# 基于 BaWO4 晶体 332 cm<sup>-1</sup>频移的拉曼激光器

孙文佳<sup>1</sup> 王青圃<sup>1</sup> 刘兆军<sup>1\*</sup> 张行愚<sup>1</sup> 王公堂<sup>2</sup> 白 芬<sup>1</sup> 兰伟霞<sup>1</sup> 万学斌<sup>1</sup> 张怀金<sup>3</sup>
<sup>↑</sup>山东大学信息科学与工程学院山东省激光工程与应用重点实验室,山东 济南 250100 <sup>2</sup>山东师范大学物理与微电子学院,山东 济南 250014

3山东大学晶体材料国家重点实验室,山东济南 250100

摘要 通过 1064 nm 激光抽运 BaWO<sub>4</sub> 晶体的拉曼技术,获得了 1103 nm 的拉曼光输出。尺寸5 mm×5 mm× 46 mm的 BaWO<sub>4</sub> 晶体按  $X(ZZ)\overline{X}$  配置,实现了 332 cm<sup>-1</sup> 频移的受激拉曼散射。在激光二极管抽运功率为 7.55 W,声光 Q开关工作频率为17 kHz的条件下,获得平均功率为1.23 W的拉曼光输出,光-光转换效率达到 16.3%。此时得到的拉曼光脉冲宽度为27 ns,相应的峰值功率为2.6 kW。光束质量因子在两个正交方向上分别为 2.0±0.2和1.8±0.2。同时,估算了此时 BaWO<sub>4</sub> 晶体的热透镜焦距,其值为-1100 mm。

关键词 非线性光学;拉曼激光器;受激拉曼散射;BaWO4 晶体

中图分类号 TN248.1 文献标识码 A doi: 10.3788/CJL201138.0702006

# A BaWO<sub>4</sub> Raman Laser with the Raman Shift of 332 cm<sup>-1</sup>

Sun Wenjia<sup>1</sup> Wang Qingpu<sup>1</sup> Liu Zhaojun<sup>1</sup> Zhang Xingyu<sup>1</sup> Wang Gongtang<sup>2</sup> Bai Fen<sup>1</sup> Lan Weixia<sup>1</sup> Wan Xuebin<sup>1</sup> Zhang Huaijin<sup>3</sup>

<sup>1</sup>Provincial Key Laboratory of Laser Technology and Application, School of Information Science & Engineering, Shandong University, Jinan, Shandong 250100, China

<sup>2</sup> College of Physics and Electronics, Shandong Normal University, Jinan, Shandong 250014, China

 $^{\rm 3}$  Institute of Crystal Materials , Shandong University , Jinan , Shandong 250100 , China

**Abstract** A 1103-nm BaWO<sub>4</sub> Raman laser is demonstrated with a 1064 nm pump laser. A 5 mm × 5 mm × 46 mm BaWO<sub>4</sub> crystal with scattering geometry  $X(ZZ)\overline{X}$  configuration is employed as the active medium and its 332 cm<sup>-1</sup> Raman mode is accomplished. At an incident pump power of 7.55 W, the first-Stokes power of 1.23 W at 1103.2 nm is obtained at a repetition rate of 17 kHz, corresponding to an optical-to-optical conversion efficiency of 16.3%. The pulse width of Raman laser is measured to be 27 ns and the peak power is 2.6 kW. The beam quality factors  $M^2$  in the two orthogonal directions are  $2.0 \pm 0.2$  and  $1.8 \pm 0.2$ , respectively. The thermal focal length of the BaWO<sub>4</sub> crystal is estimated to be -1100 mm under this condition.

