doi:10.11887/j.cn.202205016 http://journal.nudt.edu.cn

$BaGa_4Se_7$ 与 $KTiOAsO_4$ 光参量振荡输出3.5 μm激光性能对比*

孔 辉[1,2],卞进田[1,2],叶 庆[1,2],徐海萍[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. 国防科技大学 先进激光技术安徽省实验室,安徽 合肥 230037)

摘 要:为对比新型非线性晶体 $BaGa_4Se_7$(简称 BGSe)和成熟商用非线性晶体 $KTiOAsO_4$(简称 KTA)所输出的中红外激光性能,使用1.06 μm激光泵浦 BGSe(56.3°,0°,type-Ⅰ)和 KTA(90°,0°,type-Ⅱ-A)输出3.5 μm激光。在泵浦光波长为1 064 nm、脉宽为13 ns、光斑直径为4 mm、光参量振荡腔长为90 mm的条件下,实验测得 KTA(L=20 mm)和 BGSe(L=15 mm)的泵浦振荡阈值分别为52.6 mJ(理论值为46.11 mJ)和20.6 mJ(理论值为18.32 mJ);BGSe 输出波长与温度的变化率 $\Delta\lambda_2/\Delta T$ 为3.20 nm/℃(理论值为2.49 nm/℃),KTA 的 $\Delta\lambda_2/\Delta T$ 为0.073 nm/℃(理论值为0.077 nm/℃);实验测得 BGSe 的输出线宽为4.71 nm,KTA 为2.45 nm。BGSe 和 KTA 的泵浦阈值和温度调谐在理论和实验上吻合得较好,且结果表明:BGSe 在这两个方面优于 KTA;但 KTA 在输出窄线宽方面优于 BGSe 晶体。实验结果表明,BGSe 是一种具有广泛应用前景的中远红外非线性晶体。

关键词:$KTiOAsO_4$;$BaGa_4Se_7$;中红外激光;温度调谐;线宽
中图分类号:TN244 **文献标志码**:A **文章编号**:1001-2486(2022)05-150-08

Comparison of output 3.5 μm laser properties by optical parametric oscillation of $BaGa_4Se_7$ and $KTiOAsO_4$

KONG Hui[1,2], *BIAN Jintian*[1,2], *YE Qing*[1,2], *XU Haiping*[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, National University of Defense Technology, Hefei 230037, China)

Abstract: In order to compare the mid infrared laser performance output by the new nonlinear crystal $BaGa_4Se_7$ (BGSe) and the mature commercial nonlinear crystal KTiOAsO4 (KTA), the 1.06 μm laser was used to pump BGSe (56.3°, 0°, type-Ⅰ) and KTA (90°, 0°, type-Ⅱ-A) to output 3.5 μm laser. The pump oscillation threshold of KTA and BGSe was 52.6 mJ (the theoretical value was 46.11 mJ) and 20.6 mJ (the theoretical value was 18.32 mJ) respectively when the pump wavelength was 1 064 nm, the pulse width was 13 ns, the beam diameter was 4 mm and theoptical parametric oscillator, cavity length was 90 mm. The $\Delta\lambda_2/\Delta T$ of BGSe and KTA was 3.20 nm/℃ (the theoretical value was 2.49 nm/℃) and 0.073 nm/℃ (the theoretical value was 0.077 nm/℃). The output linewidth of BGSe and KTA was 4.71 nm and 2.45 nm respectively. The experimental results of the pump oscillation threshold and the temperature tuning range fit the theoretical simulation well, and the results show that BGSe is better than KTA in these two aspects. But the output linewidth of KTA is narrower than that of BGSe. The experimental results indicated that BGSe is a mid-to far-infrared nonlinear crystal with wide applications.

Keywords: $KTiOAsO_4$; $BaGa_4Se_7$; mid-infrared laser; temperature tuning; linewidth

3.5 μm波段处于大气窗口波段和C-H键伸缩振动吸收峰上,该波段的激光在光谱学、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。光参量振荡(optical parametric oscillator, OPO)技术可将成熟的(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、稳定性好的优势,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、发展迅速的中红外激光产生方式[1]。

目前常见的中远红外非线性晶体主要可分为氧化物、磷族化合物和硫族化合物三种[2]。磷锗锌 $ZnGeP_2$(ZGP)是典型的磷族化合物非线性晶体,其具有大的非线性系数(d_{36}=75 pm/V),但

* **收稿日期**:2020-11-05
基金项目:脉冲功率激光技术国家重点实验室主任基金资助项目(SKL2019ZR06,SKL2022ZR03)
作者简介:孔辉(1984—),男,安徽庐江人,博士研究生,E-mail:konghui17@nudt.edu.cn;
卞进田(通信作者),男,副研究员,博士,硕士生导师,E-mail:bianjt@126.com

其在 2 μm 以下存在较强的声子吸收,因此须用 2 μm 以上的激光进行泵浦。砷酸氧钛钾 $KTiOAsO_4$(KTA)和硒镓钡 $BaGa_4Se_7$(BGSe)分别属于氧化物和硫族化合物非线性晶体,均可用 1 μm激光泵浦产生 3 ~ 5 μm 激光,其中 BGSe 还可将输出激光拓展到 2.7 ~ 17 μm [3]。

