

## 高转换效率的中红外 BaGa<sub>4</sub>Se<sub>7</sub> 光参量振荡器 (特邀)

卞进田<sup>1,2,3</sup>, 孔 辉<sup>1,2\*</sup>, 叶 庆<sup>1,2</sup>, 姚吉勇<sup>4</sup>, 吕国瑞<sup>1,2,3</sup>, 徐海萍<sup>1,2,3</sup>, 周 权<sup>1,2</sup>, 温凯华<sup>1,2</sup>

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. 国防科技大学 电子对抗学院 先进激光技术安徽省实验室, 安徽合肥 230037;
3. 国防科技大学 南湖之光实验室, 湖南长沙 410073;
4. 中国科学院理化技术研究所, 北京 100190)

**摘 要:** 为抑制光参量振荡器 (Optical Parametric Oscillator, OPO) 振荡过程中信号光和闲频光向泵浦光的逆转换, 首次采用在 L 型 OPO 腔的支路中插入信号光倍频晶体 LiB<sub>3</sub>O<sub>5</sub> 的 (简称 LBO) 的方式, 实现了 BaGa<sub>4</sub>Se<sub>7</sub>(BGSe) OPO 闲频光的高转换效率输出, 当泵浦激光 (1.06 μm) 能量为 115 mJ 时, 闲频光 (3.5 μm) 能量为 16.18 mJ, 光光转换效率为 14.06%, 斜效率为 18.4%, 这是目前已知 1.06 μm 激光泵浦 BGSe OPO 最高的转换效率。模拟了不同泵浦能量下 L 型腔中有无 LBO 晶体时 BGSe OPO 腔内的三波波形, 并给出了闲频光在实验中的输出波形。与传统 OPO 腔相比, 所提出的 L 型 OPO 腔 (含倍频晶体) 在大能量泵浦条件下抑制了逆转换, 可获得更高的闲频光转换效率。

**关键词:** 中红外激光; 高转换效率; BaGa<sub>4</sub>Se<sub>7</sub>; 光参量振荡

**中图分类号:** TN244 **文献标志码:** A **DOI:** 10.3788/IRLA20230178

### 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<sup>[1]</sup>。光参量振荡器 (Optical Parametric Oscillator, OPO) 可将成熟的近红外或可见激光转换为中远红外激光, 该技术手段结构简单, 可实现全固化、小型化, 并且其稳定性高, 是一种具有广泛应用前景的中红外激光产生方式<sup>[2]</sup>。

在中红外 OPO 中, 在非线性晶体和 OPO 腔镜的共同作用下, 泵浦光向信号光和闲频光转换。但当泵浦光能量较强时, 产生的信号光和闲频光也较强, 此时会发生信号光和闲频光向泵浦光转化的逆转换过程, 该过程会严重影响 OPO 的转换效率。此外, 由于逆转换还容易损伤非线性晶体或晶体和 OPO 腔的膜层。如何抑制 OPO 腔中的逆转换并提高大能量泵浦

条件下的 OPO 转换效率一直是科研人员关注的焦点。

2011 年, 刘建辉等人<sup>[3]</sup>研究了 OPO 中的逆转换问题, 使用准平面波光束代替高斯光束、降低 OPO 腔镜对信号光的反射率等方法降低 OPO 腔内的信号光强度。当泵浦光 (1.06 μm) 能量为 1 J, KTiOAsO<sub>4</sub> (KTA) 晶体长度为 20 mm, OPO 腔镜对信号光反射率为 50% 时, 获得了 270 mJ 的信号光输出和 150 mJ 的闲频光输出, 参量转换效率达 43%, 闲频光转换效率达 15%。

2017 年, L. Wang 等人<sup>[4]</sup>使用 1~3 倍的扩束镜放大泵浦光的光斑尺寸, 泵浦 ZnGeP<sub>2</sub> (ZGP) OPO, OPO 为“泵浦光往返通过晶体, 信号光单谐振的 OPO 腔 (Double-pass pumped Singly-Resonant OPO, DSRO)”。当泵浦光半径放大为原先的 2 倍时 (光斑直径为 2.1 mm), OPO 腔内的信号光密度大幅下降, 逆转换得到了抑制。在泵浦光 (2.09 μm) 能量为 25.1 mJ 的条件下, 获得了 19 mJ 的闲频光 (3.8 μm 和 4.6 μm) 能

收稿日期: 2023-03-30; 修订日期: 2023-04-26

基金项目: 脉冲功率激光技术国家重点实验室主任基金项目 (2022ZR03)

作者简介: 卞进田, 男, 副研究员, 博士, 主要从事中远红外激光技术方面的研究。

通讯作者: 孔辉, 男, 讲师, 博士, 主要从事中远红外激光技术方面的研究。

量, 光光转换效率为 75.7%。

2021 年, P. Wang 等人<sup>[5]</sup>使用双泵浦光 (1060 nm 和 1120 nm) 泵浦 MgO:PPLN 晶体, 首先使用 1060 nm 激光泵浦 PPLN, 输出 1624 nm 的信号光和 3060 nm 的闲频光; 当 1060 nm 泵浦光能量较强时, 为了消除 OPO 腔内较强的 1624 nm 信号光, 输入 1120 nm 激光与 1624 nm 的信号光差频产生 3593 nm 的闲频光。当 1060 nm 和 1120 nm 泵浦光功率为 67 W 和 5.96 W 时, 3060 nm 和 3593 nm 闲频光功率分别为 11 W 和 1.23 W, 转换效率分别达到了 16.4% 和 20.6%。

