

doi:10.3788/gzxb20154408.0819002

三硼酸锂晶体 I 类非临界相位匹配下 近红外波段的差频产生

卢一鑫^{1,2}, 白晋涛¹

(1 西北大学 光子学与光子技术研究所, 西安 710061)

(2 西安文理学院 应用物理研究所, 西安 710065)

摘 要:利用差频发生器产生波长范围为 1.1~2.2 μm 的可调谐近红外激光. 实验搭建了差频光路系统, 以 0.56~0.71 μm 染料激光器作为泵浦光、1.064 μm 的半导体激光器作为信号光, 经过三硼酸锂晶体在 I 类相位匹配方式条件下通过温度调谐非临界相位匹配方式差频产生较高功率的近红外激光, 在近红外波段测得其平均输出功率在 30 mW 以上. 泵浦光功率为 1.2 W、信号光功率为 0.31 W 时, 测得差频波长为 1.54 μm 的输出功率为 35 mW, 转化效率达 11.7%. 该近红外差频发生器具有宽调谐、窄线宽的特点.

关键词:非线性光学; 近红外; 差频发生器; 非临界相位匹配; 三硼酸锂晶体

中图分类号: NO434.3

文献标识码: A

文章编号: 1004-4213(2015)08-0819002-5

Generation of Near-infrared Radiation by Non-critical Phase-matched Type- I Difference-frequency Mixing in a LBO Crystal

LU Yi-xin^{1,2}, BAI Jin-tao¹

(1 Institute of Photonics and photon technology, northwest university, Xi'an 710061, China)

(2 Institute of Applied Physics, Xi'an university, Xi'an 710065, China)

Abstract: The tunable near-infrared laser with wavelength range of 1.1~2.2 μm was generated by the different-frequency generation. In the experiment, the optical system was constituted of tunable dye laser (560~710 nm) as the pump light source and 1.064 μm laser diode as the signal light source, the efficient near-infrared radiation was generated by the temperature-tuned non-critical phase-matched type-I difference-frequency mixing in a LBO crystal, and the average output power was measured more than 30 mW during the near-infrared radiation. At 1.54 μm the output power was measured 35 mW in the condition of the 1.2 W of the pump source and 0.31 W of the signal source, and the energy conversion efficiency of 11.7% was achieved. The peculiarity of broadly tunable and narrow spectral bandwidth of the near-infrared of the different-frequency generation has an extensive application.

Key words: Nonlinear optics; Near-infrared radiation; Different-frequency generation; Non-critical phase-matched; LBO crystal

OCIS Codes: 190.2620; 190.4223; 190.4360; 190.4410

0 引言

近红外光(波长 0.75~3 μm)主要吸收含氢基团振动的倍频和合频,其中包含了大多数有机化合物的组成和分子结构信息.随着近红外光谱分析技术的不断

断发展,其在农牧、大气污染监测、泄漏检测、医疗、军事等方面具有较为广泛的应用前景^[1-3],红外波段在热成像方面可对通过傅里叶变换得到参照物的压缩图像进行编码处理,实现自动识别和监测等功能.

现有激光器的输出波长在红外波段很难产生,而

基金项目:国家自然科学基金(No. 61401356)资助

第一作者:卢一鑫(1982-),男,实验师,硕士,主要研究方向为非线性光学、光电子器件. Email:tongy1982@163.com

收稿日期:2015-02-02;录用日期:2015-04-27

<http://www.photon.ac.cn>

光学参量振荡器 (Optical Parametric Oscillator, OPO) 或者差频发生器 (Different-Frequency Generation, DFG) 可以弥补激光器在这方面的不足. DFG 通过能量较大、频率为 ω_p 的泵浦光和能量较小、频率为 ω_s 的信号光在参量转换过程中的产生频率为 ω_i (红外波段) 的空闲光^[4].

