# 蓝光二极管抽运掺镨氟化钇锂晶体 腔内倍频 348.9 nm 紫外激光器

牛娜1\*, 曲大鹏1, 窦微1, 任广胜1, 周阳1, 夏磊1, 吕敏航1, 郑权1,2

1长春新产业光电技术有限公司, 吉林 长春 130012;

2中国科学院长春光学精密机械与物理研究所, 吉林 长春 130033

摘要 设计了蓝光二极管抽运掺镨氟化钇锂(Pr:YLF)腔内倍频 348.9 nm 紫外激光器。激光器采用 Z 型折叠腔 结构,利用 45°合光片将抽运功率为 1.4 W 的 444 nm 蓝光和抽运功率为 1.5 W 的 469 nm 蓝光进行激光二极管合 光,并将其作为抽运源,抽运长度为 5 mm、掺杂浓度(质量分数)为 0.5%的 Pr:YLF 晶体。将 I 类相位匹配的三硼酸 锂作为倍频晶体,通过优化谐振腔镜膜系和腔型设计,在抽运功率最大时,获得了最大输出功率为132.2 mW、中心 波长为 348.9 nm 的连续紫外光输出,抽运光到紫外光的光-光转换效率约为 4.5%。

关键词 激光器;紫外激光器;掺镨氟化钇锂晶体;蓝光激光二极管 中图分类号 TN248.1 **文献标识码** A

doi: 10.3788/CJL201845.1201003

# 348.9 nm Intra-Cavity Frequency-Doubling Ultraviolet Laser in Blue Laser Diode Pumped Pr: YLF Crystal

Niu Na<sup>1\*</sup>, Qu Dapeng<sup>1</sup>, Dou Wei<sup>1</sup>, Ren Guangsheng<sup>1</sup>, Zhou Yang<sup>1</sup>, Xia Lei<sup>1</sup>, Lü Minhang<sup>1</sup>, Zheng Quan<sup>1,2</sup>

<sup>1</sup>Changchun New Industries Optoelectronics Technology Co., Ltd., Changchun, Jilin 130012, China; <sup>2</sup>Changchun Institute of Optics, Fine Mechanics and Physics, Chinese Academy of Sciences, Changchun, Jilin 130033, China

**Abstract** A 348.9 nm intra-cavity frequency-doubling ultraviolet laser in blue laser diode pumped Pr: YLF crystal is designed, in which a Z-folded cavity structure is adopted. A 444 nm blue laser diode with pump power of 1.4 W and a 469 nm blue laser diode with pump power of 1.5 W obtained are combined by a  $45^{\circ}$  combiner film as a pump laser for the Pr: YLF crystal which has a length of 5 mm and a doping concentration (mass fraction) of 0.5%. In addition, the type I phase-matched LBO crystal is chosen for frequency-doubling. By optimizing the resonator mirror coating and structural design, we achieve a continuous ultraviolet laser output with a maximum power of 132.2 mW, a central wavelength of 348.9 nm, and an optical-to-optical conversion efficiency of 4.5% when pump power is the maximum.

Key wordslaser; ultraviolet laser; Pr: YLF crystal; blue laser diodeOCIS codes140.3480; 140.3580; 140.7300

## 1引言

紫外激光具有波长短、聚焦性能好、光子能量高 且可进行冷处理等特点,能激发特定的光化学反应, 在光数据存储、光谱分析、光盘控制、光化学反应、大 气探测、工业加工<sup>[1]</sup>、生物、医学及科研领域<sup>[2]</sup>都有 着广泛的应用。紫外激光器可分为固体紫外激光器、 器、气体紫外激光器和半导体紫外激光器。利用激 光二极管(LD)抽运的全固态激光器相较于其他类型 的激光器而言,具有效率高、性能可靠、硬件结构简单 的特点,因此应用最为广泛<sup>[3]</sup>。通常实现紫外连续激 光输出的方法是利用晶体材料的非线性效应实现变

收稿日期: 2018-07-12; 修回日期: 2018-08-01; 录用日期: 2018-08-07

基金项目: 长春市科技计划(16SS18)

