

BaGa₄Se₇ 与 KTiOAsO₄ 光参量振荡产生中红外激光性能对比

孔 辉^{1,2}, 卞进田^{1,2*}, 叶 庆^{1,2}, 姚吉勇³, 吴 昌^{1,2}, 孙晓泉^{1,2*}

(1. 国防科技大学脉冲功率激光技术国家重点实验室, 安徽合肥 230037;

2. 先进激光技术安徽省实验室, 安徽合肥 230037;

3. 中国科学院理化技术研究所, 北京 100190)

摘 要: BaGa₄Se₇(硒铍钨, 简称 BGSe) 与 KTiOAsO₄(磷酸氧钛钾, 简称 KTA) 均可在 1.06 μm 激光泵浦下产生中红外激光。首先仿真计算出两种非线性晶体的相位匹配曲线, 结果显示: 切割角为 (56.3°, 0°) 的 BGSe 晶体在 I 类相位匹配条件下和切割角为 (90°, 0°) 的 KTA 在 II-A 类相位匹配条件下均可产生 ~3.5 μm 的闲频光。然后理论计算出 BGSe (56.3°, 0°, I 类) 的有效非线性系数为 -11.9 pm/V, KTA (90°, 0°, II-A 类) 的有效非线性系数为 -3.2 pm/V; 在其他条件相同的情况下, 15 mm 长 BGSe (56.3°, 0°, I 类) 的 OPO 振荡阈值是 20 mm 长 KTA (90°, 0°, II-A 类) OPO 振荡阈值的 35.11%。最后通过实验验证 BGSe (56.3°, 0°, I 类, 15 mm) 的振荡阈值小于 KTA (90°, 0°, II-A 类, 20 mm), 输出的中红外激光能量大于 KTA。因此, BGSe 是一种极具应用前景的中红外非线性晶体。

关键词: BaGa₄Se₇; KTiOAsO₄; 光参量振荡; 中红外激光

中图分类号: TN244 **文献标志码:** A **DOI:** 10.3788/IRLA20190423

Comparison of mid-infrared laser generated by optical parametric oscillation of BaGa₄Se₇ and KTiAsO₄

Kong Hui^{1,2}, Bian Jintian^{1,2*}, Ye Qing^{1,2}, Yao Jiyong³, Wu Chang^{1,2}, Sun Xiaoquan^{1,2*}

(1. State Key Laboratory of Pulsed Power Laser Technology, National University of Defense Technology, Hefei 230037, China;

2. Advanced Laser Technology Laboratory of Anhui Province, Hefei 230037, China;

3. Technical Institute of Physics and Chemistry, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China)

Abstract: Both BaGa₄Se₇ (BGSe) and KTiAsO₄ (KTA) can generate mid-infrared lasers pumped by 1.06 μm laser. Firstly, the phase matching curves of two kinds of non-linear crystals were simulated and calculated. The results show that BGSe with cutting angles of (56.3°, 0°) and KTA with cutting angle of (90°, 0°) can generate idle frequency light of ~3.5 micron under phase matching conditions of type I and type II-A, respectively. Then through theoretical calculation, the effective non-linear coefficients of BGSe (56.3°, 0°, type-I) is -11.9 pm/V, and that of KTA (90°, 0°, type II-A) is -3.2 pm/V. The OPO oscillation threshold of 15 mm long BGSe (56.3°, 0°, type-I) is 35.11% of that of 20 mm long KTA (90°, 0°, type II-A). Then, the experimental results show that the oscillation threshold of BGSe-OPO (56.3°, 0°, type-I, 15 mm) is smaller than that of KTA-OPO (90°, 0°, type-II-A, 20 mm). The output energy of BGSe (56.3°, 0°, type-I) is larger than that of KTA (90°, 0°, type II-A).

收稿日期: 2019-12-26; 修订日期: 2020-02-03

基金项目: 脉冲功率激光技术国家重点实验室主任基金 (SKL2019ZR03, SKL2019ZR06); 安徽省自然科学基金 (1908085MF199)

作者简介: 孔辉 (1984-), 男, 博士生, 主要从事中红外激光技术方面的研究。Email: konghui17@nudt.edu.cn

通讯作者: 卞进田 (1979-), 男, 副研究员, 博士, 主要从事非线性频率变换技术方面的研究。Email: bianjt@126.com

孙晓泉 (1962-), 男, 研究员, 博士, 主要从事激光技术方面的研究。Email: sunxq@ustc.edu.cn

Therefore, BGSe is a promising mid-infrared non-linear crystal.

