

# 2294 nm 端面抽运 ZnWO<sub>4</sub> 拉曼激光器

谢建<sup>\*\*</sup>, 任席奎, 于永芹, 段嗣侯, 李博, 阮双琛, 杜晨林<sup>\*</sup>

深圳大学光电工程学院, 深圳市激光工程重点实验室, 先进光学精密制造技术广东普通高校重点实验室, 广东 深圳 518060

**摘要** 报道了一种采用 ZnWO<sub>4</sub> 单晶作为拉曼晶体的 2294 nm 拉曼激光器。使用激光二极管端面抽运 Tm:YLF 晶体产生 1899 nm 的基频光, 采用内腔抽运 ZnWO<sub>4</sub> 晶体, 得到了 2294 nm 的一阶斯托克斯激光输出, 最大功率为 173 mW, 最短脉宽为 2.280 ns, 最高峰值功率为 25.292 kW, 从实验上证实了 ZnWO<sub>4</sub> 作为红外拉曼晶体的可行性。

**关键词** 激光器; 固体激光器; 拉曼激光器; ZnWO<sub>4</sub> 晶体

**中图分类号** TN248.1

**文献标识码** A

**doi:** 10.3788/CJL201845.1201001

## 2294 nm End-Pumped ZnWO<sub>4</sub> Raman Laser

Xie Jian<sup>\*\*</sup>, Ren Xikui, Yu Yongqin, Duan Sihou, Li Bo, Ruan Shuangchen, Du Chenlin<sup>\*</sup>

*College of Optoelectronic Engineering, Shenzhen Key Laboratory of Laser Engineering, Key Laboratory of Advanced Optical Precision Manufacturing Technology of Guangdong Higher Education Institutes, Shenzhen University, Shenzhen, Guangdong 518060, China*

**Abstract** A 2294 nm Raman laser using ZnWO<sub>4</sub> crystal as Raman crystal is reported. The Tm:YLF crystal is used to generate the fundamental laser at 1899 nm, and the intracavity pumping on ZnWO<sub>4</sub> crystal is adopted to obtain the first-order Stokes laser at wavelength of 2294 nm. The maximum power, shortest pulse width, and corresponding peak power are 173 mW, 2.280 ns, and 25.292 kW, respectively. The feasibility of ZnWO<sub>4</sub> as infrared Raman crystal is verified experimentally.

**Key words** lasers; solid-state lasers; Raman lasers; ZnWO<sub>4</sub> crystal

**OCIS codes** 140.3460; 140.3580; 140.3550

## 1 引言

2~3 μm 波长激光与许多气体分子的吸收线重合, 例如 CH<sub>4</sub> (2.35 μm)、C<sub>2</sub>H<sub>4</sub> (2.9 μm)、NH<sub>3</sub> (2.1 μm)、HF (2.5 μm)、CO (2.3 μm), 这使其在遥感、气体分子探测与环境监测等领域有广泛应用前景, 已成为国内外广泛关注和研究的热点<sup>[1-3]</sup>。目前非线性频率转换是产生 2~3 μm 波长激光的主要方法, 其中受激拉曼散射(SRS)是一种三阶非线性频率转换的过程, 其斯托克斯光的频率取决于介质分子内部的振动频率与抽运光频率, 因此通过改变抽运光的频率或者更换具有不同拉曼频移的拉曼介质, 就可以得到波长更加丰富的拉曼激光<sup>[4-7]</sup>。

目前, 在可见光以及较短波长的近红外区域, 已经制造出各种类型的拉曼激光器, 然而在大于 2 μm

的长波区域, 拉曼激光器的发展相对缓慢。这主要是与拉曼增益系数的特性有关, 拉曼增益系数与波长呈反相关, 拉曼增益系数随着波长的增加快速减小, 例如, BaWO<sub>4</sub> 晶体在 1064 nm 处的拉曼增益系数为 8.5 cm/GW, 而在 2000 nm 时, 已经衰减到 1.1 cm/GW<sup>[8]</sup>。此外, 大尺寸的大拉曼增益系数的晶体较难获得, 目前仅有 BaWO<sub>4</sub> 等少数晶体可用于制造波长大于 2 μm 的拉曼激光器。2013 年, Zhao 等<sup>[9]</sup>用 Tm, Ho:GdVO<sub>4</sub> 激光器内腔抽运 BaWO<sub>4</sub> 晶体, 获得波长为 2533 nm 的一阶斯托克斯激光输出。随后, 他们又通过 Tm:YAP 激光器内腔抽运 BaWO<sub>4</sub> 晶体得到输出功率为 306 mW、波长为 2.36 μm 的一阶斯托克斯激光<sup>[3]</sup>。2015 年, Kuzucu 等<sup>[10]</sup>使用 Ho:YAG 激光器, 采用外腔抽运 BaWO<sub>4</sub> 晶体获得了最大输出功率为 1.35 W、波长