KTA 是一种成熟的商用中红外非线性晶体,它是 $KTiOPO_4$(KTP) 晶体家族中的一员,透光范围为 0.35 ~ 5.3 μm,具有较大的非线性系数(d_{32} =4.5 pm/V)、较高的损伤阈值(600 MW/cm^2)、较宽的角度和温度匹配带宽,物理化学性能稳定等[4]。晶体沿 X 轴向($\theta = 90°$, $\phi = 0°$)切割的 KTA 晶体在 1 064 nm 激光泵浦时,可在Ⅱ - A 类相位匹配条件下输出 3.5 μm 的中红外激光,在该切割方式下晶体的走离角为零,克服了走离效应,近年来在激光雷达、超短脉冲激光等前沿领域得到了广泛的应用。2019 年,Romanovskii 等[5]利用 KTA 晶体输出的 3 ~ 4 μm 和 1.8 ~ 2.5 μm 波段激光作为激光雷达光源对 1 km 及以上的大气环境进行检测,根据激光雷达信号所计算出的 H_2O 和 CO_2 的浓度分布与实际情况一致,该实验验证了 KTA-OPO 作为激光雷达光源的可靠性,其中 3 ~ 4 μm 和 1.8 ~ 2.5 μm 波段所对应的最大脉冲能量分别为 9 mJ 和 23 mJ(脉宽为 10 ns)。同年,Dong 等[4]使用 30 ps/1.06 μm Nd∶YAG 激光器泵浦 KTA,在 3.5 μm 下获得 1.85 mJ 的最大输出能量,首次利用 KTA 在 3.5 μm 波段获得了 ps 脉宽的 mJ 级 OPA 能量输出。此外,当泵能量为 14 mJ 时,中红外输出能量从 0.6 ~ 1.4 mJ 不等,调谐范围为 2.9 ~ 3.6 μm。Lu 等利用 KTA-OPO 产生了 120 fs、149 μJ、3.5 μm、300 Hz 的激光,并据此压缩至 21 fs、45 μJ、光谱范围为 2.2 ~ 4.9 μm 的中红外激光,开启了固体阿秒强场物理的新机制。[6]

BGSe 晶体是一种新型非线性晶体,由中国科学院理化技术研究所 Yao 等于 2010 年首次合成[7]。BGSe 具有较宽的透光波段(0.47 ~ 18 μm),较大的非线性系数(d_{22} = 24.3 pm/V),较高的损伤阈值(550 MW/cm^2),物理化学性能稳定,是极具应用前景的中远红外非线性晶体[8]。2010 年,Yao 等[7]对 BGSe 的基本特性进行了研究。Luo、Guo 等[9-10]对 BGSe 的光学和晶体特性进行了深入分析和研究,它的二阶非线性系数是 $AgGaS_2$ 的 2 ~ 3 倍,损伤阈值是 $AgGaS_2$ 的 3.7 倍。Badikov、Yang、Boursier、Kato 等[11-14]先后给出了四种不同的 Sellmeier 方程。Zhai 等[15]和 Kato 等[16]分别于 2017 年、2018 年给出了两种不同温度下的 Sellmeier 方程。Kato 等使用了波长范围更广的激光测试光源(大于 10μm)和更为完善的实验装置,因此,Sellmeier 方程的准确度更大,基本明确了该晶体的 Sellmeier 方程。Yao、Zhang、Boursier 等[7-8,17]给出了晶体二阶非线性矩阵的具体数值。但是这三篇文献有互相矛盾的地方,且部分数值差距较大。因此,具体数值还有待进一步测定。Yang、Kostyukova、Petrov、Boyko、Xu、Sun、He 等[3,18-24]分别用 1 064 nm 激光泵浦 BGSe 晶体进行差频或光参量振荡产生了中远红外激光。Yuan、Zhao 等[25-26]用 2.1 μm 激光泵浦 BGSe 晶体进行差频或光参量振荡产生了中远红外激光。Hu 等[27]用 2.79 μm 激光泵浦 BGSe 晶体进行差频或光参量振荡产生了中远红外激光。E 等[28]研究了太赫兹波段激光在 BGSe 晶体中的传播特性。Kostyukova 等[29]研究了 BGSe 在 1.053 μm 激光(7 ~ 10 ns)下,重复频率分别为 100 Hz、500 Hz、1 kHz 时的激光损伤阈值。Kong 等[30]对 BGSe 晶体的相位匹配角、有效非线性系数进行了计算,并给出了晶体在1 064 nm泵浦条件下,输出闲频光在 2 ~ 12 μm范围内的最佳相位匹配角。

KTA(90°, 0°,type-Ⅱ-A)在 1 064 nm 激光泵浦下输出 3.5 μm 激光具有非线性系数大、无走离角、光束质量高等诸多优点。BGSe 是一种新型中红外非线性晶体,其可在(56.3°,0°,type-Ⅰ)条件下输出 3.5 μm 激光。为对比两种晶体输出激光的特点,从泵浦阈值、温度调谐范围、输出线宽三个方面对这两种晶体输出的 3.5 μm 激光进行对比。

1　实验装置

实验装置如图 1 所示,泵浦源为 SL800 Series Pulsed Nd∶YAG 激光器,脉宽为 13 ns,光斑直径为 8 mm,重频 1 Hz。激光器后放置一个小孔用于调光,然后通过一个望远镜系统将光斑直径压缩至 4 mm,以提高泵浦光的能量密度。

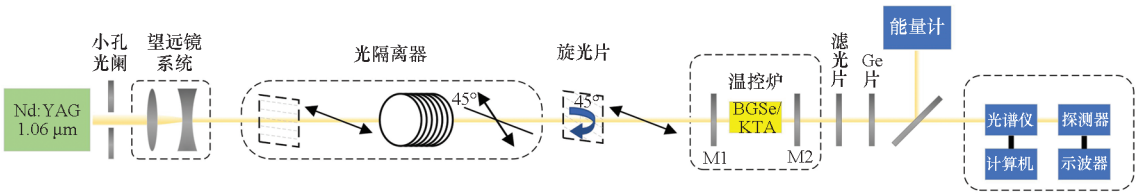


图 1　实验装置

Fig. 1　Experiment setup

由于 OPO 输出镜对泵浦光高反，为防止反射的泵浦光返回 YAG 激光器与 YAG 腔内的镜片形成谐振腔损坏 YAG 腔内的元件，因此需在望远镜系统后放置一个偏振片和一个磁旋光器组成光隔离器。由于 YAG 激光器输出的泵浦光偏振方向为水平方向，因此偏振片的偏振方向也调为水平方向，通过光隔离器后的泵浦光偏振方向由水平方向右旋了 45°。BGSe 晶体的尺寸为 6 mm × 8 mm × 15 mm 的长方体，切割角为(56.3°，0°)，KTA 晶体的尺寸为一个 10 mm × 10 mm × 20 mm 的长方体，切割角为(90°，0°)，泵浦光为 e_2 光时满足相位匹配，而 e_2 的偏振方向垂直于 *XOZ* 面，因此偏振方向需沿 *Y* 轴方向。由于泵浦光的偏振方向右旋了 45°，为了使晶体能够水平放置在温控炉上，提高设备的稳定性，需利用一个 45°相位延迟片将偏振方向再左旋 45°，使得偏振方向在水平方向。

