

# 差频产生中红外光源的线宽分析

陈长水 韦俊雄 刘颂豪

(华南师范大学光子纳米生物技术研究中心, 广东 广州 510631)

**摘要** 差频法具有无需复杂腔型调整、输出激光调谐范围宽、效率较高等综合优点,是获得  $3\sim 5\ \mu\text{m}$  中红外激光光源的重要手段。推导了差频产生中红外激光的输出光波长、线宽以及功率的公式,重点讨论了输出激光线宽与抽运光波长和线宽、信号光线宽以及温度等因素的关系。结果表明,输出激光线宽主要由抽运光和信号光的线宽决定。

**关键词** 激光器;中红外激光;差频产生;准相位匹配;输出光线宽

**中图分类号** O436 **文献标识码** A **doi:** 10.3788/LOP49.021404

## Mid-Infrared Laser Linewidth Analysis Based on Difference Frequency Generation

Chen Changshui Wei Junxiong Liu Songhao

(Photon and Nano Research Center for Biosciences, South China Normal University,  
Guangzhou, Guangdong 510631, China)

**Abstract** Difference frequency generation is an important method to obtain  $3\sim 5\ \mu\text{m}$  mid-infrared laser. It does not need complex structure adjustment of cavity, the tuning range of output laser is wide, and the efficiency is high. We derive the formulas of output wavelength, linewidth and output power of the mid-infrared laser obtained from difference frequency generation. The dependences of output linewidth on pump light wavelength, pump light linewidth, signal light linewidth and temperature are emphasized. Numerical results show that the output linewidth is mainly decided by the pump light linewidth and the signal light linewidth

**Key words** lasers; mid-infrared source; difference frequency generation; quasi phase matching; linewidth of output light

**OCIS codes** 140.3070; 140.3518; 140.3535; 140.3570

## 1 引言

差频是获得宽带连续可调谐中红外激光光源的重要手段。利用差频方法实现中红外相干光输出对于光谱检测技术有着重要的应用价值,特别是在  $3\sim 5\ \mu\text{m}$ ,一些重要的大气污染气体在这个光谱区有它们的基频吸收带,如  $\text{NH}_3$  ( $3\ \mu\text{m}$ )、 $\text{CH}_4$  ( $3.3\ \mu\text{m}$ )、 $\text{NO}_2$  ( $3.5\ \mu\text{m}$ )、 $\text{CO}$  ( $4.6\ \mu\text{m}$ )等;另一方面,这个光谱区的差频系统可以采用已经商品化的近红外激光器(半导体激光器、固体激光器、光纤激光器和光纤放大器)作为种子光源,有多种方案可供选择<sup>[1,2]</sup>。

目前差频最常用的中红外晶体材料有 PPLN、AgGaS<sub>2</sub>、AgGaSe<sub>2</sub> 和 ZnGeP<sub>2</sub>。其中 PPLN 具有较大的有效非线性系数,透射光谱范围很宽( $0.35\sim 5.00\ \mu\text{m}$ ),且商品化程度高,所以成为了当前应用前景好、最具吸引力的中红外激光晶体。目前基于 MgO:PPLN 差频产生中红外激光的理论和实验研究的报道不是很多,实验上国外已经获得了  $4.3\sim 4.7\ \mu\text{m}$  输出功率为  $5\sim 23\ \mu\text{W}$  的可调中红外激光输出<sup>[3]</sup>,国内已经获得  $2.5\sim 4.0\ \mu\text{m}$  可调中红外激光输出<sup>[4]</sup>。为了进一步了解差频输出功率以及输出光线宽的影响因素,本文基于

