

文章编号: 0258-7025(2004)05-0559-04

## TEA CO<sub>2</sub> 激光在 AgGaSe<sub>2</sub> 晶体中的倍频实验研究

黄金哲<sup>1,2</sup>, 任德明<sup>1</sup>, 张莉莉<sup>1</sup>, 王宇虹<sup>1</sup>, 曲彦臣<sup>1</sup>, 胡孝勇<sup>1</sup>

<sup>1</sup> 哈尔滨工业大学光电子技术研究所, 黑龙江 哈尔滨 150001  
(<sup>2</sup> 哈尔滨理工大学西区电子科学与技术系, 黑龙江 哈尔滨 150080)

**摘要** 实验上实现了 TEA CO<sub>2</sub> 激光在 AgGaSe<sub>2</sub> 非线性光学晶体中的倍频光产生。着重研究了 TEA CO<sub>2</sub> 激光的能量、脉冲重复频率以及基波的焦点位置对于倍频光输出的影响。实验中得到了倍频光的角度调谐曲线, 将入射光聚焦在晶体的中心区域, 获得最大倍频光输出能量为 1.32 mJ。脉冲能量转换效率为 2.4%, 主脉冲的最大转换效率为 4%。还分析了脉冲重复频率的变化(<10 Hz)对倍频转换效率的影响。实验结果发现抑制倍频转换效率的主要因素为晶体的光学质量、激光脉冲低功率密度的拖尾以及激光脉冲的不稳定。特别由于脉冲附带长的拖尾加剧了热透镜效应, 使得脉冲重复频率的增加引起转换效率的降低。

**关键词** 非线性光学; 倍频; TEA CO<sub>2</sub> 激光; AgGaSe<sub>2</sub> 晶体

中图分类号 O 437.1 文献标识码 A

### Experimental Research on the Second Harmonic Generation of TEA CO<sub>2</sub> Laser in AgGaSe<sub>2</sub> Crystal

HUANG Jin-zhe<sup>1,2</sup>, REN De-ming<sup>1</sup>, ZHANG Li-li<sup>1</sup>,  
WANG Yu-hong<sup>1</sup>, QU Yan-chen<sup>1</sup>, HU Xiao-yong<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Institute of Optoelectronics, Harbin Institute of Technology, Harbin, Heilongjiang 150001, China

<sup>2</sup> Department of Electronic Science and Technology, Harbin University  
of Science and Technology, West Campus, Harbin, Heilongjiang 150080, China

**Abstract** In this paper, the second harmonic generation (SHG) of the TEA CO<sub>2</sub> laser in an AgGaSe<sub>2</sub> nonlinear crystal is realized. How energy of TEA CO<sub>2</sub> laser, repetition frequency of pulse and focal position affect SHG is studied emphatically. The tuning curve upon incident angle is obtained and the maximal second harmonic energy 1.32 mJ is measured with the energy conversion efficiency 2.4% for total and 4% for main peak. Besides, the influence of pulse repetition rate (<10 Hz) on SHG conversion efficiency is analyzed. From the experimental results, it is found that the main factors restraining conversion efficiency are the crystal's optical quality, the low power intensity tail of lasing pulse and the instability of pulse radiation. Specially, the thermal lens effect is intensified due to the long tail attached to pulse, which leads to decreasing of conversion efficiency if pulse repetition rate is enhanced.

**Key words** nonlinear optics; SHG; TEA CO<sub>2</sub> laser; AgGaSe<sub>2</sub> crystal

### 1 引言

波长为 3~5 μm 的中红外激光处于大气窗口,

与 Nd:YAG 的 1.06 μm 和 CO<sub>2</sub> 的 10.6 μm 激光相比, 具有更好的大气传输特性, 并且在海平面上上传输

收稿日期: 2003-01-08; 收到修改稿日期: 2003-04-09

基金项目: 国家自然科学基金(编号: 6987005)资助项目。

作者简介: 黄金哲(1972—), 男, 朝鲜族, 哈尔滨工业大学光电子技术研究所博士研究生, 讲师, 主要从事非线性光学、激光光学及光电子技术研究。E-mail: huang\_yin@sohu.com