以上工作均削弱了大能量泵浦条件下 OPO 腔内的信号光能量密度, 有效抑制了逆转换, 提高了 OPO 腔的转换效率, 但具有一定的局限性。在文献 [3] 中, 当泵浦能量发生改变, 不再为 1 J 时, 为获得较高的转换效率, 需要更换不同长度的 KTA 晶体或者对信号光不同反射率的 OPO 腔镜; 文献 [4] 使用的 DSRO 腔在低能量泵浦条件下的转换效率较高, 但当泵浦能量较大时, OPO 腔内信号光能量增强, 叠加返回的泵浦光, 相比“泵浦光单次通过晶体, 信号光单谐振 OPO 腔 (Single-pass pumped Singly-Resonant OPO, SSRO)”更容易损伤晶体或 OPO 腔镜的膜层; 此外 ZGP OPO 的输出谱宽较宽, 因此在 OPO 腔内振荡的信号光模式较多, 平均到每个单频信号光的能量密度并不大, 因此整体转换效率高, 但该模式难以获得窄线宽的闲频光输出。文献 [5] 需要使用两种泵浦光, 且 OPO 腔中的 PPLN 晶体需要恰好对两个参量过程 (1060 nm→1624 nm+3060 nm 和 1120 nm→1624 nm+3593 nm) 均满足一定的相位匹配, 因此难以输出波长可调谐的中红外激光。

文中提出一种新的方法, 设计了 L 型 OPO 腔, 并在 L 型支路上插入对信号光的倍频晶体。当 OPO 腔内信号光能量密度较大时, 信号光在倍频晶体的作用下转换为倍频红光输出 L 腔支路, 此时信号光被削弱, 逆转换得到了抑制, 可获得较高的闲频光转换效率。

在中红外波段, 3.5 μm 波段位于 C-H 键伸缩振动吸收峰处, CH<sub>4</sub> (甲烷)、CH<sub>2</sub>O (甲醛) 等气体在该波段有强烈的吸收, 而 KTA OPO 在输出 3.5 μm 激光时的相位匹配角为  $\theta=90^\circ$ 、 $\varphi=0^\circ$ , 没有走离效应, 便于获得大能量、高光束质量的激光输出<sup>[6]</sup>。而 BaGa<sub>4</sub>Se<sub>7</sub> 是一种新型非线性晶体, 于 2010 年首次被合成<sup>[7]</sup>。与

KTA 相比, 其具有以下几点优势: (1) 当切割角  $\theta$  改变时, KTA(90°, 0°) OPO 输出的波长随  $\theta$  角变化的幅度较小且只能向短波长方向移动, 即输出波长小于 3.5 μm。当改变切割角  $\theta$  时, BGSe(56.3, 0) OPO 输出波长的变化幅度较大且既可向短波长方向移动, 也可向长波长方向移动, 因此波长选择范围更大; (2) BGSe 的有效非线性系数大于 KTA, 因此在同等条件下, 泵浦阈值更低, 转换效率更高<sup>[8]</sup>; (3) BGSe OPO 的温度调谐能力 (3.2 nm/°C @3.5 μm) 大于 KTA OPO (0.073 nm/°C @3.5 μm), 因此可通过改变温度控制输出波长的调谐, 而不局限于仅使用角度调谐<sup>[9]</sup>。与角度调谐相比, 进行温度调谐时晶体始终处于正入射状态, 因此系统结构稳定、泵浦效率更高。以 BGSe OPO 为例, 讨论其输出 3.5 μm 激光时的转换效率。

2019 年, M. Q. Kang 等人<sup>[10]</sup>使用 1.06 μm 激光泵浦 BGSe OPO, 当泵浦能量为 13.5 mJ 时, 获得了 1.03 mJ 的闲频光输出 (4.25 μm), 光光转换效率为 7.6%, 斜效率为 12%, 是当时 BGSe OPO 最高的光光转换效率。文中使用 1.06 μm 激光泵浦 BaGa<sub>4</sub>Se<sub>7</sub> (BGSe) 晶体, 当泵浦能量为 115 mJ 时, 闲频光 (3.5 μm) 能量为 16.18 mJ, 转换效率为 14.06%, 斜效率为 18.4%, 大幅提高了 1 μm 激光泵浦 BGSe OPO 的闲频光转换斜效率。此外, 在该方案中, 在不同泵浦能量条件下, 倍频晶体可以自主调节腔内的信号光能量密度, 不用频繁更换 OPO 腔镜和非线性晶体; 且由于倍频晶体的效率较高、倍频过程允许线宽宽, 因此可在较大的波长范围内对信号光倍频, 从而获得波长大范围可调谐的中红外激光输出。

## 1 实验装置

如图 1 所示, 泵浦源为 SL800 Series Pulse Nd:YAG 激光器, 其输出波长为 1064 nm, 脉宽 (FWHM) 约为 13 ns, 光斑半径 4 mm, 重频 1 Hz。M1 镜对泵浦光 (1064 nm) 高透 ( $T>99\%$ ), 对信号光 (1.35~1.65 μm) 高反 ( $R>99\%$ ); M2 镜倾斜 45° 放置, 对泵浦光 (1064 nm) 高透 ( $T>99\%$ )、闲频光 (3~5 μm) 高透 ( $T>95\%$ ), 对信号光 (1.35~1.65 μm) 高反 ( $R>99\%$ ); M3 镜对信号光 (1.35~1.65 μm) 高反 ( $R>99\%$ ), 对信号光的倍频光 (675~825 nm) 高透 ( $T>95\%$ )。M1 和 M2 镜之间放置 BGSe 晶体, 切割角为 (56.3°, 0°), 尺寸为 10 mm×

10 mm×20 mm, 通光长度为 20 mm。BGSe 在 1.06 μm 激光泵浦下, 通过 I 类相位匹配输出 3.5 μm 的闲频光和 1.5 μm 的信号光, BGSe 晶体的端面镀对泵浦光、信号光和闲频光高透 ( $T>95\%$ ) 的增透膜。M2 和 M3 之间放置 LiB<sub>3</sub>O<sub>5</sub> (LBO) 晶体, 切割角为 (90°, 0°), 尺寸为 10 mm×10 mm×6 mm, 通光长度为 6 mm。当信号光 1.35~1.65 μm 激光通过 LBO 晶体时, 可在 I 类匹配条件下产生倍频红光 (675~825 nm)。LBO 晶体的端面镀对 1 300~1 700 nm 和 650~850 nm 高透的增透膜 ( $T>99\%$ )。

