

非线性光学晶体材料 GaSe 激光参数的模拟计算

程旭东, 吴海信, 倪友保,
王振友, 黄昌保, 肖瑞春

(中国科学院安徽光学精密机械研究所, 安徽 合肥 230031)

摘 要: 对红外非线性光学晶体 GaSe 的非线性性质进行了研究。计算模拟了 $1.064\ \mu\text{m}$ 、 $2.05\ \mu\text{m}$ 、 $2.79\ \mu\text{m}$ 泵浦情况下 I、II 类相位匹配情况下 GaSe 晶体的相位匹配角、有效非线性系数、走离角、允许角和泵浦波长的关系。同时计算了晶体激光光参量振荡和倍频波长和相位匹配角、有效非线性系数、走离角、允许角的关系。对计算结果进行了分析比较。所得结果对于 GaSe 晶体用于特定波长激光器设计新波段提供了理论依据。

关键词: 非线性光学; 相位匹配; GaSe; 允许角; 走离角

中图分类号: O437.1 **文献标识码:** A **文章编号:** 1007-5461(2015)01-0090-06

Numerical calculation of laser parameters of infrared nonlinear optical crystal material GaSe

CHENG Xudong, WU Haixin, NI Youbao,

WANG Zhenyou, HUANG Changbao, XIAO Ruichun

(Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Hefei 230031, China)

Abstract: Some laser experimental parameters in infrared nonlinear optical crystal GaSe were calculated, including the illustration of phase matching angle, the varying of effective nonlinear coefficient, allowing angle, walk-off angle and Sellmeier curve for type I and II phase-matching. All the results were calculated in the optical parametric oscillation (OPO) and second harmonic generation (SHG). Also, the results were analysed so that they can provide useful theoretical references for optical design of infrared tunable and new wavelength laser devices.

Key words: nonlinear optics; phase matching; GaSe; allowing angle; walk-off angle

1 引 言

$3\sim 5\ \mu\text{m}$ 、 $8\sim 15\ \mu\text{m}$ 波段中远红外波段激光在激光雷达、环境检测、远距离化学传感、毒品和易爆品检测等军用民需领域有着广泛的应用。目前,常利用红外非线性光学晶体对激光进行频率变换,即利用固体激光直接或间接泵浦红外非线性晶体的光参量振荡(OPO)、光参量放大(OPA)、差频(DFG),或者倍频(SHG)等技术来实现,采用的红外非线性晶体通常为 ZnGeP_2 、 AgGaS_2 、 AgGaSe_2 、GaSe、CdSe 等等, GaSe 尽管 Mohs 硬度低,机械性能较差,但它具有自己独特的优点,如宽广的透光波段($0.6\sim 20\ \mu\text{m}$); 较低的吸收系数 α ($\alpha \leq 0.1\ \text{cm}^{-1}$, $1.06\ \mu\text{m}$); 较大的双折射率(0.35, 容易实现相位匹配,同时能够使用成熟的 $1.06\ \mu\text{m}$ 激光泵浦); 大的非线性极化系数 d_{22} ($\sim 54\ \text{pm/V}$, 约为 AgGaS_2 晶体 6 倍); 较高的激光损伤阈

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(51202250)、中科院方向性项目(13J131211)

作者简介: 程旭东 (1988-), 安徽人, 研究生, 从事红外非线性光学晶体材料研究。 **E-mail:** cheng_xu_dong@163.com

导师简介: 吴海信 (1967-), 博士, 研究员, 从事红外非线性光学晶体材料研究。 **E-mail:** hxwu@ircrystal.com

收稿日期: 2014-04-01; **修改日期:** 2014-05-16

值(接近甚至高于 ZnGeP_2); 垂直光轴方向较好的热导率 ($0.162 \text{ W/cm}\cdot\text{K}$) 等等, 使得 GaSe 晶体成为目前中长波段红外光源的最佳材料之一^[1~3]。

国内外, 对于 GaSe 晶体通过 DFG 或 SHG 产生中远红外激光输出的已有不少报道^[4]。对于通过 OPO, OPG 产生中红外输出以及在此过程中的允许参量, 已成为当前的研究热点^[5~9]。本文基于 GaSe 晶体色散方程、能量和动量守恒定律, 对不同波段泵浦 GaSe-OPO, SHG 等情况下, I、II 类相位匹配有效非线性系数、匹配角、走离角、允许角等参量与波长的关系做了相关的数值模拟。计算所得结果可为 GaSe 相关激光实验及应用提供一定参考和指导。