OPO 输入镜 M1 在 1 064 nm 处高透(透过率 > 95%)，在 1.4 ~ 1.6 μm 处高反(反射率 > 99%)；OPO 输出镜 M2 在 1 064 nm 处高反(反射率 > 99%)，在 1.4 ~ 1.6 μm 处的反射率为 90%，在 3.4 ~ 4.3 μm 处高透(透过率 > 95%)。BGSe 和 KTA 晶体均进行了抛光处理，并在泵浦光、信号光和闲频光处镀了增透膜。晶体放置在温控炉(HCP TC038 - PC)中，温控炉的最大可调温度为 200 ℃，调整精度为 0.1 ℃。

OPO 输出镜后端放置了 1 064 nm 滤光片和 Ge 片，Ge 片进一步滤除 1 064 nm 激光，对 3 ~ 5 μm激光的透过率约为 80%。

在 Ge 片后可放置能量计(Thorlabs ES120C)进行 3.5 μm 激光的能量测量，也可用光栅光谱仪、计算机、中红外探测器、示波器组合测量激光的输出波长。光栅光谱仪型号为 Omni - 300λ(北京卓立汉光)，其中闪耀光栅中心波长为 3 000 nm，光栅刻线为 300 g/mm，由计算机控制光栅转动使其透射波长在 2 000 ~ 6 000 nm 范围内连续可调，调整精度为 1 nm。光栅光谱仪后端用 PVI - 2TE - 4 探测器(Vigo 公司)对输出的中红外激光进行检测，随后使用 DSOX3054T 型示波器对探测器输出的信号幅度进行测量，示波器上的读数与光栅光谱仪所设置波长一一对应。

2　结果和讨论

2.1　振荡阈值和转换效率

在不同的泵浦能量下，BGSe-OPO 和 KTA-OPO 所输出的中红外能量如图 2 所示。

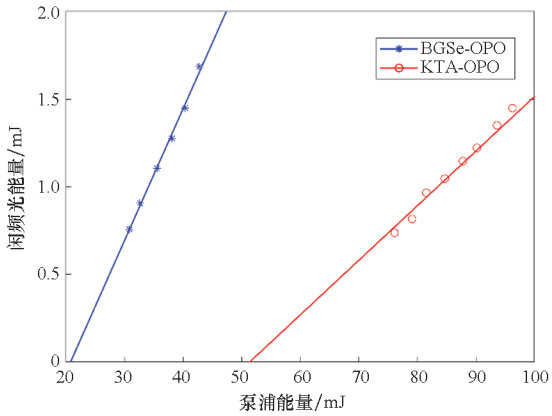


图 2　闲频光能量与泵浦能量的关系

Fig. 2　Idler energy at different pump energy

图 2 中，“ * ”和“ o”分别是 BGSe-OPO 和 KTA-OPO 的实测值，直线为拟合数据。根据实验数据拟合可知，BGSe 的能量阈值约为 20.6 mJ，KTA 的能量阈值约为 52.6 mJ。且 BGSe 的斜率要高于 KTA。由此可知，尽管 BGSe 晶体的长度(15 mm)短于 KTA 晶体(20 mm)，但是其阈值仍小于 KTA，约为 KTA 的 0.391 6，其斜率高于 KTA 晶体。

下面给出 BGSe 和 KTA 在理论上的泵浦振荡阈值。由于 OPO 腔为泵浦光往返通过非线性晶体的单谐振腔(double-pass pumped singly-resonant OPO，DSRO)，其泵浦振荡阈值[31]为：

$$J_0 = \frac{2.25}{\kappa g_s \mathcal{L}} \frac{\tau}{(1+\gamma)^2}\left[\frac{L}{2c\tau}\ln\left(\frac{P_n}{P_0}\right) + \ln\frac{1}{\sqrt{R}} + 2\alpha l + \ln 4\right]^2 \tag{1}$$

其中：$\mathcal{L}$ 为有效增益长度，约等于晶体长度 l；γ 为反射泵浦光与入射泵浦光的比值，由于在阈值附

近泵浦光损耗较少，此处可取为 1；τ 为脉冲宽度，取 13 ns；l 为非线性晶体长度，BGSe 晶体为 15 mm，KTA 晶体为 20 mm；L 为 OPO 腔的光学长度，受温控炉的长度的影响，OPO 物理腔长为 90 mm；一般取 $\ln(P_n/P_0)$ 为 33；α 为晶体对信号光的吸收系数，在晶体的透光波段一般可以忽略。

$$\kappa = \frac{2\omega_s\omega_i d_{\text{eff}}^2}{n_s n_i n_p \varepsilon_0 c^3} \tag{2}$$

式中：ω_s、ω_i 分别为信号光和闲频光的圆频率；d_{eff} 为晶体的有效非线性系数，需通过晶体的有效非线性系数矩阵计算求得，BGSe 的 $d_{\text{eff}} = d_{16} \cdot \cos^2\theta + d_{23} \cdot \sin^2\theta = 15.72$ pm/V[3, 7-8, 17]，KTA 的 d_{eff} 为 4.47 pm/V[32]；n_s、n_i、n_p 分别为三波的折射率；ε_0 为真空介电常数；c 为真空中的光速。

信号光耦合系数为：

$$g_s = \frac{w_p^2}{w_p^2 + w_s^2} \tag{3}$$

式中，w_p、w_s 分别为泵浦光和信号光的腰斑半径，w_s 需满足：

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

经计算，BGSe OPO 的泵浦振荡阈值约在 18.32 mJ 之间，KTA-OPO 的泵浦振荡阈值为 46.11 mJ。理论值比实测值略小一些，原因可能是 OPO 腔镜未能完全平行，或者晶体对参量光有少许吸收等原因。不过理论上的 BGSe 泵浦阈值约为 KTA 泵浦阈值的 0.397 3 倍，与实测的 0.389 7 倍吻合得较好。

2.2　温度调谐范围

当温度从 30 ℃ 升高到 180 ℃ 时，BGSe (56.3°, 0°, type-Ⅰ) 和 KTA (90°, 0°, type-Ⅱ-A) 所输出的闲频光中心波长如图 3 所示。

