

文章编号:1004-4213(2010)08-1491-5

# 基于 GaSe 差频产生 8~19 $\mu\text{m}$ 可调中红外辐射\*

李建松,姚建铨,徐小燕,钟凯,徐德刚,王鹏

(天津大学 精密仪器与光电子工程学院 激光与光电子研究所 光电信息技术科学教育部重点实验室,天津 300072)

**摘要:**利用 Nd:YAG 激光器抽运内腔 KTP 光学参量振荡器,得到了输出为 2  $\mu\text{m}$  附近的双波长,并在满足 I 类相位匹配条件下,在 GaSe 中共线差频产生 8~19  $\mu\text{m}$  连续宽调谐的中红外辐射.在 8.76  $\mu\text{m}$  处脉冲最大能量达 33.66  $\mu\text{J}$ ,峰值功率 7.4 kW,光子转换效率达 4.43% 左右.分析了影响能量转化效率的原因,提出了补偿走离的措施.

**关键词:**中红外辐射;差频;相位匹配

中图分类号:TN212

文献标识码:A

doi:10.3788/gzxb20103908.1491

## 0 引言

作为一个重要的大气窗口,8~12  $\mu\text{m}$  中红外激光在物质探测、光学遥感、军事等方面有着重要应用.大多分子在中红外波段有明显吸收特性,尤其是部分有毒气体在 8~12  $\mu\text{m}$  波段有较强吸收.早在上世纪<sup>[1-3]</sup>人们就认识到中红外波段在目标跟踪、排除障碍、红外反导方面的应用,随着材料科学晶体生长技术以及半导体材料工艺的发展,量子级联激光器新型半导体激光器等对新型中红外光源发展起了很大作用<sup>[4]</sup>.目前对于 8~12  $\mu\text{m}$  中红外激光(Middle Infrared Radiation)的产生主要利用量子级联激光器<sup>[5]</sup>、CO<sub>2</sub> 激光器和光学参量源<sup>[6-7]</sup>等方法,但是量子级联激光器在调谐范围上受到限制.通过光学差频技术不仅可以实现宽调谐(3~19  $\mu\text{m}$ )窄线宽毫焦量级中红外脉冲输出,而且其结构简单紧凑,中红外输出无阈值使其优越于其他方式.

硒化镓(GaSe)是一种性能优越的负单轴晶体材料,具有较高的二阶非线性系数( $d^{22}=54 \text{ pm/v}$ ),其透光波段为 0.65~20  $\mu\text{m}$ ,中红外波段品质因数较高为 127.8,可以在很宽的波长范围内满足相位匹配条件.早在 20 世纪 70~80 年代,国外就有关于 GaSe 差频产生中红外辐射的报道<sup>[8-9]</sup>,但其调谐范围和能量转化效率偏低.Valeriy G. Voevodin<sup>[10]</sup>等人利用 Nd:YAG 激光器和染料激光器配合 DFG-DFG 技术,实现 5~16  $\mu\text{m}$  中红外波连续调谐输出.Wei Shi, Ding, Y, J<sup>[11]</sup>利用 GaSe 差频输出 2.7~28.7  $\mu\text{m}$  中红外波,其 I 类相位匹配最大输出能量达 11  $\mu\text{J}$ ,峰值功率 2.2 kW,能量转换效率达 0.6%.

目前国内主要集中于对近红外辐射(1~3  $\mu\text{m}$ )和中红外波段 3~5  $\mu\text{m}$  光源产生的研究和报道<sup>[12-13]</sup>,而对差频技术产生 8~12  $\mu\text{m}$  中红外辐射的报道较少.

本文选用 GaSe 晶体作为差频晶体,其中红外波段品质因数较高.通过电光调 Q Nd:YAG 激光器 1 064 nm 光抽运内腔 KTP-OPO,调节 2  $\mu\text{m}$  附近双波长在 GaSe 中共线差频,实现 8~19  $\mu\text{m}$  中红外宽调谐连续输出,并且其最大脉冲能量达 33.66  $\mu\text{J}$ ,峰值功率 7.4 kW,获得较高的能量输出,在差频技术产生中红外辐射领域处于领先水平.

## 1 2 $\mu\text{m}$ 附近双波长 GaSe 差频实验

本文利用电光调 Q 1 064 nm 激光器内腔抽运近简并点 KTP 光学参量振荡器(KTP-OPO)实现连续可调谐 2  $\mu\text{m}$  附近双波长输出,双波长抽运光共线通过 GaSe 晶体,通过调节晶体相位匹配角度差频输出连续可调中红外波,实验装置如图 1.

