第49卷第1期/2022年1月/中国激光

中国鼎光

高功率 Ho: YAG 激光器及其泵浦的磷锗锌、硒镓钡和 硒化镉中长波红外非线性光学频率转换研究进展

姚宝权*,杨科,密淑一,李俊辉,魏迪生,唐锦文,陈龙,华笑笑,杨超,段小明,戴通宇, 鞠有伦,王月珠

哈尔滨工业大学可调谐(气体)激光技术国家级重点实验室,黑龙江 哈尔滨 150001

摘要 2 μm、中波红外(3~5 μm)和长波红外(8~12 μm)波段位于大气传输窗口和人眼安全范围内,涵盖众多气体原子和分子的共振吸收峰,在光谱学、遥感、通信、地球大气环境监测和光电对抗等领域具有重要的应用价值。 目前,获取中长波红外波段激光的方法分为线性和非线性两种。首先分析了两种方法在中长波红外激光领域的国 内外最新研究进展。之后详细地介绍了哈尔滨工业大学可调谐(气体)激光技术国家级重点实验室在非线性光学 频率转换领域近三年取得的研究成果,包含 Ho:YAG 调 Q 激光器及其泵浦的磷锗锌(ZnGeP₂, ZGP)、硒镓钡 (BaGa₄Se₇, BGSe)和硒化镉(CdSe)三种非线性晶体在中长波红外非线性光学频率转换器中的应用。相信随着 2 μm 超短脉冲激光器的发展,高功率超短脉冲中长波红外激光技术会成为未来的研究热点。

关键词 激光光学;Ho:YAG;中波红外激光;长波红外激光;磷锗锌;硒镓钡;硒化镉
 中图分类号 TN244 文献标志码 A doi: 10.3788/CJL202249.0101002

1 引 言

从 1960 年梅曼研制出第一台红宝石激光器起, 过去六十多年激光学科得到了长足的发展并被广泛 应用到国防建设和国民经济之中。2 μm、中波红外 (3~5 μm)和长波红外(8~12 μm)波段位于大气传 输窗口内,其在大气传输过程中的衰减较弱,因此在 大气环境监测、激光遥感和激光雷达成像等方面具 有重要的应用^[1-5]。此外,在光电对抗领域,目标和 场景变得越来越复杂,远距离探测需求也越来越多。 因此,高功率和高光束质量激光光源的研制工作十 分紧迫^[6-7]。

目前,获取中长波红外激光的方法可以分为线 性和非线性两种,其中获取中波红外激光的线性方 法主要包括固体激光器(solid-state laser)、泛频 CO 激光技术(overtone frequency CO laser)、量子级联 激光器(quantum cascade laser)、自由电子激光器 (free electron laser)和化学激光器(chemical laser) 等,获取长波红外激光的线性方法主要包括 CO₂ 气 体激光器和量子级联激光器两种。非线性方法是指 通过非线性光学频率转换技术,包括倍频、光学参量 振荡器和光学参量放大器等获取中长波红外激光的 方法。本文将分别综述这些方法的特点与最新的研 究成果。

2 线性和非线性方法在获取高功率中 长波红外激光方面的研究进展

国外采用线性方法获取高功率中长波红外激 光的研究成果如表1所示,其中功率或能量代表 各种方法目前可获得的最高值,CW表示连续波。

在固体激光器研究方面,Fe:ZnSe 是一种可以 直接辐射出中红外激光的工作物质,其在 4~5 μm 波段的性能一直是学界研究的热点。2015 年,人们 首次在 77 K温度下研制了最高平均输出功率为

收稿日期: 2021-08-03;修回日期: 2021-09-14;录用日期: 2021-10-08

| | | | _ | | |
|-----------------------------------|----------------------|---------------------|---------------------------|----------------|------------|
| Name | Year | Wavelength $/\mu m$ | Output power (energy) | Operating mode | Efficiency |
| Solid-state laser (Fe:ZnSe) | 2015[8] | 4.1 | 35.0 W@77 K | Pulsed | - |
| | 2016[9] | 4.1 | 10.60 J@77 K | Pulsed | 44% |
| | $2017^{[10]}$ | 4.35-4.60 | 1.67 J@ room temperature | Pulsed | 27% |
| | $2020^{[11]}$ | 4.35-4.60 | 21.70 W@ room temperature | Pulsed | 32.6% |
| Overtone frequency CO laser | $2005^{[12]}$ | 4.90-5.70 | 2.10 kW | CW | 21% |
| Quantum cascade laser | 2010 ^[13] | 4.75 | 1.10 W | CW | _ |
| Free electron | $2011^{[14]}$ | 5.75 | >10.00 kW | Pulsed | _ |
| laser | $2011^{[14]}$ | 1.61 | 14.30 kW | CW | - |
| Chemical laser (DF&HF) | 2010 ^[15] | 2.60-4.10 | 67.00 J | Pulsed | 3 % |
| CO ₂ laser | $2021^{[16]}$ | 9.3 | 140.00 TW | Pulsed | - |
| Quantum cascade laser | 2013 ^[17] | 10.7 | 1.3 W | CW | _ |

表 1 利用线性方法获取中长波红外激光的最新研究成果 Table 1 Latest research results of mid-far infrared laser using linear methods

35 W、脉冲重复频率为 100 Hz 的 Fe: ZnSe 调 Q 激 光器,输出激光波长为4.1 µm^[8]。2016年,77 K温 度下最高单脉冲能量达 10.6 J、中心波长为 4.1 μm 的 Fe: ZnSe 激光器被报道^[9]。2017年,研究者首次 在室温条件下研制了单脉冲能量为 1.67 J 的 Fe:ZnSe调Q激光器^[10]。2020年,室温条件下平 均输出功率为 21.7 W 的 Fe: ZnSe 调 Q 激光器被 研制成功^[11]。2005年,平均输出功率为2.1 kW、波 长为 4.9~5.7 µm 的泛频 CO 激光器被报道,斜率 效率达到了 21%^[12]。在量子级联激光器研究方面, 2010年,平均输出功率为 1.1 W、中心波长为 4.75 μm 的激光器首次被报道^[13]。在自由电子激 光器研究方面,平均输出功率超过10kW、重复频率 为 1/4 Hz、中心波长为 5.75 µm 的激光器在 2011 年被报道[14],这也是截至目前平均输出功率最高的 自由电子激光器。2010年,单脉冲能量高达671的 化学激光器被成功研制,波长为 2.6~4.1 μ m^[15]。