收稿日期: 2018-05-28; 修回日期: 2018-07-12; 录用日期: 2018-07-27

基金项目: 深圳市科技计划基础研究(学科布局)项目(JCYJ20160331114355870)

\* E-mail: cldu@szu.edu.cn; \*\* E-mail: jane9303@126.com

为 2602 nm 的拉曼激光输出。

ZnWO<sub>4</sub> 的晶胞参数分别为  $a = 0.46926$  nm,  $b = 0.57213$  nm,  $c = 0.49281$  nm 和  $\beta = 90.642^\circ$ , 其单晶的空间群是 P2/c, 具有与 BaWO<sub>4</sub> 相同的 WO<sub>4</sub><sup>2-</sup> 基团, 故其也应具有相对较大的拉曼增益系数。另外, ZnWO<sub>4</sub> 具有优良的热学与光学性质, 其热导率与比热在同等条件下高于其他钨酸盐, 且在 432~6180 nm 波长范围内的透过率高于 80%。因此, ZnWO<sub>4</sub> 是一种非常有潜力的拉曼晶体, 并且最有可能用于长波红外波段的拉曼激光器<sup>[11]</sup>。然而由于 ZnWO<sub>4</sub> 晶体生长工艺等因素的影响, 长期以来关于 ZnWO<sub>4</sub> 的拉曼激光器鲜有报道。

本文报道了一种基于 ZnWO<sub>4</sub> 的全固态红外拉曼激光器。采用紧凑的 L 腔结构, 使用 Tm:YLF 晶体产生中心波长为 1899 nm 的基频光, 使用内腔抽运 ZnWO<sub>4</sub> 晶体, 得到中心波长为 2294 nm 的一阶斯托克斯拉曼激光, 最大输出功率为 173 mW, 对应的脉宽为 2.28 ns, 峰值功率为 25.292 kW。所研制的高峰值功率 2294 nm 激光可用于红外遥感、气体分子探测与环境监测等领域。

## 2 实验装置

2294 nm ZnWO<sub>4</sub> 拉曼激光器实验装置如图 1 所示。M1~M4 构成基频激光谐振腔, M3 和 M4 构成拉曼谐振腔。激光二极管(LD)抽运源的最大输出功率为 120 W(连续), 其输出波长可以通过工作温度进行调节, 输出波长随温度的变化为 0.3 nm/°C, 变化范围为 793~796 nm。LD 产生的激光通过光纤耦合输出, 光纤的芯径为 200 μm, 数值孔径(NA)为 0.22; 光纤输出的抽运光通过耦合比为 1:1.5 的光束耦合器扩束整形后束腰半径约为 300 μm, 抽运光经过 M2 聚焦至 Tm:YLF 晶体的中心; M1 为 JGS1 石英平凹镜, 凹面曲率半径为 500 mm, 且对 1850~2000 nm 波长范围的光部分透射(透过率  $T = 15\%$ ); 声光 Q 开关(Q-switch)位于 M1 与 M2 之间, 透光孔径为 10 mm, 射频功率为 50 W, 并镀有增透膜, 对波长为 1850~2000 nm 的光增透, 衍射效率大于 50%; M2 为 45°角入射的 JGS1 石英平面反射镜, 对波长为 1850~2000 nm 的光增反, 对波长为 793~796 nm 的光增透; a 轴切割的 Tm:YLF 晶体的几何尺寸为 3 mm×3 mm×20 mm, Tm<sup>3+</sup> 的掺杂原子数分数为 2%, 两端均镀有增透膜, 可对波长为 793~796 nm 和 1850~2000 nm 的光增透; M3 为蓝宝石镜片, 双面均为平