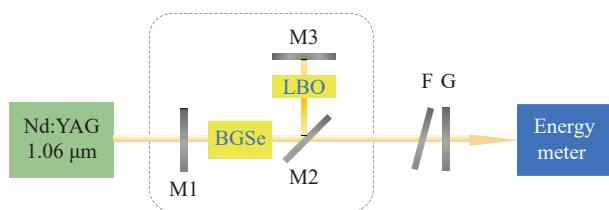


图 1 BGSe OPO 实验装置图

Fig.1 Experimental setup of BGSe OPO

为尽量缩短 OPO 腔长, BGSe 和 LBO 置于 3D 打印的圆环内 (圆环直径 25.4 mm), 再将该圆环置于“上方调整镜架 (ZOLix NVM25.4)”中 (与普通三维调整镜架相比, NVM25.4 在光路所占的长度更短, 因此 OPO 腔长更短), L 型 OPO 腔的主路和支路的总长度缩短为 95 mm。

F 为滤光片, 倾斜一个小角度放置, 对泵浦光 (1 064 nm) 和信号光 (1.35~1.65 μm) 高反 ( $R>99\%$ )、对闲频光 (3~5 μm) 高透 ( $T>95\%$ )。G 为锗片, 用于彻底滤除残余的泵浦光和信号光, 锗片对 1.7 μm 以下激光完全吸收, 对 3~5 μm 激光的透过率约为 56%。能量计表头为 Thorlabs PM100 D, 探头为 ES120 C。

泵浦光和闲频光在主路上单次通过 M1、BGSe 晶体, 然后通过 M2 输出 OPO 腔。信号光在主路和 L 形支路上振荡增强。当泵浦能量较弱时, 泵浦光 (1 064 nm) 通过 BGSe 晶体后产生少量的信号光 (1.35~1.65 μm) 和闲频光 (3~5 μm), 此时的信号光也较弱, 信号光在 M1~M3 之间振荡增强, 此时 LBO 对信号光的倍频效率不高, 信号光可以正常起振。泵浦光、闲频光通过 M2 镜输出; F 镜将剩余的泵浦光、信号光反射出光路, 闲频光正常透过 F 镜。

当泵浦能量较强时, 泵浦光 (1 064 nm) 通过

BGSe 晶体后产生大量的信号光 (1.35~1.65 μm) 和闲频光 (3~5 μm), 此时的信号光较强, 信号光通过 LBO 时, 一部分信号光倍频产生红光 (675~825 nm), 红光通过 M3 镜输出, 另一部分信号光经 M3 镜反射, 继续在 M1~M3 镜之间振荡。由于很大一部分信号光被转化为倍频红光, 因此腔内的信号光强度被削弱, 逆转换受到了抑制, 因此闲频光的转换效率随之增加。

## 2 结果与讨论

### 2.1 L 型 BGSe OPO、直腔 BGSe OPO 输出的闲频光能量与泵浦光能量之间的关系

图 2 给出了 L 型 BGSe OPO 腔中, 有无 LBO 倍频晶体时, 输出闲频光的能量与输入泵浦光能量之间的关系。

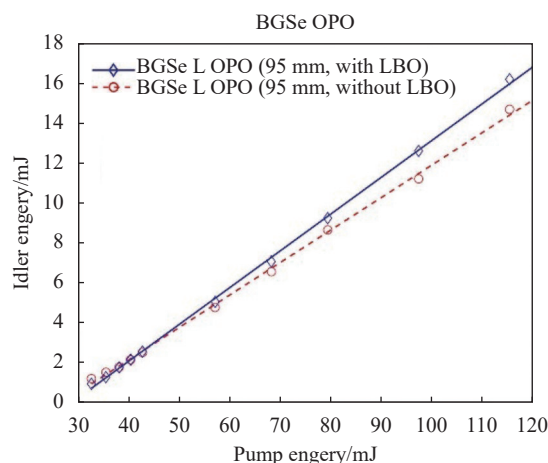


图 2 L 型 OPO 腔中的闲频光输出能量

Fig.2 The idler laser output energy under the L-shaped cavity

如图 2 所示, 红色虚线为 L 型 BGSe OPO 腔中无 LBO 晶体时, 输出闲频光与泵浦光能量之间的关系; 蓝色实线为 L 型 BGSe OPO 腔中有 LBO 晶体时, 输出闲频光与泵浦光能量之间的关系。

从图 2 可以看出, 当泵浦能量较小时 (32.63~42.72 mJ), 无 LBO 晶体的 BGSe OPO 腔输出能量略大于有 LBO 晶体的 BGSe OPO 腔。因为此时腔内信号光强度较小, 逆转换程度较小, 且无 LBO 时信号光的损耗较小, 因此输出的闲频光能量较大。

当泵浦能量较大时 (57.08~115.33 mJ), 无 LBO 晶体的 BGSe OPO 腔输出能量小于有 LBO 晶体的 BGSe OPO 腔, 且随着泵浦能量的增加, 差距越来越大。因

为此时腔内信号光强度较大, 逆转换程度较强, 而有 LBO 时信号光不断转化为倍频红光, 逆转换程度得到了抑制, 因此输出的闲频光能量较大。

从图 2 中可以看出, 当泵浦能量为 115 mJ 时, 在有 LBO 晶体的条件下, 闲频光能量为 16.18 mJ, 光光转换效率为 14.06%, 斜效率为 18.40%; 在没有 LBO 晶体的条件下, 闲频光能量为 14.67 mJ, 光光转换效率为 12.75%, 斜效率为 16.25%。

因此文中提出的在 L 型 OPO 腔中插入倍频晶体的方法可以抑制普通 OPO 腔中的逆转换, 并大幅提高大能量泵浦条件下的闲频光转换效率。下面从理论上分析其具体原因。

## 2.2 L 型 BGSe OPO 和直腔 BGSe OPO 的三波数值模拟

为模拟泵浦光、信号光、闲频光以及信号光的倍频光在 OPO 腔中的场强分布, 需要使用三波耦合方程。

在慢变振幅近似条件下, 当脉宽大于 1 ns 且相位完全匹配时, 三波耦合方程可简化为公式 (1):

$$\begin{cases} \frac{dE_s(z)}{dz} = \frac{i\omega_s d_{eff}}{n_s c} E_p E_i^* \\ \frac{dE_i(z)}{dz} = \frac{i\omega_i d_{eff}}{n_i c} E_p E_s^* \\ \frac{dE_p(z)}{dz} = \frac{i\omega_p d_{eff}}{n_p c} E_s E_i \end{cases} \quad (1)$$