在长波红外研究领域,峰值功率为 140 TW、单 脉冲能量为 14 J、中心波长为 9.3 μm、脉冲宽度为 50 fs 的 CO₂ 气体激光器在 2021 年被成功研制^[16]。 2013 年,平均输出功率为 1.3 W、中心波长为 10.7 μm 的量子级联激光器被报道^[17]。

目前,国内采用线性方法获取中长波红外激光的 研究报道较少。2020年,最大泵浦光转换效率高达 68.3%、中心波长为 3071 nm 的皮秒脉冲激光器被成 功研制^[18]。同年,光纤量子级联激光器实现了平均 功率超过1W的中红外激光输出^[19]。2021年,合肥 红外自由电子激光装置成功实现了 6~10 μm 波段的 宏脉冲能量大于 100 mJ 的激光输出^[20]。

通过对各种类型激光器输出特性的分析可知, 固体激光器受限于掺杂离子的较少种类和掺杂基质 的物理性质,最终输出的中波红外激光的平均功率 较低^[21]。泛频 CO 激光器通常需要在低温下运行, 这一缺陷限制了其适用范围。量子级联激光器在理 论上可以输出覆盖整个中长波波段的激光,但该激光 器对半导体器件加工工艺的要求极高,而且目前输出 功率较低。自由电子激光器的输出功率较高,但该类 型激光器的体积庞大,价格昂贵,很难满足机载、星载 等特定场合的需求。化学激光器是指依靠化学反应 获得高功率激光输出的一类激光器。其中氟化氘 (DF)化学激光器可以实现中波红外波段大能量高光 束质量的激光输出,但体积大、产生有毒副产品和 DF 价格昂贵限制了其使用范围。CO2 气体激光器输出 的长波红外激光具有功率高、单脉冲能量大的优点, 但激光波长不可连续调谐且该类型激光器的输出波 长是分立的,无法覆盖 8~9 μm 和 11~12 μm 波段。

非线性技术是指利用在光学非线性转换晶体内 产生的非线性效应实现波长转换的技术,具备能够 实现宽光谱的连续调谐输出、装置体积较小和可以 实现高重复频率高功率输出等优点,在获取中长波 红外激光方面显示出独特的优越性^[22]。

目前,2 μm 激光泵浦的非线性光学频率转换器 被认为是一种高效获取连续可调中波和长波红外激 光的方法。相比于 1 μm 激光泵浦源,2 μm 激光在

获取中长波红外激光过程中的量子亏损较小。此 外,在获取中波红外激光时,以 2 μm 激光作为泵浦 源,信号光和闲频光的波长均为 3~5 μm,因此以 2 μm 激光作为泵浦源时非线性频率转换过程中的 转换效率较高。Ho:YAG 晶体具有优秀的物理和 光学性能,在获取高平均功率和高脉冲重复频率的 2 μm 激光方面具有独特的优势。因此,调 Q 状态 下运行的 Ho:YAG 激光器是中长波红外非线性光 学频率转换器最理想的泵浦源之一。

作为非线性光学频率转换器核心器件的非线性 频率转换晶体在频率转换过程中发挥着举足轻重的 作用。为了实现高平均功率的中长波红外激光输 出,非线性晶体需要同时具备以下三个特征:1)晶体 的有效非线性系数较大或者晶体可以生长到足够的 尺寸以弥补较小的非线性系数带来的转换效率较低 的缺陷;2)晶体具有高抗激光损伤阈值;3)晶体在中 波或者长波红外波段具有较高的透过率。

随着 2 μm 激光器的发展,通过结合高质量非 线性光学频率转换晶体,非线性光学频率转换技术 在获取高平均功率中长波红外激光输出方面取得了 突破。本文主要介绍了哈尔滨工业大学可调谐(气 体)激光技术国家级重点实验室在非线性光学频率 转换领域近三年取得的研究成果,包含高功率 Ho:YAG 激光器及其泵浦的磷锗锌(ZnGeP₂, ZGP)、硒镓钡(BaGa₄Se₇, BGSe)和硒化镉(CdSe) 三种非线性频率转换晶体在中长波红外非线性光学 频率转换器中的应用。

3 Ho:YAG 激光器的研究进展



为了满足一些热导率低、非线性系数小的非线

第 49 卷 第 1 期/2022 年 1 月/中国激光

性晶体对泵浦源的特殊需求,我们研制了一台脉冲 重复频率为1kHz、最大平均输出功率为110W、声 光调制的 Ho: YAG 调 Q 激光器^[23]。该激光器由 振荡器、一级放大器和二级放大器三个部分组成,实 验光路如图 1 所示。Tm: YLF 激光器的输出波长 (1.907 µm)恰好位于 Ho: YAG 晶体的最强吸收峰 处,因此本文采用带有体光栅限制波长的 Tm:YLF 激光器作为 Ho: YAG 激光器的泵浦源。在振荡器 部分,M1为2.09 µm 高反(high reflection,HR)且 曲率半径为 R = 200 mm 的平凸全反镜:输出耦合 镜 M2 是 2.09 µm 透过率(transmittance,T)为 70%且曲率半径为R=-5000 mm的平凹镜;腔镜 M3 为 1.907 µm 高透(high transmittance, HT)且 2.09 µm HR 的平面二色镜; AOM(acousto-optical modulator)为声光调制器件;Etalon为法布里-珀罗 标准具,放置在腔内,使输出激光波长稳定在 2.09 μm。振荡器所使用的 Ho: YAG 晶体直径为 5 mm,长度为 80 mm,Ho³⁺的掺杂浓度(原子数分 数,全文同)为0.3%。整个谐振腔的几何长度约为 520 mm。在 117 W 泵浦功率下,振荡器输出功率 为 43.7 W、重 复 频 率 为 1 kHz、中 心 波 长 为 2.09 μm 的激光。此时,脉冲宽度为 28 ns,光束质 量因子(M²)约为1.2,线宽约为0.5 nm,斜率效率 为 60.1%。在一级放大器部分,将振荡器输出的激 光全部注入到 Ho: YAG1晶体中,同时提高泵浦功 率至190 W,平均输出功率为78.6 W。在二级放大 器部分,将一级放大器输出的激光全部注入到二级 放大器 Ho:YAG2 晶体中,同时提高泵浦功率至 170 W, 二级放大器输出平均功率为 110.4 W、脉冲 重复频率为1kHz、中心波长为2.09 μm的激光, 光束质量约为1.7。Ho:YAG1和Ho:YAG2晶体



