



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

硕士学位论文

室温脉冲 Fe:ZnSe 中红外激光器研究

作者姓名: 孔心怡

指导教师: 吴谨 研究员

中国科学院电子所研究所

学位类别: 工程硕士

学科专业: 电子与通信工程

培养单位: 中国科学院电子学研究所

2018 年 6 月

Research on Room Temperature Pulsed Fe:ZnSe Mid-IR Laser

**A thesis submitted to
University of Chinese Academy of Sciences
in partial fulfillment of the requirement
for the degree of
Master of Engineering
in Electronic and Communication Engineering**

**By
Kong Xinyi
Supervisor: Professor Wu Jin**

Institute of Electronics, Chinese Academy of Sciences

June 2018

中国科学院大学
研究生学位论文原创性声明

本人郑重声明：所呈交的学位论文是本人在导师的指导下独立进行研究工作所取得的成果。尽我所知，除文中已经注明引用的内容外，本论文不包含任何其他个人或集体已经发表或撰写过的研究成果。对论文所涉及的研究工作做出贡献的其他个人和集体，均已在文中以明确方式标明或致谢。

作者签名： 孔心怡
日 期： 2018. 6. 1

中国科学院大学
学位论文授权使用声明

本人完全了解并同意遵守中国科学院有关保存和使用学位论文的规定，即中国科学院有权保留送交学位论文的副本，允许该论文被查阅，可以按照学术研究公开原则和保护知识产权的原则公布该论文的全部或部分内容，可以采用影印、缩印或其他复制手段保存、汇编本学位论文。

涉密及延迟公开的学位论文在解密或延迟期后适用本声明。

作者签名： 孔心怡
日 期： 2018. 6. 1

导师签名：

日 期：

郭生
2018.6.1

摘 要

3~5 μm 中红外激光处于大气传输窗口,在光谱学、医疗、激光雷达、遥感、光通信等民用领域和目标定位、红外电子对抗等军事领域具有广阔的应用前景。直接泵浦过渡金属离子(TM^{2+})掺杂 II-VI 族化合物晶体可实现中红外激光输出,是实现高能、宽调谐中红外激光输出的重要途径。其中掺 Fe^{2+} 离子 ZnSe 晶体($\text{Fe}:\text{ZnSe}$ 晶体)中红外激光在材料特性、转换效率方面具有明显优势,尤为受到广泛关注。由于存在强烈的声子猝灭, Fe^{2+} 在 ZnSe 晶体中的荧光寿命在室温时仅有 370 ns,采用目前常用的固体激光泵浦源无法实现室温高能 $\text{Fe}:\text{ZnSe}$ 激光输出。本文采用自制的放电引发非链式脉冲 HF 激光器作为泵浦源,对室温 $\text{Fe}:\text{ZnSe}$ 激光特性进行初步研究。

在 $\text{Fe}:\text{ZnSe}$ 晶体方面,介绍了 $\text{Fe}:\text{ZnSe}$ 晶体物理特性、 Fe^{2+} 能级结构和上能级寿命、 $\text{Fe}:\text{ZnSe}$ 晶体光谱特性和 $\text{Fe}:\text{ZnSe}$ 晶体制备方法。

在泵浦源方面,主要针对放电引发非链式脉冲 HF 激光器的预电离结构、气体组分、气压、电容比(C_p/C_s)参数等进行了优化,并改进了激光器谐振腔结构。获得了 400 mJ 的脉冲 HF 激光输出,为后续的 $\text{Fe}:\text{ZnSe}$ 激光器的实验研究奠定了基础。

利用自制的非链式脉冲 HF 激光器作为泵浦源,分别采用两块不同的 $\text{Fe}:\text{ZnSe}$ 晶体样品作为增益介质,在室温条件下开展 $\text{Fe}:\text{ZnSe}$ 激光特性实验研究。样品 1 为国内热扩散法制备的 $\text{Fe}:\text{ZnSe}$ 晶体,样品 2 为进口热扩散法制备的 $\text{Fe}:\text{ZnSe}$ 晶体。实验发现随着泵浦光能量密度的增大, $\text{Fe}:\text{ZnSe}$ 晶体对泵浦光的吸收率减小。谐振腔长度和泵浦光斑大小对激光输出影响不大。激光输出能量和效率随泵浦斜入射角度的减小而增大。采用 3° 的斜入射角度泵浦晶体样品 1 得到了 78.8 mJ 的 $\text{Fe}:\text{ZnSe}$ 激光输出,输出激光能量相对于晶体吸收泵浦光能量的斜率效率为 28.8%。泵浦晶体样品 2 得到了 65 mJ 的 $\text{Fe}:\text{ZnSe}$ 激光输出,输出激光能量相对于晶体吸收泵浦能量的斜率效率为 37%。最后,针对热扩散法制备的 $\text{Fe}:\text{ZnSe}$ 晶体在现有泵浦方案中的缺陷,设计了横向泵浦脉冲 $\text{Fe}:\text{ZnSe}$ 激光器。

关键词: 脉冲 $\text{Fe}:\text{ZnSe}$ 激光; 室温; 非链式脉冲 HF 激光; 中红外激光

Abstract

Recently, lasers in mid-infrared (Mid-IR) wavelength region are of great interest. Many applications such as spectroscopy, lidar, remote sense and so on are demand for such lasers. Laser technology based on transition-metal doped into II-VI crystal is an important method to generate high-power IR laser. Fe:ZnSe becomes one of the most promising laser medium. Because of phonon quenching, the upper-level lifetime of Fe^{2+} at room temperature is only 370 ns. Thus, HF laser with short duration at 3 μm is chosen as pump laser to investigate Fe:ZnSe laser at room temperature.

Theories about Fe:ZnSe is introduced, including physical characteristics of Fe:ZnSe crystal, energy structure and upper-state lifetime of Fe^{2+} ions in II-VI compounds, absorption spectra of Fe:ZnSe crystal, the technology of growing Fe:ZnSe crystal.

HF laser is researched by experiments. The pre-ionization configuration, gas component, voltage and capacitor are optimized. The configuration of HF laser is also improved. A pulse HF laser with 400 mJ output energy is demonstrated.

Pumped by HF laser, a pulse Fe:ZnSe laser is set up. Two samples are investigated. With pump energy density increasing, the absorptivity of Fe:ZnSe crystal decreases. Cavity length and pump spot size have little influence on laser output. By decreasing the angle between pump laser and cavity axis, output energy and efficiency increase. With the Fe:ZnSe crystal position at focal point of lens and pumping at 3° respect to the optical axis, a pulse Fe:ZnSe laser is achieved. For crystal sample 1, the maximum output energy is 78.8 mJ with slope efficiency 28.8%. For crystal sample 2, the maximum output energy is 65 mJ with slope efficiency 37%. Finally, due to the problems brought by pump solution, a tranverse pump solution is came up with.

Key Words: Pulse Fe:ZnSe Laser; Room-temperature; Non-chain Pulsed HF Laser; Mid-infrared Lase

目 录

第 1 章 绪论	1
1.1 研究背景和意义	1
1.2 Fe:ZnSe 激光器国内外研究进展	2
1.2.1 国外研究进展	2
1.2.2 国内研究进展	6
1.3 本论文的研究意义和工作	8
1.4 本论文的内容安排	8
第 2 章 Fe:ZnSe 晶体光学特性及制备方法	11
2.1 ZnSe 晶体结构及其基本物性	11
2.2 Fe:ZnSe 晶体能级结构	12
2.3 Fe:ZnSe 晶体光谱特性	14
2.4 Fe:ZnSe 晶体样品透过率的测量	14
2.4.1 Fe:ZnSe 晶体样品透过率光谱测试方法	14
2.4.2 Fe:ZnSe 晶体样品吸收光谱	15
2.5 Fe^{2+} 在 ZnSe 晶体中的上能级寿命	17
2.6 Fe:ZnSe 晶体制备	17
2.6.1 Fe:ZnSe 晶体制备方法	17
2.6.2 Fe:ZnSe 晶体样品的制备	18
2.6.3 铁离子浓度的测试方法	19
2.7 本章小结	20
第 3 章 非链式脉冲 HF 激光泵源优化	21
3.1 实验装置	21
3.1.1 实验原理与装置	21
3.1.2 预电离结构的优化	22
3.2 气体组分对激光输出能量的影响	24
3.3 峰化电容对输出激光的影响	26
3.4 激光脉冲特性	27

3.5 谐振腔结构的优化	29
3.6 本章小结	30
第 4 章 室温脉冲 Fe:ZnSe 激光器实验研究	31
4.1 实验装置	31
4.2 泵浦能量密度对激光输出的影响	32
4.2.1 泵浦能量密度对晶体吸收的影响	32
4.2.2 泵浦能量密度对激光输出能量的影响	34
4.3 激光器腔长对激光输出的影响	35
4.4 泵浦光斜入射角度对激光输出的影响	36
4.5 脉冲激光特性	36
4.6 横向泵浦 Fe:ZnSe 激光器的设计	42
4.7 本章小结	45
第 5 章 总结	47
参考文献	49
致 谢	53
作者简历及攻读学位期间发表的学术论文与研究成果	55

图目录

图 1.1 首个 Fe:ZnSe 激光器实验装置	2
图 1.2 Kernal 等人的 Fe:ZnSe 激光器实验装置	3
图 1.3 Frolov 等人的 Fe:ZnSe 激光器实验装置	5
图 2.1 闪锌矿 ZnSe 结构	11
图 2.2 Fe^{2+} 在正四面体场和自旋轨道耦合共同作用下的能级图	13
图 2.3 Fe:ZnSe 晶体吸收和发射光谱	14
图 2.4 傅里叶红外光谱仪的结构原理图	15
图 2.5 Nicolet iS50 FT-IR 光谱仪	15
图 2.6 Fe:ZnSe 晶体样品 1 的透过率曲线	16
图 2.7 Fe:ZnSe 晶体样品 2 的透过率曲线	16
图 2.8 Fe^{2+} 在基质材料 ZnSe 中上能级寿命随温度的变化	17
图 2.9 双温区电阻炉结构图	19
图 2.10 圆柱型 ZnSe 晶体示意图	20
图 3.1 非链式脉冲 HF 激光器结构示意图	22
图 3.2 电容耦合的双边火花针预电离器结构示意图	23
图 3.3 E/P 值随 SF_6 比例的变化	26
图 3.4 激光脉冲特性测量装置示意图	27
图 3.5 不同气压下的激光脉冲特性	28
图 3.6 不同充电电压时激光脉冲峰值功率随总气压的变化	29
图 3.7 HF 激光器半外腔谐振腔结构简图	30
图 4.1 Fe:ZnSe 激光器的实验装置图	31
图 4.2 典型的 HF 激光脉冲波形	32
图 4.3 Fe:ZnSe 晶体透过率测量装置	34
图 4.4 Fe:ZnSe 晶体透过率随泵浦能量密度的变化	34
图 4.5 晶体样品 1 的激光输出能量随泵浦能量的变化	35
图 4.6 晶体样品 2 的激光输出能量随泵浦能量的变化	35
图 4.7 Fe:ZnSe 晶体样品 1 的激光能量随吸收泵浦能量的变化关系	37

图 4.8 Fe:ZnSe 晶体样品 2 的激光能量随吸收泵浦能量的变化关系	38
图 4.9 脉冲特性测量装置.....	39
图 4.10 Fe:ZnSe 晶体样品 1 产生的激光脉冲波形	39
图 4.11 Fe:ZnSe 晶体样品 2 产生的激光脉冲波形	40
图 4.12 Fe:ZnSe 晶体样品 1 产生的激光三维强度分布	41
图 4.13 Fe:ZnSe 晶体样品 2 产生的激光二维强度分布	41
图 4.14 Fe:ZnSe 晶体样品 1 产生的激光光谱	42
图 4.15 Fe:ZnSe 晶体样品 2 产生的激光光谱	42
图 4.16 典型双表面热扩散法制备的 Fe:ZnSe 晶体的 Fe^{2+} 离子浓度分布情况	43
图 4.17 横向泵浦 Fe:ZnSe 激光器示意图	44

表目录

表 1.1 Fe:ZnSe 激光技术的主要研究进展	7
表 2.1 ZnSe 晶体物理性能和热力学性能	12
表 2.2 Fe^{2+} 在 ZnSe 中的基态劈裂	13
表 3.1 d 对主放电和激光输出的影响	23
表 3.2 C_y 对激光输出能量及起弧电压的影响	24
表 3.3 不同电压下和不同 C_2H_6 分压下激光输出能量的变化($C_s=26 \text{ nF}$)	25
表 3.4 不同电压下激光输出能量随气体总气压的变化($C_s=58.7 \text{ nF}$)	25
表 3.5 不同电压下激光输出能量随峰化电容的变化	27
表 4.1 Fe:ZnSe 激光输出能量随谐振腔长度的变化	36
表 4.2 Fe:ZnSe 激光输出能量随泵浦光斜入射角度的变化	36

第1章 绪论

1.1 研究背景和意义

3~5 μm 中红外激光正好处于大气传输窗口, 是大气主要污染物(SO_2 、 N_2O 等)和碳氢化合物(CH_4 、 C_2H_6 、 C_3H_8 等)的吸收带, 在大气环境监测和天然气管道泄漏监测方面有广阔的应用前景。当激光波长与某种气体分子的吸收线中心重合时, 激光束在传播过程中由于该种分子产生的共振吸收而强烈衰减, 由衰减的程度可以确定污染气体分子和碳氢化合物的浓度。天然气和石油管道的泄漏探测看似非常简单, 其实是非常复杂和重要的工程。任何泄漏都有可能造成巨大的事故和损失, 确定管道是否泄漏的最好方法是通过激光来探测管道周围碳氢化合物的浓度。为了提高探测精度, 通常采用差分吸收方法, 中红外差分吸收雷达作为探测大气污染物的有效手段, 要求中红外激光源有较高的脉冲能量和峰值功率, 且能重复频率运转。由于缺乏合适的中红外激光源, 一直无法有效发挥作用。3~5 μm 中红外激光除了在光谱学、遥感、医疗、环保等诸多民用领域有重要的应用潜力外, 在爆炸物的远程探测、光电对抗等军用领域也有广阔的应用前景^[1~3]。

目前中红外固体激光器, 主要包括量子级联激光器^[4]和采用非线性光学变换技术的中红外光学参量振荡器(OPO)^[5]和中红外差频振荡器(DFG)^[6~8]。这些技术由于内在的缺陷, 使得相应的激光源存在可靠性差、结构复杂、造价昂贵的缺点, 且有些关键技术指标(如输出激光能量、峰值功率、波长调谐范围)无法满足实际应用需求, 比如 OPO 中红外激光最高输出能量仅为几个毫焦。

通过直接泵浦过渡金属离子(TM^{2+})掺杂 II-VI 族化合物晶体实现中红外激光输出, 可以克服间接泵浦技术途径的缺点, 是实现高能、宽调谐中红外激光输出的重要途径。II-VI 族化合物晶体与其他氧化物、氟化物激光晶体相比, 有更宽的禁带宽度, 在中红外和远红外区域均具有良好的透过率, 掺杂过渡金属后具有更好的物理特性和化学特性。II-VI 族化合物晶体通常为正四面体结构, 和典型的八面体配位相比, II-VI 族化合物晶体在掺杂位有更小的晶体场劈裂, 使得掺杂物的跃迁发出的光波处在中红外波段。II-VI 族化合物晶体基质材料主要包括二元硫化物(如 ZnSe 、 ZnS 、 CdSe 、 CdS 、 ZnTe)和三元硫化物(如 CdMnTe 、 CdZnTe 、 ZnSSe)。1999 年美国劳伦斯利弗莫尔国家实验室(LLNL)证明了过渡金属(TM^{2+})

掺杂 II-VI 族化合物激光技术的可行性^[9~10]。

直接泵浦过渡金属掺杂 II-VI 族化合物晶体激光技术具有如下优点：(1) 激光波长调谐范围宽；(2) 由于吸收带较宽，泵浦源选择范围较大；(3) 增益横截面大(10^{-18}cm^2)；(4) 激发态吸收和上转换过程短；(5) 具有高的荧光量子效率；(6) 基质晶体在中红外波段具有良好的透过率；(7) 基质晶体具有良好的导热性能；(8) 与其它常见的间接泵浦方式相比，整个激光系统结构相对简单、紧凑。

近年来，光泵浦 Cr^{2+} 掺杂 II-VI 族化合物晶体的激光技术取得了快速发展，但输出激光波长为 $2\sim 3\text{ }\mu\text{m}$ ，无法覆盖大家感兴趣的中红外波段^[11~15]。II-VI 族硫化物晶体基质材料经过掺杂合适浓度的 Fe^{2+} 后均可实现 $3.5\sim 5.5\text{ }\mu\text{m}$ 中红外激光输出。最有前途的掺 Fe^{2+} 离子 ZnSe 晶体(Fe:ZnSe 晶体)中红外激光在材料特性、转换效率方面具有明显优势，最近受到广泛关注^[16~36]。Fe:ZnSe 激光器是实现高能中红外激光输出的重要途径，在室温条件下发展 Fe:ZnSe 激光器在遥感和环保等领域的应用具有广阔的前景。

1.2 Fe:ZnSe 激光器国内外研究进展

1.2.1 国外研究进展

1999 年 12 月 Adams 等人采用波长 $2.698\text{ }\mu\text{m}$ 、脉冲宽度 $48\text{ }\mu\text{s}$ 、重复频率 100 Hz 的 Er:YAG 激光器作为泵浦源，在低温条件下($15\text{ K}\sim 180\text{ K}$)首次实现了单晶 Fe:ZnSe 的脉冲激光输出，实验装置如图 1.1 所示。通过温度变化实现了 $3.98\sim 4.54\text{ }\mu\text{m}$ 的波长调谐，在 15 K 时中心波长为 $3.980\text{ }\mu\text{m}$ ，线宽为 7 nm 。在 130 K 时，实现了 $12\text{ }\mu\text{J}$ 的最大能量输出，光光转换效率为 8% ^[17]。

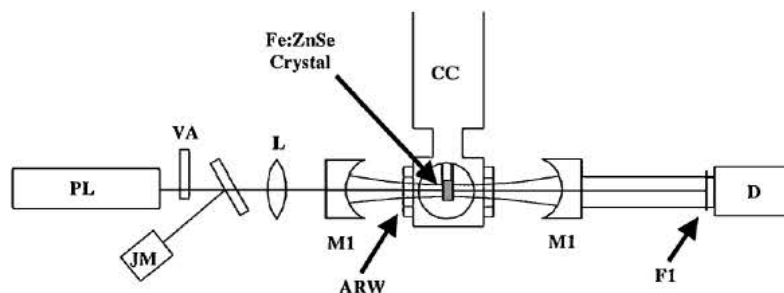


图 1.1 首个 Fe:ZnSe 激光器实验装置

Figure 1.1 Schematic of the Fe:ZnSe laser system by Adams

Fe:ZnSe 首次实现激光输出引起了学界的广泛关注。2004 年, Akimov 等人 在 Adams 的设计基础上进行了改进。在 77 K 的温度条件下, 对布儒斯特角切割 的 Fe:ZnSe 单晶进行研究。采用波长 $2.94\ \mu\text{m}$ 、脉宽 $300\ \mu\text{s}$ 、能量 $0.6\ \text{J}$ 的自由运 转 Er:YAG 激光器作为泵浦源, 实现了最大单脉冲能量为 $130\ \text{mJ}$ 的脉冲 Fe:ZnSe 激光输出, 光光转换效率为 22%。他们还利用在谐振腔内插入 CaF_2 棱镜的方法, 实现了 $3.77\sim 4.40\ \mu\text{m}$ 的波长调谐^[18]。相比 1999 年 Adams 等人的实验, 激光输出 能量和效率都有了很大的提升。2005 年, Voronov 等人采用波长 $2.94\ \mu\text{m}$ 、脉宽 $200\ \mu\text{s}$ 、能量 $0.733\ \text{J}$ 的 Er:YAG 激光器作为泵浦源, 在 85 K 时实现了 $187\ \text{mJ}$ 的 脉冲 Fe:ZnSe 激光输出, 光光转换效率为 26%^[19]。2012 年, Fedorov 等人采用波 长 $2.94\ \mu\text{m}$ 、脉宽 $250\ \mu\text{s}$ 、能量 $1.3\ \text{J}$ 的 Er:YAG 激光器作为泵浦源, 在 77 K 时 获得了 $420\ \text{mJ}$ 的脉冲 Fe:ZnSe 激光输出, 光光转换效率为 32%, 波长为 $4.14\ \mu\text{m}$ ^[20]。