Key words: BaGa₄Se₇; KTiOAsO₄; optical parametric oscillation; mid-infrared laser

0 引言

中红外激光处于大气窗口波段, 同时又是众多原子及分子的吸收峰, 因此, 在光谱学、医学、通信、遥感、环境监测及红外对抗领域有着广泛而重要的应用前景^[1-4]。光参量振荡器 (OPO) 可以将成熟的 (近红外或可见) 激光进行频率下转换, 实现中远红外波段激光输出, 该技术手段具备结构简单、紧凑的优势, 可实现全固化、小型化, 稳定性高, 可实现高平均功率或高脉冲能量、高光束质量输出, 是特点突出、发展迅速且潜力巨大的产生中红外激光方式^[5-8]。其中非线性光学晶体为该技术路线的中枢元件。近年来, 随着 OPO 技术的快速发展, 获得非线性系数大、透过范围宽、激光损伤阈值高、吸收系数小、物理化学性质稳定的优秀中红外非线性光学晶体材料, 已经成为当前非线性晶体材料的重要研究方向^[9]。

砷酸氧钛钾 KTiOAsO₄(KTA) 晶体是一种优良的中红外非线性材料, 是 KTP 晶体家族中的一员, 透光范围为 0.35~5.3 μm, 在 3~5 μm 波段的吸收损耗远低于 KTP 晶体, 具有大的非线性系数 ($d_{\text{eff}}=4.47$ pm/V), 宽的角度和温度匹配带宽, 高的损伤阈值 (>600 MW/cm²)、物理化学性能稳定等优点; 能用 Nd: YAG 1 064 nm 激光抽运, 可以实现非临界相位匹配 (NCPM); 具有比 KTP 低的离子电导率, 导热系数高, 在高功率激光抽运时不会产生热透镜效应, 适合高重复频率高能量的中红外输出^[10]。

硒镓钡 BaGa₄Se₇(BGSe) 晶体是我国自主知识产

权的一种新型红外非线性晶体, 它是单斜晶系, 双轴晶体, 透光波段为 0.47~18 μm, 熔点 969 °C。它的非线性系数是 AgGaS₂ 的 2~3 倍, 损伤阈值是 AgGaS₂ 的 3.7 倍, 可利用 1.06 μm 及以上波长激光泵浦, 通过 OPA、OPO、DFG 等激光变频技术可输出 3~18 μm 中长波红外激光。中国科学院理化技术研究所姚吉勇等人于 2010 年首次发明新型红外非线性 BGSe 晶体^[11]。2011 年, 俄罗斯库拜大学在世界上率先生长出 BGSe 单晶, 并对单晶色散特性进行了研究。2018 年, 美国 BAE 采用水平温度梯度冷凝技术生长 25×15×150 mm³ 的高品质单晶^[12]。

BGSe OPO 除可输出 3~5 μm 波段激光以外, 在 8~12 μm 也有着重要的应用潜力, 但由于 KTA 晶体的透光范围有限 (0.35~5.3 μm) 且该晶体在输出~3.5 μm 激光时的晶体切割角为 (90°, 0°), 没有走离效应, 因此, 转换效率很高, 可输出高光束质量、大能量的激光。为充分对比 BGSe OPO 和 KTA OPO 的输出激光性能, 文中对这两种晶体在中红外波段的激光输出性能进行对比, 并特别以 BGSe (56.3°, 0°, I 类) 和 KTA (90°, 0°, II-A 类) 为例, 计算了它们在输出~3.5 μm 激光时的有效非线性系数和 OPO 振荡阈值, 并通过实验加以验证。

1 仿真计算

KTA 属正双轴晶体, BGSe 属于双轴单斜晶体。它们的具体指标如表 1 所示。

表 1 BGSe 与 KTA 性能对比

Tab.1 Comparison between BGSe and KTA

Name	BGSe	KTA
Characteristic	Biaxial, monoclinic, point group m ^[11]	Uniaxial, point group mm2 ^[13]
Transmittance range	0.47-18μm ^[14]	0.35-5.3 μm ^[10]
Damage threshold	557 MW/cm ² [14](5 ns, 1.064 μm, 1 Hz)	>600 MW/cm ²
Nonzero tensor	$d_{11}=24.3$ pm/V, $d_{13}=20.4$ pm/V ^[15]	$d_{33}=16.2$ pm/V, $d_{31}=2.8$ pm/V, $d_{32}=4.2$ pm/V, $d_{31}=2.8$ pm/V $d_{24}=3.2$ pm/V, $d_{15}=2.3$ pm/V ^[13] , $d_{\text{eff}}=4.47$ pm/V ^[10]