2 GaSe 晶体模拟计算

2.1 相位匹配角

频率为 ω_1 、 ω_2 、 ω_3 的三个光波相互作用, 光参量振荡过程中, 在给定泵浦光作用下, 必须满足能量守恒和动量守恒, 当折射率使得波矢 k 满足动量匹配条件时, 对共线传播, 有

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

$$\frac{1}{\lambda_1} = \frac{1}{\lambda_2} + \frac{1}{\lambda_3}, \quad (2)$$

式中, n_1 , n_2 , n_3 分别为 ω_1 、 ω_2 、 ω_3 在 GaSe 晶体中的折射率, 且

$$\frac{1}{n_e^2(\theta)} = \frac{\sin^2 \theta}{n_e^2} + \frac{\cos^2 \theta}{n_o^2}, \quad (3)$$

式中 θ 为相位匹配角, n_e 为 $n_e(\theta)$ 在 $\theta = 90^\circ$ 时的值。GaSe 晶体的 Sellmeier 方程为^[3]

$$n_o^2 = 7.443 + \frac{0.4050}{\lambda^2} + \frac{0.0186}{\lambda^4} + \frac{0.0061}{\lambda^6} + \frac{3.1485\lambda^2}{\lambda^2 - 2194}, \quad (4)$$

$$n_e^2 = 5.76 + \frac{0.3879}{\lambda^2} - \frac{0.2288}{\lambda^4} + \frac{0.1223}{\lambda^6} + \frac{1.8550\lambda^2}{\lambda^2 - 1780}, \quad (5)$$

联立 (1)~(5), 可解得相位匹配角曲线, 如图 1 所示。

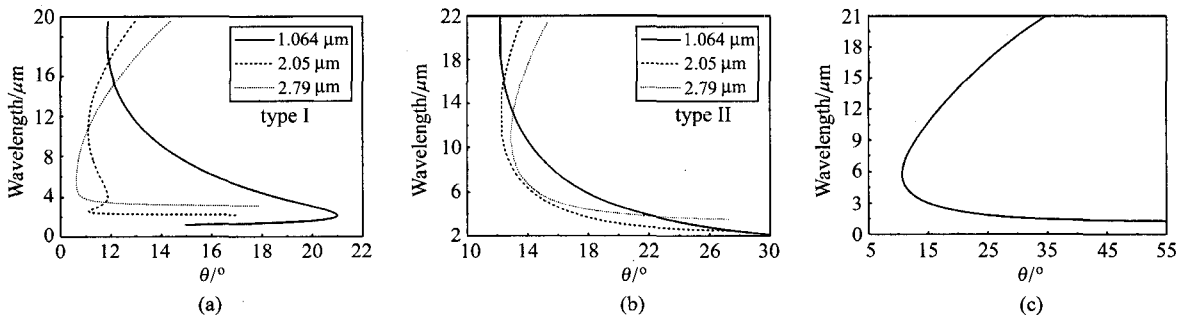


Fig.1 Angular tuning in GaSe crystal (OPO and SHG)

图 1(a) 是 $1.064 \mu\text{m}$ 、 $2.05 \mu\text{m}$ 、 $2.79 \mu\text{m}$ 泵浦的 I 类匹配的 GaSe 晶体 OPO 的角度调谐曲线; 图 1(b) 是 $1.064 \mu\text{m}$ 、 $2.05 \mu\text{m}$ 、 $2.79 \mu\text{m}$ 泵浦的 II 类匹配的 GaSe 晶体 OPO 的角度调谐曲线; 图 1(c) 中分别是 GaSe 晶体倍频的角度调谐曲线。可以看出 I 类匹配情况下, $1.064 \mu\text{m}$ 泵浦的波长调谐范围是 $2.7 \sim 20 \mu\text{m}$, 对应调谐角为 $11.9^\circ \sim 21^\circ$; $2.05 \mu\text{m}$ 泵浦的波长调谐范围是 $4.2 \sim 20 \mu\text{m}$, 对应调谐角为 $11.5^\circ \sim 14^\circ$; $2.79 \mu\text{m}$ 泵浦的波长调谐范围是 $3 \sim 20 \mu\text{m}$, 对应调谐角为 $10.8^\circ \sim 18^\circ$; II 类匹配情况下, 波长调谐范围是 $3 \sim 20 \mu\text{m}$, 对应调谐角为 $12^\circ \sim 26^\circ$, 二次谐波的基波调谐范围是 $2 \sim 20 \mu\text{m}$, 对应调谐角为 $10^\circ \sim 50^\circ$ 。这与文献报道的结果基本一致^[4]。