图 1 1 kHz Ho: YAG 调 Q 激光器的光路示意图^[23] Fig. 1 Schematic of optical path for 1 kHz Ho: YAG Q-switched laser^[23]

的参数完全相同,均为直径为5mm、长度为 100mm、Ho³⁺掺杂浓度为0.3%的棒状晶体。二 级放大器的输出功率如图2所示。





3.2 10 kHz Ho: YAG 调 Q 激光器

为了获取高平均功率的中长波红外激光,我们 分别研制了脉冲重复频率为 10 kHz 和 20 kHz 的 声光调制的 Ho:YAG 调 Q 激光器^[24]。其中,脉冲 重复频率为 10 kHz 的 Ho:YAG 调 Q 激光器的结 构如图3所示。该激光器由振荡器、一级放大器和二 级放大器三个部分组成。振荡器结构与3.1节类

似,依旧使用 Tm:YLF 激光器作为泵浦源,不同点 是此处输出耦合镜 M2 的曲率半径 R = -300 mm, 脉冲重复频率为 10 kHz,物理腔长为 246 mm。振 荡器所使用的 Ho: YAG 晶体的直径为4 mm,长度 为 60 mm, Ho³⁺ 掺杂浓度为 0.3%。在 98 W 泵浦 功率下,得到了平均输出功率为55.1 W、脉冲重复 频率为 10 kHz、脉宽为 22.9 ns、光束质量不大于 1.05、中心波长为 2.09 μm 的激光,斜率效率为 62.1%。在一级放大器部分,振荡器输出的激光经 变换透镜 L1 后,再经过偏振片 M4 的反射到达一级 放大器 Ho: YAG1晶体中部, 束腰半径为 0.4 mm。 Ho: YAG1晶体的直径为4 mm,长度为 100 mm, Ho³⁺掺杂浓度为 0.3%。当将 141.2 W 泵浦功率 和 55.1 W 种子光同时注入到 Ho: YAG1晶体中时, 一级放大器的最高平均输出功率为140 W,斜率效 率为 66.1%。在二级放大器部分,一级放大器输出 的激光经变换透镜 L2 变换后注入到二级放大器 Ho:YAG2中,在150 W 泵浦功率下实现了最高平 均功率为231 W、脉冲重复频率为10 kHz、脉宽为 22.9 ns、光束质量为 1.04(水平方向)和 1.05(竖直 方向)的激光输出,如图4和图5所示。Ho:YAG2 的参数与Ho:YAG1完全相同,平凹透镜L3和L4



图 3 10 kHz Ho: YAG 调 Q 激光器的光路示意图^[24] Fig. 3 Schematic of optical path for 10 kHz Ho: YAG Q-switched laser^[24]











对放大后的激光进行扩束,防止晶体后端面处 45° 二色镜发生损坏。

3.3 20 kHz Ho: YAG 调 Q 激光器

第 49 卷 第 1 期/2022 年 1 月/中国激光

时,实现了平均功率为201 W、脉宽为28.5 ns、光束 质量为1.27(水平方向)和1.28(竖直方向)的激光 输出。一级放大器 Ho: YAG2晶体的直径为 5 mm, 长度为 140 mm, Ho³⁺ 掺杂浓度为 0.3%。在一级 放大器后,使用 2.09 µm 半波片和 45°偏振片将一 级放大器输出的激光分成透射光(85 W)和反射光 (95 W)两部分。透射光作为 T-S-S 放大器的种子 光,经过 Ho: YAG3晶体的放大后, T-S-S 放大器可 输出最高平均功率为152 W、脉宽为28.6 ns、光束 质量为1.42(水平方向)和1.45(竖直方向)的激光; 反射光作为 R-S-S 放大器的种子光,经过 Ho:YAG4晶体的放大后,R-S-S放大器可输出最高 平均功率为161 W、脉宽为28.9 ns、光束质量为 1.45(水平方向)和1.53(竖直方向)的激光。R-S-S 和 T-S-S 放大器的平均输出功率如图 7 所示。 Ho:YAG3和 Ho:YAG4晶体的参数完全相同,其直 径为 5 mm,长度为 100 mm, Ho³⁺ 掺杂浓度为



图 6 20 kHz Ho: YAG 调 Q 激光器的光路示意图^[25]



160 Seed=85 W Output power (W) 140 Slope=58.7% 120 100 80 T-S-S amplifier 0 180 160 140 120 80 Seed=95 W Slope=61.1% R-S-S amplifier 80 40 60 80 100 120 140 160 20 Pump power (W)





0.3%。本实验首先对振荡器的输出种子光依次进 行放大,然后将一级放大器输出激光分为反射式和 透射式两部分,之后独立地对这两部分激光进行再 一次放大,最终获得平均功率为 313 W、脉冲重复频 率为 20 kHz 的 2.09 μm 激光输出。