时具有低的分子吸收系数和气悬物散射系数。它在空间通信、红外热成像、激光遥感、光谱学、生态环境保护中差分吸收雷达的研究<sup>[1~4]</sup>及军事方面的图像制导和对抗红外成像制导<sup>[5]</sup>等诸多领域都有重要的应用价值和前景,是人们所期望的相干光源。但是迄今为止,在这一波段范围内,尚没有直接振荡的小型且操作简便的高功率激光器。目前人们获得这一波段相干光源的主要方法是通过波长变换技术,如高次谐波发生技术等。

随着人们对中红外波段相干光的要求越来越迫切,目前关于 TEA CO<sub>2</sub> 激光倍频方面的研究已在世界上广泛展开。其中美国、日本、俄罗斯、德国等国都取得了较大的进展。三元黄铜矿 AgGaSe<sub>2</sub> 晶体是可在此波段产生倍频光的比较理想的晶体<sup>[6~8]</sup>。我们利用自行研制的小型高重复频率的 TEA CO<sub>2</sub> 激光器和中国科学院安徽光学精密机械研究所的 AgGaSe<sub>2</sub> 晶体,进行了 TEA CO<sub>2</sub> 脉冲激光在 AgGaSe<sub>2</sub> 晶体中的倍频实验研究。

## 2 理论分析

实验中的倍频输入光波是由 TEA CO<sub>2</sub> 激光器产生的 TEM<sub>00</sub> 模高斯光束,所用的 AgGaSe<sub>2</sub> 倍频晶体为负单轴晶体。下面讨论高斯光束在负单轴晶体中的倍频。

高斯光束的基波功率  $P_1$  为

$$P_1 = 2n_1 c \epsilon_0 \int_0^{2\pi} \int_0^{\infty} |E_1(r)|^2 r dr d\varphi = \\ 2n_1 c \epsilon_0 |A_1|^2 \frac{\pi w_0^2}{2} = I_1 \frac{\pi w_0^2}{2} \quad (1)$$

式中,  $w_0$  为基波光束束腰半径,  $\epsilon_0$  为真空介电常数,  $n$  为折射率,  $I$  为光强,  $A$  为电场强度的振幅, 其中角标 1, 2 表示基波光与倍频光,  $c$  为真空中的光速。

谐波功率  $P_2$  为

$$P_2 = 2n_2 c \epsilon_0 \int_0^{2\pi} \int_0^{\infty} |A_2|^2 r dr d\varphi = \\ \frac{8\pi^2 L^2 d_{\text{eff}}^2}{n_1^2 n_2 \lambda_1^2 c \epsilon_0} \frac{P_1^2}{\pi w_0^2} \text{sinc}^2\left(\frac{\Delta k L}{2}\right) \quad (2)$$

式中  $L$  为晶体长度, 波矢差  $\Delta k = 2k_1 - k_2$ ,  $d_{\text{eff}}$  为有效非线性光学常数。因此有如下公式<sup>[9]</sup>:

倍频效率  $\eta$  为

$$\eta = \frac{P_2}{P_1} = \frac{8\pi^2 L^2 d_{\text{eff}}^2}{n_1^2 n_2 \lambda_1^2 c \epsilon_0} \frac{P_1}{\pi w_0^2} \text{sinc}^2\left(\frac{\Delta k L}{2}\right) = \\ \frac{8\pi^2 L^2 d_{\text{eff}}^2}{n_1^2 n_2 \lambda_1^2 \epsilon_0 c} |I_1| \text{sinc}^2\left(\frac{\Delta k L}{2}\right) \quad (3)$$

在负单轴晶体中的匹配角

$$\theta_m(\omega) = \sin^{-1} \left\{ \frac{n_e(2\omega)}{n_o(\omega)} \left[ \frac{n_o^2(2\omega) - n_e^2(\omega)}{n_o^2(2\omega) - n_e^2(2\omega)} \right]^{\frac{1}{2}} \right\} \quad (4)$$