Key words nonlinear optics; Raman laser; stimulated Raman scattering; BaWO<sub>4</sub> crystal OCIS codes 190.0190; 140.3550; 140.3540; 160.4330

1 引 言

受激拉曼散射是实现频率变换、产生新波长的 一种有效方式<sup>[1~5]</sup>。与气体和液体拉曼介质相比, 固体拉曼介质具有增益高、热传导性好、机械特性 好、易于与全固态激光技术相结合的优点。因此,以 晶体作为拉曼增益介质的固体受激拉曼激光器以其 结构紧凑、效率高、稳定性好等优点,在交通、测量、 生物医学、信息科技、国防工业等领域都有广泛的应 用。目前,报道的重要拉曼晶体有硝酸钡  $[Ba(NO_3)_2]^{[6,7]}、钼酸盐类(SrMoO_4, PbMoO_4)^{[8,9]}、$ 钒酸盐类(YVO\_4, GdVO\_4)<sup>[10,11]</sup>以及钨酸盐类  $[KGd(WO_4)_2, KLu(WO_4)_2, BaWO_4]^{[12~14]}等。$ 

**导师简介**:王青圃(1942—),男,博士生导师,主要从事激光物理与技术等方面的研究。E-mail: qpwang@sdu. edu. cn \* 通信联系人。E-mail:zhaojunliu@sdu. edu. cn

收稿日期:2011-03-01; 收到修改稿日期:2011-03-18

基金项目:国家自然科学基金(60908010)资助课题。

作者简介:孙文佳(1983—),女,博士研究生,主要从事激光物理与技术等方面的研究。E-mail:swj924@163.com

作为一种优良的拉曼介质,BaWO4 晶体不潮 解,热机械性能好,透过波段宽,拉曼散射谱线的积 分截面和峰值强度都较高,是一种很有发展前景的 固体拉曼介质<sup>[15]</sup>,因而吸引了国内外众多学者的关 注,如Černý等<sup>[15]</sup>、Lee等<sup>[16]</sup>、Chen等<sup>[17]</sup>,以及 Nan Zong等<sup>[18]</sup>和Li等<sup>[19]</sup>也在BaWO4 的固体拉曼激光 方面进行了大量的研究。然而,到目前为止,国内外 所有的这些研究都集中在BaWO4 晶体的925 cm<sup>-1</sup> 拉曼频移处。除了这个频移谱线,BaWO4 晶体还有 另一个重要的拉曼频移谱线在332 cm<sup>-1</sup>处<sup>[20]</sup>,而基 于这个频移谱线的拉曼激光器还未见报道。当抽运 光为1064 nm时,基于此拉曼频移产生的一阶斯托 克斯光波长为1103 nm。由于倍频后的551 nm的谱 线在生物、医学、材料研究以及显示技术等领域都有 重要应用,所以1103 nm谱线的研究意义重大。

本文采用 1064 nm 的激光抽运 BaWO<sub>4</sub> 晶体的 内腔拉曼技术,在抽运功率为7.55 W,重复频率为 17 kHz时,获得了平均功率为1.23 W,波长为 1103 nm的激光输出。同时,关于 BaWO<sub>4</sub> 晶体的热 透镜效应问题也给出了相应的分析。

# 2 实验装置

拉曼激光腔的设计采用图1所示装置。抽运源 是光纤耦合输出的激光二极管(LD),其输出波长为 808 nm, 纤芯直径为600 µm, 数值孔径为0.22, 最大 功率25 W。激光晶体 Nd: YAG 的原子数分数为 1%,尺寸为ø4 mm×5 mm,两端均镀有对808 nm和  $1064 \sim 1180$  nm波段的增透膜(R<0.2%)。后腔镜 (RM)是平镜,一面镀808 nm增透膜(R<0.2%),另 一面镀膜对1064 nm高反(R>99.8%),对808 nm高 透(T>95%)。输出镜(OC)也是平镜,对1064 nm 高反(R>99.8%),在1103 nm处有 7%的透射率。 这样, 基频激光和拉曼光在同一个腔中振荡。 BaWO4 晶体尺寸为5 mm×5 mm×46 mm,其两端 面均镀对1030~1180 nm波段增透膜。声光开关晶 体长度为38 mm,两端均镀1064 nm的增透膜(R< 0.2%),其驱动源的中心频率为41 MHz,驱动功率 15 W。Nd: YAG 和 BaWO4 晶体被铟箔包裹后放入 紫铜块中,实验中通水冷却,水温控制在18℃。腔内 所有元件都尽量靠近,以做到最紧凑的腔,最终腔长 为110 mm。