- 4 ZGP、BGSe 和 CdSe 中长波红外
 非线性频率转换器的研究
- 4.1 102 W 中波 ZGP 主振荡功率放大器系统的 研究

ZGP 晶体属于正方晶系,是一种黄铜矿型半导体化合物,具有较大的非线性光学系数(75 pm/V)、

第49卷第1期/2022年1月/中国激光

较高的透过率(3~8 μ m 波段)和较高的抗激光损伤 阈值,符合高功率中长波红外非线性光学频率转换 对非线性晶体的基本要求,是目前获取中波红外激 光的首选晶体,被誉为"中红外晶体之王"^[26-28]。随 着高功率 Ho:YAG 激光器的发展,中长波红外 ZGP 非线性光学频率转换器的研究取得了突破。 2019年,Qian等^[29]以波长为 2.09 μ m、脉冲重复频 率为 10 kHz 的 Ho:YAG 调 Q 激光器为泵浦源,通 过 ZGP 主振荡功率放大器 (Master Oscillator Power-Amplifier, MOPA)结构,实现了最高平均 功率为 102 W、中心波长为 3.52 μ m 和 4.57 μ m 的 中波红外激光输出,实验光路如图 8 所示,该实验的 泵浦源光路结构和输出特性见 3.2 节。泵浦光经过 偏振片 M1 后被分为两个部分,65 W 被用来泵浦 ZGP 光学参量振荡器(Optical Parametric Oscillator, OPO)部分,135 W 被用来作为 ZGP 光 学参量放大器(Optical Parametric Amplifier, OPA)的泵浦源。I 类相位匹配 ZGP OPO 在 50 W 泵浦功率下实现了平均功率为 28.4 W 的中波红外 激光输出,环形腔内插入透镜 L1 的目的是优化输 出中波红外激光的光束质量。在 ZGP OPA 部分, 通过将 28.4 W 种子光和 120 W 泵浦光同时注入到 ZGP1 晶体中, ZGP OPA 输出了平均功率为 102 W、脉宽为 20.9 ns 的中波红外激光,光束质量 为 2.7(水平方向)和 2.8(竖直方向),输出功率曲线 如图 9 所示,斜率效率为 67.4%。



图 8 102 W ZGP MOPA 系统的光路示意图,插图为通光孔径为 15 mm×15 mm 的 ZGP 晶体实物图^[29] Fig. 8 Schematic of 102 W ZGP MOPA system with physical map of ZGP crystal with aperture of 15 mm×15 mm shown in inset^[29]



4.2 161 W 中波 ZGP MOPA 系统的研究

2021 年, Liu 等^[25] 采用 ZGP 作为非线性光学 频率转换晶体,实现了平均功率为 161 W、波长为 3~5 μm 的中波红外激光输出,实验光路如图 10 所

示,泵浦源的光学结构和输出特性见 3.3 节。在 I 类相位匹配 ZGP OPO 部分,当 T-S-S 放大器向环 形腔内注入 152 W 泵浦光时,该 OPO 实现了平均 功率为 78 W、光束质量为 2.84(水平方向)和 3.12 (竖直方向)的中波红外激光输出。在 ZGP OPA 部 分,当将 ZGP OPO 输出的 78 W 种子光和 R-S-S 放 大器输出的 161 W 泵浦光同时注入到 ZGP1 晶体 中时,ZGP OPA 输出了平均功率为 161 W、脉冲重 复频率为 20 kHz、脉宽为 23.3 ns、光束质量为 3.42 (水平方向)和 3.83(竖直方向)、中心波长为 3.89 μm 和 4.55 μm 的中波红外激光,ZGP OPA 输 出的中波红外激光功率如图 11 所示。与使用垂直布 里奇(vertical Bridgman, VB)法生长的 ZGP 相比,水 平梯度冷凝(Horizonal gradient freezing, HGF)法生 长的 ZGP 的 OPA 斜率效率提升到 63.1%。



图 10 161 W ZGP MOPA 系统的光路示意图^[25] Fig. 10 Schematic of optical path for 161 W ZPG MOPA system^[25]



Fig. 11 Average output power of ZGP OPA $^{\mbox{\tiny [25]}}$

4.3 3.5 W 9.8 µm ZGP OPO 的研究

2020年,Liu 等^[30]以 10 kHz Ho:YAG 激光器 为泵浦源,采用 I 类相位匹配 ZGP OPO 获得了平 均输出功率为 3.51 W、脉冲重复频率为 10 kHz、中 心波长为 9.8 μm、光束质量约为 2.2 的长波红外激 光;采用 II 类相位匹配 ZGP OPO 研究了该晶体在 9.8 μm 附近的输出功率及转换效率,在 10.6 μm 处实现了平均功率超过 1 W 的长波红外激光输出, 实验结果如图 12 所示,插图为 ZGP 晶体的透射光 谱。在实验过程中,闲频光的波长分别选取 9.60, 9.80,10.1,10.6 μm,测量各个波长下的平均输出 功率。由图 12 插图可知,当闲频光的波长增加时, 吸收损耗增大,ZGP OPO 的平均输出功率和斜率 效率均减小。

4.4 11.4 W 8.3 µm ZGP OPO 级联 OPA 的研究

2018年, Qian 等^[31]以 20 kHz Ho: YAG 调 Q 激光器为泵浦源,采用 ZGP OPO 级联 ZGP OPA



图 12 不同波长下闲频光的平均输出功率,插图为 ZGP 晶体的透射谱^[30]

Fig. 12 Average output power of idler light at different wavelengths with transmission spectrum of ZGP crystal shown in inset ^[30]