式中:  $E_j(j = s, i, p)$  为三波在晶体内的场强;  $d_{eff}$  为晶体的有效非线性系数;  $\omega_j$  为三波的圆频率;  $n_j$  为三波在晶体中的折射率。

泵浦光一般均为高斯光束, 其在时间和空间上均符合高斯分布, 即光斑中心处场强  $E$  最大, 而光斑边缘处场强  $E$  较小, 高斯脉冲时间峰值处场强  $E$  最大, 脉冲时间两端场强  $E$  最小。因此三波在 OPO 腔中传输时首先会在光斑中心处、脉冲峰值处出现逆转换, 随后扩散到光斑边缘、脉冲边缘处。

文中以高斯光束的时间分布为例, 假设泵浦光在光斑半径内的场强处处相等, 重点模拟不同脉冲时刻下, 三波在 OPO 腔输出端场强随时间的分布关系, 进而得出三波在 OPO 腔输出端的能量密度。

### (1) 泵浦光场强

公式 (1) 中用场强  $E$  表示三波的强度, 试验中常接触到的参数为泵浦源的单脉冲能量, 因此需要将单脉冲能量  $Q$  转换为晶体中场强  $E$ 。根据文献 [11], 可

用公式 (2) 进行转换:

$$E_0 = \sqrt{\frac{4 \sqrt{\ln 2} Q}{\pi^{3/2} \epsilon_0 c n \tau \omega^2}} \quad (2)$$

式中:  $E_0$  为高斯脉冲中心时刻的峰值场强 (假设为均匀光斑);  $\epsilon_0$  为真空中的介电常数;  $n$  为泵浦光在晶体中的折射率;  $\tau$  为半最大值全宽度 (Full Width at Half Maximum, FWHM);  $\omega$  为光斑半径。

### (2) 信号光、闲频光的初始场强

对于信号光, 初始能量从量子噪声开始, 在信号光一次通过晶体的时间内、信号光光斑面积上的能量设为一个光子的能量, 其功率密度和场强分别为:

$$I_s = \frac{hc}{\lambda_s \cdot \pi w_s^2 \cdot \left(\frac{n_s l}{c}\right)}, \quad E_s = \sqrt{\frac{2I_s}{n_s \epsilon_0 c}} \quad (3)$$

式中:  $\lambda_s$  为信号光波长;  $w_s$  为阈值附近信号光光斑半径。根据文献 [12], 它与泵浦光光斑半径满足公式 (4):

$$\left(\frac{\pi}{2L\lambda_s}\right)^2 w_s^6 + w_s^2 - \frac{w_p^2}{2} = 0 \quad (4)$$

式中:  $w_p$  为泵浦光斑半径。需要注意, 随着泵浦光能量的增加, 信号光光斑半径  $w_s$  会逐渐增加。

### (3) 参量光的模拟波形

根据给定的初值, 利用 Runge-Kutta 算法对公式 (1) 进行了迭代求解, 得到了到晶体三波场强与位置的关系。

对于 BGSe 晶体, 通过迭代运算, 可以从初始状态的  $E_p(1)$ 、 $E_s(1)$ 、 $E_i(1)$  依次得到所有位置的  $E_p(i)$ 、 $E_s(i)$ 、 $E_i(i)$ 。由于场强  $E$  为复数, 将其转换为光强 (功率密度), 得到不同时刻三波在 OPO 腔输出端的光强。其中泵浦光、闲频光、信号光三波波长分别为 1.064  $\mu\text{m}$ 、3.5  $\mu\text{m}$  和 1.53  $\mu\text{m}$ , 他们在晶体中的折射率约为 2.49。根据 BGSe 最新的二阶非线性系数矩阵<sup>[13]</sup>和单斜晶体有效非线性系数的计算方法<sup>[14]</sup>, BGSe (56.3°, 0°) 的有效非线性系数为 -25.2 pm/V。

对于 LBO 晶体, 从 BGSe 晶体输出的信号光 1.53  $\mu\text{m}$ , 将在 LBO 中倍频产生 0.765  $\mu\text{m}$  的倍频光。在 R-T 算法中, 该过程中  $\lambda_p=0.765 \mu\text{m}$ ,  $\lambda_s=\lambda_i=1.53 \mu\text{m}$ 。他们在晶体中的折射率约为 1.56。LBO (90°, 0°) 的有效非线性系数为 0.818 pm/V<sup>[15]</sup>。