由计算结果可知,通过不同的激光泵浦, GaSe 晶体可以实现 $3 \sim 20 \mu\text{m}$ 较大范围的激光输出。在 $1.064 \mu\text{m}$ 、 $2.05 \mu\text{m}$ 、 $2.79 \mu\text{m}$ 泵浦情况下,输出 $3 \sim 10 \mu\text{m}$ 激光的调谐角度范围较小,这就要求在激光器设计及操作过程中有一定的技巧。

2.2 折射率

图 2 为 GaSe 晶体的色散曲线,从图中可以看出,在 $1.0 \sim 13 \mu\text{m}$ 的波长范围内, GaSe 晶体的双折射率较大,为 0.35 左右,因而理论上易于利用角度调谐来实现可调参量光输出。

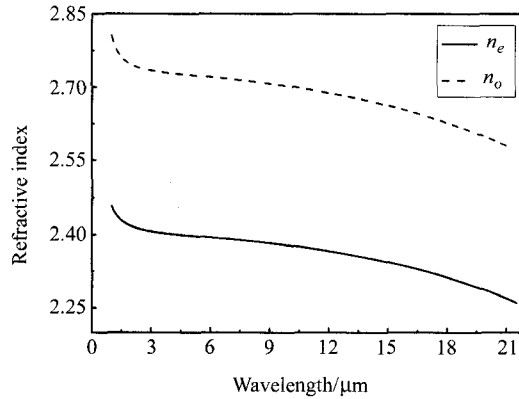


Fig.2 Sellmeier curve of GaSe crystal

2.3 有效非线性系数

I 类相位匹配时 GaSe 晶体的有效非线性系数为^[10]

$$d_{\text{eff}} = d_{22} \cos \theta \sin 3\varphi, \quad (6)$$

II 类相位匹配时 GaSe 晶体的有效非线性系数为^[10]

$$d_{\text{eff}} = d_{22} \cos 2\theta \cos 3\varphi, \quad (7)$$

其中 $d_{22} = 54 \text{ pm/V}$ 。为了优化 d_{eff} , 实验中可以通过旋转晶体, 使方位角满足 $|\sin 3\varphi| = 1$ 或 $|\cos 3\varphi| = 1$ 。根据 (6)、(7) 式, 可求出不同情况下的有效非线性系数。

图 3 显示了光参量振荡和二次谐波时, GaSe 晶体的有效非线性系数随着相位匹配角的变化关系。(a)、(b)、(c) 分别是 I 类相位匹配、II 类相位匹配和二次谐波情况。从图中可以看出, 在 I 类相位匹配情况下, 输出 $10 \sim 25 \mu\text{m}$ 激光的有效非线性系数变化比较小, 而输出其他波段时, 有效非线性系数会发生明显下降。在 II 类相位匹配情况下, 有效非线性系数随着闲频光波长的增大而减小, $1.064 \mu\text{m}$ 泵浦时, 当闲频光波长为 $10 \mu\text{m}$ 时, 有效非线性系数降到只有原来的一半; $2.05 \mu\text{m}$ 和 $2.79 \mu\text{m}$ 泵浦时, 闲频光波长为 $20 \mu\text{m}$ 时, 有效非线性系数降至一半。产生二次谐波时, 泵浦光为 $6 \mu\text{m}$ 时有效非线性系数最大。