的方法,即把 ZGP OPO 输出的信号光作为 ZGP OPA 的泵浦光,实现了平均功率为 11.4 W、中心波 长为 8.3 μm 的长波红外激光输出,泵浦光到闲频 光的转换效率为 9.8%,实验光路如图 13 所示,泵 浦源的光学结构和输出特性见 3.2 节。I 类相位匹 配 ZGP OPO 在 116 W 泵浦功率下,实现了平均功 率为 8.2 W 的闲频光和平均功率为 32.7 W 的信号 光输出。在 ZGP OPA 部分,把 OPO 输出的信号光 作为泵浦光,把 OPO 输出的闲频光作为种子光。 最终,ZGP OPA 输出了平均功率为 11.4 W、脉冲 重复频率为 20 kHz、光束质量为 2.9、中心波长为 8.3 μm 的长波红外激光,OPA 输出的闲频光功率 随泵浦光功率的变化如图 14 所示。该实验在 ZGP OPA 部分对 OPO 产生的 2.8 μm 信号光进行再利 用,成功地提高了从 2.09 μm 到 8.3 μm 的转换效率。









Fig. 14 Output power of 8.3 μ m idler light from ZGP OPA versus 2.8 μ m pump power ^[31]

4.5 5.12 W中波 BGSe OPO 的研究

硒镓钡晶体是中国科研工作者自主研发的新型 红外非线性光学材料,属于单斜 Pc 空间群。得益于 较宽的透明范围(0.47~18 μm),该晶体拥有实现

中波红外和长波红外两个波段激光输出的潜力。此 外,该晶体还具有较高的抗激光损伤阈值、较大的非 线性系数以及容易制备等优点,这些对于获取高功 率中长波红外激光是十分有利的[32-34]。2020年, Yang 等^[35]以1 kHz Ho: YAG 激光器为泵浦源,采 用 I 类相位匹配 BGSe OPO 实现了最高平均功率 为 5.12 W、中心波长为 3~5 µm 的中波红外激光 输出,实验光路如图 15 所示,泵浦源的光路结构和 输出特性见 3.1 节。该实验采用 x-z 面切割的 I 类 相位匹配 BGSe 作为非线性光学频率转换晶体,使 用平行平面腔结构,在28W泵浦功率下实现了平 均功率为 5.12 W、脉冲重复频率为 1 kHz、脉宽为 23.50 ns、中心波长为 3.9 μm 和 4.2 μm 的中波红 外激光输出。之后,为了改善OPO输出中波红外 激光的光束质量,采用了闲频光单谐振环形腔结构。 最终实现了平均功率为 3.04 W、中心波长为 3.9 µm 激光输出,同时光束质量控制在 1.5 以下, 信号光的光束质量如图 16 所示。









4.6 窄线宽中波 BGSe OPO 接 ZGP OPA 的研究

2020年,Liu 等^[36]利用 y-z 面切割的 II 类相位 匹配 BGSe 晶体输出激光光谱的窄线宽特性,成功 地完成了窄线宽中波红外激光器的研制。该实验分 为两个部分,第一部分使用 II 类相位匹配 BGSe OPO,获得了低平均功率、高光束质量、窄线宽的中

第49卷第1期/2022年1月/中国激光

波红外激光。第二部分以 BGSe OPO 输出的窄线 宽激光为种子光,通过 ZGP OPA 进行功率放大,最 终获得了最高平均功率为 4.35 W、线宽为 8 nm 的 高光束质量中波红外激光,整个系统的光路结构如 图 17 所示, 泵浦源的光路结构和输出特性见 3.1 节。BGSe OPO 在 8 W 泵浦功率下输出了平均功 率为 0.52 W、光束质量为 1.4(水平方向)和 1.6(竖 直方向)的中波外激光。ZGP OPA 在 16 W 泵浦功 率下注入 0.52 W 种子光时,实现了平均功率为 4.35 W、脉冲重复频率为1 kHz、光束质量为2.2 (水平方向)和 2.3(竖直方向)的中波红外激光输 出,ZGP OPA 输出的信号光和闲频光的光谱图如 图 18 所示。可以看出,信号光和闲频光的中心波长 分别为 3951 nm 和 4440 nm,光谱的半峰全宽 (FWHM)分别为 8 nm 和 7 nm。表 2 总结了 ZGP 和 BGSe 晶体在不同相位匹配模式下获得的中波红 外激光的线宽,可以看出,II类 BGSe 晶体输出的中 波红外激光具有明显的窄线宽特点。



图 17 窄线宽 BGSe OPO+ZGP OPA 系统的光路原理图^[36] Fig. 17 Schematic of optical path for narrow bandwidth BGSe OPO+ZGP OPA system^[36]





表 2 ZGP 和 BGSe 晶体在不同相位匹配模式下输出的中 波红外激光的线宽

Table 2 Linewidths of mid-infrared lasers output from ZGP and BGSe crystals under different phase-matching modes unit: nm

| Name | Type-I | Type-II |
|------|----------|---------|
| ZGP | 240 [29] | - |
| BGSe | 300 [35] | 7 [36] |

4.7 种子注入长波红外 CdSe OPO 的研究

目前,用于获取长波 $8 \sim 12 \ \mu m$ 激光的非线性 光学频率转换晶体的种类较少,CdSe 晶体是可供选 择的一种。该晶体具有较宽的透明范围(0.8~ $20 \ \mu m$)、较低的吸收系数(<0.05 cm⁻¹@1~

第 49 卷 第 1 期/2022 年 1 月/中国激光

10 μm)和较高的硬度。虽然 CdSe 晶体的非线性系数(18 pm/V)较小,但该晶体容易获得大尺寸生长,可用于弥补较小的非线性系数带来的低转换效率的缺陷^[37-39]。2020年,Chen等^[40]以 CdSe 作为非线性光学频率转换晶体,采用种子注入 OPO 的方式首次在该晶体中实现了平均功率超过1 W、波长为10.1 μm 的长波红外激光输出,实验光路如图 19 所示,泵浦源的光路结构和输出特性见 3.1 节。掺Tm 光纤激光器泵浦的 Cr: ZnSe 激光器通过两种规格的透射式体光栅,输出了波长分别为 2.58 μm 和 2.6 μm 的连续激光。将脉冲式 2.09 μm 泵浦光和连