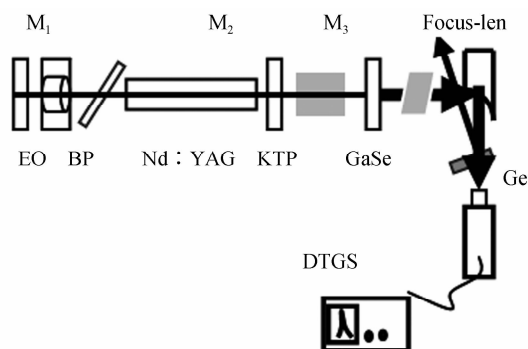


图 1 内腔 KTP-OPO 抽运 GaSe 晶体差频装置图  
Fig. 1 Schematic diagram of DFG in GaSe crystal pumped by intra-cavity KTP-OPO

$M_1$  为 1.064  $\mu\text{m}$  高反介质膜片,EO 为碲化磷酸二氢钾 KD\*P 电光调 Q 晶体;BP 为布儒斯特片, $M_2$  为 OPO 输入镜; $M_3$  为 OPO 输出镜,内腔

\* 国家重点基础研究发展计划(2007CB310403)资助  
Tel:022-27407676 Email:ljs198410@163.com  
收稿日期:2010-01-26 修回日期:2010-03-25

KTP-OPO 的抽运源为半导体抽运的电光调 Q Nd : YAG 激光器, Nd : YAG 棒的尺寸为  $\varphi 5 \text{ mm} \times 90 \text{ mm}$ , 掺杂浓度为 0.8%, 两端镀 1 064 nm 增透膜, 激光谐振腔由  $M_1$  和  $M_3$  构成, 重复频率为 10 Hz.  $M_2$  为近筒并点 KTP-OPO 的全反镜,  $M_3$  为 KTP-OPO 的耦合输出镜,  $M_2$  对 1.064  $\mu\text{m}$  高透, 对 1.9~2.4  $\mu\text{m}$  高反,  $M_3$  对 1.9~2.4  $\mu\text{m}$  的透过率为 50%, 这样信号光和闲频光同时共振, 可以获得双波长的输出, KTP 晶体切割角度为  $\varphi = 0^\circ$ ,  $\theta = 49.5^\circ$ , 尺寸为  $7 \times 8 \times 15 \text{ mm}^3$ , 晶体两端面未镀膜. GaSe 晶体的通光孔径为 16 mm, 晶体的长度为 10 mm, 采用  $z$  向切割, 晶体的两端面未镀膜有增透膜, 采用镀介质膜的锗片对残余的双波长进行滤波, 最后通过 DTGS 系统得到准确的 MIR 测量.

设参与差频过程的三波长分别为  $\lambda_{p_1}$ 、 $\lambda_{p_2}$  和  $\lambda_{\text{MIR}}$ , 其波矢分别为  $k_{p_1}$ 、 $k_{p_2}$  和  $k_{\text{MIR}}$ . 根据动量守恒, 在完全满足共线相位匹配条件时, 有

$$\Delta k = k_{p_1} - k_{p_2} - k_{\text{MIR}} = 0 \quad (1)$$

并根据差频过程中的能量守恒式

$$\frac{1}{\lambda_{p_1}} - \frac{1}{\lambda_{p_2}} - \frac{1}{\lambda_{\text{MIR}}} = 0 \quad (2)$$

差频过程所用的两波长为 1 064 nm 抽运 KTP-OPO 同时输出的信号光与闲频光, 可以通过改变 KTP 晶体的匹配角度来达到双波长频率调谐, 本文所用的 Vanherzeel<sup>[13]</sup> 报道的 KTP 晶体色散方程, 在 1 064 nm 抽运下 KTP-OPO 调谐曲线如图 2.