由图 3 可知，当 BGSe 晶体的温度从 30 ℃ 升高到 140 ℃ 时，输出波长从 3 637 nm 升高到 3 989 nm，调谐范围为 352 nm，输出波长与温度的变化率，$\Delta\lambda_2/\Delta T = 3.20$ nm/℃ 实验值高于理论值 2.49 nm/℃。[33] 而当 KTA 的温度从 30 ℃ 升高到 140 ℃ 时，输出波长从 3 463 nm 升高到 3 474 nm，调谐范围为 11 nm，输出波长与温度的变化率，$\Delta\lambda_2/\Delta T = 0.073$ nm/℃，实验值略低于理论值 0.077 nm/℃[34]。可见，KTA (90°, 0°, type-Ⅱ-A) 在输出 3.5 μm 激光时的温度调谐范围远小于 BGSe (56.3°, 0°, type-Ⅰ) 晶体。相比 KTA 而言，BGSe 的 $\Delta\lambda_2/\Delta T$ 理论值和实测值之间存在较大

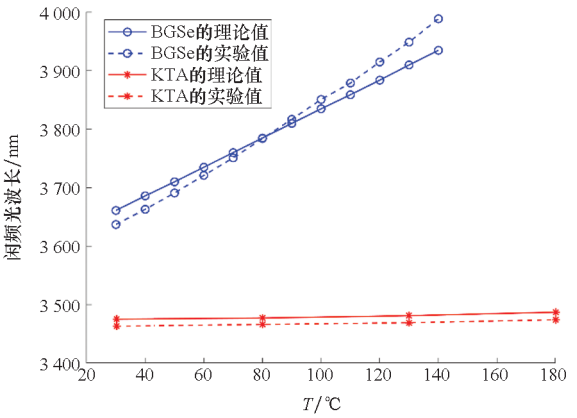
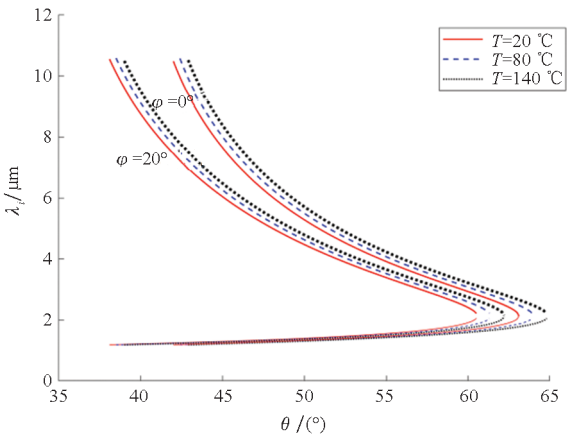


图 3　BGSe-OPO 和 KTA-OPO 的温度调谐范围

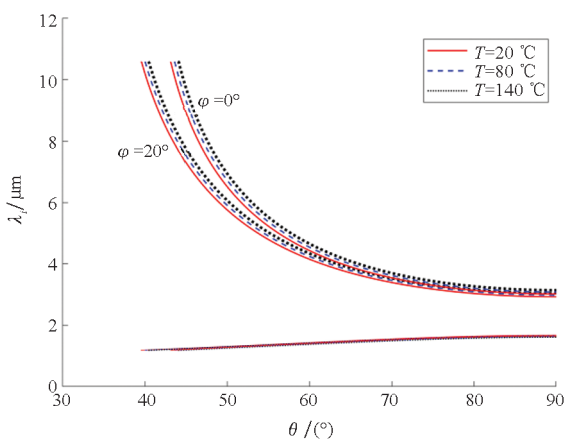
Fig. 3　Idler wavelength of BGSe-OPO and KTA-OPO at different temperatures

的差距，造成这样的误差可能有以下几点原因：①BGSe 晶体是新晶体，其随温度变化的 Sellmeier 方程尚未经过试验验证，可能存在一定的误差。②BGSe 晶体的生长技术尚不成熟，各种途径生长出的晶体质量不同，光学性能存在一定的差异。

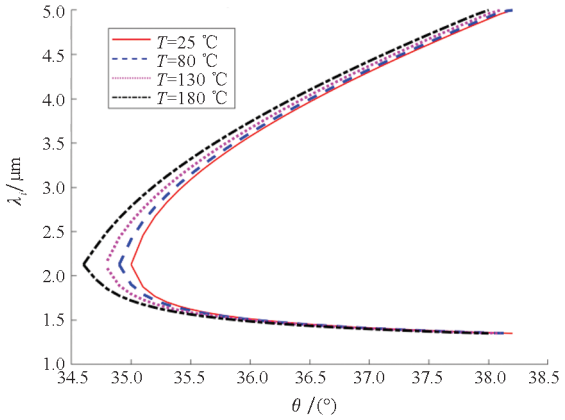
下面给出 BGSe 和 KTA 晶体在不同切割角不同温度下的相位匹配曲线，具体如图 4 所示。



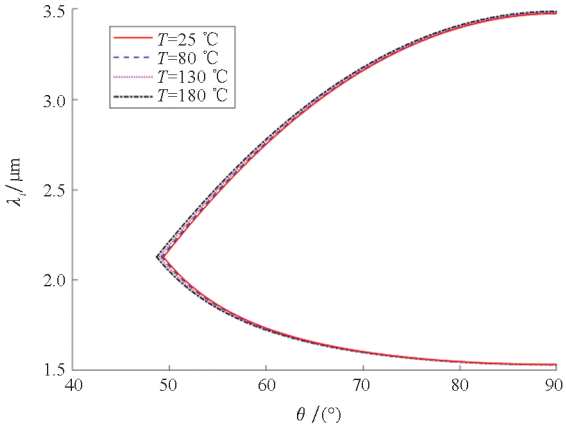
(a) BGSe type-Ⅰ



(b) BGSe type-Ⅱ-B



（c）KTA type-Ⅰ



（d）KTA type-Ⅱ-A

图 4　BGSe 和 KTA 的温度调谐曲线

Fig. 4　Temperature tuning curves of BGSe and KTA

图 4(a)和图 4(b)分别为 BGSe 晶体在 type-Ⅰ、type-Ⅱ-B 条件下的温度调谐曲线。图 4(c)和图 4(d)分别为 KTA 晶体在 type-Ⅰ、type-Ⅱ-A 条件下的温度调谐曲线。从图中可以看出，BGSe 晶体在中远红外波段均有较大的温度调谐范围，BGSe-type-Ⅰ相位匹配中，当 $\theta=45°$、$\varphi=0°$时，λ_i(20 ℃)=7 468 nm，λ_i(140 ℃)=8 389 nm，$\Delta\lambda_i/\Delta T$=6.175 nm/℃，BGSe-type-Ⅱ-B 相位匹配中，当 $\theta=45°$、$\varphi=0°$时，λ_i(20 ℃)=8 922 nm，λ_i(140 ℃)=9 714 nm，$\Delta\lambda_i/\Delta T$=6.60 nm/℃。[33]

