室温脉冲Fe²⁺:ZnSe 中红外激光特性研究

孔心怡1.2, 柯常军1, 吴天吴1.2, 杭 寅3

(1. 中国科学院电子学研究所,北京 100190;

2. 中国科学院大学,北京 100049; 3. 中国科学院上海光学精密机械研究所,上海 201800)

摘 要:处于3~5μm 波段的激光源在遥感、环境保护、医疗、通信和红外对抗等民用和军用领域都有 广阔的应用前景。Fe²⁺:ZnSe 晶体由于在材料特性和光学特性等方面都具有明显优势,是3~5μm 波段 极具潜力的激光介质之一。在室温条件下利用自制非链式脉冲 HF 激光器作为泵浦光源,对晶体直径 为10mm,厚度1mm,Fe²⁺离子掺杂浓度为3×10¹⁹/cm³的 Fe²⁺:ZnSe 晶体进行了研究,获得了中心波长 4295 nm、最大输出能量78.8 mJ 的中红外激光输出。输出激光能量相对于晶体吸收泵浦能量的转换 效率为27.7%,斜率效率达28.8%。采用小角度(3°)斜入射的方案很好地解决了 Fe²⁺:ZnSe 激光器谐振 腔镜镀膜问题。

关键词:中红外激光; Fe²⁺:ZnSe 晶体; 脉冲 HF 激光; 小角度斜入射泵浦 中图分类号:TN216 文献标志码:A **DOI**: 10.3788/IRLA201847.1005001

Research on the characteristic of pulsed Fe²⁺:ZnSe mid-infrared laser at room temperature

Kong Xinyi^{1,2}, Ke changjun¹, Wu Tianhao^{1,2}, Hang Yin³

(1. Institute of Electronics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China;
 2. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China;

3. Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China)

Abstract: Lasers in the $3-5 \,\mu\text{m}$ waveband have many important scientific and military applications such as remote sensing, environmental protection, medical treatment, communication and infrared countermeasures. Fe²⁺:ZnSe crystal has become one of the most promising materials to generate laser in this region due to its advantages in material and optical properties. The characteristics of a polycrystalline ZnSe sample, which diffusion-doped with Fe²⁺ ions at a concentration of 3×10^{19} /cm³, were investigated. The diameter and the thickness of the sample were 10 mm and 1 mm, respectively. The output characteristics of the Fe²⁺:ZnSe laser, which was excited by a non-chain electric-discharge pulsed HF laser, were studied at room temperature. A mid-infrared laser with the maximum output energy of 78.8 mJ at a center wavelength of 4 295 nm was obtained. The efficiency respecting to the absorbed pump energy

收稿日期:2018-05-12; 修订日期:2018-06-03

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

作者简介:孔心怡(1994-),女,硕士生,主要从事中红外激光技术的研究。Email:kongxinyil5@mails.ucas.ac.cn

导师简介:柯常军(1973-),男,研究员,博士,主要从事红外激光技术及其应用方面的研究。Email:cjke@mail.ie.ac.cn

was 27.7% and the slope efficiency was as high as 28.8%. The Fe^{2+} :ZnSe laser was pumped at a small angle (3°) with respect to the optical axis of the laser cavity instead of orthogonal-pump. It solved the problems that a HF laser and a Fe^{2+} :ZnSe laser are both in the mid-infrared band.

Key words: mid-infrared laser; Fe²⁺:ZnSe crystal; pulsed HF laser; pump at a small angle

0 引 言

随着3~5 µm 激光源在遥感、医疗、环境保护和 目标定位等民用和军用领域的需求不断增长,近年 来出现的过渡金属离子掺杂 II-VI 族化合物激光技 术引起了大家的广泛关注^[1-3]。Fe²⁺:ZnSe 晶体因具有 增益截面大、吸收带宽、室温时荧光量子效率高等优 点,成为最有应用前景的中红外激光介质材料之一[4]。 1999年 Adams 等人采用 Er:YAG 激光器泵浦单晶 Fe²⁺:ZnSe,在低温下首次实现了Fe²⁺:ZnSe 激光输 出,并通过温度变化实现了3980~4540 nm 波段的 激光调谐,输出最高能量在130K时达到了12µJ^[5]。 Fe²⁺的上能级寿命受温度影响很大。当温度由 120 K 增大到 300 K 时, Fe²⁺的上能级寿命由 105 µs 迅速 下降到355 ns^[5-7]。由于缺乏合适的窄脉宽泵浦源, Fe²⁺:ZnSe 激光器的研究长期局限于低温条件。直到 2005年,Kernal等人才首次在室温条件下实现了脉 冲 Fe²⁺:ZnSe 激光输出^[8]。2013 年 Frolov 等人采用能 量为 8 J、脉宽 750 μs 的 Er: YAG 泵浦源, 在 85 K 的 温度下实现了2.1J的激光输出。但同样的泵浦源, 在室温下仅输出 42 mJ 的激光,光光转换效率仅为 0.96% [9]。这表明在室温下只有通过窄脉冲光源泵 浦,才能形成高效的 Fe²⁺:ZnSe 激光振荡。国内关于 Fe²⁺:ZnSe 中红外激光技术研究属于起步阶段,仅有少 数单位报道了研究结果。2015年1月哈尔滨工业大学 可调谐激光国家级重点实验室采用脉冲重复频率 1 kHz 的 ZnGeP₂ 光学参量振荡器泵浦 2 mm Fe²⁺:ZnSe 晶体。当泵浦功率为1.43W时,获得平均功率53mW 的激光输出, 效率为 4.8%^[10];2015 年 2 月中国科学 院电子学研究所采用脉宽 180 ns 的非链式脉冲 HF 激光1mm Fe²⁺:ZnSe 晶体,在室温时实现了 15 mJ 的 Fe²⁺:ZnSe 激光输出,效率为 15%^[11]。