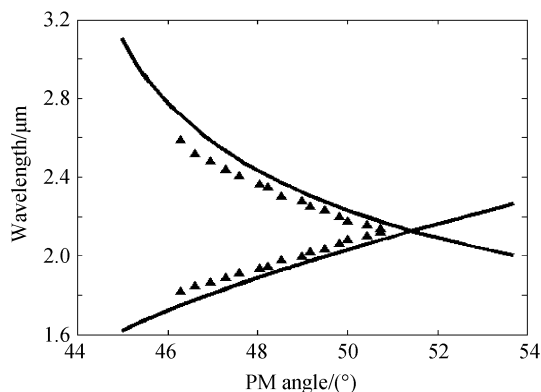


图 2 Nd : YAG 激光器抽运 KTP-OPO 角度调谐曲线  
Fig. 2 Angle tuning characteristics of the KTP OPO pumped by a Nd : YAG laser

其中 KTP 调谐角度为  $46.29^\circ \sim 50.7^\circ$ , 信号光的调谐范围为 1 818~2 127 nm, 相应的闲频光的调谐范围为 2 565~2 129 nm, 实现 2  $\mu\text{m}$  附近双波长垂直偏振连续可调输出. 实验中所使用的 Agilent 86142B 光谱分析仪的扫描范围为 600~1 700 nm, 为了测得 2  $\mu\text{m}$  附近的输出波长, 我们间接测量信号光与闲频光的倍频光得到信号光的波长. 参与差频的两抽运光的倍频光谱和脉冲信号如图 3.

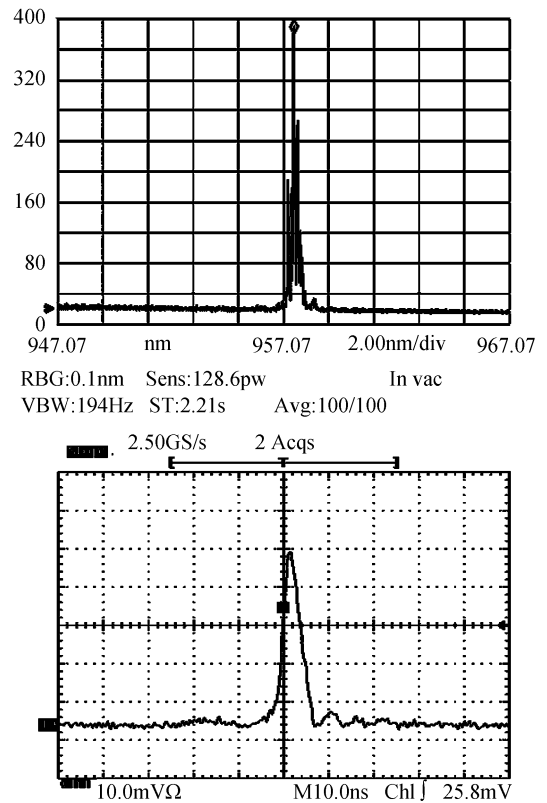


图 3 KTP-OPO 输出双波长倍频光谱和脉冲信号  
Fig. 3 Temporal profile of dual wavelength pulse and its SHG output spectra of KTP-OPO

图中 1 915.1 nm 倍频光的光谱谱线宽度 1 nm, 可推断双波长谱线宽度在 1 nm 附近, 信号脉宽 4.5 ns 左右, 从获得差频较大的非线性系数和最大能量的角度出发<sup>[7]</sup>, 本实验采用 e-oo 类相位匹配方式, 在 0.65~18  $\mu\text{m}$  透明的波段内, GaSe 色散方程<sup>[14]</sup>为

$$\begin{cases} n_o^2 = 7.443 + \frac{0.4050}{\lambda^2} + \frac{0.0186}{\lambda^4} + \frac{0.0061}{\lambda^6} + \frac{3.1485\lambda^2}{\lambda^2 - 2194} \\ n_e^2 = 5.76 + \frac{0.3879}{\lambda^2} - \frac{0.2288}{\lambda^4} + \frac{0.1223}{\lambda^6} + \frac{1.8550\lambda^2}{\lambda^2 - 1780} \end{cases} \quad (3)$$

对产生的 MIR 信号, 采用 KBr 封装 DTGS 热释电探测器进行收集, 通过改变 KTP-OPO 输出的信号光与闲频光的频率间隔, 可以得到中红外波连续调谐输出.

实验中利用 I 类 e-oo 相位匹配方式差频, 可以得到 8~19  $\mu\text{m}$  的中红外连续可调输出如图 4(b). 图 4(a)为利用 DTGS 系统采集的中红外信号波形. 本实验中进行差频的 KTP-OPO 输出双波长抽运能量稳定在 7 mJ 左右, 最后通过中红外能量计探测得到中红外能量谱线如图 5.

