

文章编号: 0258-7025(2010)01-0054-05

# ZnGeP<sub>2</sub>-差频中红外激光器的角调谐特性 及转换效率

李 光 王 丽

(北京工业大学应用数理学院, 北京 100124)

**摘要** 根据非线性晶体 ZnGeP<sub>2</sub>(ZGP)的色散方程、能量和动量守恒,对 ZGP-DFG 过程的调谐特性、转换效率以及此过程中的允许参量、走离效应进行了数值计算和分析,得到了 I 类和 II 类相位匹配条件下的 ZGP-DFG 角度调谐特性和转换效率。在 I 类和 II 类相位匹配条件下,分别对 ZGP, AgGaS<sub>2</sub>(AGS)和 AgGaSe<sub>2</sub>(AGSe)晶体的调谐特性进行了比较,得到了在 I 类匹配时,ZGP 的角度调谐范围为 51°~89°,对应的波长范围在 3.1~12 μm;在 II 类匹配时,波长调谐范围 6.2~11.5 μm,对应的角度调谐范围为 58°~88°。结果表明 ZGP-DFG 的走离效应较小且转换效率远大于 AGS 和 AGSe 晶体。进一步证明了 ZGP 为较好的中红外激光晶体。

**关键词** 非线性光学;中红外辐射;角度调谐;ZGP 晶体;差频产生

中图分类号 O437 文献标识码 A doi: 10.3788/CJL20103701.0054

## Tuning Properties and Conversion Efficiency in Mid-Infrared Laser Using ZnGeP<sub>2</sub>-Difference Frequency Generation

Li Guang Wang Li

(College of Applied Sciences, Beijing University of Technology, Beijing 100124, China)

**Abstract** According to the Sellmeier dispersion equation and law of energy conservation and momentum conservation, the tuning characteristics, conversion efficiency, permitted parametric and walk-off effect of ZGP-DFG have been obtained using numerical simulation in type-I and type-II phase-matched. The ranges of angle tuning were 51°~89° in type-I, and 58°~88° in type-II. The corresponding ranges of wavelength were 3.1~12 μm and 6.2~11.5 μm, respectively. In addition, the corresponding characteristics of AgGaS<sub>2</sub>(AGS) and AgGaSe<sub>2</sub>(AGSe) were compared with ZGP, and the conclusion was the walk-off effect of ZGP-DFG was small, and the conversion efficiency of ZGP-DFG was the highest among the three crystals. In summary, ZGP was a better crystal to produce the mid-infrared laser.

**Key words** nonlinear optics; mid-infrared radiation; angle tuning; ZGP crystal; difference frequency generation

### 1 引 言

中红外光源在激光制导、红外遥感和生物医药等军民用需领域有着广泛的应用。目前,通常利用非线性光学晶体的变频过程来产生中红外激光,如光参量振荡器(OPO)和差频产生(DFG)等<sup>[1,2]</sup>。黄铜矿类半导体晶体在产生中红外激光方面具备非线性光学系数高,透射范围宽的优点,在 20 世纪 60 年

代就已引起人们的注意<sup>[3]</sup>,常用的这类晶体主要有负单轴晶体 AgGaS<sub>2</sub>(AGS), AgGaSe<sub>2</sub>(AGSe)和正单轴晶体 ZnGeP<sub>2</sub>(ZGP)。其中 ZGP 具有较大的有效非线性系数和相对较高的抗损伤阈值,且机械性能好、便于加工、双折射较大,所以成为了当前应用前景好的中红外激光晶体<sup>[4]</sup>。对于通过 AGS, AGSe 两种晶体的 DFG 输出中红外激光的理论研

收稿日期:2009-02-09;收到修改稿日期:2009-04-17

基金项目:全国高等学校博士点基金(200800050013)资助项目。

作者简介:李 光(1983—),男,硕士研究生,主要从事光学频率变换、非线性光学方面的理论和实验研究。

E-mail:liguang\_1010@emails.bjut.edu.cn

导师简介:王 丽(1958—),女,教授,博士生导师,主要从事光学频率变换及其激光调谐技术、光纤通信中的非线性光学和脉冲激光沉积氧化物半导体材料的物理性质研究。E-mail:Lwang\_1@bjut.edu.cn