Fe:ZnSe 晶体在室温时存在严重的声子猝灭现象, 使得其荧光寿命仅有 $370\ \text{ns}$ 。由于缺乏合适的窄脉宽泵浦源, Fe:ZnSe 激光器的研究长期以来仅限于低温 条件下。直到 2005 年, Kernal 等人才首次在室温下实现了 Fe:ZnSe 激光输出。 他们采用波长 $1.06\ \mu\text{m}$ 、脉宽 $7\ \text{ns}$ 的调基频 Q 开关 Nd:YAG 激光经 D_2 拉曼池, 输出波长 $2.92\ \mu\text{m}$ 、脉宽 $20\ \text{ns}$ 的二阶斯托克信号作为泵浦光, 按如图 1.2 所示的 装置进行实验, 在室温时实现了约为 $1\ \mu\text{J}$ 的 Fe:ZnSe 激光输出, 光光转换效率仅 为 0.01%, 并利用光栅谐振腔实现了 $3.9\sim 4.8\ \mu\text{m}$ 的激光调谐^[21]。2008 年, Ilichev 等人采用波长 $2.94\ \mu\text{m}$ 、脉宽 $100\ \text{ns}$ 、能量 $15\ \text{mJ}$ 的 Er:YAG 激光器作为泵浦源, 在室温条件下获得了 $1\ \text{mJ}$ 的 Fe:ZnSe 超荧光, 光光转换效率为 7%^[22]。

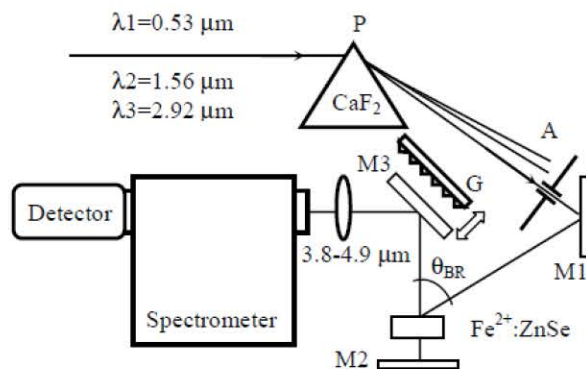


图 1.2 Kernal 等人的 Fe:ZnSe 激光器实验装置

Figure 1.2 Schematic of the Fe:ZnSe laser system by Kernal

2010 年 Kozlovsky 等人分别在不同温度条件下,进行了脉冲 Fe:ZnSe 激光器的研究。在 77 K 时采用波长 $2.94\ \mu\text{m}$ 、脉宽 $200\ \mu\text{s}$ 、能量 750 mJ 的脉冲 Er: YAG 激光器作为泵浦源,获得了 187 mJ 的 Fe:ZnSe 激光输出,光光转换效率为 25%,波长为 $3.77\ \mu\text{m}\sim 4.40\ \mu\text{m}$; 在室温条件下采用波长 $2.94\ \mu\text{m}$ 、脉宽 50 ns、能量 30 mJ 的脉冲 Er: YAG 激光器作为泵浦源,获得 6 mJ 的 Fe:ZnSe 激光输出,光光转换效率为 20%,波长为 $3.95\ \mu\text{m}\sim 5.05\ \mu\text{m}$ ^[23]。

2011 年, Myoung 等人采用波长 $2.8\ \mu\text{m}$ 、脉宽 20 ns、能量 33 mJ 的脉冲 Er:Cr:YAG 激光器作为泵浦源,在 236 K~300 K 的温度下实现了 Fe:ZnSe 激光输出^[24]。在 236 K 时, Fe:ZnSe 激光中心波长为 $4.3\ \mu\text{m}$,最大激光能量为 4.7 mJ,斜率效率为 19%; 在 300 K 时, Fe:ZnSe 激光中心波长为 $4.37\ \mu\text{m}$,最大激光能量为 3.6 mJ,斜率效率为 16%。输出激光光强分布呈高斯分布, $M^2=2.6$ 。2011 年, Doroshenko 等人在室温下分别对浮区法和布里奇曼法制备的 Fe:ZnSe 晶体进行激光特性研究。采用波长 2937 nm、脉宽 300~350 ns、能量 15 mJ 的 Er:YAG 调 Q 激光器作为泵浦源,实现了脉宽为 150~200 ns、能量为 1.2~1.3 mJ 的 Fe:ZnSe 激光输出,斜率效率分别为 27% (浮区法晶体) 和 23% (布里奇曼法晶体),并利用 CaF_2 棱镜实现了 $4\sim 5\ \mu\text{m}$ 的激光波长调谐^[25]。

2013 年, Frolov 等人采用波长 $2.94\ \mu\text{m}$ 、脉宽 $750\ \mu\text{s}$ 、能量 8 J 的自由运转 Er:YAG 激光器作为泵浦源,在 85 K~285 K 的温度下进行了研究。实验装置如图 1.3 所示。与 Adams 等人的方案不同,他们采用了以一定角度斜入射的泵浦方案代替了垂直入射泵浦方案。由于泵浦光波长与输出激光的波长均属于中红外光,斜入射泵浦方案无疑是针对镜片镀膜难的问题提出了一个有效的解决方案。在 85 K 时,最大输出能量为 2.1 J,光光转换效率为 26%。但在同样的泵浦条件下,295 K 时输出激光的最大能量仅为 42 mJ,光光转换效率为 0.5%^[26]。2016 年他们采用波长 $2.94\ \mu\text{m}$ 、脉宽 1.2ms、能量 28 J 的自由运转 Er:YAG 激光器作为泵浦源,在 85 K 时获得了 10.6 J 的 Fe:ZnSe 激光输出,光光转换效率为 37%。这是迄今为止报道的 Fe:ZnSe 激光器的最高能量输出^[27]。

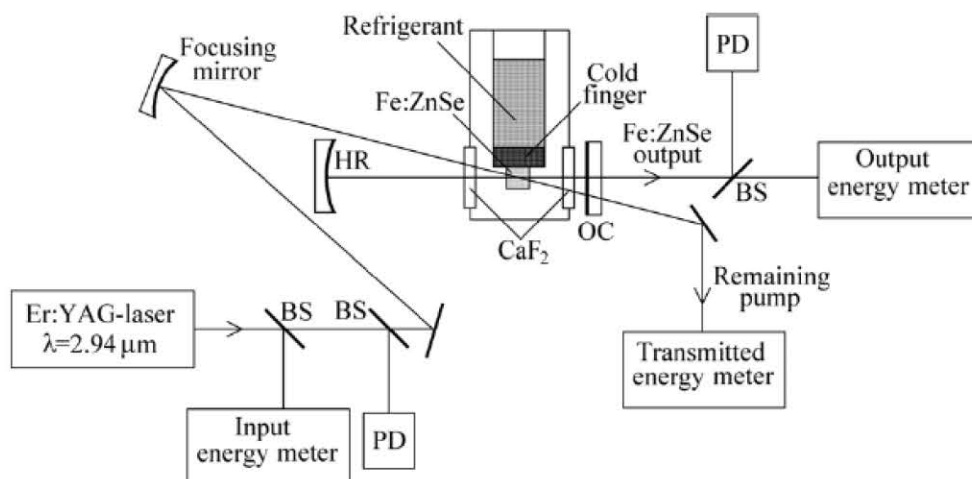


图 1.3 Frolov 等人的 Fe:ZnSe 激光器实验装置

Figure 1.3 Schematic of the Fe:ZnSe laser system by Frolov

在室温条件下, 上述脉冲 Fe:ZnSe 激光器的研究均受到窄脉宽固体激光泵浦源能量的限制, 获得的 Fe:ZnSe 激光最高能量仅为 6 mJ。在 2014 年, Velikanov 等人提出了新型泵浦源—放电引发的非链式脉冲 HF 激光器泵浦 Fe:ZnSe 激光器。他们采用脉宽 130 ns、能量 1 J 的非链式脉冲 HF 激光器作为泵浦源, 在室温条件下实现了 36 mJ 的超荧光输出, 光光转换效率为 3%, 波长为 4600~4700 nm^[28]。Firsov 等人同年采用波长 2.6~3.1 μm、脉宽 130 ns、能量 820 mJ 的非链式脉冲 HF 激光器泵浦多晶 Fe:ZnSe, 在室温条件下得到单脉冲能量为 192 mJ, 光光转换效率为 23%, 斜率效率为 29%^[29]。2016 年 Dormidonov 等人在室温条件下采用脉宽 140 ns 的非链式脉冲 HF 激光器泵浦 Fe:ZnSe 晶体, 实现了单脉冲能量 1.43 J 的 Fe:ZnSe 激光输出, 相对于晶体吸收能量的斜率效率为 53%^{错误!未找到引用源。}。2017 年 Velikanov 等人在室温条件下采用能量 6.2 J 的非链式 HF 激光器泵浦 Fe²⁺掺杂浓度为 $(7\sim9)\times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ 的 Fe:ZnSe 晶体, 实现了单脉冲能量 1.67 J 的脉冲 Fe:ZnSe 激光输出, 输出能量相对于泵浦能量的斜率效率为 27%, 相对于吸收能量的斜率效率为 43%。在 20 Hz 重复频率运转时实现了平均功率 20 W 的 Fe:ZnSe 激光输出^[31]。室温 Fe:ZnSe 激光器的激光能量得到大幅提升。

发展连续波 Fe:ZnSe 激光器的主要障碍是缺乏 3 μm 连续波泵浦源。2008 年 Voronov 等人首次利用 Fe:ZnSe 作为增益介质, 实现了连续激光输出。他们在 77 K 时, 利用波长 2.97 μm、功率 0.6 W 的 Cr: CdSe 激光器作为泵浦源, 实现了功

率为 160 mW 的 Fe:ZnSe 激光输出, 光光转换效率为 27%, 波长为 4.04~4.08 μm , 泵浦阈值为 18 mW^[32]。2010 年 Kozlovsky 等人采用波长 2.97 μm 、功率 0.6 W 的连续 Cr: CdSe 激光器泵浦单晶 Fe:ZnSe, 在 80 K 时获得了 0.2 W 的连续 Fe:ZnSe 激光输出, 效率为 33%, 波长为 4.1 μm 。2012 年 Evans 等人采用两台波长为 2.94 μm 的 Er:YAG 激光器同时泵浦 Fe:ZnSe 多晶, 在 77 K 的温度时获得了 840 mW 的 Fe:ZnSe 激光输出^[33]。2013 年 Fedorov 等人采用 5.5 W 的 Cr:ZnSe 激光器作为泵浦源, 在 77 K 的温度时获得了 1.5 W 的 4.1 μm 连续 Fe:ZnSe 激光输出, 这也是目前有报道的连续 Fe:ZnSe 激光器的最高能量指标^[34]。2014 年 Evans 等人在 77 K 的温度时采用波长 3.936 μm 、功率 3 W 的连续 Er:YAG 激光器作为泵浦源, 在谐振腔内插入半导体可饱和吸收镜作为被动调 Q 开关, 实现了重复频率 850 kHz、平均功率 515 mW 的 Fe:ZnSe 激光输出。波长为 4.045 μm , 脉宽为 64 ns, 峰值能量大于 600 nJ, 峰值功率大于 8.3 W^[35]。由于随着温度的提高, 形成激光所需的功率阈值大幅提升, 目前暂未有室温连续 Fe:ZnSe 激光输出的报道。

1.2.2 国内研究进展

国内对 Fe:ZnSe 激光器的研究仍处于起步阶段。2015 年哈尔滨工业大学姚宝权等人在室温条件下, 采用波长 2.89 μm 、功率 1.43 W、脉冲重复频率 1 kHz 的 ZnGeP₂ 光学参量振荡器泵浦铁离子掺杂浓度 $3.43 \times 10^{18} \text{cm}^{-3}$ 的 Fe:ZnSe 晶体, 获得了平均功率为 53 mW 的 Fe:ZnSe 激光输出, 斜率效率为 4.8%, 脉宽为 25 ns, 中心波长为 4.45 μm ^[36]。

2015 年中国科学院电子学研究所柯常军等人在室温条件下, 采用波长 2.6~3.1 μm 、脉宽 300 ns、单脉冲能量 100 mJ 的非链式 HF 激光器泵浦铁离子掺杂浓度 $3 \times 10^{19} \text{cm}^{-3}$ 的 Fe:ZnSe 晶体, 获得了 15 mJ 的 Fe: ZnSe 脉冲激光输出。光光转换效率为 15%^[37]。表 1.1 中列出了近年来 Fe:ZnSe 激光技术的主要研究进展情况。

表 1.1 Fe:ZnSe 激光技术的主要研究进展

Table 1.1 The state of Fe:ZnSe laser

年份	作者	泵浦源 μm	温度 K	Fe:ZnSe 激光器参数			
				类型	能量/ 功率	波长/nm	效率
1999	Adams	Er:YAG@2.7	5~180	Pulse	12 μJ	3980~4540	8%
2004	Akimov	Er:YAG@2.94	77	Pulse	130 mJ	3770~4400	22%
2005	Voronov	Er:YAG@2.94	85	Pulse	187 mJ	4000~4170	26%
2005	Kernal	Nd:YAG@2.92	RT	Pulse	1 μJ	3900~4800	0.01%
2006	Akimov	Er:YAG@2.94	RT	Pulse	370 μJ	3950~5050	4%
2008	Ilichev	Er:YAG@2.94	RT	SL	1 mJ	4600~4700	7%
2008	Voronov	Cr: CdSe@2.97	77	CW	160 mW	4040~4080	27%
2010	Doroshenko	Er:YAG@2.94	RT	Pulse	580 μJ	4468	2~4%
2010	Kozlovsky	Cr: CdSe@2.97	80	CW	0.2 W	4100	33%
		Er:YAG@2.94	RT	Pulse	6 mJ	3950~5050	20%
2011	Doroshen	Er:YAG@2.94	RT	Pulse	1.3 mJ	4460	9%
		Er:YAG @2.94	RT	Pulse	1.15 mJ	4800	8%
2011	Myoung	Er:Cr:YAG@2.8	RT	Pulse	3.6 mJ	4370	11%
2012	Fedorov	Er:YAG@2.94	77	Pulse	420 mJ	4140	32%
2012	Evans	Er:YAG@2.94	77	CW	840 mW	4140	28%
2013	Fedorov	Cr:ZnSe@2.7	77	CW	1.5 W	4100	27%
2013	Frolov	Er:YAG @2.94	85	Pulse	2.1 J	4100	26%
		Er:YAG @2.94	RT	Pulse	42 mJ	4100	0.5%
2014	Evans	Er:YAG@2.94	77	Pulse	0.6 μJ	4045	21%
2014	Velikanov	HF@2.6~3.1	RT	SL	30 mJ	4600~4700	3%
2014	Firsov	HF@2.6~3.1	RT	Pulse	192 mJ	——	29%
2015	姚宝权	ZnGeP ₂ @2.89	RT	Pulse	53 μJ	4450	4.8%
2015	柯常军	HF@2.6~3.1	RT	Pulse	15 mJ	——	15%

2016	Velikanov	HF@2.6~3.1	RT	Pulse	1.2 J	——	25%
2017	Velikanov	HF@2.6~3.1	RT	Pulse	1.67 J	——	27%

SC-single crystalline; RT-room-temperature; SL-super luminescence

1.3 本论文的研究意义和工作

作为中红外波段极具潜力的激光源，Fe:ZnSe 激光正处于发展阶段。由于 Fe:ZnSe 晶体存在强烈的多声子猝灭效应， Fe^{2+} 的荧光寿命随温度升高迅速下降，在低温时 Fe^{2+} 荧光寿命为数十 μs ，常温时 Fe^{2+} 荧光寿命仅为 370 ns^[38]。对于宽脉冲泵浦光源，为形成高效激射，必须对激光晶体进行制冷。由于 Fe:ZnSe 激光器工作在低温条件下，必然增加制冷装置，增加了器件的复杂性，也给应用带来了不便。发展实用的室温 Fe:ZnSe 激光器目前面临两个关键问题的挑战：(1) 高光学质量 Fe:ZnSe 晶体的制备；(2) 3 μm 波段高效高能窄脉冲泵浦源。公开报道的 3 μm 波段窄脉冲泵浦源主要集中于各类固体激光源，主要包括量子级联激光器、光学参量振荡器和调 Q 激光器等。目前这类泵浦源的最高能量为 35 mJ，在室温时采用这类泵浦源获得的 Fe:ZnSe 激光最高能量为 6 mJ。因此，寻求高能窄脉宽的新型泵浦源是实现室温 Fe:ZnSe 激光高效输出的关键。

放电引发的非链式脉冲 HF 激光器的波长为 2.6~3.1 μm ，恰好覆盖了 Fe:ZnSe 晶体的吸收峰值波长。脉宽为 80~300 ns，小于室温时 Fe^{2+} 的上能级寿命(370 ns)。非链式脉冲 HF 激光器单脉冲能量可达焦耳量级甚至百焦耳量级，远大于 Fe:ZnSe 晶体的损伤阈值^[39,40]。另外，非链式脉冲 HF 激光器可重复频率运转^[41,42]，是室温高能 Fe:ZnSe 激光器的理想泵浦源。由于中科院电子所放电引发的非链式脉冲 HF 激光技术方面有很好的研究基础，因此，本论文拟选用自制的放电引发非链式脉冲 HF 激光器作为泵浦源，在室温条件下开展 Fe:ZnSe 激光特性初步研究。

1.4 本论文的内容安排

本论文的结构安排如下：

第一章：绪论。首先介绍了开展 Fe:ZnSe 激光器研究的背景及意义，国内外研究进展情况。随后总结了本文的研究意义和主要工作。

第二章：Fe:ZnSe 晶体光学特性及制备方法。首先介绍了 Fe:ZnSe 晶体的光

学特性，包括 Fe:ZnSe 晶体物理特性、Fe²⁺能级结构和上能级寿命、Fe:ZnSe 晶体光谱特性。随后介绍了晶体在中红外吸收光谱的测量方法和 Fe:ZnSe 晶体的制备方法。

第三章：非链式脉冲 HF 激光泵源优化。开展非链式脉冲 HF 激光泵源优化实验，对自制的非链式脉冲 HF 激光器进行了实验优化。主要完成了激光器预电离结构、气体组分、峰化电容等参数的优化，并改进了激光器的谐振腔结构。

第四章：室温脉冲 Fe:ZnSe 激光器的实验研究。利用自制的放电引发非链式脉冲 HF 激光器作为泵浦源，在室温条件下开展 Fe:ZnSe 激光特性的初步实验研究。对激光器的长度参数，以及泵浦能量密度和泵浦斜入射角度等泵浦参数进行了探究和优化，最终实现了高效、高能脉冲 Fe:ZnSe 激光输出。另外，针对现有纵向泵浦方案的缺陷，提出横向泵浦 Fe:ZnSe 激光器的设计方案。

第五章：总结。对本文工作进行总结，并对下一步研究工作进行展望。

第2章 Fe:ZnSe 晶体光学特性及制备方法

本章主要介绍 Fe:ZnSe 晶体的光学特性,包括 Fe:ZnSe 晶体物理特性、 Fe^{2+} 能级结构和上能级寿命、Fe:ZnSe 晶体光谱特性。随后介绍晶体在中红外吸收光谱的测量方法和 Fe:ZnSe 晶体的制备方法。

2.1 ZnSe 晶体结构及其基本物性

ZnSe 属 II-VI 族化合物,室温时为闪锌矿结构,如图 2.1 所示^[43]。初基原胞内的一个 Zn 原子与四个 Se 原子相连形成一个正四面体,每个 Se 原子也与相邻 Zn 原子形成正四面体结构,四面体相互嵌套形成空间结构。