面, 朝向 Tm:YLF 一面对波长为 1850~2100 nm 的光增透(透过率  $T > 99\%$ ), 另一面对波长为 1850~2100 nm 的光增透( $T > 95\%$ ), 且对波长为 2250~2580 nm 的光增反(反射率  $R > 99.5\%$ ); ZnWO<sub>4</sub> 晶体为 a 轴切割的 3 mm×3 mm×50 mm 的单晶, 两端均进行光学级抛光, 但未镀膜, 基频光在 ZnWO<sub>4</sub> 晶体上形成的光斑直径为 285 μm。M4 为平凹镜, 凹面曲率半径为 500 mm, 凹面对波长为 1850~2100 nm 的光增反(反射率  $R > 99.5\%$ )且对波长为 2250~2580 nm 的光部分透射(透过率  $T = 10\%$ )。由于 2 μm 波段激光对水汽的吸收较强, 所以实验室使用两台抽湿机, 将相对湿度控制在 30%左右。为了增加晶体与散热器的接触面积, 提高散热效率, Tm:YLF 晶体与 ZnWO<sub>4</sub> 晶体用厚度为 0.1 mm 的铜片包裹, 并且采用紫铜热沉封装, 紫铜热沉内部采用微通道设计, 以提高散热效率, Tm:YLF 晶体、Q 开关晶体与 ZnWO<sub>4</sub> 晶体通过循环水进行温度控制, 水流温度使用循环水冷箱精确控制在 (20 ± 0.5) °C。整个谐振腔长度为 285 mm。

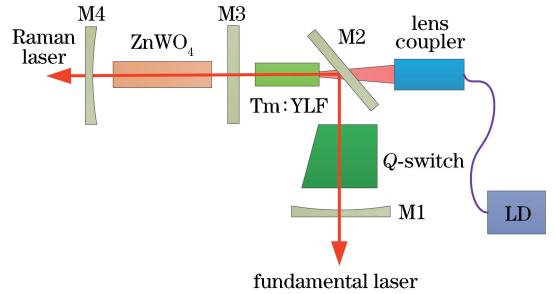


图 1 2294 nm ZnWO<sub>4</sub> 拉曼激光器实验装置

Fig. 1 Experiment setup for 2294 nm ZnWO<sub>4</sub> Raman laser

## 3 结果与讨论

拉曼晶体材料的拉曼谱线在拉曼激光器的设计过程中至关重要, 通过分析其拉曼谱线, 从而选择合适的抽运光波长, 通过拉曼频移量计算出拉曼激光器的理论输出波长, 由此确定激光器各个元件的镀膜参数。测试了实验所用的 ZnWO<sub>4</sub> 拉曼晶体的拉曼谱线, 如图 2 所示。实验上测试拉曼谱线使用的仪器型号为 JobinYvon-T64000 的拉曼光谱仪, 激发光源是波长为 514.5 nm 的 Ar-Kr 离子激光器。根据文献[11]的研究理论, ZnWO<sub>4</sub> 单晶的每个晶格包含 12 个原子, 并存在 36 个振动模式, 其中 8 个平行 ZnWO<sub>4</sub> 的结晶学主轴方向的拉曼振动模式(A<sub>g</sub>), 10 个垂直 ZnWO<sub>4</sub> 的结晶学主轴方向的拉曼振动模式(B<sub>g</sub>), 8 个红外振动模式(A<sub>u</sub>), 10 个声学

平移模式( $B_g$ )。图 2 的测试结果与文献[11]的理论相符合,在  $100 \sim 1800 \text{ cm}^{-1}$  范围内,  $906.7 \text{ cm}^{-1}$  所获得的振动模  $A_g$  最强,其他的振动模式在文献[12]中有详细的分析。

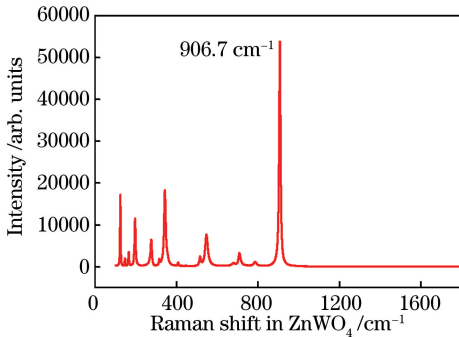


图 2  $a$  轴切割的  $\text{ZnWO}_4$  晶体的拉曼频移谱线

Fig. 2 Raman spectrum of  $\text{ZnWO}_4$  crystal

实验上采用的是耦合腔内腔抽运设计,激光器有两个输出端,分别输出基频激光与一阶斯托克斯激光。此种设计既可以充分利用谐振腔内部高功率抽运强度,又可以防止由于功率密度过高而损坏腔内元件。采取内腔耦合结构,可以利用腔内基频光的高功率密度,从而降低拉曼转换阈值,增大转换效率。对基频光进行输出,在实验调节上具有更直接的指导意义,同时腔内高功率密度的基频光得到一定的输出,使得腔更加稳定。经过仔细调校,最终得到了一阶斯托克斯拉曼激光,用格兰泰勒棱镜测试其偏振特性,其偏振度接近 1。