究,本课题组已有报道<sup>[5]</sup>;在国外,实验上已经获得了 5~17.6 μm 可调谐中红外激光输出<sup>[6]</sup>。而对于 ZGP 晶体,通过其 OPO 产生中红外输出已有不少报道<sup>[7]</sup>,但是对于 ZGP-DFG 产生中红外输出以及在此过程中的允许参量,如允许角、走离角以及转换效率等光学性质的报道却很少,其已成为研究的热点<sup>[8,9]</sup>。本文基于 ZGP 的色散方程、能量和动量守恒,通过数值模拟得到了 ZGP-DFG 的调谐特性及产生 8.5 μm 差频光时的转换效率,并与 AGS, AGSe 进行了比较。

## 2 ZGP-DFG 的数值模拟与比较分析

### 2.1 调谐特性

采用 1064 nm 抽运的 LiNbO<sub>3</sub>-OPO,在 I 类相位匹配下获得的信号光和闲频光通过 ZGP-DFG,进而获得中红外激光输出。根据能量守恒和动量守恒

$$\omega_s + \omega_i = \omega_p, \quad (1)$$

$$\omega_s - \omega_i = \omega_d. \quad (2)$$

$$\text{I 类} \quad n_{os}\omega_s = n_{ei}(\theta)\omega_i + n_{ed}(\theta)\omega_d, \quad (3)$$

$$\text{II 类} \quad n_{os}\omega_s = n_{ei}(\theta)\omega_i + n_{od}\omega_d, \quad (4)$$

单轴晶体的折射率椭球方程

$$n_c(\theta) = \frac{n_e n_o}{(n_o^2 \sin^2 \theta + n_e^2 \cos^2 \theta)^{1/2}}. \quad (5)$$

在(1)~(5)式中, $\omega_s, \omega_i, \omega_d$  和  $\omega_p$  分别为信号光频率、闲频光频率、差频光频率和抽运光频率。 $n_o, n_e$  分别为寻常光和非寻常光的折射率, $n_s, n_i, n_d$  和  $n_p$  分别为信号光、闲频光、差频光和抽运光的折射率。结合(1)~(4)式以及 ZGP 晶体的 Sellmeier 方程<sup>[10]</sup>,通过数值计算,分别得到 I 类和 II 类相位匹配时 ZGP-DFG 的角度调谐曲线,并在相同条件下与 AGS 和 AGSe 晶体进行了比较,如图 1 所示。

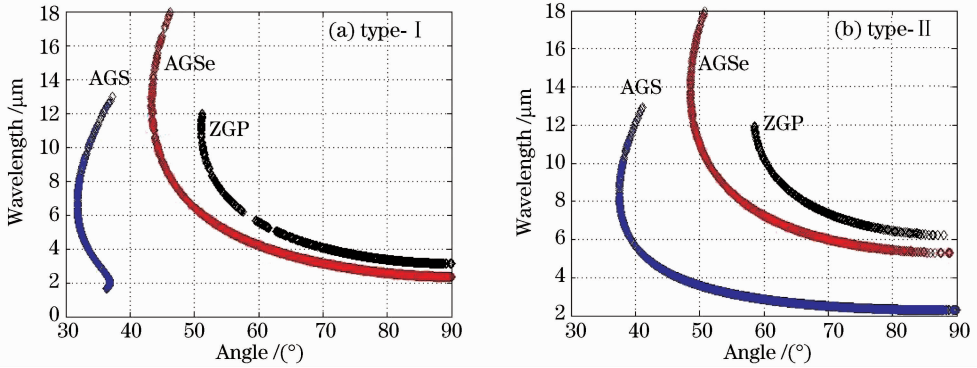


图 1 ZGP, AGS 和 AGSe 的角度调谐曲线

Fig. 1 Comparison of angle tuning of the ZGP, AGS and AGSe

由图 1 可知,ZGP 晶体在 I 类相位匹配时角度调谐范围为 51°~90°,波长连续调谐范围在 3.1~12 μm;在 II 类相位匹配时,波长调谐范围在 6.2~11.5 μm,对应的角度调谐范围为 58°~88°。两类匹配的调谐角度范围相似,但 II 类相位匹配不涵盖 3~5 μm“红外窗口区”,不利于实际应用。由于 3 种晶体的 DFG 过程的实际调谐操作依赖于 LiNbO<sub>3</sub>-OPO,它们的放置角度是指 DFG 的完全相位匹配角。所以配合 LiNbO<sub>3</sub>-OPO 的“二级”调谐角度范围越大,越便于实际操作,因此,综合来看,