1.1 相位匹配曲线

选取参考文献 [16] 所给出的 BGSe 晶体 Sellmeier 方程进行计算:

$$\begin{cases} n_x^2 = 6.724\ 31 + \frac{0.263\ 75}{\lambda^2 - 0.042\ 48} + \frac{602.97}{\lambda^2 - 749.87} \\ n_y^2 = 6.866\ 03 + \frac{0.268\ 16}{\lambda^2 - 0.042\ 59} + \frac{682.97}{\lambda^2 - 781.78} \\ n_z^2 = 7.167\ 09 + \frac{0.326\ 81}{\lambda^2 - 0.069\ 73} + \frac{731.86}{\lambda^2 - 790.16} \\ 0.901 \leq \lambda \leq 10.591 \end{cases} \quad (1)$$

KTA 的 Sellmeier 方程如公式 (2) 所示^[17]:

$$n_i^2 = A_i + \frac{B_i \lambda^{p_i}}{\lambda^{p_i} - C_i} + \frac{D_i \lambda^{q_i}}{\lambda^{q_i} - E_i} \quad (2)$$

公式 (2) 中系数的具体数值如表 2 所示。

表 2 KTA 晶体的 Sellmeier 系数

Tab.2 Sellmeier coefficients of KTA

A_x	2.149 5	A_y	2.1308	A_z	2.193 1
B_x	1.020 3	B_y	1.056 4	B_z	1.238 2
C_x	0.042 378	C_y	0.042 523	C_z	0.059 171
D_x	0.553 1	D_y	0.692 7	D_z	0.508 8
E_x	72.304 5	E_y	54.850 5	E_z	53.289 8
p_x	1.995 1	p_y	2.001 7	p_z	1.892 0
q_x	1.956 7	q_y	1.726 1	q_z	2.000 0

将公式 (1)、(2) 代入公式 (3)^[18], 即可求出不同入射方向 (θ, ϕ) 的 $n_{e_1}(\theta, \phi)$ 和 $n_{e_2}(\theta, \phi)$:

$$\begin{cases} n_{e_1}(\theta, \phi) = \sqrt{2[d + A - (b^2 - 2bB + A^2)^{1/2}]^{-1/2}} \\ n_{e_2}(\theta, \phi) = \sqrt{2[d + A + (b^2 - 2bB + A^2)^{1/2}]^{-1/2}} \\ A = k_z^2 \cdot c - k_x^2 \cdot a, B = k_z^2 \cdot c + k_x^2 \cdot a \\ a = \frac{1}{n_x^2} - \frac{1}{n_y^2}, b = \frac{1}{n_x^2} - \frac{1}{n_z^2}, c = \frac{1}{n_y^2} - \frac{1}{n_z^2}, d = \frac{1}{n_x^2} + \frac{1}{n_z^2} \\ k_x = \sin\theta \cos\phi, k_y = \sin\theta \sin\phi, k_z = \cos\theta \end{cases} \quad (3)$$

再代入公式 (4), 即可得出各相位匹配条件下的相位匹配曲线。

$$\begin{cases} \text{type - I} \\ \frac{n_{e_2}^{\omega_3}}{\lambda_3} = \frac{n_{e_1}^{\omega_1}}{\lambda_1} + \frac{n_{e_1}^{\omega_2}}{\lambda_2} \\ \frac{1}{\lambda_3} = \frac{1}{\lambda_1} + \frac{1}{\lambda_2} \end{cases} \quad \begin{cases} \text{type - II - A} \\ \frac{1}{\lambda_3} = \frac{1}{\lambda_1} + \frac{1}{\lambda_2} \\ \frac{n_{e_2}^{\omega_3}}{\lambda_3} = \frac{n_{e_2}^{\omega_1}}{\lambda_1} + \frac{n_{e_2}^{\omega_2}}{\lambda_2} \end{cases} \quad \begin{cases} \text{type - II - B} \\ \frac{1}{\lambda_3} = \frac{1}{\lambda_1} + \frac{1}{\lambda_2} \\ \frac{n_{e_2}^{\omega_3}}{\lambda_3} = \frac{n_{e_1}^{\omega_1}}{\lambda_1} + \frac{n_{e_2}^{\omega_2}}{\lambda_2} \end{cases} \quad (4)$$

由于双轴晶体的相位匹配曲线与 (θ, ϕ) 均有关, 为简便起见, 仅讨论 $\theta = 0^\circ$ 的情况, BGSel 和 KTA 的相位匹配曲线 $(\theta = 0^\circ)$ 如图 1 所示。

如图 1 所示, BGSel $(\theta = 56.3^\circ, \phi = 0^\circ)$ 可在 I 类相位匹配条件下产生 $\sim 3.5 \mu\text{m}$ 的闲频光, KTA $(\theta = 90^\circ,$