近红外的产生主要通过非线性晶体来实现^[5-8]. Teunis 等利用 Nd:YLF 激光器泵浦源实现了脉宽为 22 ps、平均输出功率为 1.2 W 的可调谐近红外波段 (1.22~1.83 μm), 转换效率达到 55%^[5]; Kieu 等利用光纤激光器产生脉宽为 3.5 ps、在波长 1.03 μm 平均输出功率达到 6 W 的可调谐波段范围 (1.3~1.95 μm)^[7]; Cleff 等使用掺镱光纤作为泵浦源得到了脉宽为 100~250 fs、平均输出功率为 300 mW 以上的可调谐近红外波段 (1.19~1.63 μm)^[8]. 这些利用 OPO 技术产生的可调谐近红外波段都小于 2 μm , 且光路较为复杂. 基于磷酸钛氧钾 (KTP)^[9]、 β 相偏硼酸钡 (BBO)^[10]、碘酸锂 (LiIO_3)^[11] 非线性晶体利用 DFG 技术可产生近红外激光, 效率较高, 但这些晶体的损伤阈值较低使得输出功率较小.

LBO 具有很高的损伤阈值, 可以利用大功率的泵浦激光器差频输出较高功率的近红外光. 本文利用 LBO 作为差频晶体, 基于温度调谐非临界相位匹配技术 (Non-Critical Phase-Matched, NCPM) 获得调谐范围较宽的近红外光波段, 与 OPO 相比结构简单, 不需要谐振腔, 代价较小, 实用价值较高.

1 理论分析

差频技术的效率相对较低, 而 LBO 晶体本身具有较高的损伤阈值, 可以提高入射光的功率差频输出较大功率的近红外光, 与其它晶体的比较结果见表 1.

表 1 不同晶体差频红外波段的非线性光学参量

Parameter	KTP in Ref. [9]	BBO in Ref. [10]	LiIO_3 in Ref. [11]	LBO
Transparency/ μm	0.35~4.5	0.19~3.4	0.3~6.0	0.16~2.6
Damage threshold/ ($\text{mW} \cdot \text{cm}^{-2}$)	440	2 000	125	27 000
Absorption coefficient at 1.064 $\mu\text{m}/\text{cm}^{-1}$	0.74	0.07	0.08	0.27
Tuning range/ μm	1.2~2.2	2.7~3.4	2.6~6.0	1.2~2.2

能量转化过程在相位匹配时 (相位失配因子 $\Delta k = 0$) 满足能量和动量守恒, 三波共线相互作用下 (波矢 \mathbf{K}

为标量 k) 差频混合波 (Difference Frequency Mixed, DFM) 的波长由式 (1) 决定, 即

$$\frac{n_1}{\lambda_1} - \frac{n_2}{\lambda_2} = \frac{n_3}{\lambda_3} \quad (1)$$

式中, λ, n 分别表示波长和光波折射率, 下标 $j = 1, 2, 3$ 分别代表在光学参量转化中的泵浦光, 信号光和空闲光. 不同的波长 λ_j 对应相应的光波折射率 n_j .

理论计算可以得到 LBO 晶体在 I, II 类相位匹配条件下的差频波长方程, 即

$$\frac{n_1^y(\lambda_1, t)}{\lambda_1} - \frac{n_2^y(\lambda_2, t)}{\lambda_2} = \frac{n_3^s(\lambda_3, t)}{\lambda_3} \quad (2)$$

$$\frac{n_1^x(\lambda_1, t)}{\lambda_1} - \frac{n_2^y(\lambda_2, t)}{\lambda_2} = \frac{n_3^x(\lambda_3, t)}{\lambda_3} \quad (3)$$

结合 LBO 晶体折射率方程可得到 DFG 过程中的温度调谐模拟曲线, 满足波长需求, 但是 II 类计算的匹配温度太高 (300~450 $^{\circ}\text{C}$), 不利于实验进行.

基于温度调谐非临界相位匹配 (NCPM) 技术, LBO 晶体的折射率由 Kato 修改后的 Sellemier 方程^[12] 给出, 结合式 (2) 可以计算出 NCPM 条件下泵浦光波随着温度 t 变化的模拟曲线, 如图 1, 其近红外波段可以满足工作需要.