续式 2.6 μ m 种子激光一同注入到 CdSe 环形腔中,在 22.4 W 泵浦功率下实现了最高平均功率为 1.03 W、 中心波长为 10.1 μ m 的长波红外激光输出,2.09 μ m 光到 10.1 μ m 光的转换效率为 4.69%,闲频光的输 出功率如图 20 所示。该实验表明,较低功率的种子 光注入可以明显降低 CdSe OPO 的出光阈值,提高泵 浦光到闲频光的转换效率。当采用 2.58 μ m 连续光 作为 CdSe OPO 种子光时,在 22.4 W 泵浦功率下实 现了最高平均功率为 802 mW、中心波长为 11 μ m 的 长波红外激光输出,光束质量<1.23^[41],闲频光的光 谱图和光束质量如图 21 所示。











Fig. 20 Output power of 10.1 µm idler light versus pump power under different injection seed laser powers [40]





5 结束语

各种线性方法在获取中长波红外激光时各自存 在着明显的优缺点,难以满足多维复杂环境对激光 器的要求。非线性光学频率转换器具有体积较小、 质量较轻、转换效率高、输出功率较高和波长连续可 调等诸多优点,是目前获取高功率中长波红外激光 的首选。随着高平均功率和高重复频率 Ho:YAG 激光器的发展,以其为泵浦源的非线性光学频率转 换技术在中长波红外激光领域取得了一系列新的研 究进展。其中,ZGP晶体在获取中波 3~5 μm 激光 方面取得了重大的突破,成功获得了160W量级的 中波红外激光,大幅度扩宽了中波红外激光的应用 范围;基于Ⅱ类 BGSe 晶体获得的窄线宽中波激光 可成为某些长波非线性频率转换晶体的良好泵浦 源,如砷锗镉;CdSe 晶体弥补了 ZGP 晶体难以获得 10 µm 以上激光的缺陷,采用种子注入的 CdSe OPO 通过降低 OPO 出光阈值的方法,提高了转换 效率,成功实现了瓦级长波激光的输出。可以期待, 随着高功率 2.09 µm 激光器技术的进一步发展、各 种非线性光学频率转换晶体生长工艺的改进以及性 能良好的新的光学频率转换晶体的出现,中长波红 外激光的功率会实现更进一步的提升。同时,随着 2 μm 超短脉冲激光光源性能的日益优化,超短脉冲 中长波红外激光领域将会迎来突破式发展。因此, 中长波红外激光依旧是未来的研究热点之一。

参考文献

- [1] Boyd D S, Petitcolin F. Remote sensing of the terrestrial environment using middle infrared radiation (3.0-5.0 μm)[J]. International Journal of Remote Sensing, 2004, 25(17): 3343-3368.
- [2] Godard A. Infrared (2-12 μm) solid-state laser sources: a review [J]. Comptes Rendus Physique, 2007, 8(10): 1100-1128.
- [3] Vaicikauskas V, Kabelka V, Kuprionis Z, et al. Infrared DIAL for remote sensing of atmospheric pollutants [J]. Proceedings of SPIE, 2005, 5958: 59581K.
- [4] Vaicikauskas V, Kuprionis Z, Kaucikas M, et al. Mid-infrared all solid state DIAL for remote sensing of hazardous chemical agents [J]. Proceedings of SPIE, 2006, 6214: 62140E.
- [5] Boyko A A, Karapuzikov A I, Chernikov S B, et al. Waveguide RF excited 13 C¹⁶O₂-laser tunable from 11.04 μ m to 11.31 μ m for lidar applications [J].

Proceedings of SPIE, 2014, 9292: 929238.

- [6] Yang J Y, Gong F Q, Liu R, et al. Application and progress of mid-infrared laser in optoelectronic countermeasure field [J]. Flight Control &. Detection, 2020, 3(6): 34-42.
 杨俊彦,公发全,刘锐,等.中红外激光在光电对抗 领域的应用及进展[J]. 飞控与探测, 2020, 3(6): 34-42.
- [7] Liu X X, Han J H, Cai H, et al. Review of high repetition-rate mid-infrared lasers for photoelectric countermeasures [J]. Laser Technology, 2021, 45 (3): 271-279.
 刘晓旭,韩聚洪,蔡和,等.用于光电对抗的高重频 中红外激光器综述[J].激光技术, 2021, 45(3): 271-279.
- [8] Mirov S, Fedorov V, Martyshkin D, et al. High average power Fe: ZnSe and Cr: ZnSe mid-IR solid state lasers [C] // Advanced Solid State Lasers, October 4-9, 2015, Berlin, Germany. Washington, D.C.: OSA, 2015: AW4A.1.
- [9] Frolov M P, Korostelin Y V, Kozlovsky V I, et al. Efficient 10-J pulsed Fe: ZnSe laser at 4100 nm[C]// 2016 International Conference Laser Optics (LO), June 27-July 1, 2016, St. Petersburg, Russia. New York: IEEE Press, 2016: 16251523.
- [10] 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.
- [11] Pan Q K, Xie J J, Chen F, et al. Transversal parasitic oscillation suppression in high gain pulsed Fe²⁺:ZnSe laser at room temperature[J]. Optics & Laser Technology, 2020, 127: 106151.
- Bohn W, von Buelow H, Dass S, et al. High-power supersonic CO laser on fundamental and overtone transitions[J]. Quantum Electronics, 2005, 35(12): 1126-1130.
- [13] Lu Q Y, Bai Y, Bandyopadhyay N, et al. Roomtemperature continuous wave operation of distributed feedback quantum cascade lasers with watt-level power output[J]. Applied Physics Letters, 2010, 97 (23): 231119.
- [14] Benson S, Douglas D, Neil G, et al. The Jefferson Lab free electron laser program [J]. Journal of Physics: Conference Series, 2011, 299(1): 012014.
- Bulaev V D, Gusev V S, Kazantsev S Y, et al. High-power repetitively pulsed electric-discharge HF laser
 [J]. Quantum Electronics, 2010, 40(7): 615-618.
- [16] Polyanskiy M, Pogorelsky I, Babzien M, et al. High-peak-power long-wave infrared lasers with CO₂

第49卷第1期/2022年1月/中国激光

特邀综述

amplifiers[J]. Photonics, 2021, 8(4): 101.

