

65 mJ 室温 $\text{Fe}^{2+}:\text{ZnSe}$ 中红外激光器

孔心怡^{1,3}, 柯常军¹, 胡呈峰², 朱江峰², 吴天昊^{1,3}, 杭寅⁴

¹中国科学院电子学研究所先进激光技术部, 北京 100190;

²西安电子科技大学, 陕西 西安 710071;

³中国科学院大学, 北京 100190;

⁴中国科学院上海光学精密机械研究所, 上海 201800

摘要 $\text{Fe}^{2+}:\text{ZnSe}$ 晶体作为 $3\sim 5\ \mu\text{m}$ 波段极具潜力的中红外激光介质之一, 在材料特性和转换效率等方面具有明显优势。对 $\text{Fe}^{2+}:\text{ZnSe}$ 晶体的吸收特性进行了研究, 利用自制放电引发的非链式脉冲 HF 激光抽运 Fe^{2+} 掺杂浓度为 $4\times 10^{18}\ \text{cm}^{-3}$ 、尺寸为 $10\ \text{mm}\times 10\ \text{mm}\times 5\ \text{mm}$ 的 $\text{Fe}^{2+}:\text{ZnSe}$ 晶体, 在室温下获得了 65 mJ 的高能量 $\text{Fe}^{2+}:\text{ZnSe}$ 中红外激光输出, 光光转换效率为 31%, 输出激光能量相对于晶体吸收抽运光能量的斜率效率可达 37%。

关键词 激光器; 中红外激光; $\text{Fe}^{2+}:\text{ZnSe}$ 激光; 脉冲 HF 激光; 过渡金属离子掺杂 II—VI 族化合物

中图分类号 O436

文献标识码 A

doi: 10.3788/CJL201845.0101011

65 mJ $\text{Fe}^{2+}:\text{ZnSe}$ Mid-Infrared Laser at Room Temperature

Kong Xinyi^{1,3}, Ke Changjun¹, Hu Chengfeng², Zhu Jiangfeng²,
Wu Tianhao^{1,3}, Hang Yin⁴

¹Department of Advanced Laser Technology, Institute of Electronics, Chinese Academy of Sciences,
Beijing 100190, China;

²Xidian University, Xi'an, Shaanxi 710071, China;

³University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China;

⁴Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China

Abstract As one of the most promising mid-infrared laser mediums in $3\sim 5\ \mu\text{m}$ wavelength region, $\text{Fe}^{2+}:\text{ZnSe}$ crystal has many advantages in material property and conversion efficiency. The absorption characteristic of $\text{Fe}^{2+}:\text{ZnSe}$ is investigated. A $\text{Fe}^{2+}:\text{ZnSe}$ crystal with size of $10\ \text{mm}\times 10\ \text{mm}\times 5\ \text{mm}$ and Fe^{2+} doping concentration of $4\times 10^{18}\ \text{cm}^{-3}$ is excited by a non-chain electric-discharge pulsed HF laser at room temperature. The maximum output energy reaches 65 mJ and the optical to optical conversion efficiency is 31%. The slope efficiency respecting to the absorbed pump energy is 37%.

Key words lasers; mid-infrared laser; $\text{Fe}^{2+}:\text{ZnSe}$ laser; pulsed HF laser; transition-metal doped in II—VI compound

OCIS codes 140.3070; 140.3580

1 引言

处于大气传输窗口 $3\sim 5\ \mu\text{m}$ 波段的激光源在激光雷达、遥感、环境保护、医疗、通信和工业控制等民用领域具有广阔的应用前景。在军事领域, 目标

定位、红外对抗等对该波段激光源的应用也不断增长^[1-3]。目前, 可实现该波段激光输出的技术主要有半导体量子级联激光器和复杂的非线性光学变换技术(包括光学参量振荡(OPO)和差频(DFG)技术)^[4-5]。这些技术由于内在缺陷, 使得相应的激光

收稿日期: 2017-07-14; 收到修改稿日期: 2017-09-11

基金项目: 国家自然科学基金(60708005, 61178029, 61575198)

作者简介: 孔心怡(1994—), 女, 硕士研究生, 主要从事中红外激光器方面的研究。E-mail: kongxinyi15@mails.ucas.ac.cn

导师简介: 柯常军(1973—), 男, 博士, 研究员, 主要从事红外激光技术及其应用方面的研究。

E-mail: cjke@mail.ie.ac.cn(通信联系人)