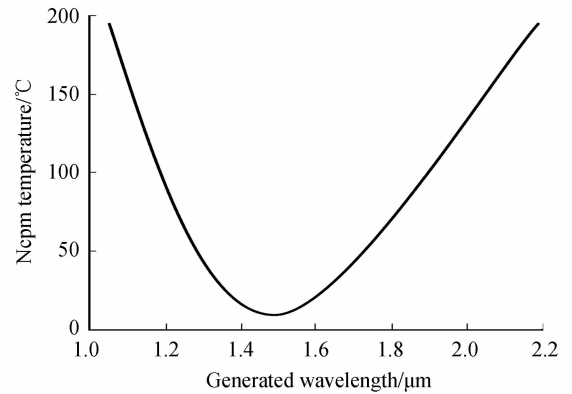


图 1 基于 LBO 晶体 I 类的非临界相位匹配技术温度调谐曲线
Fig. 1 The temperature-tuned non-critical phase-matching curve for type-I DFG in LBO

将三波耦合方程组和 DFG 过程 ($\omega_3 = \omega_1 - \omega_2$) 相结合, 设定两台激光器输出光强均在 10~100 mW/cm^2 之间变化, 则差频光光子通量 $N(\omega_3, l)$ 大信号一般解^[13] 为

$$N(\omega_3, l) = \frac{N(\omega_1, 0)N(\omega_2, 0)}{N(\omega_1, 0) + N(\omega_2, 0)} \times f^2 \left\{ \left[\frac{N(\omega_1, 0) + N(\omega_2, 0)}{N(\omega_2, 0)} \right]^{1/2} \frac{l}{l_M}, \left[\frac{N(\omega_2, 0)}{N(\omega_1, 0) + N(\omega_2, 0)} \right]^{1/2} \right\} \quad (4)$$

式中 l 是晶体长度, 函数 $f(\mu, k)$ 是雅克比椭圆函数 $\text{sn}(\mu, k)$ 和 $\text{dn}(\mu, k)$ 之比, 即

$$\begin{cases} f(\mu, k) = \frac{\text{sn}(\mu, k)}{\text{dn}(\mu, k)} \\ \text{dn}(\mu, k) = \sqrt{1 - k^2 \text{sn}^2(\mu, k)} \end{cases} \quad (5)$$

l_M 则表征混频过程速率的一个特征长度,即

$$l_M = \left[\frac{8\pi^2 d_{\text{eff}}^2 I(\omega_2, 0)}{c\epsilon_0 n_1 n_2 n_3 \lambda_1 \lambda_3} \right]^{-1} \quad (6)$$

式中 $N(\omega, l)$ 、 ω 、 λ 、 I 、 n 分别表示光子光通量、频率、波长、光功率密度和折射率,下标 $j=1, 2, 3$ 分别代表在光学参量转化中的泵浦光、信号光和空闲光, d_{eff} 为晶体的非线性有效系数, c 为光速。

设置 $N(\omega_1, 0)/N(\omega_2, 0) = 4:1$, 近似计算后可得

$$\frac{N(\omega_3, l)}{N(\omega_2, 0)} = 4 \cdot \frac{e^{2m} + e^{-2m} - 2}{e^{2m} + e^{-2m} + 2} \quad (7)$$

其中,

$$m = \left[\frac{40\pi^2 d_{\text{eff}}^2 I(\omega_2, 0) l^2}{c\epsilon_0 n_1 n_2 n_3 \lambda_1 \lambda_3} \right]^{1/2} \quad (8)$$

由于 $\frac{I(\omega_3, l)}{I(\omega_2, 0)} = \frac{N(\omega_3, l)\lambda_2}{N(\omega_2, 0)\lambda_3}$, 代入式(7), 再结合失

配因子 $\left[\frac{\sin(\Delta kl/2)}{(\Delta kl/2)} \right]^2$ 可以得到差频输出 $I(\omega_3, l)$ 相对于 $I(\omega_2, 0)$ 的转换效率表达式

$$\eta = 4 \cdot \frac{\lambda_3}{\lambda_2} \cdot \frac{e^{2m} + e^{-2m} - 2}{e^{2m} + e^{-2m} + 2} \cdot \left[\frac{\sin(\Delta kl/2)}{(\Delta kl/2)} \right]^2 \quad (9)$$

对式(9)进行模拟计算, 在 $\Delta k=0$, I类相位匹配 $d_{\text{eff}} = d_{32} \sin^2 \theta + d_{31} \cos^2 \theta$ 为 2.79×10^{-9} esu。在不同晶体长度, 可以得到转换效率 η 随着信号光 I_2 光功率密度的变化趋势: 转换效率均随信号光强递增, 随着晶体长度的增加, 转化效率趋向于饱和。这是由于 LBO 晶体对于三个波长具有一定的吸收损耗, 且一定长度的晶体随着光强的增加, DFG 过程中的非线性效应比较彻底。在晶体长度 10 mm, 绘制了输出 $1.54 \mu\text{m}$ 波长处的转换效率随着输入 $1.064 \mu\text{m}$ 信号光功率密度变化曲线, 其最大趋近于 13.7%, 如图 2。