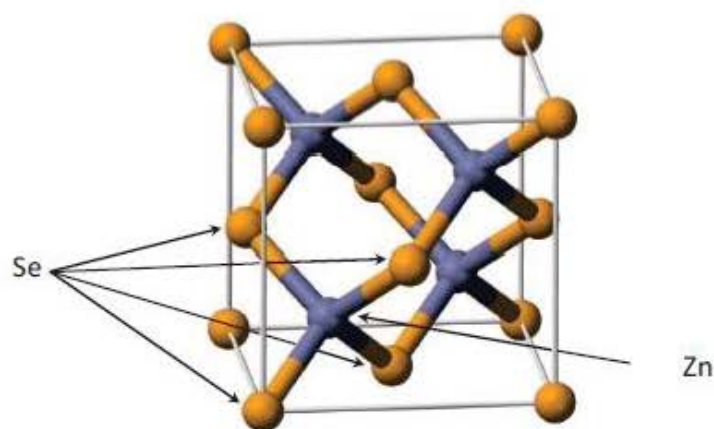


图 2.1 闪锌矿 ZnSe 结构

Figure 2.1 The zincblende unit cell and tetrahedrally coordinated Zn

ZnSe 为黄色晶体,由于很难制成大的体单晶,因此制备的 ZnSe 晶体以多晶结构为主。ZnSe 晶体物理性能和热力学性能如表 2.1 所示。可以看出,ZnSe 晶体具有较好的物理特性和热力学特性,且在红外波段有较大的透过率,是理想的红外材料之一。

表 2.1 ZnSe 晶体物理性能和热力学性能

Table 2.1 Physical and thermodynamic properties of ZnSe crystal

名称	参数
晶体结构	闪锌矿 ⁺
熔点(°C)	1526
带隙(eV)	2.698(300 K 时)
体吸收系数(cm ⁻¹) @10.6μm	0.0005
折射率的温度系数(/°C)@10.6μm	61×10 ⁻⁶
热传导率(°C/cm)	0.18
杨氏模量(dyne/cm ²)	6.85×10 ¹¹
密度(g/cm ³)	5.27
努氏硬度(kg/mm ²)	110~130

2.2 Fe:ZnSe 晶体能级结构

过渡金属离子位于元素周期表的第四周期。中性铁原子的电子结构是 $[\text{Ar}]4s^23d^6$ 。当 Fe^{2+} 离子掺杂进入 ZnSe 晶体材料时, 将直接替代 Zn^{2+} 离子成为正四面体的中心^[44]。6 个 d 层电子被紧紧地束缚在 Fe 原子核周围, Fe^{2+} 离子结构为 $[\text{Ar}]4s^03d^6$, 这种结构决定了 Fe^{2+} 离子的光学特性。由晶体场理论可知, Fe^{2+} 的基态 ^5D 在正四面体晶体场的作用下, 劈裂为轨道二重态 ^5E 和轨道三重态 $^5\text{T}_2$ 。其中 ^5E 为基态, $^5\text{T}_2$ 为激发态。Jahn 和 Teller 的理论中陈述了轨道简并的非线性模型是不稳定的。在晶体中, 如果轨道是简并的, 则晶体的空间构型不稳定, 会在振动方向上发生畸变。对于正四面体对称的 T_d 点群, 形变的趋势是由正四面体结构变成 D_{4d} 结构。对于 ^5E 能态, 畸变的趋势是由 D_{4d} 结构变为 D_{2d} 结构。结合静态 Jahn-Teller 效应, $^5\text{T}_2$ 能态在一阶自旋-轨道耦合作用下, 将进一步劈裂成为 Γ_1 、 Γ_2 和 Γ_3 。这些能带在二阶自旋-轨道耦合作用下将再次劈裂。 Γ_1 劈裂为 Γ_1 、 Γ_4' 和 Γ_5' , Γ_2 劈裂为 Γ_3 和 Γ_4 , Γ_3 转换为另一个能级 Γ_5 。 ^5E 能态在一阶自旋-轨道的作用下未发生劈裂, 在二阶自旋-轨道的作用下劈裂为五个次能级: γ^2 、 γ^5 、

γ^3 、 γ^4 和 γ^1 。如图 2.2 所示能级图为在正四面体场和自旋轨道耦合共同作用下的能级图。

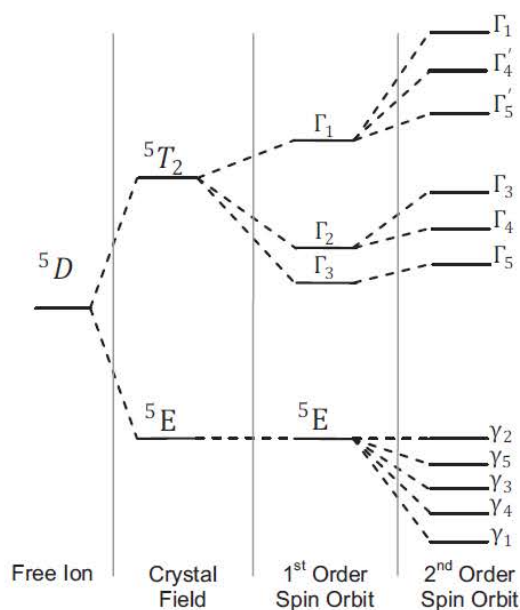


图 2.2 Fe²⁺在正四面体场和自旋轨道耦合共同作用下的能级图

Figure 2.2 Energy level of Fe²⁺ in a tetrahedral field with spin-orbit coupling

Fe²⁺在 ZnSe 中的基态 ⁵D 发生能级劈裂后，各能级的能量本征值如表 2.2 所示^[45]。

表 2.2 Fe²⁺在 ZnSe 中的基态劈裂

Table 2.2 Ground state splitting of Fe²⁺ in ZnSe

	能级	能量本征值(cm ⁻¹)
⁵ E	γ^1	0
	γ^4	15.0
	γ^3	30.2
	γ^5	48.8
	γ^2	67.9
⁵ T ₂	Γ ₅	2721.4
	Γ ₄	2918.4
	Γ ₃	2939.5
	Γ ₅ '	3197.4
	Γ ₄ '	3226.5
	Γ ₁	3258.2

2.3 Fe:ZnSe 晶体光谱特性

激光介质的吸收截面和发射截面是指导激光器件设计的重要参数，图2.3给出了 Fe^{2+} 离子在基质材料ZnSe中的以截面-波长形式反映的吸收和发射光谱^[46]。吸收截面峰值 $0.97 \times 10^{-18} \text{ cm}^2$ 位于 $3 \mu\text{m}$ 附近，发射截面峰值 $1.4 \times 10^{-18} \text{ cm}^2$ 位于 $4.3 \mu\text{m}$ 附近。

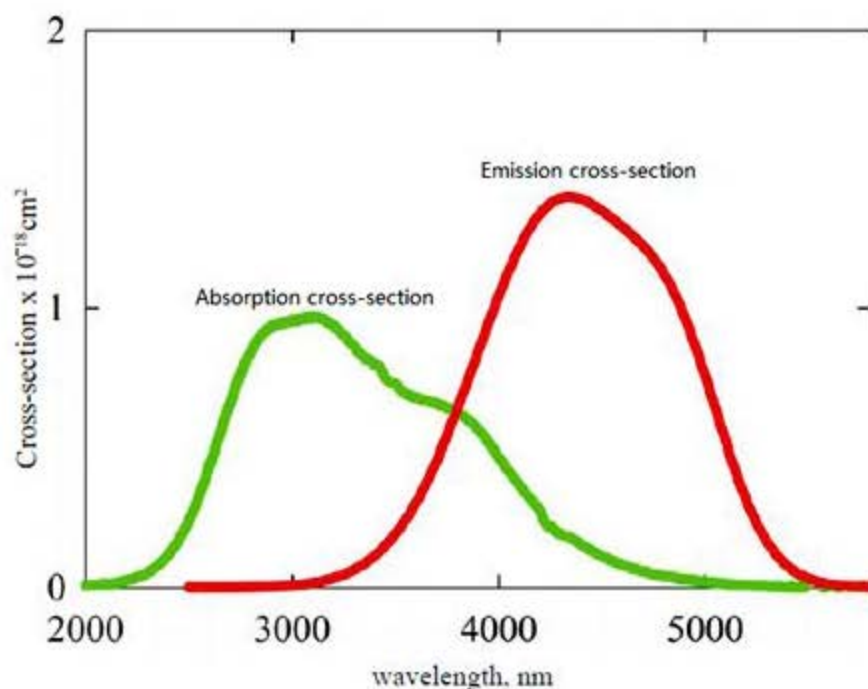


图 2.3 Fe:ZnSe 晶体吸收和发射光谱

Figure 2.3 Absorption and emission spectrum of Fe:ZnSe crystal

2.4 Fe:ZnSe 晶体样品透过率的测量

2.4.1 Fe:ZnSe 晶体样品透过率光谱测试方法

傅里叶红外光谱仪是测量光学元件吸收率和透过率的专门设备，其结构原理图如图 2.4 所示，主要由光源、干涉仪、探测器和数据处理系统组成。光源辐射经透镜后成为平行光进入干涉仪，再经由反射镜，使光束通过样品后经反射镜聚焦到探测器上。原始光谱为干涉图，计算机经过傅里叶变换后，得到以波长或波束为函数的光谱图。

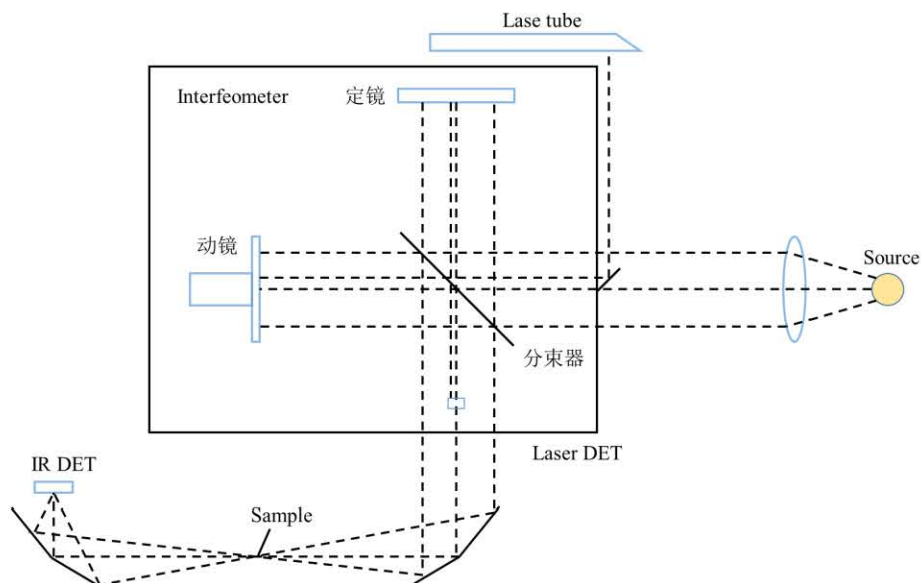


图 2.4 傅里叶红外光谱仪的结构原理图

Figure 2.4 Schematic diagram of FTIR

我们采用 Nicolet iS50 FTIR 光谱仪对 Fe:ZnSe 晶体样品在中红外波段的透过率进行测试，测试波长范围为 $1.5\sim 5.5\ \mu\text{m}$ 。透过率越低，表明对该波长的吸收越大。Nicolet iS50 FTIR 光谱仪如图 2.5 所示。



图 2.5 Nicolet iS50 FT-IR 光谱仪

Figure 2.5 Nicolet iS50 FT-IR spectrograph

2.4.2 Fe:ZnSe 晶体样品吸收光谱

本论文中选用两种不同参数的 Fe:ZnSe 晶体样品作为激光介质，Fe:ZnSe 晶体样品 1 由国内合作单位通过热扩散方法制备，直径为 10 mm，厚度为 1 mm，

Fe²⁺离子掺杂浓度为 $3 \times 10^{19}/\text{cm}^3$ 。晶体表面未镀膜,且工作表面的平行度小于 $20''$ 。采用傅里叶红外光谱仪对晶体样品透过率进行测量,得到如图 2.6 所示的 Fe:ZnSe 晶体样品 1 在 $1.5 \sim 5.5 \mu\text{m}$ 波段的透过率曲线。不难看出,晶体样品 1 在 $2.6 \sim 3.1 \mu\text{m}$ 波段的透过率最低,约为 $2 \sim 3\%$,表明该波段的激光有最强的吸收。

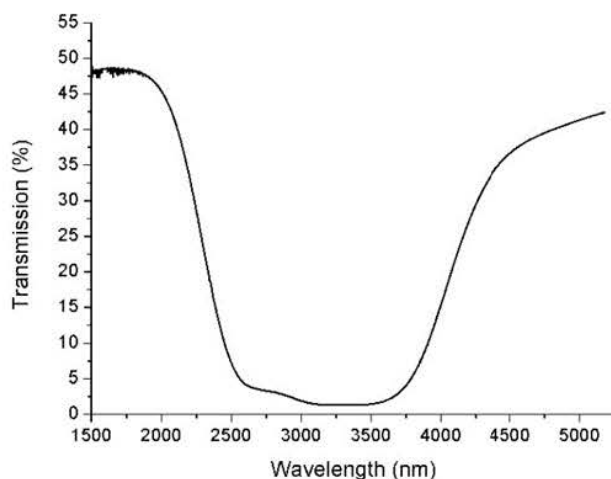


图 2.6 Fe:ZnSe 晶体样品 1 的透过率曲线

Figure 2.6 Transmission of Fe:ZnSe sample 1

Fe:ZnSe 样品 2 从乌克兰进口热扩散方法制备的 Fe:ZnSe 晶体。Fe²⁺掺杂浓度为 $4 \times 10^{18}/\text{cm}^3$, 尺寸为 $10 \text{ mm} \times 10 \text{ mm} \times 5 \text{ mm}$, 晶体表面未镀膜,且工作表面的平行度小于 $20''$ 。图 2.7 给出了样品 2 在 $1.5 \sim 5.5 \mu\text{m}$ 波段的测量透过率,晶体样品 2 在 $2.6 \sim 3.1 \mu\text{m}$ 波段的透过率最低,约为 10% 。

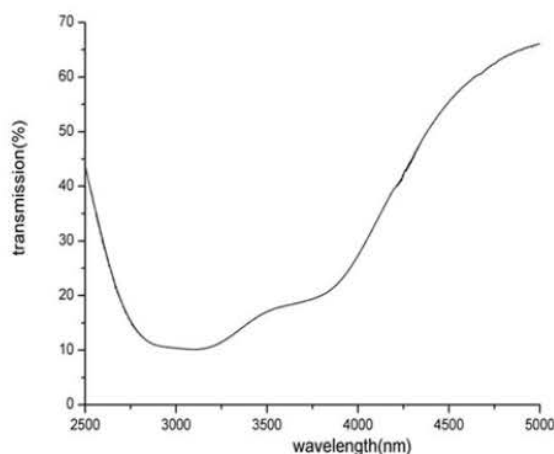


图 2.7 Fe:ZnSe 晶体样品 2 的透过率曲线

Figure 2.7 Transmission of Fe:ZnSe sample 2

2.5 Fe^{2+} 在 ZnSe 晶体中的上能级寿命

Fe^{2+} 在 ZnSe 晶体中的上能级寿命是影响 Fe:ZnSe 激光特性的重要因素。图 2.8 给出了不同学者测定的 Fe^{2+} 在 ZnSe 晶体中上能级寿命随温度变化曲线。可以看出, Adams 测得 Fe^{2+} 荧光寿命在 100 K 温度时大约为 105 μs , 这与 Deloach、Jelinkova 测得的数据基本一致, Myoung 等人在相同温度下测得的荧光寿命为 60 μs ^[47], 数据的差异可能是基质材料晶体结构不同的缘故。200~300 K 温度范围内不同学者在单晶和多晶 Fe:ZnSe 晶体中测得的 Fe^{2+} 荧光寿命基本一致。不难看出由于存在多声子猝灭效应, Fe^{2+} 的荧光寿命随温度升高迅速下降, Fe:ZnSe 晶体在常温时的荧光寿命为 370 ns。这表明常温时这类激光器只能在通过窄脉冲光源 (<370 ns)泵浦才能形成高效振荡。在长脉冲和连续波光源泵浦条件下, 为形成高效激励, 必须对激光晶体进行制冷。

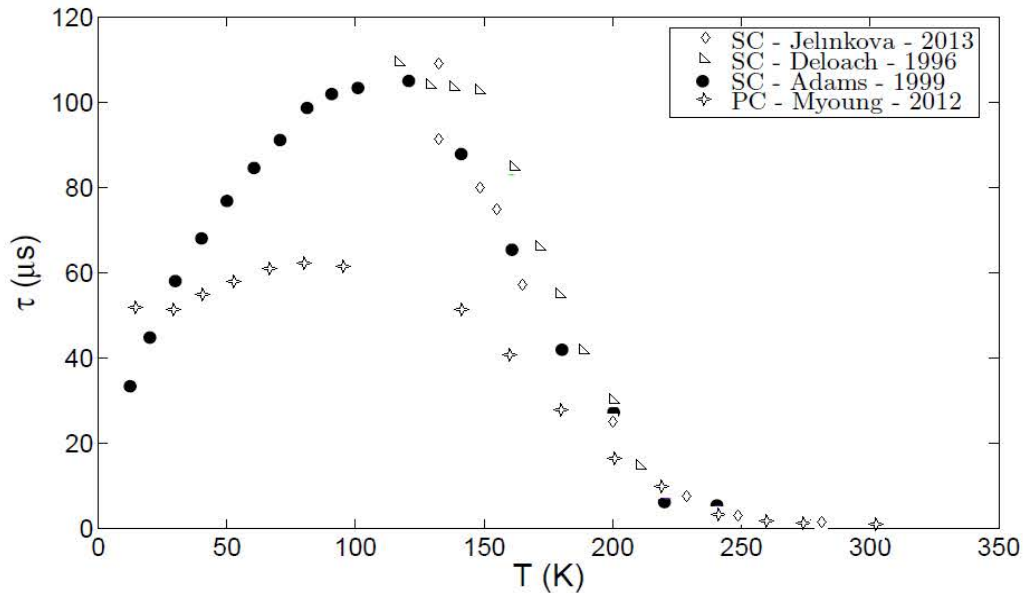


图 2.8 Fe^{2+} 在基质材料 ZnSe 中上能级寿命随温度的变化

Figure 2.8 The upper-state lifetime of Fe^{2+} in ZnSe with respect to temperature

2.6 Fe:ZnSe 晶体制备

2.6.1 Fe:ZnSe 晶体制备方法

目前 Fe:ZnSe 晶体的制备方法主要分为两类: 一类是在 ZnSe 晶体的生长过程中直接掺杂 Fe^{2+} ; 一类是 ZnSe 晶体长成之后, Fe^{2+} 通过高温热扩散的方法掺杂进 ZnSe 晶体。

在晶体生长过程中直接掺杂 Fe^{2+} 的方法主要有梯度熔融法、垂直布里奇曼法、气相传输法等。在晶体生长过程中直接掺杂 Fe^{2+} ，好处是能够最大程度地降低缺陷引起的损耗，但也会带来其他的问题。气相传输法直接生长 Fe:ZnSe 晶体是在高温、 H_2 或 He（一个大气压）环境中完成的，在技术上存在以下难点：(1) 由于掺杂材料和基质材料的饱和蒸汽压存在很大的差别，生长过程变得更加难以控制；(2) 受相变和热力学点缺陷平衡的影响，会导致孪晶和高的缺陷密度。垂直布里奇曼法是典型的 II-VI 族晶体制备方法，将垂直放置的坩埚逐渐通过一个温度梯度，获得所需晶体。由于 ZnSe 晶体材料升华温度比熔点温度低得多，采用垂直布里奇曼法制备技术需要同时施加高温、高压，制备过程的控制较为复杂，这种高温熔融技术还伴随着不可控的污染，导致意想不到的寄生吸收。

