text{m}$ 激光输出能量 $125\ \mu\text{J}$, 峰值功率约 $6.3\ \text{MW}$ 。证实了 BGSe 晶体在宽调谐中红外激光产生方面的优异性能及重要应用价值。

(3) 理论计算了 BGSe 晶体 I 类及 II 类中红外相位匹配特性曲线, 并实验修正了 BGSe 晶体的相位匹配角。

参考文献

- [1]. Bosenberg, W.R., L.K. Cheng and J.D. Bierlein, Optical parametric frequency conversion properties of KTiOAsO_4 . *Applied physics letters*, 1994. 65(22): p. 2765-2767.
- [2]. Fève, J., B. Boulanger, B. Ménaert, and O. Pacaud, Continuous tuning of a microlaser-pumped optical parametric generator by use of a cylindrical periodically poled lithium niobate crystal. *Optics letters*, 2003. 28(12): p. 1028-1030.
- [3]. Duan, Y., H. Zhu, Y. Ye, D. Zhang, G. Zhang, and D. Tang, Efficient RTP-based OPO intracavity pumped by an acousto-optic Q-switched Nd:YVO 4 laser. *Optics letters*, 2014. 39(5): p. 1314-1317.
- [4]. Das, R., S.C. Kumar, G.K. Samanta, and M. Ebrahim-Zadeh, Broadband, high-power, continuous-wave, mid-infrared source using extended phase-matching bandwidth in MgO:PPLN . *Optics letters*, 2009. 34(24): p. 3836-3838.
- [5]. Petrov, V., F. Rotermund and F. Noack, Generation of high-power

- femtosecond light pulses at 1 kHz in the mid-infrared spectral range between 3 and 12 μm by second-order nonlinear processes in optical crystals. *Journal of Optics A: Pure and Applied Optics*, 2001. 3(3): p. R1.
- [6]. Chatterjee, U., Development of coherent tunable source in 2 – 16 μm region using nonlinear frequency mixing processes. *Pramana*, 2014. 82(1): p. 29-38.
- [7]. Marchev, G., A. Tyazhev, V. Petrov, P.G. Schunemann, K.T. Zawilski, G. Stöppler, and M. Eichhorn, Optical parametric generation in CdSiP₂ at 6.125 μm pumped by 8 ns long pulses at 1064 nm. *Optics letters*, 2012. 37(4): p. 740-742.
- [8]. Kumar, S.C., M. Jelínek, M. Baudisch, K.T. Zawilski, P.G. Schunemann, V. Kubeček, J. Biegert, and M. Ebrahim-Zadeh, Tunable, high-energy, mid-infrared, picosecond optical parametric generator based on CdSiP₂. *Optics express*, 2012. 20(14): p. 15703-15709.
- [9]. Lippert, E., G. Rustad, G. Arisholm, and K. Stenersen, High power and efficient long wave IR ZnGeP₂ parametric oscillator. *Optics express*, 2008. 16(18): p. 13878-13884.
- [10]. Marchev, G., A. Tyazhev, V. Vedenyapin, D. Kolker, A. Yelissev, S. Lobanov, L. Isaenko, J. Zondy, and V. Petrov, Nd: YAG pumped nanosecond optical parametric oscillator based on LiInSe₂ with tunability extending from 4.7 to 8.7 μm . *Optics express*, 2009. 17(16): p. 13441-13446.
- [11]. Rotermund, F., V. Petrov, F. Noack, L. Isaenko, A. Yelissev, and S. Lobanov, Optical parametric generation of femtosecond pulses up to 9 μm with LiInS₂ pumped at 800 nm. *Applied Physics Letters*, 2001. 78(18): p. 2623-2625.
- [12]. Golubovic, B. and M.K. Reed, All-solid-state generation of 100-kHz tunable mid-infrared 50-fs pulses in type I and type II AgGaS₂. *Optics letters*, 1998. 23(22): p. 1760-1762.
- [13]. Badikov, V., D. Badikov, G. Shevyrdyaeva, A. Tyazhev, G. Marchev, V. Panyutin, F. Noack, V. Petrov, and A. Kwasniewski, BaGa₄S₇: wide-bandgap phase-matchable nonlinear crystal for the mid-infrared. *Optical Materials Express*, 2011. 1(3): p. 316-320.