<sup>\*</sup> E-mail: niuna@cnilaser.com

频,先利用倍频技术得到二次谐波,然后再利用和频 或倍频技术得到紫外激光。但是,这种方式需要经历 两次频率转换过程,光-光转换效率大幅降低。

三价镨离子(Pr<sup>3+</sup>)作为一种可以直接通过下转 换实现可见光输出的稀土元素离子而备受关 注<sup>[4-10]</sup>,其能级跃迁可以产生数种颜色的可见光,包 括深红色(约 695 nm 和 720 nm)、红色(约 640 nm)、橙色(约 605 nm)、绿色(约 522 nm)和蓝 色(约 490 nm)。同时,Pr<sup>3+</sup>的出现也使通过一次频 率转换获得紫外光的方法成为可能。掺镨氟化钇锂 (Pr:YLF)晶体被认为是所有 Pr<sup>3+</sup>掺杂氟化物中最 有前途的一种晶体<sup>[11]</sup>。近年来,国内外通过一次倍 频 Pr:YLF 来获得连续紫外光的方法相继被报道。

2006年,Richter等<sup>[12]</sup>使用光泵半导体激光器 作为抽运源并采用折叠腔,通过抽运 Pr:YLF 晶体 获得了639.5 nm 的基频光,再通过三硼酸锂(LBO) 晶体倍频获得了 320 nm 的紫外光,其功率为 19 mW。2007年,该课题组采用更高输出功率 (1.6 W)的光泵半导体(OPS)抽运 Pr<sup>3+</sup>:YLF 激光 器,采用 LBO 晶体腔内倍频获得最高功率为 364 mW的 320 nm 紫外激光输出,抽运光到紫外光 的转换效率达 22%。同年, Ostoumov 等<sup>[13]</sup>采用输 出功率为 5.3 W 的 OPS 抽运 Pr<sup>3+</sup>:YLF,成功获得 输出功率为 1.3 W、波长为 360 nm 的激光输出,抽 运光到紫外光的光-光转换效率约为 28.9%:采用 V-tpye 结构,得到 522 nm 处的输出功率达2.5 W, 倍频后获得功率为 620 mW 的 261 nm 紫外输出, 整体的光-光转换效率约为 12.4%[14]。2008 年, Ostoumov 等<sup>[15]</sup>采用 Z 型腔结构,利用两个功率为 5.3 W的 OPS 抽运 Pr<sup>3+</sup>: YLF 晶体,得到261 nm处 的输出功率达1W。目前,关于利用 Pr: YLF 晶体 腔内倍频获得261,320,360 nm 连续紫外光的报道 较多,且输出功率不断被提升,而 349 nm 作为 Pr: YLF 晶体的一条弱谱线倍频光,因获得的难度较大 而鲜有报道。2013年,Liu等<sup>[16]</sup>采用一个最大输出 功率为 830 mW 的蓝光 LD 端面抽运 Pr: YLF 晶体 和偏硼酸钡晶体腔内倍频的方式获得了最高功率为 33 mW的 349 nm 的紫外光,抽运光到紫外光的光-光转换效率约为3.9%。

本文将两个不同波长的蓝光二极管合光后作为 抽运源,将 349 nm 连续紫外光功率提升到 132.2 mW,同时将抽运光到紫外光的光-光转换效 率提升至 4.5%,为一些生物、光学等领域对紫外光 吸收带较窄的物质研究提供了实验基础。

## 2 实验研究

#### 2.1 实验装置

将德国 OSRAM 公司生产的抽运功率为 1.4 W 和 1.5 W、中心波长为 444 nm 和 469 nm 的两个蓝 光 LD 合光作为抽运源,对国产 Pr:YLF 晶体进行 端面抽运,激光器采用 Z 型折叠腔结构,腔内采用 LBO 晶体进行频率转换,实验装置如图 1 所示。