器存在可靠性差、结构复杂、造价昂贵等缺点,且有些关键技术指标(如输出激光能量、波长调谐范围等)无法满足实际应用的需求。1996年美国Lawrence Livermore实验室的DeLoach等^[6]首次提出并论证了过渡金属离子掺杂II—VI族化合物作为增益介质在中红外激光领域的优势和潜力。随后,以 $\text{Cr}^{2+}:\text{ZnS}$ 、 $\text{Cr}^{2+}:\text{ZnSe}$ 晶体等作为增益介质的各类激光器被相继报道。与 Cr^{2+} 类似, Fe^{2+} 掺杂II—VI族化合物晶体具有发射截面大、吸收带较宽的优点,同时基质晶体 ZnSe 在红外波段的透过光谱宽,具有良好的导热性能。 $\text{Fe}^{2+}:\text{ZnSe}$ 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。Adams等^[7]在低温下实现了 $\text{Fe}^{2+}:\text{ZnSe}$ 脉冲激光输出,130 K温度时的最高输出能量为 $12 \mu\text{J}$,波长调谐范围为 $3.98 \sim 4.54 \mu\text{m}$ 。 $\text{Fe}^{2+}:\text{ZnSe}$ 激光器作为一种通过直接抽运来获得高效激光输出的新型中红外固体激光器受到广泛关注^[8-10]。

在相当长的一段时间内,由于缺乏合适的窄脉宽抽运源, $\text{Fe}^{2+}:\text{ZnSe}$ 激光的研究仅限于低温条件下,直到2005年,Kernal等才实现了室温条件下的脉冲 $\text{Fe}^{2+}:\text{ZnSe}$ 激光输出^[11]。原因是 $\text{Fe}^{2+}:\text{ZnSe}$ 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,低温时仅为数十 μs ,常温时为 370 ns ^[12]。在低温下运转 $\text{Fe}^{2+}:\text{ZnSe}$ 激光器,冷却装置会极大地增加系统的复杂性,给应用带来了许多不便。在室温下若要形成高能量高效率的 $\text{Fe}^{2+}:\text{ZnSe}$ 激光输出,则需要抽运源的脉宽足够窄。目前报道的 $3 \mu\text{m}$ 波段的窄脉宽抽运源主要为各类调Q固体激光器,该类激光器的最大输出能量为 137 mJ ^[13],采用此类抽运源的 $\text{Fe}^{2+}:\text{ZnSe}$ 激光器输出最大脉冲能量仅为 6 mJ ^[14]。因此,为了获取高能高效的 $\text{Fe}^{2+}:\text{ZnSe}$ 激光输出,必须寻求更高能量的 $3 \mu\text{m}$ 波段窄脉冲激光抽运源。放电引发的非链式脉冲HF激光脉冲能量可达数焦耳,甚至百焦耳量级,远高于晶体的损伤阈值^[15-16],脉宽为 $100 \sim 300 \text{ ns}$,波长为 $2.6 \sim 3.1 \mu\text{m}$,正好处于 $\text{Fe}^{2+}:\text{ZnSe}$ 晶体吸收带的中部,重复频率运转可实现高平均功率的激光输出^[17],是室温高能 $\text{Fe}^{2+}:\text{ZnSe}$ 激光器的理想抽运源。2014年,Firsov等^[18]在室温条件下利用非链式HF激光抽运源实现了单脉冲能量为 192 mJ 的 $\text{Fe}^{2+}:\text{ZnSe}$ 激光输出,斜率效率为29%。2017年,Velikanov等^[19]在室温条件下利用HF激光抽运源实现了单脉冲能量为 1.67 J 的 $\text{Fe}^{2+}:\text{ZnSe}$