式中角标  $o, e$  表示寻常光与非寻常光,  $\omega$  为圆频率。

而可接受角为

$$\Delta\theta(\omega) = \frac{\Delta k \cdot \lambda(\omega)}{2\pi \cdot n_o^3(\omega) \left[ \frac{1}{n_e^2(2\omega)} - \frac{1}{n_o^2(2\omega)} \right] \sin(2\theta_m)} \quad (5)$$

对 10.59 μm 波长的 CO<sub>2</sub> 激光光束, 在室温下, 经过计算可得匹配角  $\theta_m = 55.43^\circ$ , 取  $\Delta k = \pi/L$  这实际上是在函数 sinc( $\Delta k L/2$ ) 中, 令  $\Delta k L/2 = \pi/2$ , 近似在半峰值处,  $\Delta\theta = 0.83^\circ$  (以上结果使用的折射率数据及相应的色散公式引自文献[10], 并且与下面实测数据稍有差异, 原因是晶体切割误差及晶体局部缺陷造成的不均匀性)。

## 3 实验装置与晶体特性

倍频实验的光路如图 1 所示, 实验中, 使用自行研制的小型高重复频率可调谐 TEA CO<sub>2</sub> 激光器对 AgGaSe<sub>2</sub> 晶体进行了研究。通过对激光器输出能量、脉冲宽度及束腰半径的测量, 可得到激光输出的能量密度及功率密度等, 并考虑了 AgGaSe<sub>2</sub> 晶体的损伤阈值。当峰值功率密度超过 40 MW/cm<sup>2</sup> 时, 晶体就有可能会受到损伤。根据焦距公式  $f = \pi w_0 \omega / \lambda$ , 其中  $f$  为反射镜焦距,  $w_0$  为入射光束束腰半径,  $\omega$  为出射光在焦点处(晶体中)的光斑半径,  $\lambda$  为激光波长, 可以估算出所选用的聚焦凹面镜的焦距应选在 400~600 mm 之间, 取  $f = 500$  mm。采用能量计 ED-500, HITACHI VC-6045 示波器来监测基波光的能量变化。实验中采用的滤光片为两个 5 mm 厚的 LiF 片, 经测定其总的基波光透射率为 4

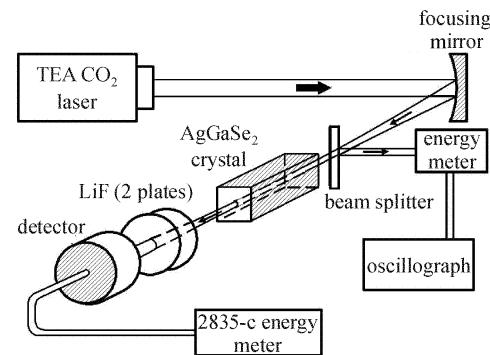


图 1 倍频实验装置图

Fig. 1 Schematic diagram of frequency doubling experiment set-up

$\times 10^{-5}$ ,总的倍频光透过率为81%<sup>[11]</sup>。谐波光的能量用2835-C能量计来测量。

所用AgGaSe<sub>2</sub>晶体的尺寸为7 mm×8 mm×

11.7 mm,其端面镀抗反膜,对于基波光和倍频光的透过率均为90%。表1给出了AgGaSe<sub>2</sub>晶体的一些性质。

表1 AgGaSe<sub>2</sub>晶体的基本光学和热学特性  
Table 1 Optical and thermal properties of AgGaSe<sub>2</sub> crystal

Refractive index (at 10.6 μm)	Absorption $\alpha / \text{cm}^{-1}$	Damage threshold (10 ns pulse width)	Nonlinear susceptibility coefficient	Phase-maching angle of type I	Walk-off angle	Acceptable temperature $\Delta T / ^\circ\text{C}$
$n_o$ (2.5912)	<0.02	20~30 MW/cm <sup>2</sup>	$d_{36} = 33 \text{ pm/V}$	57.0° (measured)	0.67°	>300
$n_e$ (2.5579)						