图 1 内腔声光调 Q BaWO4 1103 nm 拉曼激光器示意图

Fig. 1 Experimental configuration for the laser diode-end-pumped acousto-optically Q-switched BaWO4 Raman laser at 1103 nm

### 3 实验结果与讨论

2000 年, Basiev 等<sup>[20]</sup> 研究了 BaWO<sub>4</sub> 晶体  $X(ZZ)\overline{X}$ 配置的室温以及更高温度下的拉曼光谱, 如图 2 所示。由图 2 可见,室温下除了925 cm<sup>-1</sup>频 移,332 cm<sup>-1</sup> 处 的 拉 曼 频 移 也 比 较 强。其 中 925 cm<sup>-1</sup>处拉曼峰对应于 WO<sup>2</sup><sub>4</sub> 四面体对称伸缩 振动模,而332 cm<sup>-1</sup>则对应着 O-W-O 面内的弯曲 振动模。

首先,用 AQ 6315A 光谱仪(Yokogawa,Japan) 研究了输出激光的光谱特性,结果如图 3 所示。测 量范围为1050~1200 nm,光谱分辨率为0.5 nm,实 验观察到两条谱线,分别对应于1064 nm的基频光 和1103 nm的拉曼光。图中插入的小图为拉曼光谱 的精细测量结果,其光谱分辨率为0.05 nm。实验中



图 2 BaWO<sub>4</sub> 晶体  $X(ZZ)\overline{X}$  配置的不同温度下的 拉曼光谱

Fig. 2 Raman spectra of BaWO<sub>4</sub> crystal at different temperatures with scattering geometry  $X(ZZ)\overline{X}$ 



图 3 基频光与拉曼光的光谱图。插图为拉曼光谱的 精细测量结果

Fig. 3 Optical spectra of the fundamental and Raman lasers with the frequency shift shown. Inset is the fine measurement result of Raman spectrum

未发现高阶斯托克斯光和反斯托克斯光。由图 3 测量结果可得,拉曼光相对基频光的受激拉曼散射频 移为332 cm<sup>-1</sup>,对应于 WO<sup>2</sup><sup>-</sup>离子团的弯曲振动 模,与文献[20]报道一致。由于众多研究者都更关 注于 BaWO<sub>4</sub> 晶体的925 cm<sup>-1</sup>拉曼频移,而且要实 现1103 nm而非1180 nm的拉曼光输出,对输出镜的 镀膜要求比较高,基于以往研究拉曼激光器的经验, 设计了合适的腔镜镀膜,实现了基于 BaWO<sub>4</sub> 晶体 332 cm<sup>-1</sup>拉曼频移的拉曼光输出。

拉曼激光的输出功率用 EPM2000 功率计测量,17 kHz情况下的测量结果如图 4 所示。图 4 给出了总输出功率、基频光功率和拉曼光功率随抽运功率的变化关系。由于从输出镜输出的激光既包含拉曼光,也有一小部分基频光,所以用一片带通滤波器(BPF)把基频光和拉曼光分开。在300~1200 nm 波段范围中,该滤波器仅对1061.5~1066.5 nm波





Fig. 4 Average output power for 1064,1103 nm and total lasers, and Raman conversion efficiency at 17 kHz with respect to the input pump power

段有 97%的透射率,对其他波长均高反(R>99.8%)。所以分别测得基频光功率、总输出功率之后,可以得到拉曼光功率。当输入抽运光功率为7.55W时,拉曼光输出功率为1.23W,由LD到拉曼光的转换效率为16.3%。此时的斜率效率为33.2%。图中实心圆曲线代表的是拉曼光的转换效率。可见,随着总输出功率的增加,基频光功率占总功率的比重逐渐下降,且拉曼光的功率值近似等于总输出功率值。由于输出镜对基频光1064 nm高反(R>99.8%),大大增强了腔内的基频光功率密度,从而提高了拉曼光的转换效率。