ZGP 和 AGSe 晶体优于 AGS。

### 2.2 允许角随波长的变化

在 DFG 过程中,当参变光波沿相位匹配角  $\theta_m$  入射到晶体上时,可以满足完全相位匹配,即  $\Delta k = 0$ 。但在实际中很难做到这一点,即存在一个“允许角”,由

$$\Delta k = n_i \omega_i + n_d \omega_d - n_s \omega_s, \quad (6)$$

将  $\Delta k$  在  $\theta = \theta_m$  以泰勒级数<sup>[11]</sup>的形式展开,取一级近似,分别得到 I 类和 II 类相位匹配下 ZGP-DFG 的允许角随波长变化

$$\Delta\theta = \frac{1}{2L \sin \theta_m \cos \theta_m \left\{ \frac{1}{\lambda_d} [n_e^{\omega_d}(\theta_m)]^3 [(n_o^{\omega_d})^{-2} - n_e^{\omega_d}]^{-2} + \frac{1}{\lambda_i} [n_e^{\omega_i}(\theta_m)]^3 [(n_o^{\omega_i})^{-2} - n_e^{\omega_i}]^{-2} \right\}}, \quad (7)$$

$$\Delta\theta = \frac{1}{2L \sin \theta_m \cos \theta_m \frac{1}{\lambda_i} [n_e^{\omega_i}(\theta_m)]^3 [(n_o^{\omega_i})^{-2} - n_e^{\omega_i}]^{-2}}. \quad (8)$$

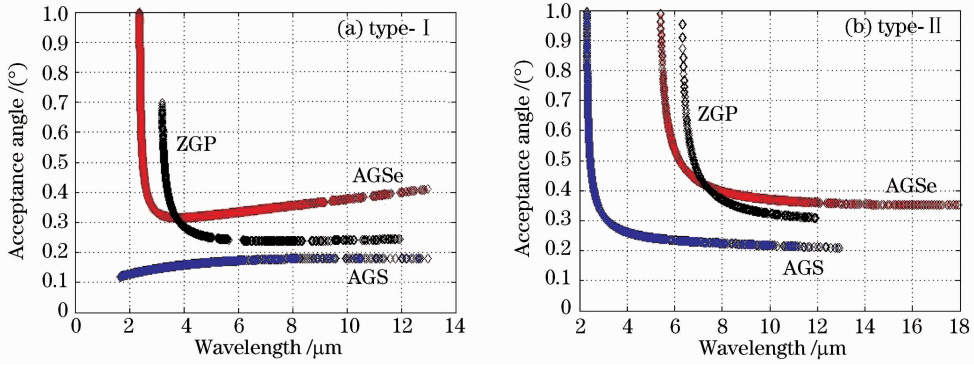


图2 允许角随波长的变化曲线

Fig. 2 Comparison curves of acceptance angle of ZGP, AGS and AGSe

(8)式中  $L$  为晶体长度,  $\lambda_s, \lambda_i, \lambda_d$  和  $\lambda_p$  分别为信号光、闲频光、差频光和抽运光的波长。假设晶体长度为 10 mm, 数值模拟得到 I, II 类相位匹配方式下 ZGP-DFG 的允许角随波长的变化, 并在同等条件下与 AGS 和 AGSe 晶体进行比较, 其曲线如图 2 所示。

由图 2 可以看出, 在 I 类相位匹配时, 4  $\mu\text{m}$  以上的波长允许角均在  $0.1^\circ \sim 0.45^\circ$  之间, 但在 4  $\mu\text{m}$  以下 AGSe 和 ZGP 的允许角都有一个比较迅速的上升, 允许角变大。II 类匹配时, 随着差频光波长的增大, 允许角有一个明显的下降, 并在  $0.2^\circ \sim 0.4^\circ$  之间趋于稳定。对于 ZGP 晶体, I 类匹配下允许角范围为  $0.25^\circ \sim 0.7^\circ$ , II 类则在  $0.3^\circ \sim 0.98^\circ$ , 所对应的调谐波长分别为 3~12  $\mu\text{m}$  和 6.2~12  $\mu\text{m}$ 。

### 2.3 走离角随波长的变化

在单轴晶体中, 由于参量光之间不同的偏振态 (匹配方式不同), 导致的光束在有限孔径内发生分离。这种波矢和光线方向偏离的角度称作“走离角”。o 光不存在走离效应, 而 e 光则有走离角  $\alpha$ 。走离角的公式为<sup>[12]</sup>

$$\alpha = \arctan \left\{ \frac{|(n_e^o)^2 - (n_o^o)^2| \sin 2\theta_m}{2[(n_o^o)^2 \sin^2 \theta_m + (n_e^o)^2 \cos^2 \theta_m]} \right\}. \quad (9)$$