激光输出,斜率效率为43%,在 20 Hz 重复频率运转时实现了平均功率为 20 W 的 $\text{Fe}^{2+}:\text{ZnSe}$ 激光输出。目前,国内关于 $\text{Fe}^{2+}:\text{ZnSe}$ 中红外激光技术的研究还处于起步阶段。2015年,姚宝权等^[20]采用脉冲重复频率为 1 kHz 的 ZnGeP_2 光学参量振荡器抽运 $2 \text{ mm Fe}^{2+}:\text{ZnSe}$ 晶体,获得了平均功率为 53 mW 的激光输出,效率为4.8%。2015年,柯常军等^[21]采用放电引发的非链式HF激光器作为抽运源,在室温下获得了 15 mJ 的 $\text{Fe}^{2+}:\text{ZnSe}$ 激光输出,斜率效率为15%。

本文对 $\text{Fe}^{2+}:\text{ZnSe}$ 晶体的吸收特性进行了研究,利用自制放电引发的非链式脉冲HF激光抽运 Fe^{2+} 掺杂浓度为 $4 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ 、尺寸为 $10 \text{ mm} \times 10 \text{ mm} \times 5 \text{ mm}$ 的 $\text{Fe}^{2+}:\text{ZnSe}$ 晶体,在室温下获得了 65 mJ 的高能 $\text{Fe}^{2+}:\text{ZnSe}$ 中红外激光输出。光光转换效率为31%,输出激光能量相对于晶体吸收抽运光能量的斜率效率可达37%。

2 $\text{Fe}^{2+}:\text{ZnSe}$ 激光器实验装置

$\text{Fe}^{2+}:\text{ZnSe}$ 激光器实验装置如图1所示。抽运源为自制放电引发的非链式脉冲HF激光器,激光介质总气压为 8.8 kPa (SF_6 与 C_2H_6 的体积比为10:1),脉冲能量随充电电压的改变在 $10 \sim 350 \text{ mJ}$ 范围内可调。典型的激光脉冲波形如图2所示。激光脉冲波形带有陡峭的上升沿,脉冲宽度为 300 ns ,小于室温下 Fe^{2+} 的上能级寿命。HF激光经限孔光阑后,由透镜聚焦到 $\text{Fe}^{2+}:\text{ZnSe}$ 晶体表面中心。透镜的焦距为 25 cm ,晶体距透镜 21 cm 。由于 $\text{Fe}^{2+}:\text{ZnSe}$ 激光器的抽运光和输出激光均位于中红外波段,双色镜的镀膜难度较大,因此实验采用斜入射的抽运方式,抽运光与谐振腔轴线的夹角为 3° 。 $\text{Fe}^{2+}:\text{ZnSe}$ 激光谐振腔采用平凹腔结构,其中反射镜M1是曲率半径为 50 cm 的凹面铜镜,在 $4 \mu\text{m}$ 处的反射率为99%,输出镜M2为平面锗镜。晶体工作面垂直于谐振腔光轴放置,工作面中心位于光轴上,M1与晶体表面之间的腔长为 13 cm ,M2与晶

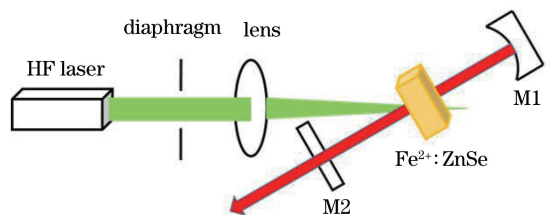


图1 $\text{Fe}^{2+}:\text{ZnSe}$ 激光器的实验装置图

Fig. 1 Experimental setup of $\text{Fe}^{2+}:\text{ZnSe}$ laser

体表面的距离为 18 cm。该腔为稳定腔,对激光的损耗较小。

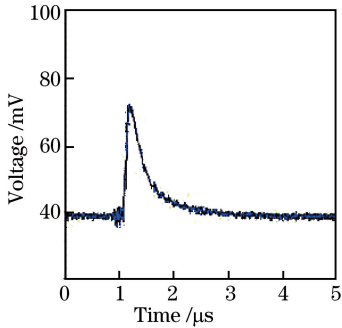


图 2 典型的 HF 激光脉冲波形

Fig. 2 Typical HF laser pulses oscillogram

实验中,增益介质采用 Fe^{2+} 掺杂浓度为 $4 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ 的 $\text{Fe}^{2+}:\text{ZnSe}$ 晶体。 $\text{Fe}^{2+}:\text{ZnSe}$ 晶体的尺寸为 $10 \text{ mm} \times 10 \text{ mm} \times 5 \text{ mm}$,晶体表面未镀膜,两工作表面的平行度为 $20''$ 。采用傅里叶红外光谱仪测量晶体在 $2.5 \sim 5.0 \mu\text{m}$ 波段的透过率,结果如图 3 所示。 $\text{Fe}^{2+}:\text{ZnSe}$ 晶体对 $2.6 \sim 3.1 \mu\text{m}$ 光的透过率较小,实验中采用的抽运源可对该晶体实现高效抽运。

