

Федеральное государственное бюджетное учреждение науки  
Физический институт им. П. Н. Лебедева Российской академии наук

На правах рукописи

Сагитова Адиля Маратовна

**Генерация излучения в спектральном диапазоне 1.7–19.3 мкм  
при преобразовании частоты излучения СО- и СО<sub>2</sub>-лазеров  
в нелинейных кристаллах**

Специальность 1.3.19 – Лазерная физика

Диссертация на соискание ученой степени  
кандидата физико-математических наук

Научный руководитель  
кандидат физико-математических наук, доцент  
Климачев Юрий Михайлович

Москва – 2023

## Оглавление

Введение .....	4
Глава 1. Преобразование излучения СО- и СО <sub>2</sub> -лазеров в нелинейных кристаллах (литературный обзор) .....	15
1.1 Краткие сведения о СО- и СО <sub>2</sub> -лазерах .....	15
1.1.1 СО-лазер .....	15
1.1.2 СО <sub>2</sub> -лазер .....	19
1.2 Преобразование излучения СО-лазеров (а также генерация разностных частот СО- и СО <sub>2</sub> -лазеров) в нелинейных кристаллах .....	23
1.3 Выводы по главе .....	39
Глава 2. Экспериментальные установки .....	42
2.1 Криогенный СО-лазер низкого давления с накачкой разрядом постоянного тока .....	42
2.2 Компактный криогенный щелевой СО-лазер с накачкой ВЧ-разрядом .....	44
2.3 Компактный щелевой СО <sub>2</sub> -лазер с накачкой ВЧ-разрядом .....	46
Глава 3. Динамика генерации колебательно-вращательных линий многочастотного СО-лазера с модуляцией добротности резонатора .....	50
3.1 Схема экспериментов по исследованию динамики генерации линий СО-лазера ..	50
3.2 Динамика генерации линий СО-лазера, методика расчета пиковой мощности излучения спектральных линий .....	52
3.3 Численное моделирование генерации спектра суммарной частоты с учетом динамики генерации .....	58
3.4 Выводы по главе .....	62
Глава 4. Структура спектра генерации суммарных частот излучения многочастотного СО-лазера в кристалле ZnGeP <sub>2</sub> .....	63
4.1 Схема экспериментов по исследованию структуры спектра генерации суммарных частот излучения многочастотного СО-лазера в кристалле ZnGeP <sub>2</sub> .....	63
4.2 Структура спектра генерации суммарных частот (тонкая структура) .....	65
4.3 Измерение профиля линии поглощения молекул СО <sub>2</sub> с помощью суммарных частот СО-лазера .....	70
4.4 Выводы по главе .....	73

Глава 5. Двухкаскадное внутри- и внерезонаторное широкополосное преобразование многочастотного излучения ВЧ СО-лазера с модуляцией добротности резонатора в нелинейных кристаллах $\text{BaGa}_2\text{GeSe}_6$ .....	75
5.1 Внутрирезонаторное преобразование многочастотного излучения ВЧ СО-лазера в кристалле $\text{BaGa}_2\text{GeSe}_6$ (первый каскад).....	75
5.1.1 Схема экспериментов по внутрирезонаторному преобразованию многочастотного излучения СО-лазера в кристалле $\text{BaGa}_2\text{GeSe}_6$ (генерация суммарных частот).....	75
5.1.2 Зависимость спектральных и энергетических характеристик лазерного излучения от выходного зеркала .....	80
5.2 Двухкаскадная генерация суммарных частот излучения СО-лазера в кристалле $\text{BaGa}_2\text{GeSe}_6$ .....	87
5.2.1 Схема экспериментов по двухкаскадной генерации суммарных частот СО-лазера в кристалле $\text{BaGa}_2\text{GeSe}_6$ .....	87
5.2.2 Условия достижения максимальной эффективности двухкаскадной генерации суммарных частот, энергетические и спектральные характеристики двухкаскадной генерации суммарных частот.....	89
5.3 Выводы по главе .....	93
Глава 6. Генерация разностных частот излучения СО- и СО <sub>2</sub> -лазеров в нелинейных кристаллах $\text{AgGaSe}_2$ , $\text{BaGa}_2\text{GeSe}_6$ и $\text{PbIn}_6\text{Te}_{10}$ в диапазон длин волн 12–20 мкм .....	94
6.1 Схема экспериментов по генерации разностных частот излучения СО- и СО <sub>2</sub> -лазеров в нелинейных кристаллах .....	94
6.2 Энергетические и спектральные характеристики ГРЧ.....	98
6.3 Выводы по главе .....	101
Заключение .....	102
Список публикаций, в которых содержатся основные результаты диссертации .....	105
Список литературы .....	107

## Введение

### **Актуальность темы и степень её разработанности**

Разработка источников лазерного излучения в среднем инфракрасном диапазоне представляет большой интерес для различных задач.

Средний инфракрасный (ИК) диапазон длин волн 2–20 мкм, известный как область молекулярных «отпечатков пальцев» (molecular-fingerprint mid-infrared region) [1]), представляет большой интерес для многих важных приложений: исследования сверхбыстрых явлений [2], спектроскопии с помощью оптических частотных гребёнок [3], генерации высоких гармоник [4], зондирования атмосферы [5] и многих других. Это обуславливает активное развитие широкополосных источников среднего ИК-излучения в настоящее время.

Значительный прогресс был достигнут в разработке различных типов твердотельных лазеров среднего ИК-диапазона [6, С. 225]. В частности, импульсные лазеры среднего ИК-диапазона на основе кристаллов халькогенидов (например, ZnSe, ZnS, CdSe, CdZnTe), легированных железом, перестраиваются в спектральном диапазоне ~2–5 мкм с энергией импульса более одного джоуля. Также волоконные лазеры и оптические параметрические генераторы успешно работают в этой коротковолновой части среднего ИК-диапазона до длин волн ~5 мкм. Разнообразие лазеров, работающих в среднем ИК-диапазоне на длинах волн от 5 до 12 мкм, значительно меньше. В этой спектральной области был достигнут значительный прогресс в разработке квантово-каскадных лазеров [7, 8], которые уже коммерчески доступны (например, продукты Hamamatsu Photonics, Thorlabs). Квантово-каскадные лазеры компактны, но при этом имеют довольно низкую выходную мощность. Также был разработан ряд лазерных устройств на основе параметрических генераторов света, совмещенных с генерацией разностной частоты (ГРЧ) в дополнительном кристалле [6, С. 495]. Тем не менее, пока ещё ощущается недостаток лазеров, генерирующих в длинноволновой области (длины волн от ~12 до 20 мкм) среднего ИК-диапазона. В данном диапазоне работает

несколько квантово-каскадных лазеров: на базе гетероструктуры на основе Sb или системы InGaAs/AlInAs [9]. Однако их длинноволновая генерация ограничена фононными полосами поглощения материалов.

Одним из способов получения широкополосного излучения (суперконтинуума или дискретного многочастотного) среднего ИК-диапазона является преобразование частоты лазерного излучения в кристаллах с квадратичной нелинейностью [10] или в нелинейных волокнах [11]. Стоит отметить, что для эффективного преобразования лазерного излучения в нелинейных кристаллах требуется высокая мощность излучения накачки, так как мощность преобразованного излучения прямо пропорциональна произведению мощностей накачки. Большое число линий позволяет получить большее число линий преобразованного излучения: из  $n$  линий накачки возможно получить  $n(n+1)/2$  линий второй гармоники и суммарных частот. Более того, совместное использование как излучения накачки, так и преобразованного излучения может значительно расширить возможности зондирования с помощью такого широкополосного лазерного источника. Дистанционная многокомпонентная спектроскопия атмосферы требует широкополосного излучения среднего ИК-диапазона со спектральными линиями высокой яркости. Приблизительная оценка для уширенных воздухом полуширин линий поглощения газов составляет  $0.1 \text{ см}^{-1} \cdot \text{атм}^{-1}$  для всех компонентов [12]. Следовательно, спектральное разрешение должно составлять по меньшей мере около  $0.1 \text{ см}^{-1}$  ( $\approx 3 \text{ ГГц}$ ) для применения в тропосферном лидаре [13, С. 248]. Набор близких линий с общей спектральной шириной  $\approx 0.01 \text{ см}^{-1}$  [13, С. 248] достаточно хорош для регистрации профиля линий поглощения тропосферных газов и оценки метеорологических параметров атмосферы. Подобное спектральное разрешение также обуславливает необходимость увеличения спектрального разрешения при снятии спектра суммарных частот. Для генерации широкополосного излучения можно использовать молекулярные газовые лазеры, которые имеют ряд преимуществ: узкую ширину линии, высокую мощность, множество спектральных линий в среднем ИК-диапазоне.

Примерами таких лазеров являются СО- и СО<sub>2</sub>-лазеры. СО-лазер может работать на сотнях узких спектральных линий как основной полосы генерации от 4.7 мкм [14] до 8.7 мкм [15] с КПД до 50% [16], так и обертоновой ( $\lambda = 2.5\text{--}4.2$  мкм) [17] с КПД до 16% [18]. СО<sub>2</sub>-лазер может работать на десятках узких линий в спектральном интервале от 9 до 11 мкм [19].

Атмосфера имеет высокое пропускание в спектральном диапазоне генерации суммарных частот излучения СО-лазера (2.5–4.0 мкм) и содержит уникальные полосы поглощения множества различных веществ, поэтому данный диапазон очень привлекателен для зондирования атмосферы. Более того, совместное использование излучения спектрального диапазона 2.5–4.0 мкм с лазерным излучением основной колебательной полосы СО-лазера (5–8 мкм) может значительно расширить возможности зондирования такого лазерного источника. Поэтому представляет интерес получать как излучения основной полосы СО-лазера, так и излучения генерации суммарных частот.

Например, широкополосная лазерная система на основе СО-лазера, работающая в среднем ИК-диапазоне, была разработана путем применения параллельного двухкаскадного [20] и параллельного трехкаскадного [21] преобразования частоты в одном кристалле ZnGeP<sub>2</sub> в условиях не критичного фазового синхронизма. Дополнительное смешение частот излучения СО- и СО<sub>2</sub>-лазеров в нелинейном кристалле позволяет получать тысячи спектральных линий в очень широком диапазоне длин волн от 2.5 до ~17 мкм [22]. Эксперименты, описанные в [20–22], проводились с импульсно-периодическими СО- и СО<sub>2</sub>-лазерами низкого давления с накачкой разрядом постоянного тока, являющимися не самыми компактными установками (длина установки ~1.2 м). Однако были разработаны щелевые молекулярные газовые лазеры с ВЧ-накачкой, которые имеют компактные размеры (длина лазерной камеры – 0.6 м), низковольтное питание и аналогичный уровень мощности по сравнению с газовыми лазерами с модуляцией добротности резонатора (МДР) и разрядом постоянного тока (пиковая мощность порядка единиц киловатт при длительности излучения порядка микросекунды) [22]. Необходимо отметить, что устройство лазерной системы

может быть упрощено за счёт использования внутрирезонаторного преобразования частоты вместо внерезонаторного, который снимает необходимость фокусировки излучения накачки в нелинейный кристалл за счет большей мощности излучения внутри резонатора и, как следствие, также позволяет более эффективно использовать объём кристалла для преобразования излучения.

Необходимо отметить проблему с несогласованностью в числе спектральных линий суммарных частот СО-лазера в экспериментах и расчётах. Моделирование хорошо описывает огибающую спектра ГСЧ, наблюдаемую в эксперименте [23]. Однако число линий в расчёте оказывается на порядок больше, чем регистрируется в эксперименте [23, 24]. Отличие количества спектральных линий в эксперименте от расчетов может быть связано с ограниченным спектральным разрешением спектрометра, динамическим диапазоном приёмного оборудования и поглощением излучения ГСЧ в атмосфере. Но стоит иметь в виду, что при многочастотном преобразовании большого числа линий длительность генерации отдельных линий, а также временное перекрытие их импульсов друг относительно друга может отличаться. Данный факт может повлиять на характеристики преобразования частоты излучения этих линий в нелинейных кристаллах, поэтому при моделировании преобразования стоит его учитывать. Ранее спектрально-временные характеристики подобного лазера были исследованы как экспериментально, так и теоретически в работах [25, 26]. Хотя в указанных публикациях было показано, что длительности генерации на отдельных колебательно-вращательных линиях очень сильно отличаются, однако приведенные в этих работах экспериментальные результаты достаточно ограничены. Динамика на большом числе линий, собственно, и преобразование частоты большого числа линий не измерялись.

В настоящее время разрабатываются компактные и надежные лазеры на углекислом газе ( $\text{CO}_2$ ) и на окиси углерода ( $\text{CO}$ ) (см. например, [27–29]), в том числе коммерческие [29]. Поэтому разработка систем, основанных на щелевых ВЧ-разрядных СО- и  $\text{CO}_2$ -лазерах с преобразованием частоты в нелинейных

кристаллах, является очень привлекательным способом получения широкополосного излучения в среднем ИК-диапазоне.

**Цель диссертационной работы** – формирование лазерного излучения с большим числом линий в широком интервале длин волн среднего ИК-диапазона (~2–20 мкм) за счёт генерации суммарных и разностных частот излучения многолинейчатых СО- и СО<sub>2</sub>-лазеров в нелинейных кристаллах, включая новые нелинейные кристаллы ВаGa<sub>2</sub>GeSe<sub>6</sub> и PbIn<sub>6</sub>Te<sub>10</sub>.

Для достижения поставленной цели решались следующие **задачи**:

1. Экспериментально исследовать динамику генерации колебательно-вращательных линий многочастотного СО-лазера с модуляцией добротности резонатора;
2. Экспериментально исследовать структуру спектра генерации суммарных частот излучения многочастотного СО-лазера в кристалле ZnGeP<sub>2</sub>;
3. Экспериментально исследовать внутррезонаторное широкополосное преобразование многочастотного излучения целевого СО-лазера с модуляцией добротности резонатора в нелинейном кристалле ВаGa<sub>2</sub>GeSe<sub>6</sub>;
4. Экспериментально исследовать внутри- и внрезонаторную генерацию суммарных частот целевого СО-лазера в нелинейных кристаллах ВаGa<sub>2</sub>GeSe<sub>6</sub> в область 1.7–1.9 мкм;
5. Экспериментально исследовать генерацию разностных частот излучения целевых СО- и СО<sub>2</sub>-лазеров в нелинейных кристаллах AgGaSe<sub>2</sub>, ВаGa<sub>2</sub>GeSe<sub>6</sub> и PbIn<sub>6</sub>Te<sub>10</sub> в область 12–20 мкм.

#### **Научная новизна**

- Экспериментально исследована динамика генерации излучения на большом количестве (~100) колебательно-вращательных переходов СО-лазера с модуляцией добротности резонатора в диапазоне длин волн 4.9–6.5 мкм.



- Проведен численный расчёт спектра излучения суммарных частот СО-лазера, сформированного в кристалле  $\text{ZnGeP}_2$ , с учетом динамики генерации на каждом колебательно-вращательном переходе.
- Экспериментально показано наличие тонкой структуры спектра суммарных частот многолинейчатого СО-лазера и продемонстрирована возможность измерения с его помощью профиля линии поглощения молекул  $\text{CO}_2$ .
- С новым нелинейным кристаллом  $\text{BaGa}_2\text{GeSe}_6$  реализовано широкополосное преобразование излучения СО-лазера и преобразование частот (в том числе внутрирезонаторное) излучения СО- и  $\text{CO}_2$ -лазеров в диапазон длин волн 1.7–14.0 мкм.
- Экспериментально получена широкополосная генерация излучения на разностных частотах СО- и  $\text{CO}_2$ -лазеров в новом нелинейном кристалле  $\text{PbIn}_6\text{Te}_{10}$  в диапазоне длин волн от 12 до 19.3 мкм.

### **Практическая значимость**

1. Широкополосные лазерные системы на основе конверсии частоты излучения СО-лазеров и смешения частот СО- и  $\text{CO}_2$ -лазеров в нелинейных кристаллах, действующие в интервале длин волн  $\sim 2$ –20 мкм, могут быть применены для многокомпонентного газоанализа атмосферы и её загрязняющих компонент.
2. Тонкая структура спектра генерации суммарных частот СО-лазера в условиях некритичного фазового синхронизма, даёт возможность измерить профиль линии поглощения атмосферных газов.
3. Экспериментальные данные по условиям, обеспечивающим преобразования частот в новых нелинейных кристаллах  $\text{BaGa}_2\text{GeSe}_6$  и  $\text{PbIn}_6\text{Te}_{10}$  в диапазоне длин волн генерации СО-лазера  $\sim 5$ –6 мкм, могут быть использованы для других типов лазеров, действующих в этом же спектральном диапазоне.
4. Лазерный источник на базе СО- и  $\text{CO}_2$ -лазеров и нелинейных кристаллов может использоваться для детектирования меркаптановой одоризационной смеси природного газа в реальном масштабе времени. Данная задача

решается путем одновременного или циклического во времени измерения поглощения излучения анализируемым раствором на четырех волнах, каждая из которых должны быть в одном из диапазонов длин волн: 7.6–7.8 мкм, 9.0–9.2 мкм, 10.3–10.5 мкм, 15.6–15.8 мкм [30]. Допускается возможность использования лазерной системы на базе двух лазеров (СО- и СО<sub>2</sub>-лазеров) и нелинейного кристалла (для генерации разностных частот СО- и СО<sub>2</sub>-лазеров), а не четырёх лазерных источников.

### **Положения, выносимые на защиту**

1. Динамика импульсов генерации на колебательно-вращательных переходах многолинейчатого СО-лазера с МДР не оказывает существенного влияния на интегральную по спектру пиковую мощность и число линий излучения на суммарных частотах при конверсии частоты излучения этого лазера в нелинейном кристалле ZnGeP<sub>2</sub>.
2. Спектр суммарных частот излучения многолинейчатого СО-лазера с МДР, генерируемого в нелинейном кристалле ZnGeP<sub>2</sub> в условиях некритичного фазового синхронизма, представляет собой широкий ( $\sim 1000 \text{ см}^{-1}$ ) набор частот, состоящий из групп линий со спектральным расстоянием между группами  $\sim 5 \text{ см}^{-1}$ .
3. За счёт соблюдения условий некритичного фазового синхронизма в диапазоне длин волн генерации СО-лазера ( $\sim 4.9\text{--}5.9 \text{ мкм}$ ) реализуется широкополосное внутррезонаторное преобразование его спектра излучения в нелинейном кристалле BaGa<sub>2</sub>GeSe<sub>6</sub> в диапазон длин волн 2.45–2.95 мкм. Суммирование частот излучения обоих диапазонов во втором внрезонаторном нелинейном кристалле BaGa<sub>2</sub>GeSe<sub>6</sub> приводит к генерации многолинейчатого излучения в интервале длин волн 1.7–1.9 мкм.
4. Генерация разностных частот излучения импульсно-периодических СО- и СО<sub>2</sub>-лазеров с накачкой высокочастотным электрическим разрядом в нелинейном кристалле PbIn<sub>6</sub>Te<sub>10</sub> обеспечивает расширение спектра излучения такой многолинейчатой лазерной системы до 19.3 мкм.

**Достоверность** результатов диссертационного исследования подтверждена хорошим согласием экспериментальных результатов с результатами теоретических расчётов и моделирования, а также с результатами теоретических и экспериментальных работ других авторов. В экспериментах использовались высокоточные откалиброванные измерительные и регистрирующие приборы, что обеспечило достоверность энергетических, временных и спектральных измерений.

### **Апробация результатов работы**

Основные результаты диссертации были опубликованы в 5 научных изданиях, индексируемых международными базами данных Scopus и Web of Science [1\*–5\*] и 6 материалах конференций [6\*–11\*], а также были доложены на 16 всероссийских и международных конференциях:

1. III Международная конференция «Лазерные, плазменные исследования и технологии ЛаПлаз-2017», 24–27 января 2017, Москва, Россия;
2. XI Всероссийская школа для студентов, аспирантов, молодых ученых и специалистов по лазерной физике и лазерным технологиям, 25–28 апреля 2017, Саров, Россия;
3. VI Международная молодежная научная школа-конференция «Современные проблемы физики и технологий», 17–21 апреля 2017, Москва, Россия;
4. IV Международная конференция «Лазерные, плазменные исследования и технологии ЛаПлаз-2018», 30 января – 01 февраля 2018, Москва, Россия;
5. VII Международная молодежная научная школа-конференция «Современные проблемы физики и технологий», 16–21 апреля 2018, Москва, Россия;
6. XXIX Международная конференция «Лазеры в науке, технике, медицине», 16–18 мая 2018, Москва, Россия;
7. 2018 International Conference Laser Optics (ICLO), 04–08 June 2018, Saint Petersburg, Russia
8. XXII International Symposium on High Power Laser Systems and Applications, 9–12 October 2018, Frascati, Italy

9. XIII Международная конференция «Прикладная оптика-2018», 18–21 декабря 2018, Санкт-Петербург, Россия;
10. VIII Международная конференция «Фотоника и информационная оптика», 23–25 января 2019, Москва, Россия;
11. SPIE Security + Defence (High Power Lasers: Technology and Systems, Platforms, Effects III), 9–12 September 2019, Strasbourg, France;
12. XII Международная конференция «Современные методы диагностики плазмы и их применение», 16–18 декабря 2020, Москва, Россия;
13. X Международная конференция «Фотоника и информационная оптика», 27–29 января 2021, Москва, Россия;
14. VII Международная конференция «Лазерные, плазменные исследования и технологии ЛаПлаз-2021», 23–26 марта 2021, Москва, Россия;
15. VIII Международная конференция «Лазерные, плазменные исследования и технологии ЛаПлаз-2022», 22–25 марта 2022, Москва, Россия;
16. XXVI Международная научно-техническая конференция по фотоэлектронике и приборам ночного видения (Орион), 25–27 мая 2022, Москва, Россия.

Отдельные результаты, представленные в диссертационной работе и объединенные в цикл работ под названием «Широкополосное преобразование частоты излучения лазера на окиси углерода в новом нелинейном кристалле  $\text{BaGa}_2\text{GeSe}_6$ », были удостоены Премии им. Н. Г. Басова молодежного конкурса научных работ ФИАН в 2019 г. в составе научного коллектива: И. О. Киняевский и А. М. Сагитова. Также по представленным в диссертации отдельным результатам была присуждена поощрительная премия на молодежном конкурсе научных работ ФИАН/МИФИ по оптике и лазерной физике за работу «Структура спектра широкополосного излучения суммарных частот лазера на окиси углерода, полученного в кристалле  $\text{ZnGeP}_2$ » в 2017 году.

### **Личный вклад автора**

Все расчетные и экспериментальные результаты, которые изложены в данной работе, получены лично автором или при непосредственном участии автора. Экспериментальные исследования проводились на лазерных установках в лаборатории Газовых лазеров Отделения квантовой радиофизики (ОКРФ) Физического института им. П. Н. Лебедева Российской академии наук (ФИАН, г. Москва).

### **Объем и структура диссертации**

Диссертация состоит из введения, шести глав и заключения. Полный объем диссертации составляет 115 страниц, включая 56 рисунков и 1 таблицу. Список цитируемой литературы содержит 98 наименований.

### **Краткое содержание работы**

Диссертация состоит из введения, шести глав и заключения.

Во **Введении** обоснована цель работы, её новизна, практическая значимость и сформулированы положения, выносимые на защиту.

В **Главе 1** приведён обзор работ, посвященных исследованию преобразования излучения СО- и СО<sub>2</sub>-лазеров в нелинейных кристаллах, рассмотрены основные свойства используемых в работе лазеров и кристаллов.

В **Главе 2** приводится описание используемых в работе экспериментальных установок: криогенного СО-лазера низкого давления с накачкой разрядом постоянного тока и компактных криогенных щелевых СО- и СО<sub>2</sub>-лазеров с накачкой ВЧ-разрядом.

В **Главе 3** приведены результаты экспериментального исследования динамики генерации колебательно-вращательных линий многочастотного СО-лазера с модуляцией добротности резонатора, а также численное моделирование спектра генерации суммарных частот с учетом динамики генерации линий СО-лазера.

В **Главе 4** приведены результаты экспериментального исследования структуры спектра генерации суммарных частот излучения многочастотного СО-лазера в кристалле  $\text{ZnGeP}_2$  и измерения профиля линии поглощения молекул  $\text{CO}_2$  с помощью суммарных частот СО-лазера.

В **Главе 5** приведены результаты экспериментального исследования внутрирезонаторного преобразования излучения многочастотного щелевого СО-лазера с накачкой ВЧ-разрядом и модуляцией добротности резонатора и внерезонаторной генерации суммарных частот СО-лазера в нелинейных кристаллах  $\text{BaGa}_2\text{GeSe}_6$ .

В **Главе 6** приведены результаты экспериментального исследования генерации разностных частот излучения щелевых СО- и  $\text{CO}_2$ -лазеров в нелинейных кристаллах  $\text{AgGaSe}_2$ ,  $\text{BaGa}_2\text{GeSe}_6$  и  $\text{PbIn}_6\text{Te}_{10}$ .

В **Заключении** сформулированы основные результаты и выводы настоящего исследования.

## Глава 1. Преобразование излучения СО- и СО<sub>2</sub>-лазеров в нелинейных кристаллах (литературный обзор)

### 1.1 Краткие сведения о СО- и СО<sub>2</sub>-лазерах

#### 1.1.1 СО-лазер

Предположение о возможности получения генерации на колебательно–вращательных переходах основного электронного состояния молекулы СО было сделано в 1964 году в работе Ф. Легей и Н. Легей-Соммер [31]. Генерация была получена в этом же году [32], однако СО-лазеры привлекли к себе гораздо меньше внимания, чем СО<sub>2</sub>-лазеры. Это было связано с невысокими значениями выходных параметров СО-лазера, полученных в первых экспериментах, технологическими трудностями и отсутствием четкого понимания физических процессов, приводящих к образованию инверсной населённости.

Интерес к СО-лазерам возник снова в начале 1970-х, благодаря работе К. Патела [33], в которой была предложена идея охлаждения активной среды СО-лазера, благодаря чему в непрерывном газоразрядном лазере низкого давления была получена мощность ~ 95 Вт при КПД ~ 16%. Вместе с экспериментальными работами велись и теоретические исследования: примерно в это же время [34] было предложено объяснение механизма создания инверсной населенности в СО-лазере. Эти работы существенно стимулировали дальнейшее исследование лазеров на окиси углерода. Интерес к СО-лазерам был вызван в том числе и тем, что он генерирует более коротковолновое излучение, чем СО<sub>2</sub>-лазер, имеет высокий электрооптический КПД и высокую выходную мощность. Экспериментально достигнуты значения мощностей, превышающих 100 кВт, а КПД – 60% [35].

СО-лазер обладает наибольшим КПД среди газоразрядных лазеров, что объясняется особенностью механизма создания инверсной населенности (на рисунке 1.1 схематично показаны распределение населенности по колебательным уровням, схема колебательных уровней основного электронного состояния

молекулы CO и распределение населённости по колебательно-вращательным уровням молекулы CO).

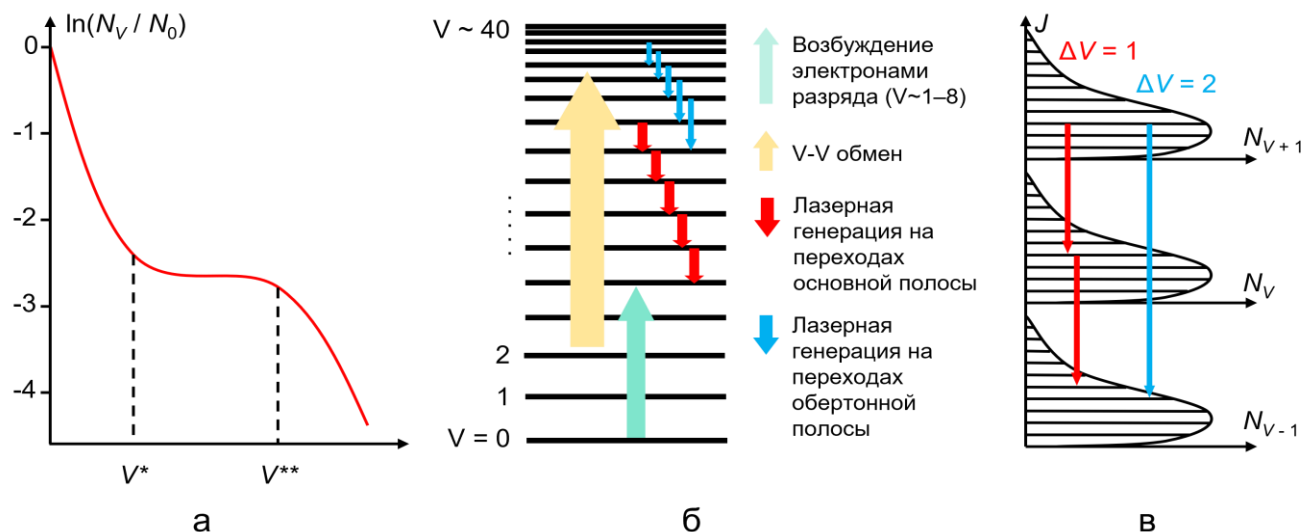


Рисунок 1.1 – Стационарное распределение населенности по колебательным уровням  $N_V$  основного электронного состояния молекулы CO при наличии колебательного возбуждения, нормированная на населенность нулевого уровня  $N_0$  (а). Схема колебательных уровней основного электронного состояния молекулы CO с накачкой и генерацией (б). Распределение населённости по колебательно-вращательным уровням молекулы CO (в)

В газовом разряде при электронном ударе возбуждаются нижние колебательные уровни ( $V = 1-8$ , где  $V$  – колебательное квантовое число) молекулы CO [36]. Заполнение более высоких колебательных уровней осуществляется за счет колебательно-колебательного ( $V-V$ ) обмена энергией при столкновении между молекулами. Усиление излучения CO-лазера в активной среде практически всегда происходит в отсутствие абсолютной инверсной населенности колебательных уровней. Частичная инверсная населенность появляется на большом числе колебательно-вращательных переходов Р-ветви молекулы CO в области «плато» колебательной функции распределения [37]. Это позволяет реализовать каскадный механизм почти одновременной генерации сотен колебательно-вращательных линий. Таким образом, возможно получать генерацию излучения на переходах основной полосы ( $V \rightarrow V - 1$ ) в достаточно широком диапазоне длин волн от 4.6 мкм до 8.2 мкм [38] и на первом обертоне ( $V \rightarrow V - 2$ ) в диапазоне длин волн от



2.5 до 4.2 мкм [17]. Абсолютная инверсия была реализована при оптической накачке СО-лазера и, в итоге, получена генерация на переходах R-ветви [14, 39].

Также стоит отметить способность СО-лазера работать в импульсном и непрерывном режимах. Возможно обеспечить работу лазера при селективном режиме генерации для выбора колебательно-вращательных переходов вплоть до 8.7 мкм [15], а также в частично-селективном режиме, в котором происходит генерация на нескольких близких по длине волны линиях [17].

СО-лазер представляет интерес прежде всего за счёт возможности широко перестраиваться по частоте в среднем ИК-диапазоне, в котором лежат линии поглощения колебательных переходов многих молекул. Диапазон перестройки частоты излучения СО-лазера перекрывает спектральные диапазоны, в которых расположены полосы поглощения различных веществ (например, CO<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>O, SO<sub>2</sub>, O<sub>3</sub>, N<sub>2</sub>O, NO<sub>2</sub>, NO, NH<sub>3</sub>, CO, HCl, HF, HBr, HI, OH и др.), в том числе органических соединений (ацетон, бензол, бутанол, метан, метанол, этанол и др.), сильных загрязнителей и опасных (токсичных и взрывчатых) веществ [40, 41].

В диапазонах длин волн, соответствующих как основным, так и обертонным переходам молекул СО, располагаются три окна прозрачности атмосферы (3.3–4.2 мкм, 4.5–5.0 мкм, 8.0–12.0 мкм) (рисунок 1.2). При этом СО-лазер дает возможность получить очень узкую спектральную ширину линии излучения (~ 0.1 МГц) при малой нестабильности частоты излучения (~ 30 кГц) [42].

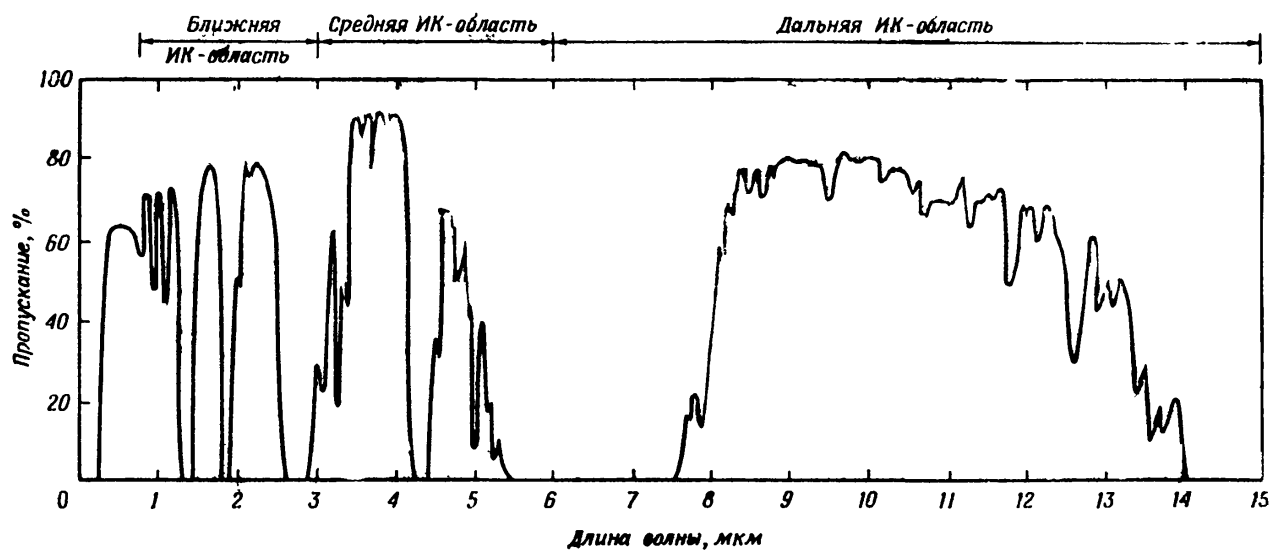


Рисунок 1.2 — Спектральное пропускание атмосферой излучения, измеренное на горизонтальной трассе протяженностью 1.8 км на уровне моря [43, С. 76]

Сочетание большого количества линий, малая спектральная ширина отдельной линии и высокая стабильность частоты излучения СО-лазера дают большое число вариантов применения данного лазера, например, в спектроскопии [42, 44–47], зондировании многокомпонентных газовых смесей [48], разделении изотопов [49], диагностике плазмы [50].

Лазерные способы обработки материалов имеют значительные преимущества перед механическими методами. Механические методы приводят к образованию частиц, микротрещин и дефектов внутри материала и на его поверхности. Во многих современных приложениях, таких как резка, сверление или скрайбирование стекла или керамики, частицы и микротрещины значительно влияют на производительность процесса обработки и качество конечных изделий из этих материалов. Лазеры в настоящее время широко используются в производстве изделий из стекла, а СО<sub>2</sub>-лазеры уже много лет используются в приложениях для обработки стекла. СО-лазеры в настоящее время также вызывают всё больший интерес в широком спектре приложений обработки материалов. Поскольку некоторые материалы имеют разные коэффициенты поглощения на 5 мкм и 9–10 мкм, взаимодействие лазерного излучения с материалом зависит от его длины волны излучения. Кроме того, пучок излучения с длиной волны 5 мкм может быть сфокусирован до более узкого пятна, и при том же размере пятна он

имеет большую глубину фокуса, чем пучок излучения с длиной волны 10 мкм. Это имеет значение при обработке стекла и керамики, для которых излучение с длиной волны 10 мкм поглощается вблизи поверхности, а излучение с длиной волны 5 мкм проникает вглубь материала и минимизирует поверхностное испарение. Стоит отметить, что СО- и СО<sub>2</sub>-лазеры с ВЧ-накачкой уже активно используются в работах по промышленной резке различных стекол и не только по прямой линии, сверления отверстий, разметки керамики, трехмерной печати на стекле [51, 52]. В работе [53] показано, что лазер на окиси углерода, работающий на длине волны 5–6 мкм, играет важную роль в производстве микроэлектроники, а также для сверления и отслаивания керамических пластин. В работах [54, 55] представлена управляемая компьютером лазерная система для изготовления новых специализированных оптических волокон при использовании СО-лазера. Было обнаружено, что СО-лазеры улучшают равномерность температуры и время нагрева вращающейся трубчатой заготовки при минимизации поверхностного испарения и диффузии загрязняющих веществ в данных волокнах.

### **1.1.2 СО<sub>2</sub>-лазер**

СО<sub>2</sub>-лазер был изобретен К. Пателом в 1964 году [56] и до сих пор является одним из самых полезных типов лазеров. Отношение выходной мощности СО<sub>2</sub>-лазер к мощности накачки может достигать 15–25% (квантовый выход ~40%) [35]. СО<sub>2</sub>-лазер излучает в инфракрасном диапазоне на длинах волн вблизи 9.6 мкм и 10.6 мкм. На рисунке 1.3 приведена схема уровней молекулы СО<sub>2</sub> и N<sub>2</sub>.

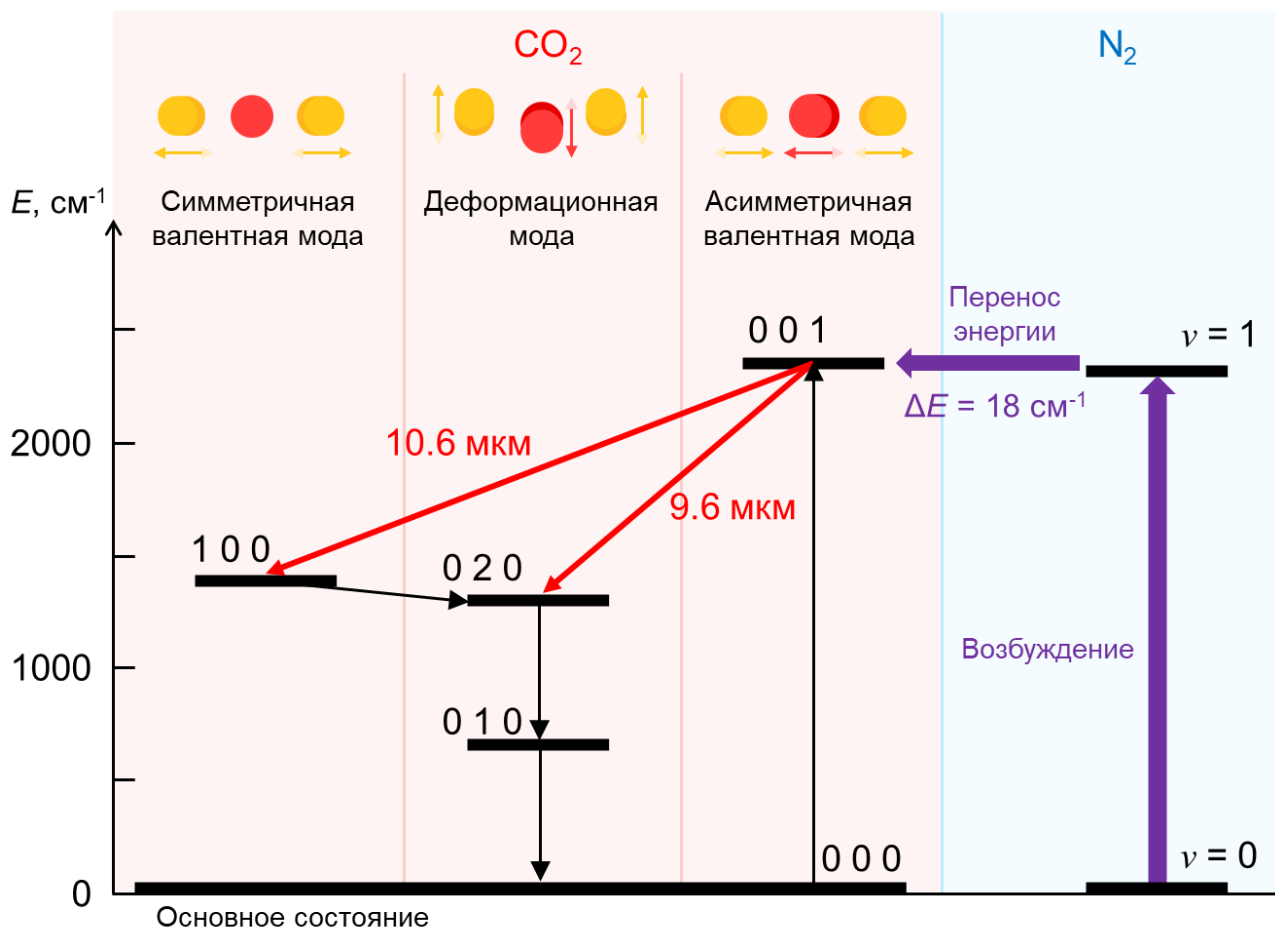


Рисунок 1.3 — Схема нижних колебательных уровней молекул  $\text{CO}_2$  и  $\text{N}_2$  в основном электронном состоянии

Как и СО-лазер,  $\text{CO}_2$ -лазер работает на колебательно-вращательных переходах в основном электронном состоянии. Возбуждение этих колебательно-вращательных состояний достигается за счет неупругих столкновений с электронами плазмы электрического разряда. Но способы, которыми достигается инверсия населенностей в СО- и  $\text{CO}_2$ -лазерах, сильно различаются, что приводит к существенно разным рабочим характеристикам.

В  $\text{CO}_2$ -лазере большая часть энергии, выделяемой в разряде плазмы, затрачивается на возбуждение колебательных уровней как  $\text{CO}_2$ , так и  $\text{N}_2$  и СО. Молекулы  $\text{N}_2$  являются обычной газовой добавкой, в то время как СО либо добавляется в качестве газового компонента, либо образуется в результате диссоциации  $\text{CO}_2$  на СО и  $\text{O}_2$ . Разница энергий между возбужденными уровнями молекул  $\text{CO}_2$  и  $\text{N}_2$  (или СО) невелика, поэтому молекулы  $\text{N}_2$  и СО эффективно передают свою колебательную энергию на первый колебательный уровень

асимметричной колебательной моды (001)  $\text{CO}_2$ , являющийся верхним лазерным уровнем. Лазерная генерация происходит между этим уровнем и уровнем первой деформационной моды (100) для диапазона длин волн вблизи 10 мкм и уровнем второй симметричной колебательной моды (020) для диапазона длин волн вблизи 9 мкм. Важно отметить, что полная инверсия достигается, когда общая населенность верхнего лазерного уровня больше, чем населенность нижних лазерных уровней. Это позволяет генерировать излучение между любыми разрешенными колебательно-вращательными переходами. Р-переходы происходят между вращательными состояниями, в которых нижнее вращательное состояние на один квант выше верхнего состояния, а R-переходы происходят, когда нижнее состояние на один квант ниже верхнего состояния. Тепловое распределение вращательных состояний при комнатной температуре приводит к тому, что доминирующий лазерный переход – переход Р20 в диапазоне длин волн 10 мкм, если использовать широкополосные отражающие зеркала в качестве резонаторов [52].  $\text{CO}_2$ -лазер может работать и в многочастотном режиме на нескольких колебательно-вращательных переходах [57, 58], чего можно добиться, например, за счёт работы  $\text{CO}_2$ -лазера в режиме модуляции добротности резонатора, как было сделано в работе [58].