为方便对比,给出了泵浦能量分别为 30、50、80 mJ 情况下 L 型 OPO 腔内有 LBO 和无 LBO 情况

下参量光在 OPO 腔输出端随时间变化的波形。具体如图 3 所示。

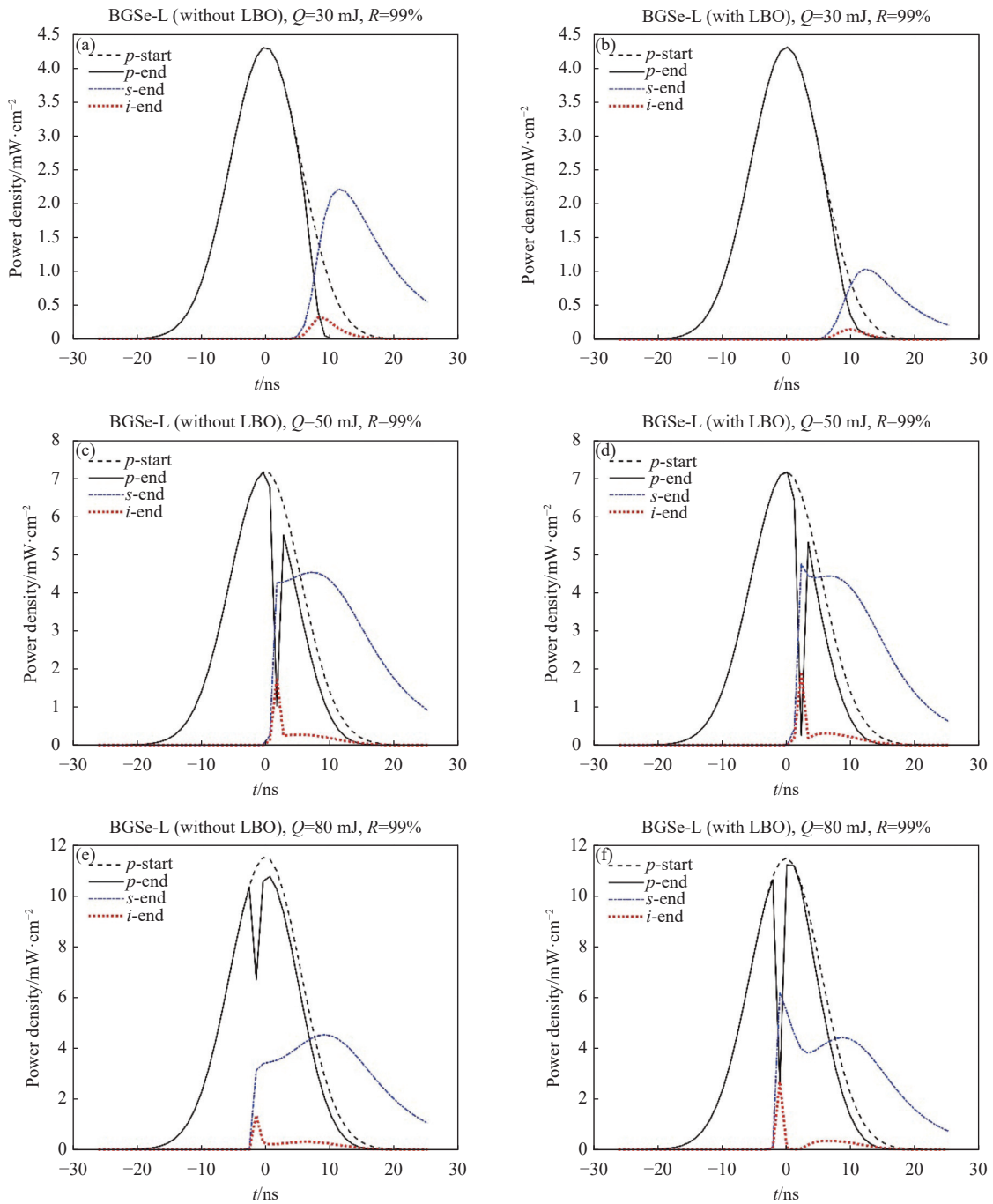


图 3 (a) 30 mJ 泵浦能量下 BGSe-L 腔 (无 LBO) 中参量光波形; (b) 30 mJ 泵浦能量下 BGSe-L 腔 (有 LBO) 中参量光波形; (c) 50 mJ 泵浦能量下 BGSe-L 腔 (无 LBO) 中参量光波形; (d) 50 mJ 泵浦能量下 BGSe-L 腔 (有 LBO) 中参量光波形; (e) 80 mJ 泵浦能量下 BGSe-L 腔 (无 LBO) 中参量光波形; (f) 80 mJ 泵浦能量下 BGSe-L 腔 (有 LBO) 中参量光波形

Fig.3 (a) Parametric light waveforms in BGSe-L cavity (without LBO) with a pump energy of 30 mJ; (b) Parametric light waveforms in BGSe-L cavity (with LBO) with a pump energy of 30 mJ; (c) Parametric light waveforms in BGSe-L cavity (without LBO) with a pump energy of 50 mJ; (d) Parametric light waveforms in BGSe-L cavity (with LBO) with a pump energy of 50 mJ; (e) Parametric light waveforms in BGSe-L cavity (without LBO) with a pump energy of 80 mJ; (f) Parametric light waveforms in BGSe-L cavity (with LBO) with a pump energy of 80 mJ

图 3 中, 黑色虚线 (--) 为初始的泵浦光波形, 为高斯分布。黑色的实线为 OPO 腔输出端的泵浦光波形, 蓝色点划线 (-.) 为 OPO 腔输出端的信号光波形, 红色点线 (..) 为 OPO 腔输出端的闲频光波形。

如图 3(a)、(b) 所示, 在 30 mJ 泵浦能量下, 此时腔内信号光功率密度较小, 当腔内没有 LBO 晶体时, 信号光可以以较小的损耗地在 L 型腔内振荡增强, 因此产生的闲频光能量要大于有 LBO 时的情况。将图中的闲频光功率密度求和并乘以时间, 可以得到闲频光在整个脉冲内的能量密度。图 3(a) 和图 3(b) 中的闲频光能量密度分别为  $16 \text{ J/m}^2$  和  $8 \text{ J/m}^2$ 。

如图 3(c)、(d) 所示, 在 50 mJ 泵浦能量下, 此时腔内信号光功率密度较大, 闲频光峰值向泵浦光脉冲中心移动, 位于中心时刻略偏右侧。图 3(c) 中心时刻右侧的剩余泵浦光大于图 3(d) 中的剩余泵浦光, 因此逆转换更严重一些。原因在于图 3(d) 中的 LBO 晶体消耗了大量的信号光, 因此转换效率更高一些。图 3(c) 和图 3(d) 中的闲频光能量密度分别为  $45 \text{ J/m}^2$  和  $49 \text{ J/m}^2$ , 此时有 LBO 情况下的闲频光转换效率已反超无 LBO 下的情况。

如图 3(e)、(f) 所示, 在 80 mJ 泵浦能量下, 此时腔内信号光功率密度更大, 图 3(e) 中逆转换程度较大, 闲频光峰值位于中心时刻略偏左侧, 此时右侧的剩余泵浦光高于左侧的泵浦光强度, 且闲频光峰值被压制得很低。图 3(f) 中的逆转换程度较 3(e) 要小一些, 闲频光峰值位于中心时刻略偏左。图 3(e) 和图 3(f) 中的闲频光能量密度分别为  $52 \text{ J/m}^2$  和  $62 \text{ J/m}^2$ , 此时有 LBO 情况下的闲频光转换效率是无 LBO 情况下的 1.2 倍。

从模拟图中可以看出, 当泵浦能量为 80 mJ 时, 即使在有 LBO 的条件下, 逆转换程度也很强。因此当使用长度更长的 LBO 或有效非线性系数更高的其他倍频晶体时, 抑制逆转换的效果会更好。