**收稿日期:** 2011-08-07; **收到修改稿日期:** 2011-09-01; **网络出版日期:** 2011-12-07

**基金项目:** 广东省自然科学基金重点项目(10251063101000001, 8251063101000006)和国家自然科学基金面上项目(60878063)资助课题。

**作者简介:** 陈长水(1969—),男,教授,博士生导师,主要从事纳米材料、激光光学和光子生物学等方面的研究。

E-mail: cschen@aiofm.ac.cn

MgO:PPLN 的色散方程、能量和动量守恒,通过数值模拟得到了基于 MgO:PPLN 晶体的输出激光功率以及输出激光线宽的变化曲线,并对其做了简要分析。

## 2 基于 MgO:PPLN 的差频中红外理论分析

实验选择在 $3\sim 5\ \mu\text{m}$ 的波段范围内有较高的透射率、易实现宽带连续可调谐、有效非线性系数较大的 MgO:PPLN 晶体。理论上,非线性晶体越长可增加三光波的相互作用长度,而在实际中,如果非线性晶体过长则输出光的光束质量就会变差,因此,要根据实际需要选择最佳尺寸。

非线性晶体的有效非线性系数  $d$  在通常情况下是一个与空间位置无关的常数,但周期极化晶体的非线性系数张量元不再是常数,而是空间坐标的周期函数。故三光波相互作用的耦合波方程中的有效非线性系数  $d$  就不再是常数,而是一个空间调制的函数。由于 PPLN 晶体的非线性系数  $d_{33}$  无法实现角度相位匹配,为了能利用到非线性系数  $d_{33}$ ,需要使用准相位匹配技术。

差频产生中红外激光是光场在非线性晶体中发生的三波混频二阶非线性频率下转换过程,是两个不同频率的入射光子在非线性晶体中,通过二阶非线性混频过程产生的新光场,习惯上把高频的入射光称为抽运光( $\omega_p$ ),低频入射光称为信号光( $\omega_s$ ),差频产生的光称为空闲光或者闲频光( $\omega_i$ )。

### 2.1 输出激光波长

根据准相位匹配条件有  $\Delta K_Q = K_p - K_s - K_i - K_m = 0$ ,  $K_m = \frac{2\pi m}{\Lambda}$ ,其中  $\Lambda$  为空间调制周期, $m$  为准相位匹配的阶数, $K_j = \frac{2\pi n_j}{\lambda_j}$  ( $j = p, s, i$ )。这里只对一阶共线准相位匹配进行分析,即  $m = 1$ , 可得

$$\Delta k = 2\pi \left( \frac{n_p}{\lambda_p} - \frac{n_s}{\lambda_s} - \frac{n_i}{\lambda_i} - \frac{1}{\Lambda} \right) = 0. \quad (1)$$

为了能利用最大的非线性系数  $d_{33}$ ,抽运光、信频光、空闲光均采用 e 光偏振方向,故(1)式中的折射率  $n$  均可采用铌酸锂晶体的色散方程<sup>[5]</sup>来确定:

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

式中  $f$  与温度有关,  $f = (T - 24.5)(T + 570.82)$ ,其他各系数值<sup>[5]</sup>如表 1 所示。

表 1 色散方程系数

Table 1 Dispersion equation coefficients

Parameter	Value	Parameter	Value	Parameter	Value
$a_1$	5.319725	$a_4$	100.2028	$b_1$	$4.753469 \times 10^{-7}$
$a_2$	0.09147285	$a_5$	11.37639	$b_2$	$3.310965 \times 10^{-8}$
$a_3$	0.3165008	$a_6$	0.01497046	$b_3$	$2.760513 \times 10^{-5}$

根据能量守恒,有

$$\frac{1}{\lambda_i} = \frac{1}{\lambda_p} - \frac{1}{\lambda_s}. \quad (3)$$

将(3)式代入(1)式可得

$$\lambda_i = \frac{n_i}{\frac{n_p}{\lambda_p} - \frac{n_s}{\lambda_s} - \frac{1}{\Lambda}}, \quad (4)$$

式中  $n$  为波长和温度的函数。由于采用一阶相位匹配,极化周期  $\Lambda$  很小,可以忽略温度对其的影响,故(4)式可以写成

$$\lambda_i = \frac{n_i \left( T, \frac{\lambda_p \lambda_s}{\lambda_s - \lambda_p} \right)}{\frac{n_p(T, \lambda_p)}{\lambda_p} - \frac{n_s(T, \lambda_s)}{\lambda_s} - \frac{1}{\Lambda}}. \quad (5)$$