图 1 实验装置示意图

Fig. 1 Schematic of experimental setup

Pr:YLF 晶体在蓝光波段(444,469,479 nm)存 在三条比较大的吸收谱,如图2所示。随着蓝光LD 的成熟化与商业化,采用蓝光二极管作为抽运源比 较普遍,但限于蓝光二极管的单管功率不高,抽运功 率还没有提升上来。此外, Pr: YLF 晶体对光的吸 收存在偏振特性,对π偏振方向抽运光的吸收最强, 所以采用多个二极管光纤耦合后抽运 Pr:YLF 晶体 时,由于光纤耦合造成抽运光偏振特性下降,会进一 步降低 Pr: YLF 晶体对抽运光的吸收效率。将两个 波长不同的 LD 进行空间合光后作为抽运源,一方 面提高了整体抽运功率,另一方面可以保留抽运光 的偏振特性,提高晶体吸收效率。这种采用两种波 长合光并保留偏振特性的合光技术更具有实用价 值。实验中选择的是德国 OSRAM 公司生产的功 率为 1.4 W、波长为 444 nm 和功率为 1.5 W、波长 为 469 nm 的蓝光 LD,固定二极管时均将其方向调 整为π偏振方向,使 Pr:YLF 晶体对抽运光的吸收 效率最高。两个 LD 分别采用焦距 f = 4.2 mm 的单 透镜准直,然后利用实验室自镀膜的 45°合光片(对 444 nm 高透射,对 469 nm 高反射)将两束抽运光合 在一条光路中,将其作为抽运源。合束后的光斑尺 寸约为 4.3 mm×1.3 mm,然后通过焦距为 12 mm 的平凸镜将抽运光聚焦到 Pr:YLF 晶体上。

激光工作物质采用 Pr:YLF 晶体,尺寸为 3 mm×3 mm×5 mm,Pr<sup>3+</sup>的掺杂浓度(质量分数)



图 2 Pr: YLF 晶体偏振吸收谱

Fig. 2 Polarized absorption spectra of Pr: YLF crystal

为 0.5%,端面镀对 444~469 nm 抽运光高透射、对 698 nm 基频光高反射的膜,将该膜作为腔镜使用, 另一面镀对 444~469 nm 和 698 nm 抽运光高透射 的膜。倍频晶体选择 LBO(I 类相位匹配,两个切割 角度分别为: $\theta = 90^{\circ}$ 和  $\varphi = 43.8^{\circ}$ ),晶体长度为 10 nm,LBO 双面抛光未镀膜。Pr:YLF 晶体和 LBO 晶体分别固定在铜制机械件中进行热传导散 热,并通过热电冷却器精确控温。

实验系统采用 Z 型折叠腔结构,这种结构对谐 振腔内光斑设计更灵活,可以兼顾工作物质和频率 变换晶体处的基频光光斑直径,从而可提高光-光转 换效率。腔镜 M<sub>1</sub> 和 M<sub>2</sub> 是曲率半径为 200 mm 的 凹面镜,M<sub>1</sub> 表面镀对 698 nm 抽运光高反射的膜; 输出镜 M<sub>2</sub> 表面镀对 698 nm 抽运光高反射、对 349 nm抽运光高透射的膜,全反镜 M<sub>3</sub> 是曲率半径 为 600 mm 的凹面镜,表面镀对 698 nm 和 349 nm 抽运光高反射的膜,腔镜 M<sub>1</sub>、M<sub>2</sub> 和 M<sub>3</sub> 表面还镀有 Pt(在 600~640 nm和 720 nm 处部分透过)。选择 谐振腔臂长 $L_1$ =75 mm, $L_2$ =75 mm, $L_3$ =45 mm, 如图 3 所示。用 Matlab 软件模拟可得 Pr:YLF 晶 体处光腰直径 ω<sub>1</sub>约为 150 μm,LBO 晶体处光腰直 径 ω<sub>2</sub> 约为 120 μm。





Fig. 3 Spot diameters at different positions within resonator cavity

#### 2.2 实验结果及分析

当抽运源电流最大时,抽运光经准直镜和合光 片后抽运长度为 5 mm、掺杂浓度为 0.5%的 Pr: YLF 晶体,测试得到经聚焦镜(f = 12 mm)后 Pr: YLF 晶体对444 nm 抽运光的吸收功率约为 1.1 W, 对 469 nm 抽运光的吸收功率约为 1 W。由测量得 到的 Pr: YLF 晶体吸收前后的 LD 功率可知,该实 验系统对 1.4 W 的 444 nm LD 的吸收效率约为 82%,对 1.5 W 的 469 nm LD 的吸收效率约为 65%。分析得到的 Pr: YLF 晶体对抽运光的吸收效 率较高 的 原 因 主要 有 两 方 面: 1) 采 用 的 德 国 OSRAM 公司生产的 LD 的偏振性较好,在固定 LD 时考虑 Pr: YLF 晶体的偏振吸收特性,使 LD 输出 光方向与  $\pi$  偏振方向相吻合; 2)采用的低功率 LD 线宽较窄,通过温度调节可使 LD 波长与 Pr: YLF 晶体的吸收峰相吻合。