Стоит отметить, что использование в лазере смеси только из  $\text{CO}_2$  и  $\text{N}_2$  делает возможным работу лазера только в импульсном режиме, так как инверсия достигается до тех пор, пока энергия антисимметричного колебания не успеет перейти в энергию деформационных колебаний. Для работы лазера в непрерывном режиме необходимо, чтобы скорость потери энергии в состоянии (010) была больше, чем в состоянии (001), поэтому в смесь добавляют молекулы или атомы таких газов, столкновения с которыми ускоряют потери энергии в состоянии (010) и мало влияют на потери в состоянии (001). Такими газами являются, например, He,  $\text{H}_2\text{O}$ , CO,  $\text{H}_2$ .

Нижние лазерные уровни эффективно дезактивируются при столкновениях с гелием. Кроме того, гелий способствует эффективному теплоотводу на стенки разрядной трубки.

Из-за очень большой широты использования CO<sub>2</sub>-лазеров в настоящее время невозможно охватить все случаи его применения. Можно отметить лишь некоторые. Благодаря его высокой мощности (в сочетании с разумной стоимостью лазера) он часто используется в промышленности для резки и сварки, а лазеры с низким уровнем мощности используются для гравировки [59]. CO<sub>2</sub>-лазер также используется в промышленных 3D-принтерах, работающих по технологии селективного лазерного спекания (например, в установках SLS Farsoon [60, 61]).

Лазеры на углекислом газе также могут использоваться в хирургических процедурах, потому что вода (которая составляет большую часть биологической ткани) очень хорошо поглощает эту частоту света. CO<sub>2</sub>-лазер с длиной волны 10.6 мкм остается лучшим хирургическим лазером для мягких тканей, где и рассечение, и гемостаз достигаются фототермическим способом [62]. CO<sub>2</sub>-лазеры можно использовать вместо скальпеля для большинства процедур и даже в тех местах, где скальпель использовать нельзя, в деликатных областях, где механическая травма может привести к повреждению места хирургического вмешательства. CO<sub>2</sub>-лазеры лучше всего подходят для процедур на мягких тканях у людей и животных по сравнению с лазерами с другими длинами волн. Преимущества включают меньшее кровотечение, более короткое время операции, меньший риск инфекции и меньший послеоперационный отек. Область применения включает гинекологию, стоматологию, челюстно-лицевую хирургию и многие другие.

CO<sub>2</sub>-лазер с длиной волны 9.25–9.6 мкм иногда используется в стоматологии для абляции твердых тканей. Твердые ткани удаляются при температуре до 5000°C, создавая яркое тепловое излучение [63].

Способность CO<sub>2</sub>-лазера работать в многочастотном режиме может позволить использовать его для генерации терагерцового излучения или же излучения в диапазоне длин волн 12–20 мкм (совместно с CO-лазером) методом генерации разностных частот излучения лазеров в нелинейных кристаллах.

## 1.2 Преобразование излучения СО-лазеров (а также генерация разностных частот СО- и СО<sub>2</sub>-лазеров) в нелинейных кристаллах

Спектр излучения СО-лазера может быть существенно расширен и обогащен за счёт преобразования его излучения методами нелинейной оптики, в частности путем генерации второй гармоники (ГВГ), суммарных (ГСЧ) и разностных частот (ГРЧ) в нелинейных кристаллах. За счёт преобразования частоты излучения в нелинейных кристаллах можно значительно расширить возможности молекулярных газовых лазеров для решения различных задач лазерной физики. Преобразование излучения в нелинейных кристаллах позволяет значительно увеличить количество линий, пригодных для газового анализа, в том числе в вышеупомянутом окне прозрачности атмосферы (3.3–4.2 мкм). Методом генерации второй гармоники и генерации суммарных частот основной полосы СО-лазера в нелинейных кристаллах возможно получить излучение в интервале длин волн 2.3–4.3 мкм. Это излучение попадает в диапазон генерации обертонового СО-лазера, но длины волн второй гармоники и суммарных частот могут отличаться от длин волн обертонового излучения. В работе [64] был проведен подбор длин волн ГСЧ и ГРЧ излучения СО- и СО<sub>2</sub>-лазеров для детектирования таких веществ, как HCl, HBr, NO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, H<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>, HNO<sub>3</sub> и др.

При этом для преобразования частоты излучения лазеров нелинейные кристаллы должны иметь низкие оптические потери в диапазоне генерации излучения накачки (см. рисунок 1.4, на котором приведены графики зависимости коэффициентов поглощения кристаллов ZnGeP<sub>2</sub>, CdSiP<sub>2</sub>, GaAs, GaP от длины волны) и преобразованного излучения, высокое оптическое качество, высокую нелинейность, высокий порог оптического разрушения и достаточное двулучепреломление для осуществления фазового синхронизма.

Из большого числа широко используемых в прикладной оптике нелинейных кристаллов для преобразования излучения в среднем ИК-диапазоне подходят, например, Te, CdGeAs<sub>2</sub>, AgGaSe<sub>2</sub>, AgGaS<sub>2</sub>, ZnGeP<sub>2</sub> и GaSe [65].

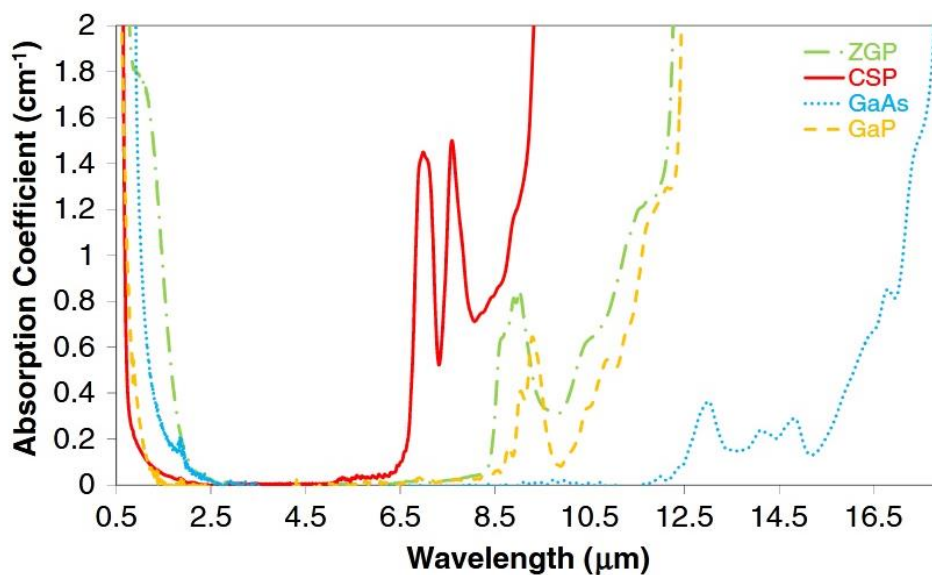


Рисунок 1.4 — Графики зависимости коэффициентов поглощения кристаллов  $\text{ZnGeP}_2$ ,  $\text{CdSiP}_2$ , GaAs, GaP [66]

В работе [67] был проведен сравнительный обзор эффективности генерации второй гармоники излучения  $\text{CO}_2$ -лазера в различных анизотропных кристаллах, прозрачных в ИК-диапазоне. Экспериментально сравнивались следующие кристаллы:  $\text{HgGa}_2\text{S}_4$  толщиной 3.5 мм,  $\text{AgGa}_x\text{In}_{(1-x)}\text{Se}_2$  толщиной 10 мм,  $\text{ZnGeP}_2$  толщиной 3 мм, кристаллы GaSe с примесями серы (0.5% от общей массы) и индия (0.5% от общей массы) толщиной 5 мм и 3 мм соответственно. Все изучаемые в эксперименте кристаллы обладают коэффициентом пропускания более 40% в ИК-диапазоне. Работа [67] примечательна тем, что в ней проведено сравнение эффективности ГВГ в нескольких кристаллах при одинаковой оптической накачке. Результаты эксперимента показали, что, несмотря на то что кристалл  $\text{ZnGeP}_2$  обладает наибольшими показателями нелинейности и двулучепреломления из использованных [67], для решения задачи ГВГ, ГРЧ и ГСЧ он уступает кристаллам  $\text{AgGa}_x\text{In}_{(1-x)}\text{Se}_2$  и GaSe:S, которые среди перечисленных являются наиболее эффективными для решения данной задачи. Но при этом  $\text{ZnGeP}_2$  оказался эффективнее  $\text{HgGa}_2\text{S}_4$  и GaSe:In.

Положительный одноосный кристалл  $\text{ZnGeP}_2$  имеет третий по величине нелинейный коэффициент среди представленных в справочнике кристаллов [65], уступая только кристаллам Te и  $\text{CdGeAs}_2$ . Спектр прозрачности  $\text{ZnGeP}_2$  находится



в диапазоне от 1 до 12 мкм (рисунок 1.4). Этот кристалл имеет достаточное двулучепреломление для выполнения условий синхронизма различных трёхчастотных взаимодействий. Кристаллы  $\text{ZnGeP}_2$  имеют максимально высокие механические свойства и лучевую стойкость среди представленных кристаллов, большую стойкость к влажности и термическим ударам, достаточно хорошо поддаются послеростовой обработке. По совокупности механических и оптических свойств кристаллы  $\text{ZnGeP}_2$  являются наиболее предпочтительными для создания на их основе преобразователей частоты излучения среднего ИК-диапазона. Иногда этот кристалл называют стандартом нелинейных кристаллов среднего ИК-диапазона [68]. Наибольшее число экспериментальных работ по преобразованию частоты излучения СО-лазера проведено с использованием именно этого кристалла.

Так, в работе [69] была получена ГВГ излучения непрерывного СО-лазера в кристалле  $\text{ZnGeP}_2$  в область спектра 2.3–3.1 мкм. Выходная мощность непрерывного СО-лазера составляла 8.5 Вт. Около 70% мощности приходилось на 8 сильных линий излучения. Мощность преобразованного излучения составила 0.2–1.1 мВт, эффективность преобразования достигала 0.01%. Была также осуществлена генерация второй гармоники на отдельной линии, выделенной с помощью дифракционной решетки. При мощности излучения накачки 0.8 Вт мощность излучения второй гармоники составляла 2 мкВт.

В работе [70] осуществлена генерация излучения суммарной частоты  $\text{CO}_2$  и СО-лазеров в кристалле  $\text{ZnGeP}_2$ . В экспериментах использовались серийные  $\text{CO}_2$  лазер ИЛГН-704 с мощностью 5.7 Вт и СО-лазер ИЛГН-706 с мощностью 4.7 Вт, работающие в непрерывном режиме. Генерация суммарной частоты при трехчастотном взаимодействии I типа наблюдалась при угле синхронизма  $56^\circ$ . Выходная средняя мощность излучения на суммарной частоте достигала  $\sim 0.6$  мВт. В работе получено также преобразование излучения СО-лазера во вторую гармонику с мощностью  $\sim 1$  мВт, измерены углы и угловая ширина фазового синхронизма.

Удвоение частоты излучения СО-лазера с модуляцией добротности резонатора (МДР) исследовалось в работах [71, 72]. В работе [71] по сравнению с работой [70], использовался более качественный кристалл  $\text{ZnGeP}_2$  (коэффициент поглощения  $0.1 \text{ см}^{-1}$  в области спектра 3–8 мкм). Режим МДР СО-лазера был осуществлен с помощью вращающегося зеркала, помещенного внутрь резонатора. Частота модуляции изменялась в интервале от 10 до 200 Гц, средняя мощность излучения при этом изменялась в интервале от 60 до 250 мВт, а пиковая мощность достигала 350-500 Вт. Максимальная средняя мощность второй гармоники составила 4 мВт при мощности излучения накачки 194 мВт и частоте модуляции 89 Гц. Максимальный внешний коэффициент преобразования излучения во вторую гармонику составил  $\sim 3\%$ .

В работе [72] использовался СО-лазер с МДР и охлаждением проточной водой ( $t \sim 10^\circ\text{C}$ ) аналогичный лазеру, используемому в работе [71], генерирующий на 80 линиях при частоте модуляции от 10 до 200 Гц. В качестве нелинейной среды использовался тот же, что и в [71] непросветленный кристалл  $\text{ZnGeP}_2$  длиной 12 мм. Внешняя эффективность преобразования излучения составила 4.9%, что соответствует внутренней эффективности  $\sim 10\%$ . Спектр преобразованного излучения составил более 200 линий в области 2.6–3.2 мкм. Средняя мощность второй гармоники составила 8.8 мВт при средней мощности накачки 180 мВт.

В работе [73] экспериментально исследовано удвоение частоты излучения селективных и неселективных лазеров на монооксиде углерода в нелинейных кристаллах  $\text{ZnGeP}_2$  и  $\text{GaSe}$ . Изучена ГВГ излучения электроионизационного СО-лазера в кристалле  $\text{ZnGeP}_2$  как в режиме синхронизации мод, так и в режиме свободной генерации. При этом при синхронизации мод достигалась внешняя эффективность преобразования частоты до 3.5% (что соответствует внутренней эффективности преобразования 7%). Обсуждается возможность создания методами нелинейной кристаллооптики широкодиапазонного источника когерентного излучения среднего инфракрасного и терагерцового диапазонов спектра на основе лазеров на монооксиде углерода.

Чтобы исследовать преобразование частоты излучения СО-лазера, в работе [73] пучок мощных наносекундных пачков излучения ЭИ СО-лазера был впервые использован для ГВГ излучения в нелинейных оптических кристаллах. Исследование временной динамики импульса излучения ГВГ, преобразованного в кристалле  $ZnGeP_2$ , выявило, что в процессе генерации излучения накачки нарушался режим синхронизации мод. Излучение сохраняло форму последовательности пачков, следовавших с периодом 100 нс, но сбой синхронизации мод приводил к увеличению длительности пучков и к уменьшению пиковой мощности, что снижало эффективность преобразования излучения в нелинейном кристалле.

Удвоение частоты излучения СО-лазера, работающего в режиме синхронизации мод, также исследовалось в работе, где в качестве нелинейной среды использовался кристалл  $ZnGeP_2$  длиной 17 мм [74]. Внутренняя эффективность преобразования излучения достигала 25% за счёт стабилизации режима синхронизации мод и увеличения пиковой мощности излучения накачки в схеме «задающий генератор — усилитель мощности». Была оценена возможность ГРЧ основной полосы и первого обертона СО-лазера для охвата спектрального диапазона  $\sim 4.0\text{--}5.0$  мкм и возможность получения спектрального диапазона  $\sim 1.25\text{--}10$  мкм за счёт смешивания различных комбинаций линий СО-лазера.

В работе [75] была экспериментально получена генерация излучения в спектральном интервале 4.3–4.9 мкм, являющимся окном прозрачности атмосферы. Осуществлено коллинеарное двухкаскадное преобразование частоты СО-лазера в одном образце нелинейного кристалла  $ZnGeP_2$ . В первом каскаде преобразования было получено излучение ГСЧ (2.45–2.85 мкм) основной полосы генерации СО-лазера (4.9–6.3 мкм), во втором – путем генерации разностных частот при смешении суммарных частот и основной полосы генерации излучения СО-лазера в том же кристалле  $ZnGeP_2$  было получено излучение в диапазоне 4.3–4.9 мкм. На рисунке 1.5 представлены спектры излучения основной полосы, второй гармоники, суммарных и разностных частот, а также спектр пропускания лабораторного воздуха. Отмечено, что реализация ГРЧ и ГСЧ одновременно в

одном образце кристалла существенно уменьшает потери на отражение от его поверхностей и экономит нелинейно-оптический материал.

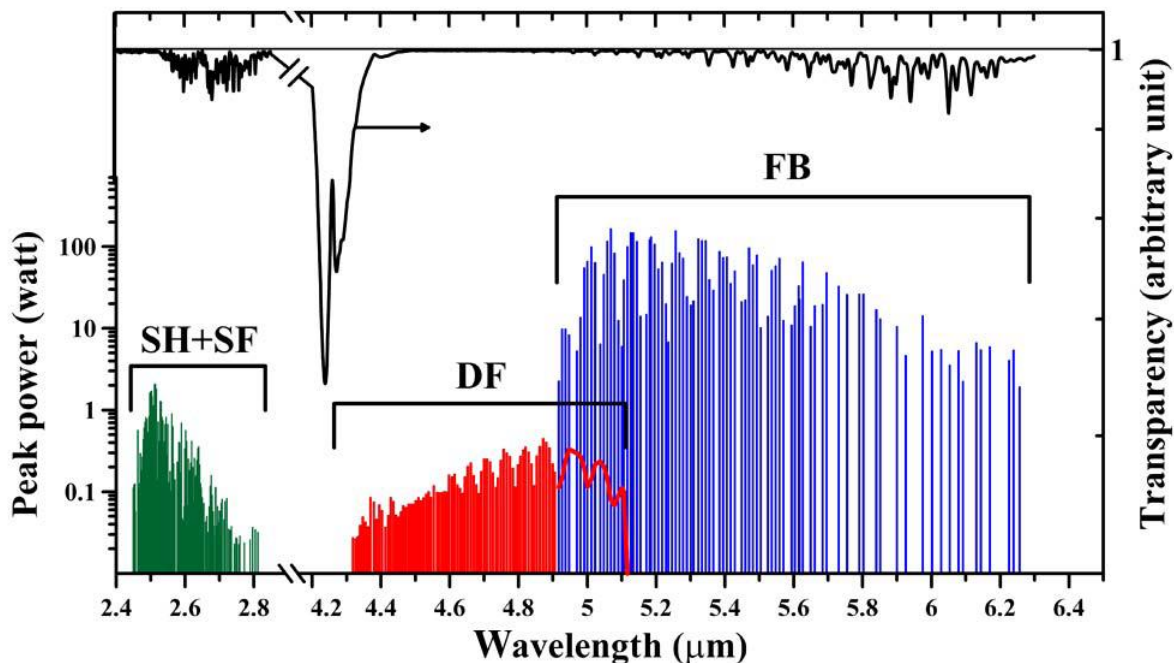


Рисунок 1.5 — Спектр излучения основной полосы (FB), второй гармоники (SH), суммарных частот (SF), разностных частот (DF), и спектр пропускания лабораторного воздуха [75]

Позднее в работе [24] были расширены спектры ГРЧ и ГСЧ такого двухкаскадного преобразования и проведены теоретические расчеты спектра излучения генерации разностных и суммарных частот. Результаты теоретических расчетов представлены на рисунке 1.6.

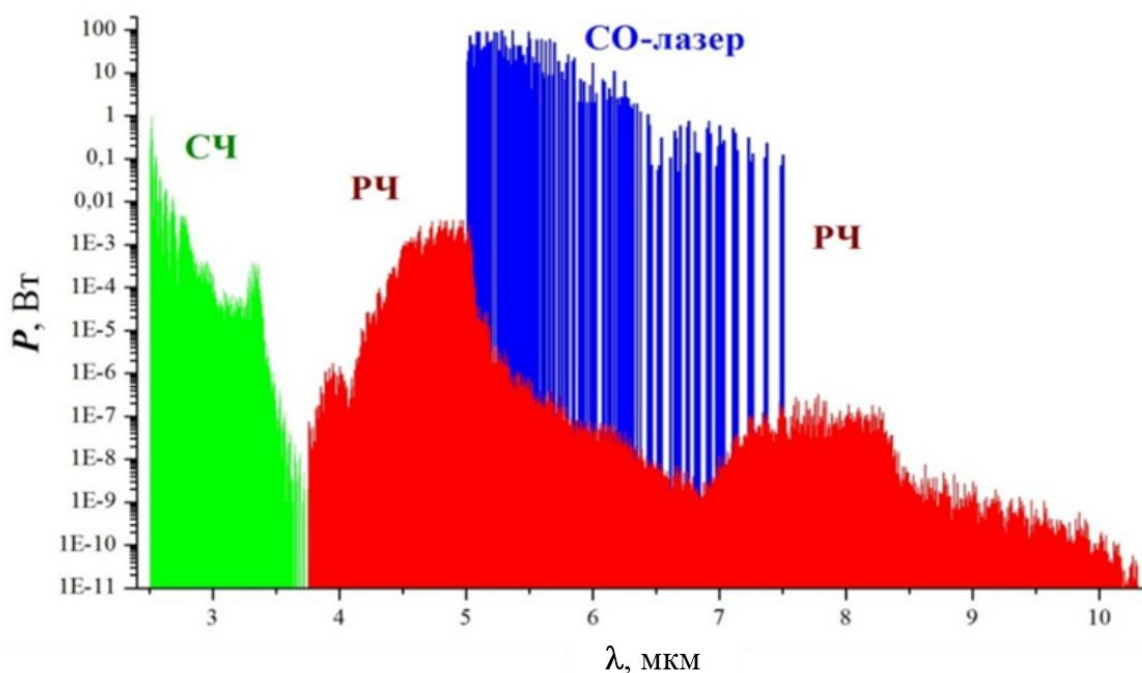


Рисунок 1.6 — Рассчитанные спектры излучения суммарных и разностных частот для измеренного спектра излучения СО-лазера накачки [24]

Анализ рассчитанного спектра показал, что увеличение мощности излучения накачки и чувствительности измерений приведет к увеличению количества зарегистрированных линий излучения ГСЧ в интервале 2.5–3.7 мкм. Эти же расчеты [24] указывают на то, что на базе одного образца нелинейного кристалла  $\text{ZnGeP}_2$  с накачкой излучением одного СО-лазера можно создать источник широкополосного (более двух октав) лазерного излучения, действующий, по крайней мере, в интервале длин волн 2.5–10.3 мкм.

В работе [76] впервые была реализована широкополосная генерация суммарных частот в кристалле  $\text{ZnGeP}_2$  с помощью компактного щелевого криогенного СО-лазера с возбуждением ВЧ разрядом, работающего в режиме МДР. Спектр СО-лазера состоял из  $\sim 90$  линий в диапазоне длин волн 4.95–6.60 мкм. Внутренний коэффициент эффективности преобразования достигал 8.2%. Полученный спектр ГСЧ состоял из  $\sim 200$  линий в диапазоне длин волн 2.5–3.2 мкм.

В работе [77] была исследована ГВГ излучения созданной селективной СО-лазерной системы как с МДР, так и синхронизацией мод в нелинейном кристалле  $\text{ZnGeP}_2$ . Максимальная мощность излучения ГВГ с длиной волны  $\lambda = 2.6$  мкм

наблюдалась при угле фазового синхронизма  $47.3^\circ$  (первый каскад преобразования). Внутренняя эффективность преобразования (с учётом френелевских потерь) при ГВГ достигала 37%. Также было продемонстрировано двухкаскадное преобразование частоты (включающее ГВГ и ГРЧ) в кристалле  $\text{ZnGeP}_2$  при накачке коротким цугом импульсов СО-лазера, работающего на двух спектральных линиях из разных колебательных диапазонов. Внутренняя эффективность данного двухкаскадного преобразователя частоты достигала 14% для ГВГ и 1.4% для ГРЧ.

Другим интересным кристаллом для преобразования частоты излучения СО-лазера является отрицательный одноосный слоистый полупроводниковый кристалл GaSe. Основное преимущество кристалла GaSe – хорошая прозрачность в широком диапазоне длин волн от 0.62 до 18 мкм [78]. Также этот кристалл имеет минимальное поглощение среди известных кристаллов в широком длинноволновом диапазоне 0.1–10 ТГц. Кристалл GaSe обладает высоким двулучепреломлением (0.375 на длине волны 10.6 мкм), что обеспечивает выполнение условий синхронизма для различных трехволновых взаимодействий во всей области его спектральной прозрачности. Благодаря своим линейным оптическим свойствам, он превосходит все перечисленные кристаллы по возможности реализации различных типов параметрических преобразований, а по нелинейным и тепловым свойствам близок к кристаллу  $\text{ZnGeP}_2$ . Однако кристаллы GaSe имеют ряд недостатков: мягкость, хрупкость, низкую теплопроводность, возможна только одна ориентация (вдоль плоскости (001)). Плохая спаянность слоёв обусловила лёгкое расслоение и маленькую твёрдость этих кристаллов. В силу этих причин они имеют небольшую лучевую стойкость. Эти кристаллы не поддаются механической обработке и невозможно изготовление рабочих элементов с произвольной ориентацией. Большой показатель преломления ( $\sim 2.5$ – $3.0$ ) ограничивает угол ввода излучения в кристалл, что делает невозможным на практике настроиться на направление фазового синхронизма для некоторых типов преобразования без применения особых усилий по вводу излучения в кристалл. Всё вышесказанное ограничивает их применение. Для повышения механических

свойств, в кристаллы GaSe добавляют различные примеси. В настоящее время легирование этих кристаллов такими элементами, как In, Te или S, оказывается наиболее эффективным с точки зрения повышения механических свойств и сохранения хороших оптических качеств (см., например, [79]).

В упомянутой ранее работе [73] изучена ГВГ электроионизационного СО-лазера в кристалле GaSe при накачке низкой интенсивности ( $\sim 0.2$  оптического порога разрушения). При этом достигалась внешняя эффективность преобразования частоты до 0.15% (что соответствует внутренней эффективности преобразования 0.3%).

В работе [77] была исследована генерация второй гармоники (ГВГ) излучения созданной СО-лазерной системы в нелинейном кристалле GaSe. Максимальная эффективность ГВГ при накачке кристалла излучением СО-лазера с длиной волны  $\lambda = 5.2$  мкм достигала 5% и наблюдалась при угле падения излучения на кристалл GaSe  $30.5^\circ$ , что соответствует углу фазового синхронизма  $10.7^\circ$ .

Кристаллы  $\text{AgGaS}_2$  и  $\text{AgGaSe}_2$  имеют широкий диапазон прозрачности близкий к диапазону прозрачности кристаллов GaSe. Однако нелинейный коэффициент кристаллов  $\text{AgGaS}_2$  и  $\text{AgGaSe}_2$  в 15 и 4 раза меньше, чем у кристалла GaSe [80], соответственно.

В работе [81] реализовано селективное двухкаскадное преобразование (генерация второй гармоники и разностной частоты) в нелинейном кристалле  $\text{AgGaSe}_2$ . При этом внешняя эффективность преобразования составила 0.52%. С учётом френелевских потерь на отражение от непросветленных граней кристалла это соответствует внутренней эффективности преобразования 1%. Получен спектр ГВГ излучения в диапазоне от  $\sim 2.5$  мкм до  $\sim 2.9$  мкм, а спектр ГРЧ излучения: 4.38–4.85 мкм.

Поэтому эти кристаллы оказались менее эффективными для преобразования частоты излучения СО- и СО<sub>2</sub>-лазеров и не получили широкого применения.

В работе [22] было описано создание лазерного источника, действующего в окнах прозрачности атмосферы с 3–5 мкм, 8–14 мкм и 16–22 мкм, путём ГСЧ и ГРЧ излучения СО- и СО<sub>2</sub>-лазеров. Стоит отметить, что активной в поглощении ИК-

излучения модой молекулы гексафторида урана  $UF_6$  является колебание  $\nu_3 \approx 627.7 \text{ см}^{-1}$  ( $\sim 16 \text{ мкм}$ ) [82], что делает источник, излучающий на длине волны 16 мкм, привлекательным для лазерного разделения изотопов урана. В экспериментах с нелинейным кристаллом GaSe спектр излучения СО-лазера состоял из  $\sim 80$  спектральных линий с длинами волн от 5.1 до 6.8 мкм с суммарной пиковой мощностью до 1 кВт. Спектр  $CO_2$ -лазера состоял из двух сильных спектральных линий 9 R(18) and 9 P(22) с длинами волн 9.28 и 9.56 мкм соответственно. Мощность этих двух линий составляла 85% от всей мощности  $CO_2$ -лазера. Суммарная пиковая мощность  $CO_2$ -лазера в режиме МДР превышала 1 кВт. В спектре ГСЧ излучения СО-лазера наблюдалось 33 линии в интервале длин волн от 3.25 до 3.8 мкм. В спектре ГРЧ зарегистрировано 22 линии в интервале длин волн от 11.6 до 13.1 мкм. При этом внутренние (внутри кристалла GaSe) углы фазового синхронизма менялись от  $18.6^\circ$  до  $19.6^\circ$ . В кристалле  $AgGaSe_2$  был получен более широкий спектр ГРЧ (от 12 до  $\sim 16 \text{ мкм}$ ). При этом внутренний угол фазового синхронизма  $\theta$  изменялся от  $52^\circ$  до  $73^\circ$ . Данное исследование показало перспективность преобразования частоты излучения СО-лазера в нелинейных кристаллах для создания широкополосных или перестраиваемых лазерных источников в среднем ИК-диапазоне, излучение которых попадает в окна прозрачности атмосферы.

Кристаллы Te и  $CdGeAs_2$  обладают наибольшими значениями нелинейного коэффициента и широкими диапазонами прозрачности. Поэтому потенциально они являются наиболее эффективными для преобразования частоты излучения в среднем ИК диапазоне. Однако эти кристаллы обладают высокими оптическими потерями в области генерации СО-лазера и требуют криогенного охлаждения [83, 84]. Но несмотря на это, в кристаллах  $CdGeAs_2$  и  $HgGaSe$  активно исследовалась ГРЧ излучения СО- и  $CO_2$ -лазеров [85, 86]. В работах [85, 86] лазеры работали в непрерывном режиме генерации и могли перестраиваться по частоте с помощью дифракционной решетки. Получена генерации излучения на разностной частоте СО- и  $CO_2$ -лазеров на длинах волн от 11.4 мкм до 16.8 мкм. Эффективность преобразования не указана.



Кристалл  $\text{PbIn}_6\text{Te}_{10}$  является новым нелинейно оптическим материалом. Достоинством этого кристалла является уникально широкий диапазон прозрачности, перекрывающий диапазон длин волн от 1.7 до 31 мкм без наличия пиков фононного поглощения [87]. Этот кристалл обладает высокой твердостью и приемлемым двулучепреломлением. Важный недостаток этого кристалла – это низкая теплопроводность и характерная в этом случае низкая лучевая стойкость. Кроме того, при выращивании кристалла наблюдается неоднородность стехиометрического состава кристалла и, соответственно, неоднородность оптических свойств, таких как двулучепреломление.

Несмотря на это в работе [88] показано преобразование частоты СО-лазера в кристалле  $\text{PbIn}_6\text{Te}_{10}$ . Рассчитанные углы фазового синхронизма показывают возможность преобразования частоты во всем диапазоне прозрачности. Была экспериментально получена ГСЧ излучения СО-лазера в диапазоне длин волн 2.57–2.78 мкм, при этом эффективность преобразования была  $\sim 0.01\%$ , что существенно меньше, чем для кристаллов  $\text{AgGaSe}_2$  и  $\text{ZnGeP}_2$ , полученных при тех же условиях. Также была получена ГРЧ излучения СО- и  $\text{CO}_2$ -лазеров в лазерной установке с одновременной модуляции добротности резонаторов, описываемой в [22]. По результатам экспериментов кристалл  $\text{PbIn}_6\text{Te}_{10}$  уступает по основным показателям в сравнении с другими кристаллами, такими как  $\text{GaSe}$ ,  $\text{ZnGeP}_2$  и  $\text{AgGaSe}_2$ . Однако данный кристалл может быть эффективен для преобразования излучения в длинноволновую часть среднего ИК-диапазона ( $\sim 20$  мкм) за счёт своего широкого диапазона прозрачности.

Итак, на данный момент была реализована генерация суммарных частот СО-лазера в кристаллах  $\text{ZnGeP}_2$  [76],  $\text{AgGaSe}_2$  [81],  $\text{GaSe}$  [74], и  $\text{PbIn}_6\text{Te}_{10}$  [88] с внутренними коэффициентами преобразования 8.2%, 1%, 0.3% и 0.01%, соответственно, полученные при схожих условиях.

На рисунке 1.7 представлено пропускание этих нелинейных кристаллов от длины волны.

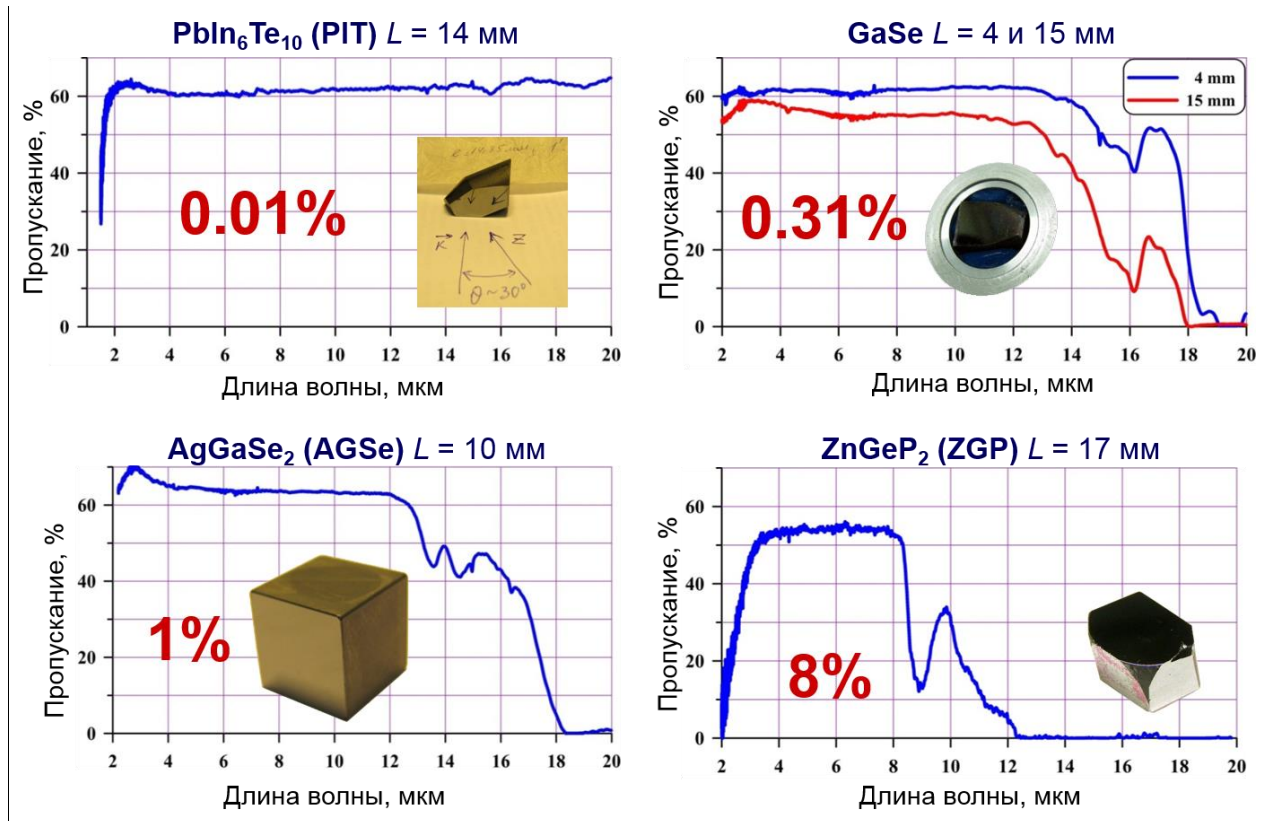


Рисунок 1.7 — Зависимость пропускания различных одноосных кристаллов (без просветляющего покрытия) от длины волны

Для получения максимальной эффективности генерации суммарных частот излучения СО-лазера в кристалле необходимо, чтобы выполнялось условие «некритичного» фазового синхронизма. Оно заключается в следующем. Для простоты рассмотрена генерация второй гармоники. На рисунке 1.8 проиллюстрирована зависимость угла фазового синхронизма от длины волны накачки для ГВГ в кристаллах GaSe, AgGaSe<sub>2</sub> (AGSe), PbIn<sub>6</sub>Te<sub>10</sub> (PIT) и ZnGeP<sub>2</sub> (ZGP). Рисунок дает хорошее представление о том, для какого диапазона длин волн будет происходить наиболее широкое преобразование длин волн. Для кристаллов GaSe, AGSe и ZGP в области генерации СО-лазера на кривой фазового синхронизма имеется минимум, вблизи которого за счёт угловой ширины фазового синхронизма для достаточно широкого диапазона длин волн возможно преобразовывать многочастотное излучение данного лазера. На рисунках выделена область, границы которой соответствуют длинам волн для угла фазового синхронизма, на 3° больше экстремального значения. Преобразование будет наиболее эффективным для излучения в диапазоне длин волн выделенной области.

Для кристалла GaSe эта область шириной  $\sim 5$  мкм, для  $\text{AgGaSe}_2 \sim 3.8$  мкм, для  $\text{ZnGeP}_2 \sim 3.7$  мкм. Для кристалла  $\text{PbIn}_6\text{Te}_{10}$  область не критичного фазового синхронизма составляет  $\sim 4.3$  мкм, однако она не попадает в диапазон генерации СО-лазера. Поэтому и коэффициент преобразования в кристалле  $\text{PbIn}_6\text{Te}_{10}$  составляет только 0.01%.

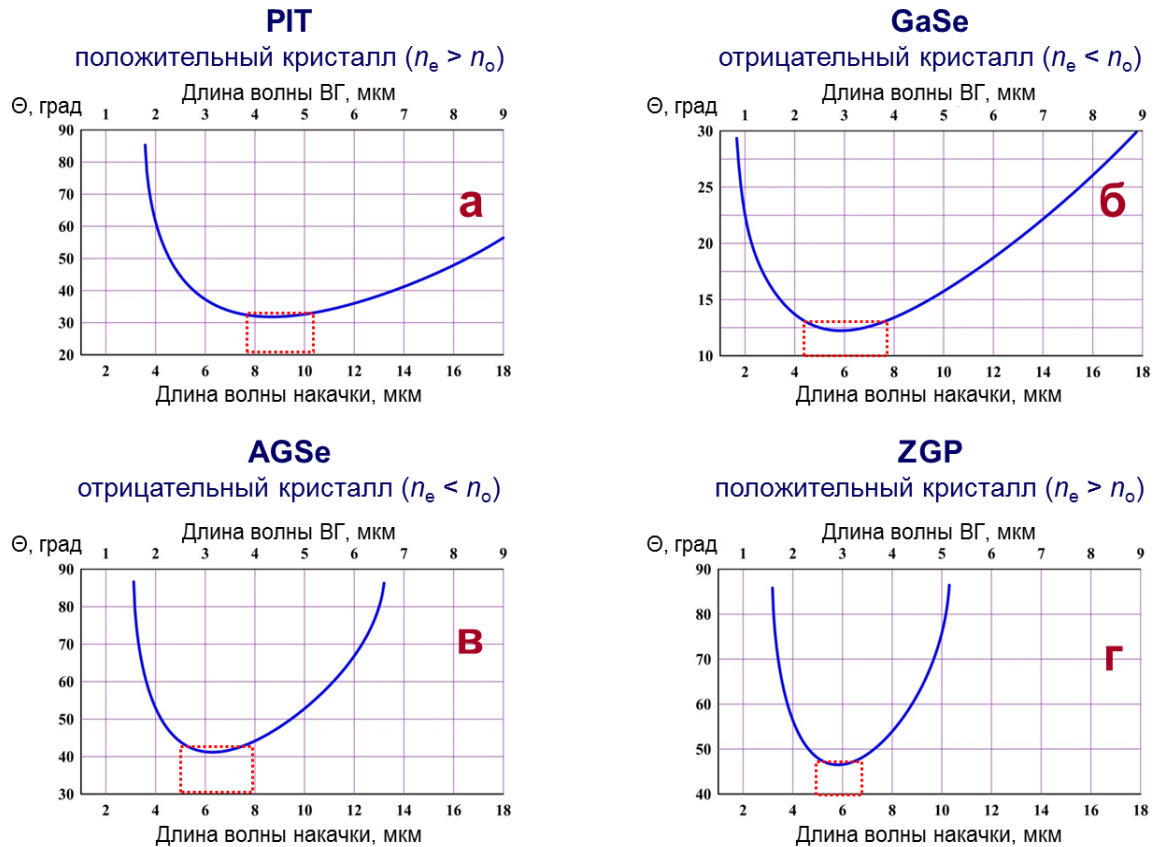


Рисунок 1.8 — Кривые фазового синхронизма для ГВГ в нелинейных кристаллах: а –  $\text{PbIn}_6\text{Te}_{10}$ , б – GaSe, в –  $\text{AgGaSe}_2$ , г –  $\text{ZnGeP}_2$  [89]

Еще одним перспективным кристаллом для преобразования излучения СО-лазера является одноосный нелинейный кристалл  $\text{BaGa}_2\text{GeSe}_6$ , впервые выращенный в 2016 году [90] (внешний вид кристалла и его пропускание представлены на рисунке 1.9). Данный кристалл имеет широкий спектральный диапазон пропускания (от 0.5 до 18 мкм), что делает этот кристалл очень привлекательным для преобразования частоты лазерного излучения в среднем ИК-диапазоне.