高温热扩散法主要有气相热扩散法和表面沉积热扩散法等。气相热扩散法是在高温条件下，将 Fe 掺杂剂和 ZnSe 晶体分别置于石英管的两端，然后将石英管真空密封，完成掺杂。表面沉积热扩散法是通过磁控溅射或激光脉冲沉积等方法将高纯度的 Fe 粉沉积在 ZnSe 晶体的表面，形成一层铁膜。随后在高温条件下，将样品放在真空密闭石英管内扩散，完成掺杂。高温热扩散法的优点是制备过程简单经济，缺点是在扩散长度方向造成离子的不均匀分布。

2.6.2 Fe:ZnSe 晶体样品的制备

本文中采用的增益介质 Fe:ZnSe 晶体样品 1 是在通过二步真空高温热扩散方法制备的。采用进口的高纯、高光学质量的 ZnSe 多晶作为基质材料，掺杂材料是光谱纯的 FeSe 粉末。如图 2.9 所示是上海光机所研制的双温区电阻炉，该电阻炉的特点是成本低廉、操作简易，双温区有利于温度梯度的建立。首先对石英管进行准备，制备成如图中所示的石英安瓿瓶，并进行清洗。然后将 FeSe 粉末装入石英安瓿瓶的 A 端（高温区），将高纯度的 ZnSe 晶体放入 B 端（低温区），再对石英安瓿瓶进行加热封口，利用真空泵将石英管抽至真空（约 10^{-5}Torr ）。封口时为了避免 ZnSe 晶片由于温度过高而被氧化，应尽量确保 B 端长度为总长度的 $3/4$ 。将密封好的石英安瓿按如图所示放置于双温区电阻炉内。为精确控制加热温度，需将 A、B 两端放置于热电偶中心位置。在高温区与低温区中间放置氧化锆保温砖来进行隔热，石英安瓿两端用石棉和氧化锆保温砖封堵进行保温。上述操作完成后，打开温控装置，调节高温区的温度为 $920\sim 925^\circ\text{C}$ ，低温区的温度

为 910℃，高温区的 FeSe 粉末受热蒸发，以铁离子的形式进入 ZnSe 多晶。扩散保温时间在 10~25 天之间，根据掺杂离子浓度的不同进行调整。将上述工艺制备的 Fe:ZnSe 多晶材料放入真空密封的石英管内，在 1000℃ 左右恒温 3~5 天，使得铁离子在 ZnSe 多晶内均匀扩散。需要注意的是，上述保温过程结束后，将电阻炉的温度降至室温的速率不宜过快，避免将缺陷引入 Fe:ZnSe 晶体。最后，对扩散掺杂后的 Fe:ZnSe 晶体进行抛光处理，晶体工作表面平行度小于 20"。对晶体进行一系列测试，例如 X 射线衍射成分分析、晶体缺陷测试、红外透过率测试和光致发光谱测试，选出合格的晶体。

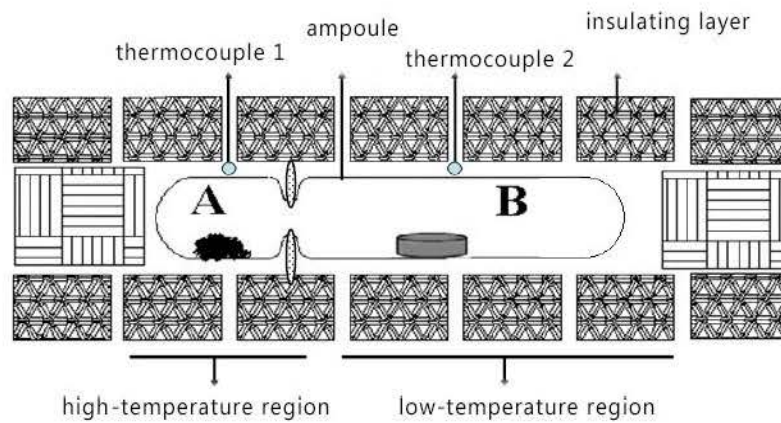


图 2.9 双温区电阻炉结构图

Figure 2.9 The structure of double-temperature area resistance furnace

2.6.3 铁离子浓度的测试方法

经过上述高温热扩散方法制备的 Fe:ZnSe 晶体，需要对其中铁离子浓度进行测量，可以利用 ICP-ASE 法或根据扩散模型进行计算。ICP-ASE 法是以电感耦合等离子矩为激发光源的光谱分析方法。将 Fe:ZnSe 样品研磨后溶解于待测溶液中，然后用电感耦合等离子发射光谱仪测试溶液中金属阳离子的含量。

2006 年 Demirbas^[48]等人提出的 Fe:ZnSe 扩散模型。当 Fe:ZnSe 晶体为如图 2.10 所示圆柱型时，Fe:ZnSe 晶体的吸收系数 $\alpha(r, z, t)$ 与铁离子浓度 $N(r, t)$ 的关系为：

$$\alpha(r, z, t) = \sigma_a(\lambda)N(r, z, t) \quad \dots (2.1)$$

其中 $\sigma_a(\lambda)$ 为波长 λ 处的吸收截面， r 为距离基质中心轴线的位置， t 为扩散

天数。

$$\sigma_a(\lambda) = \sigma_0 \exp \left[-4 \left(\frac{\lambda - \lambda_0}{\Delta\lambda / \sqrt{\ln 2}} \right)^2 \right] \quad \dots (2.2)$$

其中 λ_0 为吸收峰值波长, σ_0 为 λ_0 处的吸收截面, $\Delta\lambda$ 为吸收带的半高全宽。

因此 Fe:ZnSe 晶体中铁离子掺杂浓度为:

$$N(r, z, t) = \frac{\alpha(r, z, t)}{\sigma_0} \exp \left[-4 \left(\frac{\lambda - \lambda_0}{\Delta\lambda / \sqrt{\ln 2}} \right)^2 \right] \quad \dots (2.3)$$

采用分光光度仪测试样品的吸收光谱, 通过高斯拟合即可得到 λ_0 和 $\Delta\lambda$ 的值。在已知测试位置和掺杂天数的情况下, 即可利用该模型计算出晶体内铁离子的掺杂浓度。

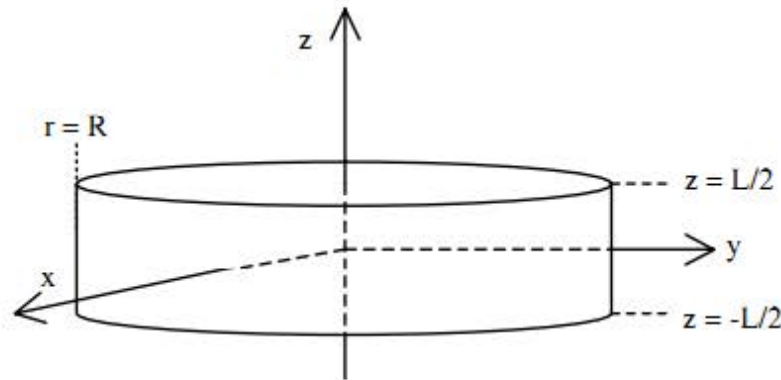


图 2.10 圆柱型 ZnSe 晶体示意图

Figure 2.10 Drawing of cylinder ZnSe crystal

2.7 本章小结

介绍了 ZnSe 晶体的晶体结构与物理特性, ZnSe 晶体有较好的物理特性和热力学特性, 且在红外波段的有较大的透过率, 是理想的红外材料之一。介绍了 Fe^{2+} 的能级结构与光谱特性。Fe:ZnSe 晶体吸收截面峰值位于 $3 \mu\text{m}$ 附近, 发射截面峰值位于 $4.3 \mu\text{m}$ 附近。 Fe^{2+} 离子上能级寿命随温度的升高而减小, 在室温时为 370 ns 。介绍了 Fe:ZnSe 晶体样品透过率光谱测试方法, 并对本论文中使用的 Fe:ZnSe 晶体样品在 $1.5 \sim 5.5 \mu\text{m}$ 波段的透过率进行了测量。介绍了 Fe:ZnSe 晶体制备方法, 重点介绍了 Fe:ZnSe 晶体样品 1 的制备过程。

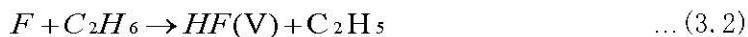
第3章 非链式脉冲 HF 激光泵源优化

放电引发的非链式脉冲 HF 激光器的波长为 2.6~3.1 μm ，恰好位于 Fe:ZnSe 晶体的吸收峰区域。脉宽为 80~300 ns，小于室温时 Fe^{2+} 的上能级寿命(370 ns)。HF 激光器单脉冲能量可达焦耳量级甚至百焦耳量级，远大于 Fe:ZnSe 晶体的损伤阈值，是室温高能 Fe:ZnSe 激光器的理想泵浦源。本章的主要内容对自制的非链式脉冲 HF 激光器进行了实验优化。主要完成了激光器预电离结构、气体组分、峰化电容等参数进行优化，并改进了激光器的谐振腔结构。

3.1 实验装置

3.1.1 实验原理与装置

本实验中采用 C_2H_6 作为 HF 激光器里 H 的施主， SF_6 作为 F 的施主。HF 激光器外加电压后引发一系列化学反应，其中主要的化学反应为：



外加脉冲放电发生(3.1)反应，生成大量中性 F 原子，反应(3.2)中 F 原子和提供 H 的施主 C_2H_6 反应生成激发态的 HF，形成粒子数反转，(3.3)为弛豫过程，(3.4)过程产生激光。

如图 3.1 所示为放电引发的非链式脉冲 HF 激光器实验装置图，预电离和主放电由同一台电源供电，开关由外界控制器控制。主电极为张氏电极，长度为 60 cm，放电横截面积为 1×2 cm。预电离采用紫外光预电离横向放电结构^[49]。火花针预电离器是由固定在镍片上钨针对列阵构成，镍片宽 7.5 mm，相邻镍片之间的间距为 8.5 mm，每对钨针针尖间隔为 2.5 mm。两排火花针置于主电极两侧，与电极长度方向平行，并由预电离电容 C_y 耦合到主电极上。预电离器每排有 18 对火花针，预电离电容 C_y 为 700 pF。整个激光器置于铁容器中，铁容器镀导电层，铁容器两端由谐振腔的腔镜密封。谐振腔由曲率半径为 8 m 的镀金

铜镜和未镀膜的 ZnSe 平面输出耦合镜构成，谐振腔长度为 1.4 m。

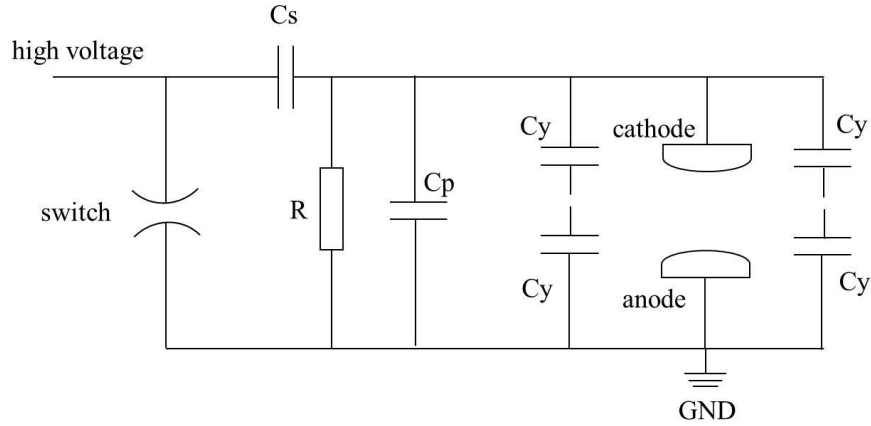


图 3.1 非链式脉冲 HF 激光器结构示意图

Figure 3.1 The structure of non-chain pulsed HF laser

激光器输出能量由能量计(gentenc ED500)测得，输出激光脉冲波形由 HgCdTe 探测器(KFPV120)接收，并连接至示波器(Tek TDS-220)测得。

3.1.2 预电离结构的优化

在气体激光器中，必要的初始粒子数是获得均匀稳定放电的前提。为获得一定的初始电子浓度，通常在主放电之前，采用紫外预电离技术。紫外预电离技术的常用方法有：火花针预电离、半导体预电离、电晕预电离等。电晕预电离技术的预电离强度较弱，不能产生 HF 激光器主放电所需的初始电子浓度。半导体预电离技术很难控制它的电阻率，且价格昂贵。火花针靠高电压击穿气体产生火花，能够产生足够强的初始电子浓度，该类方式简单经济。因此，我们在非链式脉冲 HF 激光器中采用双边火花针预电离技术。

双边火花针预电离器由火花针阵列组成，沿电极的长度方向排布在主放电电极两侧。如图 3.2 所示为电容耦合的双边火花针预电离器结构示意图，每侧火花针分别通过预电离电容 C_y 与激光器阴极和阳极连接。激光器施加高电压时，由于火花针间隙较小会首先发生击穿，产生强烈的紫外光。激光器内的气体在紫外光的光电离作用下形成足够浓度的初始电子，随后在主电极间形成均匀稳定的主放电，紫外光的光强正比于外加电压和预电离电容值^[50,51]。

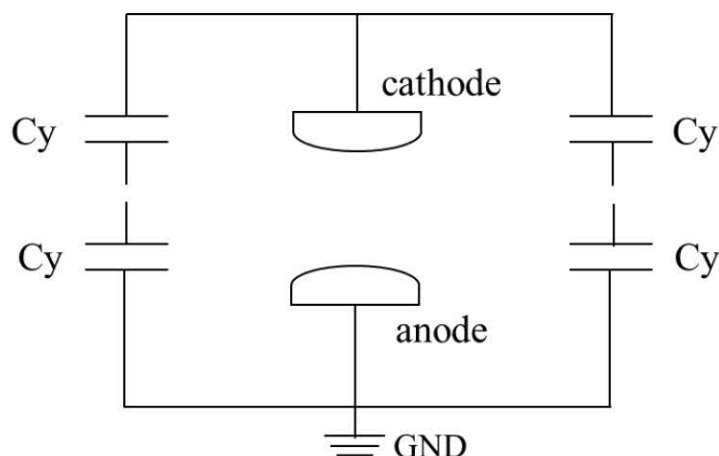


图 3.2 电容耦合的双边火花针预电离器结构示意图

Figure 3.2 The double sides spark preionizator based on capacity coupling

预电离阵列距主电极中心的远近会对预电离强度产生影响，进而对主电极放电产生影响。当激光器腔内的激光介质总气压为 11 kPa($C_2H_6:SF_6=1:10$)，主电容 $C_s=0.025\ \mu F$ ，预电离电容 $C_y=350\ pF$ 时，我们研究了预电离阵列距电极中心的距离 d 由 2 cm 变化到 3.5 cm 时，激光输出能量、主电极击穿电压和起弧电压随 d 变化如表 3.1 所示。取 $d=2.5\ cm$ 时，主放电辉光放电的电压范围最宽，激光输出能量最大。当 d 较小时，主电极的击穿电压略有减小，但起弧电压却大大降低。辉光放电的电压范围减小，最大输出能量下降。出现该现象的原因是预电离阵列和主电极距离太小，会干扰主电极放电。当 d 较大时，击穿电压增大，起弧电压减小。辉光放电的电压范围减小，最大输出能量下降。这是由于预电离阵列和主电极之间距离太大时，离子浓度降低，不利于放电。

表 3.1 d 对主放电和激光输出的影响Table 3.1 Main discharge and output energy with d

$d(cm)$	击穿电压 (kV)	起弧电压 (kV)	最大激光能量 (mJ)	最大激光光斑
2	19.5	23	37	$0.3cm \times 2cm$
2.5	20	28.5	82	$0.8cm \times 2cm$
3	21	26	70	$0.6cm \times 2cm$
3.5	22	25	62	$0.5cm \times 2cm$

预电离电容的大小也会对预电离强度产生影响，进而影响激光器的输出特性。我们对预电离电容值进行了优化，分别取 $C_s=0.025\ \mu F$ 或 $0.06\ \mu F$ ， $C_y=350\ pF$ 或

700 pF。激光最大输出能量、主电极击穿电压和起弧电压随预电离电容的变化如表 3.2 所示。可以看出,当主电容不变时,预电离电容取 700 pF 与 350 pF 相比,最大输出激光能量增大。这是由于增加预电离电容,预电离增强,形成的初始电子浓度增大,使得随后发生的主电离更加均匀,从而获得更大的激光能量输出。

表 3.2 C_y 对激光输出能量及起弧电压的影响

Table 3.2 Output energy and Arcing voltage at different C_y and C_s

C_y (pF)	C_s (μ F)	击穿电压(kV)	起弧电压(kV)	最大输出激光能量 (mJ)
350	0.025	20	28.5	82
350	0.060	18	24.5	100
700	0.025	19	29.0	98
700	0.060	18	24.5	121

由上述实验可以看出,选取合适的预电离器位置和较大的预电离电容有利于提高激光输出能量,因此在我们的 HF 激光器中最终取 $d=2.5$ cm, $C_y=700$ pF。

3.2 气体组分对激光输出能量的影响

研究激光器内激光介质的气体组分对激光输出能量的影响,对上述结构的 HF 激光器进行优化。在激光器内加入惰性气体 Ne 和 He,对激光输出影响不大而 C_2H_6 与 SF_6 的组分对激光输出能量有较大影响。因此实验中将对激光器内 C_2H_6 与 SF_6 的总气压及其混合比进行研究。主放电电容为 $C_s=26$ nF,保持 SF_6 气压恒定为 10 kPa。表 3.3 为不同电压下测得的激光输出能量随 C_2H_6 气压的变化。从表中可以看出,当 C_2H_6 气压为 0.5 kPa 时,即 $C_2H_6:Sf_6=1:20$ 时,激光器输出能量最大。当 $C_2H_6:Sf_6<1:20$ 时, C_2H_6 分子浓度较小,用于参与形成激发态 HF 分子反应的 C_2H_6 分子浓度不够,因此激光器输出能量较小。随着 C_2H_6 气压的增大,激光器输出能量增大。而当 C_2H_6 气压增大到 $C_2H_6:Sf_6>1:20$ 时, C_2H_6 分子浓度过大,引起 SF_6 的快速弛豫,反而降低了激光器输出能量。另外,随着充电电压的升高,激光输出能量不断升高。

表 3.3 不同电压下和不同 C_2H_6 分压下激光输出能量的变化($C_s=26\text{ nF}$)Table 3.3 Laser energy at different voltage and C_2H_6 pressure

电压(kV) C_2H_6 (kPa)	20	24	28	30
0.25	40 mJ	70 mJ	96 mJ	100 mJ
0.5	70 mJ	120 mJ	196 mJ	223 mJ
0.75	60 mJ	113 mJ	180 mJ	211 mJ
1	53 mJ	100 mJ	168 mJ	205 mJ
1.5	32 mJ	81 mJ	128 mJ	157 mJ
2	24 mJ	75 mJ	116 mJ	142 mJ

在最优气体组分(即 $C_2H_6:SF_6=1:20$)的条件下进行研究($C_s=58.7\text{ nF}$, $C_p=16\text{ nF}$), 得到如表 3.4 所示, 不同电压下激光输出能量随气体总气压的变化。可以看出, 当电压一定时, 输出激光能量随着总气压的增大先增大, 达到最佳总气压时输出激光能量最大, 随后输出激光能量随着总气压的增大而减小。这是由于当总气压较小时, SF_6 不仅会产生有用的中性 F 原子, 还会产生 F 离子, 并且一部分能量会转化成热能。当总气压增大到最佳总气压时, 电子平均能量和 SF_6 的离解能接近, 有效离解截面最大, 生成 F 原子的效率最高。总气压继续增大时, 由于电子平均能量小于 SF_6 的离解能, 不能有效的生成泵浦所需 F 原子, 效率降低。在不同电压下, 最大激光输出能量所对应的最佳总气压也不同。总气压继续增大到一定程度, 将出现弧光放电。

表 3.4 不同电压下激光输出能量随气体总气压的变化($C_s=58.7\text{ nF}$)Table 3.4 Laser energy at different voltage and C_2H_6 pressure