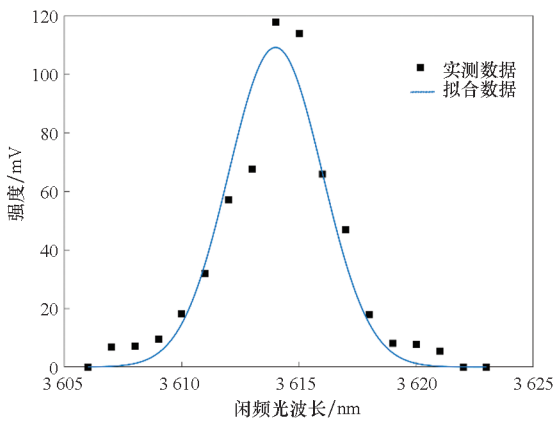
相比而言，KTA type-Ⅰ相位匹配中，$\theta=35.5°$时，λ_i(25 ℃)=3 088 nm，$\Delta\lambda_i/\Delta T$=1.496 8 nm/℃；$\theta=37.5°$时，λ_i(25 ℃)=4 614 nm，λ_i(180 ℃)=4 727 nm，$\Delta\lambda_i/\Delta T$=0.729 0 nm/℃；KTA type-Ⅱ-A 相位匹配中 $\theta=90°$时，λ_i(25 ℃)=3 475 nm，λ_i(180 ℃)=3 487 nm，$\Delta\lambda_i/\Delta T$=0.077 4 nm/℃。[34]

因此，BGSe 晶体的温度调谐范围普遍大于 KTA 晶体。

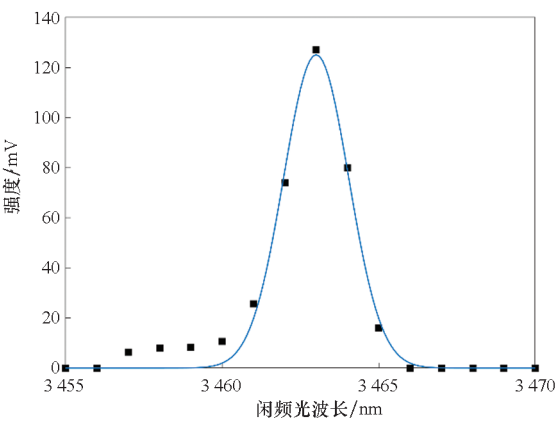
2.3　输出线宽

根据实验数据，BGSe(56.3°,0°,type-Ⅰ)和 KTA(90°,0°,type-Ⅱ-A)的输出光谱如图 5 所示。图 5(a)为 BGSe-OPO 在中红外输出能量为 0.513 mJ时的输出光谱，拟合得到的高斯函数为 $y=109.3\times\exp\left(-\frac{x-3\,614}{2.828}\right)^2$，其中输出线宽为 $2\sqrt{\ln 2}\times 2.828=4.71$ nm。图 5(b)为 KTA-OPO 在输出能量为 0.575 mJ 时的输出光谱，拟合得到的高斯函数为 $y=125.1\times\exp\left(-\frac{x-3\,463}{1.472}\right)^2$，其中输出线宽为 $2\sqrt{\ln 2}\times 1.472=2.45$ nm。当闲频光能量在一个小区间内(0.4 ~ 0.6 mJ)变化时，输出线宽也随之略有变动，但没有观察到对应的单调递增或者递减的现象。

现给出 BGSe-OPO 和 KTA-OPO 在输出能量分别为 0.4 mJ、0.5 mJ 和 0.6 mJ 附近时测得的输出线宽，具体如表 1 所示。由表 1 可知，当闲频光能量为 0.4 ~ 0.6 mJ 时，BGSe-OPO 的输出线宽在 4.12 ~ 4.71 nm 之间，KTA-OPO 的输出线宽在 2.45 ~ 2.64 nm 之间。



（a）BGSe-OPO



（b）KTA-OPO

图 5　BGSe-OPO 和 KTA-OPO 的输出光谱

Fig. 5　Output spectra of BGSe-OPO and KTA-OPO

表 1　BGSe-OPO 和 KTA-OPO 的输出线宽

Tab. 1　Linewidth of BGSe-OPO and KTA-OPO

BGSe-OPO 输出能量/mJ	BGSe-OPO 输出线宽/nm	KTA-OPO 输出能量/mJ	KTA-OPO 输出线宽/nm
0.403	4.12	0.413	2.64
0.513	4.71	0.575	2.45
0.598	4.58	0.642	2.64

下面对 BGSe 和 KTA 晶体理论上的允许线宽进行仿真计算。

令相位失配量 Δk 为：

$$\Delta k=\begin{cases}2\pi\left(\dfrac{n_{e_2}^{\omega_3}}{\lambda_3}-\dfrac{n_{e_1}^{\omega_1}}{\lambda_1}-\dfrac{n_{e_1}^{\omega_2}}{\lambda_2}\right) & \text{type-Ⅰ}\\ 2\pi\left(\dfrac{n_{e_2}^{\omega_3}}{\lambda_3}-\dfrac{n_{e_2}^{\omega_1}}{\lambda_1}-\dfrac{n_{e_1}^{\omega_2}}{\lambda_2}\right) & \text{type-Ⅱ-A}\\ 2\pi\left(\dfrac{n_{e_2}^{\omega_3}}{\lambda_3}-\dfrac{n_{e_1}^{\omega_1}}{\lambda_1}-\dfrac{n_{e_2}^{\omega_2}}{\lambda_2}\right) & \text{type-Ⅱ-B}\end{cases} \tag{5}$$