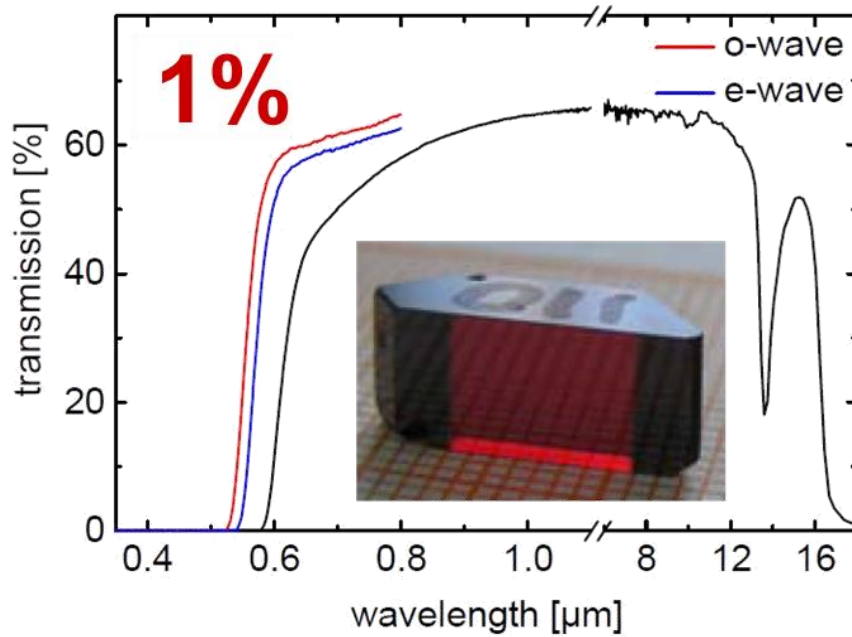


Рисунок 1.9 — Нелинейный кристалл  $\text{BaGa}_2\text{GeSe}_6$ , зависимость пропускания от длины волны [90]

В работе [90] уже была реализована ГВГ излучения ТЕА  $\text{CO}_2$ -лазера (лазер излучал одиночные импульсы длительностью 100 нс с длиной волны 10.6 мкм) в кристалле  $\text{BaGa}_2\text{GeSe}_6$  толщиной 4.7 мм, срезанным под углом  $\theta = 36^\circ$  и  $\varphi = 30^\circ$ , где  $\theta$  – полярный,  $\varphi$  – азимутальный углы в координатном пространстве кристалла. В соответствии со стандартами точечной группы 3, ось  $x$  выбрана параллельной одной из кристаллографической оси  $a$ , ось  $z$  – кристаллографической оси  $c$ , ось  $y$  выбрана так, чтобы сформировать право ориентированный ортогональный базис. Авторы статьи показали, что у кристалла  $\text{BaGa}_2\text{GeSe}_6$  оптический порог разрушения ( $\sim 110 \text{ МВт/см}^2$ ) значительно выше, чем у упомянутых выше кристаллов. Например, при тех же условиях у кристалла  $\text{ZnGeP}_2$  порог разрушения  $78 \text{ МВт/см}^2$  [78].

На рисунке 1.10 представлена зависимость угла фазового синхронизма от длины волны накачки для ГВГ в нелинейном кристалле  $\text{BaGa}_2\text{GeSe}_6$ . В данном кристалле также возможен некритичный фазовый синхронизм и осуществление широкополосного двухкаскадного преобразования частоты  $\text{CO}$ -лазера. Ранее подобное преобразование было реализовано в кристаллах  $\text{ZnGeP}_2$  [24] и  $\text{AgGaSe}_2$  [81]. При этом наивысший коэффициент преобразования и наиболее широкий

спектр при двухкаскадном преобразовании частот был получен в кристалле  $\text{ZnGeP}_2$ .

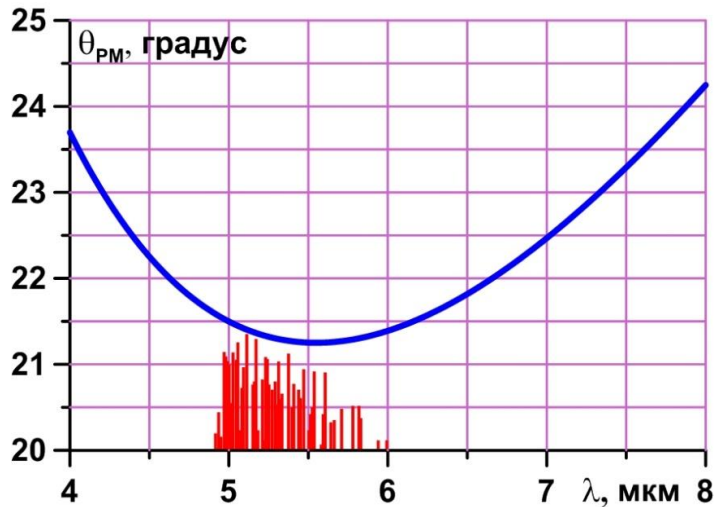


Рисунок 1.10 — Зависимость угла фазового синхронизма от длины волны накачки для ГВГ в нелинейном кристалле  $\text{BaGa}_2\text{GeSe}_6$  и спектр излучения СО-лазера

В работе [91] было проведено численное моделирование нелинейно-оптических характеристик кристалла  $\text{BaGa}_2\text{GeSe}_6$  и его сравнение с такими хорошо известными кристаллами, как  $\text{ZnGeP}_2$ ,  $\text{GaSe}$  и  $\text{AgGaSe}_2$ . В данной работе теоретически показано, что перекачка мощности СО-лазера во вторую гармонику при одних и тех же условиях в данном кристалле происходит на длине взаимодействия меньшей, чем в других кристаллах ( $\text{ZnGeP}_2$ ,  $\text{GaSe}$  и  $\text{AgGaSe}_2$ ) (рисунок 1.11).

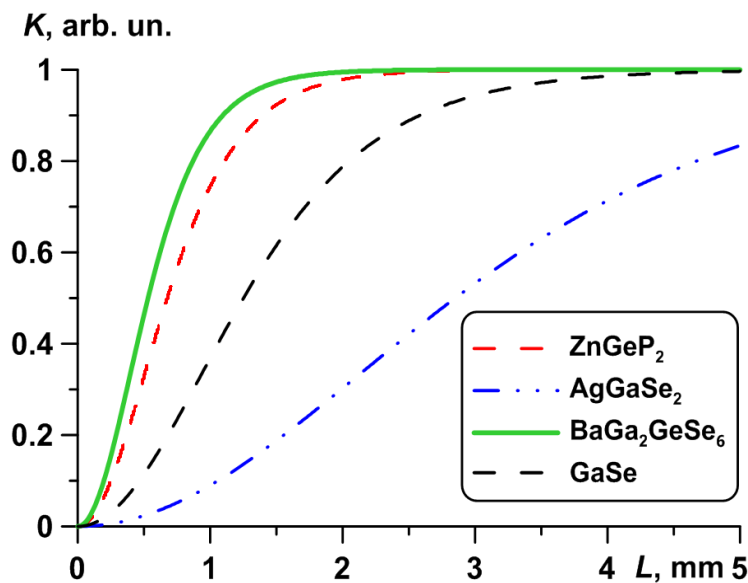


Рисунок 1.11 — Рассчитанная зависимость эффективности ГСЧ от длины нелинейных кристаллов [91]

Также в этой работе приводилось численное моделирование широкополосного двухкаскадного преобразования частоты излучения СО-лазера в нелинейных кристаллах  $\text{BaGa}_2\text{GeSe}_6$  и  $\text{ZnGeP}_2$  при одних и тех же условиях.

Рассчитанный спектр излучения ГСЧ, получаемый на первом каскаде преобразования, представлен на рисунке Рисунок 1.12 слева. Спектр ГРЧ, рассчитанный для смещения основной полосы СО-лазера и суммарной частоты, — на рисунке 1.12 справа.

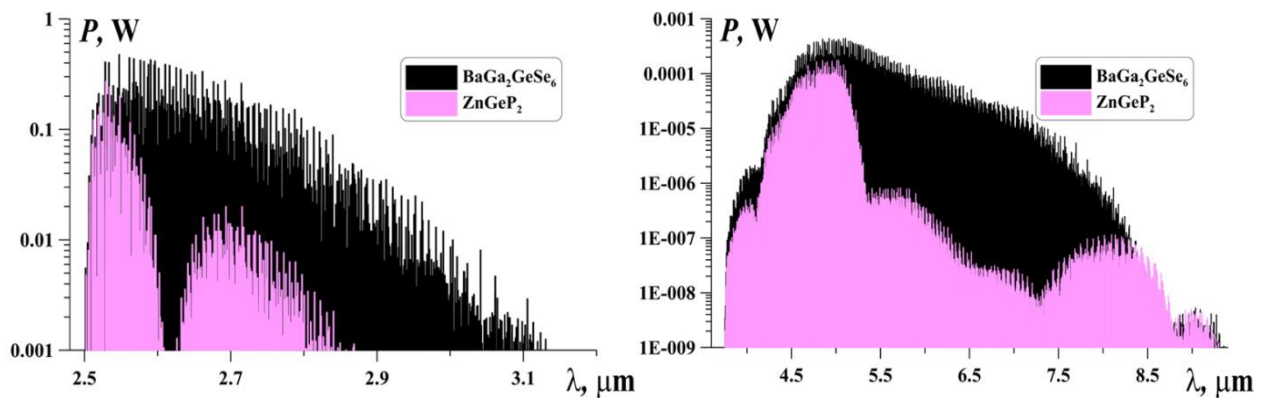


Рисунок 1.12 — Рассчитанные спектры излучения ГСЧ (слева) и ГРЧ (справа), рассчитанный для кристаллов  $\text{BaGa}_2\text{GeSe}_6$  и  $\text{ZnGeP}_2$  [91]

Спектр ГСЧ, рассчитанный для кристалла  $\text{BaGa}_2\text{GeSe}_6$ , как видно из рисунка 1.12, шире и имеет большую пиковую мощность, чем для  $\text{ZnGeP}_2$ . Спектры ГРЧ имеют одинаковую ширину для обоих кристаллов, но мощность спектра для кристалла  $\text{BaGa}_2\text{GeSe}_6$  всё-таки выше. Расчеты, проведенные в работе [91] показали, что при одних и тех же условиях новый кристалл  $\text{BaGa}_2\text{GeSe}_6$  может быть приблизительно в 2 раза эффективней кристалла  $\text{ZnGeP}_2$ .

В исследовании по преобразованию широкополосного излучения СО-лазера в кристалле  $\text{BaGa}_2\text{GeSe}_6$  [92] при внерезонаторном варианте использовался тот же кристалл толщиной 4.7 мм, срезанным под углом  $\theta = 36^\circ$  и  $\varphi = 30^\circ$ , что и в работе [90]. Была проведена серия экспериментов с использованием линз с фокусными расстояниями 20, 11.5 и 6 см. Максимальная эффективность достигалась при угле падения на поверхность кристалла  $\sim 37^\circ$ , что соответствует углу фазового синхронизма  $\sim 22^\circ$  (рисунок 1.13).

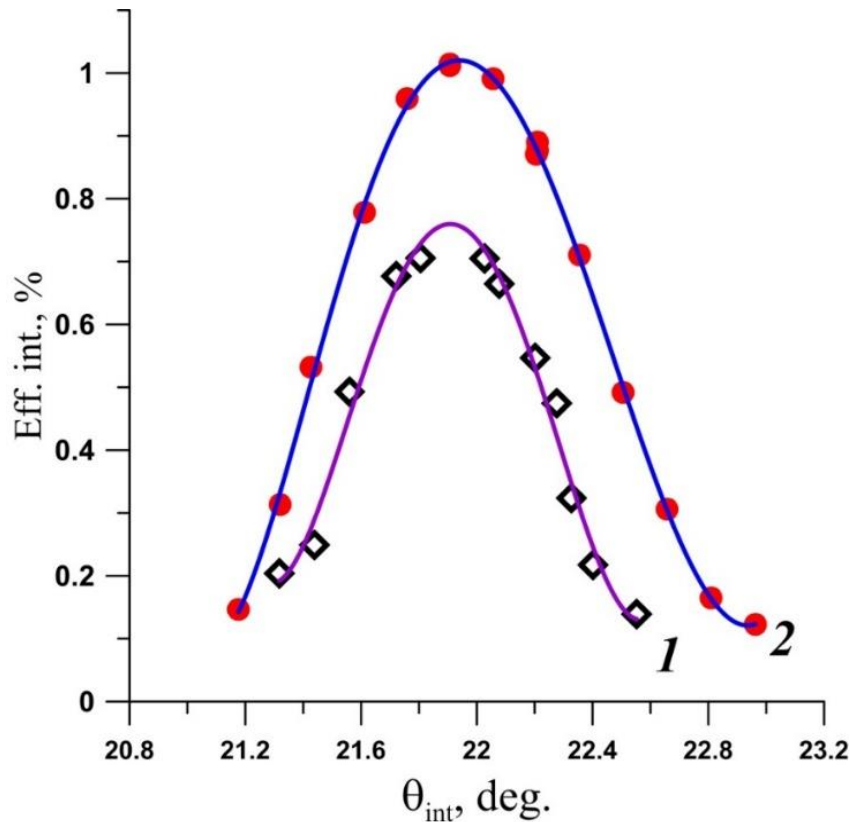


Рисунок 1.13 — Зависимость внутренней эффективности преобразования от угла фазового синхронизма при фокусном расстоянии 20 см (1) и 11.5 см (2) [92]

### 1.3 Выводы по главе

Из вышесказанного можно сделать вывод, что разработка лазерной системы среднего ИК-диапазона с большим числом узких ярких линий представляет интерес для большого числа приложений, в числе которых, например, газовый анализ. Примером такого лазера является лазер на окиси углерода. Более того, можно дополнительно увеличить число линий, обогатив и расширив спектр данного лазера за счёт преобразования его излучения в нелинейных кристаллах.

Таким образом, на момент начала выполнения диссертационной работы в научной литературе были отмечены следующие полученные результаты:

1. На данный момент была реализована генерация суммарных частот СО-лазера в кристаллах  $ZnGeP_2$  [76],  $AgGaSe_2$  [81],  $GaSe$  [74], и  $PbIn_6Te_{10}$  [88] с внутренними коэффициентами преобразования 8.2%, 1%, 0.3% и 0.01%, соответственно. Наибольшее число экспериментальных работ по

преобразованию частоты излучения СО-лазера проведено с использованием кристалла  $\text{ZnGeP}_2$ . Данный кристалл имеет высокие механические свойства и лучевую стойкость, а также высокую внутреннюю эффективность преобразования (до 8.2%).

2. Для кристаллов  $\text{ZnGeP}_2$ ,  $\text{AgGaSe}_2$ ,  $\text{GaSe}$  возможен не критичный фазовый синхронизм в диапазоне длин волн излучения СО-лазера и осуществление широкополосного двухкаскадного преобразования частоты СО-лазера. Данное преобразование было реализовано экспериментально в кристаллах  $\text{ZnGeP}_2$  и  $\text{AgGaSe}_2$ . При этом наивысший коэффициент преобразования и наиболее широкий спектр при двухкаскадном преобразовании частот был получен в кристалле  $\text{ZnGeP}_2$ .
3. Проведены первые эксперименты по преобразованию излучения СО-лазера в новом нелинейном кристалле  $\text{BaGa}_2\text{GeSe}_6$ , в которых было показано, что у кристалла  $\text{BaGa}_2\text{GeSe}_6$  высокий оптический порог разрушения ( $\sim 110 \text{ МВт/см}^2$ ), что делает данный кристалл интересным для внутрирезонаторного преобразования.
4. Был создан многочастотный  $\text{CO}_2$ -лазер с МДР. Использование данного лазера совместно с СО-лазером для смешения их излучения в нелинейном кристалле и генерации разностных частот может позволить охватить спектральный диапазон до  $\sim 16 \text{ мкм}$ .
5. Созданы компактные СО- и  $\text{CO}_2$ -лазерные установки с ВЧ-накачкой, работающие в импульсно-периодическом режиме.

Всё вышесказанное приводит к тому, чтобы в диссертации были решены следующие задачи.

1. Исследовать динамику генерации каждой колебательно-вращательной линии СО-лазера с МДР, провести численный расчёт генерации суммарной частоты с учетом динамики генерации СО-лазера.



2. Исследовать структуру спектра генерации суммарных частот излучения многолинейчатого СО-лазера и продемонстрировать возможность применения суммарных частот СО-лазера для газоанализа.
3. Исследовать внутрирезонаторную широкополосную ГСЧ многолинейчатого излучения щелевого СО-лазера с МДР в кристалле  $\text{BaGa}_2\text{GeSe}_6$  и внерезонаторную ГСЧ излучения СО-лазера и ГСЧ, полученных внутрирезонаторно, во втором образце кристалле  $\text{BaGa}_2\text{GeSe}_6$ .
4. Исследовать генерацию разностных частот излучения щелевых СО- и  $\text{CO}_2$ -лазеров в кристаллах  $\text{AgGaSe}_2$ ,  $\text{BaGa}_2\text{GeSe}_6$  и  $\text{PbIn}_6\text{Te}_{10}$ .

## Глава 2. Экспериментальные установки

В экспериментах по исследованию динамики генерации излучения СО-лазера (глава 3) и исследованию структуры спектра генерации суммарных частот излучения многочастотного СО-лазера в кристалле  $ZnGeP_2$  (глава 4) использовался криогенный СО-лазер низкого давления с накачкой разрядом постоянного тока, работающий в режиме МДР. В экспериментах по генерации суммарных частот излучения СО-лазера в новом нелинейном кристалле  $BaGa_2GeSe_6$  в диапазонах длин волн 2.45–2.95 мкм и 1.7–1.9 мкм (глава 5) и преобразованию излучения СО- и  $CO_2$ -лазеров в диапазон длин волн 12–19.3 мкм (глава 6) использовались компактные криогенные щелевые СО- и  $CO_2$ -лазеры с накачкой ёмкостным ВЧ-разрядом, также работающие в режиме МДР. Все установки были разработаны и изготовлены в Лаборатории Газовых лазеров ФИАН.

### 2.1 Криогенный СО-лазер низкого давления с накачкой разрядом постоянного тока

В экспериментах по исследованию динамики генерации излучения СО-лазера и исследованию структуры спектра генерации суммарных частот излучения многочастотного СО-лазера в кристалле  $ZnGeP_2$  использовался криогенный СО-лазер низкого давления с накачкой разрядом постоянного тока. Внешний вид данного лазера представлен на рисунке 2.1.

Схематичная конструкция данного СО-лазера представлена на рисунке 2.2. В ванну 1 из мелкопористого пенопласта заливается жидкий азот. В ней размещена кварцевая трубка 2, длина которой 1.2 м, внутренний диаметр – 18 мм, а толщина стенки – 2.5 мм. Длина охлаждаемой части трубки составляет 0.95 м. Глубокое охлаждение стенок трубки приводит к тому, что на них конденсируются вещества, образующиеся в плазме газового разряда (углерод,  $CO_2$ , озон), при этом изменяется состав газовой смеси активной среды. Поэтому в экспериментах газовая смесь медленно прокачивалась через область разряда и за счёт этого обновлялась.

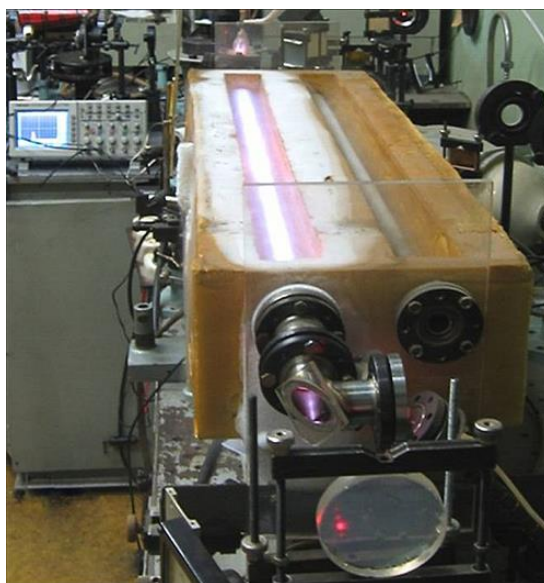


Рисунок 2.1 — Криогенный СО-лазер низкого давления с накачкой разрядом постоянного тока

Рабочая газовая смесь готовилась из газов СО, Не, N<sub>2</sub> и воздух, которые предварительно заполнялись в ёмкости, поддерживаемые при постоянном давлении 1 атм. При помощи кранов-натекателей 9 осуществлялась подача газовых компонент в смесительный ресивер 7. Из ресивера через азотную ловушку 6, предназначенную для вымораживания паров воды и других содержащихся в исходных газах примесей, смесь поступала в кварцевую трубку 2 и после ее прохождения удалялась вакуумным насосом, скорость откачки при этом изменялась с помощью регулировочного вентиля.

Напряжение на разрядной трубке (9–15 кВ) поддерживалось с помощью блока питания промышленного лазера ИЛГН-704, подключенного через балластное сопротивление 10 (~1 МОм) к аноду 4, и измерялось электростатическим киловольтметром 12. Катод 5 был подключен к общей шине источника питания через миллиамперметр 11 для измерения разрядного тока (4–20 мА). На торцах разрядной трубки располагались брюстеровские окна 3 из CaF<sub>2</sub>.

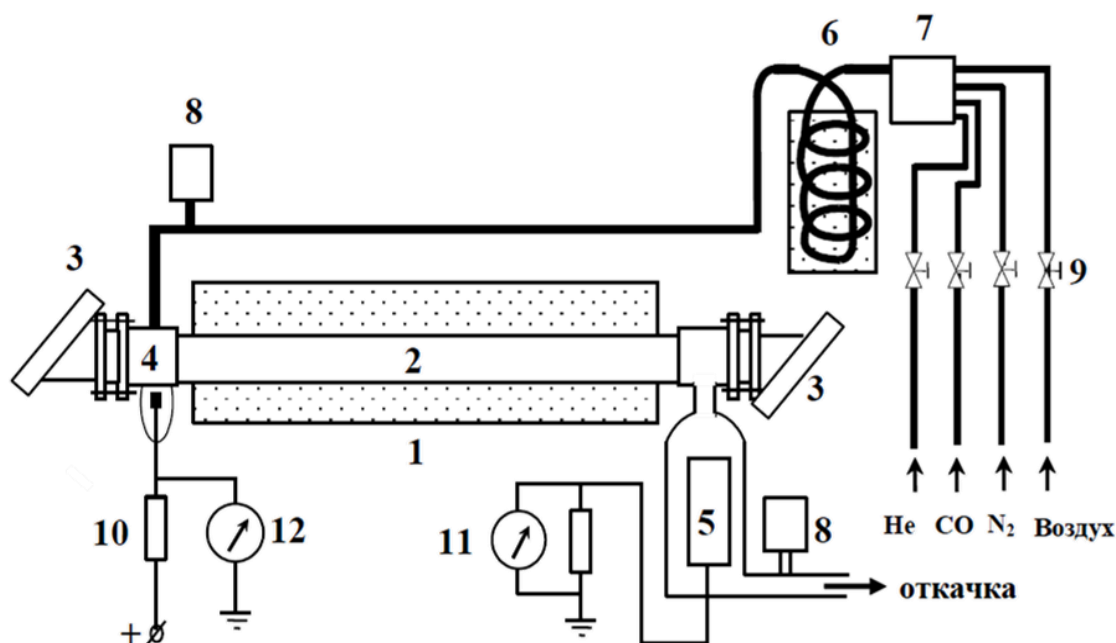


Рисунок 2.2 — Схема конструкции криогенного СО-лазера с накачкой разрядом постоянного тока. 1 – ванна с жидким азотом, 2 – кварцевая трубка, 3 – брюстеровские окна из  $\text{CaF}_2$ , 4 – анод, 5 – катод, 6 – азотная ловушка, 7 – ресивер, 8 – измерители давления, 9 – краны-накатели, 10 – балластный резистор, 11 – амперметр, 12 – вольтметр

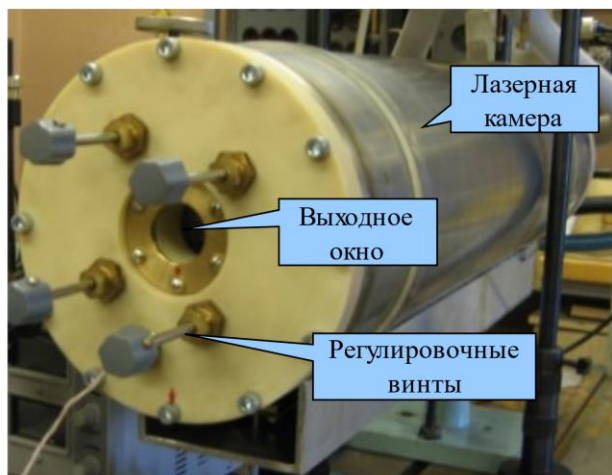
Для достижения высокой эффективности нелинейно-оптических процессов необходима высокая мощность, а также достаточно малая длительность импульсов излучения. Поэтому для исследования преобразования частоты в нелинейных кристаллах резонатор данного СО-лазера был модернизирован, чтобы лазер работал в режиме МДР, который осуществлялся с помощью вращающегося зеркала.

## 2.2 Компактный криогенный щелевой СО-лазер с накачкой ВЧ-разрядом

В экспериментах по двухкаскадной внутри- и внерезонаторной генерации суммарных частот излучения СО-лазера в новом нелинейном кристалле  $\text{BaGa}_2\text{GeSe}_6$  (глава 5) и преобразованию излучения СО- и  $\text{CO}_2$ -лазеров в диапазон длин волн 12–19.3 мкм (глава 6) использовался компактный криогенный щелевой СО-лазер с накачкой ВЧ-разрядом, внешний вид и внутреннее устройство которого

представлены на рисунке 2.3. Подробно устройство данного лазера и его характеристики описаны в [93].

### Внешний вид



- Компактный размер
- Длина активной среды  $L = 40$  см
- Максимальная средняя мощность  $\sim 10$  Вт
- Низковольтный источник питания
- Работает при больших давлениях без дополнительной предьонизации
- Возможность управления длительностью импульса и частотой накачки

### Внутреннее устройство

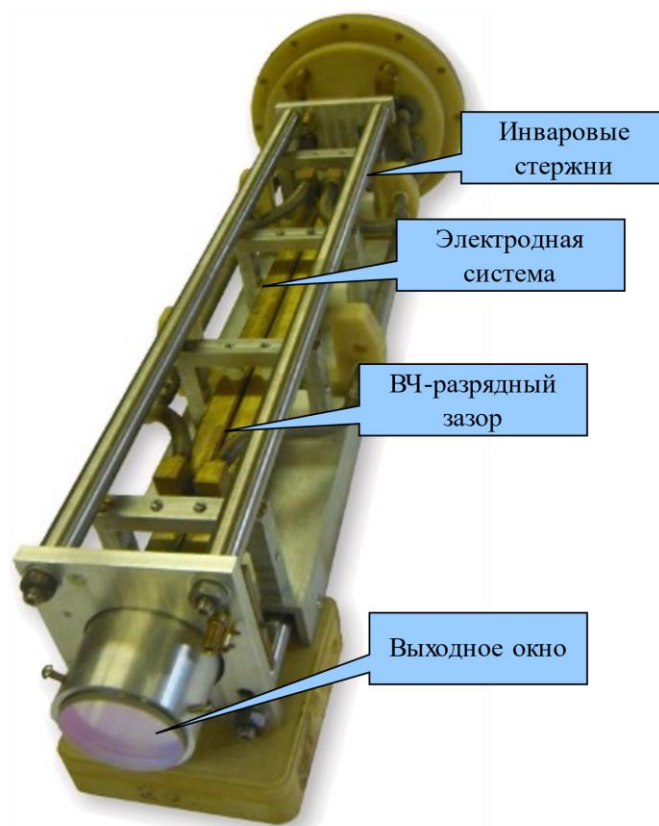


Рисунок 2.3 — Внешний вид и внутреннее устройство компактного криогенного щелевого СО-лазера с накачкой ВЧ-разрядом

Лазерная камера выполнена в виде цилиндра диаметром 180 мм и длиной 600 мм (внутренний объем  $\sim 15$  л). Выходное окно из  $\text{CaF}_2$  и четыре регулировочных винта внутренних зеркал лазерного резонатора располагаются на переднем фланце камеры. Электрический вход, входы и выходы жидкого азота и вход вакуумно-газовой системы располагались на заднем фланце камеры. Электродная система представлена двумя полыми латунными электродами длиной 400 мм и высотой 16 мм. Для охлаждения активной среды лазера в электроды заливался жидкий азот. Обычно ВЧ-разрядный зазор составлял 3 мм и мог изменяться за счет использования керамических прокладок различной толщины. Механические держатели криогенно охлаждаемых электродов имели тефлоновую теплоизоляцию для предотвращения интенсивного охлаждения других внутренних

элементов лазерной камеры. Модуль лазерного резонатора также размещался внутри лазерной камеры и имел минимальные механические и тепловые контакты с глубоко охлаждаемой электродной системой. Две оправы крепления зеркал лазерного резонатора соединялись четырьмя инваровыми стержнями и могли настраиваться вручную снаружи по двум степеням свободы. Типичная длина резонатора лазера составляла около 420 мм. Благодаря эффективному диффузионному охлаждению между криогенно охлаждаемыми электродами (в узком ВЧ-разрядном зазоре) появлялась небольшая порция ( $\sim 19 \text{ см}^3$ ) холодной активной газовой смеси. Во всех экспериментах внешние стенки камеры из нержавеющей стали имели температуру, близкую к комнатной. Также за счет вертикальной геометрии зазора эффективный самообмен газовой смесью внутри лазерной камеры осуществлялся под действием силы тяжести. Во всех сериях экспериментов лазер работал в отпаянном режиме (без замены лазерной газовой смеси извне).

### **2.3 Компактный щелевой $\text{CO}_2$ -лазер с накачкой ВЧ-разрядом**

В экспериментах по преобразованию излучения  $\text{CO}$ - и  $\text{CO}_2$ -лазеров в диапазон длин волн 12–19.3 мкм (глава 6) использовался компактный щелевой  $\text{CO}_2$ -лазер с накачкой ёмкостным ВЧ-разрядом.

В процессе исследований данная установка подвергалась многочисленным модернизациям и в настоящее время состоит из следующих основных частей и систем:

- разрядная камера, внутри которой находятся электродная система и лазерный резонатор;
- ВЧ-генератор;
- вспомогательные системы, предназначенные для согласования импеданса нагрузки и выходного сопротивления ВЧ-генератора, для вакуумной откачки и напуска газов, для измерения спектральных, энергетических и временных характеристик лазерного излучения (рисунок 2.4).

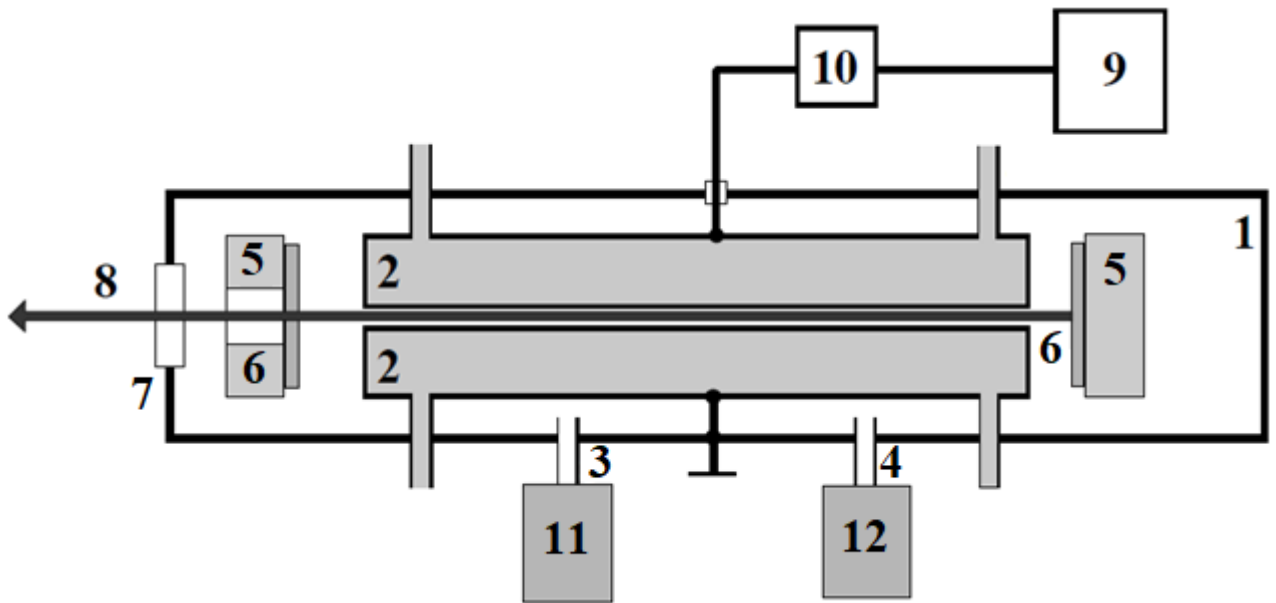


Рисунок 2.4 — Схема щелевой  $\text{CO}_2$  лазерной установки с ВЧ-возбуждением. 1 – разрядная камера; 2 – электроды; 3 – напуск газов; 4 – вакуумная откачка; 5 – крепеж резонаторной оптики, 6 – зеркала резонатора; 7 – выходное окно; 8 – лазерное излучение; 9 – ВЧ-генератор; 10 – система согласования ВЧ-нагрузки; 11 – система приготовления газовой смеси; 12 – система вакуумной откачки

Разрядная камера (рисунок 2.5), изготовленная из нержавеющей стали, имеет внутренний объем  $\sim 8$  л и может быть вакуумирована до остаточного давления  $\sim 10^{-2}$  Торр.

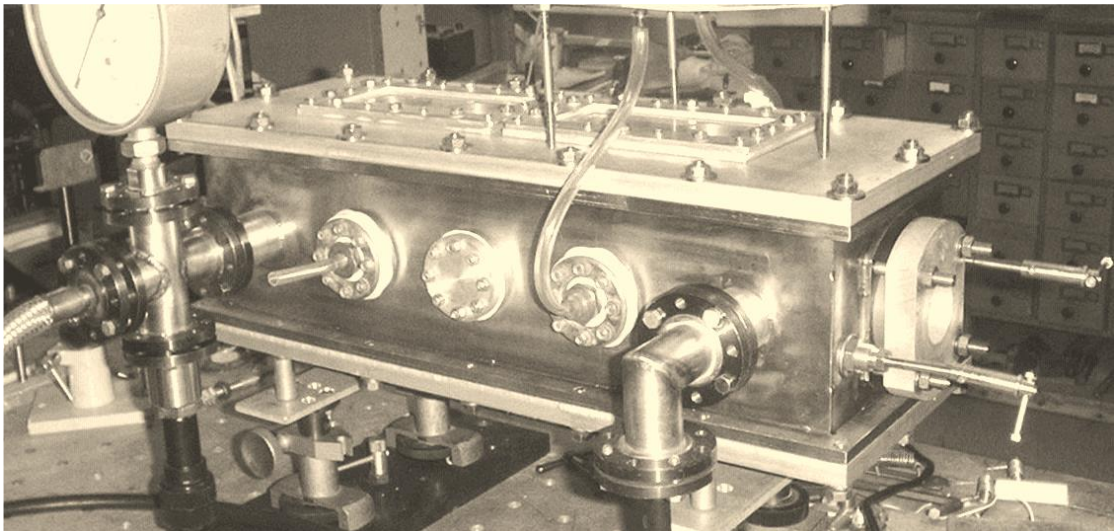


Рисунок 2.5 — Разрядная камера щелевого  $\text{CO}_2$ -лазера с ВЧ-возбуждением.

На боковых стенках разрядной камеры имеются отверстия с фланцами для подсоединения системы вакуумной откачки, системы напуска компонентов газовой смеси, токовводов для подачи ВЧ-напряжения на электроды. На торцевых

стенках камеры расположены оптические окна для вывода лазерного излучения и юстировочные устройства, обеспечивающие настройку зеркал резонатора, расположенного внутри камеры. На верхней крышке камеры предусмотрено два иллюминатора для визуального наблюдения за ВЧ-разрядом.

Юстировка зеркал резонатора производилась двухкоординатными регулировочными устройствами, обеспечивавшими механическую развязку оптических элементов от остальных узлов разрядной камеры с помощью карданных передач вращательных усилий. Для обеспечения точной настройки зеркал в каждом регулировочном узле была использована замедляющая шестеренчатая пара. Термическая стабилизация резонаторного модуля (рисунок 2.6) осуществлялась четырьмя инваровыми стержнями, соединяющими оправы крепления зеркал.

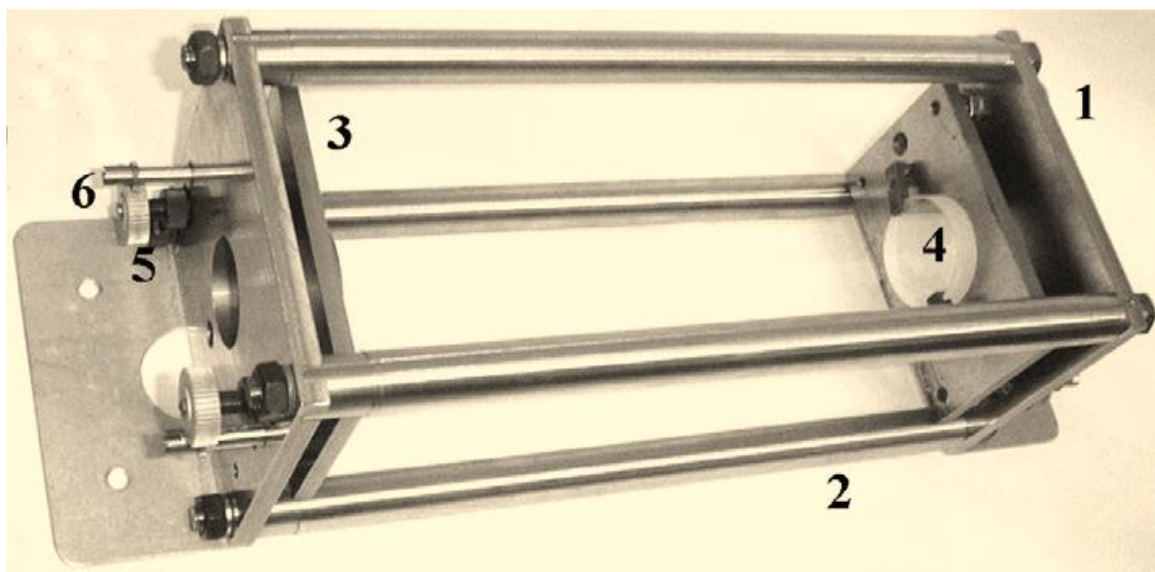


Рисунок 2.6 — Резонаторный модуль. 1 – неподвижная пластина, 2 – инваровый стержень, 3 – подвижная пластина, 4 – зеркало резонатора, 5 – юстировочный винт, 6 – шестеренчатая пара

Для эффективной работы установки важно было контролировать величину ВЧ-мощности, отраженной от разрядной камеры обратно в ВЧ-генератор из-за рассогласования выходного импеданса генератора (50 Ом) и динамической нагрузки, каковой являлась плазма разряда, формируемая в электродной системе. Эта проблема решалась посредством регулируемой Т-образной LC-системы



согласования (рисунок 2.7), через которую ВЧ-мощность подводилась к разрядному промежутку.

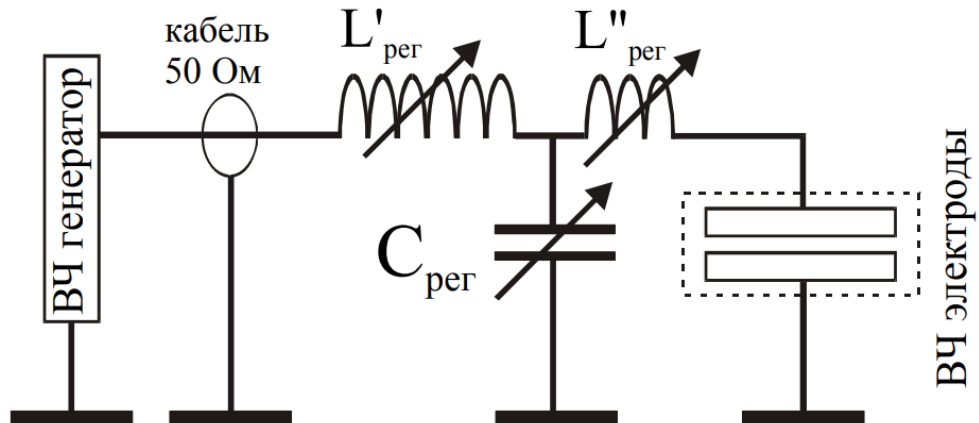


Рисунок 2.7 — Электрическая схема цепи согласования выходного сопротивления ВЧ-генератора с динамической нагрузкой

Схема состоит из двух катушек индуктивности и переменной емкости. Эти элементы были размещены на кварцевой пластине для минимизации электрических потерь, связанных с токами смещения в материале.

### **Глава 3. Динамика генерации колебательно-вращательных линий многочастотного СО-лазера с модуляцией добротности резонатора**

Динамика генерации импульсного СО-лазера сильно отличается для разных колебательно-вращательных переходов из-за особенностей заселения уровней. Более высоким уровням требуется большее время для достижения инверсной населенности и, следовательно, между импульсом накачки и началом генерации наблюдается большая временная задержка. Кроме этого, каскадный механизм появления инверсной населенности приводит к тому, что динамика генерации СО-лазера становится еще более сложной. Даже использование режима МДР лазера с накачкой разрядом постоянного тока может не дать стопроцентной одновременности генерации линий СО-лазера. И так как временное поведение различных спектральных линий СО-лазера может оказывать сильное влияние на широкополосное преобразование частоты излучения СО-лазера в нелинейных кристаллах, то исследование динамики генерации отдельных линий СО-лазера представляет большой интерес.

#### **3.1 Схема экспериментов по исследованию динамики генерации линий СО-лазера**

Для исследования динамики генерации на отдельных колебательно-вращательных линиях в режиме МДР использовалась установка, оптическая схема которой представлена на рисунке 3.1. Эксперименты проводились с использованием криогенного СО-лазера низкого давления с накачкой разрядом постоянного тока, устройство которого описано в главе 2, разделе 2.1. В качестве активной среды  $I$  криогенного СО-лазера использовалась смесь  $\text{He}:\text{N}_2:\text{CO}:\text{Воздух} = 70:5:1:1$  при напряжении на трубке 9 кВ и токе 6 мА. Давление смеси составляло 7.7 Торр.