实验使用光谱仪(NIRQuest256-2.5,  $900 \sim 2500 \text{ nm}$ )来记录光谱数据。当调 Q 重复频率为  $3 \text{ kHz}$ ,  $793 \text{ nm}$  LD 的抽运功率为  $20 \text{ W}$  时,其光谱数据如图 3 所示。由图 3 可知,在 LD 抽运功率为  $20 \text{ W}$  时,基频激光的中心波长为  $1899 \text{ nm}$ ,拉曼激光的中心波长为  $2294 \text{ nm}$ ,经过计算,其拉曼频移量为  $906.959 \text{ cm}^{-1}$ ,与图 2 的  $A_g$  模式( $906.7 \text{ cm}^{-1}$ )相对应。

为了获得更高功率与更大转换效率的拉曼激光输出,实验测试了不同调 Q 重复频率下  $\text{ZnWO}_4$  拉曼激光器的输出特性。

图 4 所示为不同调 Q 重复频率下的基频光平均输出功率变化曲线。相同的重复频率下,随着抽运功率增大,基频光的平均输出功率逐渐增加。相同的抽运功率下,重复频率越高,基频光的平均输出功率越大。这主要是重复频率的增大导致拉曼晶体的转换效率降低,从而增加了基频光的输出功率。在  $793 \text{ nm}$  LD 抽运功率为  $34.2 \text{ W}$  时,重复频率为

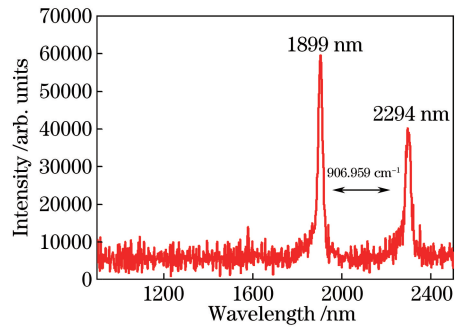


图 3  $\text{ZnWO}_4$  拉曼激光器的输出光谱

Fig. 3 Optical spectrum for  $\text{ZnWO}_4$  Raman laser

$3 \text{ kHz}$  与  $10 \text{ kHz}$  的基频光平均输出功率分别为  $1.218 \text{ W}$  和  $1.569 \text{ W}$ 。

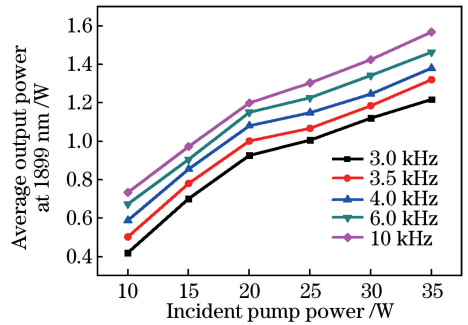


图 4 不同调 Q 重复频率下基频光的平均输出功率

Fig. 4 Average output power at  $1899 \text{ nm}$  as a function of incident pump power at different repetition frequencies

图 5 所示为不同调 Q 重复频率下的基频光平均脉冲宽度变化曲线,相同的抽运功率下,脉冲宽度随着抽运功率的增加而减小。更小的重复频率更有利于获得较小的脉冲宽度,对应腔内的峰值功率也会更高。相同抽运功率为  $34.2 \text{ W}$ ,重复频率为  $10 \text{ kHz}$  下基频光的脉宽为  $97.2 \text{ ns}$ ,而在重复频率为  $3.0 \text{ kHz}$  下基频光的脉宽仅为  $60.32 \text{ ns}$ 。

图 6 所示为不同调 Q 重复频率下  $2294 \text{ nm}$  的

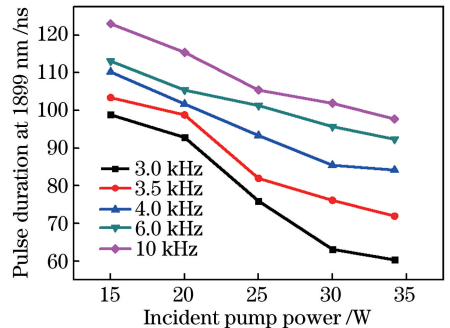


图 5 不同调 Q 重复频率下  $1899 \text{ nm}$  基频光的脉冲宽度

Fig. 5 Pulse width at  $1899 \text{ nm}$  as a function of incident pump power at different repetition frequencies