则三波互作用的效率可表示为：

$$\eta=\eta_0\left[\frac{\sin\left(\dfrac{\Delta k}{2}L\right)}{\dfrac{\Delta k}{2}L}\right]^2 \tag{6}$$

η_0 为理想匹配时的效率，L 为晶体中光波互作用的长度。当 $\Delta k=0$ 时，相位完全匹配，转换效率达到最大值。当 $\Delta k=\left|\dfrac{\pi}{L}\right|$ 时，$\eta=\eta_0\dfrac{4}{\pi^2}=0.406\eta_0$。此时转换效率下降为最大值的 40% 左右，不过仍可认为此时转换有效。

以 BGSe(56.3°,0°,L=15 mm)、泵浦光 λ_3=1 064 nm、type-Ⅰ为例，当 $\Delta k=0$ 时，λ_2=3 637 nm；当 $\Delta k=\dfrac{\pi}{L}$ 时，λ_2=3 630 nm；当 $\Delta k=-\dfrac{\pi}{L}$ 时，λ_2=3 643 nm。因此，BGSe(56.3°,0°,L=15 mm)在泵浦光为 1 064 nm、type-Ⅰ相位匹配条件下理论上的允许线宽为 3 643 − 3 630 = 13 nm。

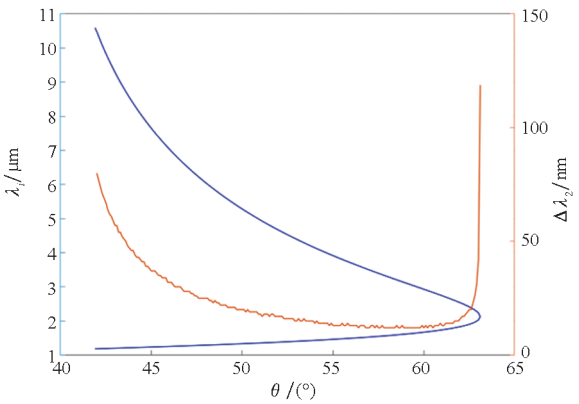
以 KTA(90°,0°,L=20 mm)、泵浦光 λ_3=1 064 nm、type-Ⅱ-A 为例，当 $\Delta k=0$ 时，λ_2=3 436 nm；当 $\Delta k=\dfrac{\pi}{L}$ 时，λ_2=3 434 nm；当 $\Delta k=-\dfrac{\pi}{L}$ 时，λ_2=3 439 nm。因此，KTA(90°,0°,L=20 mm)在泵浦光为 1 064 nm、type-Ⅱ-A 相位匹配条件下理论上的允许线宽为 3 439 − 3 434 = 5 nm。

经过对比可知，BGSe(56.3°,0°,L=15mm，type-Ⅰ)的允许线宽理论值为 13 nm，实测输出线宽为 4.71 nm；KTA(90°,0°,L=20 mm，type-Ⅱ-A)的允许线宽理论值为 5 nm，实测输出线宽为 2.45 nm。实测输出线宽均小于理论上的允许线宽，这可能是因为允许线宽的计算并没有考虑晶体对参量光的吸收等，因此实验中的损耗将大于理论计算的损耗，特别是当相位失配量 Δk 增大时，理论上可以起振的参量光由于损耗过大将不能振荡输出，因此实测的输出线宽将小于理论上的允许线宽。

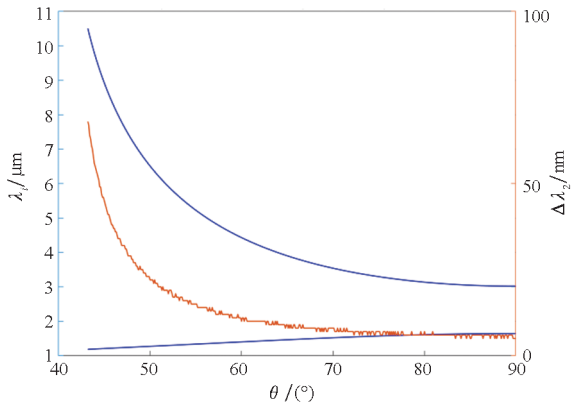
下面给出 BGSe 和 KTA 在不同晶体切角情况下的允许线宽理论值。

图 6(a)和图 6(b)所示分别为 BGSe 晶体在 type-Ⅰ、type-Ⅱ-B 条件下的相位匹配曲线及闲频光的允许线宽。在 BGSe type-Ⅰ相位匹配条件下，随着切割角 θ 的增大，闲频光波长单调递减，同时闲频光的允许线宽也从 80 nm 下降到12 nm，在简并点附近升高到 119 nm。在 BGSe type-Ⅱ-B 相位匹配条件下，随着切割角 θ 的增大，闲频光波长单调递减，同时闲频光的允许线宽也从 68 nm 下降到5 nm左右。

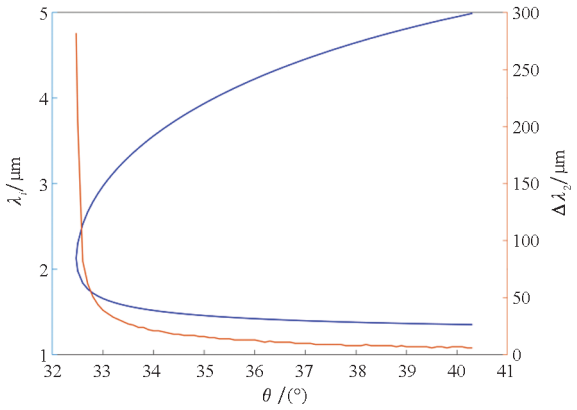
图 6(c)和图 6(d)分别为 KTA 晶体在 type-Ⅰ、type-Ⅱ-A 条件下的相位匹配曲线及闲频光的允许线宽。在 KTA type-Ⅰ相位匹配条件下，随着切割角 θ 的增大，闲频光波长单调递增，闲频光的允许线宽单调递减，从 281 nm 迅速下降到 20 nm 左右，然后缓慢下降到 6 nm。在 KTA type-Ⅱ-A 相位匹配条件下，随着切割角 θ 的增大，闲频光波长单调递增，闲频光的允许线宽比较稳定，除了简并点外(简并点的线宽为 12 nm 左右)，其他相位匹配点的线宽在 5.2 ~ 6.3 nm 之间，呈现先上升后下降且有台阶式的上下起伏。在仿真过程中，需要较高的波长和角度采样率才能获得较为精确且平滑的允许线宽曲线。但过高的采样率会带来较长的程序运行时间甚至出现运行故障。在