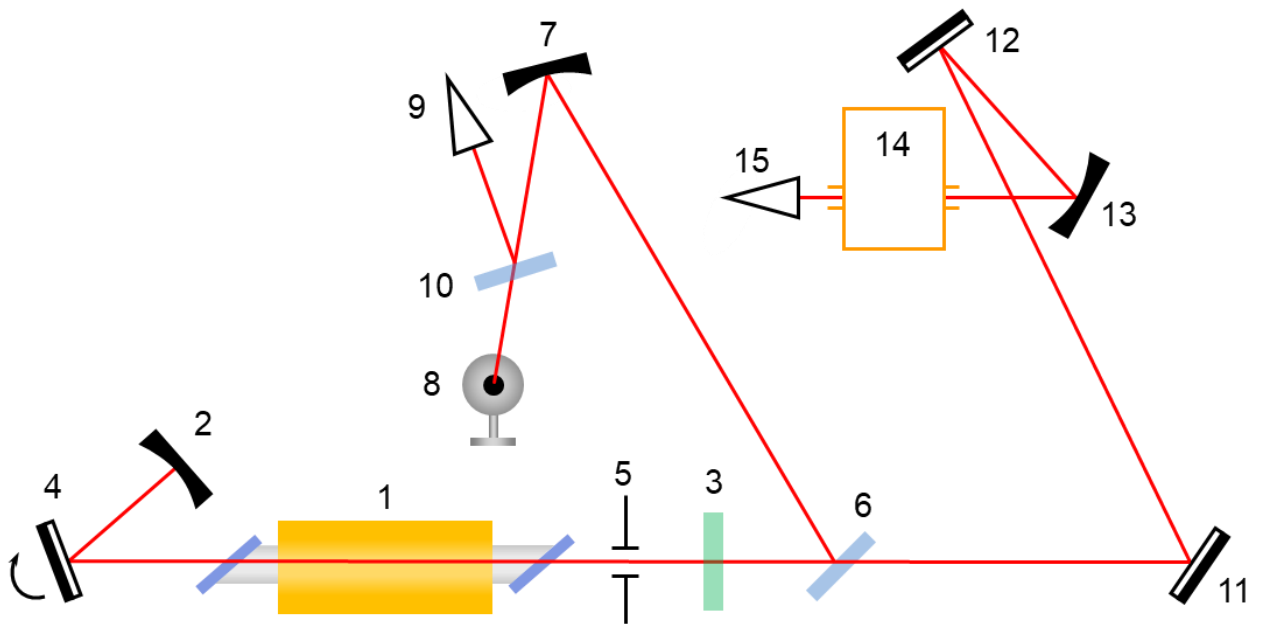


Рисунок 3.1 — Оптическая схема эксперимента по исследованию динамики генерации линий многочастотного СО-лазера с МДР добротности резонатора: 1 – активная среда СО лазера; 2 – глухое зеркало; 3 – частично отражающее зеркало; 4 – вращающееся зеркало; 5 – диафрагма; 6, 10 – пластины из  $\text{CaF}_2$ ; 7, 13, – сферические зеркала; 8 – измеритель мощности; 9, 15 – фотодетекторы; 11, 12 – плоские зеркала; 14 – спектрометр

Резонатор лазера был образован глухим сферическим зеркалом 2 (радиус кривизны  $R = 9$  м) и плоским выходным зеркалом (коэффициент отражения  $\geq 90\%$  в диапазоне длин волн  $\sim 5.0\text{--}6.5$  мкм). Внутри резонатора помещалось плоское вращающееся зеркало 4, которое обеспечивало работу лазера в режиме МДР. Диафрагма 5 диаметром 12 мм помещалась перед выходным зеркалом для контроля модового состава. Для контроля средней мощности излучения его часть ( $\sim 5\%$ ) с помощью плоскопараллельной пластинки 6 из  $\text{CaF}_2$  направлялась на сферическое зеркало 7 ( $R = 0.6$  м). Далее излучение фокусировалось на измеритель мощности 8 (Ophir-10A), а также фотодетектор 9 (PEM-L-3, временное разрешение 0.5 нс) для контроля временной формы суммарного по спектру импульса, для чего использовалась еще одна пластинка 10 из  $\text{CaF}_2$ .

Основная часть излучения ( $\sim 95\%$ ) для измерения спектральных характеристик направлялась с помощью плоских поворотных зеркал 11 и 12, а также сферического зеркала 13 ( $R = 0.5$  м) на вход спектрометра 14 (ИКС-31). Отселектированное излучение попадало на фотодетектор 15 (PEM-L-3). Сигналы с

фотодетекторов 9 и 15 регистрировались на осциллографе Tektronix TDS 1012 (на рисунке 3.1 не показан).

### 3.2 Динамика генерации линий СО-лазера, методика расчета пиковой мощности излучения спектральных линий

На рисунке 3.2 изображена динамика генерации полного импульса и отдельных вращательных компонент колебательных полос  $V = 3, 4$ . Для каждой линии были определены колебательное квантовое число  $V$  и вращательное квантовое число  $J$ . Из рисунка видно, что наиболее мощные вращательные компоненты этих полос  $J = 9-12$ .

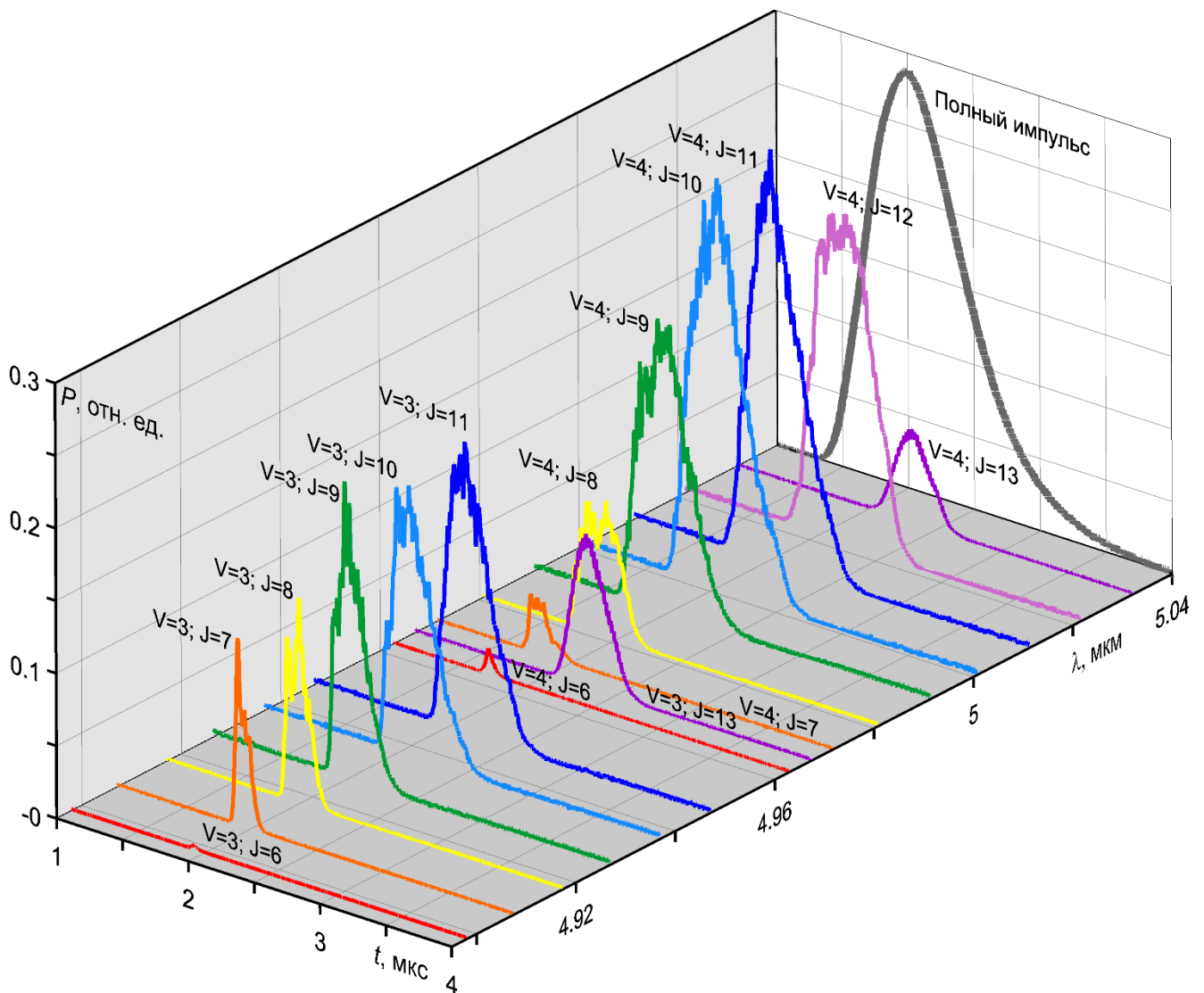


Рисунок 3.2 — Динамика генерации спектральных линий для двух колебательных полос ( $V = 3, 4$ )

На рисунке 3.3 показана характерная осциллограмма, зарегистрированная на осциллографе. Сигнал 1 соответствует динамике генерации суммарного по спектру импульса, а сигнал 2 – динамике генерации на конкретной колебательно-вращательной линии. Результаты усреднялись по 4 измерениям. Длительности генерации по уровню 0.1 и 0.5 от высоты импульса на конкретной колебательно-вращательной линии показаны синим и красным отрезками, соответственно.

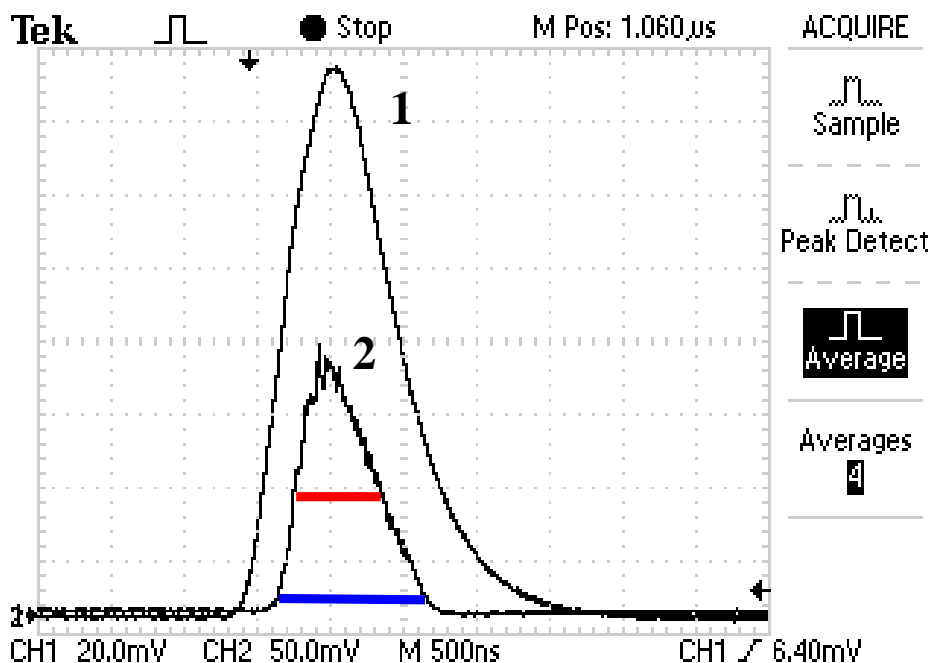


Рисунок 3.3 — Характерная осциллограмма динамики генерации суммарного по всему спектру импульса (1), и динамики генерации на конкретной колебательно-вращательной линии (2)

На рисунке 3.4 представлена динамика генерации полного импульса и отдельных вращательных компонент колебательной полосы  $5 \rightarrow 4$ . Из рисунка 3.4 видно, что наиболее сильные линии, например,  $P(11)$  и  $P(12)$  перекрываются по времени полностью. То есть они будут взаимодействовать в нелинейном кристалле при суммировании частот наиболее эффективно. Есть линии, например,  $P(7)$  и  $P(12)$ , которые перекрываются по времени только частично. Они дадут вклад в эффективность суммирования частот существенно меньший. Но есть и такие линии, например,  $P(6)$  и  $P(12)$ , которые по времени практически не перекрываются, то есть не дадут суммарной частоты в принципе.

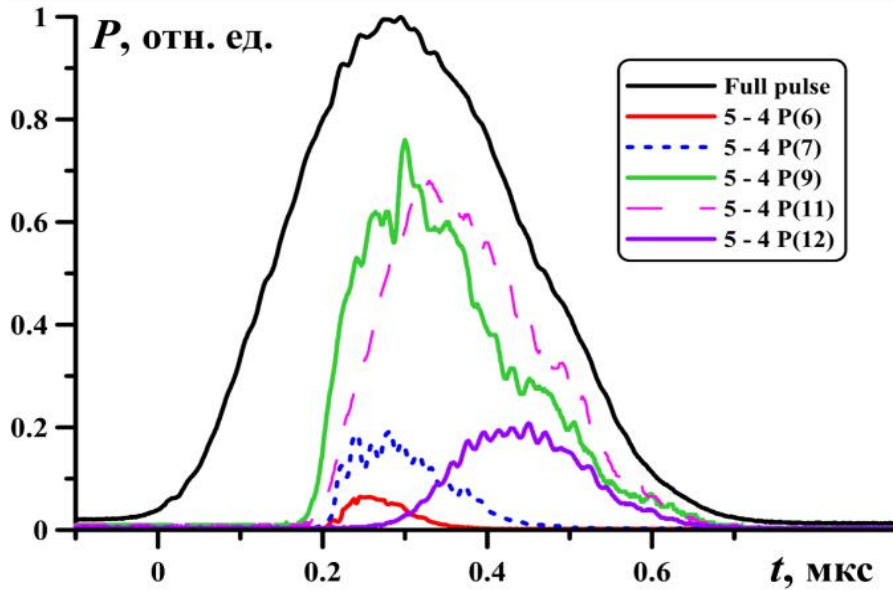


Рисунок 3.4 — Динамика генерации полного импульса и отдельных вращательных компонент колебательной полосы 5–4

На рисунке 3.5 представлены длительности генерации на спектральных линиях СО-лазера для двух частот МДР 70 Гц и 120 Гц в зависимости от длины волны. Как и на рисунке 3.3, синими отрезками показана длительность по уровню 0.1, а красными – по уровню 0.5 от высоты импульса. Также для каждой линии точками отмечены те моменты, когда импульс генерации на данной линии достигал своего максимума. В верхней части рисунка 3.5 горизонтальными отрезками показан диапазон по длинам волн, соответствующей колебательной полосе, а также указаны переходы:  $(V+1) - V P(J)$ , где  $V$  – колебательное квантовое число,  $J$  – вращательное квантовое число. В среднем длительность генерации по уровню 0.1 при частоте модуляции  $f = 70$  Гц приблизительно в два раза больше длительности генерации в случае с  $f = 120$  Гц. Видно, что на низких колебательных полосах ( $V = 3-13$ ) генерация лазера начиналось на низких и средних вращательных компонентах ( $J = 6-10$ ). Тогда как на более высоких вращательных компонентах ( $J = 11-13$ ) каждой колебательной полосы генерация начиналась во второй половине всего лазерного импульса. В основном мы можем наблюдать, что в пределах одной полосы с возрастанием номера вращательной компоненты момент достижения максимума мощности наблюдается в более позднее время. На средних колебательных полосах ( $V = 14-23$ ) подобный анализ затруднен из-за уменьшения

числа вращательных компонент. Это связано, по-видимому, как со снижением коэффициента усиления на данных линиях, так и с наличием поглощения воздуха в этом спектральном диапазоне (5.6–6.5 мкм).

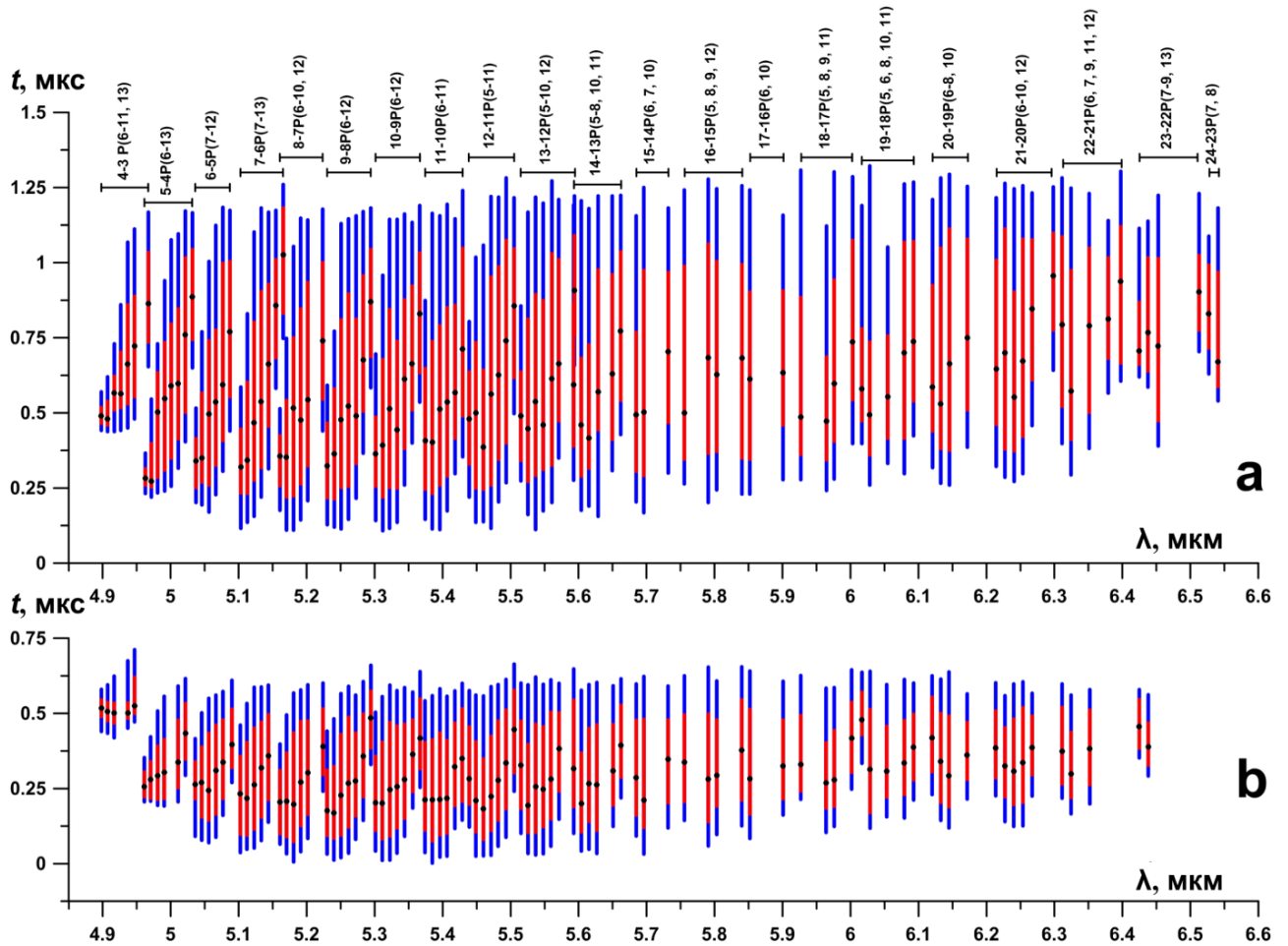


Рисунок 3.5 — Длительность генерации спектральных линий для частот МДР 70 Гц (а) и 120 Гц (б)

На рисунке 3.6 представлен участок спектра СО-лазера при частоте МДР 120 Гц и пропускание воздуха. Из него видно, что спектральные линии есть только в тех интервалах длин волн, где поглощение воздухом не слишком велико. На рисунке величина пропускания обозначена границей между желтым и белым цветом.

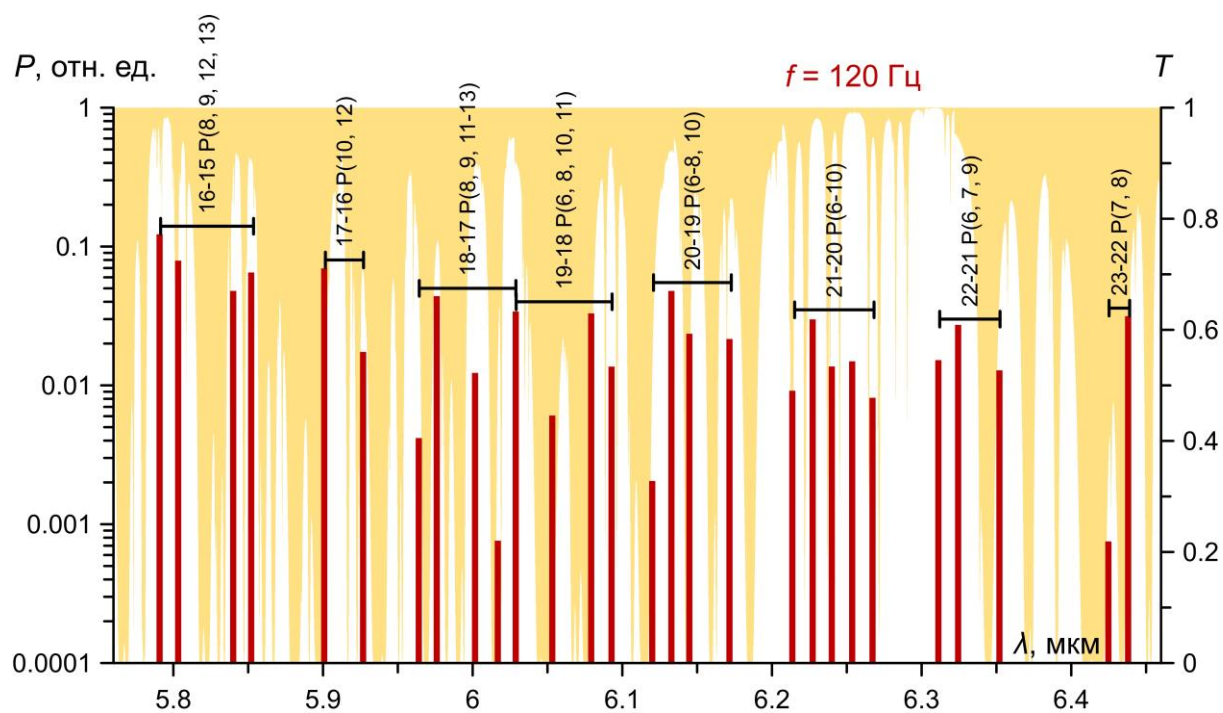


Рисунок 3.6 — Участок спектра СО-лазера при частоте МДР 120 Гц и пропускание воздуха

При обеих частотах модуляции мы можем наблюдать, что генерация на самой низкой колебательной полосе ( $V = 3$ ) начиналась с существенным запаздыванием, если сравнивать с генерацией более высоких колебательных полос. Можно сделать вывод, что инверсная населенность на этом колебательном переходе появляется только за счет «сваливания» молекул СО с более высоких уровней благодаря генерации излучения высоких колебательных полос. В данном случае наиболее явно проявляется преимущество многоуровневой схемы генерации в СО-лазере за счет каскадного механизма появления инверсной населенности.

Мощность излучения на отдельных колебательно-вращательных линиях измерялась в относительных единицах (вольтах). Максимальное значение (пиковая мощность) в этих единицах для каждой линии умножалось на длительность генерации для данной линии по уровню 0.5. Тем самым получалась энергия генерации на данной линии в относительных единицах. Сумма энергий по всем линиям давала энергию суммарного по спектру импульса генерации в относительных единицах. Перевод пиковой мощности в ватты в данной работе осуществлялся путем нормировки на реальную энергию суммарного по спектру импульса генерации. Энергия импульса равна отношению средней мощности



суммарного по спектру излучения (реально измеренного в эксперименте) к частоте модуляции добротности.

Затем пиковая мощность излучения спектральных линий уточнялась благодаря учету спектральной чувствительности фотоприемника. По известной из паспорта фотоприемника зависимости находится мощность, в действительности излучаемая СО-лазером.

При использовании этого метода рассчитанная пиковая мощность большинства линий приблизительно на 20% выше мощности, рассчитанной по упрощенной схеме, когда считалось, что все линии генерации имеют одну и ту же длительность по уровню 0.5, равную длительности суммарного по спектру импульса генерации.

Распределение мощности по линиям генерации и идентификация колебательно-вращательных переходов для импульсно-периодического неселективного СО-лазера представлены на рисунке 3.7. На спектре также указаны колебательно-вращательные переходы.

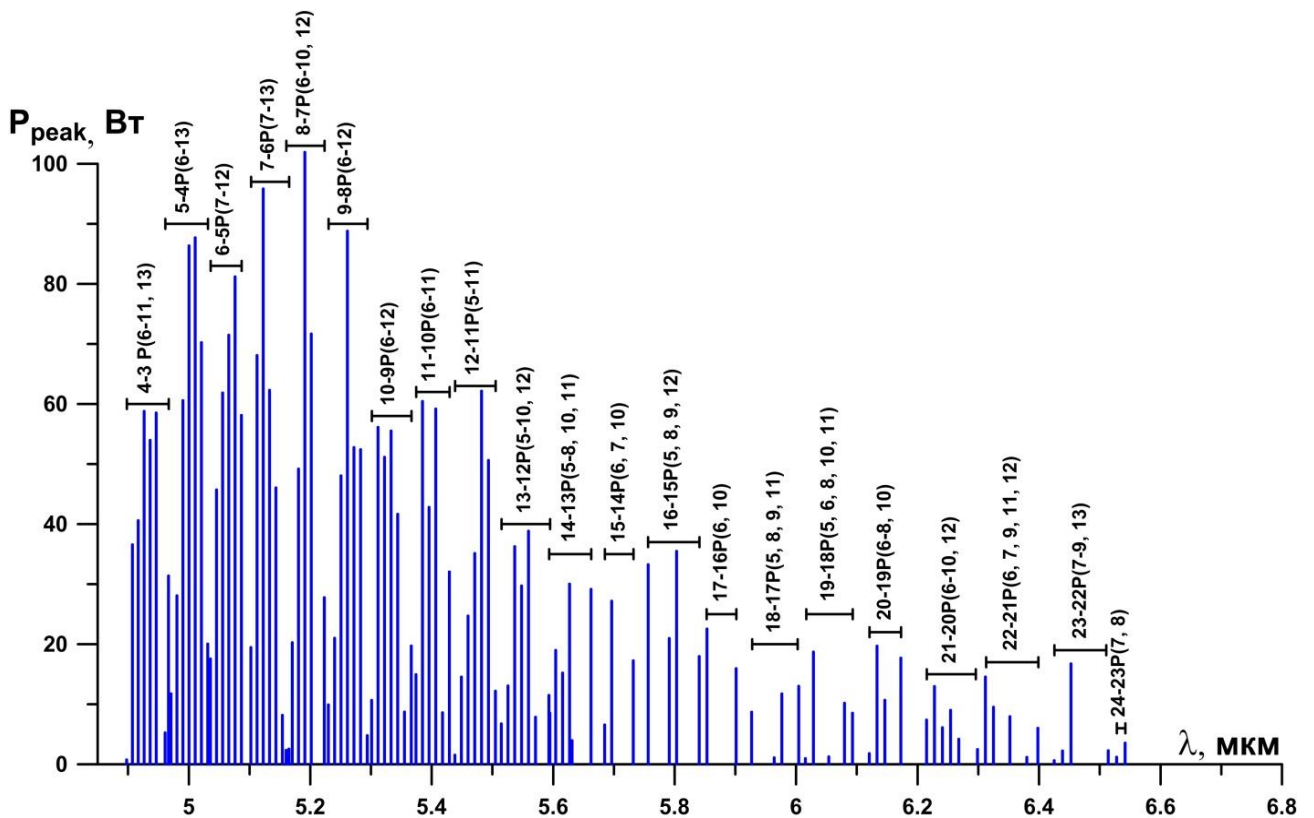


Рисунок 3.7 — Спектр СО-лазера при частоте МДР 70 Гц

Полученный спектр СО-лазера при частоте модуляции добротности 70 Гц насчитывал 113 линий в диапазоне длин волн от 4.89 до 6.54 мкм, а при 120 Гц – 99 линий в диапазоне длин волн от 4.90 до 6.44 мкм. В обоих случаях наиболее сильные линии наблюдались в диапазоне длин волн от 4.8 до 5.3 мкм. Максимальная пиковая мощность приходится на переход  $8 - 7 P(9)$ . В каждой из колебательных полос наиболее сильными были вращательные компоненты с  $J = 9 - 12$ .

Пиковая мощность полного импульса СО-лазера составила  $\sim 3.0$  кВт и 2.3 кВт для МДР 70 Гц и 120 Гц соответственно. Средняя мощность  $\sim 111$  мВт и 106 мВт соответственно.

Таким образом, эксперименты показали, что часть линий СО-лазера с МДР не дадут вклад в процесс суммирования частоты в нелинейных кристаллах, т.к. их генерация не перекрывается по времени. Это, как правило, слабые по мощности вращательные компоненты каждой колебательной полосы с  $J = 5, 6, 7$  и 13.

### **3.3 Численное моделирование генерации спектра суммарной частоты с учетом динамики генерации**

Моделирование ГСЧ излучения СО-лазера проводилось в предыдущих работах [20, 75, 81], однако в них не учитывалось временная динамика различных спектральных линий многочастотного СО-лазера в режиме МДР. Другими словами, считалось, что мощность ГСЧ пропорциональна сложению амплитуд импульсов на двух длинах волн  $\lambda_1$  и  $\lambda_2$ :

$$P_{\text{ГСЧ}} \sim \max(P_1) \cdot \max(P_1). \quad (1)$$

Это упрощение вызывало существенную ошибку для разделенных по времени импульсов (как на рисунке 3.4). Поэтому для правильного моделирования ГСЧ необходимо учитывать временные характеристики многочастотного СО-лазера с МДР. Для этого мощность ГСЧ рассматривалась как амплитуда произведения импульсов на двух длинах волн  $\lambda_1$  и  $\lambda_2$ :

$$P_{\text{ГСЧ}} \sim \max(P_1 \cdot P_1). \quad (2)$$

Влияние временного поведения генерации многочастотного СО-лазера с модуляцией добротности на спектр ГСЧ можно охарактеризовать коэффициентом  $K$ , который оценивается с помощью:

$$K = \frac{\max(P_1 \cdot P_2)}{\max(P_1) \cdot \max(P_2)}. \quad (3)$$

$K$  имеет физический смысл уменьшения мощности линий ГСЧ за счет учета неодновременной генерации на разных линиях. Моделирование коэффициента  $K$  для каждой возможной линии ГСЧ излучения СО-лазера, (спектр которого приведён на рисунке 3.7) представлено на рисунке 3.8.

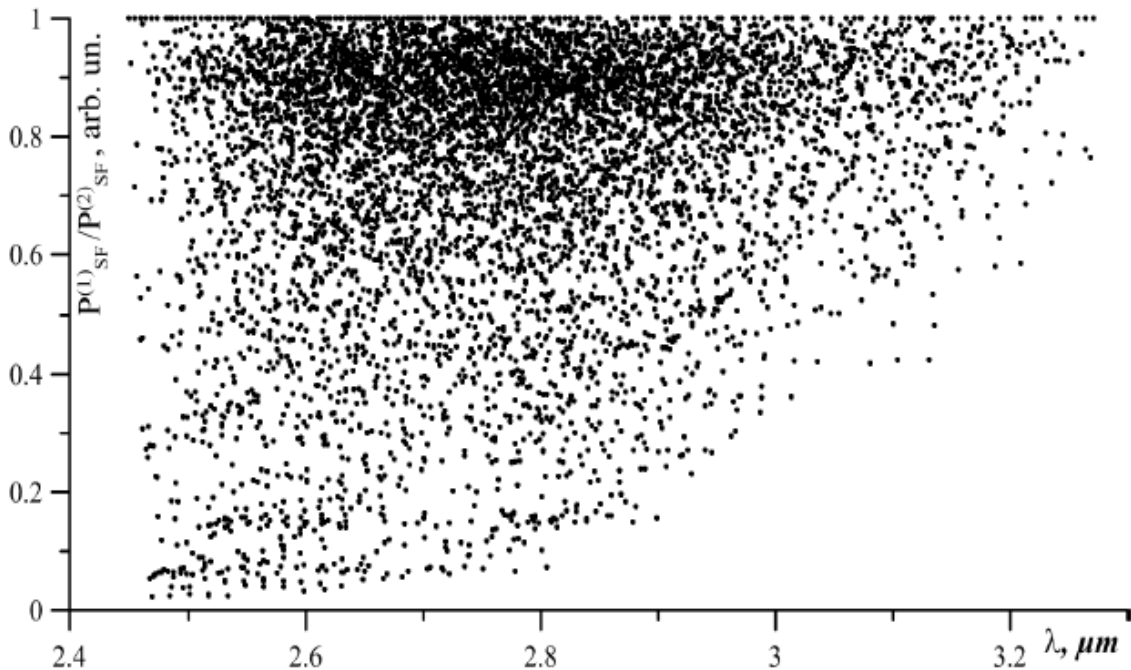


Рисунок 3.8 — Коэффициент  $K$ , смоделированный для всех возможных линий ГСЧ излучения спектра СО-лазера (рисунок 3.7)

На рисунке 3.8 хорошо видно, что из-за неодновременного излучения мощность линий ГСЧ значительно снижается, иногда более чем в 10 раз. Для второй гармоники коэффициент генерации  $K$  равен 1. Разброс коэффициента  $K$  для линий ГСЧ с большей длиной волны уменьшается. Среднее значение  $K$  составило около 0.75, то есть интегральная мощность многочастотного импульса ГСЧ снизится примерно на 25%.

Для проведения численного моделирования ГСЧ в  $\text{ZnGeP}_2$  была использована теоретическая модель, представленная в [81]. Эта модель основана

на приближении плоской волны и малой эффективности преобразования, где мощность излучения генерации суммарных частот  $P_{\text{ГСЧ}}$  может быть рассчитана из выражения [94, С. 50]:

$$P_3 = \frac{8\pi^2 d_{\text{eff}}^2 L^2 P_1 P_2}{\varepsilon_0 c n_1 n_2 n_3 \lambda_3^2 A} \text{sinc}^2 \left( \frac{|\Delta k| L_{\text{eff}}}{2} \right) \quad (4)$$

где  $d_{\text{eff}}$  — эффективный нелинейный коэффициент;  $n_1, n_2, n_3$  — показатели преломления нелинейного кристалла на длинах волн;  $\lambda_3$  — длина волны ГСЧ;  $\varepsilon_0$  — диэлектрическая проницаемость вакуума;  $P_1$  и  $P_2$  — мощность излучения лазера накачки для двух линий СО-лазера;  $P_3$  — мощность суммарной частоты;  $\Delta k$  — волновая расстройка;  $L_{\text{eff}}$  — эффективная длина кристалла;  $A$  представляет собой поперечное сечение лазерного луча;  $c$  — скорость света в вакууме. Дисперсионные уравнения и эффективный нелинейный коэффициент взяты из [78].

Моделирование проводилось для угла синхронизма  $47.4^\circ$  и длины кристалла 7 мм. Результаты моделирования с учетом (красные столбцы) и без учёта (синие столбцы) временного поведения импульсов линий генерации многочастотного СО-лазера с МДР представлены на рисунке 3.9.

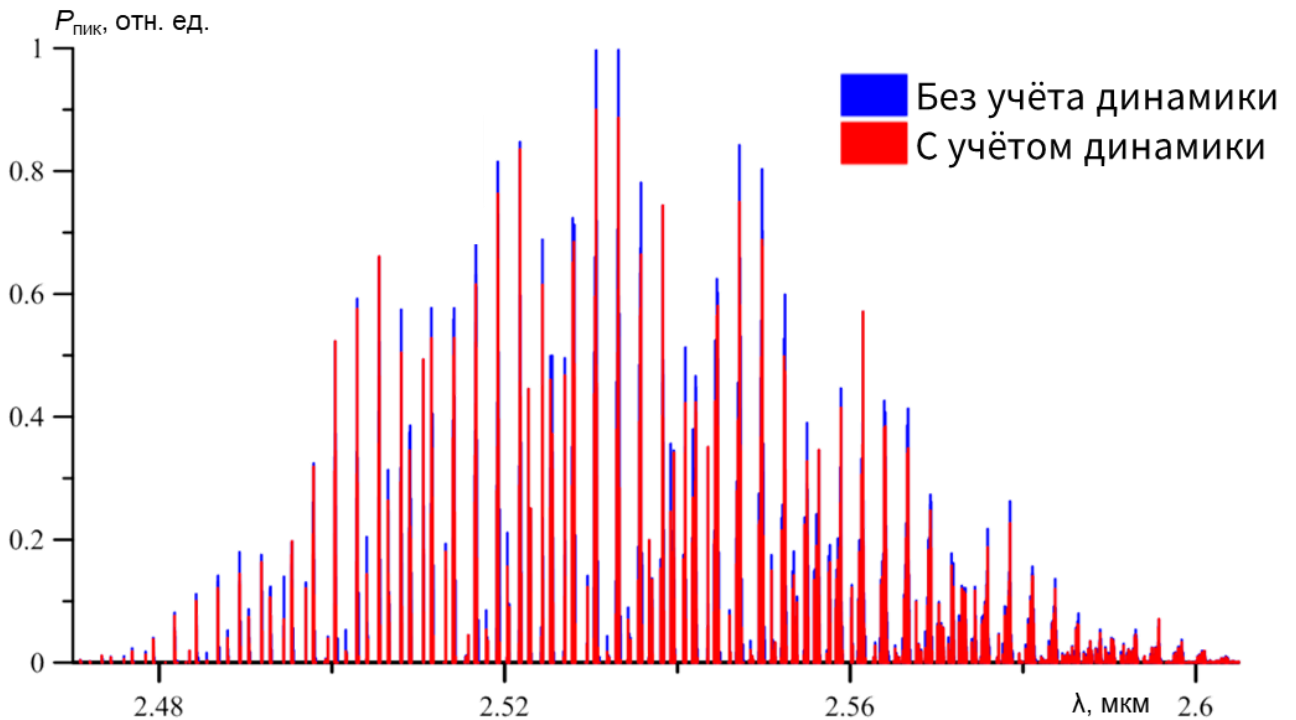


Рисунок 3.9 — Моделирование мощности линий ГСЧ с учетом и без учета спектрально-временной структуры излучения многочастотного СО-лазера с МДР

На рисунке 3.9 видно, что влияние спектрально-временной структуры излучения многочастотного СО-лазера с МДР на общую форму спектра широкополосной ГСЧ было незначительным. Рассчитанный спектр ГСЧ с учётом временного поведения импульсов линий генерации многочастотного СО-лазера с МДР состоял из 1291 спектральной линии на уровне 0.01 максимальной мощности из 6670 возможных спектральных линий ГСЧ. Рассчитанный спектр ГСЧ без учета динамики линий СО-лазера состоял из 1487 спектральных линий на уровне 0.01 максимальной мощности. Это означает, что временное разделение взаимодействующих импульсов уменьшило количество линий спектра ГСЧ на 13%.

Из-за неодновременной генерации импульсов разных спектральных линий СО-лазера интегральная по спектру мощность излучения ГСЧ уменьшилась на 18%. На рисунке 3.10 представлена увеличенная часть спектра ГСЧ в области длины волны 2.5 мкм.

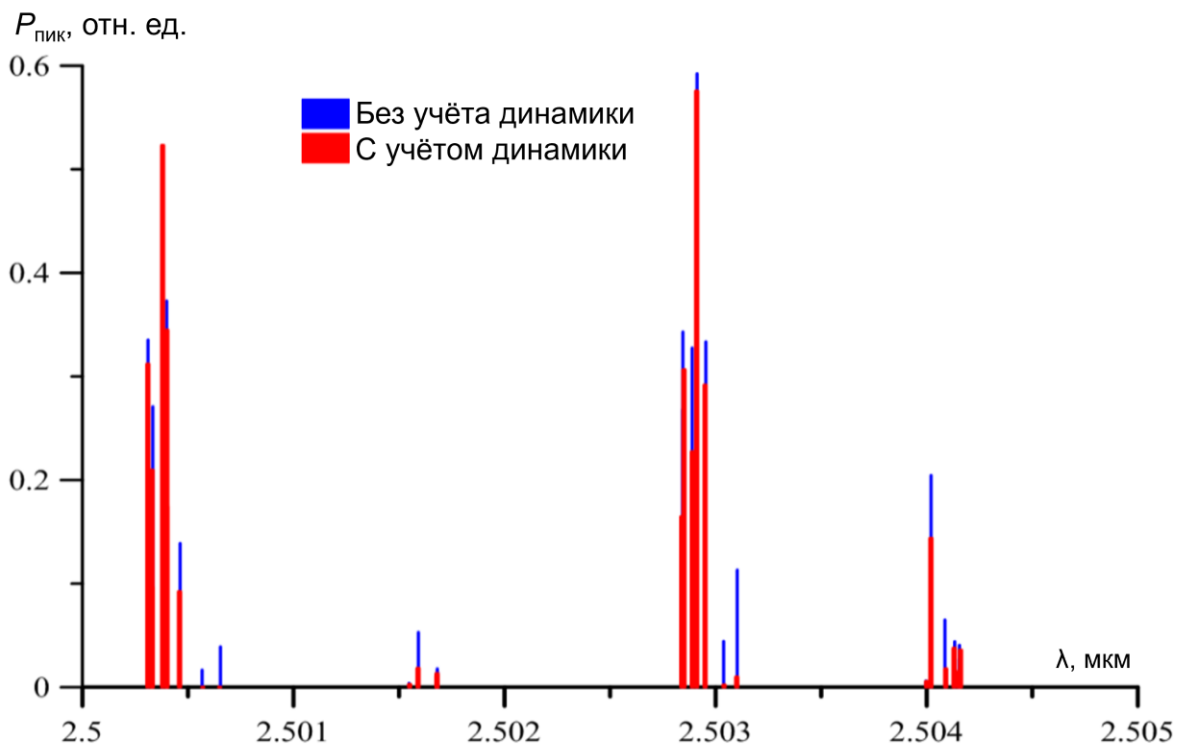


Рисунок 3.10 — Часть спектра ГСЧ в области длины волны 2.5025 мкм

На рисунке 3.10 видно, что ослабление наиболее мощных спектральных линий было небольшим. Значительное падение мощности линий ГСЧ наблюдалось для слабых линий ГСЧ (рисунок 3.10). Этот факт можно объяснить тем, что слабые линии СО-лазера при генерации были значительно сильнее разделены по времени, в то время как мощные линии СО-лазера генерировались одновременно.

### **3.4 Выводы по главе**

Генерация излучения неселективного СО-лазера с МДР начинается на низких и средних вращательных компонентах ( $J = 6-10$ ), имеющих наибольшее усиление слабого сигнала. Генерация на более высоких вращательных компонентах ( $J = 11-13$ ) начинается во второй половине полного лазерного импульса из-за перераспределения населенностей колебательных уровней во время генерации. Разработанное численное моделирование генерации спектра суммарной частоты с учетом динамики генерации каждой колебательно-вращательной линии СО-лазера с МДР показало, что суммарная мощность излучения СО-лазера при этом меньше на 25%, суммарная мощность ГСЧ – меньше на 18%, число линий спектра ГСЧ – меньше на 13% по сравнению теми же параметрами, рассчитанными без учета динамики генерации линий СО-лазера с МДР.

## **Глава 4. Структура спектра генерации суммарных частот излучения многочастотного СО-лазера в кристалле $\text{ZnGeP}_2$**

В главе 3 были приведены результаты расчетов числа линий генерации суммарных частот, однако в экспериментах, например, в работах [20–22, 76, 77, 81, 92], наблюдаемое число линий было значительно меньше. Получаемое противоречие между расчётом и экспериментом побудило к исследованию тонкой структуры спектра генерации суммарных частот. Кроме того, экспериментально продемонстрирована возможность применения суммарных частот СО-лазера для атмосферного зондирования измерением профиля линии поглощения молекул  $\text{CO}_2$ .