一阶斯托克斯激光平均输出功率与抽运功率的关系。在相同的调 Q 重复频率下,拉曼激光的平均输出功率随着抽运功率增加逐渐增加。当抽运功率增加至 34.2 W 时,拉曼激光的平均输出功率开始下降,功率曲线出现拐点。在调 Q 重复频率为 10 kHz 时,拉曼激光产生的阈值为 14.3 W,最大平均输出功率为 29.9 mW。而当重复频率为 3 kHz 时,阈值为 12.9 W,最大平均输出功率为 173 mW。这主要是因为随着抽运功率的增加,增益晶体内部的热透镜效应加剧,谐振腔不稳定,导致拉曼激光平均输出功率减小。在相同的抽运功率下,重复频率越低,一阶斯托克斯拉曼激光转化效率越高。低重复频率下,腔内的峰值功率更高,更有利于一阶斯托克斯拉曼激光的转换,同时发生拉曼转换的阈值也更低。

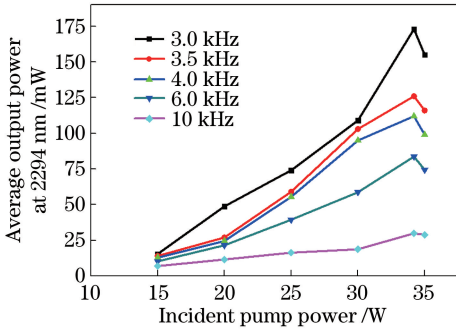


图 6 不同调 Q 重复频率下的 2294 nm 拉曼激光的平均输出功率

Fig. 6 Average output power at 2294 nm as a function of incident pump power at different repetition frequencies

图 7 所示为不同调 Q 重复频率下,2294 nm 的

一阶斯托克斯激光的脉冲宽度与抽运功率的关系。在相同的重复频率下,脉冲宽度随着抽运功率的增加而减小。相同的抽运功率下,重复频率越低,脉冲宽度越小。在抽运功率为 34.2 W,重复频率为 10 kHz 时,基频光的脉宽为 97.2 ns,拉曼光的脉宽为 7.674 ns。当抽运功率 34.2 W,重复频率为 3.0 kHz 时,基频光的脉宽分别为 60.32 ns,拉曼光的脉宽为 2.280 ns。由以上特性分析可知,当抽运功率为 34.2 W、重复频率为 3 kHz 时,拉曼激光器能获得最高峰值功率输出,此时的峰值功率为 25.292 kW。

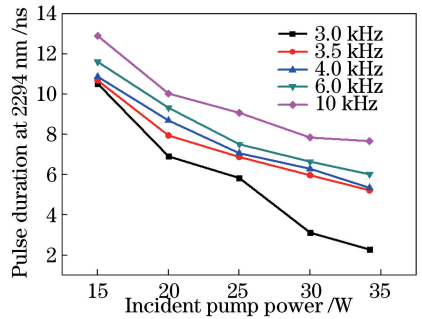


图 7 不同调 Q 重复频率下 2294 nm 拉曼激光的脉冲宽度  
Fig. 7 Pulse width at 2294 nm as a function of incident pump power at different repetition frequencies

当抽运功率为 34.2 W、重复频率为 3.0 kHz 时,基频激光与 2294 nm 一阶斯托克斯激光的脉冲形状如图 8 所示。此时基频光的脉宽为 60.32 ns,拉曼光的脉宽为 2.280 ns。拉曼光的脉冲宽度明显低于基频光的脉冲宽度,这主要是因为拉曼激光器具有压缩脉冲宽度的特性<sup>[13]</sup>。

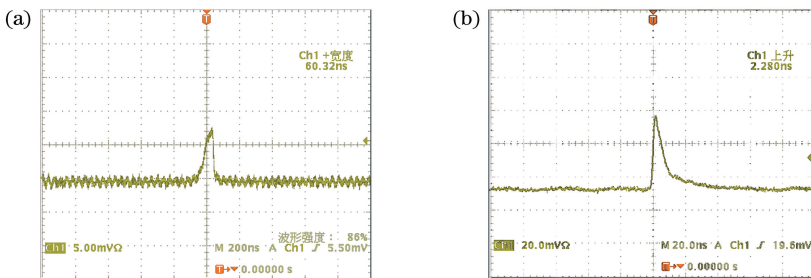


图 8 抽运功率为 34.2 W、重复频率 3 kHz 时的脉冲形状。(a)基频光;(b)一阶斯托克斯激光  
Fig. 8 Waveform of single pulse with pump power of 34.2 W and repetition frequency of 3 kHz.