图 5 给出了 14,17,20 kHz 情况下不同抽运功 率时的拉曼光输出功率。由图5可见,当脉冲重复 频率为17 kHz时,可得到最高拉曼光输出功率,即 上文提到的1.23 W。另外,可以明显看出拉曼激光 器的起振阈值随脉冲重复频率的不同而变化,较低 的脉冲重复频率对应较低的拉曼振荡阈值。例如, 在14 kHz时, 拉曼激光器阈值低于3.6 W, 而在 20 kHz时,阈值高于4.4 W。低抽运功率时,14 kHz 时的输出拉曼光功率远大于其他重复频率时的功 率,但随着抽运功率的逐渐增长,14 kHz时的输出 拉曼光功率增长逐渐缓慢,接近饱和。这是由于腔 内高功率密度引起的拉曼介质的自聚焦效应造成 的<sup>[17]</sup>。为了避免损伤晶体,在14 kHz的条件下,抽 运功率没有超过6.9 W。在17 kHz 和20 kHz的条件 下,当抽运功率超过7.55 W,频移为925 cm<sup>-1</sup>时的 1180 nm的拉曼激光也同时出现,所以没有继续增 加抽运功率。



图 5 不同脉冲重复频率下拉曼光输出功率随抽运 功率的变化

Fig. 5 Output power of 1103 nm laser versus input pump power at different repetition rates

对输出激光的时间特性进行了研究。测量时,先 用带通滤波器分光,然后用快速响应 pin 管探测,并 由数字存储示波器(TDS 5052B, Tektronix)记录。

通过示波器记录的脉冲形状,得出不同抽运功 率、不同脉冲重复频率下的脉冲宽度,结果如图 6 所 示。为了比较,给出了17 kHz时的基频光脉冲宽 度。由图可以看出,在重复频率一定的情况下,输出 激光的脉冲宽度随抽运功率的增加而减小。抽运功 率为7.55 W,脉冲重复频率为17 kHz时,拉曼光脉 冲宽度为27 ns,基频光宽度为41 ns,典型的脉冲形 状如图 7 所示。另外可以计算出拉曼光峰值功率为 2.6 kW。



图 6 不同重复频率下脉宽随抽运功率的变化 Fig. 6 Pulse widths versus input pump power at







拉曼光首先经过一系列衰减,然后通过一个焦 距为50 mm的聚焦透镜会聚,再用 CCD 测量会聚后 不同位置的光斑大小,采用二项式拟合的方法,最终 测得拉曼光的光束质量因子。在抽运功率为 7.55 W,脉冲重复频率为17 kHz的情况下,测量了 1103 nm拉曼光的光束质量。其水平和竖直方向的 光束质量因子分别为2.0±0.2和1.8±0.2。热负载 会引起 Nd:YAG 介质的各向异性,因此 Nd:YAG 棒在两个方向上的热透镜焦距不同,导致了在两个 方向上的光束质量因子有差异。 估算了拉曼输出功率为最高时的 BaWO<sub>4</sub> 等效 热透镜焦距。首先撤去聚焦透镜,测量不同位置处 的光斑大小,通过自由空间光传输方程<sup>[21]</sup>

$$w^2(z) = w_0^2 + \left(rac{M^2\lambda}{\pi w_0}
ight)^2 imes (z-z_0)^2$$
 (1)

便可算出输出镜上的光斑大小 w<sub>0</sub>。式中 λ 为波长, M<sup>2</sup> 为光束质量因子,z<sub>0</sub> 为光波传输方向上束腰的位置,w<sub>0</sub> 为束腰光斑,w(z) 为距输出镜位置 z 处的光 斑大小。

其次,根据计算出的 $w_0$ 值,用ABCD矩阵反推 BaWO<sub>4</sub> 热透镜焦距( $f_{BaWO_4}$ )。

Nd: YAG 的热透镜焦距(f<sub>YAG</sub>) 表示为<sup>[22]</sup>

$$f_{\rm YAG} = \frac{w_{\rm LD}^2}{4A_0} \left[ 1 + 2 \left( \frac{w_{\rm plc}}{w_{\rm LD}} \right)^2 \right], \tag{2}$$