### **4.1 Схема экспериментов по исследованию структуры спектра генерации суммарных частот излучения многочастотного СО-лазера в кристалле $\text{ZnGeP}_2$**

В эксперименте использовался криогенный СО-лазер низкого давления с накачкой разрядом постоянного тока. Оптическая схема эксперимента представлена на рисунке 4.1.

СО-лазер с МДР работал с частотой следования импульсов 80 Гц. Работа лазера в режиме МДР обеспечивалась за счёт вращающегося зеркала. Пиковая мощность импульсов достигала 3 кВт, при этом длительность импульсов была 0.6 мкс на полувысоте. Спектр излучения состоял из 113 зарегистрированных спектральных линий в диапазоне длин волн от 4.9 до 6.5 мкм. Каждая линия лазера работала на одной продольной моде, ширина полосы каждого колебательно-вращательного перехода составляла несколько мегагерц.

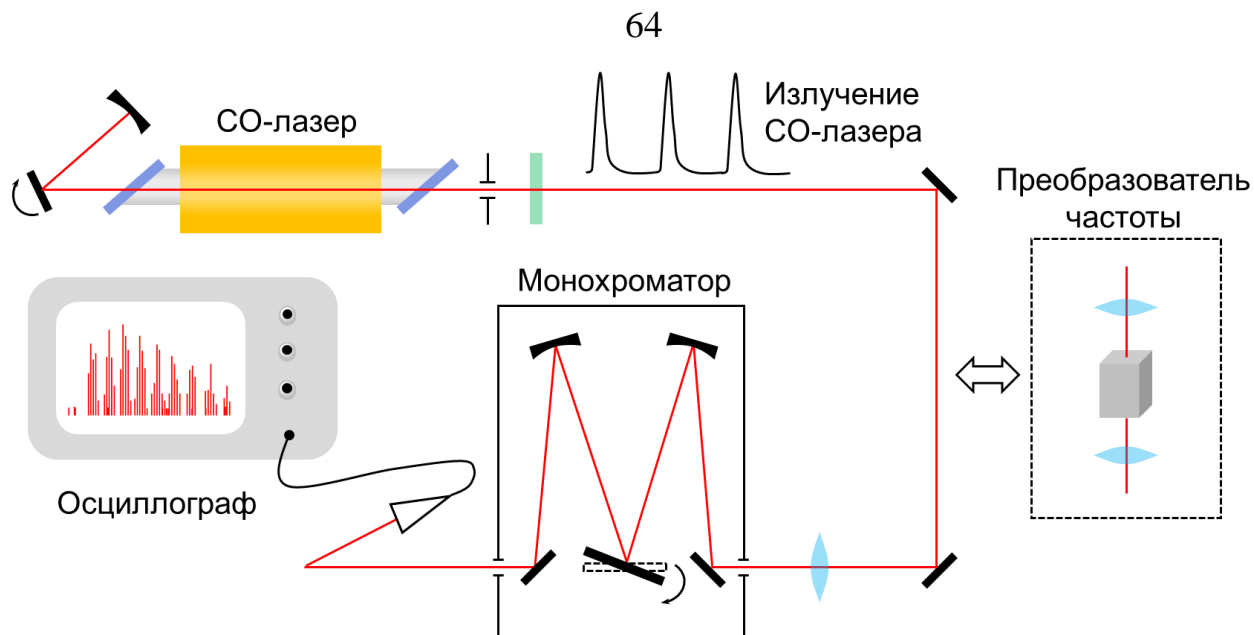


Рисунок 4.1 — Оптическая схема эксперимента по исследованию структуры спектра генерации суммарных частот излучения многочастотного СО-лазера в кристалле  $\text{ZnGeP}_2$

Для контроля временной формы суммарного по спектру импульса часть лазерного излучения ( $\sim 5\%$ ) с помощью плоскопараллельных пластин  $\text{CaF}_2$  (на рисунке 4.1 не показаны) направлялась на измеритель мощности (Ophir-10A) и фотодетектор (PEM-L-3, временное разрешение 0.5 нс). Основная часть излучения СО-лазера ( $\sim 95\%$ ) направлялась прямо или через преобразователь частоты в ИК-спектрометр. Преобразователь частоты состоял из фокусирующей линзы с фокусным расстоянием 20 см, непросветленного 15-миллиметрового кристалла  $\text{ZnGeP}_2$  и коллимирующей линзы с фокусным расстоянием 25 см. Кристалл устанавливался под углом синхронизма  $47.4^\circ$ . ИК-спектрометр состоял из сферического зеркала с фокусным расстоянием 25 см (изображено в виде линзы), монохроматора с дифракционной решеткой ИКС-31, сферического зеркала с фокусным расстоянием 12.5 см и фотоприемника. Для обнаружения излучения СО-лазера использовался мал шумящий криогенный фоторезистор Ge:Au, а для обнаружения излучения ГСЧ – PbSe-фотодетектор THORLABS PDA20H-EC. Пропись спектра отображалась на осциллографе Tektronix TDS5052B. Для измерения поглощения газа между выходом монохроматора и фотодетектора помещалась газовая кювета диаметром 15 см.



## 4.2 Структура спектра генерации суммарных частот (тонкая структура)

Спектры суммарных частот и СО-лазера измерялись импульс за импульсом путем вращения дифракционной решетки монохроматора. Типичная осциллограмма спектра СО-лазера представлена на рисунке 4.2.

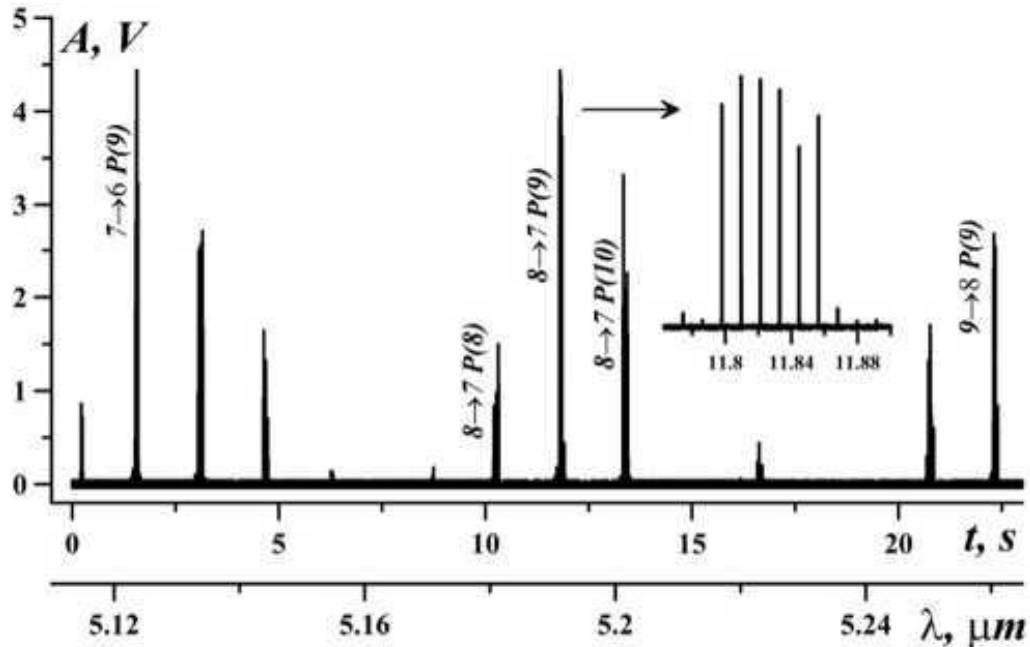


Рисунок 4.2 — Осциллограмма спектра СО-лазера с пересчитанными длинами волн

На рисунке 4.2 представлена зависимость сигнала с фотоприемника от времени, которая была пересчитана в длины волн по выражению:

$$\lambda = \lambda_0 + \frac{k}{d} \cdot t, \quad (5)$$

где  $\lambda_0$  — начальная длина волны сканирования,  $k$  — скорость сканирования (переменная от 0.01 отн. ед. до 1 отн. ед.),  $d$  — постоянная дифракционной решетки (количество штрихов на миллиметр),  $t$  — текущее время.

Несколько зарегистрированных линий СО-лазера из колебательных полос  $7 \rightarrow 6$ ,  $8 \rightarrow 7$  и  $9 \rightarrow 8$  представлены на рисунке 4.2. На врезке к рисунку 4.2 показана зарегистрированная серия микросекундных импульсов с частотой следования импульсов 80 Гц, соответствующей спектральной линии перехода  $8 \rightarrow 7P(9)$ . Для правильного измерения спектра СО-лазера была обеспечена

хорошая стабильность мощности лазера, соответствие между скоростью сканирования, частотой повторения импульсов и дискретизацией осциллографа.

На рисунке 4.3 представлены полученные в эксперименте (а) и рассчитанные (б) спектры излучения суммарных частот. При расчете учитывался относительный временной сдвиг спектральных компонент по импульсу СО-лазера (см. главу 3).

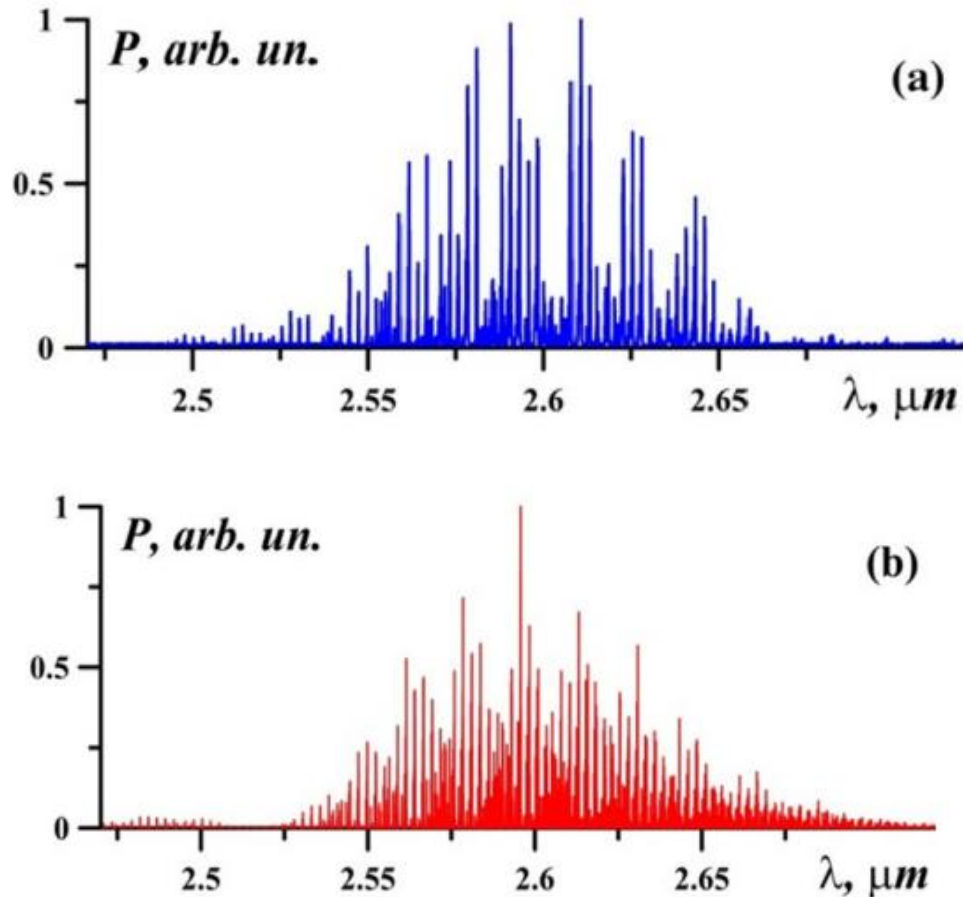


Рисунок 4.3 — Экспериментальный (а) и расчетный (б) спектры суммарных частот многочастотного СО-лазера в кристалле  $ZnGeP_2$

Наблюдаемые в эксперименте 113 линий лазера накачки должны были дать 6441 линию второй гармоники и суммарных частот. Численный спектр суммарных частот состоял из 1538 спектральных линий на уровне 0.01 от максимальной пиковой мощности. Несмотря на то, что получено адекватное совпадение общих форм рассчитанных и зарегистрированных спектров (максимальная пиковая мощность достигалась при 2.6 мкм, спектральная ширина составляла 0.6 мкм), при спектральном разрешении  $0.5 \text{ см}^{-1}$  было обнаружено только 97 линий ГСЧ. Этот

результат находится в соответствии с предыдущими экспериментальными результатами [20–22, 76, 77, 81, 92].

Чтобы найти «утерянные» спектральные линии, было увеличено спектральное разрешение и улучшен сбор данных. Спектральное разрешение было увеличено за счет использования дифракционной решетки с  $d = 300$  штр/мм по сравнению с ранее использовавшейся решеткой с  $d = 150$  штр/мм, а также за счет оптимизации оптической схемы, в результате которой была использована вся площадь дифракционной решетки  $100 \text{ мм} \times 100 \text{ мм}$ . Сбор данных был улучшен за счет уменьшения скорости сканирования. Эти модификации улучшили спектральное разрешение до  $\sim 0.1 \text{ см}^{-1}$  ( $\sim 0.05 \text{ нм}$ ).

Результат модификации проиллюстрирован на рисунке 4.4 на примере спектра ГСЧ на длинах волн около  $2.644 \text{ мкм}$ . Рисунок 4.4 (а) соответствует низкому спектральному разрешению ( $d = 150$  штр./мм) и высокой скорости сканирования ( $k = 1$ ). Этот набор полос был примерно идентифицирован как одиночная спектральная линия ГСЧ. При модификации спектрометра ( $d = 300$  штр./мм и  $k = 0.01$ ) наблюдалась тонкая спектральная субструктура излучения ГСЧ (рисунок 4.4 (б)). На рисунке 4.4 (б) можно увидеть не менее 6 различных спектральных линий ГСЧ. Следовательно, одиночная линия ГСЧ на рисунке 4.4 (а) фактически представляет собой группу близко расположенных линий ГСЧ, которые выглядят как одна, если снимать спектр при низком спектральном разрешении. Общий спектр излучения ГСЧ, зарегистрированный с более высоким спектральным разрешением  $\sim 0.1 \text{ см}^{-1}$ , имел такой же общий вид (рисунок 4.3 (а)) и состоял из 587 спектральных линий. Таким образом, спектр ГСЧ оказался значительно богаче, чем сообщалось ранее [20, 21, 76, 77, 81, 92]. Однако количество идентифицированных линий все равно было в три раза меньше, чем предполагалось в расчете. Сравнение расчетных и экспериментальных спектров излучения ГСЧ вблизи длины волны  $2.57 \text{ мкм}$  представлено на рисунке 4.5.

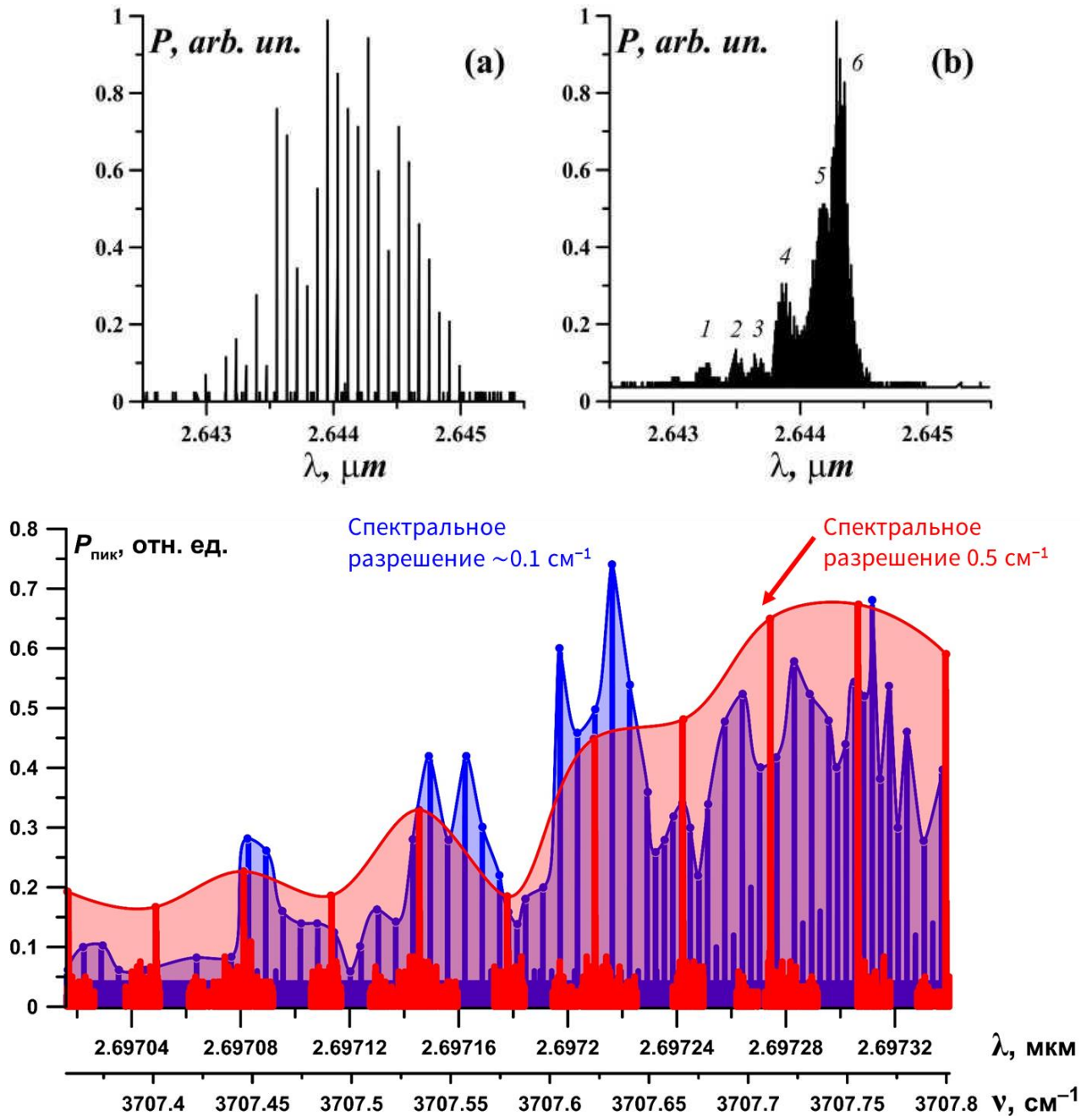


Рисунок 4.4 — Спектр суммарных частот в области длин волн вблизи 2.644 мкм, измеренный при  $k = 1$ ,  $d = 150$  штр./мм (а) и  $k = 0.01$ ,  $d = 300$  штр./мм (б) и полученный ранее при ультрамедленной записи (расстояние между разрешенными линиями, которое составляет около 0.07 нм ( $\sim 0.1 \text{ см}^{-1}$ )) (в)

Спектральное разрешение  $0.1 \text{ см}^{-1}$  позволило наблюдать тонкую структуру спектра ГСЧ излучения СО-лазера. Однако спектральное расстояние между ближайшими линиями суммарных частот в расчете составило  $\sim 10^{-3} \text{ см}^{-1}$ . Поэтому для их обнаружения необходимо лучшее спектральное разрешение. Для спектрального разрешения 90% линий ГСЧ оно должно быть  $\sim 10^{-2} \text{ см}^{-1}$ . Следует отметить, что атмосферное поглощение повлияло на измерение спектра суммарных

частот. Коэффициент пропускания 5-метрового атмосферного промежутка (соответствующего условиям эксперимента) рассчитывали с использованием базы данных «NITRAN» (модель США, средние широты, лето,  $H = 0$ ). Он показан на рисунке 4.5 пунктирной линией. Анализ показал, что в атмосфере поглощается около 20% спектральных линий и 35% мощности ГСЧ. Однако большое количество линий ГСЧ расположено в узких окнах прозрачности и может быть использовано для дистанционного анализа газа. Кроме того, возможна ГСЧ в диапазоне длин волн до  $\sim 4$  мкм, где существует основное окно прозрачности атмосферы (3–5 мкм).

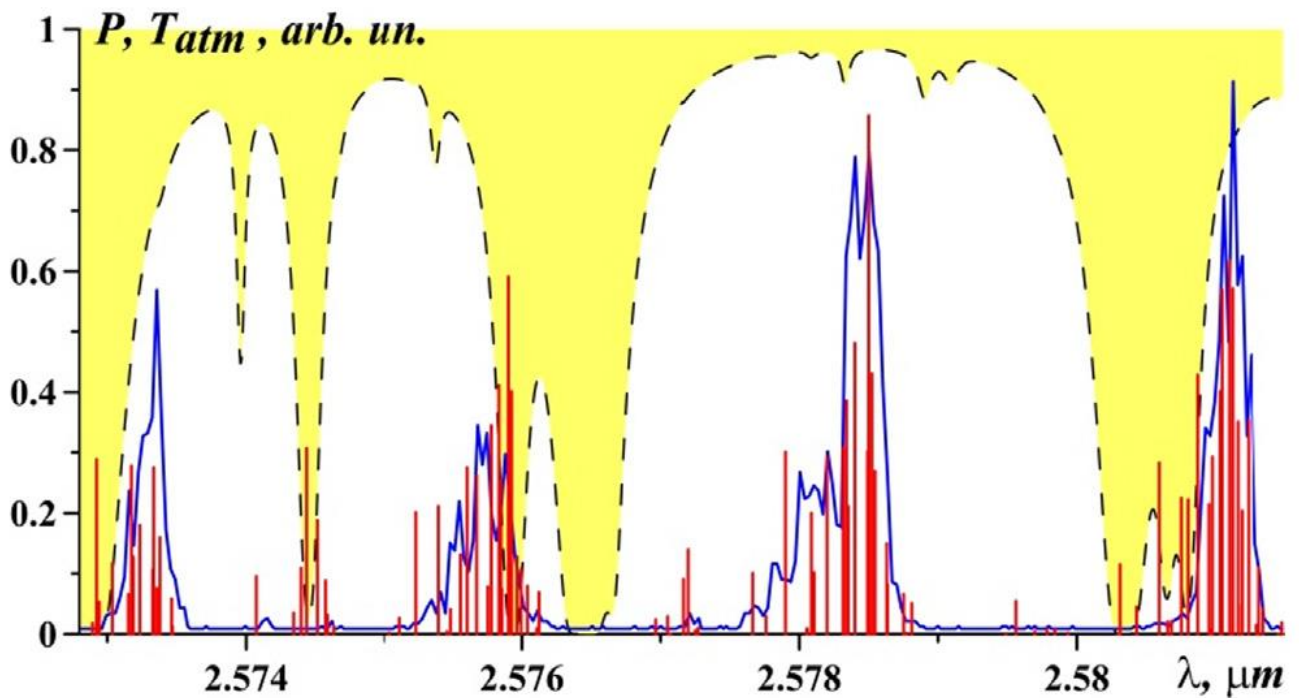


Рисунок 4.5 — Расчетные (столбцы) и измеренные (сплошная линия) спектры СЧ многочастотного СО-лазера в кристалле  $ZnGeP_2$  в диапазоне длин волн 2.57–2.58 мкм. Штриховая линия – прозрачность атмосферы

Таким образом, экспериментально показано, что спектр генерации широкополосной суммарной частоты многолинейного СО-лазера с МДР богаче, чем сообщалось ранее, и состоит из групп близко расположенных узких спектральных линий. Иными словами, такой лазерный источник дает спектр, напоминающий широкополосный оптический частотный набор среднего ИК-диапазона, имеющую сложную подструктуру из близко расположенных узких линий (рисунок 4.6). Оптический частотный набор может быть расширен на

$\sim 10^3 \text{ см}^{-1}$  в интервале длин волн от  $\sim 2.5$  до  $\sim 4 \text{ мкм}$ , в которой среднее расстояние между группами («грубая» шкала частот) составляет  $\sim 5 \text{ см}^{-1}$ . Эта «грубая» шкала частот может применяться для анализа многокомпонентных газов методом дифференциального поглощения.

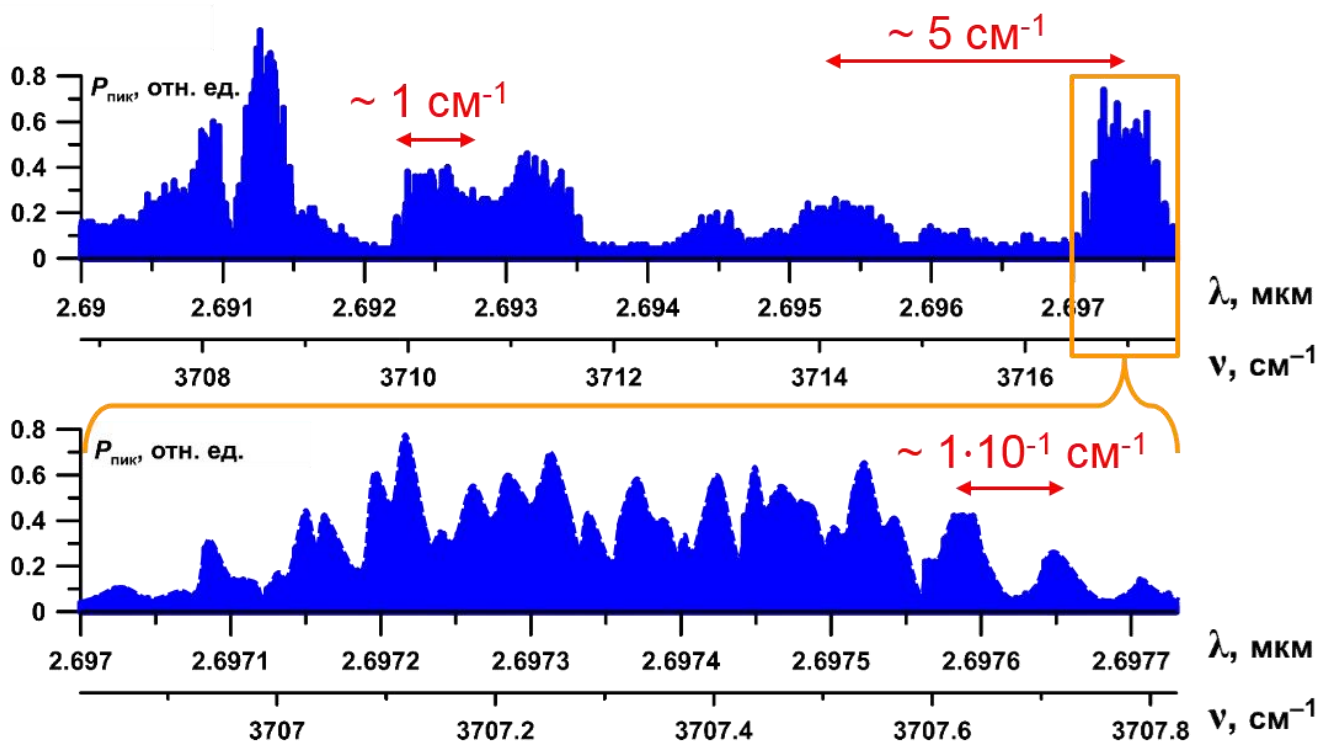


Рисунок 4.6 — Структура спектра широкополосного излучения ГСЧ

Ширина групп около  $1 \text{ см}^{-1}$ , и они состоят примерно из десятка узких ( $\sim 10^{-4} \text{ см}^{-1}$ ) линий, что можно рассматривать как «тонкую» частотную шкалу. Расстояние между спектральными компонентами внутри таких групп варьируется от  $10^{-3}$  до  $10^{-1} \text{ см}^{-1}$ . Поэтому «тонкая» шкала частот очень привлекательна для измерения профиля линии поглощения атмосферных газов.

### 4.3 Измерение профиля линии поглощения молекул $\text{CO}_2$ с помощью суммарных частот СО-лазера

Спектральный диапазон ГСЧ излучения СО-лазера ( $2.5\text{--}4.0 \text{ мкм}$ ) очень привлекателен для зондирования атмосферы из-за окна прозрачности атмосферы, также из-за уникальных полос поглощения множества различных веществ. Сечение поглощения (взято из базы данных «NITRAN» [12]) нескольких компонентов

атмосферы и некоторых загрязняющих веществ в спектральном диапазоне ГСЧ представлено на рисунке 4.7. Следует отметить, что это далеко не полный список молекул. Более того, лазерное излучение основной колебательной полосы СО-лазера (~5–8 мкм) может значительно расширить возможности зондирования такого лазерного источника. Рисунок 4.7 иллюстрирует тот факт, что широкополосное лазерное излучение ГСЧ может быть применено для измерения поглощения различных газов:  $\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{CO}_2$ ,  $\text{N}_2\text{O}$ ,  $\text{NH}_3$  и других. Поскольку спектры поглощения перекрывают друг друга, исследование атмосферы (представляющую собой многокомпонентную газовую смесь) с помощью метода дифференциального поглощения требует точно такого широкополосного многочастотного лазерного источника.

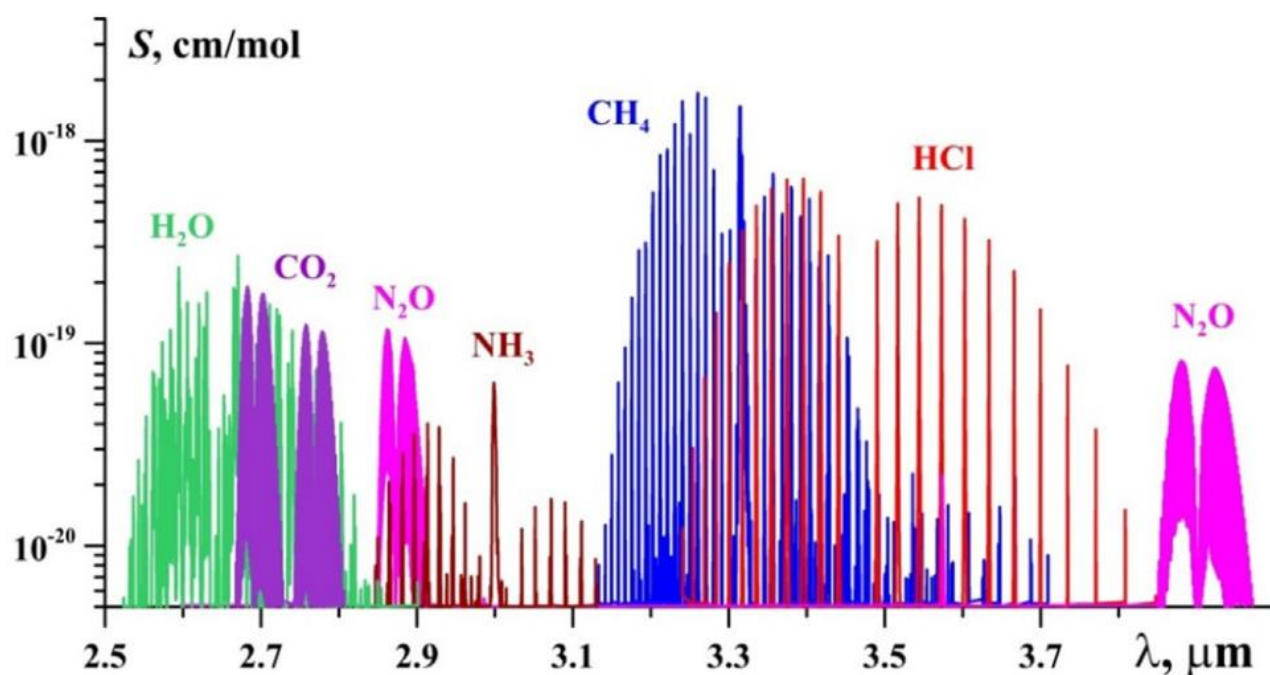


Рисунок 4.7 — Сечение молекулярного поглощения различных газов в пределах 2.5–4.0 мкм диапазона волн [12]

Для экспериментальной проверки возможности измерения профиля линии поглощения излучение суммарных частот проходило через 15-сантиметровую газовую кювету, содержащую газовую смесь  $\text{CO}_2:\text{N}_2 = 0.3:0.7$  при полном давлении газа 1 атмосфера. Кристалл  $\text{ZnGeP}_2$  был настроен на угол фазового синхронизма  $47.0^\circ$ , что было оптимальным для суммарных частот с длиной волны около 2.7 мкм.

Спектры ГСЧ, измеренные перед (1) и за (2) поглощающей кюветой, представлены на рисунке 4.8.

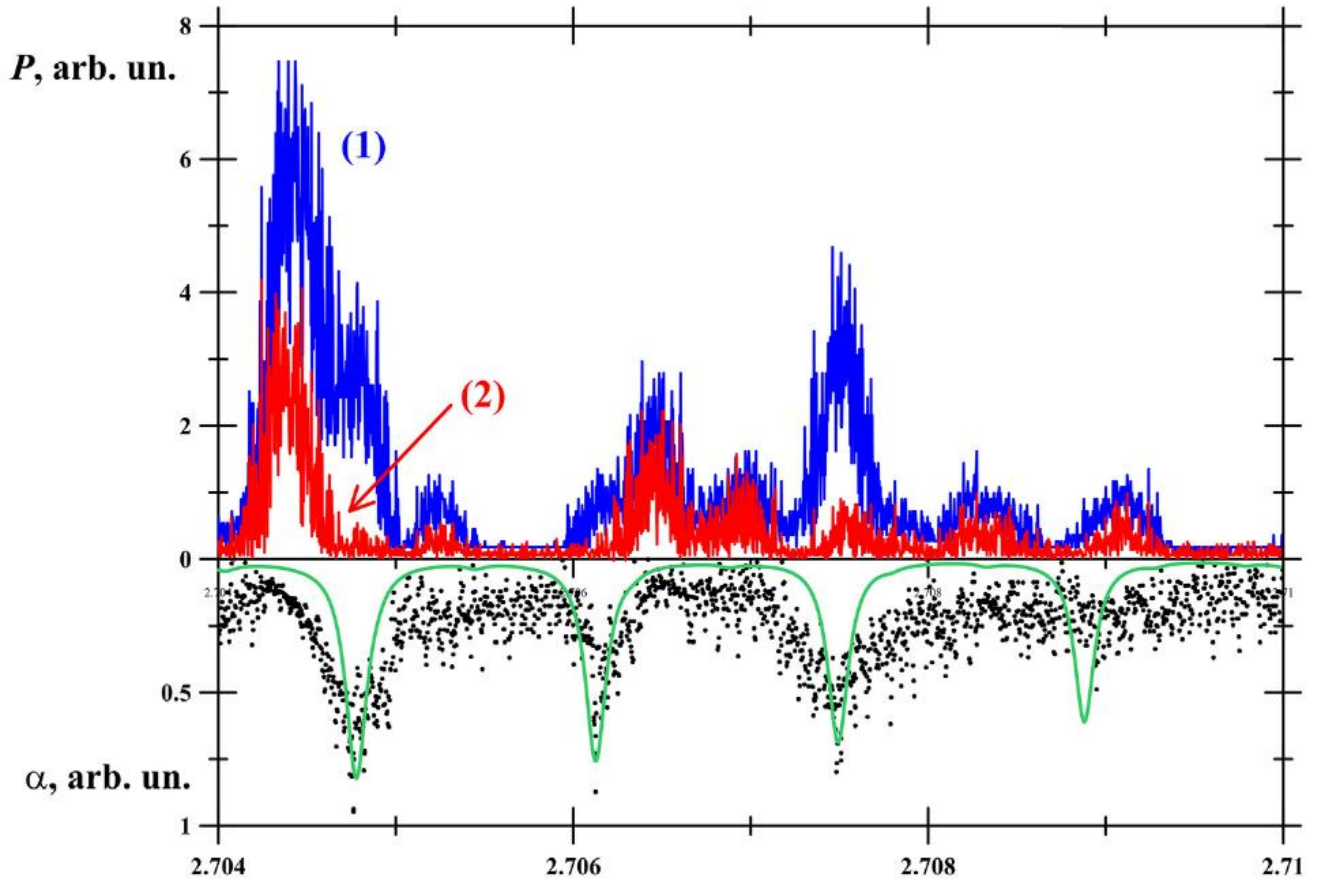


Рисунок 4.8 — Спектры ГСЧ вблизи длины волны 2.7 мкм, измеренные до (1) и после (2) газовой камеры; измеренные (точки) и рассчитанные (сплошная линия) коэффициенты поглощения молекулы  $\text{CO}_2$

Коэффициенты поглощения молекул  $\text{CO}_2$  оценивались следующим простым способом: вычисляли логарифм отношения амплитуд импульсов перед и за поглощающей кюветой и усредняли результат по 5 соседним импульсам. Расчетные коэффициенты поглощения представлены на рисунке 4.8 точками. Также на рисунке 4.8 сплошной линией представлены коэффициенты поглощения, рассчитанные с использованием базы данных «NITRAN». Несмотря на недостаточное спектральное разрешение спектрометра, мы получили удовлетворительное совпадение экспериментальных и расчетных данных. Таким образом, широкополосная генерация суммарной частоты многочастотного СО-лазера с МДР может быть использована для измерения профиля линии поглощения.



Однако, чтобы получить более высокую точность, требуется разработка надлежащих методов измерения и обработки данных.

Недостатком данного оптического частотного набора является сложная неравномерная структура как для групп линий, так и для линий внутри этих групп. Но каждая спектральная составляющая данного набора происходит от вращательно-колебательного перехода молекулы CO, поэтому ее абсолютная частота стабильна, воспроизводима и известна с высокой точностью. Еще одним преимуществом этого лазерного источника является масштабируемость. Например, пиковая мощность CO-лазеров с электроионизационной накачкой, излучающих многочастотные наносекундные импульсы, достигает мегаваттного уровня [77]. Особый интерес представляют CO-лазеры с ВЧ-разрядом [52, 76], которые разрабатываются различными коллективами, в том числе коммерческими компаниями [52]. ВЧ-разрядные CO-лазеры компактны, имеют низковольтный источник питания, а также могут работать в многочастотном режиме МДР [76]. Следует также отметить, что линии разностных частот CO-лазера могут плотно перекрывать ТГц спектральный диапазон от 100 пм до 3000 пм [95].

#### 4.4 Выводы по главе

Экспериментальное исследование спектра генерации суммарных частот излучения неселективного (многочастотного) CO-лазера в кристалле  $ZnGeP_2$  показало, что количество спектральных линий для этого спектра примерно на порядок больше, чем для сообщалось ранее. Его спектральная структура представляет собой широкополосный (до  $1000\text{ см}^{-1}$ ) оптический набор частот, состоящую из групп, имеющих сложную структуру. Данный оптический частотный набор представляет интерес для зондирования атмосферы.

Расстояние между группами составляет около  $5\text{ см}^{-1}$ , что может быть использовано для анализа многокомпонентных газов методом дифференциальной абсорбции со смесями, содержащими  $H_2O$ ,  $CO_2$ ,  $HCl$ ,  $N_2O$ ,  $NH_3$ ,  $CH_4$  и другие газы. Группы состояли из примерно дюжины узких ( $\sim 10^{-4}\text{ см}^{-1}$ ) линий, которые можно

использовать для измерения профиля линии поглощения. Экспериментально продемонстрирована возможность измерения профиля линии поглощения молекул  $\text{CO}_2$  при давлении газа 1 атм с помощью излучения ГСЧ. Развитие широкополосного щелевого ВЧ-разрядного СО-лазера в сочетании с преобразователями частоты на нелинейных кристаллах может привести к высоким рабочим характеристикам такого лазера и систем дистанционного зондирования.

## **Глава 5. Двухкаскадное внутри- и внерезонаторное широкополосное преобразование многочастотного излучения ВЧ СО-лазера с модуляцией добротности резонатора в нелинейных кристаллах $\text{BaGa}_2\text{GeSe}_6$**

Проведены эксперименты по широкополосной генерации излучения суммарной частоты с использованием щелевого СО-лазера с ВЧ-возбуждением, работающего в режиме МДР, в двух кристаллах  $\text{BaGa}_2\text{GeSe}_6$ , что привело к многочастотной генерации в спектральном диапазоне 1.7–6.0 мкм.

### **5.1 Внутррезонаторное преобразование многочастотного излучения ВЧ СО-лазера в кристалле $\text{BaGa}_2\text{GeSe}_6$ (первый каскад)**

Использование внутррезонаторного преобразования частоты является одним из вариантов, позволяющих увеличить эффективность преобразования излучения за счет большей мощности излучения внутри резонатора. Данный вариант также привлекателен тем, что он позволяет упростить устройство лазерной системы, по сравнению с внерезонаторным, и использовать непросветлённый нелинейный кристалл одновременно и как выходное зеркало лазерной системы. Внерезонаторная ГСЧ в образце кристалла  $\text{BaGa}_2\text{GeSe}_6$  [92] показала, что данный образец позволяет осуществить внутррезонаторное преобразование излучения СО-лазера. Данный кристалл имеет повышенный порог разрушения, кроме того, расчеты показывают, что в кристалле возможно преобразование для достаточно широкого диапазона длин волн [91], что делает его очень перспективным для ГСЧ излучения СО-лазера.

#### **5.1.1 Схема экспериментов по внутррезонаторному преобразованию многочастотного излучения СО-лазера в кристалле $\text{BaGa}_2\text{GeSe}_6$ (генерация суммарных частот)**

Оптическая схема экспериментов по внутррезонаторному преобразованию излучения СО-лазера представлена на рисунке 5.1.