电压(kV) 总气压 (kPa)	22	24	28	30
6.3	144 mJ	152 mJ	167 mJ	172 mJ
8.4	185 mJ	206 mJ	251 mJ	270 mJ
10.5	173 mJ	217 mJ	261 mJ	288 mJ
12.6	122 mJ	180 mJ	280 mJ	313 mJ
14.7	75 mJ	115 mJ	240 mJ	291 mJ

电压越高, 最佳总气压越高。为求出特定电压下的最佳总气压, 引入最佳的 E/P 值。该值与放电电压、电容等无关, 只与气体组分有关。可以看出, 在上述实验中最优 E/P 值为 $1.2\text{ V}/(\text{cm}\cdot\text{Pa})$ 。图 3.3 所示为不同 SF_6 比例时的 E/P 值。Kline 等人计算出的 E/P 值的曲线方程为:

$$E/P = (E/P)_{F=1} F^m \quad (3.5)$$

其中, F 为 SF_6 气体所占总气压的比例, $(E/P)_{F=1}$ 为纯 SF_6 放电时的 E/P 值, m 为变化因子。该实验中取 $m=0.5$, 所得 E/P 值与实验值较好的拟合。为提高输出激光的能量, 激光器需要在最佳 E/P 值的条件下工作。

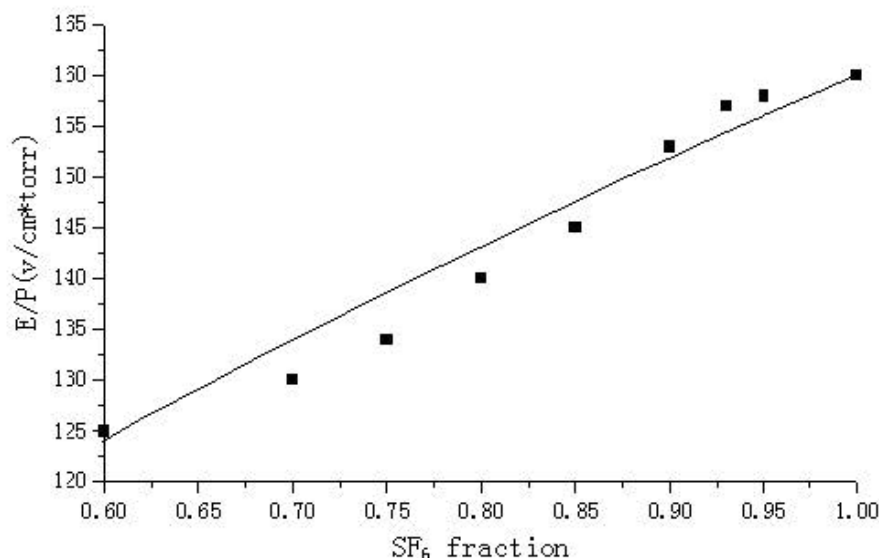


图 3.3 E/P 值随 SF_6 比例的变化

Figure 3.3 E/P with SF_6 fraction

3.3 峰化电容对输出激光的影响

在放电电极两端并联峰化电容 C_p 可以增强预电离, 更有效的注入能量, 从而提高转换效率, 提高 HF 激光器的放电稳定性。因此我们对峰化电容进行了研究, 探究其对输出激光的影响。激光器内气体组分为最佳优气体组分 $\text{C}_2\text{H}_6:\text{SF}_6=1:20$, 其中 $\text{C}_2\text{H}_6=0.5 \text{ kPa}$, $\text{SF}_6=10 \text{ kPa}$ 。保持主电容 $C_s=58.7 \text{ nF}$ 。充电电压在 $22\sim34 \text{ kV}$ 时, 改变峰化电容 C_p 在 $0\sim30 \text{ nF}$ 变化, 激光输出能量如表 3.5 所示。可以看出, 当峰化电容 $C_p=16 \text{ nF}$ 时, 激光输出能量最大, 此时峰化电容和主电容的比值为 $C_p/C_s \approx 0.27$ 。与 $C_p/C_s=0$ 时相比较, $C_p/C_s \approx 0.27$ 时的激光输出能量有 $15\sim30\%$ 的提高。当 C_p/C_s 较小时, 预电离较弱, 不利于激光输出。随着峰化电容的增大, 预电离增强, 更有效的注入能量, 提高能量转换效率。另外, 峰化电容较大时, 起弧电压增大。当峰化电容过大时, 外加电压重新分配, 提供给主放电的能量不足, 导致输出激光能量下降。

表 3.5 不同电压下激光输出能量随峰化电容的变化

Table 3.5 Laser energy at different voltage and C_p ($C_s=58.7$ nF)

电压(kV) C_p (nF)	22	26	30	34
0	145 mJ	198 mJ	245 mJ	320 mJ
10	154 mJ	215 mJ	267 mJ	345 mJ
16	173 mJ	245 mJ	288 mJ	400 mJ
20	160 mJ	225 mJ	270 mJ	356 mJ
30	130 mJ	184 mJ	210 mJ	270 mJ

3.4 激光脉冲特性

采用图 3.4 所示装置测量激光脉冲特性。其中 M1 为激光器反射镜, M2 为输出耦合镜。激光输出后经透镜 L 聚焦后, 经光阑 M3, 再由衰减片 A 进行衰减, 最终在屏蔽间 B 中, 由 C 测得激光脉冲波形。其中装置 C 为 HgCdTe 探测器接收激光后, 连接至示波器 (Tek TDS-220) 显示。而衰减片对输出激光能量进行衰减, 防止探测器的损坏。

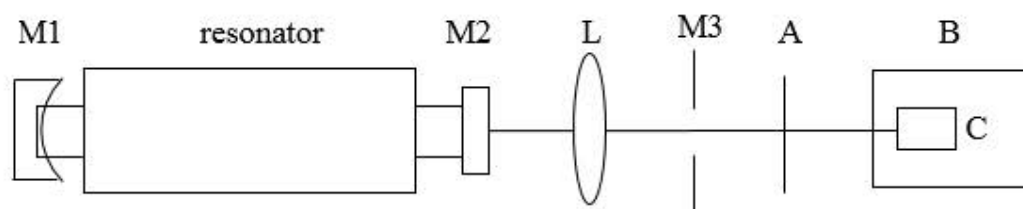


图 3.4 激光脉冲特性测量装置示意图

Figure 3.4 Structure of measuring pulse laser oscillogram

实验研究了电容、腔内总气压对激光脉冲波形的影响。其中电容对激光脉冲波形的影响很小。在最优气体气压比 (即 $C_2H_6:SF_6=1:20$) 的条件下进行研究, 得到激光脉冲波形对随腔内总气压的变化如图 3.5 所示。当气压为 4.2 kPa 时, 输出激光的脉宽(FWHM)为 410 ns, 当气压为 18.9 kPa 时, 输出激光的脉宽(FWHM)为 230 ns。随着气压的升高, 输出激光的脉冲宽度减小。这是由于气压升高时, 粒子间的弛豫速度加快。

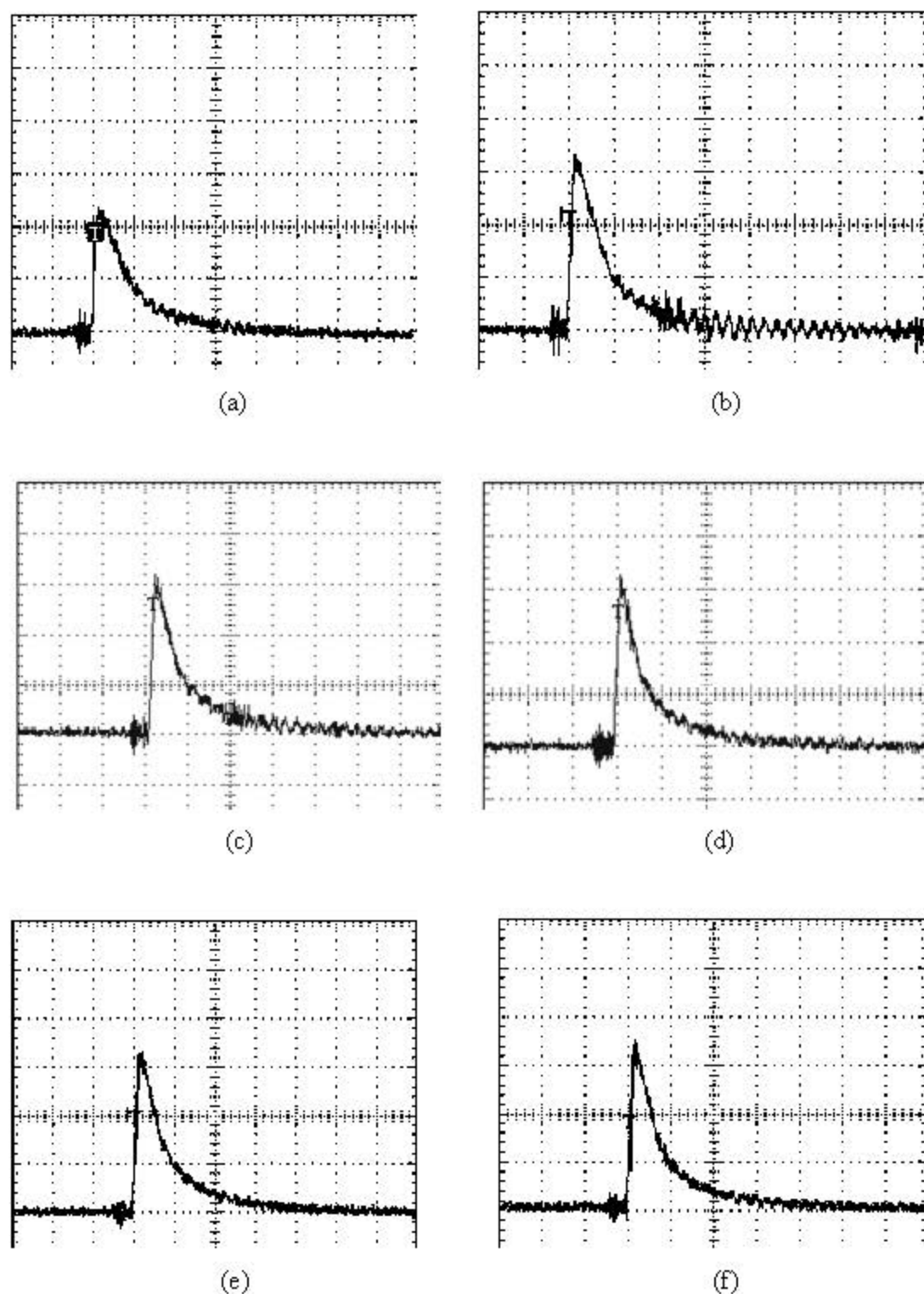


图 3.5 不同气压下的激光脉冲特性。横坐标 500 ns/格，纵坐标 20 mV/格。(a) 4.2kPa, FWHM=410ns; (b) 6.3kPa, FWHM=320ns; (c) 8.4 kPa, FWHM=300 ns; (d) 10.5 kPa, FWHM=280 ns; (e) 16.8kPa, FWHH=240ns; (f) 18.9kPa, FWHH=230ns.

Figure 3.5 Pulse laser oscillogram under different gas pressure.

将脉冲波形近似三角波计算出激光脉冲峰值功率，如图 3.6 所示为脉冲峰值

功率随腔内总气压变化。激光峰值功率随气压增大而增大，当到达一定值后，输出的激光峰值功率随气压增大而减小。因此，在充电电压一定时，存在最佳气压使得输出激光峰值功率最大。

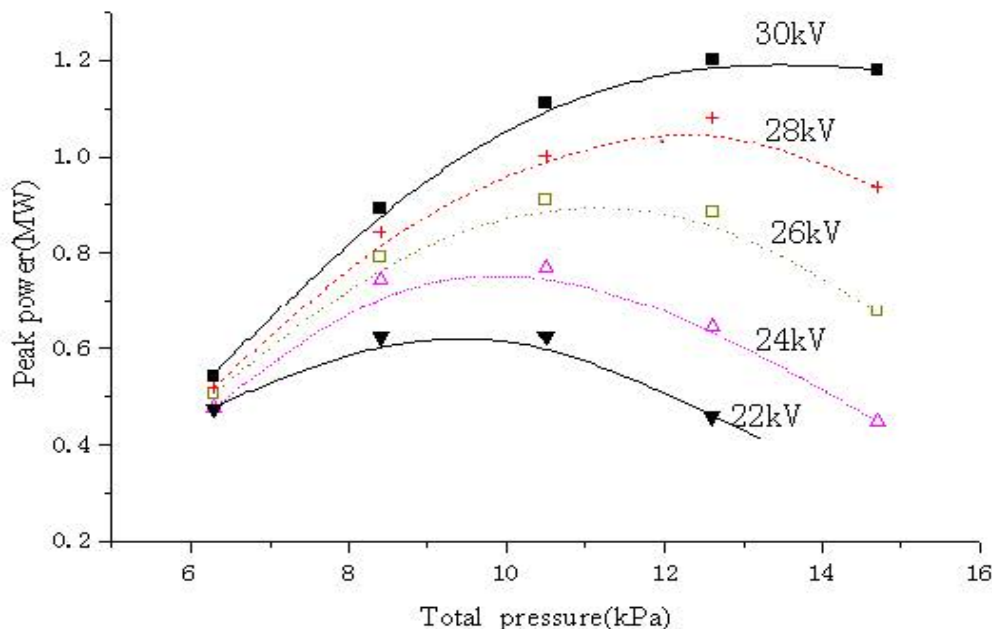


图 3.6 不同充电电压时激光脉冲峰值功率随总气压的变化

Figure 3.6 Laser peak power at different gas pressure and voltage

实验中值得注意的是，在参数不变的情况下，随着实验的进行，激光输出能量减小。造成这种现象的原因是：随着实验的进行， SF_6 和 C_2H_6 不断被消耗，即 F 原子的实际数减小，会影响化学反应的速率。

3.5 谐振腔结构的优化

上述实验中的非链式脉冲 HF 激光器采用内腔式谐振腔结构，整个置于铁容器中，铁容器两端由谐振腔的腔镜密封。谐振腔由高反铜镜和未镀膜的 ZnSe 平面输出耦合镜构成。输出激光伴随的化学反应产物 HF 分子对铜等金属有较强的腐蚀性，一段时间后，铜镜的反射率会急剧下降，造成激光器的输出能量显著下降。为保证激光器输出的稳定性，我们对 HF 激光器的谐振腔结构进行了改进，改为半外腔结构，与激光介质接触的为耐腐蚀的非金属镜片，激光器输出的稳定性大大提高。改进的半外腔结构如图 3.7 示，M1 为曲率半径 8 m 的高反铜镜，M2 为未镀膜的 ZnSe 平面输出耦合镜，M3 为 NaCl 制成的布鲁斯特窗口片。M1

与 M2 构成谐振腔。由于 HF 分子对 NaCl 腐蚀性很低，保证了激光器输出的稳定性。

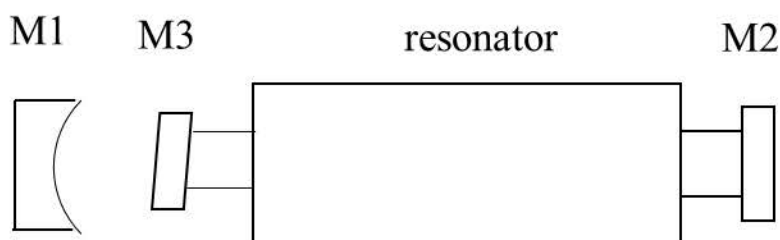


图 3.7 HF 激光器半外腔谐振腔结构简图

Figure 3.7 The structure of half external cavity of HF laser

3.6 本章小结

完成了放电引发的非链式脉冲 HF 激光器的优化实验研究，主放电选用电荷转移回路，预电离采用双边火花针预电离器。选取合适的预电离器位置和较大的预电离电容有利于提高激光输出能量。通过实验确定了最佳气体成分比($C_2H_6:SF_6=1:20$)、电荷转移回路的最佳电容比($C_p/C_s=0.27$)。

采用腔内气体气压为 10.5 kPa($C_2H_6:SF_6=1:20$)，主电容与峰化电容分别为 58.7 nF 和 16 nF。当充电电压为 34 kV 时，获得了 400 mJ 的脉冲 HF 激光输出。脉冲峰值功率为 1.5 MW，最大的电光转换效率约为 2.2%。

第4章 室温脉冲 Fe:ZnSe 激光器实验研究

在本章中,利用自制的放电引发非链式脉冲 HF 激光器作为泵浦源,在室温条件下开展 Fe:ZnSe 激光特性的初步实验研究。对激光器的长度参数,以及泵浦能量密度和泵浦斜入射角度等泵浦参数进行了探究和优化,最终实现了高效、高能脉冲 Fe:ZnSe 激光输出。另外,针对现有纵向泵浦方案的缺陷,提出横向泵浦 Fe:ZnSe 激光器的设计方案。

4.1 实验装置

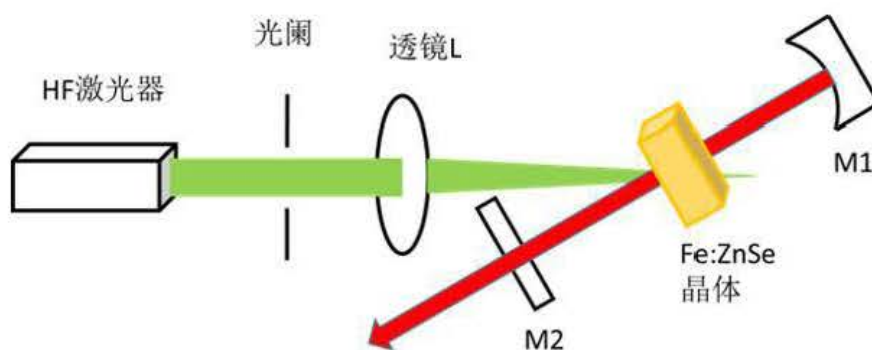


图 4.1 Fe:ZnSe 激光器的实验装置图

Figure.4.1 Experimental set-up of the Fe:ZnSe laser

Fe:ZnSe 激光特性研究采用的实验装置如图 4.1 所示,谐振腔采用平凹腔结构。泵浦源为第三章中介绍的自制非链式脉冲 HF 激光器,激光介质总气压为 10.5 kPa($\text{SF}_6:\text{C}_2\text{H}_6=20:1$),脉冲能量随充电电压的改变在 10~350 mJ 范围内可调。典型的激光脉冲波形图如图 4.2 所示。激光脉冲波形带有陡峭的上升沿,脉冲宽度为 280 ns,小于室温条件下 Fe^{2+} 上能级寿命。在泵浦源 HF 激光器后放置光阑,方便调节泵浦光的能量和形状。另外也可以防止反射光回到 HF 激光器内,对 HF 激光器造成损坏。由于泵浦能量不大,且实验中研究的是单脉冲激光器,故实验中没有考虑热透镜效应,也没有进行补偿,所有实验均在室温条件下进行。

HF 激光经限孔光阑后,由透镜 L 聚焦到 Fe:ZnSe 晶体表面中心。聚焦透镜 L 的焦距为 25 cm。由于泵浦光 HF 激光的波长为 2.6~3.1 μm ,输出 Fe:ZnSe 激光的波长为 4 μm 左右,均处于中红外波段。若采用垂直入射的泵浦方案,反射镜要求对 2.6~3.1 μm 高透过率,对 4 μm 高反射率,输出耦合镜要求对 2.6~3.1 μm

高反射率, 对 $4\text{ }\mu\text{m}$ 有一定值的透过率, 这对腔镜镀膜带来了很大的困难。因此, 实验中采用斜入射的泵浦方案。反射镜 M1 是曲率半径为 50 cm 的凹面铜镜, 在 $4\text{ }\mu\text{m}$ 处反射率为 99% , 输出镜 M2 为平面 Ge 镜, 在 $4\text{ }\mu\text{m}$ 处透过率为 63% 。晶体工作面垂直谐振腔光轴放置, 且工作面的中心位于光轴上。