按照所设计的腔型搭建光路,调试中发现谐振 腔对镜片膜系较敏感,720 nm 基频光的谱线强度 易超过 698 nm 的谱线强度,导致激光器输出 360 nm紫外光。图 4 为采用海洋光学高精准测量 仪器 HR4000 测得的 Pr:YLF 晶体的荧光曲线,可 以看出 720 nm 谱线距离 698 nm 谱线较近且强度 约为 698 nm 谱线的 1.6 倍。要想获得单一波长的 698 nm 基频光,需要抑制增益较强的 607,640, 720 nm附近的谱线。由于 607 nm、640 nm 谱线距 离 698 nm 较远,所以在单镜镀膜时,其透过率大于 80%;而 720 nm 谱线距离 698 nm 谱线相对较近, 所以在 720 nm 谱线处实现高透难度很大。通过这 种三镜结构的折叠腔,可以将 720 nm 谱线的透过 率分散在三个镜片上,从而降低镀膜难度。



图 4 Pr: YLF 晶体的荧光谱线

Fig. 4 Fluorescence spectrum of Pr: YLF crystal

实验时,选择在 Pr: YLF 晶体端面一侧镀对 698 nm抽运光高反射的膜,不考虑对其他谱线的抑 制,在全反镜  $M_1$ 、 $M_2$ 和  $M_3$ 上镀对 720 nm 和607~ 640 nm部分透过的膜。经过多次镀膜和调试,当全 反镜整体对 720 nm 抽运光的透过率约为 6%、对 640 nm 抽运光的透过率大于 80%时获得较理想的 效果。此外,针对 348.5 nm 抽运光,对 LBO 晶体定 制切割角度  $\theta$ =90°, $\varphi$ =43.8°,也可对波长选择有一 定的帮助。仔细调节 LBO 晶体角度,测试得到谱线 中心波长为 348.9 nm,如图 5 所示。用 Spiricon 轮 廓分析仪测得光斑的二维和三维成像如图 6 所示, 光束呈高斯分布,光斑椭圆度可达 0.922。



Fig. 5 Spectrum of 348.9 nm UV laser



图 6 348.9 nm 紫外光轮廓。(a)二维成像图;(b)三维成像图 Fig. 6 348.9 nm ultraviolet laser profile. (a) Twodimensional image; (b) three-dimensional image

利用美国 Coherent 公司的 PS19Q 型功率计测 试功率,在1.4 W的 444 nm 和 1.5 W 的 469 nm 两 个蓝光 LD 最大抽运功率下,获得了最大输出功率 为132.2 mW的紫外光,抽运光到紫外光的光-光转 换效率约为4.5%。根据实验测试结果,将激光器的 输出特性曲线进行拟合,如图 7 所示。在最大抽运 功率时,测得激光器的 2 h 功率稳定性为 1.83 %, 测试结果如图 8 所示。



图 7 348.9 nm 激光的输出功率随吸收的抽运功率的变化 Fig. 7 Output power versus absorbed pump power for 348.9 nm laser



### 3 结 论

光

采用 Z 型折叠腔结构,研究了双蓝光二极管合 光抽运 Pr:YLF 晶体腔内倍频的全固态连续紫外激 光器。通过优化腔镜膜系设计及腔长,用 Matlab 软 件模拟获得了 Pr:YLF 晶体处的束腰直径约为 150  $\mu$ m,LBO 晶体处的束腰直径约为 120  $\mu$ m。在 1.4 W 的444 nm和 1.5 W 的 469 nm 两个蓝光 LD 最大抽运功率下,获得了最大功率为 132.2 mW 的 连续紫外光输出,抽运光到紫外光的光-光转换效率 约为 4.5%。实验测试得到光谱谱线的中心波长为 348.9 nm,光斑椭圆度为 0.992。在最大抽运功率下 连续测量 2 h后,得到输出紫外光的功率稳定性为 1.83%。