由于信号光和闲频光是正交偏振, 采用信号光为 o 光, 所以 e 光只能是闲频光。由于 ZGP 为正单轴晶体, AGS 和 AGSe 为负单轴晶体, 所以对于 ZGP-DFG 的走离效应, 只分析 I 类相位匹配, 而对于 AGS, AGSe 晶体则分析 II 类相位匹配。经过模拟, 得到了 3 种晶体走离角随波长变化的曲线, 如图 3 所示。

可以看出, AGSe 和 ZGP 的走离角随波长增大而逐渐增大, 最大不超过  $0.8^\circ$ 。但 AGS 的走离角却在 2.3  $\mu\text{m}$  处随波长增大而急剧增大到  $1.3^\circ$  左右。对

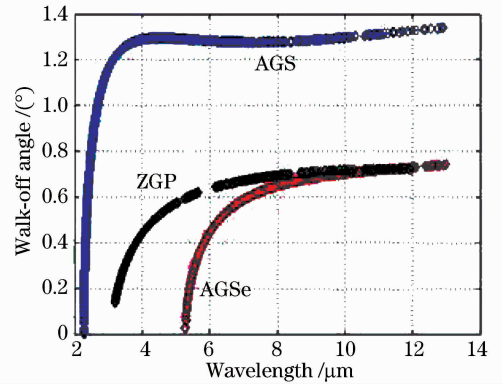


图3 ZGP, AGS 和 AGSe 的走离角曲线

Fig. 3 Comparison of walk-off angle of ZGP, AGS, and AGSe

于 ZGP 晶体, 走离角随差频光波长的增大从  $0.14^\circ$  增长到  $0.72^\circ$ , 其对应的差频波长为 3~12  $\mu\text{m}$ 。

### 2.4 转换效率随抽运功率及相位失配的变化

假设使用 I 类转换效率为 20% 的 DRO 型  $\text{LiNbO}_3$ -OPO (因为阈值比较低, 最高只有  $0.55 \text{ MW/cm}^2$ ) 作为抽运源, 且控制其信号光和闲频光的光子通量比为 4:1, 通过对差频光光子通量的大信号公式<sup>[11]</sup>进行近似处理, 可以得到中红外激光 8.5  $\mu\text{m}$  的转换效率公式为

$$\eta = \frac{I_d}{I_{\text{LN-pump}}} = 0.0125 \frac{\lambda_s}{\lambda_d} \frac{e^{2u} + e^{-2u} - 2 \left[ \frac{\sin(\Delta k L / 2)}{\Delta k L / 2} \right]^2}{e^{2u} + e^{-2u} + 2 \left[ \frac{\sin(\Delta k L / 2)}{\Delta k L / 2} \right]^2}, \quad (10)$$

式中  $u = \left( \frac{1.125 \times \pi^2 I_{\text{LN-pump}} L^2 d_{\text{eff}}^2}{c \epsilon_0 n_i n_d n_s \lambda_d \lambda_i} \right)^{1/2}$ ,  $L$  为晶体长度,  $\Delta k$  为相位失配,  $I_d$  为差频光强度,  $I_{\text{LN-pump}}$  为铌酸锂 (LN) 光参量振荡器的抽运强度。通过 (10) 式, 可以模拟出在  $L = 10 \text{ mm}$ ,  $\Delta k = 0$  时, 总转换效率随  $\text{LiNbO}_3$ -OPO 抽运光强度的变化曲线, 以及  $L = 10 \text{ mm}$ ,  $I_{\text{LN-pump}} = 100 \text{ MW/cm}^2$  时, 转换效率随  $\Delta k$

的变化,并与 AGS, AGSe 做了比较,如图 4 和图 5 所示。

从图 4 可以看出,由于是级联系统,转换效率比较低(2.5%以下)。3 种晶体的 DFG 过程总转换效率均随抽运光强递增,其中 ZGP 晶体的转换效率最大。究其原因,为 ZGP 晶体具有较大的有效非线性系数  $d_{\text{eff}}$ (75.4 pm/V)所致。此外,由于晶体尺寸一