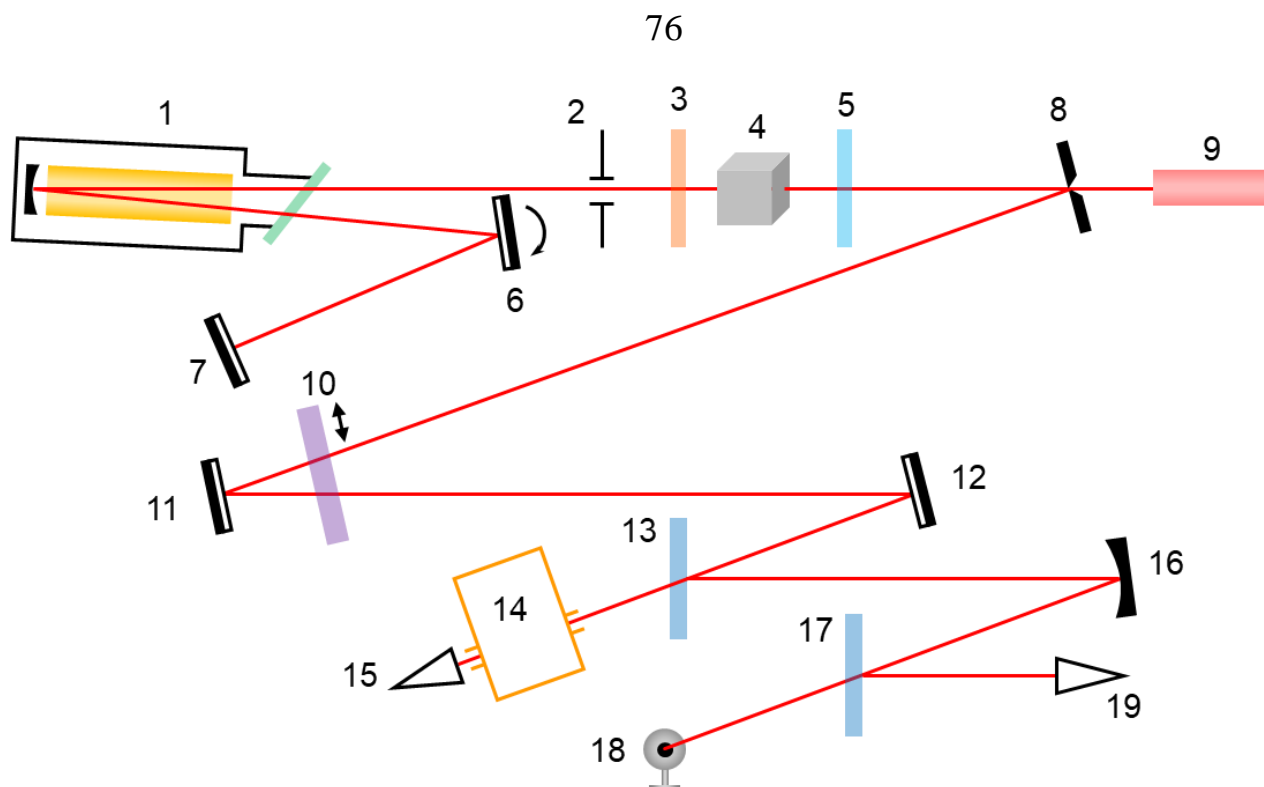


Рисунок 5.1 — Оптическая схема эксперимента по внутриврезонаторному преобразованию: 1 – ВЧ СО-лазер (внутри сферическое зеркало с радиусом кривизны 1.8 м, выходное брюстеровское окно из  $\text{CaF}_2$ ); 2 – диафрагма  $\varnothing 5$  мм; 3 – обертонное зеркало; 4 – кристалл  $\text{BaGa}_2\text{GeSe}_6$ ; 5 – выходное зеркало; 6 – вращающееся зеркало; 7 – заднее зеркало (Au на стекле К8); 8 – поворотное зеркало с отверстием; 9 – юстировочный He-Ne-лазер; 10 – кварцевая пластина (спектральный фильтр); 11, 12 – поворотные зеркала; 13 – пластина из  $\text{BaF}_2$ ; 14 – спектрометр МДР-2; 15 – фотодетектор РЕМ-1 для накачки или ThorLabs для суммарных частот; 16 – сферическое зеркало (радиус кривизны 0.25 м); 17 – пластина из  $\text{CaF}_2$ ; 18 – измеритель мощности ОРНІR-12; 19 – фотодетектор РЕМ-2

В данной серии экспериментов источником лазерного излучения служил СО-лазер 1 с накачкой импульсно-периодическим ВЧ-разрядом при криогенном охлаждении электродов, конструкция которого описана в главе 2. Камера закрывалась окном из  $\text{CaF}_2$ , расположенным под углом, близким к углу Брюстера, по отношению к оси резонатора. Двойной проход через активную среду СО-лазера 5 обеспечивался за счёт расположенного внутри лазерной камеры сферического зеркала (золото на стекле, радиус кривизны 1800 мм). Диафрагма 2 диаметром 5 мм, помещенная перед выходным зеркалом, обеспечивала работу лазера на основной поперечной моде. Импульсно-периодический режим работы лазера достигался за счёт МДР с помощью вращающегося зеркала 6, в экспериментах частота модуляции  $f$  составляла  $\sim 100$  Гц.

ВЧ-генератор запускался внешним сигналом (отражением излучения He-Ne лазера от вращающегося зеркала б) и генерировал ВЧ-импульсы длительностью 0.5 мс. Выходная мощность ВЧ-генератора составляла 0.8 кВт, отражённая от нагрузки мощность – 0.1 кВт. Электроды охлаждались жидким азотом.

Кварцевая пластина 10 применялась в качестве спектрального фильтра для отделения спектра излучения суммарных частот от спектра оптической накачки. Часть излучения СО-лазера (~ 6%) плоскопараллельными пластинами 13 и 17 отводилась на измеритель мощности 18 и фотодетектор 19, где измерялись средняя мощность и форма импульса соответственно. Спектр излучения прописывался сканирующим монохроматором 14 МДР-2 с дифракционной решеткой 150 штр./мм, куда и отводилась большая часть излучения (~ 94%). На выходе из монохроматора был установлен фотодетектор 15. Для измерения спектра СО-лазера в качестве фотодетектора 15 использовался РЕМ-3-L, а для спектра ГСЧ – Thorlabs. Для измерения средней мощности ГСЧ вместо монохроматора 14 устанавливался измеритель мощности Ophir-3A. Для направления лазерного луча в установке использовались поворотные зеркала 11 и 12 и сферическое зеркало 16.

Для внутрирезонаторного преобразования частоты оптические потери в кристалле должны быть минимизированы. Основные потери, которые может вносить кристалл  $\text{BaGa}_2\text{GeSe}_6$  внутри резонатора СО-лазера, связаны с френелевским отражением от граней кристалла (~ 28% за 1 проход излучения через кристалл). Устранение этих потерь возможно путем нанесения просветляющих покрытий на грани кристалла. Однако создание широкополосных (от 2.5 до 8 мкм) просветляющих покрытий с малым коэффициентом отражения является трудновыполнимой задачей. Одним из путей устранения потерь на отражение от граней кристалла внутри резонатора является использование образца с совпадающими углами среза и фазового синхронизма, т.е. работающий при нормальном падении излучения. Это позволяет сохранять отраженное излучение внутри резонатора. Так как кристалл  $\text{BaGa}_2\text{GeSe}_6$  новый, его дисперсионные уравнения требует проверки. Стоит отметить, что в работе [90] также получено несоответствие между измеренными и рассчитанными углами фазового

синхронизма для ГВГ излучения CO<sub>2</sub>-лазера, которое составляло 0.3°. Таким образом, угол среза кристалла был выбран на основании экспериментальных данных из работы [92].

Кубанский государственный университет предоставил лаборатории образец кристалла BaGa<sub>2</sub>GeSe<sub>6</sub> с этим углом среза. Данный образец имел апертуру 6х6 мм<sup>2</sup> и длину 10.45 мм и был срезан под углом  $\theta = 22^\circ$  и  $\varphi = 30^\circ$ . Данный угол среза соответствует условиям фазового синхронизма I-типа для широкополосной генерации суммарных частот излучения CO-лазера. На рисунке 5.2 показаны внешний вид свежеработанной булы кристалла BaGa<sub>2</sub>GeSe<sub>6</sub> (а) и готовый к использованию образец кристалла с углом среза 22° (б). Точность измерения угла равна 0.5°.

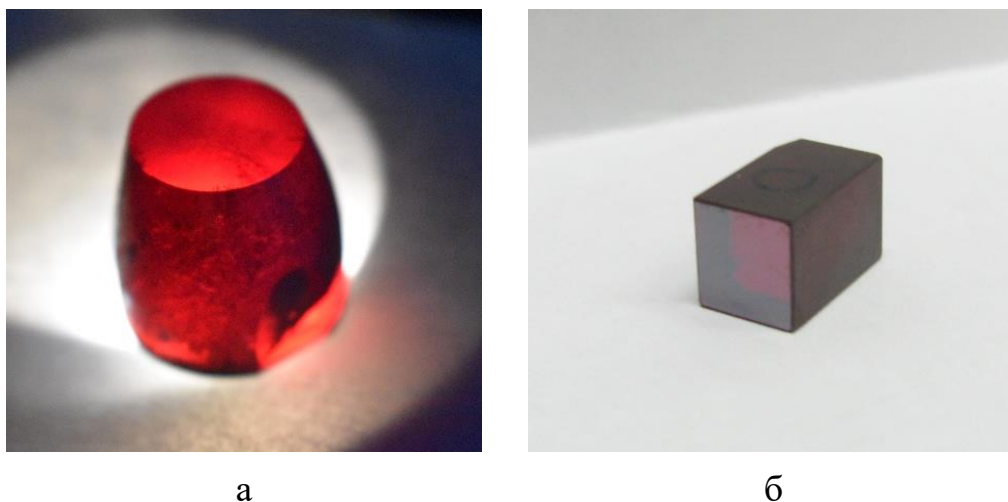


Рисунок 5.2 — Фотографии фрагмента свежеработанной булы кристалла BaGa<sub>2</sub>GeSe<sub>6</sub> (а) и образца кристалла с углом среза  $22.0 \pm 0.5^\circ$  (б)

В самой простой конфигурации резонатора в качестве выходного зеркала 5 лазерного резонатора использовался сам нелинейный кристалл BaGa<sub>2</sub>GeSe<sub>6</sub> ( $T \sim 30\%$  для диапазона длин волн основной полосы и ГСЧ). Чтобы повысить мощность излучения суммарных частот к кристаллу BaGa<sub>2</sub>GeSe<sub>6</sub> добавлялись дополнительные зеркала: непросветленная пластина из германия Ge ( $T \sim 50\%$  в диапазоне длин волн основной полосы и ГСЧ) или интерференционное зеркало (пластина из GaAs с диэлектрическим покрытием) от промышленного CO-лазера ИЛГН-706 ( $T \sim 10\%$  в диапазоне длин волн от 4.8 мкм до 6 мкм,  $45 \pm 7\%$  в диапазоне длин волн ГСЧ). Использование более плотных зеркал приводило к увеличению

добротности резонатора и мощности излучения основной полосы СО-лазера внутри резонатора.

Следует также отметить, что излучение ГСЧ имеет перпендикулярную поляризацию по отношению к излучению основной полосы СО-лазера. Это приводит к тому, что часть излучения ГСЧ, направленного в сторону активной среды СО-лазера, отражается от брюстеровского окна камеры лазера. При этом потери достигают  $\sim 40\%$  за один проход. Поэтому в некоторых вариантах оптической схемы для предотвращения взаимодействия излучения ГСЧ с активной средой СО-лазера внутри резонатора между нелинейным кристаллом и брюстеровским окном из  $\text{CaF}_2$  лазерной камеры помещалось дополнительное обортонное зеркало 3 (коэффициент отражения  $R \sim 99\%$  в диапазоне длин волн ГСЧ и  $\sim 10\%$  в диапазоне длин волн основной полосы СО-лазера), практически не пропускавшее излучение ГСЧ в сторону активной среды СО-лазера. Пропускание упомянутых оптических элементов, измеренное ИК Фурье-спектрометром АФ-3 (спектральное разрешение  $0.5 \text{ см}^{-1}$ ), представлено на рисунке 5.3.

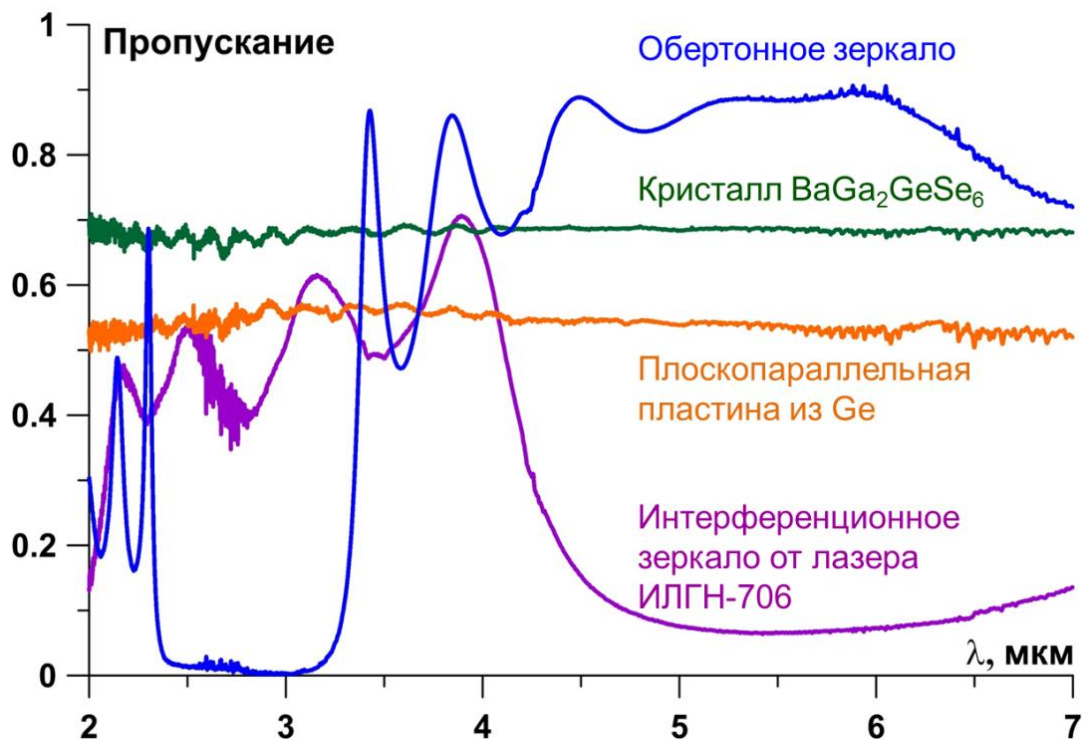


Рисунок 5.3 — Пропускание обортонного зеркала, интерференционного зеркала от лазера ИЛГН-706, плоскопараллельной пластины из германия Ge и кристалла  $\text{BaGa}_2\text{GeSe}_6$

### 5.1.2 Зависимость спектральных и энергетических характеристик лазерного излучения от выходного зеркала

В случае наиболее простой конфигурации резонатора с выходным зеркалом  $\text{BaGa}_2\text{GeSe}_6$  СО-лазер излучал микросекундные импульсы, содержащие длины волн линий как основной полосы перехода молекулы СО, так и линий ГСЧ. Пиковая мощность излучения для этого резонатора была вычислена с помощью измеренной энергии импульса и снятой формы импульса и была  $\sim 2$  кВт. Для сравнения разных типов резонаторов использовалась измеренная средняя мощность выходного излучения основной полосы и ГСЧ. Также в соответствии с пропусканием выходных зеркал вычислялась средняя мощность излучения СО-лазера внутри резонатора.

На рисунке 5.4 представлены энергетические характеристики для трех конфигураций резонатора с выходными зеркалами:  $\text{BaGa}_2\text{GeSe}_6$ , пластина из Ge и интерференционное зеркало от лазера ИЛГН-706.

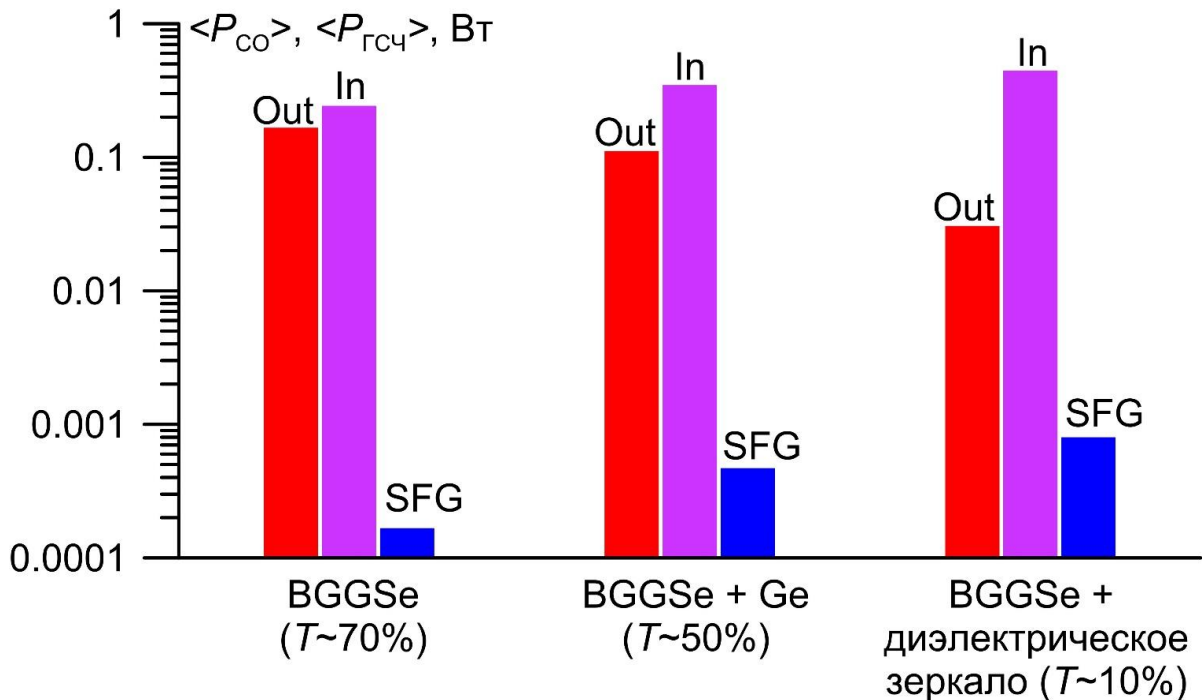


Рисунок 5.4 — Средняя мощность излучения СО-лазера после выхода из резонатора (Out), внутри резонатора (In), и средняя мощность излучения суммарных частот на выходе из резонатора (SFG)



Средняя мощность излучения СО-лазера составила 166 мВт для первого случая, 111 мВт – для второго и 31 мВт – для третьего. Использование более плотного зеркала в качестве выходного приводит к тому, что большая часть излучения собственно СО-лазера запирается внутри резонатора, а значит, и большая часть излучения преобразуется в нелинейном кристалле, тем самым обеспечивая большую среднюю мощность излучения ГСЧ. В случае наименее плотного выходного зеркала – нелинейного кристалла  $\text{BaGa}_2\text{GeSe}_6$  – она составляла 0.17 мВт, тогда как для более плотных зеркал – пластинки из Ge и зеркала от лазера ИЛГН-706 она достигала 0.47 и 0.8 мВт, соответственно. Эффективность преобразования составила  $\sim 0.1\%$  для кристалла  $\text{BaGa}_2\text{GeSe}_6$ ,  $\sim 0.3\%$  для пластинки из Ge и  $\sim 0.4\%$  для зеркала от лазера ИЛГН-706. Полученные значения представлены в таблице 5.1. То есть увеличение мощности СО-лазера внутри резонатора почти в 2 раза позволило увеличить мощность ГСЧ в  $\sim 4$  раза.

Таблица 5.1 — Полученные значения средней мощности излучения СО-лазера на выходе и внутри резонатора, ГСЧ и эффективность преобразования излучения для различных конфигураций резонатора

Выходное зеркало	$\langle P_{\text{CO}} \rangle$ , мВт	$\langle P_{\text{CO}}^{\text{in}} \rangle$ , мВт	$\langle P_{\text{ГСЧ}} \rangle$ , мВт	K, %
Кристалл $\text{BaGa}_2\text{GeSe}_6$ ( $T \sim 70\%$ )	166	243	0.17	0.1
Пластинка из германия Ge ( $T \sim 50\%$ )	111	348	0.47	0.3
Интерференционное зеркало ( $T \sim 10\%$ )	31	446	0.8	0.4

На рисунках 5.5, 5.6, 5.7 представлены спектры выходного излучения СО-лазера и излучения суммарных частот для этих трёх конфигураций резонатора. На каждом из рисунков показаны спектры выходного излучения СО-лазера (а) и излучения суммарных частот (б). Средняя мощность каждой отдельной линии спектра СО-лазера и ГСЧ рассчитывалась из полной средней мощности излучения СО-лазера и ГСЧ.

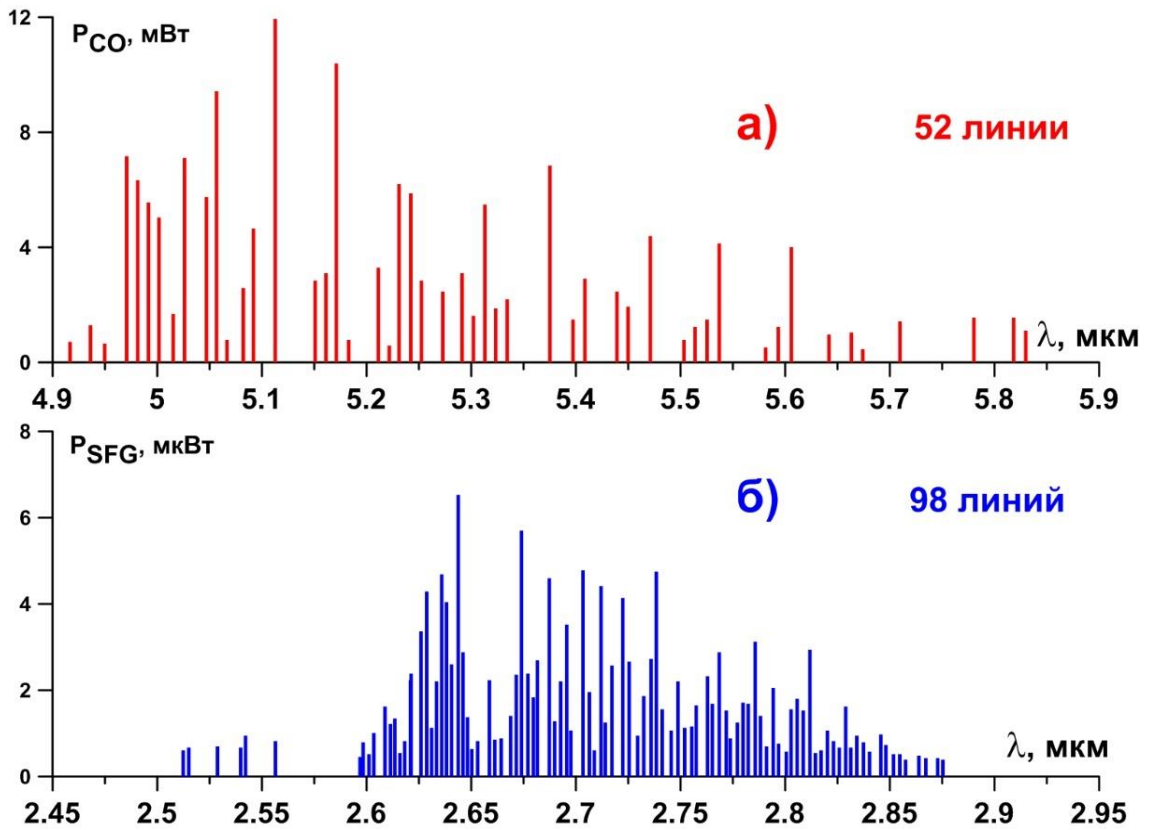


Рисунок 5.5 — Спектры основной полосы СО-лазера (а) и ГСЧ (б) для выходного зеркала – кристалла  $\text{BaGa}_2\text{GeSe}_6$  ( $T \sim 70\%$ )

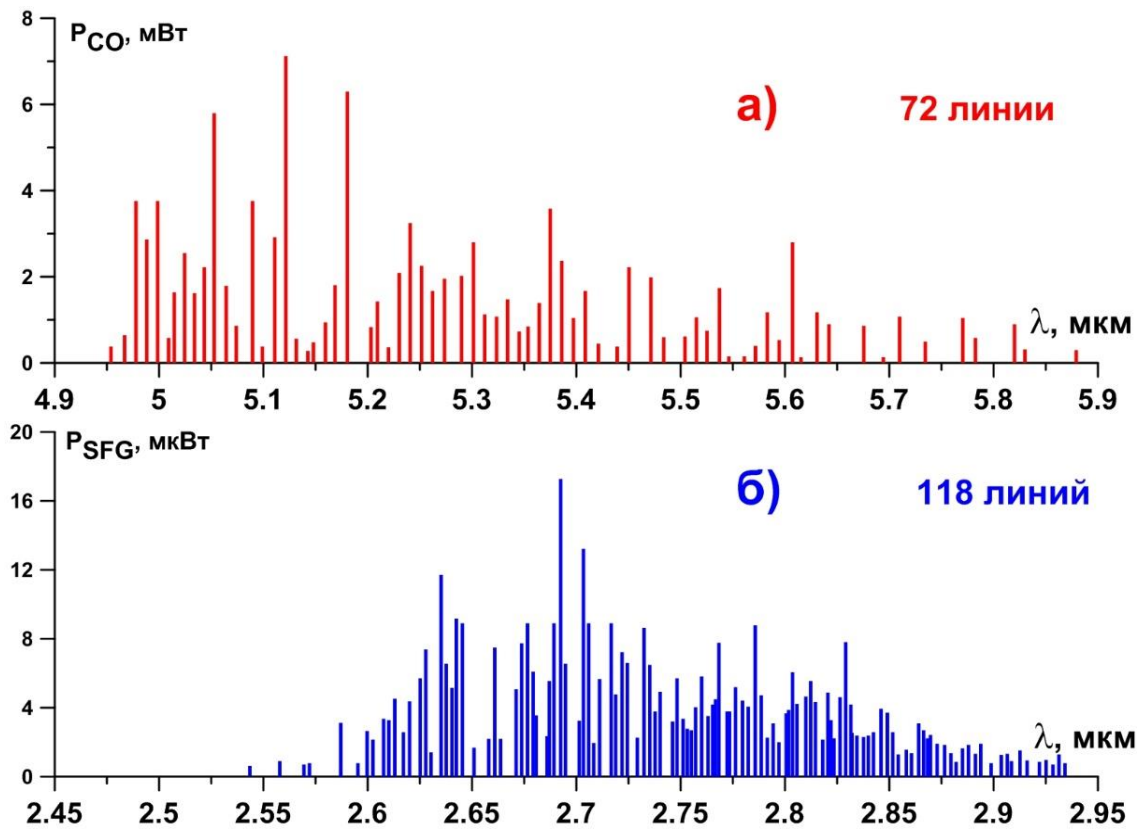


Рисунок 5.6 — Спектры основной полосы СО-лазера (а) и ГСЧ (б) для выходного зеркала – пластинки из Ge ( $T \sim 50\%$ )

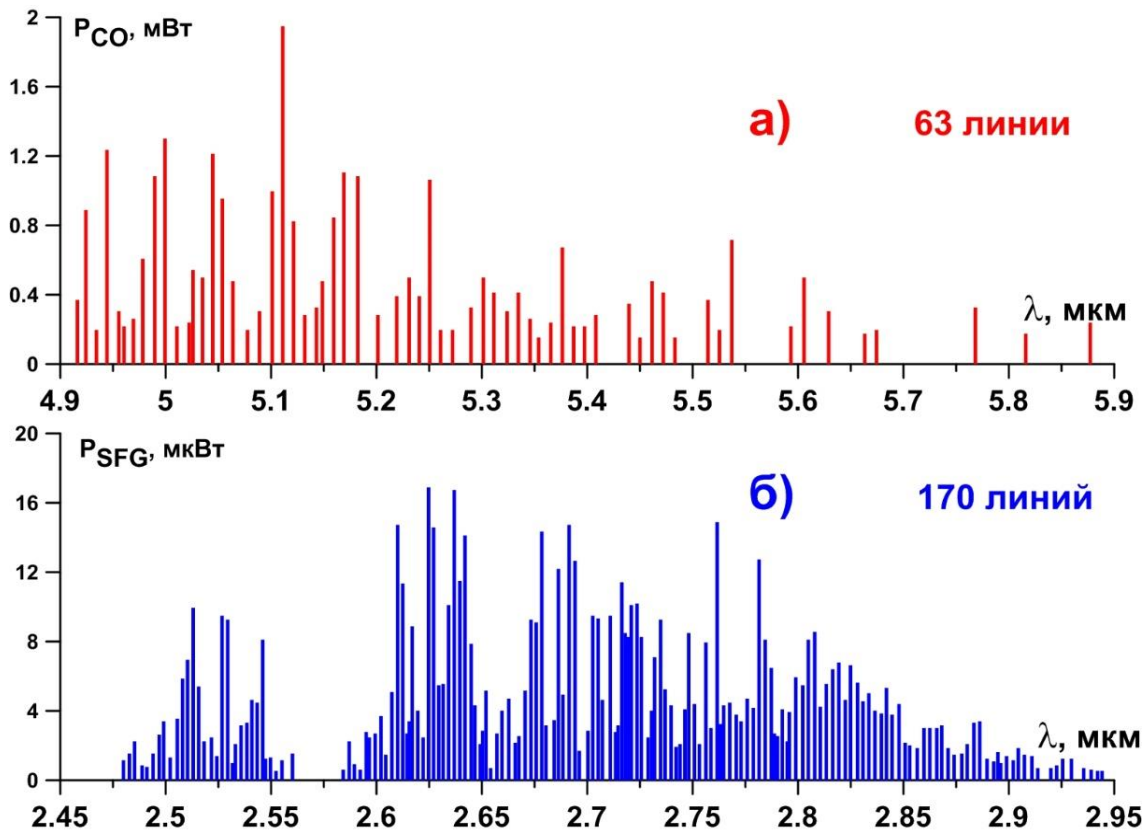


Рисунок 5.7 — Спектры основной полосы СО-лазера (а) и ГСЧ (б) для выходного зеркала ИЛГН-706 ( $T \sim 10\%$ )

Как видно из рисунков 5.5, 5.6, 5.7, излучение СО-лазера, выходящее из резонатора, хотя и отличалось по мощности, но было близко по ширине спектра (от 4.9 до 5.9 мкм) и числу линий (спектры насчитывали около 50–70 колебательно-вращательных компонент) для всех трех конфигураций резонатора. Единственное существенное отличие между спектрами заключалось в величине средней мощности. В случае же ГСЧ использование более плотных зеркал, т.е. благодаря запирацию большей доли излучения основной полосы СО-лазера в резонаторе, приводит не только к увеличению средней мощности излучения суммарных частот, но также и к увеличению числа линий спектра. Спектры ГСЧ насчитывали 98, 118 и 170 линий для первого, второго и третьего случая соответственно. Для зеркала с  $T \sim 10\%$  спектр ГСЧ лежал в диапазоне 2.45–2.95 мкм. На данном спектре хорошо виден провал в линиях ГСЧ в диапазоне 2.55–2.60 мкм. При этом необходимо отметить, что спектр ГСЧ, полученный в одном и том же кристалле  $\text{BaGa}_2\text{GeSe}_6$  при внрезонаторном преобразовании не имел такого провала (рисунок 5.8).

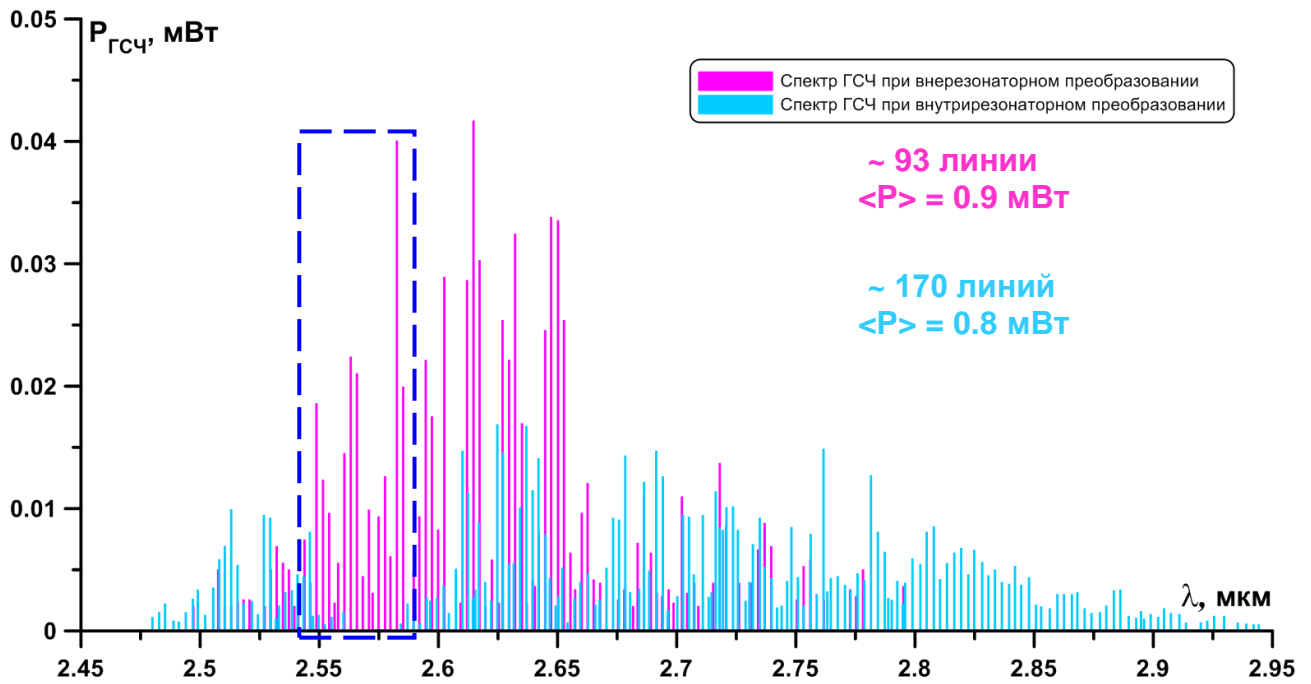


Рисунок 5.8 — Сравнение спектров ГСЧ при вне- и внутрирезонаторном преобразовании

Одно из объяснений данного явления связывалось с возможностью поглощения некоторых линий ГСЧ в активной среде СО-лазера на обертоновых переходах или плазмой самого ВЧ-разряда. Для проверки этого предположения внутрь резонатора между нелинейным кристаллом и брюстеровским окном из  $\text{CaF}_2$  лазерной камеры помещалось дополнительное плоское обертоновое зеркало. Однако его введение существенно не изменяло вид спектра ГСЧ, из чего можно сделать вывод, что взаимодействие излучения ГСЧ с активной средой СО-лазера незначительно. Но при этом наличие зеркала приводило к увеличению средней мощности ГСЧ в 1.5–2 раза для каждой из трех конфигураций резонатора. Данный факт связан с тем, что поляризация суммарных частот перпендикулярна поляризации излучения СО-лазера, поэтому оно испытывает существенные потери на брюстеровском окне ( $\sim 40\%$  при каждом обходе резонатора). Введение дихроичного зеркала практически убирало эти потери. Наибольшая средняя мощность ГСЧ была получена для варианта с выходным зеркалом, имеющим пропускание  $T \sim 10\%$ , и дополнительным обертоновым зеркалом и достигала  $\sim 1.2$  мВт (пиковая мощность  $\sim 10$  Вт).

Различие спектров ГСЧ при внутри- и внерезонаторном преобразовании, по видимому, связано с тем, что для каждого варианта преобразования соблюдаются свои условия фазового синхронизма.

Как было указано в главе 3, мощность излучения генерации суммарных частот  $P_{\text{ГСЧ}}$  может быть рассчитана по формуле (4), для удобства она ещё раз приведена ниже:

$$P_3 = \frac{8\pi^2 d_{\text{eff}}^2 L^2 P_1 P_2}{\varepsilon_0 c n_1 n_2 n_3 \lambda_3^2 A} \text{sinc}^2\left(\frac{|\Delta k| L_{\text{eff}}}{2}\right) \quad (4)$$

где  $d_{\text{eff}}$  — эффективный нелинейный коэффициент;  $n_1, n_2, n_3$  — показатели преломления нелинейного кристалла на длинах волн;  $\lambda_3$  — длина волны ГСЧ;  $\varepsilon_0$  — диэлектрическая проницаемость вакуума;  $P_1$  и  $P_2$  — мощность излучения лазера накачки для двух линий СО-лазера;  $P_3$  — мощность суммарной частоты;  $\Delta k$  — волновая расстройка;  $L_{\text{eff}}$  — эффективная длина кристалла;  $A$  представляет собой поперечное сечение лазерного луча;  $c$  — скорость света в вакууме. Дисперсионные уравнения и эффективный нелинейный коэффициент для нелинейного кристалла ВGGSe взяты из [90].

Видно, что мощность суммарной частоты пропорциональна плотности мощности накачки, квадрату длины кристалла, квадрату эффективной нелинейности, т.е. «параметру качества» нелинейного кристалла, а также члену  $\text{sinc}^2(|\Delta k| L_{\text{eff}} / 2)$ , характеризующему влияние волновой расстройки на эффективность преобразования. Также можно отметить её обратную пропорциональность площади сечения лазерного пучка.

В случае внерезонаторного преобразования излучение СО-лазера фокусировалось линзой, что приводило к уменьшению эффективной длины взаимодействия в кристалле  $L_{\text{eff}}$ , а также изменению углов падения излучения на входную грань кристалла, что приводило к фазовому рассогласованию между различными линиями СО-лазера через функцию квадрата sinc. В случае же внутрирезонаторного преобразования использовалась вся длина кристалла.

На рисунке 5.9 показаны спектры ГСЧ при внутри- и внерезонаторном преобразовании и соответствующие им квадраты sinc-функций. Расчёт значений

функций производился для одной и той же длины кристалла  $L_{\text{eff}} = 10.45$  мм, но для разных углов между направлением излучения накачки в кристалле и оптической осью кристалла ( $\theta = 21.13^\circ$  для внутрирезонаторного варианта и  $\theta = 21.33^\circ$  для внерезонаторного).

Из рисунка 5.9 видно, что провал в спектре ГСЧ при внутрирезонаторном преобразовании находится в диапазоне длин волн, где функция квадрата sinc близка нулю. Внерезонаторное преобразование в отличие от внутрирезонаторного как в теории, так и в эксперименте такого провала не имеет.

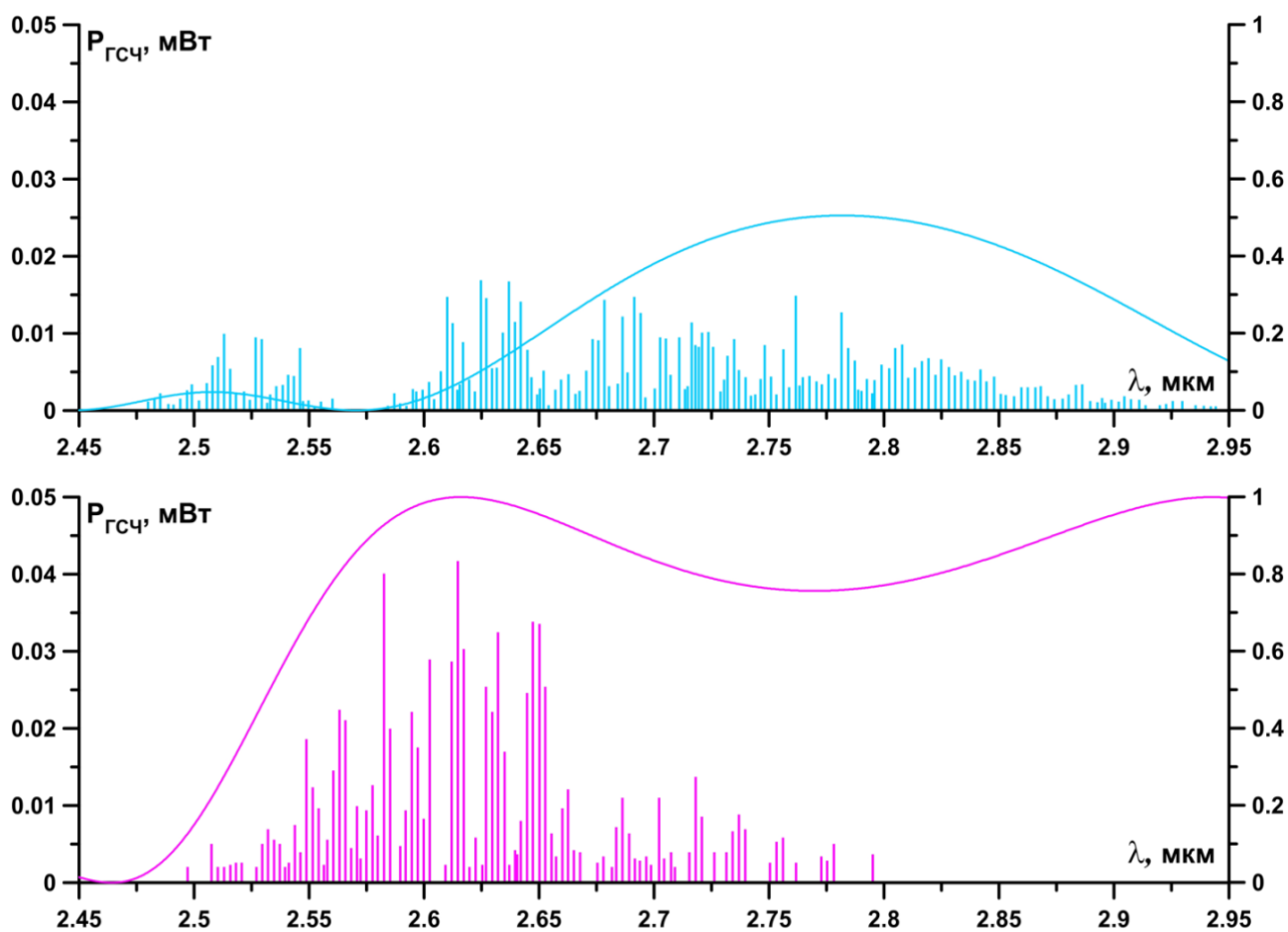


Рисунок 5.9 — Спектры ГСЧ при внутри- (сверху) и внерезонаторном (снизу) преобразовании и соответствующие им квадраты sinc-функций

Несмотря на то, что эффективность преобразования при внутрирезонаторном варианте была в 3 раза меньше, чем при внерезонаторном, средняя мощность ГСЧ при внутрирезонаторном преобразовании была в 1.3 раза выше благодаря тому, что в последнем случае используется почти все рабочее сечение нелинейного кристалла (диаметр 5 мм). При этом интенсивность излучения СО-лазера на

поверхности кристалла при внутрирезонаторном преобразовании на порядок меньше, чем при внерезонаторном преобразовании, когда на кристалле интенсивность излучения СО-лазера близка к предельно допустимой. Это создает перспективу увеличения средней мощности ГСЧ и коэффициента преобразования для внутрирезонаторного варианта.

## **5.2 Двухкаскадная генерация суммарных частот излучения СО-лазера в кристалле $\text{BaGa}_2\text{GeSe}_6$**

Проведено экспериментальное исследование широкополосной генерации излучения суммарной частоты с использованием щелевого СО-лазера с ВЧ-возбуждением, работающего в режиме МДР, в двух кристаллах  $\text{BaGa}_2\text{GeSe}_6$ . Таким образом удалось осуществить многочастотную генерацию в спектральном диапазоне 1.7–6.0 мкм.