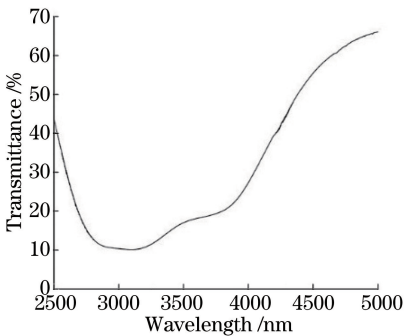


图 3 $\text{Fe}^{2+}:\text{ZnSe}$ 晶体的透过率曲线

Fig. 3 Transmittance of $\text{Fe}^{2+}:\text{ZnSe}$ crystal

3 实验结果与分析

实验在室温下进行。抽运能量、未被晶体吸收的抽运能量及输出激光能量分别采用 Gentec 公司的 ED-500LIR 能量计测得。计算抽运能量和未被晶体吸收的抽运能量的差值即可得到被晶体吸收的抽运能量。吸收率为晶体吸收抽运能量与入射抽运能量的比值。 $\text{Fe}^{2+}:\text{ZnSe}$ 晶体的吸收率与 Fe^{2+} 上能级寿命、晶体吸收截面和入射抽运光强度等因素有关^[22]。当抽运能量由 50 mJ 增大到 364 mJ 时,晶体对抽运光的吸收能量由 41 mJ 增大到 210 mJ。室温下,晶体对抽运光吸收率及晶体对抽运光的吸收能量随抽运能量的变化如图 4 所示。随着抽运能

量增大,抽运光能量密度增大,晶体对抽运光的吸收率减小。由图 4 可知,晶体吸收抽运光未达到饱和。

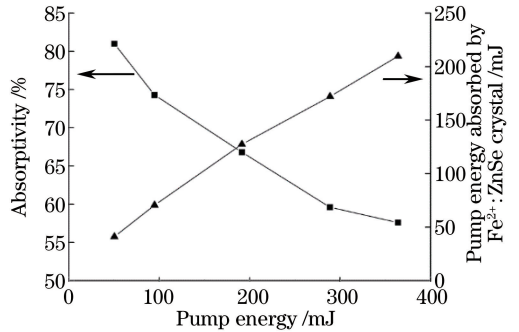


图 4 吸收率及 $\text{Fe}^{2+}:\text{ZnSe}$ 晶体吸收抽运能量随抽运能量的变化

Fig. 4 Variations of absorptivity or pump energy absorbed by $\text{Fe}^{2+}:\text{ZnSe}$ crystal with pump energy

$\text{Fe}^{2+}:\text{ZnSe}$ 激光输出能量随晶体吸收抽运能量的变化如图 5 所示。当吸收抽运能量为 210 mJ 时, $\text{Fe}^{2+}:\text{ZnSe}$ 激光器的单脉冲最大输出能量为 65 mJ, 光光转换效率为 31%。输出激光能量相对于晶体吸收抽运能量的斜率效率为 37%。

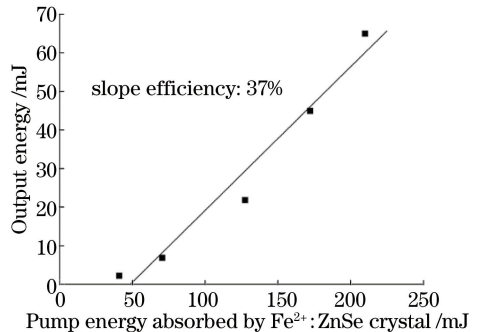


图 5 输出激光能量随 $\text{Fe}^{2+}:\text{ZnSe}$ 晶体吸收抽运能量的变化

Fig. 5 Variation of output energy with pump energy absorbed by $\text{Fe}^{2+}:\text{ZnSe}$ crystal