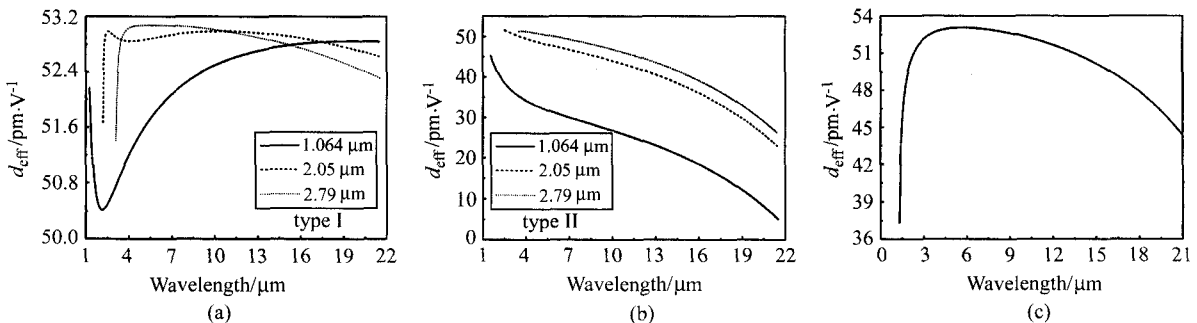


Fig.3 The varying of effective nonlinear coefficient in GaSe crystal (OPO and SHG)

因此, 虽然理论上采用 $2.05\ \mu\text{m}$ 和 $2.79\ \mu\text{m}$ 泵浦的有效非线性系数大, 但考虑激光器情况, $1.06\ \mu\text{m}$ 的激光技术更为成熟稳定, 通过适当操作能够弥补 $1.06\ \mu\text{m}$ 泵浦时有效非线性系数低的劣势, 所以在实际操作中更多地选取 $1.06\ \mu\text{m}$ 泵浦进行 $3\sim 20\ \mu\text{m}$ 红外输出。

2.4 走离角

在单轴晶中, o 光的走离角为 0 , e 光的走离角为

$$\tan \alpha = \frac{1}{2} \frac{n_e^2 - n_o^2}{n_o^2 \sin^2 \theta + n_e^2 \cos^2 \theta} \sin 2\theta. \quad (8)$$

利用 (8) 式和 2.1 中计算的相位匹配角, 我们计算了 OPO 和 SHG 情况下的走离角, 如图 4 所示, 其中, (a)、(b)、(c) 分别是 I 类相位匹配、II 类相位匹配和二次谐波情况。从图 4 可以看出, 在 I 类相位匹配情况下, 走离角在 $3^\circ \sim 5.5^\circ$ 之间; 在 II 类相位匹配情况下, 走离角范围是 $3.5^\circ \sim 8^\circ$ 。二次谐波情况下, 走离角在 $3^\circ \sim 7.5^\circ$ 范围内变化。可以看出在 II 类相位匹配情况下, $1.06\ \mu\text{m}$ 泵浦随着闲频光波长的增加走离角逐渐减小, 而 $2.05\ \mu\text{m}$ 和 $2.79\ \mu\text{m}$ 泵浦时则逐渐增大, 这对于非线性转换效率是不利的。

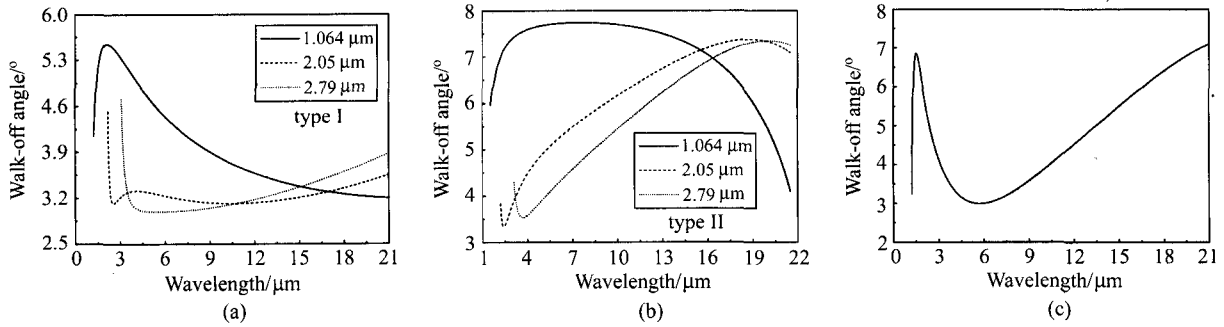


Fig.4 The walk-off angle in GaSe crystal (OPO and SHG)