## 2.2 输出激光线宽

设参与非线性作用的三束光波频率分别为  $\omega_p$  (抽运光)、 $\omega_s$  (信号光)、 $\omega_i$  (空闲光), 在差频作用过程中应该满足能量守恒和动量守恒:

$$\omega_i = \omega_p - \omega_s, \quad \omega_i n_i = \omega_p n_p - \omega_s n_s. \quad (6)$$

如果抽运光自身具有的谱线宽度为  $\Delta\omega_p$ , 信号光谱线宽度为  $\Delta\omega_s$ , 空闲光的谱线宽度为  $\Delta\omega_i$ , 则三者之间存在关系为

$$\Delta\omega_i = \Delta\omega_p - \Delta\omega_s. \quad (7)$$

此时(6)式可以写为

$$(\omega_i + \Delta\omega_i) \left( n_i + \frac{\partial n_i}{\partial \omega_i} \Delta\omega_i \right) = (\omega_p + \Delta\omega_p) \left( n_p + \frac{\partial n_p}{\partial \omega_p} \Delta\omega_p \right) - (\omega_s + \Delta\omega_s) \left( n_s + \frac{\partial n_s}{\partial \omega_s} \Delta\omega_s \right). \quad (8)$$

由于  $(\Delta\omega)^2$  项非常小, 在此可以忽略, (8)式整理得

$$\omega_i \frac{\partial n_i}{\partial \omega_i} \Delta\omega_i + \Delta\omega_i n_i = \omega_p \frac{\partial n_p}{\partial \omega_p} \Delta\omega_p + \Delta\omega_p n_p - \omega_s \frac{\partial n_s}{\partial \omega_s} \Delta\omega_s - \Delta\omega_s n_s, \quad (9)$$

从而可以得到

$$\Delta\omega_i = \frac{\left( n_p + \omega_p \frac{\partial n_p}{\partial \omega_p} \right) \Delta\omega_p - \left( n_s + \omega_s \frac{\partial n_s}{\partial \omega_s} \right) \Delta\omega_s}{n_i + \omega_i \frac{\partial n_i}{\partial \omega_i}}. \quad (10)$$

又由于  $n + \omega \frac{dn}{d\omega} = n - \lambda \frac{dn}{d\lambda}$ ,  $\Delta\lambda = -\frac{\lambda^2}{2\pi c} \Delta\omega$ , 可得

$$\frac{\Delta\lambda_i}{\lambda_i^2} = \frac{\frac{\Delta\lambda_p}{\lambda_p^2} \left( n_p - \lambda_p \frac{\partial n_p}{\partial \lambda_p} \right) - \frac{\Delta\lambda_s}{\lambda_s^2} \left( n_s - \lambda_s \frac{\partial n_s}{\partial \lambda_s} \right)}{n_i - \lambda_i \frac{\partial n_i}{\partial \lambda_i}}. \quad (11)$$

故输出光的线宽为

$$\Delta\lambda_i = \frac{\frac{\lambda_i^2 \Delta\lambda_p}{\lambda_p^2} \left( n_p - \lambda_p \frac{\partial n_p}{\partial \lambda_p} \right) - \frac{\lambda_i^2 \Delta\lambda_s}{\lambda_s^2} \left( n_s - \lambda_s \frac{\partial n_s}{\partial \lambda_s} \right)}{n_i - \lambda_i \frac{\partial n_i}{\partial \lambda_i}}. \quad (12)$$