$\phi = 0^\circ)$ 可在 II-A 类相位匹配条件下产生 $\sim 3.5 \mu\text{m}$ 的闲频光。

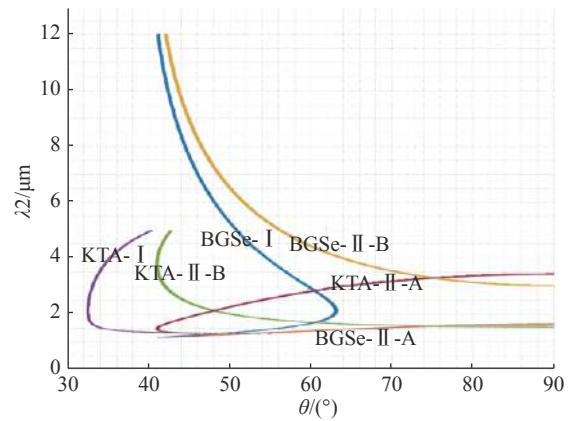


图 1 BGSel 与 KTA 的相位匹配曲线 $(\theta = 0^\circ)$

Fig.1 Phase matching curve of BGSel and KTA $(\theta = 0^\circ)$

为了便于实验对比, 选取切割角度为 $(56.3^\circ, 0^\circ)$ 的 BGSel 和切割角度为 $(90^\circ, 0^\circ)$ 的 KTA 晶体在同一光路中进行对比实验。为了计算两种晶体的 OPO 振荡阈值, 要先计算出 BGSel $(56.3^\circ, 0^\circ)$ 和 KTA $(90^\circ, 0^\circ)$ 的有效非线性系数。

1.2 有效非线性系数

BGSel 晶体 $(\theta = 56.3^\circ, \phi = 0^\circ)$ 在 I 类相位匹配条件下的有效非线性系数为:

$$d_{\text{eff}} = [b_1(\omega_3), b_2(\omega_3), b_3(\omega_3)] \times \begin{pmatrix} d_{11} & d_{12} & d_{13} & d_{14} & d_{15} & d_{16} \\ d_{21} & d_{22} & d_{23} & d_{24} & d_{25} & d_{26} \\ d_{31} & d_{32} & d_{33} & d_{34} & d_{35} & d_{36} \end{pmatrix} \times \begin{pmatrix} a_1(\omega_1)a_1(\omega_2) \\ a_2(\omega_1)a_2(\omega_2) \\ a_3(\omega_1)a_3(\omega_2) \\ a_2(\omega_1)a_3(\omega_2) + a_3(\omega_1)a_2(\omega_2) \\ a_1(\omega_1)a_3(\omega_2) + a_3(\omega_1)a_1(\omega_2) \\ a_1(\omega_1)a_2(\omega_2) + a_2(\omega_1)a_1(\omega_2) \end{pmatrix} \quad (5)$$

其中, $a_i(\omega_j)$ 和 $b_i(\omega_j)$ 由公式 (1)、(6)、(7) 得出。

$$\begin{pmatrix} b_1 \\ b_2 \\ b_3 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} b_-d_1/n_x^2 \\ b_-d_2/n_y^2 \\ b_-d_3/n_z^2 \end{pmatrix} \frac{1}{\sqrt{\left(\frac{bd_1}{n_x^2}\right)^2 + \left(\frac{bd_2}{n_y^2}\right)^2 + \left(\frac{bd_3}{n_z^2}\right)^2}}$$

$$\begin{pmatrix} b_-d_1 \\ b_-d_2 \\ b_-d_3 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -\cos\theta \cos\phi \sin\delta - \sin\theta \cos\delta \\ -\cos\theta \sin\phi \sin\delta + \cos\theta \cos\delta \\ \sin\theta \sin\delta \end{pmatrix} \quad (6)$$

$$\begin{pmatrix} a_1 \\ a_2 \\ a_3 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} a_-d_1/n_x^2 \\ a_-d_2/n_y^2 \\ a_-d_3/n_z^2 \end{pmatrix} \frac{1}{\sqrt{\left(\frac{ad_1}{n_x^2}\right)^2 + \left(\frac{ad_2}{n_y^2}\right)^2 + \left(\frac{ad_3}{n_z^2}\right)^2}},$$

$$\begin{pmatrix} a_-d_1 \\ a_-d_2 \\ a_-d_3 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \cos\theta\cos\theta\cos\delta - \sin\theta\sin\delta \\ \cos\theta\sin\theta\cos\delta + \cos\theta\sin\delta \\ -\sin\theta\cos\delta \end{pmatrix} \quad (7)$$

目前, BGSe 晶体的 d_{ij} 矩阵尚没有定论, 但参考文献 [11, 15, 19] 通过不同的方法给出了 BGSe 晶体的 d_{ij} 值。参考文献 [20] 对比分析了现有文献中 BGSe 晶体的 d_{ij} 值, 并给出了公式 (8), 笔者以此来估算 BGSe 晶体的有效非线性系数。

$$d_{ij} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & 1.2 & 5.2 \\ 5.2 & 24.3 & -20.4 & -3.7 & 0 & 0 \\ 1.2 & -3.7 & -2.2 & -20.4 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (8)$$