## 4 实验结果与分析

在基波光的能量为41.4 mJ,晶体距离聚焦凹面镜中心58 cm时,调整晶体方向改变光线的入射角,记录相应谐波输出能量的变化,从而得到长11.7 mm的AgGaSe<sub>2</sub>晶体在10.59 μm波长处倍频的角度调谐曲线,并给出了计算曲线如图2所示。

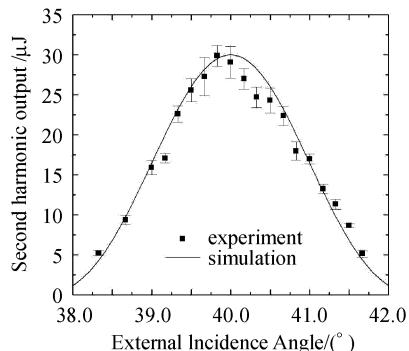


图2 实验测得的11.7 mm长晶体的倍频角度调谐曲线

Fig. 2 Experimentally determined angle tuning curve of SHG in the 11.7 mm long crystal

从图3可观察到倍频光能量随抽运能量的变化趋势,谐波的输出随基波能量的增加而增加。因为随着入射激光能量的增加,在光斑的大小几乎不变的情况下,基波光的能量密度增加,介质的非线性极化作用增强,倍频转换效率增大。在实验中,还进行了入射光脉冲重复频率对倍频影响的研究,图中给出的是3种不同重复频率1 Hz,3.7 Hz和7 Hz下二次谐波输出能量相对于基波能量的关系,随着重复频率的增加倍频输出下降。考虑到晶体的损伤阈值以及探测器的响应速度的限制,没有进行抽运能量为44 mJ重复频率为7 Hz的倍频实验。对于3种不同的重复频率,分别测量了5组不同基波能量

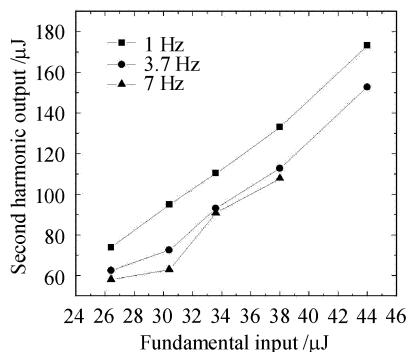


图3 倍频输出能量随重复频率的变化

Fig. 3 Relationship between second harmonic output energy and repetition frequency

下的谐波输出,并且对应于每一个输入能量,分别取了8组数据进行平均。此时基波光束的入射角为实验中已测得的匹配角。由图可见,随着重复频率的增加,二次谐波的输出能量下降比较明显。这是由于所用的激光器输出脉冲波形存在严重“拖尾”现象,所以当重复频率升高时晶体得不到充分的散热,造成晶体温度升高,致使相位失配加剧,倍频转换效率降低。而当重复频率为7 Hz时,由于能量计的探测器响应速度比较慢,所以探测得到的数值偏高,下降不是很明显。

由于所用的聚焦凹面镜的焦距 $f=500$  mm,实验中以距聚焦凹面镜50 cm的距离为基点前后移动晶体。在激光器46 mJ输出下,测得倍频输出能量随晶体距聚焦凹面镜的距离的变化曲线,如图4所示。正如理论所推测的那样,当晶体的中心在凹面镜的焦点处时,倍频输出能量最高。这是由于入射光功率密度最高的区域处于晶体内部,从而提高了转换效率。将晶体中心放在焦点上,改变激光器的输出能量,并探测了倍频光的能量,获得最大倍频光输出能量为1.32 mJ。由测量所得数据计算得到晶