$\text{Fe}^{2+}:\text{ZnSe}$ 激光脉冲波形由 VIGO 公司 PVM 红外探测器(时间常数不大于 1.5 ns)接收,由示波器(DSO-X3034A 型, 350 MHz)记录,如图 6 所示。当晶体吸收抽运能量为 41 mJ 时,输出激光脉宽为 30 ns,输出激光脉宽随着晶体吸收抽运能量的增大而逐渐增大。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抽运能量的增大而增大,且平台中尖峰的数量和调制深度与抽运能量有关。出现该现象的可能原因是弛豫振荡效应。当抽运能量增大时,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,且抽运能量越大,尖峰形成得越快。 $\text{Fe}^{2+}:\text{ZnSe}$ 激光的近场二维光强分布如图 7 所

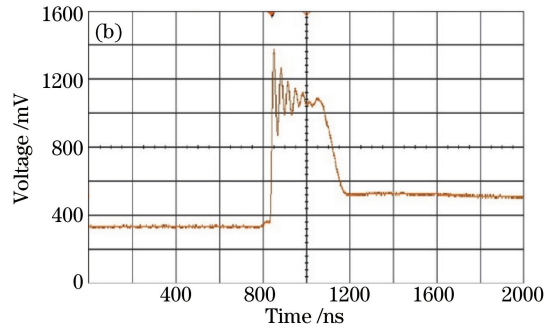
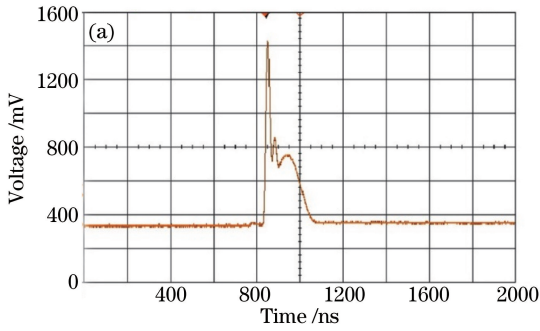


图 6 $\text{Fe}^{2+}:\text{ZnSe}$ 激光脉冲波形。(a)吸收抽运光能量 41 mJ;(b)吸收抽运光能量 172 mJ

Fig. 6 $\text{Fe}^{2+}:\text{ZnSe}$ laser pulse oscillograms. (a) Absorbed pump energy of 41 mJ;
(b) absorbed pump energy of 172 mJ

示,呈近似高斯分布,光束横向尺寸小于纵向尺寸,这主要是由抽运光在两个方向上的发散角不同引起的。 $\text{Fe}^{2+}:\text{ZnSe}$ 激光的光谱图如图8所示,谱线的峰值位于 4280 nm,线宽(FWHM)为 105 nm。

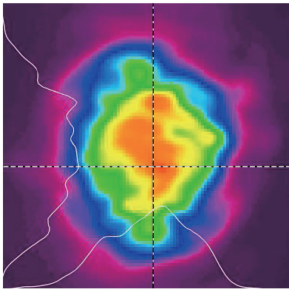


图 7 $\text{Fe}^{2+}:\text{ZnSe}$ 激光二维强度分布

Fig. 7 2D intensity distribution pattern of $\text{Fe}^{2+}:\text{ZnSe}$ laser

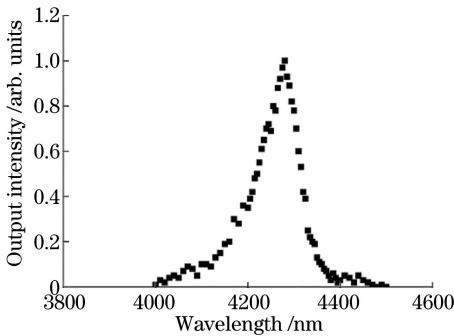


图8 $\text{Fe}^{2+}:\text{ZnSe}$ 激光光谱

Fig. 8 Spectrum of $\text{Fe}^{2+}:\text{ZnSe}$ laser

4 结 论

采用自制的非链式脉冲 HF 激光器抽运 $\text{Fe}^{2+}:\text{ZnSe}$ 晶体。在室温下,对 $\text{Fe}^{2+}:\text{ZnSe}$ 激光器进行研究后发现: $\text{Fe}^{2+}:\text{ZnSe}$ 晶体对抽运光的吸收率随抽运能量的增大而减小,激光脉宽随抽运能量的增大而线性增大,实现了单脉冲能量为 65 mJ 的激光输