下面给出泵浦能量为 78 mJ 条件下, BGSe-L 腔 OPO 闲频光的波形, 具体如图 4 所示。

图 4(a) 是有 LBO 条件下的输出闲频光波形, 图 4(b) 是无 LBO 条件下的输出闲频光波形。图 4(a) 的闲频光波形类似高斯分布, 有一个波峰, 其峰值为 505 mV; 图 4(b) 的闲频光波形有两个小尖峰, 表示 OPO 腔内出现较为严重的拟转换, 其峰值为 362 mV,

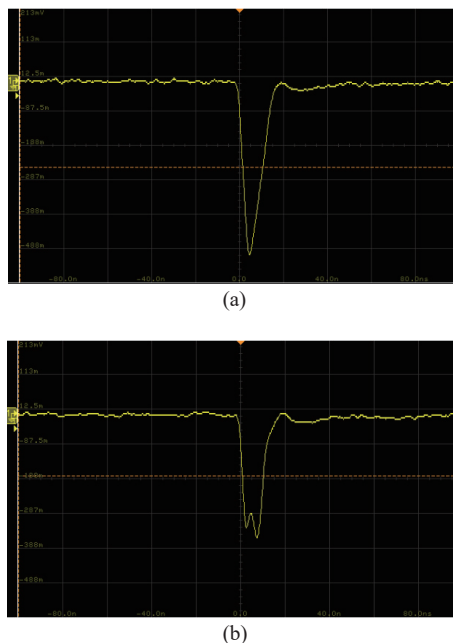


图 4 泵浦能量 78 mJ 时 BGSe-L 腔 OPO 闲频光的波形: (a) 有 LBO; (b) 无 LBO

Fig.4 Temporal profile of the idler in BGSe-L cavity at a 78 mJ pump energy: (a) with LBO; (b) without LBO

也小于前者。

理论和实验均验证了插入倍频晶体后闲频光的转换效率得到了明显的提升。

### 2.3 L 型 BGSe - LBO OPO 腔的波长调谐

在 50 mJ 泵浦能量下, 旋转 BGSe 晶体的角度, 测量 L 型 BGSe - LBO OPO 腔输出波长, 并给出不同输出波长下的输出能量。通过调整晶体的俯仰和水平角度, BGSe L OPO 输出的闲频光中心波长与  $\theta$ 、 $\varphi$  之间的关系如图 5 所示。

图 5(a) 为通过调整上方调整架的俯仰角度改变晶体的  $\theta$  角, 蓝色实线为根据 Badikov 等<sup>[16]</sup> 折射率方程计算得出的相位匹配曲线, 黑色点划线 (-.) 为根据 Yang 等<sup>[17]</sup> 折射率方程计算所得的相位匹配曲线, 青色虚线 (--) 对应 Brousier 等<sup>[18]</sup> 方程计算所得的曲线, 红色点线 (..) 对应 Kato 等<sup>[19]</sup> 方程计算所得的曲线, 红色“o”为实测的峰值波长。由此可以看出, 实测峰值波长的数值与黑色曲线 (Yang) 吻合的很好。实测值的  $\Delta\lambda_2/\Delta\theta$  为  $-231.81 \text{ nm}/(^{\circ})$ , 四类曲线在  $3.5 \mu\text{m}$  附近的  $\Delta\lambda_2/\Delta\theta$  分别为  $-258.71 \text{ nm}/(^{\circ})$  (Badikov)、 $-238.22 \text{ nm}/(^{\circ})$  (Yang)、 $-247.18 \text{ nm}/(^{\circ})$  (Brousier)、 $-210.04 \text{ nm}/(^{\circ})$  (Kato)。实验与理论比较接近。

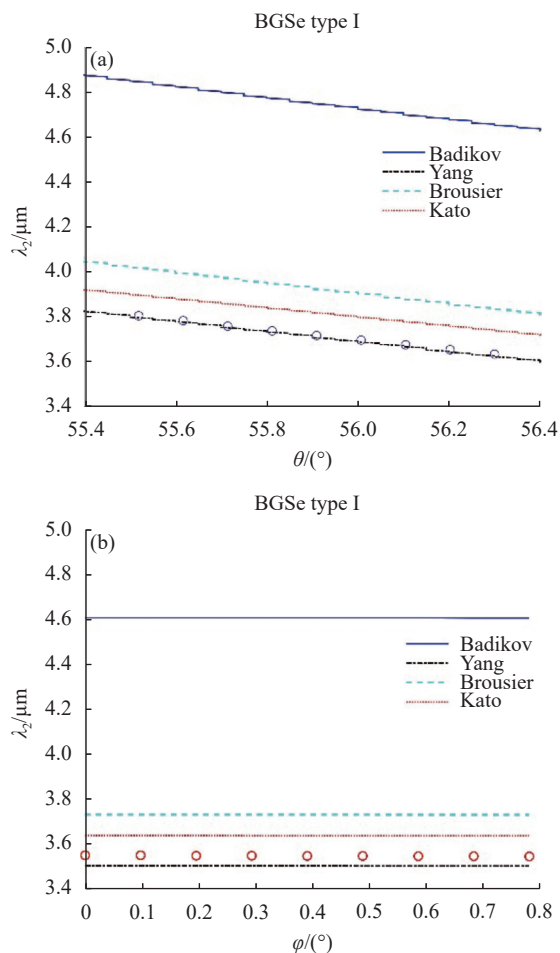


图 5 (a) BGSe (56.3, 0) 输出的峰峰值波长与  $\theta$  之间的关系; (b) BGSe (56.3, 0) 输出的峰峰值波长与  $\phi$  之间的关系

Fig.5 (a) The relationship between the output wavelength and  $\theta$  angle of BGSe; (b) The relationship between the output wavelength and  $\phi$  angle of BGSe (56.3, 0)