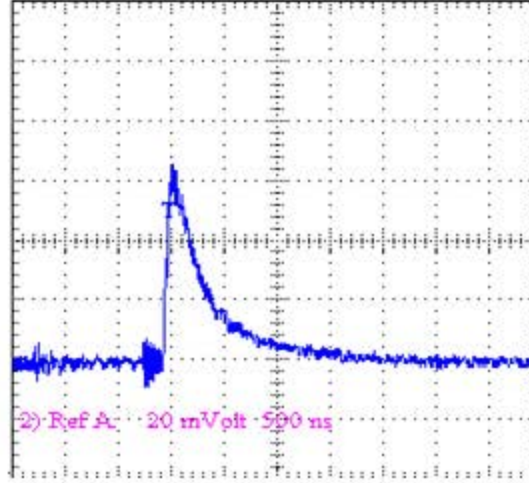


图 4.2 典型的 HF 激光脉冲波形

Figure 4.2 Typical oscillogram of HF laser pulse

4.2 泵浦能量密度对激光输出的影响

4.2.1 泵浦能量密度对晶体吸收的影响

根据第二章讨论的 Fe:ZnSe 能级模型, 中红外波段的跃迁发生在 ^5E (低能态) 和 $^5\text{T}_2$ (高能态) 之间。因此, 考虑两能级系统, 低能级和高能级的粒子数密度分别为 n_1 和 n_2 。光脉冲传输满足以下方程:

$$\frac{dn_2}{dt} = -\sigma_{21}n_2I + \sigma_{12}n_1I - \frac{n_2}{\tau_r(T)} \quad \dots (4.1)$$

$$\frac{dI}{dz} = -\sigma_{12}n_1I + \sigma_{21}n_2I - \gamma I \quad \dots (4.2)$$

$$n_0 = n_1 + n_2 \quad \dots (4.3)$$

其中, $\tau_r(T)$ 为上能级寿命, 与温度有关。对于给定波长 λ_0 , σ_{12} 为低能级到高能级的吸收截面, σ_{21} 为高能级到低能级的发射截面。 I 为光子的辐射强度 $I/(\text{cm}^2 \cdot \text{s})$, z 为沿光传播方向的坐标。式(4.1)描述了各能级粒子数随时间的变化。式(4.2)描述了晶体内沿光传播方向上的光强变化。由于上下能级的粒子数总浓度等于没有光诱导价态变化情况下的 Fe^{2+} 浓度, 因此得到式(4.3)。

对于脉冲持续时间为 T 的矩形脉冲, 上述公式可以转化为:

$$\frac{dx}{dz} = -\alpha_0 \frac{x\xi}{1+x\xi} \left(\frac{1}{\xi} + \frac{x\xi}{1+x\xi} (1 - \exp(-x - \frac{1}{\xi})) \right) - \gamma x \quad \dots (4.4)$$

其中 $x = (\sigma_{12} + \sigma_{21})IT$, $\alpha_0 = \sigma_{12}n_0$, $\xi = \frac{\tau}{T}$ 。当 $\xi \geq 1$ 时, (4.4) 式可转换为标准的 Avizonis-Grotbeck 公式^[52]:

$$\frac{dx}{dz} = -\alpha_0(1 - \exp(-x)) - \gamma x \quad \dots (4.5)$$

当 $\xi \leq 1$ 时, (4.4) 式可转换为:

$$\frac{dI}{dz} = -\alpha_0 \frac{I}{1+I/I_s} - \gamma I \quad \dots (4.6)$$

其中, $I_s = \frac{1}{(\sigma_{12} + \sigma_{21})\tau}$ 为吸收饱和光强。对 (4.6) 积分, 得到 $I_0 = \frac{\alpha_0 I_s (A \ln t r a n s)}{1 - t r a n s}$, 其中, $trans = I/I_0$ 为透过率, $A = \frac{1}{\gamma} + \frac{1}{\alpha_0}$ 为常数。

当 I_0 较小时, $trans$ 随着 I_0 的增大而增大, 且 $trans$ 的增长速度逐渐减小。即随着泵浦光能量密度增大, 晶体对泵浦光的透过率增大, 并逐渐趋于饱和。

采用如图 4.3 所示装置对 Fe:ZnSe 晶体样品的透过率进行实验研究。通过分析 Fe:ZnSe 晶体样品对 HF 激光的透过率, 可以得到 Fe:ZnSe 晶体样品对 HF 激光的吸收率, 为后续实验打下基础。在这里, HF 激光器的脉冲宽度为 280 ns, 小于 Fe^{2+} 的上能级寿命。泵浦源 HF 激光器发出的光经由分光片后, 由透镜聚焦入射到 Fe:ZnSe 晶体表面。由于泵浦光经由分光镜, 部分光被反射, 通过能量计 1 测量该部分反射光的能量来计算入射到晶体表面的泵浦光能量。在光轴末端放置的能量计 2 用于测量未被晶体吸收的能量。

保持泵浦光源与透镜的位置不变, 改变晶体距透镜的位置即可改变泵浦光入射到晶体表面的光斑大小, 从而改变晶体表面的泵浦光密度。对于光斑大小的测量, 我们可以通过在光轴上放置光阑, 在泵浦光入射晶体前的范围内沿轴向移动光阑, 得到测量光斑半径 w 。由于泵浦光的横向分布近似高斯分布, 可以写作 $\exp\left(-2\left(\frac{x}{w}\right)^2\right)$, 其中 x 为距离光斑中心的横向坐标, 晶体置于特定位置时, w 为常数。由于高斯光束的实际光斑半径定义为振幅下降到 $1/e$ 处与光斑中心的距离, 因此实际光斑面积为 $\frac{1}{2}\pi w^2$ 。在位于距聚焦透镜焦点处测得的光斑半径 w 为 0.347 cm, 在聚焦透镜处的光斑大小测得的光斑半径 w 为 0.5 cm, 其他位置的 w

值可通过计算得到。

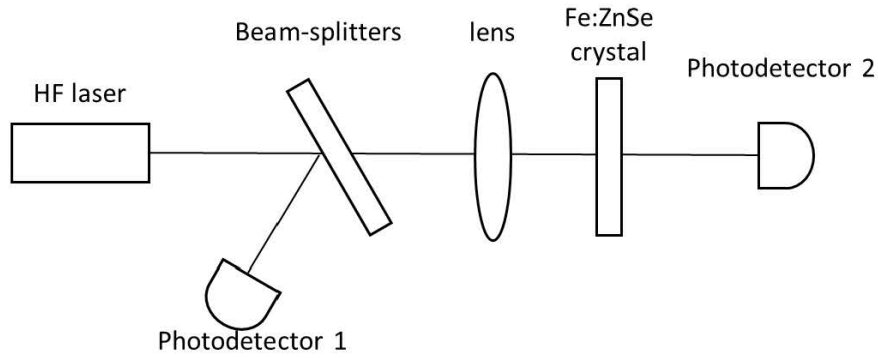


图 4.3 Fe:ZnSe 晶体透过率测量装置

Figure 4.3 Set-up for measuring Fe:ZnSe crystal transmittance

在室温条件下对晶体样品 2 进行测试。通过调整泵浦源的充电电压来调整泵浦光能量。透过率曲线随泵浦能量密度的变化如图 4.4 所示。可以看出，泵浦光能量密度增大，晶体对泵浦光的透过率增大，即晶体对泵浦光的吸收率减小。该实验中晶体对泵浦光的吸收未达到饱和。

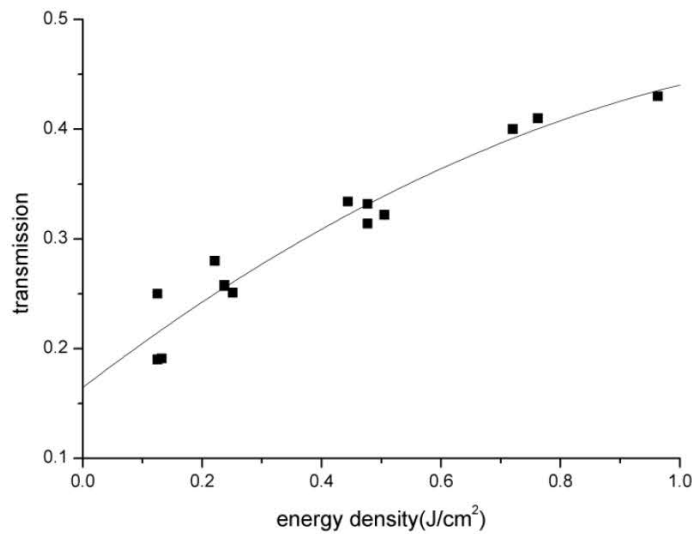


图 4.4 Fe:ZnSe 晶体透过率随泵浦能量密度的变化

Figure 4.4 Transmission of Fe:ZnSe crystal at different pumping energy density

4.2.2 泵浦能量密度对激光输出能量的影响

实验装置如图 4.1 所示，分别利用晶体样品 1 和晶体样品 2 进行实验。将晶体样品置于不同的两个位置进行实验，测得 HF 激光的光斑大小分别为 0.378 cm^2 和 0.43 cm^2 。得到 Fe:ZnSe 晶体样品 1 的激光输出能量随泵浦能量的变化曲线如

图 4.5 所示, Fe:ZnSe 晶体样品 2 的激光输出能量随泵浦能量的变化曲线如图 4.6 所示。可以看出, 在泵浦光能量不变的情况下, 光斑大小对激光输出能量随泵浦能量的变化曲线没有明显影响。

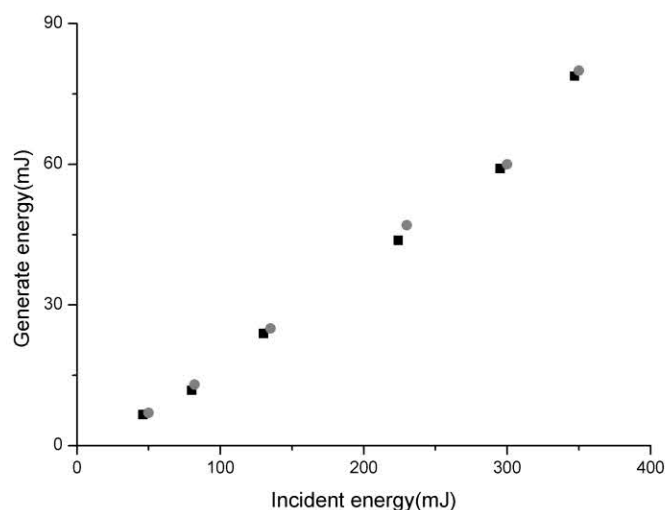


图 4.5 晶体样品 1 的激光输出能量随泵浦能量的变化 (■: 0.378 cm², ●: 0.43 cm²)

Figure 4.5 Output energy at different pumping energy (sample 1)

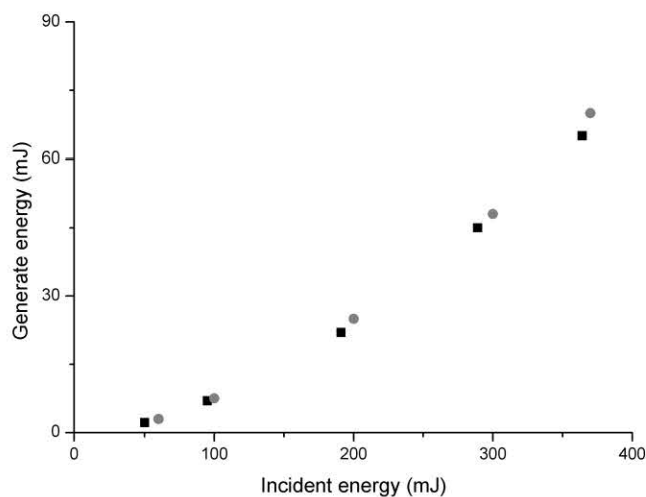


图 4.6 晶体样品 2 的激光输出能量随泵浦能量的变化 (■: 0.378 cm², ●: 0.43 cm²)

Figure 4.6 Output energy at different pumping energy (sample 2)

4.3 激光器腔长对激光输出的影响

利用晶体样品 1 进行激光器谐振腔长度对激光输出影响的实验研究, 实验装

置如图 4.1 所示。上述实验中验证了泵浦光能量一定时，改变其光斑大小，对 Fe:ZnSe 激光的输出能量没有明显的影响。因此，我们将晶体放置在聚焦透镜的焦点处进行实验。由于本文中采用了斜入射的泵浦方案，存在入射角度的问题，因此晶体距离全反镜的距离不宜过短。固定晶体距离全反镜的距离为 10 cm，通过改变输出耦合镜的位置与晶体之间的距离来改变腔长。泵浦光能量为 120 mJ，泵浦光的斜入射角度为 3° 时，激光输出能量与腔长的关系如表 4.1 所示。可以看出，改变谐振腔的长度对输出激光功率无明显影响。

表 4.1 Fe:ZnSe 激光输出能量随谐振腔长度的变化

Table 4.1 Output energy at different cavity length

谐振腔长度(cm)	12	14	17	21	25	30
激光输出能量(mJ)	18	19	18	21	20	20

4.4 泵浦光斜入射角度对激光输出的影响

利用晶体样品 1 进行泵浦光的斜入射角度对激光输出影响的实验，实验装置如图 4.1 所示。谐振腔长度为 12.5 cm，晶体靠近输出耦合镜放置，泵浦光能量为 120 mJ。当泵浦光的斜入射角度大于 15° 时，没有 Fe:ZnSe 激光输出。当泵浦光的斜入射角度小于 15° 时，激光输出能量随泵浦光的斜入射角度变化如表 4.2 所示。可以看出，随着泵浦光的斜入射角度的减小，激光输出能量越大，光光转换效率越大。这是由于当泵浦光的斜入射角度越小时，泵浦光和 Fe:ZnSe 激光的模式匹配越好，泵浦效率越高。虽然斜入射角度越小越好，但本文中采用平凹稳腔，谐振腔长度受到限制，斜入射角度也受到限制。

表 4.2 Fe:ZnSe 激光输出能量随泵浦光斜入射角度的变化

Table 4.2 Output energy at different incident angle

泵浦光斜入射角度($^\circ$)	15	12	10	8	5	3
激光输出能量(mJ)	2	5	8	9	12	19
光光转换效率(%)	1.6	4.2	6.6	7.5	10	15.8

4.5 脉冲激光特性

分别利用晶体样品 1 和晶体样品 2 按如图 4.1 所示装置搭建 Fe:ZnSe 激光器。泵浦光的斜入射角度为 3° ，谐振腔长度为 12.5 cm，晶体靠近输出耦合镜放

置。

Fe:ZnSe 晶体样品 1 的激光输出能量随晶体吸收能量的变化曲线如图 4.7 所示, 可以推断出晶体吸收泵浦阈值为 18 mJ。泵浦光能量由 46 mJ 变化到 347 mJ 时, Fe:ZnSe 晶体吸收泵浦光的能量由 38 mJ 变化到 282 mJ。输出激光能量相对于晶体吸收泵浦能量的斜率效率为 28.8%。当 HF 激光脉冲能量和晶体吸收泵浦光的能量分别为 347 mJ 和 282 mJ 时, Fe:ZnSe 激光实现最大输出能量为 78.8 mJ。此时输出激光能量相对于晶体吸收泵浦能量的光光转换效率为 27.7%。

Fe:ZnSe 晶体样品 2 的激光输出能量随晶体吸收泵浦能量的关系曲线如图 4.8 所示。当吸收泵浦能量为 210 mJ 时, Fe:ZnSe 激光器的单脉冲最大输出能量为 65 mJ。输出激光能量相对于晶体吸收泵浦光能量的斜率效率为 37%。由于晶体样品有限, 为防止晶体的损坏, 未继续增大泵浦能量。

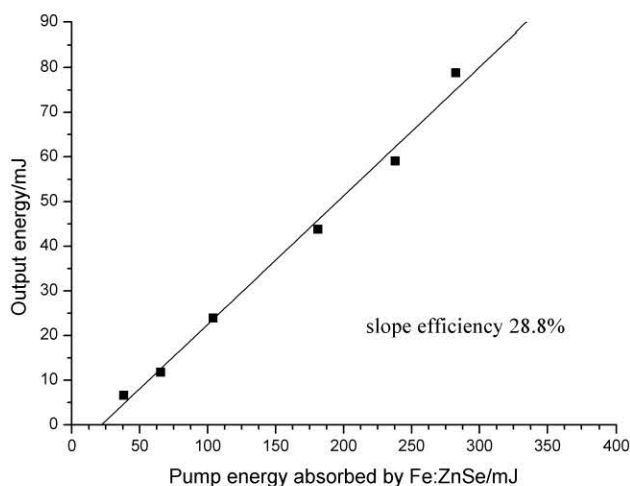


图 4.7 Fe:ZnSe 晶体样品 1 的激光能量随吸收泵浦能量的变化关系

Figure.4.7 Fe: ZnSe laser pulse energy at different absorbed pump energy (sample 1)

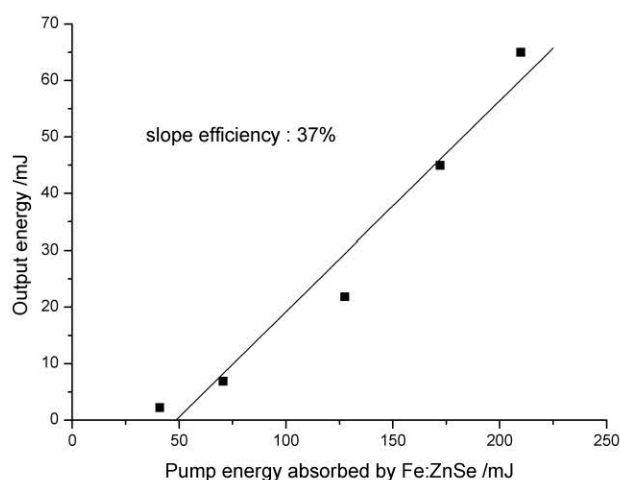


图 4.8 Fe:ZnSe 晶体样品 2 的激光能量随吸收泵浦能量的变化关系

Figure.4.8 Fe: ZnSe laser pulse energy at different absorbed pump energy (sample 2)

Fe:ZnSe 激光脉冲波形由如图 4.9(a)所示的红外探测器(VIGO PVM, 时间常数 ≤ 1.5 ns)接收, 并通过示波器 (Agilent Technologies DSO-X 3034A, 350 MHz)记录, 晶体样品 1 的激光波形如图 4.10 所示, 当晶体吸收泵浦能量为 38 mJ 时, 输出激光脉冲波形如图 4.10(b)所示, 波形近似三角波, 脉宽(FWHM)为 30 ns。当晶体吸收泵浦光能量为 181 mJ 时, 输出激光脉冲波形如图 4.10(a)所示, 脉宽(FWHM)为 225 ns。晶体样品 2 的激光波形如图 4.11 所示, 当晶体吸收泵浦能量为 41 mJ 时, 波形如图 4.11(a)所示, 输出激光脉宽为 30 ns。从两个晶体样品的波形中都可以看出, 当晶体吸收泵浦能量增大时, 输出激光脉宽逐渐变大。激光脉冲波形存在准稳态平台, 平台的宽度和高度与激光脉冲能量有关。平台的宽度和高度随泵浦能量的增大而增大, 且平台中尖峰数量和调制深度与泵浦能量有关。该现象的可能原因是弛豫振荡效应。当泵浦能量增大时, 反转粒子数快速达到阈值, 输出激光, 随后由于弛豫振荡, 形成一系列尖峰, 并且当泵浦能量不断增大时, 尖峰形成越快。