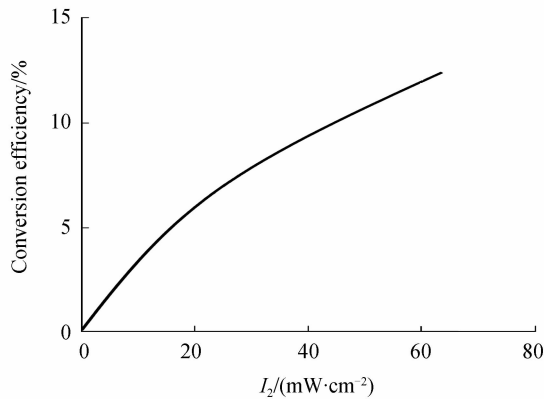


图 2 差频输出 $1.54 \mu\text{m}$ 波长处的转换效率随着输入 $1.064 \mu\text{m}$ 信号光功率密度变化曲线

Fig. 2 The variation in conversion efficiency at the generated wavelength $1.54 \mu\text{m}$ with the input power density of $1.064 \mu\text{m}$ radiation

2 实验装置

实验采用基于 LBO 晶体的 I 类温度调谐 NCPM

技术, 差频输出近红外波段, 具有宽调谐、窄线宽特点, 实验系统光路图如图 3。该系统采用两台激光器作为光源, DFG 泵浦光采用可见光范围内可调谐的染料 (Dye laser) 激光器, 输出波长为 $0.550 \sim 0.710 \mu\text{m}$, 无跳模波长调谐范围大于 30 GHz, 波长平均输出功率为 2.1 W, 线宽小于 2 MHz; 信号光采用中心波长 $1.064 \mu\text{m}$ 的 TO_3 封装的分布反馈 (Distributed Feed Back, DFB) 半导体激光器, 输出功率为 500 mW, 线宽小于 3 MHz, 波长调谐范围 $1.062 \sim 1.066 \mu\text{m}$ 。LBO 晶体购自福建福晶公司, 尺寸 $3 \text{ mm} \times 3 \text{ mm} \times 10 \text{ mm}$, 沿 xyz 方向切割, 实验中泵浦光和信号光均沿着晶体晶体 x 轴传播, 在 $x-z$ 平面实现 I 类匹配方式, 即 $\theta=90^\circ$, $\varphi=0^\circ$ 。Dye laser 和 DFB Laser 的偏振方向均是垂直于光轴, 即按照 I 类匹配方式沿着 y 轴, 晶体固定在有温控装置的盒子中, 用 FP21 温控仪 (Temperature Control, TC) 进行严格控制, 控温准确度优于 $\pm 0.1^\circ\text{C}$, 设置适当的工作温度满足 NCPM 条件。由于 LBO 晶体的阈值很高, 焦距 $f=10 \text{ mm}$ 的透镜把光束聚焦后入射到 LBO 晶体中, 可以增加入射光能量。 M_1 为半透半反镜, M_2 为全反射镜, ISO 为光隔离器, G 为 Glan-Tomason 偏振片使得入射光沿着正确的偏振方向入射到晶体中, 输出的近红外光的偏振的方向与 Dye laser 的方向相互垂直。非线性转换剩余的泵浦光和信号光用近红外增透的滤波片组滤掉, 其由截止波长为 $0.8 \mu\text{m}$ 和吸收 $1.064 \mu\text{m}$ 特殊滤波片构成, 差频产生的近红外光送入探测器以及功率计, 测量其波长和输出功率。