由于 Fe²⁺:ZnSe 晶体吸收截面峰值位于 3 μm 附 近,想要在室温条件下获得高能量的 Fe²⁺:ZnSe 激光

输出,就需要寻求 3 μm 波段高能窄脉宽的泵浦源。 放电引发的非链式脉冲 HF 激光器的波长为 2.6~ 3.1 μm, 恰好位于 Fe²⁺:ZnSe 晶体吸收谱的中部,脉 宽约为 100~300 ns,小于室温 Fe²⁺离子在 ZnSe 晶体 内的上能级寿命。另外,非链式脉冲 HF 激光器的输 出能量可达焦耳量级,是 Fe²⁺:ZnSe 激光器的理想泵 浦光源^[12]。采用非链式脉冲 HF 激光器作为泵浦源, 可以大幅度提高室温 Fe²⁺:ZnSe 激光的输出能量,重 复频率运转还可实现高平均功率激光输出^[13]。

文中利用自制放电引发的非链式 HF 激光器作为泵浦源,在室温下对脉冲 Fe²⁺:ZnSe 中红外激光的特性进行了研究。当晶体吸收泵浦能量由 38 mJ 增大到 282 mJ 时,实现了最大能量为 78.8 mJ 的 Fe²⁺:ZnSe 激光输出。输出激光能量相对于晶体吸收 泵浦能量的转换效率为 27.7%,斜率效率为 28.8%。

1 Fe²⁺:ZnSe 激光器实验装置

实验中采用的增益介质 Fe²⁺:ZnSe 晶体的制备是 在热力学平衡的条件下,通过二步真空高温热扩散方 法实现 Fe²⁺离子在多晶 ZnSe 中的均匀掺杂。如图 1 所 示,扩散炉是上海光学精密机械研究所研制的双温区 电阻炉,采用进口的高纯、高光学质量的 ZnSe 多晶作 为基质材料,掺杂材料是光谱纯的 FeSe 粉末。



图 1 双温区电阻炉结构图

Fig.1 Structure of double-temperature area resistance furnace

制备完成的Fe²⁺:ZnSe 晶体的直径为 10 mm,厚

度为 1 mm, Fe²⁺离子掺杂浓度为 3×10¹⁹/cm³。晶体表 面未镀膜, 且工作表面的平行度小于 20"。图 2 为室 温下该晶体在 1.5~5.5 μm 波长范围内的透过率曲 线, 由傅里叶光谱仪测得。从图中可以看出: Fe²⁺: ZnSe 晶体在 2.7 μm 处的透过率约为 3%。



Fig.2 Transmissivity of Fe2+:ZnSe crystal

Fe²⁺:ZnSe 激光特性研究所采用的实验装置如 图 3 所示。泵浦源采用自制放电引发的非链式脉冲 HF 激光器,放电体积为 1 cm×2 cm×60 cm,HF 激光 器内的激光介质 SF₆和 C₂H₆ 的气压分别为 8 kPa 和 0.8 kPa。在该气压下的 HF 激光脉冲波形如图 4 所 示,脉冲宽度为 300 ns,小于 Fe²⁺离子在 ZnSe 晶体内 的上能级寿命。通过调节 HF 激光器的激励电压,使 得 HF 激光的输出能量在 10~350 mJ 范围内可调。非 链式脉冲 HF 激光经过光阑后,由透镜 L 聚焦在距 离透镜 250 mm 位置处的晶体表面中心,透镜 L 的 焦距为 250 mm。由于 Fe²⁺:ZnSe 激光器输出激光在 4 μm 附 近,均位于中红外波段,镜片的镀膜难度较大,因此 采用斜入射的泵浦方式。为减小损耗,实验中采用小 角度入射,泵浦光与谐振腔轴线的夹角为 3°。