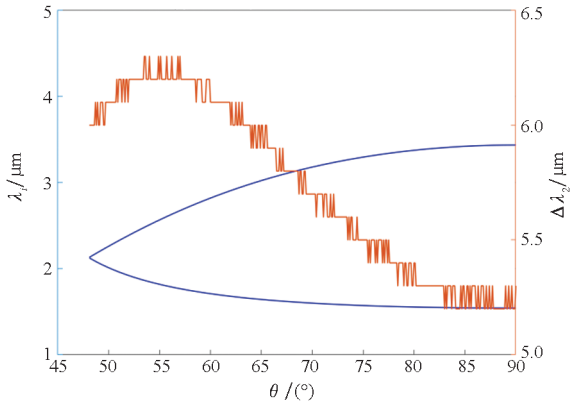
(a) BGSe type-Ⅰ



(b) BGSe type-Ⅱ-B



(c) KTA type-Ⅰ



(d) KTA type-Ⅱ-B

图 6　相位匹配曲线及闲频光线宽

Fig. 6　Phase matching curves and idler linewidth

图 6(d)中,切割角采样率为 0.1°,波长采样率为 0.1 nm,即线宽误差在 0.1 nm 以下。该误差远小于本实验中误差的运行范围,但由于图 6(d)中允许线宽的数值比较接近(5.2 ~ 6.3 nm),最大值与最小值之间仅相差 1.1 nm,因此仿真图像不如图 6(a)、图 6(b)、图 6(c)那样平滑,且出现了台阶式跳跃的情况。此外,由于 KTA 晶体生长技术比较成熟且在输出 3.5 μm 激光时没有走离角,因此光束质量较好。而 BGSe 晶体是新晶体,受生长工艺的影响,光学均匀性一般,因此在输出的光束质量方面低于 KTA 晶体。

3　结论

BGSe(56.3°,0°,type-Ⅰ)和 KTA(90°, 0°, type-Ⅱ-A)均可在 1.06 μm 激光的泵浦下输出 3.5 μm 激光。在泵浦光波长为 1 064 nm,脉宽为 13 ns、光斑直径为 4 mm、OPO 腔长为 90 mm 条件下,当 BGSe 晶体长 15 mm,KTA 晶体长 20 mm 时,实验测得 BGSe-OPO 和 KTA-OPO 的泵浦振荡阈值分别为 20.6 mJ(理论值为 18.32 mJ)和 52.6 mJ(理论值为 46.11 mJ)。实测 BGSe-OPO 输出波长与温度的变化率 $\Delta\lambda_2/\Delta T = 3.20$ nm/℃(理论值为 2.49 nm/℃),实测 KTA-OPO 输出波长与温度的变化率 $\Delta\lambda_2/\Delta T = 0.073$ nm/℃(理论值为 0.077 nm/℃)。实测 BGSe-OPO 的输出线宽约为 4.71 nm,KTA-OPO 的输出线宽约为 2.45 nm。由理论和实验可知,即使 KTA 晶体长度大于 BGSe 晶体,且处于非临界相位匹配状态,BGSe 在泵浦能量阈值、温度调谐能力等方面仍优于 KTA 晶体,因此 BGSe 是一种具有广泛应用前景的中红外非线性晶体。

参考文献(References)

[1] 刘尊洋, 卞进田, 邵立, 等. 中红外激光技术研究进展[J]. 激光与红外, 2013, 43(8): 853 - 858.
LIU Z Y, BIAN J T, SHAO L, et al. Progress of mid-infrared laser technology [J]. Laser & Infrared, 2013, 43(8): 853 - 858. (in Chinese)

[2] 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): 7 - 18.
JIA N, WANG S P, TAO X T. Research progress of mid-and far-infrared nonlinear optical crystals [J]. Acta Physica Sinica, 2018, 67(24): 7 - 18. (in Chinese)

[3] KOSTYUKOVA N Y, BOYKO A A, BADIKOV V, et al. Widely tunable in the mid-IR $BaGa_4Se_7$ optical parametric oscillator pumped at 1064 nm [J]. Optics Letters, 2016, 41(15): 3667 - 3670.

[4] DONG C, XU H Y, WANG X M, et al. High energy picosecond mid-infrared optical parametric amplifier based on $KTiOAsO_4$ crystal[J]. Infrared Physics & Technology, 2019, 97: 440 - 443.

[5] ROMANOVSKII O A, SADOVNIKOV S A, KHARCHENKO O V, et al. Development of near/mid IR differential absorption OPO lidar system for sensing of atmospheric gases[J]. Optics & Laser Technology, 2019, 116: 43 - 47.

[6] LU F M, XIA P Y, MATSUMOTO Y, et al. Generation of sub-two-cycle CEP-stable optical pulses at 3.5 μm from a KTA-based optical parametric amplifier with multiple-plate compression[J]. Optics Letters, 2018, 43(11): 2720 - 2723.

[7] YAO J Y, MEI D J, BAI L, et al. $BaGa_4Se_7$: a new congruent-melting IR nonlinear optical material[J]. Inorganic Chemistry, 2010, 49(20): 9212 - 9216.

[8] ZHANG X, YAO J Y, YIN W L, et al. Determination of the nonlinear optical coefficients of the BaGa(4)Se(7) crystal[J]. Optics Express, 2015, 23(1): 552 – 558.

[9] LUO X Y, LI Z, GUO Y W, et al. Recent progress on new infrared nonlinear optical materials with application prospect[J]. Journal of Solid State Chemistry, 2019, 270: 674 – 687.

[10] GUO Y W, LI Z, LEI Z T, et al. Synthesis, growth of crack-free large-size $BaGa_4Se_7$ crystal, and annealing studies[J]. Crystal Growth & Design, 2019, 19(2): 1282 – 1287.