2.5 允许角

在小信号光近似下, 我们计算了 GaSe 晶体的允许角 $\Delta\theta$ 。频率为 ω_1 、 ω_2 、 ω_3 的三个光波相互作用的相位匹配方向为 $\theta = \theta_m + \Delta\theta$ 时, 相位失配量 Δk 为

$$\Delta k = k(\omega_1) - k(\omega_2) - k(\omega_3) = \frac{2\pi}{\lambda_1} n(\omega_1) - \frac{2\pi}{\lambda_2} n(\omega_2) - \frac{2\pi}{\lambda_3} n(\omega_3), \quad (9)$$

将 Δk 对 θ 在 θ_m 处展开为泰勒级数

$$\Delta k = \Delta k|_{(\theta=\theta_m)} + \left. \frac{d\Delta k}{d\theta} \right|_{(\theta=\theta_m)} \Delta\theta + \frac{1}{2} \left. \frac{d^2 \Delta k}{d\theta^2} \right|_{(\theta=\theta_m)} (\Delta\theta)^2 + \dots \quad (10)$$

对于 I 类相位匹配, 有

$$n(\omega_1) = n_e(\omega_1, \theta), \quad (11)$$

$$n(\omega_2) = n_o(\omega_2), \quad (12)$$

$$n(\omega_3) = n_o(\omega_3), \quad (13)$$

$$\frac{d\Delta k}{d\theta} = \frac{dk_1}{d\theta} = \frac{\omega_1}{c} \frac{dn_e(\omega_1, \theta)}{d\theta} = -\frac{\omega_1}{2c} n_e^3(\omega_1, \theta) [n_e^{-2}(\omega_1) - n_o^{-2}(\omega_1)] \sin 2\theta, \quad (14)$$

$$\frac{d^2 \Delta k}{d\theta^2} = -\frac{1}{2} \frac{\omega_1}{c} [n_e^2(\omega_1) - n_o^2(\omega_1)] \left[2n_e^3(\omega_1, \theta) \cos 2\theta + 3n_e^2(\omega_1, \theta) \frac{dn_e(\omega_1, \theta)}{d\theta} \sin 2\theta \right], \quad (15)$$

且有

$$\Delta k|_{(\theta=\theta_m)} = 0. \quad (16)$$

对于 II 类相位匹配, 有

$$n(\omega_1) = n_e(\omega_1, \theta), \quad (17)$$

$$n(\omega_2) = n_e(\omega_2, \theta), \quad (18)$$

$$n(\omega_3) = n_o(\omega_3), \quad (19)$$

$$\frac{d\Delta k}{d\theta} = -\frac{\omega_1}{2c} n_e^3(\omega_1, \theta) [n_e^2(\omega_1) - n_o^2(\omega_1)] \sin 2\theta + \frac{\omega_2}{2c} n_e^3(\omega_2, \theta) [n_e^2(\omega_2) - n_o^2(\omega_2)] \sin 2\theta, \quad (20)$$

$$\begin{aligned} \frac{d^2\Delta k}{d\theta^2} = & -\frac{1}{2} \frac{\omega_1}{c} [n_e^2(\omega_1) - n_o^2(\omega_1)] \left[2n_e^3(\omega_1, \theta) \cos 2\theta + 3n_e^2(\omega_1, \theta) \frac{dn_e(\omega_1, \theta)}{d\theta} \sin 2\theta \right] + \\ & \frac{1}{2} \frac{\omega_2}{c} [n_e^2(\omega_2) - n_o^2(\omega_2)] \left[2n_e^3(\omega_2, \theta) \cos 2\theta + 3n_e^2(\omega_2, \theta) \frac{dn_e(\omega_2, \theta)}{d\theta} \sin 2\theta \right]. \end{aligned} \quad (21)$$

将 (14)、(15)、(16) 和 (20)、(21)、(16) 分别代入 (10), 数值求解方程即可得允许角 $\Delta\theta l$ 。图 5(a)、(b)、(c) 分别是 I 类相位匹配、II 类相位匹配和二次谐波时 GaSe 晶体允许角 $\Delta\theta l$ 随波长变化的曲线。计算中所选晶体的通过长度为 $l = 10 \text{ mm}$ 。可以看出在 I 类相位匹配情况下, 允许角随闲频光波长变化不大, 而在 II 类相位匹配时, 允许角随着闲频光波长的增大而增大。