Fig.3 Experiment setup of Fe2+:ZnSe laser

激光谐振腔采用平凹腔的结构,由凹面镜 M1 和平面镜 M2 组成。其中凹面镜 M1 为镀金铜镜,曲 率半径为 500 mm,反射率为 99%。平面镜 M2 为未 镀膜 Ge 镜。Fe²⁺:ZnSe 晶体中心放置在谐振腔的光 轴上,且工作面表面垂直于谐振腔光轴。谐振腔腔长 为 12.5 cm,Fe²⁺:ZnSe 晶体靠近平面镜 M2 放置。



Fig.4 Typical oscillogram of HF pulsed laser

泵浦源的输出能量、未被晶体吸收的泵浦能量 和 Fe²⁺:ZnSe 激光器的输出能量分别由 Gentec ED500LIR 能量计测得。被晶体吸收的泵浦能量可以 通过计算泵浦能量和未被晶体吸收的泵浦能量差值 得到。非链式脉冲 HF 激光器和 Fe²⁺:ZnSe 激光器的 输出脉冲波形分别由中红外探测器(VIGO PVM,时间 常数≤1.5ns)接收,并通过示波器 (Agilent Technologies DSO-X 3034 A, 350 MHz) 记录。Fe²⁺:ZnSe 激光的近 场光强分布由光束质量分析仪记录。

2 实验结果与分析

所有实验均在室温条件下进行。Fe²⁺:ZnSe 激光 器的输出能量随晶体吸收能量的变化曲线如图 5 所 示,可以推断出晶体吸收泵浦阈值为 18 mJ。泵浦光 能量由 46 mJ 变化到 347 mJ 时,Fe²⁺:ZnSe 晶体吸收



图 5 Fe²⁺:ZnSe 激光能量随吸收泵浦能量的变化关系 Fig.5 Fe²⁺:ZnSe laser energy dependent on absorbed pump energy

泵浦光的能量由 38 mJ 变化到 282 mJ。当 HF 激光脉冲能量和晶体吸收泵浦光的能量分别为 347 mJ 和 282 mJ 时, Fe²⁺:ZnSe 激光实现最大输出能量为 78.8 mJ。输出激光能量相对于晶体吸收泵浦能量的 斜率效率为 28.8%。此时输出激光能量相对于晶体 吸收泵浦能量的光光转换效率为 27.7%, Fe²⁺:ZnSe 激光输出与吸收的泵浦能量之间呈现出很好的线性 关系, 表明晶体吸收远未饱和。继续增加泵浦能量, Fe²⁺:ZnSe 激光输出能量也会进一步提高。

Fe²⁺:ZnSe 激光在吸收不同泵浦能量的情况下的 脉冲波形如图 6 所示。输出激光的脉宽随晶体吸收 泵浦光能量的增大而增大。当晶体吸收泵浦能量为 38 mJ 时,输出激光脉冲波形如图 6(b)所示,波形近 似三角波,脉宽为 30 ns。当晶体吸收泵浦光能量为 181 mJ 时,输出激光脉冲波形如图 6(a)所示,脉宽 为 225 ns。但激光脉冲波形在后部出现明显的准稳 态平台。平台的宽度和高度随晶体吸收泵浦能量的 增大而增大。该现象的可能原因是弛豫振荡效应。当 泵浦能量增大时,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,并且当泵 浦能量不断增大时,尖峰形成越快。同时,Fe²⁺:ZnSe 激 光的近场三维光强分布如图 7 所示,表明Fe²⁺:ZnSe

(4)					-				(0)	 -		-	-	-	 -	
				1	1											
				1												
					A.A.											
				IV	A.J	~		 		 			1		 	
									1							
2	m	MAN	m	1			-	 		 ANO MA	www	n	M		 ~~~	-
					1											

(h)

图 6 Fe²⁺:ZnSe 激光脉冲波形,其中(a)吸收泵浦光能量 181 mJ, (b)吸收泵浦光能量 38 mJ

Fig.6 Oscillogram of Fe²⁺:ZnSe pulsed laser, (a) absorbed pump energy is 181 mJ, (b) absorbed pump energy is 38 mJ



图 7 Fe²⁺:ZnSe 激光近场三维光强分布 Fig.7 3D intensity distribution pattern of the Fe²⁺:ZnSe laser