定,在抽运功率增大的过程中,转换效率出现了饱和和趋势。而图 5 则显示出,3 种晶体的转换效率均随  $\Delta k$  的增大而减小,在  $\Delta k = \pm 2$  rad/cm 时,转换效率降为零。但在同样的相位失配下,转换效率最高的依然是 ZGP 晶体。可见,ZGP 晶体在产生中红外输出的转换效率方面是绝对优于另外两种晶体的。ZGP, AGSe 和 AGS 的性能参数如表 1 所示。

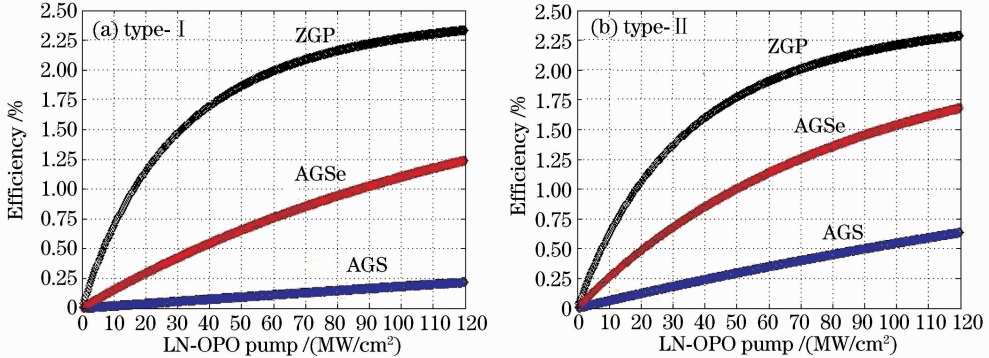


图 4 转换效率随 LN-OPO 抽运强度的变化

Fig. 4 Total efficiency versus pump power using ZGP, AGS and AGSe

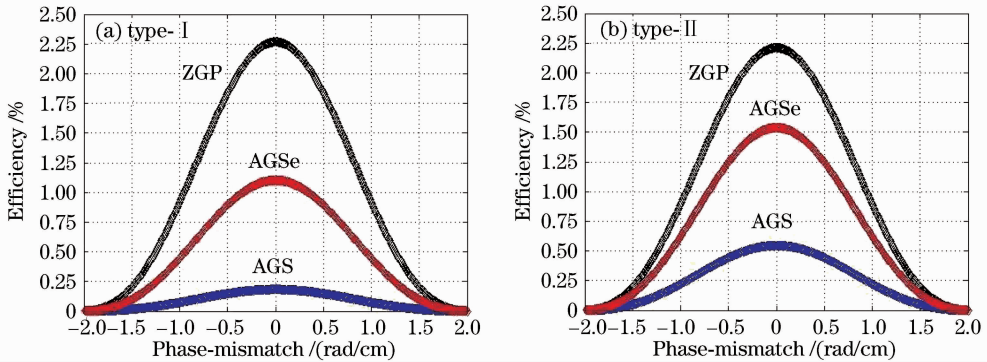


图 5 转换效率随相位失配的变化

Fig. 5 Efficiency versus phase-mismatch of the ZGP, AGS and AGSe

表 1 ZGP, AGSe 以及 AGS 的性能参数

Table 1 Parameters of ZGP, AGSe and AGS

	AGS	AGSe	ZGP
Symmetry type	42m	42m	42m
Transmission range / $\mu\text{m}$	0.5~13	0.71~18	0.74~12
Effective nonlinear coefficient /(pm/V)	13.4	33.1	75.4
Damage threshold /(MW/cm <sup>2</sup> ) (10.6 $\mu\text{m}$ , 150 ns)	10~20	10~20	60
Thermal conductivity /[W/(cm·k)]	0.015	0.011	0.18

### 3 结 论

通过计算机数值模拟了 ZGP 晶体 I 类和 II 类相位匹配的角度调谐和转换效率,并与 AGS 和 AGSe 晶体做了比较,以及对其进行分析比较。实验发现,在 DFG 产生可调谐中红外输出方面,ZGP 和 AGSe 晶体优于 AGS 晶体。但如果进一步考虑

到 ZGP 比另外两种晶体有更大的有效非线性系数(从而具有较高的转换效率)、更高的损伤阈值、更好的机械性能以及适合应用于高功率环境的优点,ZGP 晶体则可以说是一种利用 DFG 产生中红外激光输出的良好的非线性晶体材料。