[11] BADIKOV V, BADIKOV D, SHEVYRDYAEVA G, et al. Phase-matching properties of $BaGa_4S_7$ and $BaGa_4Se_7$: wide-bandgap nonlinear crystals for the mid-infrared [C]// Proceedings of Conference on Advances in Optical Materials, 2011.

[12] YANG F, YAO J Y, XU H Y, et al. Midinfrared optical parametric amplifier with 6.4 ~ 11 μm range based on $BaGa_4S_7$ [J]. IEEE Photonics Technology Letters, 2015, 27(10): 1100 – 1103.

[13] BOURSIER E, SEGONDS P, MÉNAERT B, et al. Phase-matching directions and refined Sellmeier equations of the monoclinic acentric crystal $BaGa_4Se_7$ [J]. Optics Letters, 2016, 41(12): 2731 – 2734.

[14] KATO K, MIYATA K, PETROV V. Phase-matching properties of $BaGa_4Se_7$ for SHG and SFG in the 0.901 ~ 10.591 μm range[J]. Applied Optics, 2017, 56(11): 2978 – 2981.

[15] ZHAI N X, LI C, XU B, et al. Temperature-dependent Sellmeier equations of IR nonlinear optical crystal $BaGa_4Se_7$[J]. Crystals, 2017, 7(3): 62.

[16] KATO K, MIYATA K, BADIKOV V V, et al. Thermo-optic dispersion formula for $BaGa_4Se_7$[J]. Applied Optics, 2018, 57(11): 2935 – 2938.

[17] BOURSIER E, SEGONDS P, DEBRAY J, et al. Angle noncritical phase-matched second-harmonic generation in the monoclinic crystal $BaGa_4Se_7$ [J]. Optics Letters, 2015, 40(20): 4591 – 4594.

[18] YANG F, YAO J Y, XU H Y, et al. High efficiency and high peak power picosecond mid-infrared optical parametric amplifier based on BaGa4Se7 crystal[J]. Optics Letters, 2013, 38(19): 3903 – 3905.

[19] PETROV V, BOYKO A A, KOSTYUKOVA N Y, et al. Frequency down-conversion of 1 μm laser radiation to the mid-IR using non-oxide nonlinear crystals in a cascaded intracavity configuration[C]//Proceedings of SPIE LASE, 2017.

[20] BOYKO A A, KOSTYUKOVA N Y, BADIKOV V, et al. Intracavity difference-frequency mixing of OPO signal and idler pulses in $BaGa_4Se_7$[C]//Proceedings of Conference on Lasers and Electro-Optics, 2017.

[21] BOYKO A A, KOSTYUKOVA N Y, BADIKOV V, et al. Intracavity difference-frequency mixing of optical parametric oscillator signal and idler pulses in $BaGa_4Se_7$[J]. Applied Optics, 2017, 56(10): 2783 – 2786.

[22] XU W T, WANG Y Y, XU D G, et al. High-pulse-energy mid-infrared optical parametric oscillator based on $BaGa_4Se_7$ crystal pumped at 1.064 μm[J]. Applied Physics B, 2017, 123: 80.

[23] SUN M G, CAO Z S, YAO J Y, et al. Continuous-wave difference-frequency generation based on $BaGa_4Se_7$ crystal[J]. Optics Express, 2019, 27(4): 4014 – 4023.

[24] HE Y X, GUO Y W, XU D G, et al. High energy and tunable mid-infrared source based on $BaGa_4Se_7$ crystal by single-pass difference-frequency generation [J]. Optics Express, 2019, 27(6): 9241 – 9249.

[25] YUAN J H, LI C, YAO B Q, et al. High power, tunable mid-infrared $BaGa_4Se_7$ optical parametric oscillator pumped by a 2.1 μm Ho: YAG laser[J]. Optics Express, 2016, 24(6): 6083 – 6087.

[26] ZHAO B R, CHEN Y, YAO B Q, et al. High-efficiency, tunable 8 ~ 9 μm $BaGa_4Se_7$ optical parametric oscillator pumped at 2.1 μm[J]. Optical Materials Express, 2018, 8(11): 3332 – 3337.

[27] HU S W, WANG L, GUO Y W, et al. High-conversion-efficiency tunable mid-infrared $BaGa_4Se_7$ optical parametric oscillator pumped by a 2.79-μm laser[J]. Optics Letters, 2019, 44(9): 2201 – 2203.

[28] E Y W, YAO J Y, WANG L. Propagation of terahertz waves in a monoclinic crystal $BaGa_4Se_7$ [J]. Scientific Reports, 2018, 8: 16229.

[29] KOSTYUKOVA N Y, BOYKO A A, ERUSHIN E Y, et al. Laser-induced damage threshold of $BaGa_4Se_7$ and $BaGa_2GeSe_6$ nonlinear crystals at 1.053 μm[J]. Journal of the Optical Society of America B, 2019, 36(8): 2260 – 2265.

[30] KONG H, BIAN J T, SUN X Q. Calculation of phase-matching angles and effective nonlinear coefficients of $BaGa_4Se_7$ crystals[J]. Optik, 2019, 193: 163004.

[31] BROSNAN S, BYER R. Optical parametric oscillator threshold and linewidth studies[J]. IEEE Journal of Quantum Electronics, 1979, 15(6): 415 – 431.

[32] CHUANG T, KASINSKI J, VERDÚN H R. A KTA optical parametric oscillator pumped by a Q-switched, injection-seeded Nd: YAG laser[C]//Proceedings of Advanced Solid State Lasers, 1996.

[33] KONG H, BIAN J T, YAO J Y, et al. Temperature tuning of $BaGa_4Se_7$ optical parametric oscillator[J]. Chinese Optics Letters, 2021, 19(2): 021901.

[34] 卞进田, 孔辉, 徐海萍, 等. 3.5 μm $KTiOAsO_4$ 光参量振荡器温度调谐特性[J]. 中国激光, 2021, 48(4): 249 – 255.
BIAN J T, KONG H, XU H P, et al. Temperature tuning properties of 3.5 μm $KTiOAsO_4$ optical parametric oscillator[J]. Chinese Journal of Lasers, 2021, 48(4): 249 – 255. (in Chinese)