

# 基于氙气受激拉曼散射的 1.6 $\mu\text{m}$ 波段大能量脉冲激光研究

蔡向龙<sup>1,2</sup>, 李仲慧<sup>3</sup>, 刘栋<sup>2</sup>, 王鹏远<sup>2</sup>, 陈莹<sup>2</sup>, 刘金波<sup>2</sup>, 石晶<sup>1</sup>, 王婷婷<sup>1</sup>, 蔡红星<sup>1\*</sup>, 郭敬为<sup>2\*\*</sup>

<sup>1</sup>长春理工大学理学院, 吉林 长春 130022;

<sup>2</sup>中国科学院大连化学物理研究所中国科学院化学激光重点实验室, 辽宁 大连 116023;

<sup>3</sup>无锡中科光电技术有限公司, 江苏 无锡 214115

**摘要** 采用 1064 nm 脉冲激光作为泵浦光, 通过高压氙气的受激拉曼散射变频实现 1.56  $\mu\text{m}$  拉曼激光输出, 并建立了计算受激拉曼散射与聚焦特征之间关系的模型, 实现了对实验工作的指导。采用两次聚焦的设计, 通过氙气气压以及聚焦参数等变量的优化, 实现最高 82.4% 的光子转换率。为了提高 1.56  $\mu\text{m}$  拉曼激光的单脉冲能量, 采用降低气压、提高泵浦光脉冲能量等方式, 实现了最高 245 mJ 的脉冲能量, 并通过倍频实现了 780 nm 激光输出, 从而获得一种产生 780 nm 波长高峰值功率脉冲激光的方法。

**关键词** 激光物理; 脉冲激光; 受激拉曼散射; 氙气; 转换率

中图分类号 TN 248

文献标志码 A

DOI: 10.3788/CJL202249.1101001

## 1 引言

1.6  $\mu\text{m}$  波段是激光的重要大气传输窗口, 适合远距离传输方面的应用, 因此常被用作测量气溶胶激光雷达的光源<sup>[1]</sup>。1.6  $\mu\text{m}$  激光处于人眼的安全波段<sup>[2]</sup>, 因此它用于激光测距要比常规的 1064 nm 激光测距仪更为安全。激光的脉冲能量(或平均功率)是决定这类仪器有效测量距离的重要参数, 因此产生具有大脉冲能量的 1.6  $\mu\text{m}$  波段激光的需求迫切。产生大脉冲能量 1.6  $\mu\text{m}$  波段激光的方法比较多, 例如 976 nm 二极管泵浦或者 1470/1532 nm 同带光源泵浦低浓度掺杂的 Er: YAG 可以实现 1617 nm 和 1645 nm 激光输出<sup>[3-4]</sup>。976 nm 二极管泵浦的量子亏损比较大, 热管理难度较大; 同带泵浦 Er: YAG 具有非常高的效率和光束质量, 但是 1470/1532 nm 光源的成本远远高于常规 0.8 ~ 1  $\mu\text{m}$  波段的二极管激光, 而且功率范围比较窄。1.6  $\mu\text{m}$  波段激光可以采用多种类型的频率变换方法获得, 例如利用比较成熟的 Nd: YAG 激光泵

浦 KTP、PPLN 等非线性晶体的光学参量过程<sup>[5-6]</sup>, 以及通过氙气或者甲烷气体在自由空间的一阶拉曼转换<sup>[7-8]</sup>、氙气在空芯光纤内的一阶拉曼转换<sup>[9-11]</sup>、固体拉曼介质<sup>[12]</sup>或者光纤<sup>[13]</sup>的高阶拉曼转换都可以实现 1.6  $\mu\text{m}$  波段拉曼激光输出。通过固体拉曼介质和普通光纤拉曼转换的方法具有较低的阈值和较高的转换率, 但是拉曼频移比较小, 频移量在 1000  $\text{cm}^{-1}$  量级甚至更低, 通常需要高阶斯托克斯拉曼转换才能获得大范围拉曼频移, 实现 1.6  $\mu\text{m}$  波段激光输出; 同时受到损伤阈值等条件限制, 通过固体拉曼介质和普通光纤拉曼转换的方法更适用于高重复频率(低脉冲能量)或者连续波激光的变频输出。气体拉曼介质的增益系数比较小, 因此阈值更高, 且气体的损伤阈值也远高于固体和光纤, 因此通过气体介质转换的方法更适用于大脉冲能量(高峰值功率)的拉曼激光的产生。甲烷和氙气都是常用的增益系数比较大的拉曼活性气体介质, 两者具有比较接近的拉曼频移(分别为 2917  $\text{cm}^{-1}$  和 2987  $\text{cm}^{-1}$ ), 若以