如图 5(b) 所示, 通过调整上方调整架的水平角度改变晶体的  $\phi$  角, 实测数据位于 Kato 和 Yang 的曲线之间且离 Yang 的曲线更近一些。当  $\phi$  从  $0^\circ$  增加到  $0.8^\circ$  时, 四类曲线的变化不大,  $\lambda_2$  均仅下降了 1 nm,  $\Delta\lambda_2/\Delta\phi$  为  $-1.25 \text{ nm}/(^\circ)$ 。但实测的  $\lambda_2$  从 3549 nm 减小到 3544 nm, 下降了 5 nm,  $\Delta\lambda_2/\Delta\phi$  为  $-6.25 \text{ nm}/(^\circ)$ , 远大于理论值。可能的原因是, 受晶体平台的影响, 泵浦光入射方向难以与 BGSe 的  $\theta=56.3^\circ$  线完全重合, 当使用 NVM25.4 调整架的旋钮对晶体的  $\phi$  角进行调整时,  $\theta$  也有会细微的变化。根据  $\Delta\lambda_2/\Delta\theta = -231.8 \text{ nm}/(^\circ)$  推算, 当  $\theta$  改变了  $0.02^\circ$  时, 闲频光波长  $\lambda_2$  将会有 5 nm 的变化。

实验验证了 BGSe L LBO 腔可以在较大范围内

获得波长可调谐的激光输出, 原因在于 LBO ( $90^\circ, 0^\circ$ ) 的倍频的允许线宽较大, 信号光即使不能满足完全相位匹配, 也可在较大的波长范围内满足部分相位匹配条件, 因此可在较大的闲频光波长范围内输出激光并具有提高闲频光转换效率的效果。另由于 BGSe 晶体镀了对信号光、闲频光和泵浦光三波高透的增透膜, 且晶体的调谐角度较小 ( $0.8^\circ$ ), 实验表明在不同倾角下, 闲频光转换效率与正入射时基本保持一致。

### 3 结论

首次提出在 L 型 OPO 腔中插入信号光倍频晶体的方法来抑制大能量泵浦条件下 OPO 腔内过高的信号光功率密度, 从而抑制了信号光和闲频光向泵浦光的逆转并提高了闲频光转换效率。以 BGSe OPO 为例, 当泵浦能量 ( $1.06 \mu\text{m}$ ) 为 115 mJ 时, 闲频光 ( $3.5 \mu\text{m}$ ) 能量为 16.18 mJ, 光光转换效率为 14.06%, 斜效率为 18.4%。这是目前已知  $1 \mu\text{m}$  激光泵浦 BGSe OPO 最高的闲频光转换效率。论文根据 OPO 数值模拟从理论上分析了该方法提高闲频光转换效率的内在原因。并通过实验验证了该方案同时具有 OPO 的波长调谐能力。

### 参考文献:

- [1] Gao Baoguang, Meng Dondong, Qiao Zhando, et al. High repetition rate, high peak power mid-infrared optical parametric oscillator based on MgO: PPLN [J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2022, 51(10): 20220069. (in Chinese)
- [2] Wang Huahang, Mao Jiajia, Ye Shuai, et al. Research progress of high-power 266 nm all-solid-state single-frequency CW laser [J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2023, 52(4): 20220885. (in Chinese)
- [3] Liu Jianhui, Liu Qiang, Gong Mali. Back conversion in optical parametric process [J]. *Acta Phys Sin*, 2011, 60(2): 024215. (in Chinese)
- [4] Wang L, Xing T, Hu S, et al. Mid-infrared ZGP-OPO with a high optical-to-optical conversion efficiency of 75.7% [J]. *Opt Express*, 2017, 25(4): 3373-3380.
- [5] Wang P, Li X, Wang K, et al. Highly-efficient pulsed mid-infrared generation based on intracavity difference frequency mixing [J]. *IEEE Photonics Journal*, 2021, 13(3): 1500309.
- [6] Kong Hui, Bian Jintian, Ye Qing, et al. Comparison of mid-infrared laser generated by optical parametric oscillation of

- BaGa<sub>4</sub>Se<sub>7</sub> and KTiAsO<sub>4</sub> [J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2020, 49(5): 20190423. (in Chinese)
- [7] Yao J, Mei D, Bai L, et al. BaGa<sub>4</sub>Se<sub>7</sub>: A new congruent-melting IR nonlinear optical material [J]. *Inorganic Chemistry*, 2010, 49(20): 9212-9216.
- [8] Zhang X, Yao J, Yin W, et al. Determination of the nonlinear optical coefficients of the BaGa<sub>4</sub>Se<sub>7</sub> crystal [J]. *Optics Express*, 2015, 23(1): 552-558.
- [9] Kong Hui, Bian Jintian, Yao Jiyong, et al. Temperature tuning of BaGa<sub>4</sub>Se<sub>7</sub> optical parametric oscillator [J]. *Chinese Optics Letters*, 2021, 19(2): 021901.
- [10] Kang M, Deng Y, Yan X, et al. A compact and efficient 4.25 μm BaGa<sub>4</sub>Se<sub>7</sub> optical parametric oscillator [J]. *Chinese Optics Letters*, 2019, 17(12): 53-56.
- [11] Kong Hui. Mid infrared optical parametric oscillator based on BaGa<sub>4</sub>Se<sub>7</sub> and KTiOAsO<sub>4</sub> [D]. Changsha: National University of Defense Technology, 2021(in Chinese).
- [12] Brosnan S, Byer R. Optical parametric oscillator threshold and linewidth studies [J]. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 1979, 15(6): 415-431.
- [13] Zhao X, Li C, Bai J, et al. Recalibration of the nonlinear optical coefficients of BaGa<sub>4</sub>Se<sub>7</sub> crystal using second-harmonic-generation method [J]. *Optics Letters*, 2021, 46(23): 5894-5897.
- [14] Kong Hui, Bian Jintian, Sun Xiaoquan. Calculation of phase-matching angles and effective nonlinear coefficients of BaGa<sub>4</sub>Se<sub>7</sub> crystals [J]. *Optik*, 2019, 193: 163004.
- [15] Sun Rui. Investigation on LD-pumped Nd: YAG intracavity LBO frequency doubling 659.5 nm/669 nm dual-wavelength laser[D]. Changchun: Changchun University of Science and Technology, 2016. (in Chinese)
- [16] Badikov V, Badikov D, Shevyrdyaeva G, et al. Phase-matching properties of BaGa<sub>4</sub>S<sub>7</sub> and BaGa<sub>4</sub>Se<sub>7</sub>: Wide-bandgap nonlinear crystals for the mid-infrared [J]. *Phys. Status Solidi RRL*, 2011, 5(1): 31-33.
- [17] Yang F, Yao J, Xu H, et al. Midinfrared optical parametric amplifier with 6.4–11 μm range based on BaGa<sub>4</sub>Se<sub>7</sub> [J]. *IEEE Photonics Technology Letters*, 2015, 27(10): 1100-1103.
- [18] Boursier E, Segonds P, Debray J, et al. Angle noncritical phase-matched second-harmonic generation in the monoclinic crystal BaGa<sub>4</sub>Se<sub>7</sub> [J]. *Optics Letters*, 2015, 40(20): 4591-4594.
- [19] Kato K, Miyata K, Petrov V, et al. Phase-matching properties of BaGa<sub>4</sub>Se<sub>7</sub> for SHG and SFG in the 0.901–10.5910 μm range [J]. *Applied Optics*, 2017, 56(11): 2978-2981.