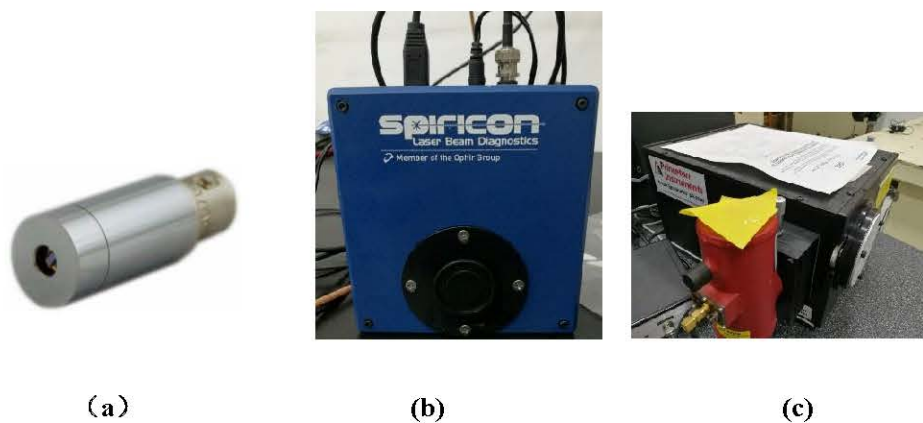
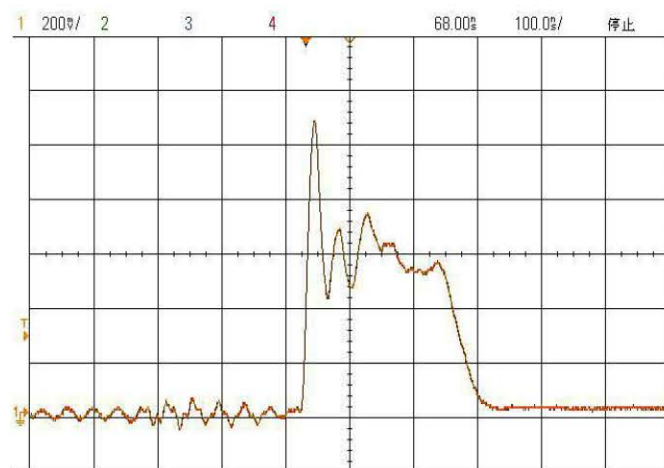
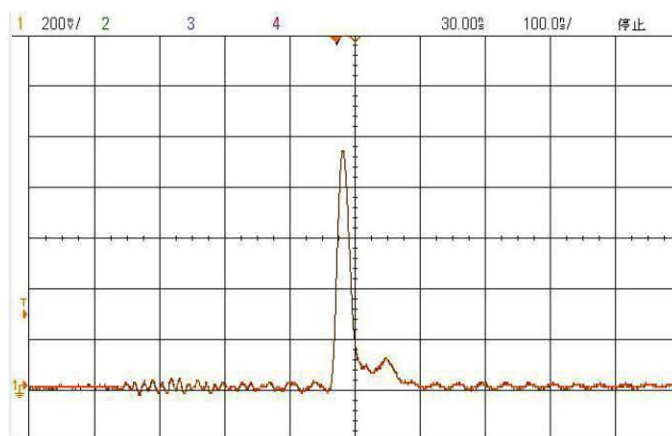


图 4.9 脉冲特性测量装置

Figure 4.9 Measuring instruments of laser characteristics



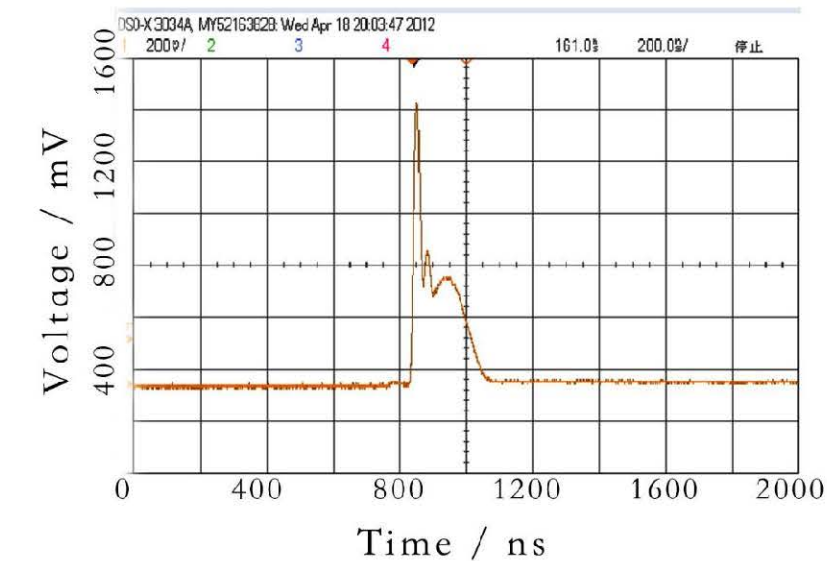
(a)



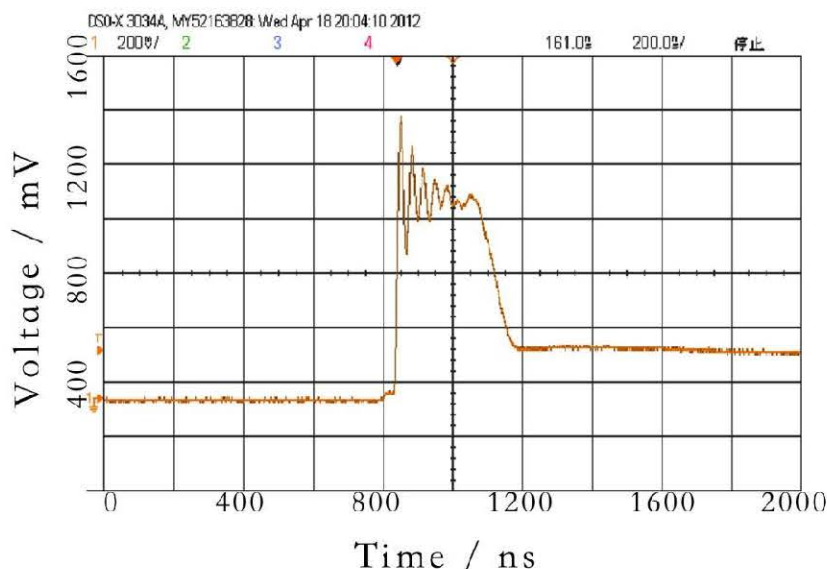
(b)

图 4.10 Fe:ZnSe 晶体样品 1 产生的激光脉冲波形，其中：(a)吸收泵浦光能量 181 mJ；(b)吸收泵浦光能量 38 mJ

Figure 4.10 Oscillograms of the Fe: ZnSe laser pulses by sample 1. (a) absorbed pumping energy is 181 mJ; (b) absorbed pumping energy is 38 mJ



(a)



(b)

图 4.11 Fe:ZnSe 晶体样品 2 产生的激光脉冲波形，其中(a)吸收泵浦光能量 41 mJ；(b)吸收泵浦光能量 172 mJ

Figure 4.11 Oscillograms of the Fe: ZnSe laser pulses by sample 2. (a) absorbed pumping energy is 41 mJ; (b) absorbed pumping energy is 172 mJ

激光的近场光强分布由如图 4.9(b)所示 Spiricon 的光束质量分析仪(Pyrocam III, 波长 1~8 μm , 分辨率 124 $\times$ 124)获取, 通过连接 PC 端 BeamGage 软件显示。为防止光束质量分析仪损坏, 输出激光应先经过衰减片。Fe:ZnSe 晶体样品 1 产生的激光的近场三维光强分布如图 4.12 所示, Fe:ZnSe 晶体样品 2 产生的激光的

近场二维光强分布如图 4.13 所示。可以看出光强分布呈近似高斯分布。而两个样品的光强分布都存在一个问题，光束横向尺寸小于纵向尺寸。出现该现象的原因可能是泵浦光自身在两个横向和纵向上的发散角不同。另外，泵浦光以一定角度斜入射在晶体表面，对 Fe:ZnSe 激光的光斑有一定影响。

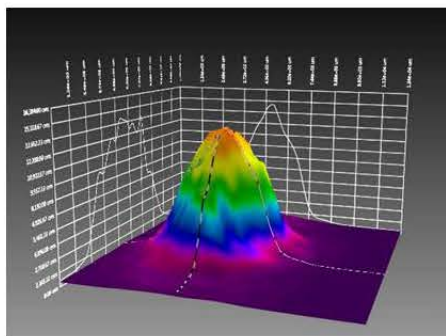


图 4.12 Fe:ZnSe 晶体样品 1 产生的激光三维强度分布

Figure 4.12 3D intensity distribution pattern of the Fe: ZnSe laser by sample 1

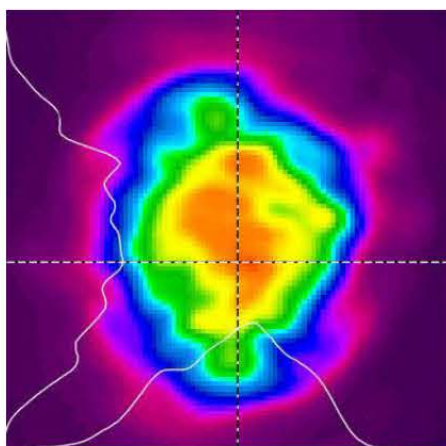


图 4.13 Fe:ZnSe 晶体样品 2 产生的激光二维强度分布

Figure 4.13 2D intensity distribution pattern of the Fe: ZnSe laser by sample 2

Fe:ZnSe 激光光谱由如图 4.9(c)所示的 Princeton 光谱仪(SP-2300)测得。Fe:ZnSe 晶体样品 1 产生激光的光谱图如图 4.14 所示，谱线的峰值在 4280 nm，线宽(FWHM)为 105 nm。Fe:ZnSe 晶体样品 2 产生激光的光谱图如图 4.15 所示，谱线峰值为 4295 nm，线宽(FWHM)为 115 nm。

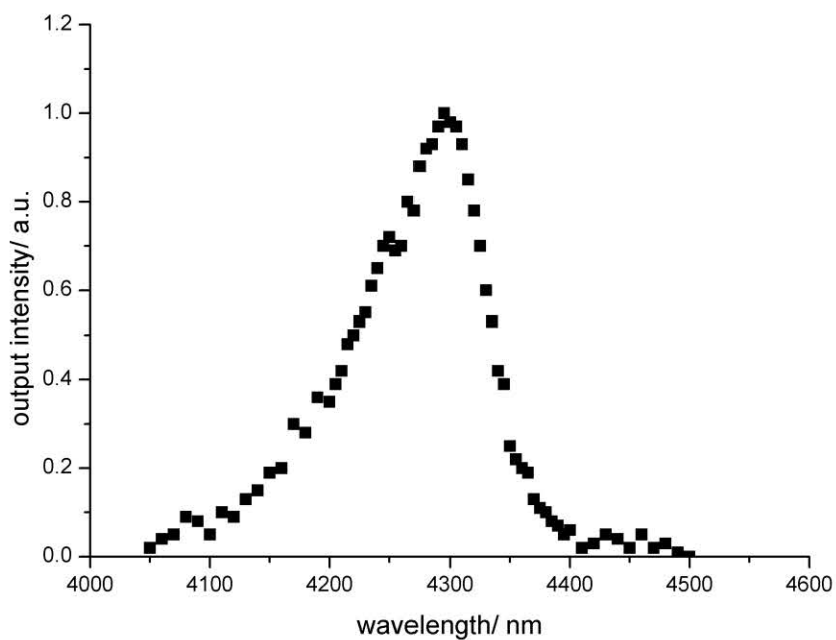


图 4.14 Fe:ZnSe 晶体样品 1 产生的激光光谱

Figure 4.14 Spectrum of Fe:ZnSe laser by sample 1

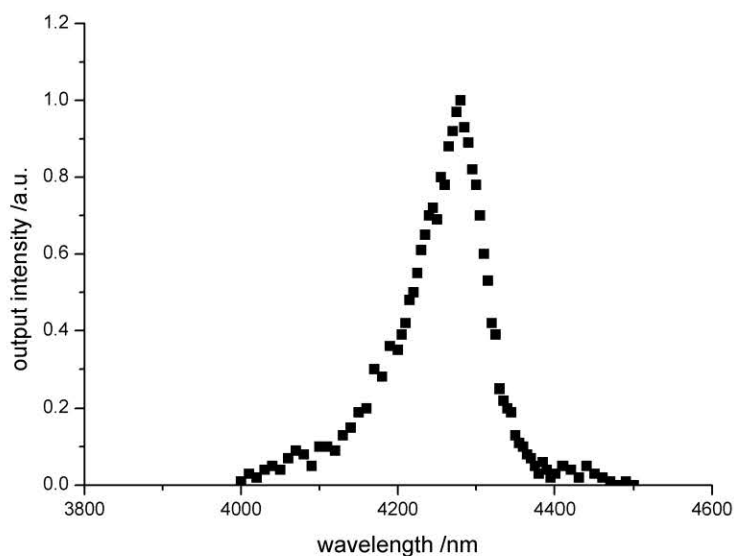


图 4.15 Fe:ZnSe 晶体样品 2 产生的激光光谱

Figure 4.15 Spectrum of Fe:ZnSe laser by sample 2

4.6 横向泵浦 Fe:ZnSe 激光器的设计

目前 Fe:ZnSe 晶体制备方法主要采用 Fe^{2+} 离子通过高温扩散进入 ZnSe 晶体完成掺杂，容易造成晶体表面附近 Fe^{2+} 离子浓度高，晶体中心区域 Fe^{2+} 离子几乎为零的明显浓度梯度，典型双表面热扩散法制备的 3.3 mm 厚 Fe:ZnSe 晶体的 Fe^{2+}

离子浓度分布情况如图 4.16 所示。

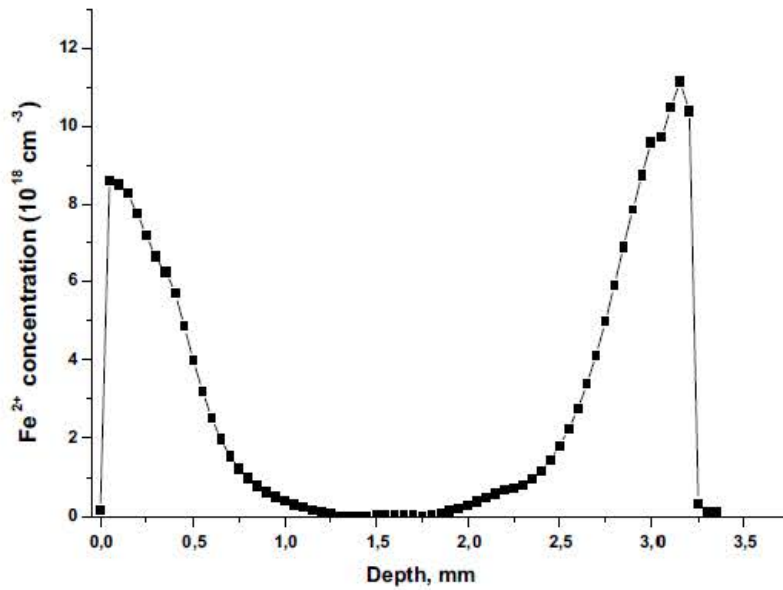


图 4.16 典型双表面热扩散法制备的 Fe:ZnSe 晶体的 Fe^{2+} 离子浓度分布情况

Figure 4.16 Concentration distribution of Fe^{2+} ions in Fe:ZnSe crystal doped by thermal diffusion from double face

目前国内外公开报道的 Fe:ZnSe 中红外激光器全部采用纵向泵浦的方案。(1) 纵向垂直入射泵浦, 即泵浦光光轴与 Fe:ZnSe 激光光轴平行; (2) 纵向小角度斜入射泵浦, 即泵浦光光轴与 Fe:ZnSe 激光光轴成较小角度。且与 Fe:ZnSe 晶体掺杂面垂直。对于纵向垂直入射泵浦方案, 泵浦光光轴与 Fe:ZnSe 激光光轴平行。Fe:ZnSe 激光器的泵浦光处在 $3\mu\text{m}$ 附近, 输出激光在 $4.3\mu\text{m}$ 附近均位于中红外波段, 双色镜的镀膜难度较大, 给应用带来很大的难度。对于纵向小角度斜入射方案, 泵浦光光轴与 Fe:ZnSe 激光光轴成较小角度, 降低了泵浦光的耦合效率, 降低了输出激光的光束质量。由于对 ZnSe 晶体进行 Fe^{2+} 掺杂时, 晶体表面附近 Fe^{2+} 离子浓度高, 晶体中心区域 Fe^{2+} 离子浓度几乎为零, 采用纵向泵浦方案时晶体中部区域无法对已有的光子进行放大, 反而由于晶体的吸收消耗部分光子, 无法形成高效激发。另外, 纵向泵浦方案由于散热性的限制, 容易形成热透镜效应, 并且泵浦能量密度过大时容易损伤晶体。因此, 纵向泵浦方案的泵浦能量不能太大, 也限制了激光输出能量。

因此, 我们提出了横向泵浦 Fe:ZnSe 激光器的方案。如图 4.17 所示, 该激光器由泵浦源、光束整形元件、Fe:ZnSe 晶体、谐振腔组成。光束整形聚焦单元用于将泵浦源发出的激光进行整形和聚焦, 包括限孔光阑和柱面透镜。限孔光阑

除了用于泵浦光斑整形外,还可方便地改变泵浦光能量。柱面透镜用于将泵浦光聚焦成与晶体高掺杂区侧面积相当的光斑,提高泵浦光的吸收率和 Fe^{2+} 离子有效激发率。激光谐振腔包括反射镜和输出耦合镜。其中,反射镜对输出激光波长高反。输出耦合镜对输出激光波长具有一定的透过率。

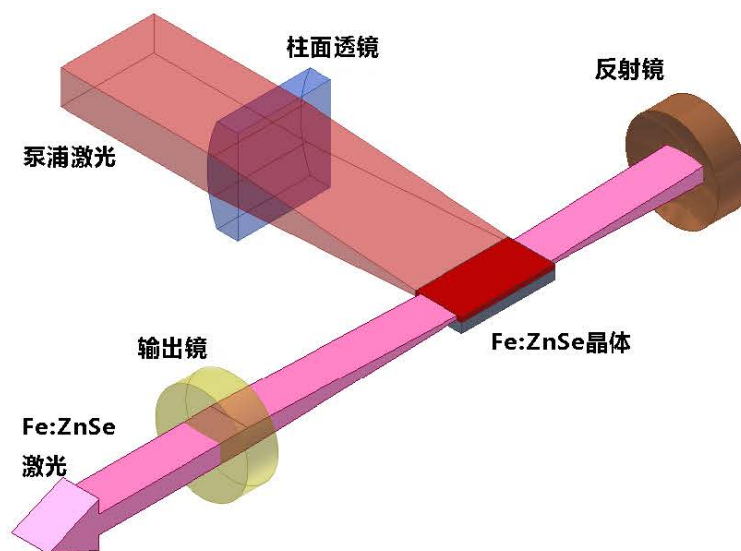


图 4.17 横向泵浦 Fe:ZnSe 激光器示意图

Figure 4.17 Configuration of transverse pumping Fe:ZnSe laser

泵浦源发出泵浦光经光阑后,由柱面透镜聚焦成长条光斑(光斑的大小与晶体高掺杂区的侧面积相当),从 Fe:ZnSe 晶体侧面垂直入射,聚焦在 Fe:ZnSe 晶体的高掺杂区表面,对 Fe:ZnSe 晶体进行泵浦。激光谐振腔光轴方向与泵浦光方向垂直,且与反射镜、输出耦合镜和晶体工作面垂直。晶体两个侧面相互平行,接收泵浦光的侧面镀增透膜,另一侧面镀高反膜,可以使得未被一次吸收的泵浦光再次回到晶体中参与泵浦。

由于对 ZnSe 晶体进行 Fe^{2+} 掺杂时,晶体表面附近 Fe^{2+} 离子浓度高,晶体中心区域 Fe^{2+} 离子浓度较低。采用横向泵浦方案可以将泵浦光有效聚焦在 Fe^{2+} 离子浓度较高的区域,从而实现更高效的激光输出。另外,相比纵向泵浦 Fe:ZnSe 激光器,横向泵浦 Fe:ZnSe 激光器提供了较大的散热面积,减小了热透镜效应对 Fe:ZnSe 激光光束的影响。可以减小对腔镜镀膜的要求,有利于工程实现。由于晶体存在一定的损伤阈值,横向泵浦方案可以使晶体承受更高的泵浦能量,从而提高 Fe:ZnSe 激光器的输出能量。