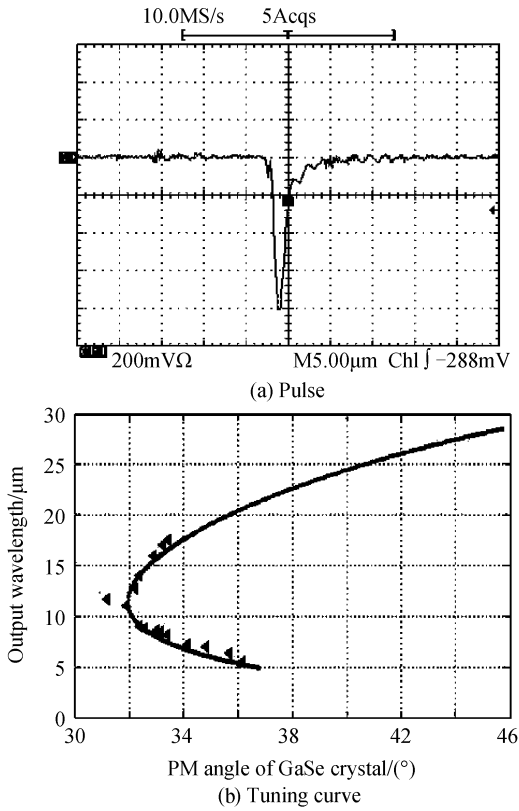


图 4 中红外脉冲信号和 GaSe 差频产生中红外调谐曲线  
Fig. 4 Temporal profile of MIR pulse and Mid-IR tuning characteristics for the DFG in GaSe crystal

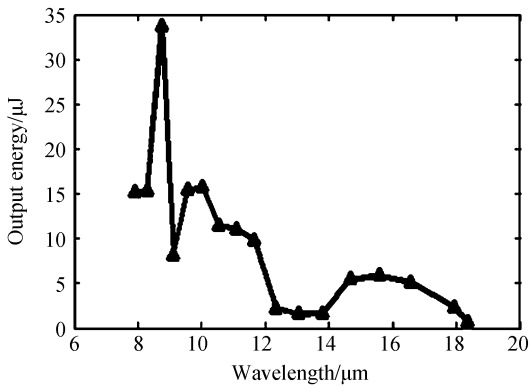


图 5 GaSe 差频输出中红外能量图  
Fig. 5 Output characteristics of MIR energy with DFG in GaSe crystal

Nd:YAG 激光器重复频率 10 Hz, 1 064 nm 基光抽运 KTP-OPO, 通过调节 2 μm 附近双波长频率间隔, 在 GaSe 中差频得到中红外波输出波长并利用 DTGS 系统进行测量. 图 5 中当波长大于 19 μm 时输出能量很低, 主要是由于晶体透过率的限制, 在大于 19 μm 处出现截止特性. 另外由于 KTP-OPO 镜片镀膜限制了 1.8 μm 以下和 2.5 μm 以上波长调谐输出, 所以差频产生中红外辐射基本在 8 μm 以上. 其中在波长 8.76 μm 处单脉冲最高输出能量达 33.67 μJ, 能量转换效率达 0.48%, 光子转换效率 4.43%. 根据对抽运信号的脉宽估算中红外波脉宽 4.5 ns 左右, 在 8.76 μm 处得到

7.4 kW 左右峰值功率输出.

## 2 实验分析与改进

实验中得到了连续可调中红外输出, 但能量转换效率并不十分理想. 分析原因主要有: 1) KTP-OPO 参量振荡器的性能影响差频两抽运光光束质量, 2 μm 双波长的光束质量对 GaSe 共线差频效果具有决定性作用; 2) GaSe 晶体未镀增透膜和自身质量问题对实验结果有一定影响; 3) GaSe 晶体长度选取和差频抽运功率密度影响差频转换效率和能量输出.