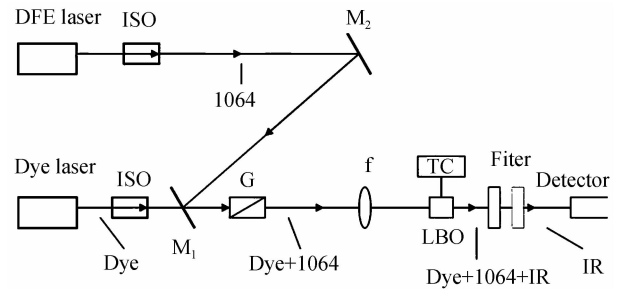


图 3 实验光路图

Fig. 3 Schematic diagram of the experimental set-up

3 结果与讨论

晶体长度为 10 mm 时, 通过调节温度满足 NCPM, 实验观察到的差频波长分布与理论曲线的符合度较高, 如图 4。波长调节范围在 $1.1 \sim 2.2 \mu\text{m}$ 之间变化。在 $t=16.7^\circ\text{C}$ 、泵浦光波长为 $0.630 \mu\text{m}$ 时, 通过增加信号激光器 $1.064 \mu\text{m}$ 光强输入, 差频产生的 1.54 nm 近红外光转化效率也随之增大, 如图 5。在泵浦光功率为 1.2 W、信号光功率为 0.31 W 时, 转换效率达到最大 11.7%, 相对应的近红外光波功率为

35 mW. 实验与理论曲线有一些差距,是由于:1)两束光的偏振态调节不够充分,没有完全满足相位匹配条件;2)没有考虑光波入射端面和出射端面的损耗;3)没有考虑光波在晶体内传播的吸收系数.测得 NCPM 匹配的温度带宽是 13.2°C ,与理论计算的温度带宽 15.2°C 较为相符,见图6.在 $1.2\sim 2.2\mu\text{m}$ 测得的平均

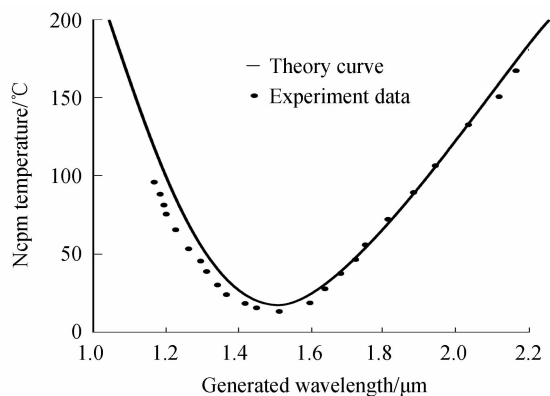


图4 基于LBO晶体I类的非临界匹配技术温度调谐曲线
Fig. 4 The temperature-tuned non-critical phase-matching curve for type-I DFG in LBO

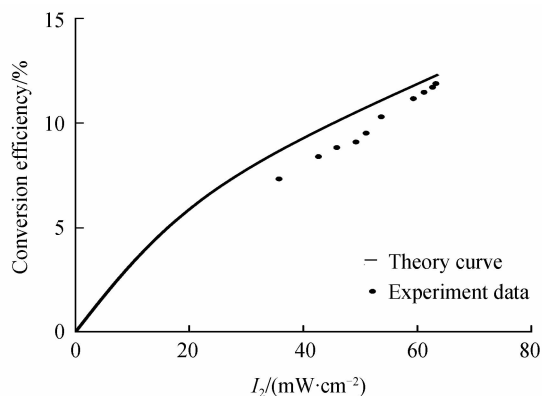


图5 差频输出 $1.54\mu\text{m}$ 波长处的转换效率随着输入 $1.064\mu\text{m}$ 信号光功率密度变化曲线
Fig. 5 The variation in conversion efficiency at the generated wavelength $1.54\mu\text{m}$ with the input power density of $1.064\mu\text{m}$ radiation

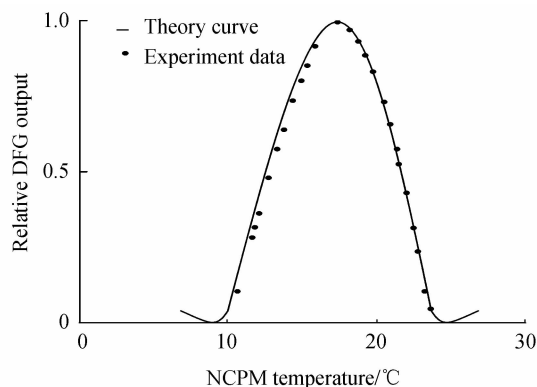


图6 基于LBO的差频输出光功率与I类非临界相位匹配温度的对应关系
Fig. 6 The relative DFG power with type-I non-critical phase-matched temperature of LBO

输出功率均在 30 mW 以上,可以满足后续的实验要求.