## 参 考 文 献

- 1 Bian Jintian, Qin Shujun, Nie Jinsong *et al.*. Experimentation of tunable all-solid-state laser producing 4~5  $\mu\text{m}$  radiation [J]. *Chinese J. Lasers*, 2006, **33**(1):9~12  
卞进田,秦树军,聂劲松等. 4~5  $\mu\text{m}$  全固化可调谐激光实验研究[J]. *中国激光*, 2006, **33**(1):9~12
- 2 Peng Yuefeng, Lu Yanhua, Xie Gang *et al.*. Investigation of quasi-phase-matched optical parametric oscillator based on PPMgLN [J]. *Chinese J. Lasers*, 2008, **35**(5):670~674  
彭跃峰,鲁燕华,谢刚等. 准相位匹配 PPMgLN 光参量振荡技术[J]. *中国激光*, 2008, **35**(5):670~674
- 3 Yang Chunhui, Zhang Jian. Development of new middle and far infrared nonlinear optical crystals ZnGeP<sub>2</sub> [J]. *Journal of Synthetic Crystals*, 2006, **35**(4):785~789  
杨春晖,张建. 新型中远红外波段非线性光学晶体磷化锗锌 [J]. *人工晶体学报*, 2006, **35**(4):785~789
- 4 Dong Chunming, Wang Shanpeng, Tao Xutang. Research and development of mid-infrared nonlinear optical crystals [J]. *Journal of Synthetic Crystals*, 2006, **35**(4):785~789  
董春明,王善朋,陶绪堂. 中红外非线性光学晶体的研究进展 [J]. *人工晶体学报*, 2006, **35**(4):785~789
- 5 Song Yue, Wang Li. Properties of mid-infrared radiation of difference frequency generation on AgGaS<sub>2</sub> and AgGaSe<sub>2</sub> crystal [J]. *Laser Journal*, 2007, **28**(4):28~29  
宋玥,王丽. 利用 AgGaS<sub>2</sub> 与 AgGaSe<sub>2</sub> 晶体差频获得中红外射线的性能研究[J]. *激光杂志*, 2007, **28**(4):28~29
- 6 Kazi Sarwar Abedin, Sajjad Haidar, Yuji Konno *et al.*. Difference frequency generation of 5~18  $\mu\text{m}$  in a AgGaSe<sub>2</sub> crystal [J]. *Appl. Opt.*, 1998, **37**(9):1642~1645
- 7 Yao Baoquan, He Wanjuan, Li Yufeng *et al.*. Technical study of ZnGeP<sub>2</sub> optical parametric oscillator pumped by a 2  $\mu\text{m}$  Tm, Ho:YLF laser [J]. *Chinese J. Lasers*, 2005, **32**(1):39~42  
姚宝权,贺万骏,李玉峰等. 2  $\mu\text{m}$  Tm, Ho:YLF 激光抽运 ZnGeP<sub>2</sub> 光参量振荡技术研究[J]. *中国激光*, 2005, **32**(1):39~42
- 8 J. Saikawa, M. Miyazaki, M. Fujii *et al.*. Tunable, narrow-bandwidth mid-IR generation in ZnGeP<sub>2</sub> crystals pumped by a large aperture periodically poled Mg doped LiNbO<sub>3</sub> optical parametric system [C]. *Advanced Solid-State Photonics*, 2008. MC46
- 9 S. Pei, S. Tu, A. H. Kung. Mid-IR generation by difference frequency mixing of two pulsed PPLN OPOs in ZnGeP<sub>2</sub> [C]. *Lasers and Electro-Optics/Quantum Electronics and Laser Science and Photonic Applications Systems Technologies*, 2005. JTuC4
- 10 Liu Qiang, Gong Mali, Yan Ping *et al.*. Phase-matching of optical parametric oscillator [J]. *Laser Journal*, 2002, **23**(2):1~4  
柳强,巩马理,闫平等. 光学参量振荡器的相位匹配[J]. *激光杂志*, 2002, **23**(2):1~4
- 11 Shi Shunxiang, Chen Guofu, Zhao Wei *et al.*. Nonlinear Optics [M]. Xi'an: Xidian University Press, 2003. 127~160  
石顺祥,陈国夫,赵卫等. 非线性光学[M]. 西安:西安电子科技大学出版社, 2003. 127~160
- 12 Tian Wen, Ren Gang, Cai Bangwei *et al.*. Calculation and analysis of ZnGeP<sub>2</sub> optical parametric oscillator [J]. *Laser Journal*, 2006, **30**(1):104~106  
田文,任刚,蔡邦维等. ZnGeP<sub>2</sub> 光参变振荡器晶体参数的数值分析[J]. *激光技术*, 2006, **30**(1):104~106