

外腔抽运 SrWO₄ 反斯托克斯拉曼激光器

王 聪¹ 张行愚¹ 王青圃¹ 丛振华¹ 刘兆军¹ 韦 卫¹ 陈晓寒¹ 李 平¹ 涂朝阳²

(¹ 山东大学信息科学与工程学院山东省激光技术与应用重点实验室, 山东 济南 250100)

² 中国科学院福建物质结构研究所, 福建 福州 350002

摘要 报道了外腔抽运的 969 nm SrWO₄ 反斯托克斯拉曼激光器的特性。利用主动调 Q Nd:YAG 激光器产生的 1064 nm 激光作为抽运源, SrWO₄ 拉曼谐振腔的光轴与抽运光的传播方向偏离一个角度, 实现了抽运光、一阶斯托克斯光和一阶反斯托克斯光之间的非共线相位匹配, 得到了一阶反斯托克斯光和一至三阶斯托克斯光的输出, 测量了输出激光的脉冲能量、时间和光谱特性。当抽运光能量为 120 mJ 时获得的 969 nm 反斯托克斯光的最大输出能量为 0.74 mJ, 脉冲宽度为 3.9 ns。同时, 获得的斯托克斯光的总能量为 23.9 mJ, 其中 1323 nm 二阶斯托克斯光的输出能量为 19.6 mJ。由抽运光向斯托克斯光和反斯托克斯光转换的总效率为 20.5%。

关键词 激光器; 反斯托克斯激光器; 四波混频; SrWO₄ 晶体; 相位匹配; 受激拉曼散射

中图分类号 TN248 **文献标识码** A **doi**: 10.3788/CJL201441.0302008

Extracavity Pumped SrWO₄ Anti-Stokes Raman Lasers

Wang Cong¹ Zhang Xingyu¹ Wang Qingpu¹ Cong Zhenhua¹ Liu Zhaojun¹

Wei Wei¹ Chen Xiaohan¹ Li Ping¹ Tu Chaoyang²

¹ Shandong Provincial Key Laboratory of Laser Technology and Application, School of Information

Science and Engineering, Shandong University, Jinan, Shandong 250100, China

² Fujian Institute of Research on the Structure of Matter, Chinese Academy of Sciences,

Fuzhou, Fujian 350002, China

Abstract The characteristics of an extracavity pumped SrWO₄ anti-Stokes Raman lasers at 969 nm are studied. The SrWO₄ Raman resonator is pumped by an actively Q-switched Nd:YAG laser at 1064 nm with its axis tilted from the pumping laser direction. The non-collinear phase matching between the pumping radiation, the generated first Stokes and the first anti-Stokes radiations are achieved. Besides the first anti-Stokes laser radiation, three orders of Stokes laser radiations are generated simultaneously. The output energy, temporal and spectral information of the output laser radiations are investigated. At the highest pumping laser energy of 120 mJ, the highest energy of the anti-Stokes radiation is 0.74 mJ with the pulse width of 3.9 ns. Meanwhile, the total output energy of the Stokes radiations is 23.9 mJ with 19.6 mJ of 1323 nm second Stokes component. The conversion efficiency from the pumping radiation to the Stokes and anti-Stokes radiations is 20.5%.

Key words lasers; anti-Stokes lasers; four-wave mixing; SrWO₄ crystal; phase matching; stimulated Raman scattering

OCIS codes 140.3538; 140.3550; 140.3613

1 引 言

受激拉曼散射是一种应用广泛的非线性效应, 是获得激光新波长的一种重要手段。固体拉曼介质具有很多优点, 如拉曼增益高、热传导性好、光学和

机械性能好等, 所以固态拉曼激光器在近年来得到了广泛关注^[1-10]。斯托克斯散射效率高而且不需要相位匹配, 容易实现。大部分的研究工作都集中于一阶斯托克斯激光, 少量集中于二阶和高阶斯托

收稿日期: 2013-09-10; **收到修改稿日期**: 2013-09-16

基金项目: 国家自然科学基金(11174185, 11204160)

作者简介: 王 聪(1987—), 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: wangc.sd@163.com

导师简介: 张行愚(1963—), 男, 教授, 博士生导师, 主要从事激光物理, 光电子学等方面的研究。

E-mail: xyz@sdu.edu.cn(通信联系人, 中国光学学会会员号: S040320754S)