式中A。是一个与抽运功率有关的量,具体定义为

$$A_{0} = \frac{\eta_{\rm h} P_{\rm abs}}{4\pi K} \Big[ \frac{\partial n}{\partial T} + (n-1)(1+\nu)\alpha_{\rm T} + 2C_{\rm r} n^{3} \alpha_{\rm T} \Big],$$
(3)

 $w_{LD}$ 为 LD 在 Nd: YAG 中的平均抽运半径, $w_{plc}$ 为基频光在 Nd: YAG 中的平均光斑半径, $\eta_h$ 为吸收的抽运光功率转换为热的比例, $P_{abs}$ 为激光晶体吸收的抽运光功率,K为热导率, $\partial n/\partial T$ 为折射率的热光系数,n为激光晶体的折射率, $\nu$ 为泊松比, $a_T$ 为热膨胀系数, $C_r$ 为光弹系数,具体取值见文献[23]。依据测得的  $w_0$ 值,再通过多次运算,可以得到自洽的 $w_{plc}$ , $f_{FaWO_4}$ 的取值。在抽运功率为7.55 W,脉冲重复频率为17 kHz的情况下,估算出的 BaWO<sub>4</sub> 热透镜焦距约为 - 1100 mm。

# 4 结 论

报道了一种基于 BaWO4 晶体的拉曼激光器。 在1064 nm纳秒脉冲抽运条件下,选用拉曼频移为 332 cm<sup>-1</sup>的 BaWO4 晶体作为拉曼介质,产生了波 长为1103 nm的激光。在抽运功率为7.55 W,脉冲 重复频率为17 kHz的条件下,获得最高的拉曼光功 率为1.23 W,相应的由 LD 到拉曼光的转换效率为 16.3%,BaWO4 热透镜焦距约为-1100 mm。

#### 参考文献

- 1 H. M. Pask. The design and operation of solid-state Raman lasers [J]. Prog. Quantum Electron., 2003, 27(1):3~56
- 2 Liu Bangqun, Gao Hui, Liu Zuyin. Stimulated Raman scattering and stimulated four photon mixing in Er doped silica fiber [J]. *Chinese J. Lasers*, 1998, A25(1):61~64 刘邦群,高 晖,刘祖荫. 掺铒石英光纤中的受激拉曼散射及受 激四光子混频[J]. 中国激光, 1998, A25(1):61~64
- 3 T. T. Basiev, S. V. Vassiliev, V. A. Konjushkin et al. . Diode

pumped 500-picosecond Nd: GdVO<sub>4</sub> Raman laser [J]. Laser Phys. Lett., 2004, 1(5):237~240

- 4 Z. J. Liu, Q. P. Wang, X. Y. Zhang et al., A diode sidepumped KTiOAsO<sub>4</sub> Raman laser [J]. Opt. Express, 2009, 17 (9):6968~6974
- 5 Z. J. Liu, Q. P. Wang, X. Y. Zhang et al., 1120 nm second-Stokes generation in KTiOAsO<sub>4</sub>[J]. Laser Phys. Lett., 2009, 6 (2),121~124
- 6 C. He, T. H. Chyba. Solid-state barium nitrate Raman laser in the visible region [J]. Opt. Commun., 1997, 135(4-6):273~ 278
- 7 P. G. Zverev, J. T. Murray, R. C. Powell *et al.*. Stimulated Raman scattering of picosecond pulses in barium nitrate crystals [J]. Opt. Commun., 1993, 97(1-2):59~64
- 8 T. T. Basiev, S. V. Vassiliev, M. E. Doroshenko *et al.*. Laser and self-Raman-laser oscillations of PbMoO<sub>4</sub>: Nd<sup>3+</sup> crystal under laser diode pumping [J]. *Opt. Lett.*, 2006, **31**(1):65~67
- 9 P. G. Zverev, A. Y. Karasik, T. T. Basiev *et al.*. Stimulated Raman scattering of picosecond pulses in  $SrMoO_4$  and  $Ca_3(VO_4)_2$ crystals [J]. *Quantum Electron.*, 2003, **33**(4):331~334
- 10 F. F. Su, X. Y. Zhang, Q. P. Wang *et al.*. Diode pumped actively *Q*-switched Nd: YVO<sub>4</sub> self-Raman laser [J]. *J. Phys. D*, 2006, **39**(10):2090~2093
- 11 Hu Dawei, Wang Zhengping, Zhang Huaijin et al.. Stimulated Raman scattering of GdVO<sub>4</sub> crystal [J]. Chinese J. Lasers, 2008, **35**(1):11~16