收稿日期: 2021-08-27; 修回日期: 2021-09-15; 录用日期: 2021-11-11

基金项目: 国家自然科学基金(22073101, 62005282)

通信作者: \*ciomsz@126.com; \*\*jingweigu@dicp.ac.cn

1064 nm 激光为泵浦光,可以分别产生波长为 1.54  $\mu\text{m}$  和 1.56  $\mu\text{m}$  的拉曼激光。虽然氙气的价格远高于甲烷,但是氙气比甲烷更为稳定,不会像甲烷那样在强激光下分解产生炭黑;氙气分子量远小于甲烷,从而具有更好的对流冷却效果,因此可以获得更高重复频率的拉曼激光;另外,氙气的前、后向拉曼激光增益系数差别很大,不存在前、后向受激拉曼输出能量竞争的问题。因此,对于大脉冲能量(10 Hz 量级重复频率)的拉曼激光输出,氙气是比甲烷更合适的选择。

本文主要研究在双次聚焦条件下 1064 nm 激光泵浦氙气的受激拉曼效应,发现氙气气压、聚焦条件、泵浦激光脉冲能量(峰值功率)对于拉曼转换率都有影响,并获得最高 82.4% 的 S1(一阶斯托克斯)拉曼光子转换率。高阶拉曼效应的产生以及激光诱导击穿的作用,造成大脉冲能量(高功率)激光泵浦时转换率下降,因此采用较低氙气气压和增加激光束腰尺寸等方式来提高拉曼激光的脉冲能量,并且获得最高能量为 245 mJ 的 1.6  $\mu\text{m}$  波段激光。所提方法具有非常好的能量和重复频率定标放大性,适用于高平均功率拉曼激光的产生。

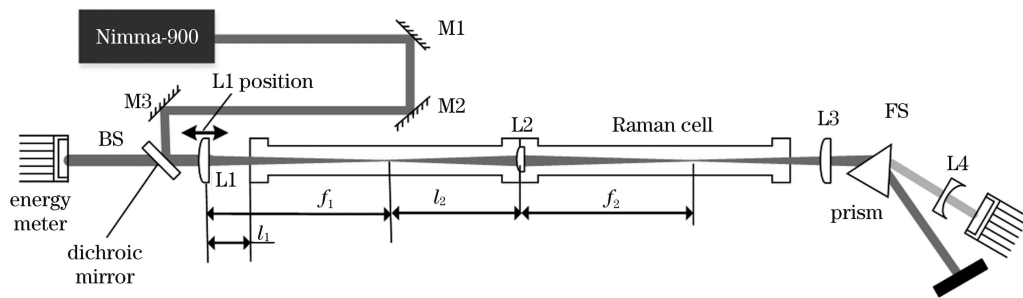


图 1 实验装置示意图

Fig. 1 Optical schematic of experimental setup

### 3 实验结果与讨论

图 2(a)、(b)所示为 S1 拉曼激光光子转换率随着氙气气压以及泵浦光脉冲能量(峰值功率)的变化曲线,其中点代表实验数据,竖直方向的线代表该数据点 30 次平均的误差棒(采用 PTP 方法统计)。氙气气压的变化范围为 0.5~3.5 MPa。同一气压下数据点的连线主要是为了方便追踪 S1 转换率随着泵浦脉冲能量的变化规律。0.5 MPa 氙气对应的 S1 拉曼阈值约为 165 mJ (脉冲的瞬时功率为 16.5 MW);当氙气气压增大到 1.0 MPa 时,S1 拉曼阈值降低至约 110 mJ (11 MW);当氙气气压增大到 1.5 MPa 时,S1 拉曼阈值降低至约 80 mJ (8 MW)。

## 2 实验装置

实验装置如图 1 所示,泵浦激光光源采用镱宝光电生产的 Nimma-900 Nd:YAG 固体激光器,其输出激光波长为 1064 nm,激光器出口光斑直径为 8 mm,最大输出能量为 900 mJ,脉宽(半峰全宽)约为 10 ns,重复频率为 10 Hz。M1、M2、M3 为 1064 nm 高反镜;dichroic mirror 是 1064 nm 高反和 1560 nm 增透的二向色镜,用于后向拉曼激光能量的测量。L1、L2、L3 为 JGS1 石英凸透镜:L1 的焦距为 150 cm;L2 的焦距为 50 cm,并且镀有 1064 nm 和 1560 nm 双波长增透膜;L3 的焦距为 100 cm。L4 为短焦负透镜,用于扩大光束口径,避免由激光峰值功率密度过高造成的能量计探头损伤。拉曼池由两个 200 cm 长的拉曼池连接而成,内部充 0.5~3.5 MPa 高纯度氙气。光束经 L1 在拉曼池中聚焦形成第一个焦点,经过放置在两个拉曼池连接处的 L2 在拉曼池内形成第二个焦点,再经过 L3 准直成准平行光。该平行光经过棱镜分光后可用于测量拉曼激光脉冲能量。L1 距离拉曼池入口的距离可调,其初始位置为距拉曼池窗口 59 cm,第一个焦点在第一个拉曼池中心,第二焦点在第二个拉曼池中心。