克斯激光。

为提高激光波长的丰富性,研究反斯托克斯激光器是非常有必要的。反斯托克斯散射是两个抽运光子、一个一阶斯托克斯光光子和一个一阶反斯托克斯光光子的四波混频过程。当超短脉冲聚焦到拉曼晶体中时,可以产生许多斯托克斯和反斯托克斯谱线。由于这些激光的空间和光谱特性差,难以满足实际应用^[11-13]。非共线相位匹配可以实现高光束质量反斯托克斯光的产生,也就是说抽运光和一阶斯托克斯光之间存在一个确定的相位匹配角。目前关于固态反斯托克斯激光器只有少量报道^[14-15]。2009年,Mildren等^[15]采用简单的实验装置实现了反斯托克斯光的产生,外腔式 KGd(WO₄)₂ 拉曼谐振腔的光轴偏离抽运光光轴的角度为四波混频的相位匹配角,获得了能量为 0.27 mJ 的反斯托克斯光,转换效率为 0.46%。

SrWO₄ 晶体是一种优良的拉曼晶体,在 1064 nm 处的稳态拉曼增益系数为 5.0 cm/GW,最强拉曼振动模为 921 cm⁻¹。2008年,Fan等^[4]报道了高效的 1.5 μm 人眼安全 SrWO₄ 拉曼激光器。2009年,Chen等^[2]用激光二极管(LD)侧面抽运主动调 Q 内腔式 SrWO₄ 拉曼激光器,获得了 10 W 的 1180 nm 激光。本文利用外腔抽运的 SrWO₄ 拉曼激光器,研究了反斯托克斯光的输出特性。一阶斯托克斯与反斯托克斯光在同一拉曼晶体中产生,一阶斯托克斯光的振荡方向偏离抽运光方向一个相位匹配角。当 1064 nm 抽运光脉冲能量为 120 mJ 时,得到反斯托克斯光的最大能量为 0.74 mJ,对应的转换效率为 0.62%。同时,斯托克斯光的输出总能量为 23.9 mJ,其中二阶斯托克斯光的输出能量为 19.6 mJ。由抽运光向斯托克斯光和反斯托克斯光

转换的总效率为 20.5%。

2 实 验

实验装置如图 1 所示,抽运源为氙灯抽运的电光调 Q 1064 nm Nd:YAG 激光器,最大输出能量为 120 mJ,重复频率为 1 Hz,脉冲宽度为 8.5 ns。半波片放置于光路中用于改变抽运光的偏振方向以获得最大拉曼增益。1064 nm 激光单程通过拉曼晶体,拉曼谐振腔由后腔镜 M1 和输出镜 OC 组成,二者均为平面镜。M1 镀有对 1064 nm 光的高透膜(透射率 $T > 99.3\%$) 和对一阶斯托克斯光(1179 nm)的高反膜(反射率 $R > 99.5\%$); OC 镀有对 1064 nm 和 969 nm 光的高透膜($T > 97\%$),对 1179 nm 光的高反膜($R > 96\%$)。拉曼谐振腔固定在电控旋转平台上(Zolix RSA100),旋转角度由电控位移台控制箱精确控制,精度为每步 0.00125°。沿 a 轴方向切割的 SrWO₄ 晶体放置于腔镜中间,尺寸为 4 mm×4 mm×52 mm,两个端面镀有 1000~1200 nm 光的增透膜,整个拉曼谐振腔的长度为 60 mm。反斯托克斯产生过程的相位匹配示意图如图 2 所示,抽运光波矢 k_L ,一阶斯托克斯光波矢 k_{S1} 和一阶反斯托克斯光波矢 k_{AS} 满足相位匹配条件 $\Delta k = 2k_L - k_{S1} - k_{AS} = 0$ 。 θ_{+1} 和 θ_{-1} 分别为晶体内反斯托克斯光和斯托克斯光传播方向与抽运光传播方向的夹角,对应于图 1 中的外角为 θ'_{+1} 和 θ'_{-1} 。反斯托克斯光的能量由能量计(Ophir PD300-IR-ROHS)测量,并由与其连接的表头(Ophir Nova II)显示;脉冲波形由快速 PIN 管接收,并在 Tektronix 数字示波器(TDS 3032B)上显示;光谱信息则由光谱仪(Yokogawa AQ 6315A 350~1750 nm)记录。

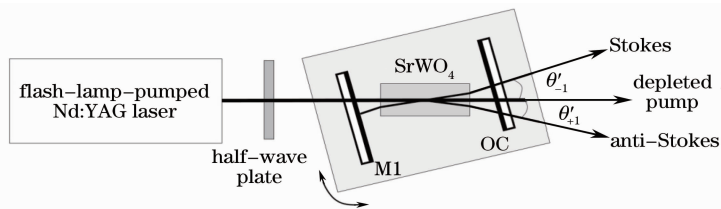


图 1 外腔抽运的 SrWO₄ 反斯托克斯拉曼激光器的实验装置

Fig. 1 Experimental arrangement of the extracavity pumped SrWO₄ anti-Stokes Raman laser