#### 参考文献

- [1] 聂明明,江业文,陆富源,等.《制造用紫外激光器》
   项目简介[J].激光与光电子学进展,2017,54(12):
   123601.
- [2] Wu D C, Wei B, Tang G, et al. Turbidity disturbance compensation for UV-VIS spectrum of waterbody based on Mie scattering [J]. Acta Optica Sinica, 2017, 37(2): 0230007.
  吴德操,魏彪,汤戈,等.基于 Mie 散射的水体紫外-可见光谱浊度干扰补偿 [J].光学学报, 2017, 37 (2): 0230007.
- [3] Liu Q, Yan X P, Chen H L, et al. New progress in high-power all-solid-state ultraviolet laser[J]. Chinese Journal of Lasers, 2010, 37(9): 2289-2298.
  柳强, 闫兴鹏,陈海龙,等.高功率全固态紫外激光 器研究新进展[J]. 中国激光, 2010, 37(9): 2289-2298.
- [4] Richter A, Heumann E, Osiac E, et al. Diode pumping of a continuous-wave Pr<sup>3+</sup>-doped LiYF<sub>4</sub> laser[J]. Optics Letters, 2004, 29(22): 2638-2640.
- [5] Richter A, Heumann E, Huber G, et al. Power scaling of semiconductor laser pumped praseodymium-lasers [J]. Optics Express, 2007, 15 (8): 5172-5178.

- [6] Cornacchia F, Richter A, Heumann E, et al. Visible laser emission of solid state pumped LiLuF<sub>4</sub> : Pr<sup>3+</sup>
   [J]. Optics Express, 2007, 15(3): 992-1002.
- [7] Cornacchia F, Di Lieto A, Tonelli M, et al. Efficient visible laser emission of GaN laser diode pumped Prdoped fluoride scheelite crystals[J]. Optics Express, 2008, 16(20): 15932-15941.
- [8] Gün T, Metz P, Huber G, et al. Power scaling of laser diode pumped Pr<sup>3+</sup>:LiYF<sub>4</sub> cw lasers efficient laser operation at 522.6, 545.9, 607.2, and 639.5 nm[J]. Optics Letters, 2011, 36(6): 1002-1004.
- [9] Xu B, Camy P, Doualan J L, et al. Visible laser operation of Pr<sup>3+</sup>-doped fluoride crystals pumped by a 469 nm blue laser[J]. Optics Express, 2011, 19(2): 1191-1197.
- [10] Huang S L, Liu Z, Zeng C H, et al. Blue laser diode pumped Pr: YLF green laser[J]. Chinese Journal of Lasers, 2012, 39(12): 1202005.
  黄舜林,刘哲,曾承航,等. 蓝光激光二极管抽运 Pr: YLF绿光激光器[J]. 中国激光, 2012, 39(12): 1202005.
- [11] Liu Z, Cai Z P, Huang S L, *et al*. Diode-pumped  $Pr^{3+}$ : LiYF<sub>4</sub> continuous-wave deep red laser at

698 nm[J]. Journal of the Optical Society of America B, 2013, 30(2): 302-305.

- [12] Richter A, Pavel N, Heumann E, et al. Continuouswave ultraviolet generation at 320 nm by intracavity frequency doubling of red-emitting praseodymium lasers[J]. Optics Express, 2006, 14(8): 3282-3287.
- [13] Ostroumov V, Seelert W, Hunziker L, et al. UV generation by intracavity frequency doubling of an OPS-pumped Pr:YLF laser with 500 mW of cw power at 360nm [J]. Proceedings of SPIE, 2007, 6451: 645103.
- Ostroumov V, Seelert W, Hunziker L, et al. 522/ 261 nm cw generation of Pr: YLF laser pumped by OPS laser [J]. Proceedings of SPIE, 2007, 6451: 645104.
- [15] Ostroumov V, Seelert W. 1 W of 261 nm cw generation in a Pr<sup>3+</sup> : LiYF<sub>4</sub> laser pumped by an optically pumped semiconductor laser at 479nm[J]. Proceedings of SPIE, 2008, 6871: 68711K.
- [16] Liu Z, Cai Z P, Xu B, et al. Continuous-wave ultraviolet generation at 349 nm by intracavity frequency doubling of a diode-pumped Pr:LiYF<sub>4</sub> laser [J]. IEEE Photonics Journal, 2013, 5(4): 1500905.