胡大伟,王正平,张怀金等. GdVO4 晶体的受激拉曼散射[J]. 中 国激光, 2008, **35**(1):11~16

- 12 T. Omatsu, Y. Ojima, H. M. Pask *et al.*. Efficient 1181nm self-stimulating Raman output from transversely diode-pumped Nd<sup>3+</sup>:KGd(WO<sub>4</sub>)<sub>2</sub> laser [J]. *Opt. Commun.*, 2004, 232(1-6): 327~331
- 13 J. H. Liu, U. Griebner, V. Petrov *et al.*. Efficient continuous-wave and *Q*-switched operation of a diode-pumped Yb : KLu (WO<sub>4</sub>)<sub>2</sub> laser with self-Raman conversion [J]. *Opt. Lett.*, 2005, 30(18):2427~2429

- 14 Wang Zhengping, Zhang Huaijin, Xu Xinguang et al.. Stimulated Raman scattering of BaWO<sub>4</sub> crystal [J]. Chinese J. Lasers, 2004, 31(12):1428
  王正平,张怀金,许心光等, BaWO<sub>4</sub> 晶体的受激拉曼散射[J]. 中 国激光, 2004, 31(12):1428
- 15 P. Černý, H. Jelínková, P. G. Zverev *et al.*. Solid state lasers with Raman frequency conversion [J]. *Prog. Quantum Electron.*, 2004, 28(2):113~143
- 16 A. J. Lee, H. M. Pask, J. A. Pipe *et al.*. An intracavity, frequency-doubled BaWO<sub>4</sub> Raman laser generating multi-watt continuous-wave, yellow emission [J]. *Opt. Express*, 2010, 18 (6):5984~5992
- 17 Y. F. Chen, K. W. Su, H. J. Zhang *et al.*. Efficient diodepumped actively *Q*-switched Nd: YAG/BaWO<sub>4</sub> intracavity Raman laser [J]. Opt. Lett., 2005, **30**(24):3335~3337
- 18 Nan Zong, Qian-jin Cui, Qing-lei Ma et al.. High average power 1.5 μm eye-safe Raman shifting in BaWO<sub>4</sub> crystals [J]. Appl. Opt., 2009, 48(1):7~10
- 19 S. T. Li, X. Y. Zhang, Q. P. Wang *et al.*. Diode-side-pumped intracavity frequency-doubled Nd : YAG/BaWO<sub>4</sub> Raman laser generating average output power of 3. 14 W at 590 nm [J]. *Opt. Lett.*, 2007, **32**(20):2951~2953
- 20 T. T. Basiev, A. A. Sobol, Y. K. Voronko *et al.*. Spontaneous Raman spectroscopy of tungstate and molybdate crystals for Raman lasers [J]. *Opt. Mater.*, 2000, 15(3):205~ 216
- 21 N. Reng, B. Eppich. Definition and measurements of high power laser beam parameters [J]. Opt. Quantum Electron., 1992, 24 (9):973~992
- 22 S. Z. Fan, X. Y. Zhang, Q. P. Wang *et al.*. More precise determination of thermal lens focal length for end-pumped solidstate lasers [J]. *Opt. Commun.*, 2006, 266(2):620~626
- 23 H. Glur, R. Lavi, T. Graf. Reduction of thermally induced lenses in Nd : YAG with low temperatures [J]. IEEE J. Quantum Electron., 2004, 40(5):499~504