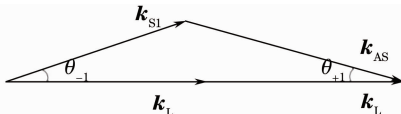


图 2 相位匹配示意图

Fig. 2 Diagram of the phase-matching condition

3 实验结果与讨论

所有输出谱线的偏振态与抽运光偏振态相同,即平行于 SrWO₄ 晶体的 c 轴。图 3 为输出激光的典型光谱图,光谱仪分辨率为 5 nm。由图可以看出,由于抽运光强度大,除了反斯托克斯光和一阶斯

托克斯光产生外,二、三阶斯托克斯光(1323 nm 和 1506 nm)也同时产生。由于输出耦合镜对一阶斯托克斯光高反,输出的斯托克斯光中的主要组成部分为二阶斯托克斯光。相邻谱线的频移对应于 SrWO₄ 晶体中 WO₄²⁻ 离子团的最强振动模 $\omega_R = 921 \text{ cm}^{-1}$ 。如图 1 所示,所有斯托克斯光在平行于拉曼谐振腔的光轴(θ'_1)共线输出,反斯托克斯光在 θ'_1 方向上输出。首先使拉曼谐振腔的光轴与抽运光方向平行,然后转动旋转平台逐渐增大 θ'_1 ,当 θ'_1 增大至 16.3 mrad 时,反斯托克斯光开始产生,当 θ'_1 为 31.3 mrad 时,反斯托克斯光的转换效率最大,此时, θ'_1 的测量值为 26.9 mrad。理论上的外角 θ'_1 由相位匹配条件计算,由文献 [16] 报道的 Sellmeier 方程计算波矢 k_L, k_{S1} 和 k_{AS} 的值,根据图 2 中相位匹配关系所示的三角形,通过余弦定理计算晶体内的相位匹配角度 $\theta_{\pm 1}$,然后根据折射定律计算理论上的外角。表 1 给出了相位匹配外角的理论值与实验值对比结果,可以看出,理论值与实验值吻合得很好。

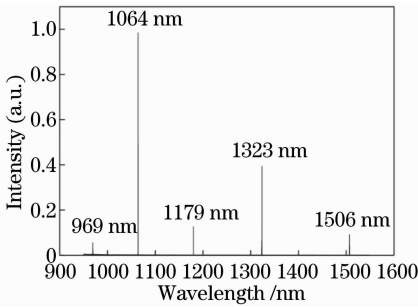


图 3 输出激光光谱图

Fig. 3 Laser spectral information

表 1 斯托克斯光和反斯托克斯光相位匹配角度理论值与实验值比较

Table 1 Parameter comparison of the output beams between the calculated and experimental values

Output beam	Wavelength / nm	Calculated θ'_i / mrad	Experimental θ'_i / mrad
Stokes	1179,1323,1506	33.3	31.3
Pump	1064	0	0.0
Anti-Stokes	969	27.4	26.9

实验中采用两束光束直径不同的光抽运拉曼激光器,直径分别为 2.0 mm 和 3.0 mm。一阶斯托克斯光在拉曼晶体内的走离距离 $d_{S1} = \theta_{-1} l_R / (2n_{S1}) = 0.25 \text{ mm}$;反斯托克斯光在拉曼晶体内的走离距离为 $d_{AS} = \theta_{+1} l_R / (2n_{AS}) = 0.21 \text{ mm}$ (l_R 为拉曼晶体的长度, n_{S1} 和 n_{AS} 分别为相位匹配方向上一阶斯托克斯光和反斯托克斯光的折射率)。由于 d_{S1}, d_{AS} 相

对于光束尺寸小得多,所以对反斯托克斯光的产生影响不大。

图 4 为不同抽运能量和抽运半径下的输出反斯托克斯光脉冲能量随抽运能量的变化。从图 4 中可以看出当抽运光束尺寸较大时,反斯托克斯光的转换效率低,阈值高;抽运光束直径为 2.0 mm 和 3.0 mm 时对应的阈值抽运能量分别为 16.3 mJ 和 33.6 mJ。这是因为反斯托克斯光的产生为抽运光、一阶斯托克斯光和反斯托克斯光相互作用的四波混频过程,抽运光和一阶斯托克斯光的功率密度和重叠面积决定了反斯托克斯光的转换效率,当一阶斯托克斯光的走离很小时,反斯托克斯光的脉冲能量随着抽运能量的增加而变大,随着抽运光半径的增加而减小。当抽运光直径为 2.0 mm,抽运能量为 120 mJ 时,获得的最大反斯托克斯能量为 0.74 mJ,对应的转换效率为 0.62%。