由于采用准相位匹配技术, 可以利用它的最大非线性系数  $d_{33}$ , 选用的是  $e+e \rightarrow e$  型相位匹配关系, 这属于第一类相位匹配, 此时线宽  $\Delta\lambda_i$  为<sup>[6]</sup>

$$\Delta\lambda_i = \frac{\frac{\lambda_i^2 \Delta\lambda_p}{\lambda_p^2} [n_{\text{eff,pe}}(\lambda_p, \theta)] - \frac{\lambda_i^2 \Delta\lambda_s}{\lambda_s^2} [n_{\text{eff,se}}(\lambda_s, \theta)]}{n_{\text{eff,ie}}(\lambda_i, \theta)}, \quad (13)$$

式中  $n_{\text{eff,pe}}(\lambda_p, \theta)$ ,  $n_{\text{eff,se}}(\lambda_s, \theta)$ ,  $n_{\text{eff,ie}}(\lambda_i, \theta)$  分别为

$$\begin{cases} n_{\text{eff,pe}}(\lambda_p, \theta) = n_{\text{pe}} - \lambda_p \frac{\partial n_{\text{pe}}}{\partial \lambda_p} = \left[ \frac{(n_{\text{eff,po}})^2 (n_{\text{eff,pe}})^2}{(n_{\text{eff,po}})^2 \sin^2 \theta + (n_{\text{eff,pe}})^2 \cos^2 \theta} \right]^{1/2} \\ n_{\text{eff,se}}(\lambda_i, \theta) = n_{\text{se}} - \lambda_s \frac{\partial n_{\text{se}}}{\partial \lambda_s} = \left[ \frac{(n_{\text{eff,so}})^2 (n_{\text{eff,se}})^2}{(n_{\text{eff,so}})^2 \sin^2 \theta + (n_{\text{eff,se}})^2 \cos^2 \theta} \right]^{1/2} \\ n_{\text{eff,ie}}(\lambda_i, \theta) = n_{\text{ie}} - \lambda_i \frac{\partial n_{\text{ie}}}{\partial \lambda_i} = \left[ \frac{(n_{\text{eff,io}})^2 (n_{\text{eff,ie}})^2}{(n_{\text{eff,io}})^2 \sin^2 \theta + (n_{\text{eff,ie}})^2 \cos^2 \theta} \right]^{1/2} \end{cases}. \quad (14)$$

$n_e$  可以根据 PPLN 晶体的色散方程得到。

## 2.3 输出激光功率

在高斯光束的近似下, 差频时系统空闲光输出功率为<sup>[7,8]</sup>

$$p_i = \frac{256\pi^2}{c^3} \frac{d_{\text{eff}}^2}{n_i n_s n_p} (\omega_p - \omega_s)^2 h(\mu, \xi, \rho) L p_p p_s \exp(-\alpha L), \quad (15)$$

式中  $c$  为真空中的光速,  $n$  为折射率,  $d_{\text{eff}}$  为有效非线性系数,  $L$  为晶体长度,  $\alpha$  为晶体的吸收系数 (LiNbO<sub>3</sub> 在 5  $\mu\text{m}$  处有一个吸收峰, 对 4.3  $\mu\text{m}$  的光其吸收系数为 0.25  $\text{cm}^{-1}$ , 对 4.7  $\mu\text{m}$  的光其吸收系数为 0.75  $\text{cm}^{-1}$ )<sup>[9]</sup>,  $h(\mu, \xi,$

$\rho$ )为聚焦方程,它描述了光束的耦合效率<sup>[7]</sup>

$$h(\mu, \xi, \rho) = \operatorname{Re} \left\{ \frac{1}{4\xi} \int_{-\xi}^{+\xi} d\tau \int_{-\xi}^{+\xi} d\tau' \frac{\exp\left[\frac{b\rho}{4}(\tau - \tau')\right]}{1 - \frac{j}{2} \left( \frac{1+\mu}{1-\mu} + \frac{1-\mu}{1+\mu} \right) (\tau - \tau') + \tau\tau'} \right\}, \quad (16)$$

式中  $\mu = k_s/k_p$ , 聚焦参数  $\xi = L/b$ , 共焦参数  $b = k_p W_p^2 = k_s W_s^2$  ( $W$  表示束腰半径)。  $h$  随  $\xi$  的变化情况如图 1<sup>[9]</sup> 所示。