- [14]. Tyazhev, A., D. Kolker, G. Marchev, V. Badikov, D. Badikov, G. Shevyrdyaeva, V. Panyutin, and V. Petrov. Mid-infrared optical parametric oscillation in the wide-bandgap BaGa₄S₇ nonlinear crystal. in Lasers and Electro-Optics (CLEO), 2012 Conference on. 2012: IEEE.
- [15]. Lin, X., G. Zhang and N. Ye, Growth and characterization of BaGa₄S₇: a new crystal for mid-IR nonlinear optics. Crystal Growth and Design, 2008. 9(2): p. 1186-1189.
- [16]. Yao, J., D. Mei, L. Bai, Z. Lin, W. Yin, P. Fu, and Y. Wu, BaGa₄Se₇: a new congruent-melting IR nonlinear optical material. Inorganic chemistry, 2010. 49(20): p. 9212-9216.
- [17]. Badikov, V., D. Badikov, G. Shevyrdyaeva, A. Tyazhev, G. Marchev, V. Panyutin, V. Petrov, and A. Kwasniewski, Phase - matching properties of BaGa₄S₇ and BaGa₄Se₇: Wide - bandgap nonlinear crystals for the mid - infrared. physica status solidi (RRL)-Rapid Research Letters, 2011. 5(1): p. 31-33.

第六章 总结

波长介于 2-20 μm 的中红外光谱在大气监测、光学遥感、光谱分析、空间光通信、环保、医疗、光电对抗等领域有着重大的应用价值,已成为国内外广泛研究的热点。基于成熟的~1 μm 近红外激光泵浦中红外非线性光学晶体实现频率下转换的光参量激光技术已成为获得精密化实用化中红外激光源的最有效方法之一。本论文围绕中红外光学参量技术进行了理论和实验研究,基于多种中红外非线性光学晶体(KTA、PPLN、BGSe 等)的中红外激光性能表征与评估,研制了系列化多波长/多波段中红外光参量激光器,取得的创新成果如下:

1. 利用皮秒光参量放大数值模型,对 KTA 晶体的中红外光参量激光放大进行了数值计算和理论分析。在考虑了泵光损耗、空间走离和群速失配等因素的影响下,模拟了不同泵浦能量下,参量激光的输出能量、时间波形以及晶体长度对参量转换效率的影响。

2. 首次研制了基于 KTA 晶体的大能量 3.5 μm 皮秒中红外光参量放大器。基于 BBO-OPG/OPA 种子激光注入 KTA-OPA,实现了大能量、高峰值功率 3.5 μm 激光产生及 2.9~3.6 μm 宽调谐激光输出。在泵浦能量为 18.4 mJ 时,获得 1.85 mJ、峰值功率约 92.5 MW 的 3.5 μm 激光输出,对应闲频光转换效率 10.1%,光子转换效率 33.1%。另外,对 KTA 晶体的光参量放大过程进行了理论模拟。结果表明,在泵浦强度较高、晶体较长的情况下,容易发生逆转换;并且,不同泵浦情况下,都存在最佳的晶体长度。最后,结合计算的脉冲波形,对泵浦消耗和逆转换过程进行了进一步的讨论。

4. 首次研制了基于大孔径 MgO:PPLN 晶体的 3.9 μm 皮秒中红外光参量激光放大器。采用 BBO-OPG/OPA 种子注入 MgO:PPLN-OPA 结构,在泵浦能量 15.2 mJ 时,获得输出能量 1.14 mJ 的 3.9 μm 中红外激光输出;进一步对比了 MgO:PPLN-OPG 与种子注入 MgO:PPLN-OPA 激光输出输出特性。

5. 首次研究了新型非线性光学晶体 BGSe 的中红外光参量激光输出性能及应用前景。理论计算了 BGSe 晶体 I 类及 II 类中红外相位匹配特性曲线,并实验修正了 BGSe 晶体的相位匹配角。基于 BBO-OPG/OPA 种子注入 BGSe-OPA,实现了高效率、高峰值功率 3.9 μm 激光产生及 3~5 μm 宽调谐激光输出。其中,在

泵浦能量为 1.8 mJ 时, 3.9 μm 闲频光的光子转换效率达 56%; 在泵浦能量为 9.1 mJ 时, 获得 3.9 μm 激光输出能量 830 μJ , 峰值功率~41.5 MW。进一步地, 基于 KTP-OPG/OPA 种子注入 BGSe-OPA, 实现了高效率、高峰值功率 7.8 μm 激光产生及 6.4~11 μm 宽调谐激光输出。其中, 在泵浦能量为 9 mJ 时, 获得 7.8 μm 激光输出能量 125 μJ , 峰值功率~6.3 MW。实验结果证实了 BGSe 晶体在宽调谐中红外激光产生方面的优异性能与重要应用价值。