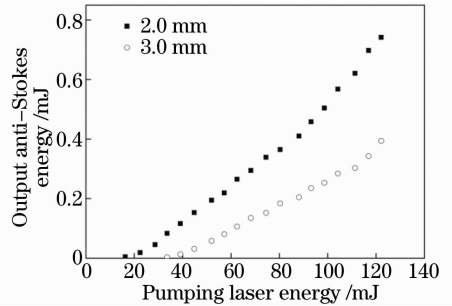


图 4 抽运光束直径为 2.0 mm 和 3.0 mm 时反斯托克斯光能量随抽运能量的变化

Fig. 4 Output anti-Stokes energies as functions of the pumping laser energy for the pumping beam diameters of 2.0 mm and 3.0 mm

图 5 所示为抽运光束直径为 2.0 mm 时,各阶斯托克斯光输出能量随抽运光能量的变化。输出镜对一阶斯托克斯光高反,实现了二阶斯托克斯光的高转换效率,二阶斯托克斯光随抽运光能量的增大

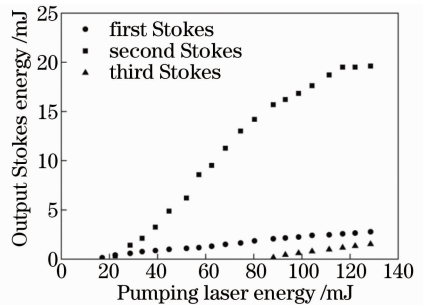


图 5 抽运光束直径为 2.0 mm 时斯托克斯光能量随抽运能量的变化

Fig. 5 Output Stokes energies as functions of the pumping laser energy for the pumping beam diameter of 2.0 mm

而增大,当抽运光能量为 88 mJ 时,三阶斯托克斯光开始产生。最大抽运能量下,输出的斯托克斯光的总能量为 23.9 mJ,其中一阶、二阶和三阶斯托克斯光的能量分别为 2.8、19.6、1.5 mJ。抽运光向斯托克斯光和反斯托克斯光转换的总效率为 20.5%。如果选用合适的腔镜,可以得到只有二阶斯托克斯光和反斯托克斯光的激光输出。

图 6 所示为抽运光、剩余抽运光、一阶斯托克斯光和反斯托克斯光的脉冲波形图。从图中可以看出当抽运光达到一定强度时开始向一阶斯托克斯光转换,抽运光衰减,一阶斯托克斯光增强。由于强抽运下的级联效应,产生的一阶斯托克斯光向高阶斯托克斯光转换,所以抽运光强减小到一定程度后不会继续减小,于是剩余的抽运光脉冲中间产生一个凹陷。反斯托克斯光脉冲产生于抽运光和一阶斯托克斯光重叠的区域,当抽运光为 120 mJ,抽运光束直径为 2.0 mm 时,得到的反斯托克斯脉冲为 3.9 ns,计算可得出此时反斯托克斯光的峰值功率为 190 kW。

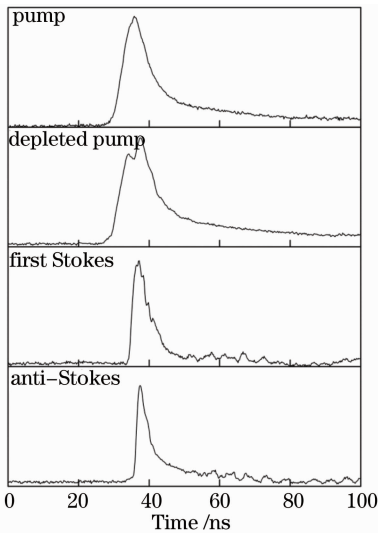


图 6 抽运光、剩余的抽运光、一阶斯托克斯光和一阶反斯托克斯光的脉冲波形图

Fig. 6 Typical traces of the pumping, depleted pumping, first Stokes and first anti-Stokes pulses

4 结 论

对外腔抽运的 SrWO₄ 反斯托克斯激光器进行了实验研究。为得到反斯托克斯光的输出,拉曼谐振腔光轴相对于抽运光方向旋转 31.3 mrad 使得抽运光、一阶斯托克斯光和一阶反斯托克斯光满足相位匹配条件。当抽运能量为 120 mJ 时,获得了 0.74 mJ 的 969 nm 反斯托克斯光,脉冲宽度为