晶体的转换效率为

$$\eta = \frac{p_i}{p_p p_s} = \frac{256\pi^2}{c^3} \frac{d_{\text{eff}}^2}{n_i n_p n_s} \frac{\omega_p - \omega_s}{k_s^{-1} + k_p^{-1}} \times h(\mu, \xi, \rho) L \exp(-\alpha L), \quad (17)$$

由(15)式可知,空闲光的输出功率与晶体的性质有关,大的非线性系数可以提高输出功率,并且晶体不是越长越好,后面的衰减因子说明肯定存在一个最佳尺寸。尽管空闲光的输出功率还与抽运光及信号光的输入功率成正比,但转换效率却与它们无关。由图 1 可知  $h$  随着  $\xi$  先增大后减小,大约在  $\xi = 1.3$  处达到最大,当  $\xi \ll 1$  时,  $h \approx \xi$ , 代入(15)式并对  $L$  求导,可得晶体的最佳尺寸为  $L = 2/\alpha$ 。

当入射光信号弱时,可把入射光波当作平面波,输出功率为<sup>[9~11]</sup>

$$p_i \propto \frac{d_{\text{eff}}^2}{n_i n_p n_s} (\omega_p - \omega_s)^2 p_p p_s L^2 \operatorname{sinc}^2 \left( \frac{|\Delta k|L}{2} \right) \exp(-\alpha L), \quad (18)$$

此时转换效率为

$$\eta = \frac{p_i}{p_p p_s} \propto \frac{d_{\text{eff}}^2}{n_i n_p n_s} (\omega_p - \omega_s)^2 L^2 \operatorname{sinc}^2 \left( \frac{|\Delta k|L}{2} \right) \exp(-\alpha L). \quad (19)$$

在相位达到匹配时,  $\operatorname{sinc}$  函数取最大值 1,输出功率为最大,随着抽运光的功率增大输出功率及转换效率都会增大,选择不同的相位匹配方式将有不同的折射率  $n$  值,输出功率也不一样,所以存在一个最佳的匹配方式。

### 3 输出激光线宽分析

实验选用连续 Nd:YAG 激光器(输出功率 2 W,输出波长 1064.5 nm)作为信号源,外腔可调谐半导体激光器(ECDL,输出功率 120 mW,输出波长为 820~880 nm)作为抽运源,周期极化 MgO:PPLN(50 mm×6 mm×1 mm)晶体为非线性晶体。设抽运光波长为 0.82  $\mu\text{m}$ ,抽运光线宽为 1 MHz,信号光线宽为 1 MHz,输出光线宽随温度的变化曲线如图 2 所示。由图 2 可知,当温度从 20  $^{\circ}\text{C}$  变化到 200  $^{\circ}\text{C}$  时,线宽的变化范围