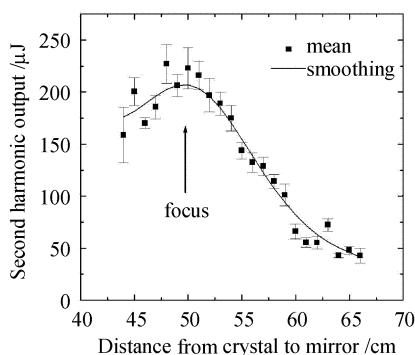


图 4 倍频输出能量随反射镜距离的变化关系

Fig. 4 Second harmonic output energy versus the distance from mirror

体的脉冲能量转换效率为 2.4%，主脉冲的最大转换效率为 4%。

造成实验所得数据有起伏，倍频输出能量同理论数值有一定差距的主要原因为：1) 在前后移动晶体的位置时，光束打在晶体不同的位置上，由于晶体生长的不均匀性以及晶体的内部缺陷使在不同位置处的倍频输出能量不同。2) 在实验中基波光波形不理想，后沿存在着对于倍频没有贡献的占脉冲大部分能量的拖尾。随着输入能量的增加，由于热效应造成的折射率变化而使相位失配。3) 激光器输出存在不稳定性。

### 参 考 文 献

- C. B. Carlisle, J. E. van der Laan, L. W. Carr *et al.*. CO<sub>2</sub> laser-based differential absorption lidar system for range-resolved and long-range detection of chemical vapor plumes [J]. *Appl. Opt.*, 1995, **34**(27):6187~6200
- Yanzeng Zhao. Line-pair selections for remote sensing of atmospheric ammonia by use of A coherent CO<sub>2</sub> differential absorption lidar system [J]. *Appl. Opt.*, 2000, **39**(6):997~1007
- J. E. Eberhardt, J. G. Haub, L. B. Whitbourn. Carbon dioxide laser tuning through 110 lines in 3 ms for airborne remote sensing [J]. *Appl. Opt.*, 1988, **27**(5):879~884
- Geng Yuzhen. Contamination detecting with laser techniques [J]. *Optoelectronic Technology & Information*, 1998, **11**(3):38~40  
耿玉珍. 激光技术探测污染物 [J]. 光电子技术与信息, 1998, **11**(3):38~40
- Liu Yongchang, Zhu Hong. An analysis on IR imaging of guidance countermeasure techniques [J]. *Infrared Technology*, 2000, **22**(1):13~16  
刘永昌, 朱虹. 红外成像制导对抗技术分析 [J]. 红外技术, 2000, **22**(1):13~16
- R. L. Byer, M. M. Choy, R. L. Herbst *et al.*. Second harmonic generation and infrared mixing in AgGaSe<sub>2</sub> [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 1974, **24**(2):65~68
- V. V. Badikov, V. B. Laptev, V. L. Panyutin *et al.*. Growth and optical properties of nonlinear silver selenogallate single crystals [J]. *Sov. J. Quantum Electron.*, 1992, **22**(8):722~724
- V. A. Gorobets, V. O. Petukhov, S. Ya. Tochitskii *et al.*. Studies of nonlinear optical characteristics of IR crystals for frequency conversion of TEA CO<sub>2</sub> laser radiation [J]. *J. Opt. Technol.*, 1999, **66**(1):53~56
- Fan Qikang, Wu Cunkai, Mao Shaoqing. Nonlinear Optics [M]. Nanjing: Jiangsu Science and Technology Press, 1988. 7~81  
范崎康, 吴存恺, 毛少卿. 非线性光学 [M]. 南京: 江苏科技出版社, 1988. 7~81
- E. Tanaka, K. Kato. Thermo optic dispersion formula of AgGaSe<sub>2</sub> and its practical application [J]. *Appl. Opt.*, 1998, **37**(3):561~564
- Huang Jinzhe, Hu Xiaoyong, Qu Yanchen *et al.*. Second harmonic generation in tunable mini-TEA CO<sub>2</sub> laser [J]. *Acta Optica Sinica*, 2002, **22**(3):294~297  
黄金哲, 胡孝勇, 曲彦臣等. 小型可调谐 TEA CO<sub>2</sub> 激光的二次谐波产生 [J]. 光学学报, 2002, **22**(3):294~297