由实验可知,DFG的转换效率明显低于OPO,但是基于LBO晶体由于其损伤阈值较高,可以通过增加输入光强度的方法提高输出近红外波段的光功率.而且DFG结构简单,不需要OPO的谐振腔,在NCPM条件下,由于晶体的走离角接近于0,可以利用最大的晶体长度提高转换效率;I类匹配方式的晶体切割方法也比较简单,入射和出射端面也无需镀相应的光学增透和增反膜,代价较少.

同时,由于DFG输出波长具有典型的单模输出特征,光谱分辨率远大于实际的激光光谱线宽,无法提供精确的输出光线宽参量,理论证明DFG输出波长取决于泵浦光和信号光线宽的卷积,由于系统采用具有极高单色性的Dye laser和DFB laser,所以输出的线宽很窄,还可以应用到高分辨率光谱的测量中.

4 结论

采用NCPM技术,基于LBO晶体在近红外波段良好的透过性能,在I类匹配条件下利用可见光波段的泵浦激光器与 $1.064\mu\text{m}$ 的信号激光器差频得到 $1.1\sim 2.2\mu\text{m}$ 近红外光波段.平均输出功率在 30 mW 以上,最大转换效率达 11.7% .与OPO相比效率较低,但DFG结构简单,不需要谐振腔,通过增加晶体相干长度和提高输入光功率,可以得到较大功率的近红外光输出,具有一定实用价值.另外DFG输出波长具有典型的单模输出特征,可以在近红外波段进行高分辨率光谱测量,应用范围较为广泛.

参考文献

- [1] 严衍禄,赵龙莲,韩东海,等.近红外光谱分析基础与应用[M].北京:中国轻工业出版社,2005,13.
- [2] PETROV K P, CURL R F, TITTEL F K. Compact laser difference-frequency generation spectrometer for multi component trace gas detection[J]. *Applied Physics B*, 1998, **66**(5): 531-538.
- [3] STRY S, HERING P, MURTZ M. Portable difference-frequency laser-based cavity leak-out spectrometer for trace-gas analysis[J]. *Applied Physics B*, 2002, **75**(2-3): 297-303.
- [4] 钱士雄,王恭明.非线性光学[M].上海:复旦大学出版社,2001. 82.
- [5] TUKKERT W, OTTO C, GREVE J. Design, optimization, and characterization of a narrow-bandwidth optical parametric oscillator[J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 1999, **16**(1): 90-95.
- [6] JURNA M, KORTERIK J P, OFFERHAUS H L, et al. Noncritical phase-matched lithium triborate optical parametric oscillator for high resolution coherent anti-Stokes Raman scattering spectroscopy and microscopy[J]. *Applied Physics Letter*, 2006, **89**(25): 251116-251121.
- [7] KIEU K, SAAR B G, HOLTOM G R, et al. High-power picosecond fiber source for coherent Raman microscopy[J]. *Optics Letter*, 2009, **34**(13): 2051-2053.
- [8] CLEFF C, EPPING J, GROSS P, et al. Femtosecond OPO based on LBO pumped by a frequency-doubled Yb-fiber laser-

- amplifier system for CARS spectroscopy[J]. *Applied Physics B*, 2011, **103**(4): 795-800.
- [9] BHAR G C, RUDRA A M, CHAUDHARY A K, *et al.* Highly efficient difference-frequency generation in KTP[J]. *Applied Physics B*, 1996, **63**(2): 141-144.
- [10] BHAR G C, DATTA P K, RUDRA A M, *et al.* Tangentially phase-matched efficient difference frequency generation in beta barium borate crystal [J]. *Optics Communications*, 1994, **105**(1-2): 95-98.
- [11] CHATTERJEE U, RUDRA A M, BHAR G C, *et al.* Widely tunable difference frequency generation (2.6-7.7 μm) in lithium iodate[J]. *Optics Communications*, 1995, **118**(3-4): 367-374.
- [12] KATO K. Temperature-tuned 90° phase-matching properties of LiB₃O₅[J]. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 1994, **30**(12): 2950-2952.
- [13] 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.