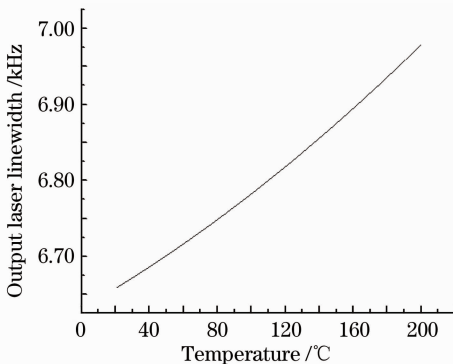


图 2 输出光线宽与温度关系曲线

Fig. 2 Relation between output laser linewidth and temperature

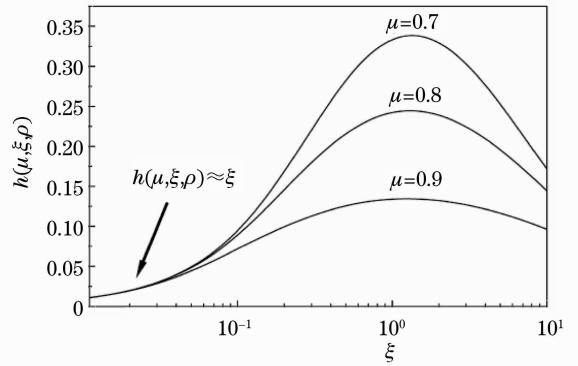


图 1  $h$  随  $\xi$  的变化曲线

Fig. 1 Relation curve between  $h$  and  $\xi$

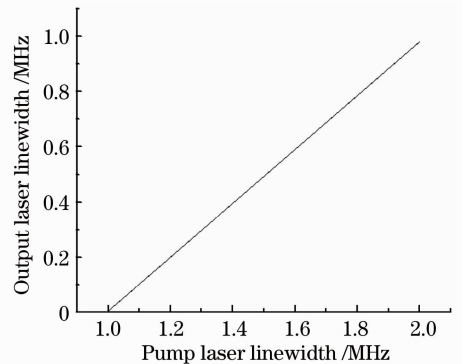


图 3 输出光线宽与抽运光线宽的关系曲线

Fig. 3 Relation between output laser linewidth and pump laser linewidth

仅 300 Hz,故温度对输出激光线宽的影响不是很大。

设信号光线宽为 1 MHz,抽运光波长为  $0.82 \mu\text{m}$ ,在温度为  $20^\circ\text{C}$  的情况下,输出激光线宽与抽运激光线宽的关系曲线如图 3 所示。由图 3 可知,当抽运光线宽从 1 MHz 变化到 2 MHz 时,输出激光的线宽变化 1 MHz,故抽运光线宽对输出激光线宽的影响比较大。

假设抽运光线宽为 1 MHz,抽运光波长为  $0.82 \mu\text{m}$ ,在温度为  $20^\circ\text{C}$  的情况下,输出激光线宽与信号光线宽的关系如图 4 所示。由图 4 可知,随着信号光的线宽增大,输出光线宽呈直线减小。

假设温度为  $20^\circ\text{C}$ ,抽运光线宽为 1 MHz,信号光线宽为 1 MHz,输出光线宽与抽运光波长的关系如图 5 所示。由图 5 可知,当抽运光波长从  $0.82 \mu\text{m}$  变化到  $0.88 \mu\text{m}$  时,输出激光线宽的变化为 2 kHz,而且随着抽运光波长的增加,线宽是逐渐减小的。

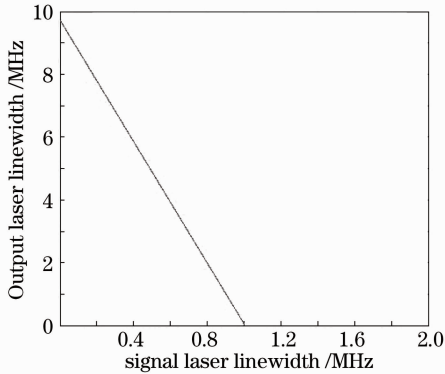


图 4 输出光线宽与信号光线宽关系曲线

Fig. 4 Relation between output laser linewidth and signal laser linewidth

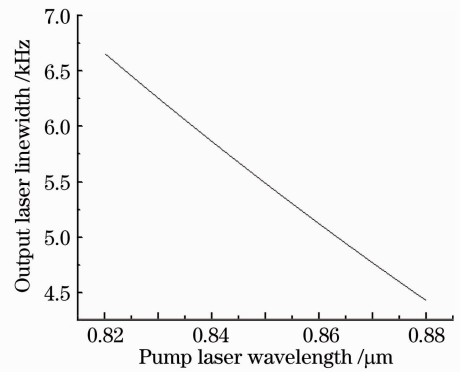


图 5 输出光线宽与抽运光波长关系曲线

Fig. 5 Relation between output laser linewidth and pump laser wavelength

## 4 结 论

非线性光参量差频方法是获得中红外激光的有效手段,可用于大气痕量气体的高灵敏度检测,特别是在某些气体吸收峰非常相近的情况下,需要用窄线宽激光光源才能分辨出两种气体的吸收峰。本文介绍了差频系统输出激光线宽以及输出激光功率的公式,并通过数值模拟得出,输出光的线宽主要由抽运光和信号光线宽决定,而温度与抽运光波长对输出激光线宽的影响不是很大。所以,要减小差频系统输出激光线宽只需减小抽运激光和信号激光的线宽。