4.7 本章小结

本章进行了室温脉冲 Fe:ZnSe 激光器的初步实验研究。使用自制的非链式 HF 激光器作为泵浦源,分别采用上海光机所制备的 Fe:ZnSe 晶体样品 1 和进口 Fe:ZnSe 晶体样品 2 作为增益介质,在室温条件下进行了一系列实验。首先对晶体的透过率进行研究,为后续激光器的实验奠定基础。泵浦光能量密度增大,晶体对泵浦光的透过率增大,即晶体对泵浦光的吸收率减小。随后,利用斜入射的泵浦方案对平凹腔结构的激光器进行实验,分别探究了泵浦光能量密度和斜入射角度对激光输出的影响。入射晶体的泵浦能量不变时,光斑大小对激光输出能量没有明显的影响。泵浦光的斜入射角度越小,激光输出能量越大。最终,当激光器置于聚焦透镜的焦点处,采用 3° 的斜入射角度时,晶体样品 1 得到了最大输出能量为 78.8 mJ、输出激光能量相对于晶体吸收泵浦能量的斜率效率为 28.8% 的脉冲 Fe:ZnSe 激光输出。晶体样品 2 得到了最大输出能量为 65 mJ、输出激光能量相对于晶体吸收泵浦能量的斜率效率为 37% 的脉冲 Fe:ZnSe 激光输出。目前国内其他单位的室温脉冲 Fe:ZnSe 激光器的斜率效率最高为 4.8%,国际上相对于晶体吸收泵浦能量的斜率效率最高为 53%。本文的效率指标为国内领先水平。最后,针对热扩散方法制备 Fe:ZnSe 晶体中 Fe^{2+} 离子分布不均的特点,设计出横向泵浦 Fe:ZnSe 激光器,为进一步提高室温 Fe:ZnSe 激光器的能量和效率提供了方案。

第 5 章 总结

中红外 Fe:ZnSe 激光器具有较宽的调谐范围,在医疗、遥感和光谱学等领域都有着广泛的应用前景。由于强烈的声子猝灭,ZnSe 晶体中的 Fe^{2+} 在室温时的上能级寿命仅有 370 ns,目前常用的 3 μm 窄脉宽泵浦源能量有限,限制了室温 Fe:ZnSe 激光器的发展。本文突破传统泵浦源的限制,采用 3 μm 窄脉宽的非链式 HF 激光器作为泵浦源,在室温条件下对脉冲 Fe:ZnSe 激光器进行研究,提高了激光输出能量和效率。因此,本论文的研究具有十分重要的意义。

本论文对 HF 激光器和 Fe:ZnSe 激光器进行了实验研究,主要工作如下:

1. 进行放电引发的非链式 HF 激光器的实验研究,对预电离结构、气体组分、电容等参数进行优化,在总气压为 10.5 kPa ($\text{C}_2\text{H}_6:\text{SF}_6=1:20$),主电容和峰化电容分别为 58.7 nF、16 nF,充电电压为 34 kV 时,获得了 400 mJ 的脉冲激光输出。脉冲峰值功率为 1.5 MW,最大的电光转换效率约为 2.2%。并针对激光器内腔式结构对金属腔镜的腐蚀问题,提出了半外腔式 HF 激光器的设计。

2. 在室温条件下,开展非链式脉冲 HF 激光泵浦 Fe:ZnSe 激光器的初步实验研究。分别采用热扩散方法制备的国产 Fe:ZnSe 晶体样品 1 和进口 Fe:ZnSe 晶体样品 2 作为增益介质。利用自制的放电引发非链式脉冲 HF 激光器作为泵浦源,对晶体的透过率进行研究,为激光器的实验奠定了基础。利用斜入射的泵浦方案对平凹腔结构的 Fe:ZnSe 激光器进行实验,分别探究了泵浦光能量密度和斜入射角度对激光输出的影响。当晶体置于聚焦透镜的焦点处,采用 3° 的斜入射角度时,晶体样品 1 得到了最大输出能量为 78.8 mJ、输出激光能量相对于晶体吸收泵浦能量的斜率效率为 28.8% 的脉冲 Fe:ZnSe 激光输出;晶体样品 2 得到了最大输出能量为 65 mJ、输出激光能量相对于晶体吸收泵浦能量的斜率效率为 37% 的脉冲 Fe:ZnSe 激光输出。

3. 提出横向泵浦 Fe:ZnSe 激光器的设计方案。常用的 Fe:ZnSe 晶体制备方法高温热扩散法容易造成晶体表面附近 Fe^{2+} 离子浓度高,晶体中心区域 Fe^{2+} 离子几乎为零的明显浓度梯度。目前有报道的 Fe:ZnSe 均为纵向泵浦方案,晶体吸收泵浦不均匀,无法形成高效激光输出。横向泵浦 Fe:ZnSe 激光器可将泵浦光聚焦

在 Fe^{2+} 离子高掺杂区，有效解决纵向泵浦方案存在的弊端。

在本论文的工作中，由于实验条件和时间的限制，存在许多不足之处期待以后的工作中进一步完善：

1. 下一步将提高泵浦源非链式 HF 激光器的输出能量，从而提高 Fe:ZnSe 激光器的输出能力。
2. 针对本文提出的横向泵浦 Fe:ZnSe 的设计方案开展实验研究。进一步提高室温 Fe:ZnSe 激光器的输出能量和效率。

参考文献

- [1] Ren W, Jiang W, Tittel F K. Single-QCL-based absorption sensor for simultaneous trace-gas detection of CH₄ and N₂O[J]. Applied Physics B, 2014, 117(1):245-251.
- [2] Taubman M S, Scott D C, Myers T L, et al. Long wave infrared cavity-enhanced sensors using quantum cascade lasers[C]. ProcSPIE, 2005, 6010:60100C.
- [3] Liakat S, Bors K A, Xu L, et al. Noninvasive in vivo glucose sensing on human subjects using mid-infrared light[J]. Optics Express, 2014, 5(7): 2397-2401.
- [4] Hofstetter D, Faist J. High Performance Quantum Cascade Lasers and Their Applications [J]. Vol. 89 of Topics in Applied Physics, 2003: 6196.
- [5] Vodopyanov K. Pulsed Mid-IR optical parametric oscillators[J]. Vol. 89 of Topics in Applied Physics, 2003: 144-183.
- [6] Hadar R, Kupecek P, Rosencher E, et al. New mid-infrared optical sources based on isotropic semiconductors (zinc selenide and gallium arsenide) using total internal reflection quasi-phase-matching[J]. Opto-Electronics Review. 2003, 11(2): 155-160.
- [7] Hadar R, Mustelier A, Kupecek P, et al. Largely tunable mid-infrared (8-12 μm) difference frequency generation in isotropic semiconductors[J]. App. Phys. 2002, 91(4), 2550-2553.
- [8] Fischer C, Sigrist M W. Mid-IR Difference Frequency Generation[M]. Vol. 89 of Topics in Applied Physics, 2003: 99-143.
- [9] DeLoach L D, Page R H, Wilke G D, et al. Transition metal-doped Zinc chalcogenides: spectroscopy and laser demonstration of a new class of gain media[C]. IEEE J. Quantum Electron, 1996, 32(6): 885–895.
- [10] Page R H, Schaffers K I, Deloach L D, et al. Cr²⁺-doped zinc chalcogenides as efficient, widely tunable mid-infrared lasers[J]. IEEE Journal of Quantum Electronics, 1997, 33(4): 609-619.
- [11] Carrig T, Wagner G J, Sennaroglu A, et al. Acousto-optic mode-locking of a Cr²⁺:ZnSe laser[C]. Advanced Solid State Lasers. 2000.
- [12] Podlipensky A V, Shcherbitsky V G, Kuleshov N V, et al. Efficient laser operation and continuous-wave diode pumping of Cr²⁺:ZnSe single crystals[J]. Applied Physics B, 2001,

- 72(2):253-255.
- [13] Sorokin E, Sorokina I T. Tunable diode-pumped continuous-wave Cr^{2+} :ZnSe laser[J]. Applied Physics Letters, 2002, 80(18): 3289-3291.
 - [14] Sorokin E, Sorokina I T, Page R H. Room-temperature CW diode-pumped Cr^{2+} :ZnSe laser[C]. Advanced Solid State Lasers. Optical Society of America, 2001: 101-105.
 - [15] Wagner G J, Carrig T J, Page R H, et al. Continuous-wave broadly tunable Cr^{2+} :ZnSe laser[J]. Optics Letters, 1999, 24(1): 19-21.
 - [16] Evans J W, Berry P A, Schepler K L. A passively Q-switched CW -pumped Fe:ZnSe Laser [J]. IEEE J Quantum Electron, 2014, 50(3): 204-209.
 - [17] Adams J J, Bibeau C, Page R H, et al. 4.0-4.5- μm lasing of Fe:ZnSe below 180 K, a new mid-infrared laser material.[J]. Optics Letters, 1999, 24(23): 1720-2.
 - [18] Akimov V A, Voronov A A, Kozlovskii V I, et al. Efficient IR Fe:ZnSe laser continuously tunable in the spectral range from 3.77 to 4.40 μm [J]. Quantum Electronics, 2004, 34(10): 912-914.
 - [19] Voronov A A, Kozlovskii V I, Korostelin Y V. Laser parameters of a Fe:ZnSe crystal in the 85-255-K temperature range[J]. Quantum Electronics, 2005, 35(9): 809-812.
 - [20] Fedorov V, Martyshkin D V, Mirov M, et al. High Energy 4.1-4.6 μm Fe:ZnSe laser[C]. Proc CLEO, 2012, CM3D.3.1-2.
 - [21] Kernal J, Fedorov V V, Gallian A, et al. 3.9-4.8 μm gain-switched lasing of Fe:ZnSe at room temperature[J]. OptExpress, 2005 13(26): 10608-10615.
 - [22] Ilichev N N. Superluminescent room-temperature Fe^{2+} :ZnSe IR radiation source[J]. Quantum Electronics, 2008, 38(2): 95-96.
 - [23] Kozlovsky V I, Akimov V A, Frolov M P, et al. Room-temperature tunable mid-infrared lasers on transition-metal doped II-VI compound crystals grown from vapor phase[J]. Physica Status Solidi, 2010, 247(6): 1553-1556.
 - [24] Myoung N, Martyshkin D V, Fedorov V V, et al. Energy scaling of 4.3 μm room temperature Fe:ZnSe laser[J]. Optics Letters, 2011, 36(1): 94-96.
 - [25] Doroshenko M E, Jelinkova H, Basiev T T, et al. Fe:ZnSe laser - comparison of active materials grown, by two different methods[C]. Proc of SPIE, 2011, 7912(1): 65.
 - [26] Frolov M P, Korostelin Y V, Kozlovsky V I, et al. Study of a 2-J pulsed Fe:ZnSe 4- μm laser[J].

- Laser Physics Letters, 2013, 10(12): 5001-5007.
- [27] Frolov M P, Korostelin Yu V, Kozlovsky V I, et al. Efficient 10-J pulsed Fe:ZnSe Laser at 4100 nm.
- [28] Velikanov S D, Danilov V P, Zakharov N G, et al. Fe²⁺:ZnSe laser pumped by a nonchain electric-discharge HF laser at room temperature[J]. Quantum Electronics, 2014, 44(2): 141-144.
- [29] Firsov K N, Gavrishchuk E M, Kazantsev S Y, et al. Increasing the radiation energy of ZnSe:Fe²⁺ laser at room temperature[J]. Laser Physics Letters, 2014, 11(8): 085001.
- [30] Dormidonov A E, Firsov K N, Gavrishchuk E M, et al. High-efficiency room-temperature ZnSe:Fe²⁺ laser with a high pulsed radiation energy[J]. Applied Physics B, 2016, 122(8): 211.
- [31] Velikanov S D, Gavrishchuk E M, Zaretsky N A, et al. Repetitively pulsed Fe:ZnSe laser with an average output power of 20 W at room temperature of the polycrystalline active element[J]. Quantum Electron, 2017, 47(4): 303-307.
- [32] Voronov A A. A continuous-wave Fe²⁺:ZnSe laser[J]. Quantum Electronics, 2008, 38(12): 1113-1116.
- [33] Evans J W, Berry P A, Schepler K L. 840 mW continuous-wave Fe:ZnSe laser operating at 4140 nm[J]. Optics Letters, 2012, 37(23): 5021-3.
- [34] Fedorov V, Martyshkin D, Mirov M, et al. Fe-doped II-VI mid-infrared materials for 3~8 μm Region [C]. Proc CLEO, 2013, JM4K.2.1-3.
- [35] Evans J W, Berry P A, Schepler K L. A passively Q-switched CW-pumped Fe:ZnSe Laser [J]. IEEE J Quantum Electron, 2014, 50(3): 204-209.
- [36] 姚宝权, 夏士兴, 于快快, 等. Fe²⁺:ZnSe实现中红外波段激光输出[J]. 中国激光, 2015(1): 362-362.
- [37] 柯常军, 王东蕾, 王向永, 等. 室温Fe²⁺:ZnSe激光器获得15mJ中红外激光输出[J]. 中国激光, 2015, 42(2): 336-336.
- [38] Doroshenko M E, Jelinkova H, Nemec M, et al. Fe:ZnSe laser oscillation under cryogenic and room temperature[J]. Proc SPIE, 2013, 8599(3): 265-278.
- [39] 柯常军, 万重怡, 周锦文. 高峰值功率脉冲氟化氢激光器[J]. 激光技术, 2004, 28(5): 480-482.
- [40] Apollonov V V, Kazantsev S Y, Oreshkin V F, et al. Nonchain electric-discharge HF (DF)

- laser with a high radiation energy[J]. Quantum Electronics, 1998, 28(2): 116.
- [41] 柯常军, 张阔海, 孙科. 重复频率放电引发的脉冲HF/DF激光器[J]. 红外与激光工程, 2007: 增刊36-38.
- [42] Velikanov S D, Evdokimov P A, Zapolsky A F, et al. Pulse periodic HF (DF)-laser of atmospheric pressure with pulse repetition rate up to 2200 Hz[C]. Proc SPIE, 2009, 7131:71310-713107.
- [43] Wikimedia Commons. Zinc-selenide-unit-cell-3D-balls.png. [OL]. Benjah-bmm27, 2007 [2018-04-02]. <http://commons.wikimedia.org/wiki/File:Zinc-selenide-unit-cell-3D-balls.png>.
- [44] Xu J, Wei J. Characterization of ZnS Nanoparticles Prepared by New Route[J]. Journal of Materials Science Letters, 1999, 18(2): 115-117.
- [45] 李福珍, 周一阳. ZnSe:Fe²⁺的基态精细分裂和磁的各向异性理论研究[J]. 物理学报, 1998, 47(3): 472-477.
- [46] IPG Photonics. Cr²⁺:ZnSe and Cr²⁺:ZnS Laser Active Materials[OL]. [2018-04-02]. <https://www.ipgphotonics.com/en/products/components/mid-ir-crystals>.
- [47] Myoung N S, Fedorov V V, Mirov S B, et al. Temperature and concentration quenching of mid-IR photoluminescence in iron doped ZnSe and ZnS laser crystals[J]. Journal of Luminescence, 2012, 132(3): 600-606.
- [48] Demirbas U, Sennaroglu A, Somer M. Synthesis and characterization of diffusion-doped Cr²⁺:ZnSe and Fe²⁺:ZnSe[J]. Optical Materials, 2006, 28(3): 231-240.
- [49] 杨津基. 气体放电[M]. 科学出版社, 1983.
- [50] Babcock R, Liberman I, Partlow W. Volume ultraviolet preionization from bare sparks[J]. IEEE Journal of Quantum Electronics, 2003, 12(1): 29-34.
- [51] Suzuki S, Ishibashi Y, Obara M, et al. Dependence of laser output on initial photoelectron density in TEA CO₂ laser[J]. Applied Physics Letters, 1980, 36(1): 26-28.
- [52] Avizonis P V, Grotbeck R L. Experimental and Theoretical Ruby Laser Amplifier Dynamics[J]. Journal of Applied Physics, 1966, 37(2): 687-693.

致 谢

寒窗苦读二十年，在硕士将毕业之际，仅以此篇论文致敬一路帮扶我的师长朋友和不懈奋斗的自己。

首先，要感谢我的导师柯常军老师和吴谨老师。从研究生入学，到选题、实验、结果分析，直至论文的撰写和修改，柯老师和吴老师都给予了我无微不至的指导和关怀。第一次参加学术会议的好奇、第一次被拒稿的沮丧、第一篇论文被接收的喜悦，在老师的鼓励和关爱下，我经历了最重要且充实的三年。柯老师和吴老师严谨求实的治学态度、独具一格的创新思想和高尚的人格深深影响了我，是值得我学习和追随的榜样。感谢实验室里所有的老师和职工，他们给予了我很多的指导和帮助。

感谢实验室的黄伟师兄，他的聪慧过人，勤奋踏实值得我终生学习。感谢曾经悉心指导过我的师兄师姐，他们的帮助使我在学术道路上少走了许多弯路。愿他们工作顺利。

感谢实验室的同学和师弟师妹们，我们像家人一样相亲相爱，有他们的研究生生涯是快乐的三年。愿他们都能顺利毕业。特别感谢极其靠谱的万师弟，在我论文的撰写和修改上给予了很大的帮助。没有他的帮助，就没有这篇论文的顺利完成。

感谢我的努力踏实、多才多艺的姐姐，她是我从小到大的指路明灯。尤其在在北京的七年里，常有家人陪伴左右，很是温暖。愿她继续发大文章，拿大课题。

最后，感谢含辛茹苦把我培养成人的父母。送离家求学的我转身流泪的温暖背影，朴实却厚重。离家七年，不能常伴家人左右，深感愧疚，感谢父母和家人对我无私的爱、支持和理解，也感谢所有关心我、爱我的家人。愿他们健康、快乐。

在硕士生涯即将画上句号之时，仅以此文献给最爱的你们。有梦最美，希望相随。

2018 年 6 月

作者简历及攻读学位期间发表的学术论文与研究成果

作者简历:

2011 年 09 月——2015 年 07 月, 在北京化工大学信息学院获得学士学位。

2015 年 09 月——2018 年 07 月, 在中国科学院电子学研究所攻读硕士学位。

获奖情况:

2017 年获得中国科学院大学三好学生

已发表(或正式接受)的学术论文:

一作论文:

[1] 65 mJ 室温 $\text{Fe}^{2+}:\text{ZnSe}$ 中红外激光器. 孔心怡, 柯常军, 胡呈峰, 朱江峰, 吴天昊, 杭寅, 中国激光, 2018,45(1)

[2] 室温脉冲 $\text{Fe}^{2+}:\text{ZnSe}$ 中红外激光特性研究. 孔心怡, 柯常军, 吴天昊, 杭寅, 红外与激光工程, 2018, 47(8)

[3] 中红外 $\text{Fe}:\text{ZnSe}$ 激光技术最新研究进展. 柯常军, 孔心怡, 王然, 李志永, 红外与激光工程, 2016,45(3)

合作论文:

[1] 采用小孔等离子体开关实现 TE CO_2 激光窄脉冲整形. 柯常军, 吴天昊, 孔心怡, 钟艳红, 吴谨, 红外与激光工程, 2018, 47(10)

申请或已获得的专利:

[1] 非链式脉冲 HF 激光泵浦的 $\text{Fe}^{2+}:\text{ZnSe}$ 激光器. 孔心怡, 柯常军, 吴天昊, 王然 . 201710566385.1

[2] 横向泵浦激光器. 孔心怡, 柯常军, 吴天昊, 王然. 201711170190.1

参加的研究项目及获奖情况:

[1] 国家自然科学基金面上项目(61575198): 室温高能宽带可调谐 $\text{Fe}:\text{ZnSe}$ 中红外激光技术研究