## Mid-infrared BaGa<sub>4</sub>Se<sub>7</sub> optical parametric oscillator with high conversion efficiency (*invited*)

Bian Jintian<sup>1,2,3</sup>, Kong Hui<sup>1,2\*</sup>, Ye Qing<sup>1,2</sup>, Yao Jiyong<sup>4</sup>, Lv Guorui<sup>1,2,3</sup>,  
Xu Haiping<sup>1,2,3</sup>, Zhou Quan<sup>1,2</sup>, Wen Kaihua<sup>1,2</sup>

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

2. Anhui Laboratory of Advanced Laser Technology, Electronic Countermeasure Institute, National University of Defense Technology, Hefei 230037, China;

3. Nanhu Laser Laboratory, National University of Defense Technology, Changsha 410073, China;

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

### Abstract:

The LiB<sub>3</sub>O<sub>5</sub>(LBO) was inserted into the branch of the L-shaped BaGa<sub>4</sub>Se<sub>7</sub>(BGSe) optical parametric oscillator (OPO) to improve the conversion efficiency for the first time. When the pump laser energy is 115 mJ (1.06 μm), the idler light (3.5 μm) energy was 16.18 mJ, corresponding to the conversion efficiency of 14.06%, and the slope efficiency was 18.4%, which was the highest conversion efficiency of BGSe OPO pumped by 1 μm laser. The signal, idler, and pump wave waveform in BGSe L OPO cavity with and without LBO crystals was simulated, and the output waveform of idler light was given. Compared with traditional OPO cavities, L-type OPO cavities (with frequency doubling crystals) suppress the inverse conversion under high-energy pumping conditions, achieving higher idle frequency light conversion efficiency.



**Objective** The mid-infrared (IR) coherent sources in the 3-5  $\mu\text{m}$  have always been intensively demanded for a wide range of scientific and technological applications in remote sensing, spectrum analysis, materials diagnostics, aerospace fields, etc. Optical parametric oscillation is an attractive approach, especially when high energy and average power are demanded simultaneously. However, there is reverse conversion in the OPO cavity. When the pump energy is high, the signal light and idle frequency light generated are also strong. At this time, the signal light and idle frequency light will be converted to the pump light, which seriously affects the conversion efficiency of OPO. In addition, due to the high intensity of signal light in the cavity during the reverse conversion, it is easy to damage the nonlinear crystal or its coating. Therefore, how to suppress reverse conversion in the OPO cavity under high-energy pumping conditions and improve the conversion efficiency of OPO has always been the focus of research.

**Methods** To suppress the inverse conversion in the OPO cavity, we proposed a method of inserting a frequency doubling crystal into the L-type OPO cavity to suppress the signal light intensity (Fig.1). All three mirrors of the L-shaped cavity are coated with a high-reflection coating for the signal laser, and crystals are inserted in the L-branch to achieve intracavity frequency doubling of the signal laser. When the energy density of the signal laser in the OPO cavity is high, the signal laser is converted into red light by the frequency doubling crystal and output from the L branch. At the same time, the signal laser is attenuated, reverse conversion is suppressed, and the efficiency of idle laser conversion is improved.

**Results and Discussions** The idler laser energy was 16.18 mJ at a pump energy of 115 mJ, corresponding to an optical-to-optical conversion efficiency of 14.06% and a slope efficiency of 18.4% (Fig.2). It is the highest conversion efficiency for  $\text{BaGa}_4\text{Se}_7$  (BGSe) OPO pumped by a 1.06  $\mu\text{m}$  laser, to the best of our knowledge. The energy density of the three waves at the output of the OPO cavity is simulated. The simulation results show that the optical-to-optical conversion efficiency of the idler laser with the  $\text{LiB}_3\text{O}_5$  (LBO) inserted in the cavity is 1.20 times higher than that without LBO in the cavity at a pump energy of 80 mJ (Fig.3). The OPO output wavelength could be tuned by adjusting the angle of the BGSe crystal (Fig.5). When the  $\theta$  angle of the crystal is changed, the experimental peak wavelength agrees well with the theoretical simulation curve, and the measured  $\Delta\lambda_2/\Delta\theta$  is  $-231.81 \text{ nm}/(^{\circ})$ . When changing the  $\varphi$  angle of the crystal, the measured  $\Delta\lambda_2/\Delta\varphi$  of  $-6.25 \text{ nm}/(^{\circ})$  deviates from the theoretical value of  $-1.25 \text{ nm}/(^{\circ})$  because the incident direction of the pump laser is difficult to exactly coincide with the  $\theta=56.3^{\circ}$  line of BGSe.

**Conclusions** The conversion efficiency of idler light in OPO cavity was improved by inserting a signal laser frequency doubling crystal into the L-shaped OPO cavity for the first time. When the pump energy is 115 mJ, the 16.18 mJ of the idler laser energy was obtained in BGSe OPO. The optical-to-optical conversion efficiency was 14.06%, and the slope efficiency was 18.4%, which is the highest conversion efficiency of BGSe OPO pumped by a 1.06  $\mu\text{m}$  laser. The output wavelength of BGSe OPO with high conversion efficiency can also be tuned.

**Key words:** mid-infrared laser; high conversion efficiency;  $\text{BaGa}_4\text{Se}_7$ ; optical parametric oscillation

**Funding projects:** Director Foundation of State Key Laboratory of Pulsed Power Laser Technology (2022ZR03)