## 参 考 文 献

- 1 W. Chen, G. Mouret, D. Boucher *et al.*. Mid-infrared trace gas detection using continuous-wave difference frequency generation in periodically poled RbTiOAsO<sub>4</sub>[J]. *Appl. Phys. B*, 2001, **72**(7): 873~876
- 2 D. Richter, A. Fried, B. P. Wert *et al.*. Development of a tunable mid-IR difference frequency laser source for highly sensitive airborne trace gas detection[J]. *Appl. Phys. B*, 2002, **75**(2-3): 281~288
- 3 H. Waechter, M. W. Sigrist. Mid-infrared laser spectroscopic determination of isotope ratios of N<sub>2</sub>O at trace levels using wavelength modulation and balanced path length detection [J]. *Appl. Phys. B*, 2007, **87**(3): 539~546
- 4 Wang Zhuqing, Wang Huan, Cao Zhensong *et al.*. The measurement of water vapor isotope based on mid-infrared difference frequency generation [M]. *Spectroscopy and Spectral Analysis*, 2009, **29**(12): 3271~3272  
王竹青,王欢,曹振松等. 基于差频中红外激光测量水分子同位素丰度 [J]. *光谱学与光谱分析*, 2009, **29**(12): 3271~3272
- 5 D. Jundt. Temperature-dependent Sellmeier equation for the index of refraction,  $n_e$ , in congruent lithium niobate[J]. *Opt. Lett.*, 1997, **22**(20): 1553~1555
- 6 Wang Li, Li Guang. Analysis of permitted parameters and output linewidth on ZnGeP<sub>2</sub>-DFG with mid-infrared laser [OL]. Chinese Scientific Papers Online, Sciencepaper Online, <http://www.paper.edu.cn/index.php/default/releasepaper/content/200907-462>

- 王 丽, 李 光. ZnGeP<sub>2</sub>-DFG 中红外激光器的允许参量和线宽分析特性研究 [OL]. 中国科技论文在线, <http://www.paper.edu.cn/index.php/default/releasepaper/content/200907-462>
- 7 T. Chu, M. Broyer. Intracavity CW difference frequency generation by mixing three photons and using Gaussian laser beams [J]. *J. Phys.*, 1985, **46**(4): 523~533
- 8 J.-J. Zondy. The effect of focusing in type-I and type-II difference-frequency generations [J]. *Opt. Commun.*, 1998, **149**(1-3): 181~206
- 9 Weidong Chen, Julien Cousin, Emmanuelle Pouillet. Continuous-wave mid-infrared laser sources based on difference frequency generation [J]. *C. R. Physique*, 2007, **8**(10): 1129~1150
- 10 Chen Dong, Liu Wenqing, Zhang Yujun *et al.*. Difference frequency generation based mid-infrared system for high sensitive detection of atmospheric gas [J]. *J. Atmospheric and Environmental Optics*, 2007, **2**(2): 127~128
- 陈 冬, 刘文清, 张玉钧 等. 差频产生中红外光源的大气痕量成分高灵敏检测系统研究 [J]. *大气与环境光学学报*, 2007, **2**(2): 127~128
- 11 Cui Xiaojuan, Liu Wenqing, Chen Dong *et al.*. Mid-infrared laser spectroscopy detection system based on difference frequency generation [J]. *J. Atmospheric and Environmental Optics*, 2008, **3**(2): 152~153
- 崔小娟, 刘文清, 陈 东 等. 差频产生中红外激光光谱检测系统研究 [J]. *大气与环境光学学报*, 2008, **3**(2): 152~153