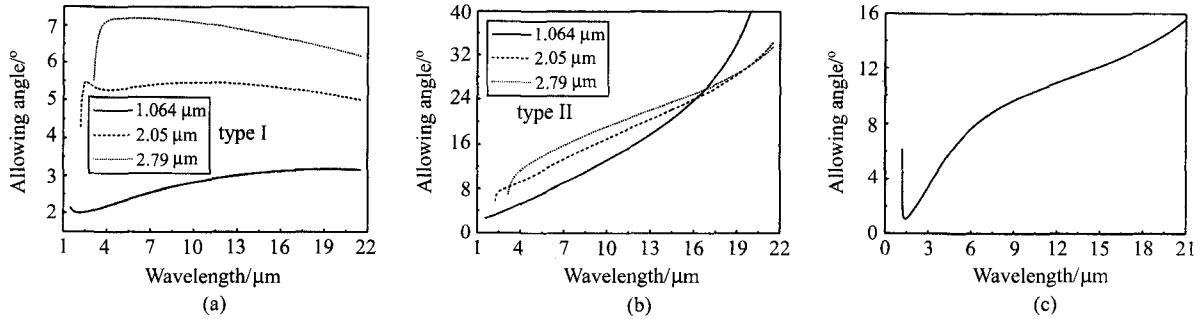


Fig.5 The allowing angle angular tuning characteristics in GaSe crystal (OPO and SHG)

3 结 论

GaSe 晶体是一种优秀的红外非线性晶体, 在激光倍频、调谐方面有很大的应用。本文从理论上模拟计算了该晶体各种激光实验的一些匹配条件, 如计算了在不同泵浦波情况下的 OPO 调谐曲线, SHG 情况下的匹配角, 允许角与泵浦光的关系。所得结果与已知文献吻合, 可为相关激光实验提供一定的指导, 为探索某些特定情况下的新用途提供了可能的探讨。

参考文献:

- [1] Suhre D R, Singh N B, Balakrishna V, *et al.* Improved crystal quality and harmonic generation in GaSe doped with indium [J]. *Opt. Lett.*, 1997, 22(11): 775-777.
- [2] Shi W, Ding Y J. Tunable terahertz waves generated by mixing two copropagating infrared beams in GaP [J]. *Opt. Lett.*, 2005, 30(9): 1030-1032.
- [3] Vodopyanov K L, Kulevshii L A. New dispersion relationships for GaSe in the 0.65 ~ 18 μm spectral region [J]. *Opt. Comm.*, 1995, 118(3-4): 375-378.

- [4] Liu Huan, Xu Degang, Yao Jianquan. Theoretical study of tunable terahertz radiation based on difference frequency generation in GaSe and ZnGeP₂ crystals [J]. *Acta Physica Sinica*(物理学报), 2008, 57(9): 5662-5669 (in Chinese).
- [5] Vodopyanov K L, Voevodin V G. 2.8 μm laser pumped type I and type II travelling-wave optical parametric generator in GaSe [J]. *Opt. Comm.*, 1995, 114: 333-335.
- [6] Vodopyanov K L, Voevodin V G. Extra-wide tuning range optical parametric generator [J]. *Opt. Comm.*, 1997, 135: 98-102.
- [7] Ding Y J, Khurgin J B. Generation of tunable coherent far-infrared waves based on backward optical parametric oscillation in gallium selenide [J]. *J. Opt. Soc. Am. B*, 1998, 15(5): 1567-1571.
- [8] Chen Weidong, Burie J, Boucher D. Mid-infrared generation by optical frequency conversion and application to spectroscopy and air monitoring [J]. *Spectrochimica Acta Part A*, 1999, 55: 2057-2075.
- [9] Subbasis D, Chittaranjan G, Sudipta G. Tunable coherent infrared source from 5-16 μm based on difference-frequency mixing in an indium-doped GaSe crystal [J]. *J. Opt. Soc. Am. B*, 2006, 23(2): 282-288.
- [10] Dmitriev V G, Gurzadyan G G, Nikogosyan D N. *Handbook of Nonlinear Optical Crystals* [M]. Germany: Springer-Verlag Berlin and Heidelberg GmbH & Co. K, 1999.