### **5.2.1 Схема экспериментов по двухкаскадной генерации суммарных частот СО-лазера в кристалле $\text{BaGa}_2\text{GeSe}_6$**

В простейшей конфигурации лазерного резонатора кристалл  $\text{BaGa}_2\text{GeSe}_6$  работает не только как преобразователь частоты, но и как выходное зеркало. Для внутрирезонаторной ГСЧ использовался тот же кристалл, что и в описанной выше работе в предыдущем подразделе (с апертурой  $6 \times 6$  мм<sup>2</sup>, длиной 10.45 мм и углом среза  $\theta_{cp} = 22^\circ$  и  $\varphi_{cp} = 30^\circ$ , где  $\theta$  – полярный,  $\varphi$  – азимутальный углы в координатном пространстве кристалла). Как и в предыдущей работе были исследованы другие конфигурации резонатора, в которых устанавливалось дополнительное выходное зеркало. Были рассмотрены два варианта: плоскопараллельная пластинка из Ge с коэффициентом отражения  $\sim 50\%$  в диапазоне длин волн основной полосы и ГСЧ и пластина с GaAs с диэлектрическим покрытием с коэффициентом отражения  $\sim 90\%$  для излучения основной полосы и  $\sim 50\%$  для излучения суммарных частот.

Для генерации второго каскада суммарных частот излучение лазерной системы, состоящее из излучения основной полосы СО-лазера и полученной

внутрирезонаторно ГСЧ, фокусировалось линзой  $\text{CaF}_2$  с фокусным расстоянием 12 см во второй образец кристалла BGGSe, расположенный уже вне резонатора. Кристалл BGGSe толщиной 4.7 мм был срезан под углами  $\theta_{\text{ср}} = 36^\circ$  и  $\varphi_{\text{ср}} = 30^\circ$ , имелась возможность настраивать его по углу  $\varphi$  (в плоскости Z) и по углу  $\theta$  (в плоскости 110). Излучение, выходящее из кристалла, коллимировалось линзой  $\text{CaF}_2$  (фокусное расстояние 20 см) и направлялось в ИК-фотодетектор (PDA20H, ThorLabs) через набор фильтров или в ИК-спектрометр (МДР-2, ЛОМО). Набор фильтров состоял из разных стеклянных пластин с диэлектрическим покрытием, которые блокировали излучение с длиной волны более 2.2 мкм и были прозрачными для более коротковолнового излучения. Для измерения спектра двухкаскадной генерации суммарных частот (ДГСЧ) в ИК-спектрометре использовалась дифракционная решётка 300 штр/мм, а для измерения спектров СЧ и основной полосы – 150 штр/мм. Схема эксперимента представлена на рисунке 5.10.

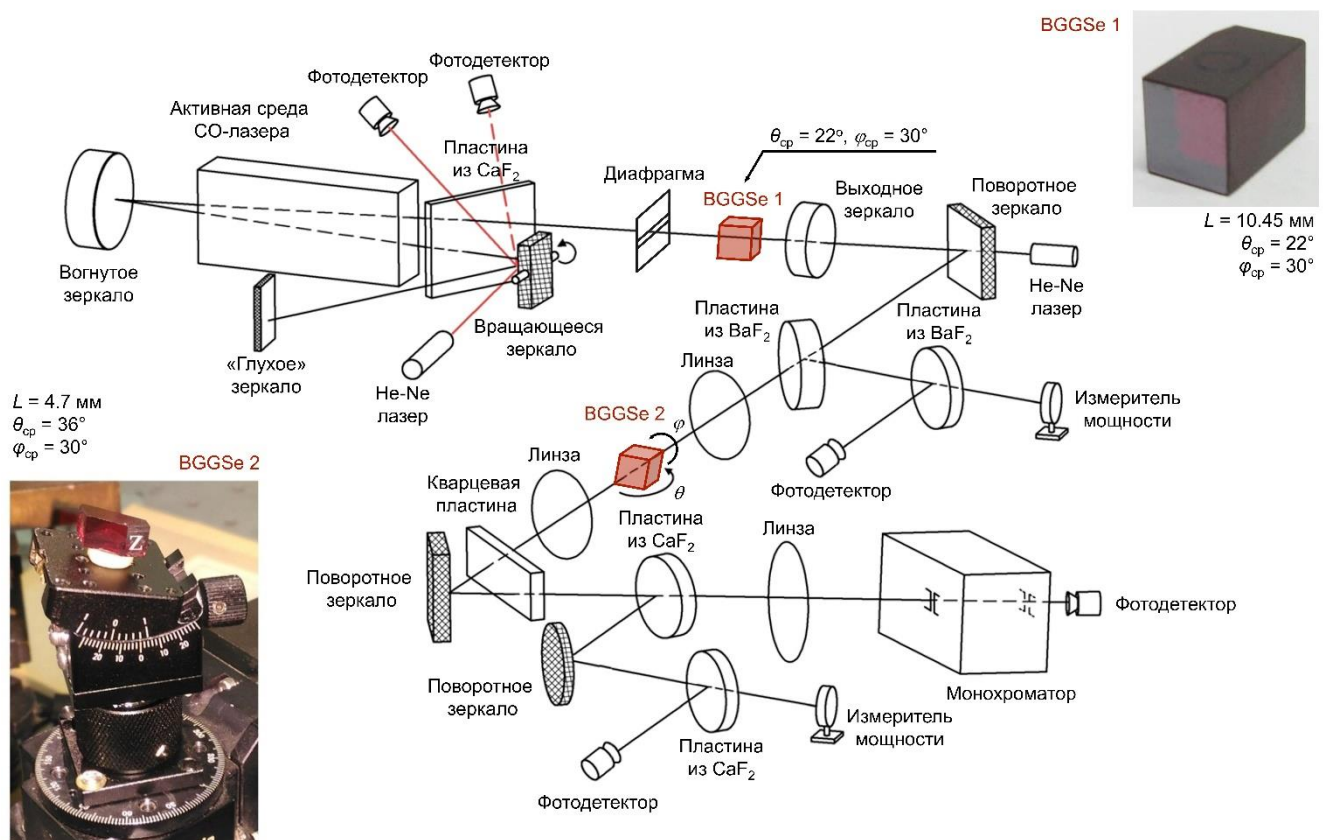


Рисунок 5.10 — Схема экспериментов по двухкаскадной генерации суммарных частот излучения СО-лазера



### 5.2.2 Условия достижения максимальной эффективности двухкаскадной генерации суммарных частот, энергетические и спектральные характеристики двухкаскадной генерации суммарных частот

В отличие от работы по внутрирезонаторной ГСЧ излучения СО-лазера в нелинейном кристалле BGGSe, описанной в разделе 5.1, в работе по ДГСЧ излучения СО-лазера использовался оптимизированный состав активной среды  $\text{CO} : \text{Воздух} : \text{He} = 1 : 1.5 : 8.8$  при общем давлении 30 Торр, предложенный в [96]. Кроме этого, в настоящей работе диафрагма с круглым отверстием диаметра 5 мм была заменена на щелевую с шириной щели 4 мм. Данная оптимизация лазера привела к уменьшению длительности импульса по полувысоте до 0.7 мкс, т.е. в два раза по сравнению с результатами, описанными в разделе 5.2 и [27]. Однако при этом удалось увеличить пиковую мощность с  $\sim 2$  кВт до 4.7 кВт в основной полосе (см. рисунок 5.11).

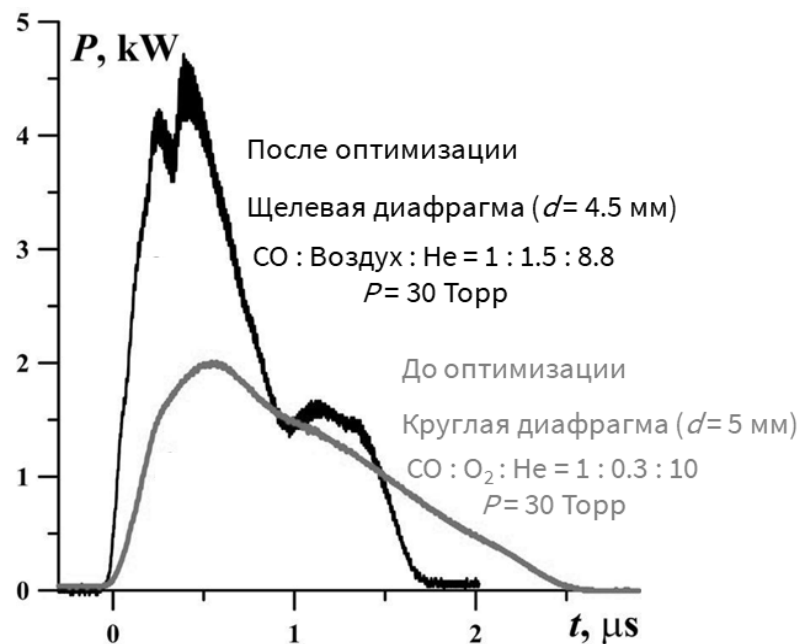


Рисунок 5.11 — Форма импульса основной частоты СО-лазера до и после оптимизации

Пиковые мощности для конфигураций выходными зеркалами пластиной из Ge и интерференционным зеркалом составили около 4.2 кВт и 1.0 кВт соответственно. В итоге была увеличена также средняя мощность как основного

излучения СО-лазера, так и средняя мощность ГСЧ по сравнению с соответствующими мощностями, полученными в экспериментах по внутриврезонаторной ГСЧ излучения СО-лазера в кристалле BGGSe. При этом средняя мощность выходного излучения для конфигураций с самим кристаллом в качестве выходного зеркала, с пластиной из Ge и диэлектрическим зеркалом основной полосы СО-лазера была увеличена примерно в два раза до  $375 \pm 40$  мВт,  $285 \pm 30$  мВт,  $52 \pm 7$  мВт, а средняя мощность излучения ГСЧ была 0.33 мВт, 1.5 мВт, 6.0 мВт, что соответственно в 2, 3 и 7.5 раз выше результатов, приведённых в разделе 5.2. Максимальная пиковая мощность ГСЧ составляла около 100 Вт (для интерференционного зеркала), что на порядок выше (полученная до оптимизации пиковая мощность была  $\sim 10$  Вт). Эффективность ГСЧ, определяемая как отношение средней мощности ГСЧ к мощности основной, составляла 1.7% (примерно в 4 раза выше). Следует отметить, что конфигурация резонатора с пластиной из Ge обеспечивала максимальное значение произведения мощностей основной полосы СО-лазера и ГСЧ, что важно для второго каскада ГСЧ, так как её мощность пропорциональна этому произведению [94, С. 50].

В итоге значительное увеличение мощности излучения СО-лазерной системы позволило реализовать ДГСЧ во втором нелинейном кристалле, т.е. генерацию суммарной частоты излучения основной полосы СО-лазера и его суммарных частот, полученных внутриврезонаторно в первом кристалле. Также этому способствовало то, что излучение основной полосы и ГСЧ имеют точное пространственное и временное перекрытие. При этом они имеют перпендикулярную поляризацию, поэтому ДГСЧ следует выполнять при фазовом синхронизме II типа. В работе использовался кристалл BGGSe. Данный кристалл имеет высокую нелинейную восприимчивость второго порядка, является прозрачным для диапазона длин волн 1.5–6 мкм и имеет высокое двулучепреломление для реализации фазового синхронизма II типа при наших условиях.

Для расчетов дисперсионные уравнения показателя преломления кристалла BGGSe взяты из [90]. Были найдено, что в наших экспериментальных условиях

можно реализовать два варианта фазового синхронизма ДГСЧ II типа:  $eo-o$  и  $oe-o$ . Расчеты показали, что для не критического фазового синхронизма, обеспечивающего смещение большого числа линий суммарных частот с большим числом линий основной полосы лазера, следует выбрать тип взаимодействия  $eo-o$ , что приведёт к широкополосной ДГСЧ в диапазоне длин волн от 1.65 до 1.90 мкм.

Из выражений для расчета эффективного нелинейного коэффициента  $d_{\text{eff}}$  для кристалла BGGSe [90] следует, что для не критического фазового синхронизма II типа для взаимодействия типа  $eo-o$  оптимальным углом является  $\varphi = 0^\circ$ .

Поэтому для достижения максимальной мощности ДГСЧ с фазовым синхронизмом II типа кристалл, срезанный под углами  $\theta_{cp} = 36^\circ$  и  $\varphi_{cp} = 30^\circ$ , необходимо было настраивать по углу  $\varphi$  (в плоскости Z) и по углу  $\theta$  (в плоскости 110). На рисунке 5.12 представлена зависимость эффективности ДГСЧ от углов  $\theta$  (а) и  $\varphi$  (б).

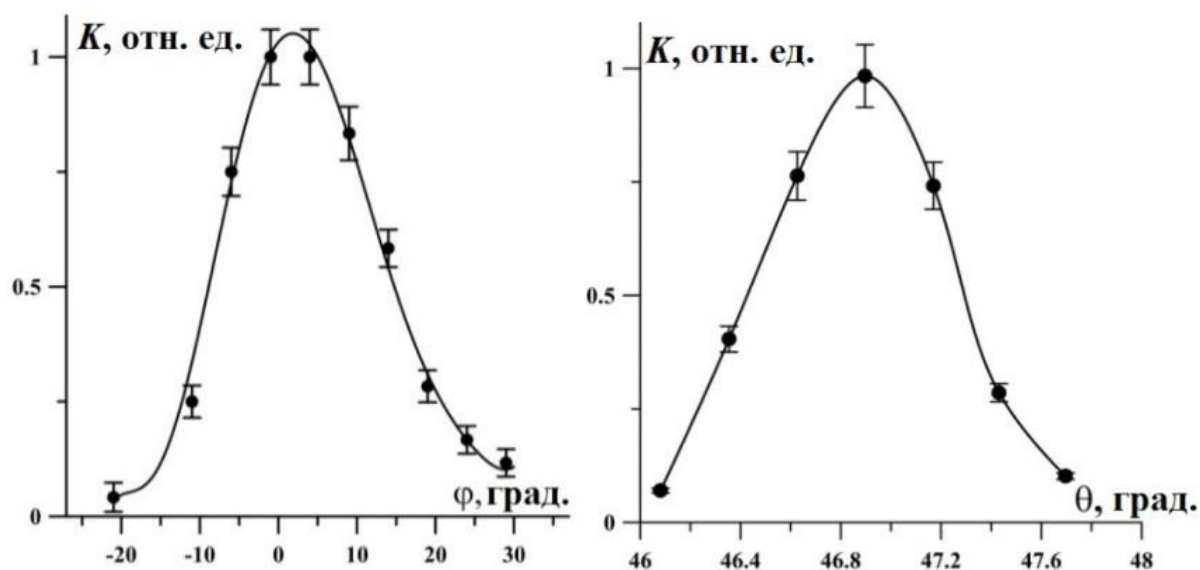


Рисунок 5.12 — Относительная эффективность ДГСЧ в зависимости от углов  $\varphi$  (слева) и  $\theta$  (справа)

Максимальная эффективность ДГСЧ была достигнута при  $\theta = 46.9^\circ$  и  $\varphi = 0^\circ$ , что хорошо согласуется с расчётами. Средняя мощность и пиковая мощность излучения ДГСЧ оценивались как 35 мкВт и 0.5 Вт соответственно. Эффективность преобразования составляла около 0.013%.

Спектральные характеристики основного излучения СО-лазера, ГВГ и ДГСЧ представлены на рисунке 5.13. Спектр основной полосы СО-лазера состоял из 77

линий в диапазоне длин волн 4.9–6.0 мкм. Было зарегистрировано около 80 линий в диапазоне длин волн от 2.50 до 2.95 мкм излучения ГВГ. Значения мощностей отдельных линий на данном рисунке откалиброваны на значения пиковых мощностей, суммарных по спектру, рассчитанных исходя из результатов измерения формы импульса и средней мощности излучения ГСЧ и основной полосы.

Спектры ДГСЧ, измеренные при различных углах фазового синхронизма, представлены на рисунке 5.13 (в). Спектральная ширина ДГСЧ составляла около 50 нм с положением максимума, зависящим от угла фазового синхронизма  $\theta$ . ДГСЧ наблюдалась в диапазоне длин волн от 1.7 до 1.9 мкм в виде набора очень близко расположенных узких линий (они не были разрешены в эксперименте), которые можно рассматривать как непрерывный спектр.

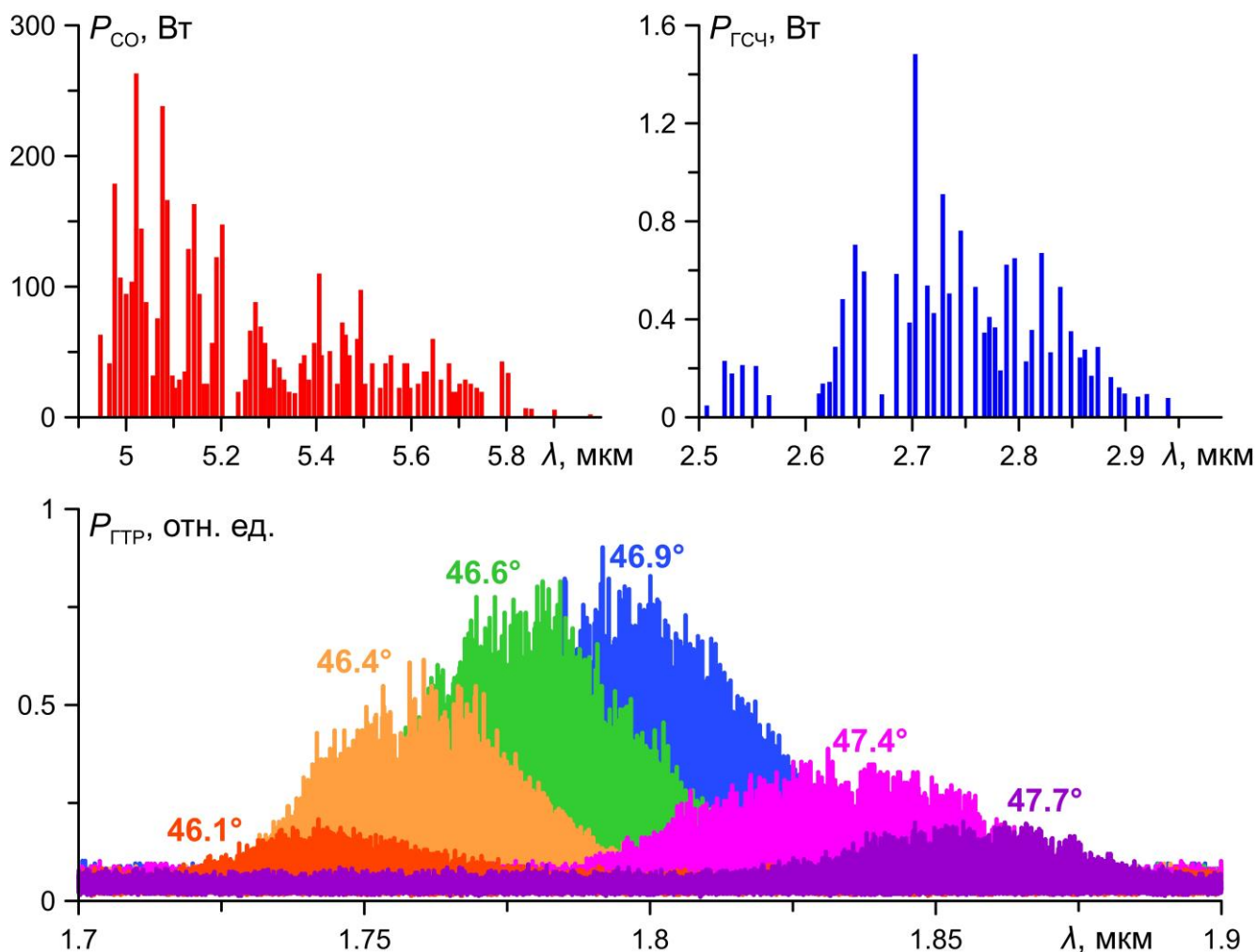


Рисунок 5.13 — Спектры основной полосы СО-лазера (а), ГСЧ (б), ДГСЧ при различных углах фазового синхронизма (в)

### 5.3 Выводы по главе

Использование выходных зеркал с более высоким коэффициентом отражения для основной полосы излучения СО-лазера с МДР (~4.9–5.9 мкм) приводит к возрастанию мощности излучения суммарных частот (до 1.2 Вт), увеличению числа линий (до 170) и ширины этого спектра (2.45–2.95 мкм) при внутрирезонаторной накачке нелинейного кристалла BGGSe. Суммирование излучения обоих диапазонов во втором нелинейном кристалле BGGSe позволяет получать излучение суммарных частот в диапазоне длин волн 1.7–1.9 мкм. Максимальная мощность ДГСЧ достигается при выходном зеркале – пластине из Ge, средняя и пиковая мощность достигают 35 мкВт и 0.5 Вт соответственно. Эффективность преобразования составляет около 0.013%. Средняя мощность излучения СО-лазера была 285 мВт, а средняя мощность излучения ГСЧ, полученная внутрирезонаторно, – 1.5 мВт.

## **Глава 6. Генерация разностных частот излучения СО- и СО<sub>2</sub>-лазеров в нелинейных кристаллах AgGaSe<sub>2</sub>, BaGa<sub>2</sub>GeSe<sub>6</sub> и PbIn<sub>6</sub>Te<sub>10</sub> в диапазон длин волн 12–20 мкм**

Несмотря на прогресс в развитии лазеров среднего ИК-диапазона, по-прежнему не хватает лазеров, работающих в его длинноволновой области (длины волн 12–20 мкм). Следует отметить, что метод ГРЧ для генерации среднего и дальнего ИК-диапазона изучался во многих работах с различными лазерами и нелинейными кристаллами. Однако энергетические, спектральные и эксплуатационные параметры таких лазерных систем не вполне соответствовали уровню, необходимому для широкого применения (см. главу 1). Поэтому для ее реализации до сих пор изучаются различные кристаллы, лазеры и схемы смешения частот. В данной работе для генерации излучения в диапазоне от 12 до 20 мкм используются мощные лазеры на молекулярных газах для накачки нелинейных кристаллов, а именно СО- и СО<sub>2</sub>-лазер, и нелинейные кристаллы AgGaSe<sub>2</sub>, BaGa<sub>2</sub>GeSe<sub>6</sub> и PbIn<sub>6</sub>Te<sub>10</sub>.

### **6.1 Схема экспериментов по генерации разностных частот излучения СО- и СО<sub>2</sub>-лазеров в нелинейных кристаллах**

Оригинальная лазерная система для исследования ГРЧ, представленная на рисунке 6.1, была разработана на основе двух импульсно-периодических щелевых ВЧ-разрядных лазерных установок: СО- и СО<sub>2</sub>-лазеров.

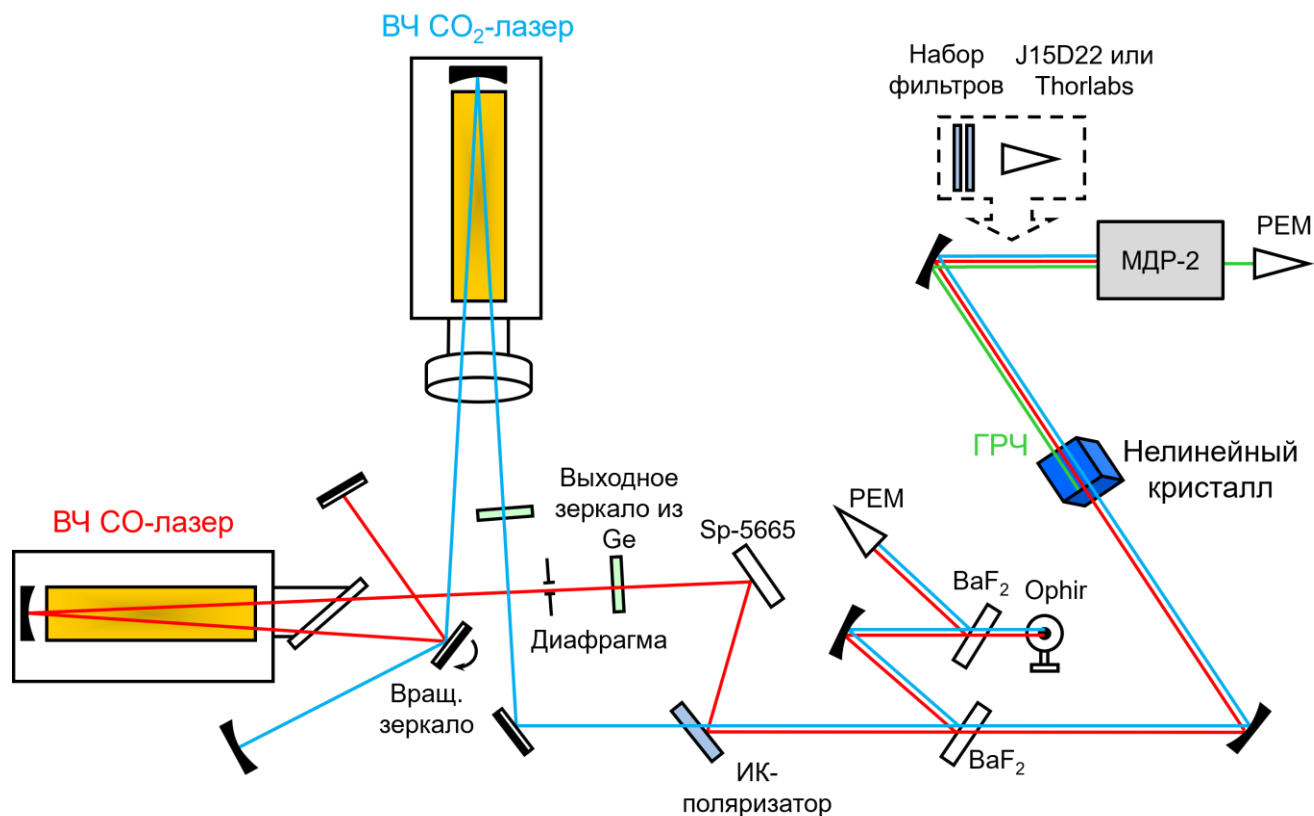


Рисунок 6.1 — Схема экспериментов по генерации разностных частот излучения CO- и CO<sub>2</sub>-лазеров

Описание используемого CO-лазера приведено в главе 2, разделе 2.2. Длина его активной среды была 40 см. Резонатор CO-лазера длиной 1.8 м был образован выходным зеркалом (плоская пластина из Ge с коэффициентом отражения ~50%) и задним плоским зеркалом. Сферическое зеркало с радиусом кривизны 180 см располагалось внутри разрядной камеры CO-лазера в середине резонатора. Состав активной среды CO:Воздух:He = 1:1.5:8.8 при полном давлении газа 30 Торр.

Описание используемого CO<sub>2</sub>-лазера приведено в главе 2, разделе 2.3. Длина его активной среды была 30 см. Резонатор CO<sub>2</sub>-лазера длиной 2.35 м был образован выходным зеркалом (диэлектрическое зеркало с коэффициентом отражения ~75% на длине волны 10 мкм) и задним сферическим зеркалом с радиусом кривизны 140 см. В разрядную камеру CO<sub>2</sub>-лазера помещалось сферическое зеркало с радиусом кривизны 120 см. Он делил резонатор лазера на два плеча с соотношением длин 1:2.6. Состав активной среды был следующим: CO<sub>2</sub>:Xe:He = 1:0.3:16 при полном давлении газа 75 Торр.

СО- и СО<sub>2</sub>-лазеры работали в режиме МДР с частотой следования импульсов 100 Гц, обеспечиваемым одним общим вращающимся зеркалом. Импульсы накачки ВЧ-разряда для СО- и СО<sub>2</sub>-лазеров оптимизировались и согласовывались с помощью синхроимпульса от вращающегося зеркала. Импульсы накачки прямоугольного ВЧ-разряда длительностью 0.6 мс и 0.4 мс для СО- и СО<sub>2</sub>-лазеров соответственно имели примерно одинаковую пиковую мощность ~0.8 кВт на обеих установках. Длительности импульсов генерации на полувывоте, измеренные фотодетектором РЕМ-L-3 (VIGO system S.A.), составили ~0.25 мкс для СО<sub>2</sub>-лазера и 0.75 мкс для СО-лазера (рисунок 6.2).

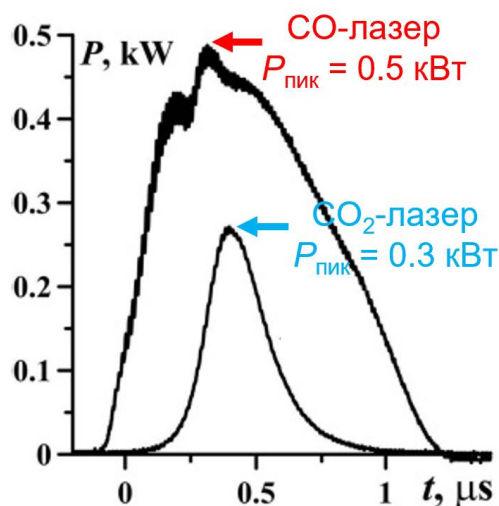


Рисунок 6.2 — Формы импульсов СО- и СО<sub>2</sub>-лазеров

Лазеры работали в многочастотном режиме. СО<sub>2</sub>-лазер работал одновременно на 4-х переходах полосы  $00^0_1 \rightarrow 02^0_0$ :  $P(14)$ ,  $P(26)$ ,  $R(18)$   $R(34)$ . Спектр излучения СО<sub>2</sub>-лазера показан на рисунке 6.3 (слева). Генерация СО<sub>2</sub>-лазера в этом диапазоне была предпочтительнее и происходила за счет брьюстеровского окна лазерной камеры из ВаF<sub>2</sub>. Суммарная пиковая мощность СО<sub>2</sub>-лазера достигала 0.3 кВт. СО-лазер обычно излучает около 100 спектральных линий в диапазоне длин волн от 5.0 до 6.5 мкм. Однако для преобразования частоты в длинноволновую область среднего ИК-диапазона не требовались низкоколебательные переходы СО-лазера, то есть его коротковолновое излучение. Поэтому излучение СО-лазера спектрально модифицировали оптическим фильтром SP-5665 (Spectrogon). Фильтр был прозрачным для излучения с длиной



волны короче 5.6 мкм и полностью отражающим более длинноволновое излучение. Спектр отфильтрованного излучения СО-лазера насчитывал около 30 узких спектральных линий в интервале длин волн 5.5–6.5 мкм. Пропускание фильтра и спектр СО-лазера показаны на рисунке 6.3 (справа). Пиковая мощность, интегрированная по всему спектру, составляла ~0.5 кВт. Следует отметить, что различные вращательно-колебательные спектральные компоненты СО-лазера могут быть разнесены во времени из-за каскадного механизма генерации. Это может снизить эффективность преобразования частоты. Однако, как было показано в главе 3, наиболее мощные линии многочастотного СО-лазера с МДР, которые дают основной вклад в преобразование частоты, имеют почти одновременную генерацию. Поэтому, несмотря на особенности каскадной генерации СО-лазера, снижение КПД преобразования частоты было незначительным.

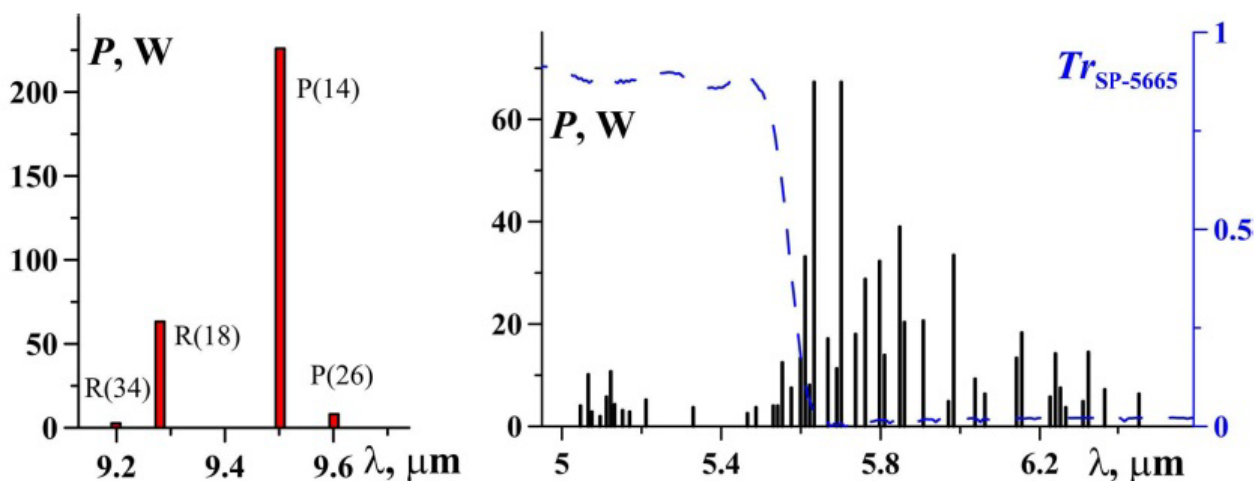


Рисунок 6.3 — Спектры излучения СО<sub>2</sub>-лазера (слева) и СО-лазера (справа)

Пространственное перекрытие пучков СО- и СО<sub>2</sub>-лазеров осуществлялось поляризатором. Он был прозрачен для излучения СО-лазера и полностью отражал излучение СО<sub>2</sub>-лазера, так как импульсы СО- и СО<sub>2</sub>-лазеров имели линейные взаимно перпендикулярные поляризации. Перпендикулярные поляризации требовались для фазового синхронизма ГРЧ в нелинейных кристаллах. Для контроля параметров лазерной системы часть излучения отводилась плоскими пластинами ВаF<sub>2</sub> и направлялась на измеритель мощности (12А-SH, Ophir Optonics Solutions Ltd) и фотоприемник (PEM-L-3, VIGO system S.A.).

Излучение лазерной системы, состоящее из совмещенных как пространственно, так и во времени импульсов СО- и СО<sub>2</sub>-лазеров, фокусировалось в нелинейный кристалл сферическим зеркалом с фокусным расстоянием 15 см. После этого он коллимировался сферическим зеркалом и направлялся в ИК-спектрометр на базе дифракционного монохроматора МДР-2 (ЛОМО). Для измерения интегральной по спектру формы волны ГРЧ-излучения лазерный пучок фокусировался в фотоприемник, установленный перед ИК-спектрометром. Использовался криогенный фотоприемник J15D22 (Teledyne Judson Technologies), пригодный для излучения с длиной волны до 22 мкм. Для отделения излучения ГРЧ от излучения накачки применялся комплект длинноволновых пропускающих фильтров: два фильтра LP-11450 (Spectrogon) (его коэффициент пропускания показан на рисунке 6.4 (г)), фильтр ИК-спектрометра ИКС-31 (ЛОМО). Это позволило ослабить излучение накачки более чем в  $10^8$  раз.

Для исследования ГРЧ излучения СО- и СО<sub>2</sub>-лазеров в диапазоне длин волн 12–20 мкм применялись следующие образцы кристаллов:

- кристалл AGSe длиной 10.1 мм, углом среза  $\theta_{\text{ср}} = 60^\circ$  (полярный), угол  $\varphi_{\text{ср}} = 45^\circ$  (азимутальный);
- кристалл BGGSe длиной 12.7 мм,  $\theta_{\text{ср}} = 30^\circ$  и  $\varphi_{\text{ср}} = 30^\circ$ ;
- кристалл РГТ длиной 13 мм,  $\theta_{\text{ср}} = 33^\circ$  и  $\varphi_{\text{ср}} = 30^\circ$ .

Кристаллы были изготовлены в Лаборатории новейших технологий Кубанского государственного университета.

## 6.2 Энергетические и спектральные характеристики ГРЧ

В первых экспериментах измерялась мощность ГРЧ, интегрированная по его спектру. Зависимости пиковой мощности ГРЧ от углов фазового синхронизма для рассматриваемых кристаллов представлены на рисунке 6.4.

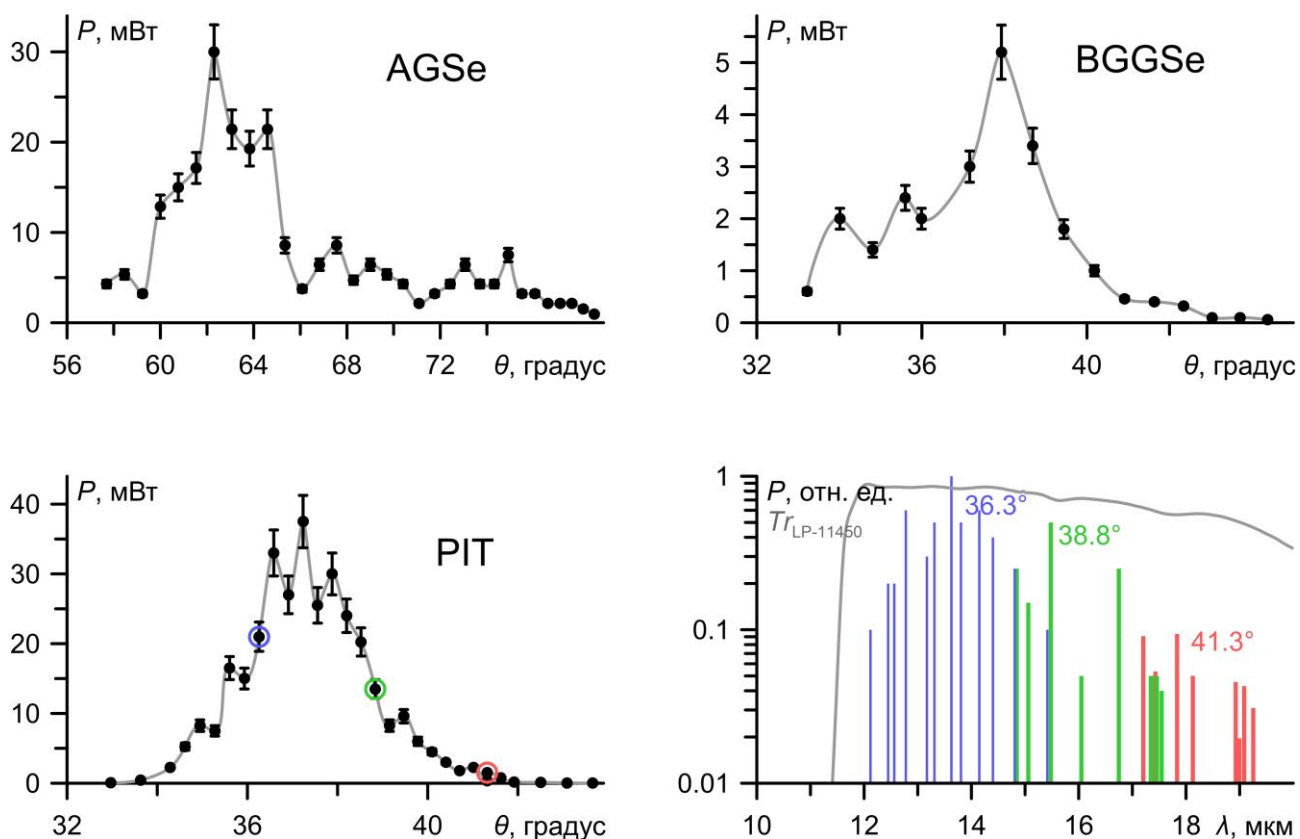


Рисунок 6.4 — Зависимость пиковой мощности излучения ГРЧ от угла фазового синхронизма для кристаллов AGSe (а), BGGSe (б) и PIT (в); (г) спектр ГРЧ, измеренный при углах фазового синхронизма 36.3°, 38.8° и 41.3° кристалла PIT, коэффициент пропускания ( $Tr$ ) оптического фильтра LP-11450

Зависимости имеют несколько всплесков из-за дискретной структуры спектра излучения накачки. Выходное излучение ГРЧ было откалибровано с помощью  $CO_2$ -лазера, который хорошо согласовывался с чувствительностью фотодетектора (150 В/Вт). Наибольшая пиковая мощность ГРЧ была получена для кристалла PIT и достигала  $37 \pm 4$  мВт, что соответствовало эффективности внутреннего преобразования (с учетом френелевских потерь на непокрытых гранях кристалла)  $\sim 10^{-4}$ . Эффективность преобразования оказалась на порядок выше результата, полученного ранее [88]. Пиковая мощность ГРЧ для кристалла AGSe составляла до  $32 \pm 4$  мВт. Более высокая эффективность PIT по сравнению с AGSe связана с его более высокой спектральной шириной фазового синхронизма. Эффективность кристалла BGGSe была примерно на порядок меньше, вероятно, из-за поглощения излучения ГРЧ. Следует отметить, что эффективность преобразования для отдельных спектральных линий была выше, чем интегральная

эффективность по всему спектру. Например, пиковая мощность самой сильной линии ГСЧ в  $\sim 13.5$  мкм составила около 8.5 мВт (эффективность  $\sim 7 \cdot 10^{-4}$ ). Применение селективных (работающих на одной частоте) СО- и СО<sub>2</sub>-лазеров с одинаковой суммарной пиковой мощностью может увеличить мощность одной линии ГРЧ до  $\sim 1$  Вт с эффективностью  $\sim 0.1\%$ . Дальнейшее усовершенствование лазерной системы до мощности ГРЧ в несколько кВт на длине волны 20 мкм может быть выполнено с помощью наносекундных СО- и СО<sub>2</sub>-лазеров, как в [77, 97]. Затем были измерены спектры ГРЧ в длинноволновой области среднего ИК-диапазона. Было зарегистрировано 25 узких спектральных линий ГРЧ с длинами волн от 12 до 19.3 мкм при перестройке угла фазового синхронизма нелинейного кристалла РГТ от 33 до 38 градусов (рисунок 6.4 (г)). Для нелинейного кристалла AgGaSe<sub>2</sub> максимальная длина волны ГРЧ была 15.5 мкм, для BaGa<sub>2</sub>GeSe<sub>6</sub> – 14.0 мкм. Чувствительность детектора, атмосферное поглощение, коэффициент отражения дифракционной решетки и другие факторы, влияющие на измерение спектра, не учитывались. Тем не менее, спектр ГРЧ был значительно расширен по сравнению с предыдущими результатами [22]. Для генерации спектра ГРЧ в более длинноволновой области среднего ИК-диапазона в сторону дальнего ИК-диапазона (ТГц) следует использовать генерацию СО-лазера на высоких колебательных уровнях с длиной волны более 6.4 мкм.

Сравнение рассчитанных и измеренных углов фазового синхронизма (рисунок 6.5) демонстрирует корректность уравнений дисперсии показателя преломления [98] для кристалла РГТ. Кристалл РГТ имеет широчайший диапазон фазового синхронизма и прозрачности, что делает его наиболее подходящим для ГРЧ в длинноволновой области.