- [17] Xie F, Caneau C, Leblanc H P, et al. Watt-level room temperature continuous-wave operation of quantum cascade lasers with $\lambda > 10 \ \mu m$ [J]. IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics, 2013, 19(4): 1200407.
- [18] Xu M H, Wu J M, Li B W, et al. Efficient midinfrared difference-frequency generation technology based on passive all-optical synchronization[J]. Acta Optica Sinica, 2020, 40(20): 2036001.
 徐明航,武佳美,李博文,等.基于被动全光同步的 高效率中红外差频产生技术研究[J].光学学报, 2020, 40(20): 2036001.
- [19] LiSS, Wang BY, ZhouGJ, et al. 1 W mid infrared fiber output quantum cascade laser [J]. Chinese Journal of Lasers, 2020, 47(11): 1116001.
 李森森, 王毕艺,周冠军,等. 1 W 中红外光纤输出 量子级联激光器[J]. 中国激光, 2020, 47(11): 1116001.
- [20] Li H T, He Z G, Wu F F, et al. Hefei infrared freeelectron laser facility[J]. Chinese Journal of Lasers, 2021, 48(17): 1700001.
 李和廷,何志刚,吴芳芳,等. 合肥红外自由电子激 光装置[J]. 中国激光, 2021, 48(17): 1700001.
- [21] 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): 125001.
- [22] Eckardt R C, Nabors C D, Kozlovsky W J, et al. Optical parametric oscillator frequency tuning and control[J]. Journal of the Optical Society of America B, 1991, 8(3): 646-667.
- [23] Qian C, Yao B, Ju Y, et al. 110. 4 mJ, 1 kHz repetition rate, Ho: YAG master oscillator power amplifier [J]. Applied Optics, 2019, 58 (4): 879-882.
- [24] Zhao B R, Yao B Q, Qian C P, et al. 231 W dualend-pumped Ho : YAG MOPA system and its application to a mid-infrared ZGP OPO[J]. Optics Letters, 2018, 43(24): 5989-5992.
- [25] Liu G, Mi S, Yang K, et al. 161 W middle infrared ZnGeP₂ MOPA system pumped by 300 W-class Ho:YAG MOPA system[J]. Optics Letters, 2021, 46(1): 82-85.
- [26] Zelmon D E, Hanning E A, Schunemann P G. Refractive-index measurements and Sellmeier coefficients for zinc germanium phosphide from 2 μ m to 9 μ m with implications for phase matching in optical frequency-conversion devices [J]. Journal of the Optical Society of America B, 2001, 18 (9): 1307-1310.
- [27] Vodopyanov K L, Voevodin V G. Type I and II

ZnGeP₂ travelling-wave optical parametric generator tunable between 3.9 μ m and 10 μ m [J]. Optics communications, 1995, 117(3/4): 277-282.

- [28] Schellhorn M, Spindler G, Eichhorn M. Mid-infrared ZGP OPO with divergence compensation and high beam quality [J]. Optics Express, 2018, 26 (2): 1402-1410.
- [29] Qian C P, Yao B Q, Zhao B R, et al. High repetition rate 102 W middle infrared ZnGeP₂ master oscillator power amplifier system with thermal lens compensation[J]. Optics Letters, 2019, 44(3): 715-718.
- [30] Liu G Y, Chen Y, Yao B Q, et al. 3.5 W long-wave infrared ZnGeP₂ optical parametric oscillator at 9.8 μm[J]. Optics Letters, 2020, 45(8): 2347-2350.
- [31] Qian C, Duan X, Yao B, et al. 11.4 W long-wave infrared source based on ZnGeP₂ optical parametric amplifier[J]. Optics Express, 2018, 26(23): 30195-30201.
- [32] Yelisseyev A P, Lobanov S I, Krinitsin P G, et al. The optical properties of the nonlinear crystal BaGa4Se₇ [J]. Optical Materials, 2020, 99: 109564.
- [33] Kostyukova N Y, Boyko A A, Eryshin E Y, et al. Comparative analysis of optical damage in advanced Barium chalcogenides nonlinear crystals at 1-μm and 2-μm[C] // 2019 Conference on Lasers and Electro-Optics Europe & European Quantum Electronics Conference (CLEO/Europe-EQEC), June 23-27, 2019, Munich, Germany. New York: IEEE Press, cd_p_14.
- Badikov V, Badikov D, Shevyrdyaeva G, et al. Phase-matching properties of BaGa₄S₇ and BaGa₄Se₇: wide-bandgap nonlinear crystals for the mid-infrared [C]//Advances in Optical Materials, February 13-16, 2011, Istanbul. Washington, D. C.: OSA, 2011: JWB4.
- [35] Yang K, Liu G, Li C, et al. Research on performance improvement technology of a BaGa₄Se₇ mid-infrared optical parametric oscillator[J]. Optics Letters, 2020, 45(23): 6418-6421.
- [36] Liu G, Chen Y, Li Z, et al. High-beam-quality 2.1 μm pumped mid-infrared type-II phase-matching BaGa₄Se₇ optical parametric oscillator with a ZnGeP₂ amplifier[J]. Optics Letters, 2020, 45(13): 3805-3808.
- [37] Yuan J H, Duan X M, Yao B Q, et al. Tunable 10to 11-μm CdSe optical parametric oscillator pumped by a 2.1-μm Ho: YAG laser[J]. Applied Physics B, 2016, 122(7): 1-4.
- [38] Ni Y B, Wu H X, Mao M S, et al. Growth and

characterization of mid-far infrared optical material CdSe crystal[J]. Optical Materials Express, 2018, 8 (7): 1796-1805.

[39] Dmitriev V G, Gurzadyan G G, Nikogosyan D N. Properties of nonlinear optical crystals[M]//Dmitriev V G, Gurzadyan G G, Nikogosyan D N. Handbook of nonlinear optical crystals. Springer series in optical sciences. Heidelberg: Springer, 1997, 64: 67-288.