将公式 (1)、(6)、(7)、(8) ($\theta = 56.3^\circ, \phi = 0^\circ$) 代入公式 (5), 求得 $d_{\text{eff}} = -11.908 \text{ pm/V}$ (输出 $3.64 \mu\text{m}$)。

KTA 晶体 ($\theta = 90^\circ, \phi = 0^\circ$) 在 II-A 类相位匹配条件下,

$$d_{\text{eff}} = [b_1(\omega_3), b_2(\omega_3), b_3(\omega_3)] \times \begin{pmatrix} d_{11} & d_{12} & d_{13} & d_{14} & d_{15} & d_{16} \\ d_{21} & d_{22} & d_{23} & d_{24} & d_{25} & d_{26} \\ d_{31} & d_{32} & d_{33} & d_{34} & d_{35} & d_{36} \end{pmatrix} \times \begin{pmatrix} b_1(\omega_1)a_1(\omega_2) \\ b_2(\omega_1)a_2(\omega_2) \\ b_3(\omega_1)a_3(\omega_2) \\ b_2(\omega_1)a_3(\omega_2) + b_3(\omega_1)a_2(\omega_2) \\ b_3(\omega_1)a_1(\omega_2) + b_1(\omega_1)a_3(\omega_2) \\ b_1(\omega_1)a_2(\omega_2) + b_2(\omega_1)a_1(\omega_2) \end{pmatrix} \quad (9)$$

其中

$$d_{ij} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & 2.3 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 3.2 & 0 & 0 \\ 2.8 & 4.2 & 16.2 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (10)$$

将公式 (1)、(6)、(7)、(10) ($\theta = 90^\circ, \phi = 0^\circ$) 代入公式 (9), 求得 $d_{\text{eff}} = -3.2 \text{ pm/V}$ (输出 $3.43 \mu\text{m}$)。

1.3 光参量振荡阈值

OPO 的振荡阈值功率为^[21]:

$$J_{\text{th}} = \frac{2.25\tau}{\kappa g_s L_{\text{eff}}^2} \left[\frac{L}{2c\tau} \ln 33 + 2\alpha l + \ln \frac{1}{\sqrt{R}} + \ln 2 \right]^2 \quad (11)$$

式中: κ 为增益系数, 可表示为: $\kappa = \frac{2\omega_s\omega_i d_{\text{eff}}^2}{n_s n_i n_p \epsilon_0 c^3}$; g_s 为模式耦合系数, 可表示为: $g_s = \frac{w_p^2}{w_p^2 + w_s^2}$; L_{eff} 为参量有效增益长度, 约等于晶体长度 l ; w_p 为泵浦光腰斑半径; w_s 为信号光腰斑半径, 它们满足 $\left(\frac{\pi}{2L\lambda}\right)^2 w_s^6 + w_s^2 - \frac{w_p^2}{2} = 0$ 。将其代入公式 (11), 可得:

$$J_{\text{th}} = \frac{2.25 n_s n_i n_p \epsilon_0 c^3 (w_p^2 + w_s^2)}{2\omega_s \omega_i d_{\text{eff}}^2 w_p^2 L_{\text{eff}}^2} \tau \left[\frac{L}{2c\tau} \ln 33 + 2\alpha l + \ln \frac{1}{\sqrt{R}} + \ln 2 \right]^2 = \frac{2.25 \lambda_s \lambda_i n_s n_i n_p \epsilon_0 c}{2(2\pi)^2 d_{\text{eff}}^2 L_{\text{eff}}^2} \cdot \frac{(w_p^2 + w_s^2)}{w_p^2} \tau \left[\frac{L}{2c\tau} \ln 33 + 2\alpha l + \ln \frac{1}{\sqrt{R}} + \ln 2 \right]^2 \quad (12)$$

各参数值如表 3 所示。

表 3 KTA-OPO 与 BGSe-OPO 的具体参数

Tab.3 Parameters of KTA-OPO and BGSe-OPO

Parameter	Meaning	KTA	BGSe
τ/ns	Pulse width	10	10
$\lambda_s/\mu\text{m}$	Wavelength of signal light	1.54	1.50
$\lambda_i/\mu\text{m}$	Wavelength of idler light	3.43	3.64
n_s	Refractive index of signal light	1.806 2	2.485 4
n_i	Refractive index of idler light	1.773 0	2.461 1
n_p	Refractive index of pump light	1.816 7	2.512 8
$\epsilon_0/\text{F}\cdot\text{m}^{-1}$	Permittivity of vacuum	8.85×10^{-12}	8.85×10^{-12}
$c/\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$	Velocity of light	3×10^8	3×10^8
$d_{\text{eff}}/\text{m}\cdot\text{V}^{-1}$	Effective nonlinear coefficient	$\approx 3.2 \times 10^{-12}$	$\approx 11.9 \times 10^{-12}$
L_{eff}/mm	Parametric effective gain length	20	15
L/mm	Optical length of OPO cavity	46	52.5
l/mm	Length of crystal	20	15