出;光光转换效率为 31%,输出激光能量相对于晶体吸收抽运能量的斜率效率可达 37%。

参 考 文 献

- [1] Taubman M S, Scott D C, Myers T L, *et al.* Long wave infrared cavity enhanced sensors using quantum cascade lasers[C]. SPIE, 2005, 6010: 60100C.
- [2] Sabbir L, Kevin A B, Laura X, *et al.* Noninvasive *in vivo* glucose sensing on human subjects using mid-infrared light[J]. Optics Express, 2014, 5(7): 2397-2401.
- [3] Ren W, Jiang W Z, Frank K. Single-QCL-based absorption sensor for simultaneous trace-gas detection of CH_4 and N_2O [J]. Applied Physics B, 2014, 117: 245-251.
- [4] Hofstetter D, Faist J. High performance quantum cascade lasers and their applications[M]//Solid-state mid-infrared laser sources. [S. l.]: Springer, 2003: 61-98.
- [5] Vodopyanov K. Pulsed mid-IR optical parametric oscillators [M/OL]//Solid-state mid-infrared laser sources, 2003: 141-178 [2017-07-14]. <https://link.springer.com/content/pdf/10.1007%2F3-540-36491-9.pdf>.
- [6] 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 [J]. IEEE Journal of Quantum Electronics, 1996, 32(6): 885-895.
- [7] Adams J J, Bibeau C, Page R H, *et al.* 4.0-4.5 μm lasing of $\text{Fe}:\text{ZnSe}$ below 180 K, a new mid-infrared laser material [J]. Optics Letters, 1999, 24(23): 1720-1722.
- [8] Velikanov S D, Danilov V P, Zakharov N G, *et al.* $\text{Fe}^{2+}:\text{ZnSe}$ laser pumped by a nonchain electric-discharge HF laser at room temperature [J]. Quantum Electronics, 2014, 44(2): 141-144.

- [9] Evans J W, Berry P A, Schepler K L. A passively Q-switched CW-pumped Fe : ZnSe laser [J]. IEEE Journal of Quantum Electronics, 2014, 50(3): 204-209.
- [10] Myoung N, 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.
- [11] Kernal J, Fedorov V V, Gallian A, *et al.* 3.9-4.8 μm gain-switched lasing of Fe : ZnSe at room temperature [J]. Optics Express, 2005, 13(26): 10608-10615.
- [12] Jelinkova H, Doroshenko M E, Jelinek M, *et al.* Fe:ZnSe laser oscillation under cryogenic and room temperature [C]. SPIE, 2013, 8599: 85990E.
- [13] Zajac A, Skorczakowski M, Swiderski J, *et al.* Electrooptically Q-switched mid-infrared Er : YAG laser for medical applications [J]. Optics Express, 2004, 12(21): 5262.
- [14] 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.
- [15] 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): 116-118.
- [16] Ke C J, Wan C Y, Zhou J W. High peak power HF laser [J]. Laser Technology, 2004, 28(5): 480-482.
- 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.
- [17] Ke C J, Zhang K H, Sun K, *et al.* A periodically pulsed HF/DF gas discharge laser [J]. Infrared and Laser Engineering, 2007, 36(s1): 36-38.
- 柯常军, 张阔海, 孙科, 等. 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, 36(s1): 36-38.
- [18] 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(9): 085001.
- [19] 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 Electronics, 2017, 47(4): 303-307.
- [20] Yao B Q, Xia S X, Yu K K, *et al.* Fe²⁺ : ZnSe achieving laser output [J]. Chinese Journal of Lasers, 2015, 42(1): 0119001.
- 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, 42(1): 0119001.
- [21] 柯常军, 王东蕾, 王向永, 等. 室温 Fe²⁺ : ZnSe 激光器获得 15 mJ 中红外激光输出 [J]. 中国激光, 2015, 42(2): 0219004.
- [22] Il'ichev N N, Shapkin P V, Kulevsky L A, *et al.* Nonlinear transmittance of ZnSe : Fe²⁺ crystal at a wavelength of 2.92 μm [J]. Laser Physics, 2007, 17(2): 130-133.