- 第 49 卷 第 1 期/2022 年 1 月/中国激光
- [40] Chen Y, Liu G, Yang C, et al. 1 W, 10.1 μm, CdSe optical parametric oscillator with continuous-wave seed injection [J]. Optics Letters, 2020, 45 (7): 2119-2122.
- [41] Chen Y, Yang C, Liu G Y, et al. 11 μm, high beam quality idler-resonant CdSe optical parametric oscillator with continuous-wave injection-seeded at 2.58 μm [J]. Optics Express, 2020, 28(11): 17056-17063.

Research Progress of High-Power Ho:YAG Lasers and Its Application for Pumping Mid-Far-Infrared Nonlinear Frequency Conversion in ZGP, BGSe and CdSe Crystals

Yao Baoquan[°], Yang Ke, Mi Shuyi, Li Junhui, Wei Disheng, Tang Jinwen, Chen Long, Hua Xiaoxiao, Yang Chao, Duan Xiaoming, Dai Tongyu, Ju Youlun, Wang Yuezhu National Key Laboratory of Tunable Laser Technology, Harbin Institute of Technology, Harbin, Heilongjiang 150001, China

Abstract

Significance The 2 μ m, mid-infrared (MIR, 3–5 μ m) and far-infrared (FIR, 8–12 μ m) bands are located in the atmospheric transmission windows and the safety ranges of human eyes. At the same time, the vibration absorption spectral peaks of many gas atoms and molecules are also located in this band. Therefore, these three bands have important application value in the fields of spectroscopy, remote sensing, communications, earth atmosphere monitoring, and optoelectronic countermeasures. At present, the methods used to obtain the mid-far infrared lasers have shown the characteristics of many types and obvious advantages and disadvantages, among which the nonlinear frequency conversion (NFC) technologies possess the advantages of relatively high average power and conversion efficiency, compact structure, and tunable wavelength. Thus, it is the best choice to achieve mid-far infrared lasers.

Progress National Key Laboratory of Tunable Laser Technology in Harbin Institute of Technology has carried out researches on the NFC technologies based on the studies in high-power Ho: YAG lasers. For 2 µm lasers, a Ho: YAG Q-switched laser was successfully developed with the highest average output power of 231 W and a pulse repetition rate (PRR) of 10 kHz in 2018 (Figs. 3-5). In order to meet the requirements of higher power mid-far infrared NFC for pump sources, the Ho: YAG Q-switched laser with the highest average output power of 312 W (Figs. 6 and 7) and a PRR of 20 kHz has also been achieved as expected. In addition, the Ho: YAG Q-switched laser with the highest single pulse energy of 28 mJ and a PRR of 1 kHz has also been successfully used as a pump source for NFC (Figs. 1 and 2). With the development of high-power Ho: YAG lasers, the optical NFC technology has also shined in the realization of high-power mid-far infrared lasers. First of all, the research on NFC based on zinc germanium phosphate (ZnGeP₂, ZGP) crystals has yielded fruitful results. In 2019, through the ZGP master oscillator power amplifier (MOPA) system, the lasers at center wavelengths of $3.92 \ \mu m$ and $4.57 \ \mu m$ with the highest average output power of 102 W were achieved (Figs. 8 and 9). In 2018, the ZGP cascaded OPA structure was adopted to increase the conversion efficiency from pump light to idler light by reusing the OPO output signal light (Figs. 13 and 14). In 2021, the total output power of the ZGP MOPA system with the highest average output power of 161 W, the PRR of 20 kHz, and center wavelengths of 3.89 μ m and 4.55 μ m was enhanced by 61% through the ZGP crystal (Figs. 10 and 11). In the same year, the laser with the highest average output power of 3.5 W, a PRR of 10 kHz, and the center wavelength of 9.8 µm using type-I phase-matching ZGP crystal was obtained. Meanwhile, using type-II phasematching ZGP crystal, the output characteristics of the upper limit band of the output wavelength of this crystal were explored (Fig. 12). While the ZGP crystal keeps creating new records for higher output powers in the MIR and FIR bands, the emerging optical NFC crystal-BaGa₄Se₇ (BGSe) has made outstanding achievements in the MIR laser

field. In 2020, the lasers with up to a 5.12 W average output power, a PRR of 1 kHz, and the center wavelengths of 3.9 μ m and 4.2 μ m was achieved from the type-I phase-matching BGSe OPO, which refreshed the crystal highest output power. At the same time, the MIR laser with high power and high beam quality was obtained (Figs. 15 and 16). In the same year, the MIR laser with a full width at half maximum (FWHM) of only 8 nm and a center wavelength of 3.94 μ m was successfully prepared using a type-II phase-matching BGSe OPO followed by a ZGP OPA. The highest average output power was 4.35 W with a PRR of 1 kHz (Fig. 17, Fig. 18, and Table 2). In the 10–12 μ m band, the optical NFC crystal cadmium selenide (CdSe) has also achieved fruitful results. In 2020, through continuous light seed injection, it is for the first time to obtain an average output power exceeding 1 W at 10.1 μ m from a CdSe crystal (Figs. 19–21).

Conclusions and prospects In this article, the advantages and disadvantages of different methods to obtain mid-far infrared lasers as well as the latest research results are first introduced. Second, a detailed introduction of the latest research results on the optical nonlinear frequency conversion technologies in Harbin Institute of Technology is illustrated, including the acousto-optic modulated Ho: YAG *Q*-switched lasers with different pulse repetition rates. Third, the Ho: YAG lasers with different pulse repetition rates and the latest research results in high-power mid-infrared and far-infrared lasers with ZGP, BGSe and CdSe crystals in the nearest three years are also introduced. Finally, with the development of the ultrashort pulsed 2 μ m laser, high power ultrashort mid-far-infrared lasers is prospected to become a research hotspot in next few years.

Key words laser optics; Ho: YAG; mid-infrared laser; far-infrared laser; ZGP; BGSe; CdSe