KTP 双轴晶体中三个光波电场为

$$E_i(r, t) = A_i \exp[i(k_i \cdot r_i - \omega t)], i = 1, 2, 3 \quad (4)$$

三光波波矢  $K_1, K_2, K_3$ , 三光波能流方向  $S_1, S_2, S_3$  与波矢  $K$  夹角为  $\alpha_1, \alpha_2, \alpha_3$ . 假定共线匹配光波走离不破坏相位匹配条件下, 考虑  $E_2, E_3$  分别在其能流方向上变化, 耦合波方程<sup>[15]</sup>为

$$\frac{dA_1(z_1)}{dz_1} = \frac{i\omega_1^2 \mu_0 \xi_0 d_{\text{eff}} \cos \beta_{13}}{K_1 \cos \alpha_1} A_3(z_3) A_2^*(z_2) \quad (5)$$

$$\frac{dA_2(z_3)}{dz_3} = \frac{i\omega_2^2 \mu_0 \xi_0 d_{\text{eff}} \cos \beta_{23}}{K_2 \cos \alpha_2} A_3(z_3) A_1^*(z_1) \quad (6)$$

$$\frac{dA_3(z_3)}{dz_3} = \frac{i\omega_3^2 \mu_0 \xi_0 d_{\text{eff}}}{K_3 \cos \alpha_3} A_1(z_1) A_2(z_2) \quad (7)$$

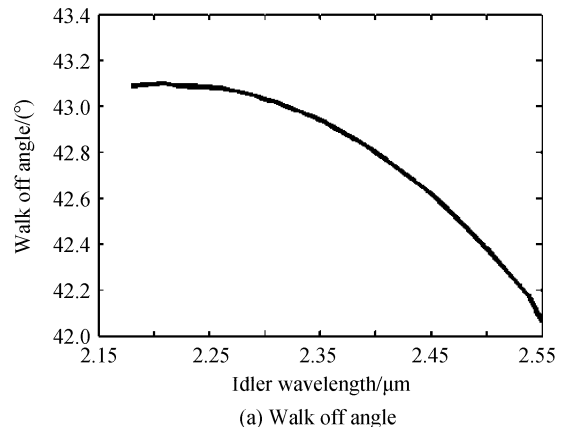
式中

$$\frac{dz_3}{dz_1} = \frac{1}{\cos \beta_{13}}, \frac{dz_3}{dz_2} = \frac{1}{\cos \beta_{23}} \quad (8)$$

光波在 KTP 晶体中的走离效应使耦合波方程出现  $\cos \beta_{ij}$  和  $\cos \alpha_i$  项 ( $i, j = 1, 2, 3$ ), 使三波互作用有效非线性系数减小, 降低了互作用效率. 并且由于能流方向与波矢方向的分离使三波等振幅面分开减小了互作用长度. 图 6 为 KTP-OPO 闲频光在 KTP 晶体中走离情况, 以及差频抽运光允许角范围.

差频过程中红外辐射的转换效率为

$$\eta_{\text{MIR}} = \frac{2\omega_i^2 d_{\text{eff}}^2 L^2 I_{p_2} T_{p_1} T_{p_2} T_{\text{MIR}}}{\epsilon_0 c^3 n_e(\lambda_1) n_o(\lambda_2) n_o(\lambda_{\text{MIR}})} \sin^2 \left( \frac{\Delta k L}{2} \right) \cdot e^{-\Delta L} \times \frac{1 + e^{-\Delta L} - 2e^{-\Delta L/2} \cos(\Delta k L)}{(\Delta k L)^2 + (\Delta \alpha L/2)^2} \quad (9)$$



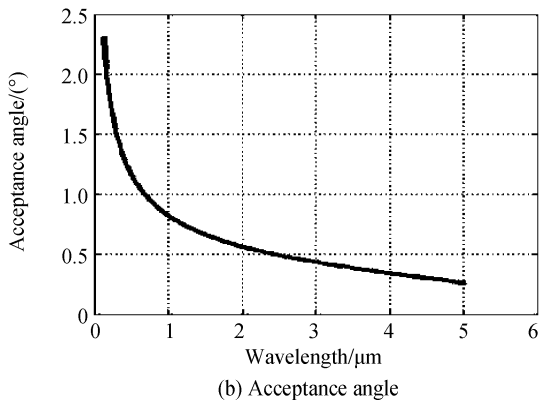


图6 闲频光在KTP晶体中的走离和GaSe差频允许角范围  
Fig. 6 Walk off angle characteristics of idler wave in KTP crystal and acceptance angle characteristics of DFG wave in GaSe crystal