激光具有良好的光束质量。Fe²⁺:ZnSe 激光的光谱图 如图 8 所示,谱线峰值为 4 295 nm,线宽为 115 nm。



Fig.8 Spectrum of Fe2+:ZnSe laser

3 结 论

采用自制放电引发的非链式 HF 激光器代替常 用固体激光器作为泵浦源,对 Fe²⁺:ZnSe 激光器的输 出特性进行了研究。采用小角度(3°)斜入射的方案代 替了垂直入射的泵浦方案,解决了由于 Fe²⁺:ZnSe 激 光器的泵浦光和输出激光均处于中红外波段所带来 的双色镜的镀膜困难的问题。在室温条件下实现了 Fe²⁺:ZnSe 激光的高效输出,最大激光输出能量达 78.8 mJ,输出激光相对于晶体吸收泵浦能量的斜率 效率为 28.8%。Fe²⁺:ZnSe 激光具有良好的光束质量。 Fe²⁺:ZnSe 激光输出与吸收的泵浦能量之间呈现出很 好的线性关系,晶体吸收未达到饱和,可通过继续增 加泵浦能量,进一步提高 Fe²⁺:ZnSe 激光输出能量。 另外,通过优化谐振腔结构、增加 Fe²⁺:ZnSe 晶体厚 度、降低 Fe²⁺掺杂浓度等方法也可以提高能量转换 效率,实现更高的 Fe²⁺:ZnSe 激光输出能量。

参考文献:

- Sabbir L, Kevin A B, Laura X, et al. Noninvasive in vivo glucose sensing on human subjects using mid-infrared light [J]. *Opt Express*, 2014, 5(7): 2397–2404.
- [2] Ren W, Jiang W Z, Frank K. Single-QCL-based absorption sensor for simultaneous trace-gas detection of CH₄ and N₂O
 [J]. Appl Phys B, 2014, 117(1): 245-251.
- [3] Ke Changjun, Kong Xinyi, Wang Ran, et al. Research progress on mid-IR Fe:ZnSe laser technology [J]. Infrared and Laser Engineering, 2016, 45(3): 0305002. (in Chinese) 柯常军, 孔心怡, 王然, 等. 中红外 Fe:ZnSe 激光技术最新

研究进展 [J]. 红外与激光工程, 2016, 45(3): 0305002.

- [4] Mirov S B, Fedorov V V, Martyshkin D, et al. Progress in mid–IR lasers based on Cr and Fe–doped II–VI chalcogenides
 [J]. *IEEE J Sel Top Quant*, 2015, 21(1): 1601719.
- [5] Adams J J, Bibeau C, Page R H, et al. 4.0-4.5 μm lasing of Fe:ZnSe below 180 K, a new mid-infrared laser material
 [J]. *Opt Lett*, 1999, 24(23): 1720-1722.
- [6] Akimov V A, Voronov A A, Kozlovsky V I, et al. Efficient lasing in a Fe²⁺: ZnSe crystal at room temperature [J]. *Quantum Electron*, 2006, 36(4): 299–301.
- [7] Myoung N, Fedorov V V, Mirov S B. Optically dense Fe: ZnSe crystals for energy scaled gain switched lasing [C]// SPIE, 2010, 7578: 75781H.
- [8] Kernal J, Fedorov V V, Gallian A, et al. 3.9-4.8 μm gainswitched lasing of Fe:ZnSe at room temperature [J]. Opt Express, 2005, 13(26): 10608-10615.
- [9] Frolov M P, Korostelin Y V, Kozlovsky V I, et al. Study of a 2-J pulsed Fe:ZnSe 4 m laser [J]. Laser Phys Lett,

2013, 10(12): 125001-125007.

- [10] Yao Baoquan, Xia Shixing, Yu Kuaikuai, et al. Fe²⁺:ZnSe achieving laser output [J]. *Chinese J Laser*, 2015, 42 (1): 0119001. (in Chinese)
 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.
- [11] Ke Changjun, Wang Ran, Wang Xiangyong, et al. 15 mJ Fe²⁺:ZnSe laser operating at room temperature [J]. *Chinese J Laser*, 2015, 42(2): 0219004. (in Chinese)
 柯常军, 王然, 王向永, 等. 室温 Fe²⁺:ZnSe 激光器获得 15 mJ 激光输出 [J]. 中国激光, 2015, 42(2): 0219004.
- [12] Apollonov V V, Kazantsev S Y, Oreshkin V F, et al. Nonchain electric-discharge HF (DF) laser with a high radiation energy
 [J]. Quantum Electron, 1998, 28(2): 116–118.
- [13] Velikanov S D, Evdokimov P, Zapolsky A F, et al. Pulse periodic HF (DF) laser of atmospheric pressure with pulse repetition rate up to 2200 Hz [C]//SPIE, 2009, 7131: 71311-71317.