3.9 ns,峰值功率为 190 kW。此时,一至三阶斯托克斯光的输出总能量为 23.9 mJ,其中二阶斯托克斯光的输出能量为 19.6 mJ。由抽运光向斯托克斯光和反斯托克斯光转换的总效率为 20.5%。

参 考 文 献

- 1 H M Pask. The design and operation of solid-state Raman lasers [J]. Progress in Quantum Electron, 2003, 27(1): 3-56.
- 2 X H Chen, X Y Zhang, Q P Wang, *et al.*. Diode side-pumped actively Q-switched Nd:YAG/SrWO₄ Raman laser with high average output power of over 10 W at 1180 nm[J]. Laser Phys Lett, 2009, 6(5): 363-366.
- 3 Shuanghong Ding, Xingyu Zhang, Qingpu Wang, *et al.*. Highly efficient Raman frequency converter with strontium tungstate crystal[J]. IEEE J Quantum Electron, 2006, 42(1): 78-84.
- 4 Y X Fan, Y Liu, Y H Duan, *et al.*. High-efficiency eye-safe intracavity Raman laser at 1531 nm with SrWO₄ crystal[J]. Appl Phys B, 2008, 93(2-3): 327-330.
- 5 Cong Zhenhua, Zhang Xingyu, Wang Qingpu, *et al.*. Actively Q-switched intracavity Nd:YAG/GdVO₄ Raman laser[J]. Chinese J Lasers, 2009, 36(1): 19-22.
丛振华, 张行愚, 王青圃, 等. 主动调 Q 内腔式 Nd:YAG/GdVO₄ 拉曼激光器[J]. 中国激光, 2009, 36(1): 19-22.
- 6 Y F Chen, K W Su, H J Zhang, *et al.*. Efficient diode-pumped actively Q-switched Nd:YAG/BaWO₄ intracavity Raman laser [J]. Opt Lett, 2005, 30(24): 3335-3337.
- 7 A Major, J S Aitchison, P W E Smith, *et al.*. Efficient Raman shifting of high-energy picosecond pulses into the eye-safe 1.5 μm spectral region by use of a KGd(WO₄)₂ crystal[J]. Opt Lett, 2005, 30(4): 421-423.
- 8 A J Lee, H M Pask, P Dekker, *et al.*. High efficiency, multi-watt CW yellow emission from an intracavity-doubled self-Raman laser using Nd:GdVO₄ [J]. Opt Express, 2008, 16(26): 21958-21963.
- 9 S T Li, X Y Zhang, Q P Wang, *et al.*. Diode-side-pumped intracavity frequency-doubled Nd:YAG/BaWO₄ Raman laser generating average output power of 3.14 W at 590 nm[J]. Opt Lett, 2007, 32(20): 2951-2953.
- 10 Zhang Xingyu, Wang Qingpu, Chang Jun, *et al.*. All solid state intracavity frequency-doubled Nd:YAG/SrWO₄/KTP Raman laser[J]. Chinese J Lasers, 2009, 36(7): 1798-1801.
张行愚, 王青圃, 常 军, 等. 全固态腔内倍频 Nd:YAG/SrWO₄/KTP 拉曼激光器[J]. 中国激光, 2009, 36(7): 1798-1801.
- 11 K Hakuta, M Suzuki, M Katsuragawa, *et al.*. Self-induced phase matching in parametric anti-Stokes stimulated Raman scattering[J]. Phys Rev Lett, 1997, 79(2): 209-212.
- 12 A K McQuillan, W R L Clementset, B P Stoicheff. Stimulated Raman emission in diamond: spectrum, gain, and angular distribution of intensity[J]. Phys Rev A, 1970, 1(3): 628-635.
- 13 S P S Porto, J F Scott. Raman spectra of CaWO₄, SrWO₄, CaMoO₄, and SrMoO₄ [J]. Phys Rev, 1967, 157(3): 716-719.
- 14 A Z Grasiuk, S V Kurbasov, L L Losev. Picosecond parametric Raman laser based on KGd(WO₄)₂ crystal[J]. Opt Commun, 2004, 240(4-6): 239-244.
- 15 R P Mildren, D W Coutts, D J Spence. All-solid-state parametric Raman anti-Stokes laser at 508 nm[J]. Opt Express, 2009, 17(2): 810-818.
- 16 I S Voronina, L I Ivleva, T T Basiev, *et al.*. Active Raman media: SrWO₄:Nd³⁺, BaWO₄:Nd³⁺. Growth and characterization[J]. J Optoelectron Adv Mater, 2003, 5(4): 887-892.

栏目编辑:张 腾