$T_{p_1}$ 、 $T_{p_2}$  和  $T_{\text{MIR}}$  分别为  $\omega_{p_1}$  和  $\omega_{p_2}$  在晶体入射端面及中红外波在出射端面的菲涅尔损耗,  $\alpha$  为中红外波在晶体的功率吸收系数, 式(9)即为在平面波条件下共线差频产生中红外波输出功率的小信号近似解. e-oo 类差频相位匹配允许角较小,  $2\ \mu\text{m}$  双波长的走离以及线宽和发散角的存在增大了相位失配量  $\Delta k$ , 从而降低了差频转换效率, 所以要限制双波长的线宽并减小其聚焦尺寸来提高差频抽运光束质量和中红外输出能量; 差频转换效率与双波长抽运功率成正比, 在 GaSe 损伤阈值 ( $30\ \text{mW}/\text{cm}^2$ ) 允许范围内, 可以提高差频抽运光功率密度来提高差频转换效率, 本实验  $2\ \mu\text{m}$  附近双波长抽运功率密度只有  $6\ \text{mW}/\text{cm}^2$  左右, 所以仍有较大提升空间; 另外, 在允许范围内可以选择更长的晶体提高能量转换效率.

为了补偿光波走离效应对双波长光束质量的影响, 本文提出了改进方案采用两块切割角度相同的对称放置 KTP 晶体组成双 KTP-OPO, 补偿走离响应带来的影响, 为下一步实验工作奠定基础, 改进方案如图 7.

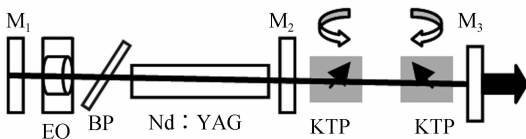


图7 双KTP-OPO改进实验装置  
Fig. 7 Schematic diagram of the intra-cavity dual KTP-OPO

### 3 结论

本文通过 Nd:YAG 激光器  $1064\ \text{nm}$  光抽运内腔 KTP-OPO, 通过比较理论曲线与实验数据得到  $2\ \mu\text{m}$  附近双波长输出, 信号光的调谐范围为  $1818\sim 2127\ \text{nm}$ , 相应的闲频光的调谐范围为  $2565\sim 2129\ \text{nm}$ , 通过调节 KTP 晶体相位匹配角

度实现双波长谐波输出, 并且通过支架控制旋转 GaSe, 调节 e-oo 相位匹配角度实现双波长共线差频  $6\sim 19\ \mu\text{m}$  中红外辐射的产生, 最大脉冲能量达  $33.67\ \mu\text{J}$ , 峰值功率  $7.4\ \text{kW}$ , 能量转换效率达  $0.48\%$ , 获得较大的峰值功率和能量输出. 最后通过分析抽运光的发散角和三波耦合方程讨论 KTP 中光波的走离效应对双波长光束质量的影响, 直接导致差频输出能量的减小和能量转换效率的降低, 并且分析了其他影响差频转换效率的原因和补偿措施. 基于上述分析提出了双 KTP-OPO 走离补偿措施, 为今后的实验工作提供了很好的改进措施.