将表 2 中的数值代入公式 (12), 则有:

$$J_{th}BGSe = 1.9928 \times 10^{11} \cdot \frac{(w_p^2 + w_s^2)}{w_p^2} \cdot \left[\frac{L}{2c\tau} \ln 33 + 2\alpha l + \ln \frac{1}{\sqrt{R}} + \ln 2 \right]^2 \quad (\text{W/m}^2) \quad (13)$$

$$J_{th}KTA = 5.6764 \times 10^{11} \cdot \frac{(w_p^2 + w_s^2)}{w_p^2} \cdot \left[\frac{L}{2c\tau} \ln 33 + 2\alpha l + \ln \frac{1}{\sqrt{R}} + \ln 2 \right]^2 \quad (\text{W/m}^2) \quad (14)$$

由公式 (13)、(14) 可得:

$$\frac{I_{th}(BGSe)}{I_{th}(KTA)} = 0.3511 \quad (15)$$

因此, 当光斑半径、吸收系数、反射率等相同的情况下, BGSe 的 OPO 阈值为 KTA 阈值的 35.11%。

2 实验

2.1 光路图

由于中红外 OPO 腔镜的镀膜技术耗时较长、难度较大, 暂时选取其他 OPO 腔镜中的镜片进行替代性实验。实验中 OPO 输入镜参数为: 1.064 μm 透过率为 75%, 1.3~1.5 μm 高反, 3.4~3.8 μm 的透过率约为 60%; OPO 输出镜参数为: 1.064 μm 高透, 1.4~2.1 μm 高反, 3.4~4.2 μm 高透。实验装置示意图如图 2 所示。

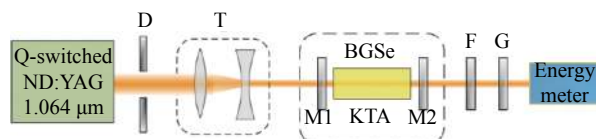


图 2 实验装置示意图

Fig.2 Schematic diagram of experiment setup

如图 2 所示, 泵浦源为 SL800 Series Pulsed Nd:YAG 激光器, Energy meter 为 Molectron- J3-09 探头和 EPM2000 数据终端。BGSe 的切割角为 ($\theta = 56.3^\circ$, $\phi = 0^\circ$), 尺寸为 6 mm×6 mm×15 mm。KTA 的切割角为 ($\theta = 90^\circ$, $\phi = 0^\circ$), 尺寸为 10 mm×10 mm×20 mm。T 为一个望远镜系统, 用于将光束压窄, D 为一个孔径光阑。M1 和 M2 为 OPO 腔镜, F 为滤光片, 用于将残留的 1 064 nm 泵浦光滤除, 滤光片对 1 064 nm 激光的透过率约为 2.54%, G 为锗片, 再次将 1 064 nm 的泵浦光滤除, 确保没有泵浦光进入能量计。(由于

锗片的损伤阈值较低, 不能直接放置于 OPO 输出镜后方)。

2.2 实验结果

第一次实验时使用 KTA 进行实验, 当泵浦能量达到 41.51 mJ 时, 能量计首次出现读数, 当泵浦能量为 41.51~51.56 mJ 时, KTA-OPO 输出~3.5 μm 的激光能量为 13.38~19.87 μJ。第二次实验时完全使用相同的实验平台和装置, 将晶体换为 BGSe, 当泵浦能量达到 36.97 mJ 时, 能量计首次出现读数信号, 当泵浦能量为 36.97~51.56 mJ 时, BGSe-OPO 输出~3.5 μm 的激光能量为 13.45~22.02 μJ。实验结果如图 3 所示。