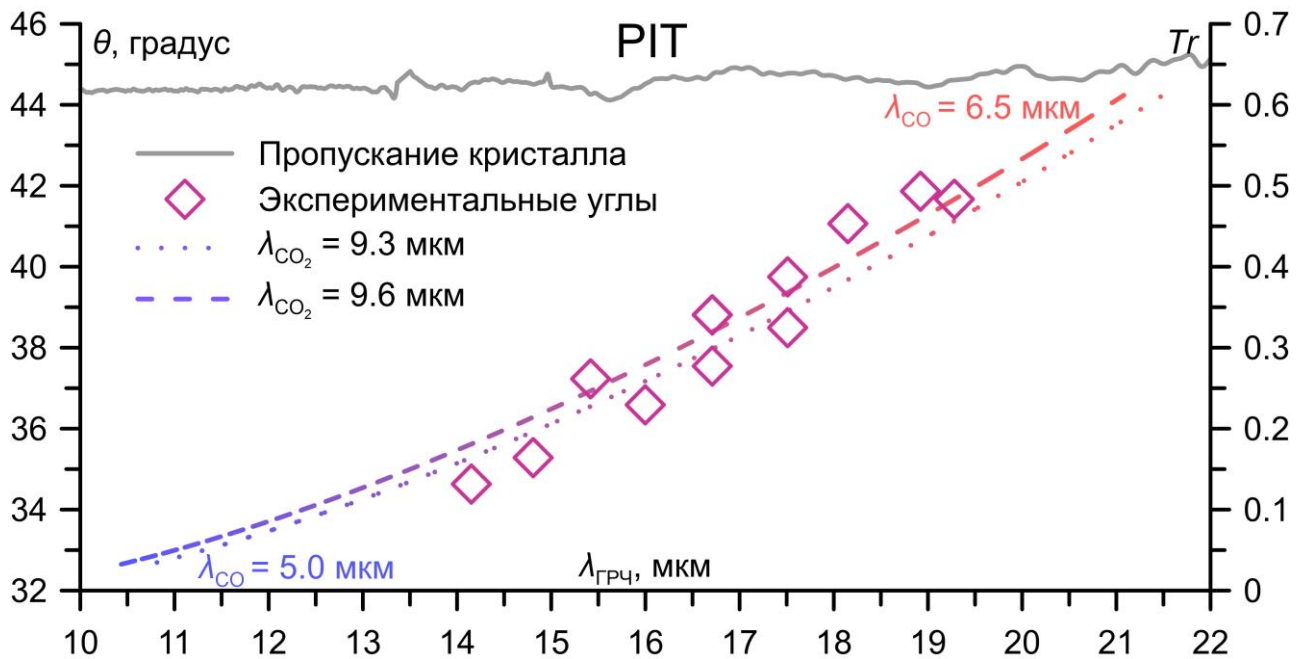


Рисунок 6.5 — Коэффициент пропускания (сплошная серая линия), рассчитанные (пунктирная и штриховая линии) и измеренные (ромбы) углы фазового синхронизма кристалла РИТ

### 6.3 Выводы по главе

Исследована генерация разностной частоты при смешении импульсно-периодического излучения СО- и СО<sub>2</sub>-лазеров в нелинейных кристаллах AgGaSe<sub>2</sub>, BaGa<sub>2</sub>GeSe<sub>6</sub> и PbIn<sub>6</sub>Te<sub>10</sub>. Из трех исследованных нелинейных кристаллов наибольшая эффективность генерации разностных частот в интервал длин волн 12–20 мкм импульсно-периодического излучения СО- и СО<sub>2</sub>-лазеров с совместной МДР реализуется в нелинейном кристалле PbIn<sub>6</sub>Te<sub>10</sub> и составляет 10<sup>-4</sup>, было зарегистрировано 25 узких спектральных линий ГРЧ с длинами волн от 12 до 19.3 мкм при перестройке угла фазового синхронизма нелинейного кристалла PbIn<sub>6</sub>Te<sub>10</sub> от 33° до 38°. Тогда как для нелинейного кристалла AgGaSe<sub>2</sub> максимальная длина волны ГРЧ была 15.5 мкм, для BaGa<sub>2</sub>GeSe<sub>6</sub> – 14.0 мкм.

## Заключение

В диссертационной работе представлены результаты экспериментального исследования динамики генерации колебательно-вращательных линий многочастотного СО-лазера с МДР, структуры спектра внерезонаторной генерации суммарных частот излучения многочастотного СО-лазера в кристалле  $\text{ZnGeP}_2$ . Проведено экспериментальное исследование внутрирезонаторной генерации суммарных частот излучения многочастотного СО-лазера в новом нелинейном кристалле  $\text{BaGa}_2\text{GeSe}_6$ , а также двухкаскадной внутри- и внерезонаторного преобразования излучения СО-лазера в двух образцах кристалла  $\text{BaGa}_2\text{GeSe}_6$ , расположенных внутри и вне резонатора. Осуществлена генерация разностных частот излучения СО- и  $\text{CO}_2$ -лазеров в нелинейных кристаллах  $\text{AgGaSe}_2$ ,  $\text{BaGa}_2\text{GeSe}_6$  и  $\text{PbIn}_6\text{Te}_{10}$ .

**Основные результаты и выводы** проведенного исследования:

1. Показано, что при генерации второй гармоники и суммарных частот ( $\lambda = 2.49\text{--}2.72$  мкм) СО-лазера с модуляцией добротности резонатора (МДР) с длительностью импульса  $\sim 1$  мкс и числом спектральных линий  $\sim 100$  ( $\lambda = 4.9\text{--}6.5$  мкм) в нелинейном кристалле  $\text{ZnGeP}_2$  число спектральных линий в спектре преобразованного излучения достигает  $\sim 600$ , а эффективность преобразования 5%.
2. Расчёт спектра излучения суммарной частоты с учетом динамики генерации на каждом колебательно-вращательном переходе СО-лазера с МДР показал, что пиковая мощность излучения ГСЧ меньше (на 18% при частоте вращения зеркала 70 Гц, 13.5% – при 120 Гц), число линий излучения на суммарных частотах меньше (на 13% – при 70 Гц, 7.5 – при 120 Гц) по сравнению теми же параметрами, рассчитанными без учета динамики излучения на отдельных линиях СО-лазера с МДР.
3. Структура спектра генерации суммарных частот излучения СО-лазера с МДР в кристалле  $\text{ZnGeP}_2$  представляет собой широкополосный (до  $1000\text{ см}^{-1}$ )

набор частот в диапазоне длин волн 2.49–2.72 мкм, состоящий из групп со сложной структурой. Спектральное расстояние между группами составляет  $\sim 5 \text{ см}^{-1}$ . Группы, в свою очередь, состоят из  $\sim 10$  спектральных линий с интервалом  $\sim 10^{-1} \text{ см}^{-1}$ . При помощи спектра генерации суммарных частот получен профиль линии поглощения молекул  $\text{CO}_2$  при давлении газа 1 атм.

4. При внутриврезонаторной накачке нелинейного кристалла  $\text{BaGa}_2\text{GeSe}_6$  осуществлено преобразование излучения СО-лазера с МДР ( $\sim 4.9\text{--}5.9 \text{ мкм}$ ) в диапазон суммарных частот с длинами волн 2.45–2.95 мкм. Суммирование излучения обоих диапазонов во втором нелинейном кристалле  $\text{BaGa}_2\text{GeSe}_6$  позволило получить излучение в диапазоне длин волн 1.7–1.9 мкм с эффективностью двухступенчатого преобразования  $\sim 1.3 \cdot 10^{-4}$ .
5. При генерации разностных частот излучения импульсно-периодических СО- и  $\text{CO}_2$ -лазеров ( $\lambda_{\text{CO}} = 5.0\text{--}6.5 \text{ мкм}$ ,  $\lambda_{\text{CO}_2} = 9.2\text{--}9.6 \text{ мкм}$ ) в нелинейных кристаллах  $\text{AgGaSe}_2$ ,  $\text{BaGa}_2\text{GeSe}_6$  и  $\text{PbIn}_6\text{Te}_{10}$  максимальная длина волны 19.3 мкм и максимальная эффективность преобразования  $10^{-4}$  получена в нелинейном кристалле  $\text{PbIn}_6\text{Te}_{10}$ .
6. На основе СО-,  $\text{CO}_2$ -лазеров и нелинейных оптических кристаллов разработана лазерная система, излучающая в интервале длин волн ближнего и среднего ИК-диапазонов 1.7–19.3 мкм.

Проведенные исследования показали перспективность преобразования частоты излучения СО- и  $\text{CO}_2$ -лазеров в нелинейных кристаллах для расширения и обогащения их спектров в среднем ИК-диапазоне. Полученные в работе результаты могут быть использованы в проектировании и разработке лазерных систем для решения различных прикладных задач: спектроскопии, газового анализа (в том числе анализе многокомпонентных газовых смесей), зондирования атмосферы и разделения изотопов. СО-лазер, действующий на основных переходах, с высокой эффективностью генерации второй гармоники в нелинейных кристаллах  $\text{ZnGeP}_2$  и  $\text{BaGa}_2\text{GeSe}_6$  может быть энергетически выгодной альтернативой СО-лазеру на переходах первого колебательного обертона. Лазерная система на базе СО- и  $\text{CO}_2$ -

лазеров и нелинейных кристаллов позволяет за счёт генерации разностных частот получить лазерное излучение в диапазоне длин волн 12–19.3 мкм, для которого до сих пор существует недостаточно источников лазерного излучения.

**Благодарности.** В заключение автор выражает благодарность и большую признательность своему научному руководителю Климачеву Юрию Михайловичу за всестороннюю поддержку, помощь и научное руководство, Ионину Андрею Алексеевичу за ценные советы и плодотворные обсуждения, коллегам – за ценные комментарии, обсуждения и помощь в работе.



**Список публикаций, в которых содержатся основные результаты  
диссертации**

Публикации в рецензируемых научных изданиях, индексируемых в  
международных базах данных Web of Science и Scopus

- 1\*. Ionin A.A., Kinyaevskiy I.O., Klimachev Y.M., Kryuchkov D.S., Sagitova A.M., Sunchugasheva E.S. Spectral characteristics of multi-line Q-switched CO laser radiation frequency converted in ZnGeP<sub>2</sub> // Applied Physics B: Lasers and Optics. – 2017. – Vol. 123. – No. 9. – P. 234.
- 2\*. Ionin A.A., Badikov D.V., Badikov V.V., Kinyaevskiy I.O., Klimachev Yu.M., Kotkov A.A., Kozlov A.Y., Sagitova A.M., Sinitsyn D.V. Sum frequency generation of multi-line slab radio frequency discharge carbon monoxide laser system with intracavity nonlinear BaGa<sub>2</sub>GeSe<sub>6</sub> crystal // Optics Letters. – 2018. – Vol. 43. – No. 18. – P. 4358–4361.
- 3\*. Ionin A.A., Kinyaevskiy I.O., Klimachev Yu.M., Kotkov A.A., Kozlov A.Yu., Sagitova A.M., Sinitsyn D.V., Badikov V.V., Badikov D.V. Broadband (1.7-6.0 μm) multiline CO laser system with intra- and extracavity sum frequency generation in BaGa<sub>2</sub>GeSe<sub>6</sub> crystals // Optics & Laser Technology. – 2019. – Vol. 115. – P. 205–209.
- 4\*. Ionin A.A., Kinyaevskiy I.O., Klimachev Y.M., Sagitova A.M., Andreev Y.M. CO laser sum-frequency comb for atmosphere sensing // Infrared Physics & Technology. – 2019. – Vol. 100. – P. 62–66.
- 5\*. Ionin A.A., Kinyaevskiy I.O., Klimachev Y.M., Kotkov A.A., Kozlov A.Y., Sagitova A.M., Sinitsyn D. V., Rulev O.A., Badikov V.V., Badikov D.V. Frequency conversion of mid-IR lasers into the long-wavelength domain of 12-20 μm with AgGaSe<sub>2</sub>, BaGa<sub>2</sub>GeSe<sub>6</sub> and PbIn<sub>6</sub>Te<sub>10</sub> nonlinear crystals // Optics Express. – 2019. – Vol. 27. – No. 17. – P. 24353–24361.

Публикации в материалах научных конференций

- 6\*. Ionin A.A., Kinyaevskiy I.O., Klimachev Yu.M., Kryuchkov D.S., Sagitova A.M. Spectral characteristics of Q-switched CO laser // III International Conference on Laser and Plasma Researches and Technologies : Journal of Physics Conference Series. – Inst Laser & Plasma Technologies, 2018. – Vol. 941. – P. 012006.
- 7\*. Ionin A.A., Kinyaevskiy I.O., Klimachev Yu.M., Kotkov A.A., Kryuchkov D.S., Sagitova A.M. Numerical simulation of sum frequency generation spectrum in nonlinear crystals with considering dynamics of generation // III International Conference on Laser

and Plasma Researches and Technologies : Journal of Physics Conference Series. – Inst Laser & Plasma Technologies, 2018. – Vol. 941. – P. 012005.

8\*. Klimachev Yu.M., Badikov V.V., Badikov D.V., Ionin A.A., Kinyaevskiy I.O., Kotkov A.A., Kozlov A.Yu., Sagitova A.M., Sinitsyn D.V. Intracavity frequency conversion of multiline CO laser radiation in nonlinear crystal BaGa<sub>2</sub>GeSe<sub>6</sub> // 2018 International Conference Laser Optics (ICLO 2018). – IEEE, 2018. – P. 83.

9\*. Ionin A., Kinyaevskiy I., Klimachev Y., Kotkov A., Kozlov A., Sagitova A., Seleznev L., Sinitsyn D. Hybrid molecular gas laser systems operating within wavelength range of 1.7–19.3 micron // Proc. SPIE 11162, High Power Lasers: Technology and Systems, Platforms, Effects III. – 2019. – Vol. 11162. – P. 111620D.

10\*. Ionin A.A., Kinyaevskiy I.O., Klimachev Yu.M., Kotkov A.A., Kozlov A.A., Sagitova A.M., Seleznev L.V., Sinitsyn D.V. Super-broadband hybrid mid-infrared laser systems // XXII International Symposium on High-Power Laser Systems and Applications : Proceedings of SPIE/ ed. P. DiLazzaro. – Italian Natl Agcy New Technologies, Energy & Sustainable Econ Dev; EI En SpA, 2018. – Vol. 11042. – P. 1104204.

11\*. Сагитова А.М., Бадиков В.В., Бадиков Д.В., Ионин А.А., Киняевский И.О., Климачев Ю.М., Козлов А.Ю., Котков А.А., Можаяева В.А., Синицын Д.В. Генерация суммарных частот излучения СО-лазера в кристалле BaGa<sub>2</sub>GeSe<sub>6</sub> при внутрирезонаторном варианте преобразования // XXIX Международная конференция ЛАЗЕРЫ В НАУКЕ, ТЕХНИКЕ, МЕДИЦИНЕ: Сборник научных трудов. – М.: Московское НТО радиотехники, электроники и связи им. А.С. Попова, 2018. – Т. 29. – С. 81–85.

**Список литературы**

1. Picqué N., Hänsch T.W. Frequency comb spectroscopy // *Nature Photonics*. – 2019. – Vol. 13. – No. 3. – P. 146–157.
2. Stepanov E.A., Lanin A.A., Voronin A.A., Fedotov A.B., Zheltikov A.M. Solid-State Source of Subcycle Pulses in the Midinfrared // *Phys. Rev. Lett.* – 2016. – Vol. 117. – No. 4. – P. 043901.
3. Schliesser A., Picqué N., Hänsch T.W. Mid-infrared frequency combs // *Nature Photonics*. – 2012. – Vol. 6. – P. 440–449.
4. Neyra E., Videla F., Pérez-Hernández J.A., Ciappina M.F., Roso L., Torchia G.A. Extending the high-order harmonic generation cutoff by means of self-phase-modulated chirped pulses // *Laser Physics Letters*. – 2016. – Vol. 13. – No. 11. – P. 115303.
5. Petersen C.R., Møller U., Kubat I., Zhou B., Dupont S., Ramsay J., Benson T., Sujecki S., Abdel-Moneim N., Tang Z., Furniss D., Seddon A., Bang O. Mid-infrared supercontinuum covering the 1.4–13.3  $\mu\text{m}$  molecular fingerprint region using ultra-high NA chalcogenide step-index fibre // *Nature Photonics*. – 2014. – Vol. 8. – P. 830–834.
6. Ebrahim-Zadeh M., Sorokina I.T., eds. *Mid-Infrared Coherent Sources and Applications : NATO Science for Peace and Security Series B: Physics and Biophysics*. – Springer Dordrecht, 2007. – 626 p.
7. Yao Y., Hoffman A.J., Gmachl C.F. Mid-infrared quantum cascade lasers // *Nature Photonics*. – 2012. – Vol. 6. – No. 7. – P. 432–439.
8. Vitiello M.S., Scalari G., Williams B., De Natale P. Quantum cascade lasers: 20 years of challenges // *Optics Express*. – 2015. – Vol. 23. – No. 4. – P. 5167–5182.
9. Ohtani K., Beck M., Faist J. Double metal waveguide InGaAs/AlInAs quantum cascade lasers emitting at 24  $\mu\text{m}$  // *Applied Physics Letters*. – 2014. – Vol. 105. – No. 12. – P. 121115.
10. Rudy C.W. Mid-IR Lasers: Power and pulse capability ramp up for mid-IR lasers // *Laser Focus World*. – 2014. – Vol. 50. – No. 5. – P. 63–66.
11. Babushkin I., Tajalli A., Sayinc H., Morgner U., Steinmeyer G., Demircan A. Simple route toward efficient frequency conversion for generation of fully coherent supercontinua in the mid-IR and UV range // *Light: Science & Applications*. – 2017. – Vol. 6. – P. e16218.
12. Rothman L.S., Gordon I.E., Babikov Y., Barbe A., Chris Benner D., Bernath P.F., Birk M., Bizzocchi L., Boudon V., Brown L.R., Campargue A., Chance K., Cohen E.A.,

Coudert L.H., Devi V.M., Drouin B.J., Fayt A., Flaud J.-M., Gamache R.R., Harrison J.J., Hartmann J.-M., Hill C., Hodges J.T., Jacquemart D., Jolly A., Lamouroux J., Le Roy R.J., Li G., Long D.A., Lyulin O.M., Mackie C.J., Massie S.T., Mikhailenko S., Müller H.S.P., Naumenko O.V., Nikitin A.V., Orphal J., Perevalov V., Perrin A., Polovtseva E.R., Richard C., Smith M.A.H., Starikova E., Sung K., Tashkun S., Tennyson J., Toon G.C., Tyuterev V.I., Wagner G. The HITRAN2012 molecular spectroscopic database // HITRAN2012 special issue. – 2013. – Vol. 130. – P. 4–50.

13. Hinkley E.D., ed. Laser Monitoring of the Atmosphere : Topics in Applied Physics. – 1. – Berlin, Heidelberg: Springer, 1976. – 14. – 382 p.

14. McCord J.E., Miller H.C., Hager G., Lampson A.I., Crowell P.G. Experimental investigation of an optically pumped mid-infrared carbon monoxide laser // IEEE Journal of Quantum Electronics. – 1999. – Vol. 35. – No. 11. – P. 1602–1612.

15. Ionin A.A., Kinyaevskiy I.O., Klimachev Y.M., Kotkov A.A., Kozlov A.Y. Frequency tunable CO laser operating on the highest vibrational transition with wavelength of 8.7  $\mu\text{m}$  // Optics Letters. – 2017. – Vol. 42. – P. 498–501.

16. Ionin A.A. Electric Discharge CO Lasers // Gas Lasers/ eds. M. Endo, R.F. Walter. – Boca Raton: CRC Press, 2007. – P. 201–237.

17. Ionin A.A., Kurnosov A.K., Napartovich A.P., Seleznev L.V. Lasers on overtone transitions of carbon monoxide molecule // Laser Physics. – 2010. – Vol. 20. – P. 144–186.

18. Ионин А.А., Климачев Ю.М., Козлов А.Ю., Котков А.А., Курносков А.К., Напартович А.П., Рулев О.А., Селезнев Л.В., Синицын Д.В., Хагер Г.Д., Шнырев С.Л. Импульсный обертонный СО лазер с КПД 16% // Квантовая электроника. – 2006. – Т. 36. – № 12. – С. 1153–1154.

19. Виттеман В. СО<sub>2</sub>-лазер. – М.: Мир, 1990. – 360 с.

20. Andreev Y.M., Ionin A.A., Kinyaevsky I.O., Klimachev Y.M., Kozlov A.Y., Kotkov A.A., Lanskii G.V., Shaiduko A.V. Broadband carbon monoxide laser system operating in the wavelength range of 2.5–8.3  $\mu\text{m}$  // Quantum Electronics. – 2013. – Vol. 43. – No. 2. – P. 139–143.

21. Ionin A.A., Kinyaevskiy I.O., Klimachev Yu.M., Mozhaeva V.A., Andreev Yu.M. Three-stage frequency conversion of sub-microsecond multiline CO laser pulse in a single ZnGeP<sub>2</sub> crystal // Optics Letters. – 2018. – Vol. 43. – No. 13. – P. 3184–3187.

22. Budilova O.V., Ionin A.A., Kinyaevskiy I.O., Klimachev Yu.M., Kotkov A.A., Kozlov A.Yu. Ultra-broadband hybrid infrared laser system // Optics Communications. – 2016. – Vol. 363. – P. 26–30.

23. Ionin A.A., Kinyaevskiy I.O., Klimachev Y.M., Kotkov A.A., Seleznev L.V. Influence of multi-line CO laser focusing on broadband sum-frequency generation // *Laser Physics Letters*. – 2017. – Vol. 14. – No. 6. – P. 065401.
24. Андреев Ю.М., Ионин А.А., Киняевский И.О., Климачев Ю.М., Козлов А.Ю., Котков А.А., Ланский Г.В., Шайдуко А.В. Широкополосная лазерная система на монооксиде углерода, действующая в интервале длин волн 2.5–8.3 мкм // *Квантовая электроника*. – 2013. – Т. 43. – № 2. – С. 139–143.
25. Басиев А.Г., Голубев А.А., Гурашвили В.А., Изюмов С.В. Расширение спектра генерации СО лазера с модулированной добротностью // *Журнал технической физики*. – 1980. – Т. 50. – С. 1740–1744.
26. Басиев А.Г., Гальцев В.Е., Гурашвили В.А., Изюмов С.В., Кочетов И.В., Курносков А.К., Певгов В.Г. Особенности спектрообразования СО-лазера с модулированной добротностью. – М.: ИАЭ, 1981. – Вып. 3448/12. – 32 с.
27. Ionin A.A., Kochetkov Y.V., Kozlov A.Y., Mokrousova D.V., Seleznev L.V., Sinitsyn D.V., Sunchugasheva E.S., Zemtsov D.S. Q-switched slab RF discharge CO laser // *Laser Physics Letters*. – 2017. – Vol. 14. – No. 5. – P. 055001.
28. Минеев А.П., Нефедов С.М., Пашинин П.П., Гончаров П.А., Киселев В.В., Дроздов П.А. Экспериментальные исследования работы планарного СО-лазера с ВЧ накачкой при комнатной температуре // *Вестник воздушно-космической обороны*. – 2018. – Т. 2. – № 18. – С. 61–68.
29. Wallace J. Gas Lasers: Carbon monoxide laser aims at high-power applications // *Laser Focus World*. – 2015. – Vol. 51. – No. 6. – P. 28–31.
30. Патент № RU2267114C1. Способ детектирования меркаптановой одоризационной смеси природного газа в реальном масштабе времени: № 2004134703/28 : заявл. 30.11.2004 : опубл. 27.12.2005 / В.А. Усошин, Н.Г. Петров, В.М. Клищевская, Ю.И. Есин, С.В. Киреев, С.Л. Шнырев, Е.М. Подоляко.
31. Legay F., Legay-Sommaire N. On the possibilities of realizing an optical maser using the vibrational energy of gases excited by activated nitrogen // *Comptes Rendus Hebdomadaires des Séances de l'Académie des Sciences*. – 1964. – Vol. 259. – P. 99–102.
32. Patel C.K.N., Kerl R.J. Laser oscillation on  $X1\Sigma^+$  vibrational-rotational transitions of CO // *Applied Physics Letters*. – 1964. – Vol. 5. – No. 4. – P. 81–83.
33. Patel C.K.N. Vibrational-Rotational Laser Action in Carbon Monoxide // *Physical Review*. – 1966. – Vol. 141. – No. 1. – P. 71–83.

34. Treanor C.E., Rich J.W., Rehm R.G. Vibrational Relaxation of Anharmonic Oscillators with Exchange-Dominated Collisions // *The Journal of Chemical Physics*. – 1968. – Vol. 48. – No. 4. – P. 1798–1807.
35. Звелто О. Принципы лазеров. – 4-е изд. – СПб.: Издательство «Лань», 2008. – 720 с.
36. Schulz G.J. Vibrational Excitation of N<sub>2</sub>, CO, and H<sub>2</sub> by Electron Impact // *Physical Review*. – 1964. – Vol. 135. – No. 4A. – P. A988–A994.
37. Соколев Н.Н., Соколов В.В. Лазер на окиси углерода, механизм образования инверсной населенности // *Успехи физических наук*. – 1973. – Т. 110. – № 2. – С. 191.
38. Ионин А.А. Лазеры на окиси углерода с накачкой электрическим разрядом // *Энциклопедия низкотемпературной плазмы/ ред. С.И. Яковленко*. – М.: Физматлит, 2005. – С. 740–752.
39. McCord J.E., Ionin A.A., Phipps S.P., Crowell P.G., Lampson A.I., J. K. McIver, A. J. W. Brown, G. D. Hager Frequency-tunable optically pumped carbon monoxide laser // *IEEE Journal of Quantum Electronics*. – 2000. – Vol. 36. – No. 9. – P. 1041–1052.
40. Bernegger S., Sigrist M.W. Co-laser photoacoustic spectroscopy of gases and vapours for trace gas analysis // *Infrared Physics*. – 1990. – Vol. 30. – No. 5. – P. 375–429.
41. Бузыкин О.Г., Иванов С.В., Ионин А.А., Котков А.А., Селезнев Л.В. Количественная спектроскопическая диагностика загрязнений атмосферы с помощью излучения СО-лазера на первом обертоме // *Известия Российской академии наук. Серия физическая*. – 2002. – Т. 66. – № 7. – С. 962–967.
42. Mürtz M., Frech B., Palm P., Lotze R., Urban W. Tunable carbon monoxide overtone laser sideband system for precision spectroscopy from 2.6 to 4.1  $\mu\text{m}$  // *Optics Letters*. – 1998. – Vol. 23. – No. 1. – P. 58–60.
43. Хадсон Р. Инфракрасные системы. – М.: Мир, 1972. – 535 с.
44. Urban W. The Co-Overtone Laser a Spectroscopic Source in a Most Interesting Wavelength Region // *Applied Laser Spectroscopy/ eds. W. Demtröder, M. Inguscio*. – Boston, MA: Springer US, 1990. – P. 127–135.
45. Urban W. The carbon monoxide laser as spectroscopic source // *Laser und Optoelektronik*. – 1991. – Vol. 21. – No. 1. – P. 56–61.
46. Urban W. Physics and spectroscopic applications of carbon monoxide lasers, a review // *Proceedings of the Sixth International Conference on Infrared Physics*. – 1995. – Vol. 36. – No. 1. – P. 465–473.

47. Sigrist M.W. Trace gas monitoring by laser photoacoustic spectroscopy and related techniques (plenary) // *Review of Scientific Instruments*. – 2003. – Vol. 74. – No. 1. – P. 486–490.
48. Ionin A.A., Ivanov S., Kotkov A.A., Kozlov A.Y., Seleznev L.V. Multicomponent gas analysis with first-overtone CO laser // *High-Power Laser Ablation IV : Proc.SPIE/ed. C.R. Phipps*. – 2002. – Vol. 4760. – P. 1078–1087.
49. Baranov I.Y., Koptev A.V. Pulsed CO laser for isotope separation of uranium // *AIP Conference Proceedings*. – 2012. – Vol. 1464. – No. 1. – P. 689–706.
50. Van Zeeland M.A., Boivin R.L., Brower D.L., Carlstrom T.N., Chavez J.A., Ding W.X., Feder R., Johnson D., Lin L., O'Neill R.C., Watts C. Conceptual design of the tangentially viewing combined interferometer-polarimeter for ITER density measurements // *Rev. Sci. Instrum.* – 2013. – Vol. 84. – *Rev. Sci. Instrum.* – No. 4. – P. 043501.
51. Held A. CO Lasers from Lab to Fab // *Laser Technik Journal*. – 2016. – Vol. 13. – No. 3. – P. 15–17.
52. Shi C., Ermold M., Oulundsen G., Newman L. CO<sub>2</sub> and CO laser comparison of glass and ceramic processing // *Proc. SPIE 10911, High-Power Laser Materials Processing: Applications, Diagnostics, and Systems VIII Proc.SPIE*. – San Francisco, California, United States: SPIE, 2019. – Vol. 10911. – P. 109110M.
53. Rosenthal P., Müller D., Oulundsen G. CO lasers benefit via drilling and wafer debonding. – URL: <https://www.laserfocusworld.com/industrial-laser-solutions/article/14221544/co-lasers-benefit-via-drilling-and-wafer-debonding> (дата обращения: 25.02.2022).
54. Oriekhov T., Harvey C.M., Mühlberger K., Fokine M. Specialty optical fiber fabrication: preform manufacturing based on asymmetrical CO laser heating // *Journal of the Optical Society of America B*. – 2021. – Vol. 38. – No. 12. – P. F130–F137.
55. Harvey C.M., Mühlberger K., Oriekhov T., Maniewski P., Fokine M. Specialty optical fiber fabrication: fiber draw tower based on a CO laser furnace // *Journal of the Optical Society of America B*. – 2021. – Vol. 38. – No. 12. – P. F122–F129.
56. Patel C.K.N. Continuous-Wave Laser Action on Vibrational-Rotational Transitions of CO<sub>2</sub> // *Physical Review*. – 1964. – Vol. 136. – No. 5A. – P. A1187–A1193.
57. Richardson M.C. Multiline mode-locked uv-preionized CO<sub>2</sub> laser // *Applied Physics Letters*. – 1974. – Vol. 25. – No. 1. – P. 31–33.
58. Ionin A.A., Kinyaevskiy I.O., Klimachev Y.M., Stepanishchev V.V., Khafizov I.Z. Multiline CO<sub>2</sub> laser with Q-switching for generation of terahertz radiation // *Journal of*

Physics Conference Series : Journal of Physics Conference Series. – 2017. – Vol. 941. – P. 012004.

59. Andreeva M.R.B., Cunha L.S., Vales L.F., Caraschi L.C., Jasinevicius R.G. Bidimensional codes recorded on an oxide glass surface using a continuous wave CO<sub>2</sub> laser // Journal of Micromechanics and Microengineering. – 2011. – Vol. 21. – No. 2. – P. 025004.

60. HT1001P-2 (Farsoon Technologies). – URL: <https://www.farsoon-gl.com/products/ht1001p/> (дата обращения: 19.12.2022).

61. 403P Series (Farsoon Technologies). – URL: <https://www.farsoon-gl.com/products/403p-series/> (дата обращения: 19.12.2022).

62. Vitruk P. Oral Soft Tissue Laser Ablative and Coagulative Efficiencies Spectra // Implant Practice US. – 2014. – Vol. 7. – No. 6. – P. 19–27.

63. Luk K., Zhao I.S., Gutknecht N., Chu C.H. Use of carbon dioxide lasers in dentistry // Lasers in Dental Science. – 2019. – Vol. 3. – No. 1. – P. 1–9.

64. Гейко П.П., Романовский О.А., Харченко О.В. Возможность преобразования частоты CO<sub>2</sub>- и СО-лазеров в монокристалле Tl<sub>3</sub>AsSe<sub>3</sub> для целей газоанализа атмосферы // Журнал прикладной спектроскопии. – 1992. – Т. 56. – № 5–6. – С. 774–780.

65. Гурздян Г.Г., Дмитриев В.Г., Никогосян Д.Н. Нелинейно-оптические кристаллы. Свойства и применение в квантовой электронике. – М.: Радио и связь, 1991. – 160 с.

66. Schunemann P.G., Zawilski K.T., Pomeranz L.A., Creedon D.J., Budni P.A. Advances in nonlinear optical crystals for mid-infrared coherent sources // Journal of the Optical Society of America B. – 2016. – Vol. 33. – No. 11. – P. D36–D43.

67. Das S., Ghosh C., Gangopadhyay S. A comparative study of second harmonic generation of pulsed CO<sub>2</sub> laser radiation in some infrared crystals // Infrared Physics & Technology. – 2007. – Vol. 51. – No. 1. – P. 9–12.

68. Schunemann P.G. Nonlinear crystals provide high power for the mid-IR // Laser Focus World. – 1999. – Vol. 35. – P. 85–90.

69. Андреев Ю.М., Ведерникова Т.В., Бетин А.А., Воеводин В.Г., Грибенюков А.И., Зырянов О.Я., Ипполитов И.И., Масычев В.И., Митропольский О.В., Новиков В.П., Новиков М.А., Соснин А.В. Преобразование излучения CO<sub>2</sub>- и СО-лазеров на кристалле ZnGeP<sub>2</sub> в область спектра 2,3–3,1 мкм // Квантовая электроника. – 1985. – Т. 12. – № 7. – С. 1535–1537.



70. Андреев Ю.М., Воеводин В.Г., Грибенюков А.И., Новиков В.П. Смещение частот CO<sub>2</sub>- и CO-лазеров в кристаллах ZnGeP<sub>2</sub> // Квантовая электроника. – 1987. – Т. 14. – № 6. – С. 1177–1178.
71. Андреев Ю.М., Белых А.Д., Воеводин В.Г., Гейко П.П., Грибенюков А.И., Гурашвили В.А., Изюмов С.В. Удвоение частоты излучения CO-лазеров с эффективностью 3% // Квантовая электроника. – 1987. – Т. 14. – № 4. – С. 782–783.
72. Андреев Ю.М., Говдей С.Н., Гейко П.П., Грибенюков А.И., Гурашвили В.А., Зуев В.В., Изюмов С.В. Многочастотный лазерный источник диапазона 2,6-3,2 мкм // Оптика атмосферы и океана. – 1988. – Т. 1. – № 4. – С. 124–126.
73. Andreev Y.M., Gerasimov A.Y., Grigoryants S.M., Ionin A.A., Kinyaevsky I.O., Klimachev Y.M., Kozlov A.Y., Kotkov A.A., Lanskii G.N., Morozov A.N. CO laser frequency conversion in nonlinear crystals ZnGeP<sub>2</sub> and GaSe // Proc. SPIE 7994, LAT 2010: International Conference on Lasers, Applications, and Technologies LAT 2010: International Conference on Lasers, Applications, and Technologies. – Kazan, Russian Federation: SPIE, 2011. – Vol. 7994. – P. 799410.
74. Ionin A.A., Guo J., Zhang L.-M., Xie J.-J., Andreev Y.M., Kinyaevsky I.O., Klimachev Y.M., Kozlov A.Y., Kotkov A.A., Lanskii G.V., Morozov A.N., Zuev V.V., Gerasimov A.Y., Grigoryants S.M. Mode-locked CO laser frequency doubling in ZnGeP<sub>2</sub> with 25% efficiency // Laser Physics Letters. – 2011. – Vol. 8. – P. 728.
75. Ionin A.A., Kinyaevskiy I.O., Klimachev Y.M., Kotkov A.A., Kozlov A.Y., Andreev Y.M., Lanskii G.V., Shaiduko A.V., Soluyanov A.V. Cascaded carbon monoxide laser frequency conversion into the 4.3-4.9 μm range in a single ZnGeP<sub>2</sub> crystal // Optics Letters. – 2012. – Vol. 37. – P. 2838.
76. Ionin A.A., Kinyaevskiy I.O., Klimachev Y.M., Kochetkov Y.V., Kozlov A.Y., Seleznev L.V., Sinitsyn D.V., Zemtsov D.S., Andreev Y.M. Sum frequency generation under conversion of Q-switched cryogenic slab RF discharge CO laser radiation in ZnGeP<sub>2</sub> // Laser Physics. – 2018. – Vol. 28. – No. 2. – P. 025401.
77. Andreev Y.M., Budilova O.V., Ionin A.A., Kinyaevskiy I.O., Klimachev Y.M., Kotkov A.A., Kozlov A.Y. Frequency conversion of mode-locked and Q-switched CO laser radiation with efficiency up to 37% // Optics Letters. – 2015. – Vol. 40. – P. 2997.
78. Nikogosyan D. Nonlinear Optical Crystals: A Complete Survey. – New York: Springer, New York, NY, 2005.
79. Suhre D.R., Singh N.B., Balakrishna V., Fernelius N.C., Hopkins F.K. Improved crystal quality and harmonic generation in GaSe doped with indium // Optics Letters. – 1997. – Vol. 22. – No. 11. – P. 775–777.
80. Bhar G.C., Das S., Vodopyanov K.L. Nonlinear optical laser devices using GaSe // Applied Physics B. – 1995. – Vol. 61. – No. 2. – P. 187–190.

81. Budilova O.V., Ionin A.A., Kinyaevskiy I.O., Klimachev Y.M., Kotkov A.A., Kozlov A.Y., Lanskiy G.V. Broadband two-stage frequency conversion of CO laser in AgGaSe<sub>2</sub> crystal // *Optics Letters*. – 2016. – Vol. 41. – P. 777.
82. Макаров Г.Н. На пути к молекулярному лазерному разделению изотопов урана // *Успехи физических наук*. – 2022. – Т. 192. – № 6. – С. 569–608.
83. Byer R.L., Kildal H., Feigelson R.S. CdGeAs<sub>2</sub>—A New Nonlinear Crystal Phasematchable at 10.6 μm // *Applied Physics Letters*. – 1971. – Vol. 19. – No. 7. – P. 237–240.
84. McCarthy D.E. The Reflection and Transmission of Infrared Materials. V: Spectra from 2 μ to 50 μ // *Applied Optics*. – 1968. – Vol. 7. – No. 10. – P. 1997–2000.
85. Kildal H., Mikkelsen J.C. Efficient doubling and CW difference frequency mixing in the infrared using the chalcopyrite CdGeAs<sub>2</sub> // *Optics Communications*. – 1974. – Vol. 10. – P. 306–309.
86. Piltch M.S., Rink J.P., Tallman C.R. Pulsed infrared difference frequency generation in CdGeAs<sub>2</sub> // *Optics Communications*. – 1975. – Vol. 15. – P. 112–114.
87. Avanesov S.A., Badikov D.V., Badikov V.V., Panyutin V.L., Petrov V., Shevyrdyaeva G.S., Martynov A.A., Mitin K.V. Phase equilibrium studies in the PbTe–Ga<sub>2</sub>Te<sub>3</sub> and PbTe–In<sub>2</sub>Te<sub>3</sub> systems for growing new nonlinear optical crystals of PbGa<sub>6</sub>Te<sub>10</sub> and PbIn<sub>6</sub>Te<sub>10</sub> with transparency extending into the far-IR // *Journal of Alloys and Compounds*. – 2014. – Vol. 612. – P. 386–391.
88. Ionin A.A., Kinyaevskiy I.O., Klimachev Y.M., Kotkov A.A., Badikov V.V., Mitin K.V. Frequency conversion of molecular gas lasers in PbIn<sub>6</sub>Te<sub>10</sub> crystal within mid-IR range // *Optics Letters*. – 2016. – Vol. 41. – P. 2390.
89. Ионин А.А., Киняевский И.О., Климачев Ю.М., Козлов А.Ю., Котков А.А. Широкодиапазонный ИК лазерный источник (2.5–17 мкм) для диагностики плазмы (обзор) // *Ядерная физика и инжиниринг*. – 2016. – Т. 7. – № 5. – С. 383–390.
90. Badikov V.V., Badikov D.V., Laptev V.B., Mitin K.V., Shevyrdyaeva G.S., Shchebetova N.I., Petrov V. Crystal growth and characterization of new quaternary chalcogenide nonlinear crystals for the mid-IR: BaGa<sub>2</sub>GeS<sub>6</sub> and BaGa<sub>2</sub>GeSe<sub>6</sub> // *Optical Materials Express*. – 2016. – Vol. 6. – No. 9. – P. 2933–2938.
91. Ionin A.A., Kinyaevskiy I.O., Mozhaeva V.A. Numerical analysis of CO laser frequency conversion efficiency in BaGa<sub>2</sub>GeSe<sub>6</sub> crystal // *Laser Physics*. – 2018. – Vol. 28. – No. 3. – P. 035401.
92. Badikov D.V., Badikov V.V., Ionin A.A., Kinyaevskiy I.O., Klimachev Y.M., Kotkov A.A., Mitin K.V., Mokrousova D.V., Mojaeva V.A. Sum-frequency generation of Q-

switched CO laser radiation in BaGa<sub>2</sub>GeSe<sub>6</sub> and GaSe nonlinear crystals // *Optical and Quantum Electronics*. – 2018. – Vol. 50. – No. 6. – P. 243.

93. Ionin A.A., Kozlov A.Y., Rulev O.A., Seleznev L.V., Sinitsyn D.V. Repetitively pulsed cryogenically cooled quasi-sealed-off slab RF discharge first-overtone CO laser // *Applied Physics B: Lasers and Optics*. – 2016. – Vol. 122. – P. 183.

94. Dmitriev V.G., Gurzadyan G.G., Nikogosyan D.N. *Handbook of Nonlinear Optical Crystals : Springer Series in Optical Sciences*. Vol. 64. – 3. – Springer, Berlin, Heidelberg, 1999. – 414 p.

95. Andreev Y.M., Ionin A.A., Kinyaevskiy I.O., Klimachev Y.M. Numerical Study of Multiline CO Laser Frequency Conversion in a ZnGeP<sub>2</sub> Crystal to the THz Range // *Bulletin of the Russian Academy of Sciences: Physics*. – 2019. – Vol. 83. – No. 3. – P. 237–241.

96. Ionin A.A., Kinyaevskiy I.O., Klimachev Yu.M., Kozlov A.Yu., Rulev O.A., Sagitova A.M., Seleznev L.V., Sinitsyn D.V. Q-switched repetitively pulsed cryogenic slab RF discharge CO laser with active medium comprising air // *Applied Physics B: Lasers and Optics*. – 2018. – Vol. 124. – No. 9. – P. 173.

97. Tochitsky S.Ya., Sung C., Trubnick S.E., Joshi C., Vodopyanov K.L. High-power tunable, 0.5-3 THz radiation source based on nonlinear difference frequency mixing of CO<sub>2</sub> laser lines // *Journal of the Optical Society of America B*. – 2007. – Vol. 24. – No. 9. – P. 2509–2516.

98. Avanesov S., Badikov V., Tyazhev A., Badikov D., Panyutin V., Marchev G., Shevyrdyaeva G., Mitin K., Noack F., Vinogradova P., Schebetova N., Petrov V., Kwasniewski A. PbIn<sub>6</sub>Te<sub>10</sub>: new nonlinear crystal for three-wave interactions with transmission extending from 1.7 to 25 μm // *Optical Materials Express*. – 2011. – Vol. 1. – No. 7. – P. 1286–1291.