### 参考文献

- [1] CHEN W, CAZIER F, TITTEL F, BOUCHER D. Measurements of benzene concentration by difference-frequency laser absorption spectroscopy[J]. *Appl Opt*, 2000, **39**(33): 6238-6242.
- [2] BHAR G C, DAS S, VODOPYANO K L. Nonlinear optical laser devices using GaSe[J]. *Appl Phys B: Lasers Opt*, 1995, **61**(2): 187-190.
- [3] CHEN W, MOURET G, BOUCHER D. Difference-frequency laser spectroscopy detection of acetylenetrace constituent[J]. *Appl Phys B: Lasers Opt*, 1998, **67**(3): 375-378.
- [4] EBRAHIM Z M, SOROKINA I T. Mid-infrared coherent sources and applications[DB/OL]. 2007-10-31. <http://www.springerlink.com/content/g15605/>.
- [5] YU J S, SLIVKEN S, EVANS A, et al. High-power  $\lambda=9.5\ \mu\text{m}$  quantum-cascade lasers operating above room temperature in continuous-wave mode[J]. *Appl Phys Lett*, 2006, **88**(9): 1113-1113-3.
- [6] VODOPYANO K L. Mid-infrared optical parametric generator with extra-wide ( $3\sim 19\ \mu\text{m}$ ) tunability: applications for spectroscopy of two-dimensional electrons in quantum wells[J]. *JOSA B*, 1999, **16**(9): 1579-1586.
- [7] ZAKEL A, WAGNER G J, ALFORD W J, et al. High power rapidly tunable dual band CdSe optical parametric oscillator[J]. *ASSP*, 2005, **98**(6): 433-437.
- [8] OUDAR J L, KUPECEK P J, CHEMLA D S. Medium infrared tunable down conversion of a YAG-pumped infrared dye laser in gallium selenide[J]. *Opt Commun*, 1979, **29**(1): 119-122.
- [9] BIANCHI A, GARBI M. Down-conversion in the  $4\sim 18\ \mu\text{m}$  range with GaSe and AgGaSe<sub>2</sub> nonlinear crystals[J]. *Opt Commun*, 1979, **30**(1): 122-124.
- [10] VOEVODIN V G, VOEVODINA O G. Tunable coherent infrared source from  $5\sim 16\ \mu\text{m}$  based on difference-frequency mixing in an indium-doped GaSe crystal[J]. *JOSA B*, 2006, **23**(2): 282-288.
- [11] SHI W, DING Y J, MU X D. Tunable and coherent nanosecond radiation in the range of  $2.7\sim 8.7\ \mu\text{m}$  based on difference-frequency generation in gallium selenide[J]. *Appl Phys Lett*, 2002, **80**(21): 3889-3891.
- [12] TIAN Hong-bin, WANG Li. Analysis of generating near mid infrared range based on quasi-phase-marching[J]. *Acta Photonica Sinica*, 2007, **36**(8): 1495-1498.  
田宏宾, 王丽. 基于准相位匹配产生中红外波段的特性分析[J]. *光子学报*, 2007, **36**(8): 1495-1498.
- [13] DAI Shi-xun. The research development of chalcogenide glass materials emitting  $3\sim 5\ \mu\text{m}$  fluorescence[J]. *Acta Photonica Sinica*, 2008, **37**(Sup1): 239-243.

- 戴世勋. 3~5  $\mu\text{m}$  中红外发光的硫系玻璃材料研究进展[J]. 光子学报, 2008, **37**(Sup1): 239-243.
- [14] VANHERZEELE H, BEERLEIN J D, ZUNSTEG F C. Index of refraction measurements and parametric generation in hydrothermally grown  $\text{KTiOP}_4$ [J]. *Appl Opt*, 1988, **27**(16): 3314-3316.
- [15] VODOPYANOV K L, KULEVSKIIU L A. New dispersi-on relationships for GaSe in the 0.65~18 $\mu\text{m}$  spectral region[J]. *Opt Commun*, 1995, **118**(3-4): 375-378.
- [16] YAO Jian-quan, XU De-gang. All solid state laser and nonlinear optical frequency conversion technology [M]. Beijing: Science Press, 2007: 704-706.  
姚建铨,徐德刚. 全固态激光及非线性光学频率变换技术 [M]. 北京: 科学出版社, 2007: 704-706.

## Generation of Tunable and Continuous Mid-infrared-radiation in the Range of 8 ~ 19 $\mu\text{m}$ Based on DFG in GaSe

LI Jian-song, YAO Jian-quan, XU Xiao-yan, ZHONG Kai, XU Deng-gang, WANG Peng  
(Key Laboratory of Opto-electric Information Science and Technology, Institute of Laser and Opto-electronics, Ministry of Education, Tianjin University, College of Precision Instrument and Opto-electronics Engineering, Tianjin 300072, China)

**Abstract:** Using Nd : YAG laser pump intra-cavity optical parametric oscillator, dual wavelength near 2  $\mu\text{m}$  can be generated. Through collinear difference-frequency-generation, widely tunable and continuous Mid-infrared- radiation in the range of 8~19  $\mu\text{m}$  is obtained under the condition of type I phase matching. The maximum output power of 7.4 kW (pulse energy of 33.66  $\mu\text{J}$ ) is achieved at 8.76  $\mu\text{m}$ , corresponding to photon conversion efficiency about 4.43%. The reasons that affecting conversion efficiency are analyzed and new measures are proposed to compensate walk off angle.

**Key words:** Mid-infrared-radiation; Difference-frequency generation; Phase matching



**LI Jian-song** was born in 1984. Now he is pursuing the M. S. degree, and his research interests focus on THz and MIR source based on nonlinear optical frequency conversion technology.



**YAO Jian-quan** was born in 1939. As a member of Chinese Academy of Sciences, his research interests focus on THz source base on nonlinear optical frequency conversion technology and all solid state laser.