(a) Fundamental frequency light; (b) first-order Stokes laser

## 4 结 论

搭建了基于 Tm:YLF 的内腔抽运 ZnWO<sub>4</sub> 拉曼固体激光器,实现了波长为 2294 nm 的 ZnWO<sub>4</sub> 的一阶斯托克斯激光输出,当抽运功率为 34.2 W,调

Q 重复频率为 3 kHz 时,ZnWO<sub>4</sub> 一阶斯托克斯拉曼激光最大平均输出功率为 173 mW,此时对应的脉宽为 2.280 ns,脉冲能量为 57.6 μJ,峰值功率达到 25.292 kW,实验上验证了 ZnWO<sub>4</sub> 晶体可以用作红外拉曼固体激光器的拉曼晶体。所研制的高峰值功

率 2294 nm 拉曼激光可用于红外遥感、气体分子探测与环境监测等领域。

## 参 考 文 献

- [1] Gaimard Q, Triki M, Nguyen-Ba T, *et al.* Distributed feedback GaSb based laser diodes with buried grating: a new field of single-frequency sources from 2 to 3  $\mu\text{m}$  for gas sensing applications [J]. *Optics Express*, 2015, 23(15): 19118-19128.
- [2] Koopmann P, Lamrini S, Scholle K, *et al.* Holmium-doped  $\text{Lu}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Y}_2\text{O}_3$ , and  $\text{Sc}_2\text{O}_3$  for lasers above 21  $\mu\text{m}$  [J]. *Optics Express*, 2013, 21(3): 3926-3931.
- [3] Zhao J Q, Li Y, Zhang S, *et al.* Diode-pumped actively Q-switched  $\text{Tm} : \text{YAP}/\text{BaWO}_4$  intracavity Raman laser [J]. *Optics Express*, 2015, 23(8): 10075-10080.
- [4] Jiao Z X, He G Y, Guo J, *et al.* High average power 2  $\mu\text{m}$  generation using an intracavity PPMgLN optical parametric oscillator [J]. *Optics Letters*, 2012, 37(1): 64-66.
- [5] Stievater T H, Mahon R, Park D, *et al.* Mid-infrared difference-frequency generation in suspended GaAs waveguides [J]. *Optics Letters*, 2014, 39(4): 945-948.
- [6] Pask H M. The design and operation of solid-state Raman lasers [J]. *Progress in Quantum Electronics*, 2003, 27(1): 3-56.
- [7] Pask H M, Dekker P, Mildren R P, *et al.* Wavelength-versatile visible and UV sources based on crystalline Raman lasers [J]. *Progress in Quantum Electronics*, 2008, 32(3/4): 121-158.
- [8] Zhang X L, Ding Y, Qiao Y, *et al.* Diode-end-pumped efficient 2533 nm intracavity Raman laser with high peak power [J]. *Optics Communications*, 2015, 355: 433-437.
- [9] Zhao J Q, Zhang X L, Guo X, *et al.* Diode-pumped actively Q-switched  $\text{Tm}$ ,  $\text{Ho} : \text{GdVO}_4/\text{BaWO}_4$  intracavity Raman laser at 2533 nm [J]. *Optics Letters*, 2013, 38(8): 1206-1208.
- [10] Kuzucu O. Watt-level, mid-infrared output from a  $\text{BaWO}_4$  external-cavity Raman laser at 2.6  $\mu\text{m}$  [J]. *Optics Letters*, 2015, 40(21): 5078-5081.
- [11] Wang X, Fan Z, Yu H H, *et al.* Characterization of  $\text{ZnWO}_4$  Raman crystal [J]. *Optical Materials Express*, 2017, 7(6): 1732-1744.
- [12] Liu Y, Wang H, Chen G, *et al.* Analysis of Raman spectra of  $\text{ZnWO}_4$  single crystals [J]. *Journal of Applied Physics*, 1988, 64(9): 4651-4653.
- [13] Band Y B, Ackerhalt J R, Krasinski J S, *et al.* Intracavity Raman lasers [J]. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 1989, 25(2): 208-213.