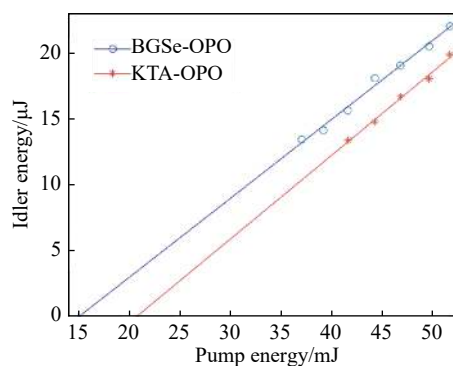


图 3 BGSe-OPO 和 KTA-OPO 闲频光能量与泵浦光能量的关系

Fig.3 Idle light energy of BGSe-OPO and KTA-OPO at different pump light energies

如图 3 所示, “o”、“*”为实测数据, 直线上其他值为拟合数据。由拟合的数据可以推算出 BGSe 的 OPO 振荡阈值为 14.9 mJ, KTA 的 OPO 振荡阈值为 20.6 mJ, 且在泵浦能量相同的情况下, BGSe 的输出的参量光能量要大于 KTA 所输出的参量光能量。但是该实验中 BGSe 的振荡阈值约为 KTA 的 0.72 倍, 与 2.3 节的理论计算值 35.11% 差距较大, 原因可能是由于该实验中的 BGSe 晶体质量不如 KTA 晶体、BGSe 没有镀增透膜而 KTA 镀了增透膜等原因所造成的, 但实验明确验证了 BGSe 的振荡阈值小于 KTA, 且在同泵浦能量的情况下, BGSe 输出的中红外能量约为 KTA 输出能量的 1.11~1.22 倍。

3 结论

文中通过理论和实验的方法对比了 KTA 和 BGSe 产生中红外激光的参量振荡过程。理论计算表明, 1.06 μm 激光泵浦 KTA-OPO 或 BGSe -OPO 均可

产生 3~5 μm 波段激光,且 BGSe(56.3°,0°) 和 KTA(90°0°) 均可输出~3.5 μm 的闲频光。KTA(90°,0°,II-A 类) 的有效非线性系数为 -3.2 pm/V,目前 BGSe 晶体的 d_{ij} 还没有定论,但根据参考文献 [20] 所给出的 d_{ij} 值进行了估算,预计 BGSe(56.3°,0°,I 类) 的有效非线性系数为 -11.9081 pm/V, BGSe 的 d_{eff} 约为 KTA 的 3.7 倍。另外,当光斑半径、吸收系数、反射率等相同的情况下, BGSe 的 OPO 阈值小于 KTA 的 OPO 阈值,因此,在同等泵浦能量的情况下, BGSe 输出的中红外激光能量将大于 KTA 输出的激光。在实验中,尽管 BGSe 晶体质量不如 KTA 晶体、BGSe 没有镀增透膜而 KTA 镀了增透膜、BGSe 的长度为 15 mm,而 KTA 的长度为 20 mm,但是 BGSe 的 OPO 振荡阈值仍然小于 KTA 的 OPO 振荡阈值,且在同等泵浦能量的情况下, BGSe-OPO 输出的中红外能量高于 KTA-OPO 输出的能量。因此,随着 BGSe 晶体加工工艺的提升和晶体生长质量的不断优化, BGSe 将是一种具有广阔应用前景的中红外非线性晶体。

参考文献:

- [1] Kong Hui, Bian Jintian, Sun Xiaoquan. Progress of mid-infrared laser technology [J]. *Journal of Electronic Engineering Institute*, 2018, 37(4): 7-11. (in Chinese)
孔辉, 卞进田, 孙晓泉. 中红外激光技术研究进展[J]. 电子工程学院学报, 2018, 37(4): 7-11.
- [2] Kong Xinyi, Ke Changjun, Wu Tianhao. Research on the characteristic of pulsed Fe^{2+} : ZnSe mid-infrared laser at room temperature [J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2018, 47(10): 1005001. (in Chinese)
孔心怡, 柯常军, 吴天昊. 室温脉冲 Fe^{2+} : ZnSe 中红外激光特性研究[J]. 红外与激光工程, 2018, 47(10): 1005001.
- [3] Wang Yunpeng, Wang Fei, Zhao Dongxu. All solid state Mid-IR laser of Cr^{2+} : ZnSe [J]. *Chinese Optics*, 2016, 9(5): 563-568. (in Chinese)
王云鹏, 王飞, 赵东旭. Cr^{2+} : ZnSe 全固态中红外激光器[J]. 中国光学, 2016, 9(5): 563-568.
- [4] Ye Weilin, Zhou Bo, Yu Hongzhi. In-motion monitoring of atmospheric methane and ethane using a mid-infrared dual-gas simultaneous detection sensor [J]. *Optics and Precision Engineering*, 2018, 26(8): 1938-1944. (in Chinese)
叶玮琳, 周波, 余红志. 中红外大气甲烷乙烷双组分气体的同步移动监测[J]. 光学精密工程, 2018, 26(8): 1938-1944.
- [5] Li Chong, Xie Jinjiang, Pan Qikun. Progress of mid-infrared optical parametric oscillator [J]. *Chinese Optics*, 2016, 9(6): 615-624. (in Chinese)
李充, 谢冀江, 潘其坤. 中红外光学参量振荡器技术进展[J]. 中国光学, 2016, 9(6): 615-624.
- [6] Wei Pengfei, Zhang Yongchang, Zhang Jing. Efficient continuous-wave MgO : PPLN optical parametric oscillator with three-mirror linear cavity [J]. *Optics and Precision Engineering*, 2019, 27(1): 45-50. (in Chinese)
尉鹏飞, 张永昶, 张静. 三镜直腔结构 MgO : PPLN 高效连续光参量振荡器[J]. 光学精密工程, 2019, 27(1): 45-50.
- [7] Yu Guangqi, Wang Peng, Song Wei. Fiber laser pumped multi-wavelength mid-infrared optical parametric oscillator [J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2018, 47(4): 0404003. (in Chinese)
余光其, 王鹏, 宋伟. 光纤激光泵浦的多波长中红外光参量振荡器[J]. 红外与激光工程, 2018, 47(4): 0404003.
- [8] Zhang Yongchang, Zhu Haiyong, Zhang Jing. Compact widely tunable continuous-wave MgO:PPLN optical parametric oscillator [J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2018, 47(11): 1105008. (in Chinese)
张永昶, 朱海永, 张静. 紧凑型 MgO:PPLN 宽波段可调谐连续光参量振荡器[J]. 红外与激光工程, 2018, 47(11): 1105008.
- [9] Jia Ning, Wang Shanpeng, Tao Xutang. Research progress of mid-and far-infrared nonlinear optical crystals [J]. *Acta Physica Sinica*, 2018, 67(24): 244203. (in Chinese)
贾宁, 王善朋, 陶绪堂. 中远红外非线性光学晶体研究进展[J]. 物理学报, 2018, 67(24): 244203.
- [10] Xue Xuegang, Zhang Fang, Wang Hongyan. Growth and Characterization of High Quality KTitanium Oxyarsenate Potassium KTiAsO_4 Crystal [J]. *Technology and Economic Guide*, 2018, 26(16): 4-5. (in Chinese)
薛学刚, 张芳, 王鸿雁. 高质量磷酸氧钛钾 KTiOAsO_4 晶体的生长与表征[J]. 科技经济导刊, 2018, 26(16): 4-5.
- [11] Yao Jiyong, Mei Dajiang, Bai Lei, et al. BaGa_4Se_7 : A new congruent-melting IR nonlinear optical material [J]. *Inorganic Chemistry*, 2010, 49(20): 9212-9216.
- [12] Wang Zhenyou, Wu Haixin. Research progress of nonlinear crystals for 8-12 μm long-wave IR generation [J]. *Journal of Synthetic Crystals*, 2019(1): 34-53. (in Chinese)
王振友, 吴海信. 8~12 μm 长波红外非线性晶体研究进展[J]. 人工晶体学报, 2019(1): 34-53.
- [13] Bian Jintian. Research on mid-infrared solid laser technology[D]. Hefei: Electronic Engineering Institute, 2007. (in Chinese)

- 卞进田. 中红外固体激光技术研究[D]. 合肥: 电子工程学院, 2007.
- [14] Yao Jiyong, Yin Wenlong, Feng Kai, et al. Growth and characterization of BaGa₄Se₇ crystal [J]. *Journal of Crystal Growth*, 2012, 346(1): 1–4.
- [15] Zhang Xin, Yao Jiyong, Yin Wenlong, et al. Determination of the nonlinear optical coefficients of the BaGa₄Se₇ crystal [J]. *Optics Express*, 2015, 23(1): 552–558.
- [16] Kato K, Miyata K, Petrov V. Phase-matching properties of BaGa₄Se₇ for SHG and SFG in the 0.901–10.5910 μm range [J]. *Applied Optics*, 2017, 56(11): 2978–2981.
- [17] Fève J P, Boulanger B, Pacaud O. Refined sellmeier equations from phase-matching measurements over the complete transparency range of KTiOAsO₄, RbTiOAsO₄ and CsTiOAsO₄[C]//Advanced Solid State Lasers, 2000.
- [18] Zhang Weiquan. General ray-tracing formulas for crystal [J]. *Applied Optics*, 1992, 31(34): 7328–7331.
- [19] Boursier E, Segonds P, Debray J. Angle noncritical phase-matched second-harmonic generation in the monoclinic crystal BaGa₄Se₇ [J]. *Optics Letters*, 2015, 40(20): 4591–4594.
- [20] Kong Hui, Bian Jintian, Sun Xiaoquan. Calculation of phase-matching angles and effective nonlinear coefficients of BaGa₄Se₇ crystals [J]. *Optik*, 2019, 193: 163004.
- [21] Brosnan S J, Byer R L. Optical parametric oscillator threshold and linewidth studies [J]. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 1979, 15(6): 415–431.