氙气气压进一步增加到 2 MPa 甚至更高时,S1 拉曼阈值略有降低,但是变化不明显,说明氙气 S1 受激拉曼增益系数在 2 MPa 氙气气压下就达到最大值,此后随着气压的增加,增益系数几乎不再增大。为了比较两次聚焦与常规单次聚焦的差别,图 2(c)给出了焦距  $f=150$  cm 透镜单次聚焦和 3 MPa 氙气气压下两次聚焦的 S1 拉曼光子转换率随着泵浦激光脉冲能量的变化曲线。可以看到,单次聚焦时受激拉曼阈值高达 125 mJ,明显高于 3 MPa 氙气气压下两次聚焦的受激拉曼阈值,充分说明两次聚焦具有非常明显的降低阈值的作用。此外,单次聚焦的最高 S1 转换率约为 43%,而两次聚焦(3 MPa)条件下的最高转换率约为 54%,明显高于单次聚焦的转换率。

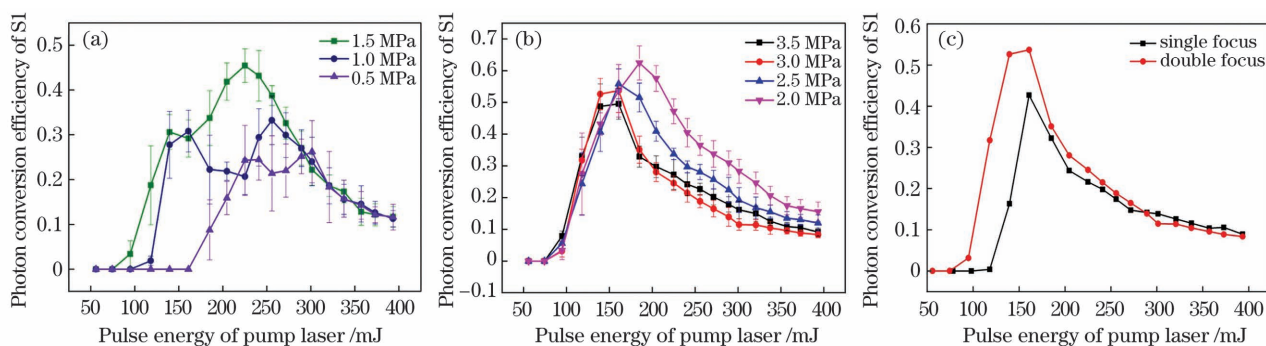


图 2 S1 拉曼激光的光子转换率随氘气气压以及泵浦光脉冲能量(峰值功率)的变化曲线。(a)氘气气压为 0.5~1.5 MPa; (b)氘气气压为 2.0~3.5 MPa;(c)氘气气压为 3 MPa 时两次聚焦与  $f=1500$  mm 透镜单次聚焦条件下的转换率曲线对比  
Fig. 2 Photon conversion efficiency of the first Stokes (S1) Raman laser under different deuterium gas pressures and pulse energies (peak power) of pump light. (a) Deuterium gas pressure of 0.5–1.5 MPa; (b) deuterium gas pressure of 2.0–3.5 MPa; (c) comparison of photon conversion efficiency curves between double focus with deuterium gas pressure of 3 MPa and single focus with focal length of 1500 mm

S1 转换率的影响因素较多,相对比较复杂,它既受 S1 拉曼增益系数的影响,也受高级拉曼竞争的影响。从图 2(a)可以看到:在 0.5 MPa 氘气气压条件下,S1 转换率在 301 mJ 泵浦光时达到最大值 26.2%;当氘气气压增加到 1.0 MPa 时,S1 转换率在 256 mJ 时达到最大值 33.2%;当氘气气压增加到 1.5 MPa 时,S1 转换率在 225 mJ 时达到最大值 45.4%。从图 2(b)可以看到,当氘气气压增加到 2.0 MPa 时,S1 转换率在 185 mJ 时达到最大值 62.4%。综上所述,在 0.5~2.0 MPa 范围内,随着气压的增加,达到最大转换率的泵浦脉冲能量降低,同时最大转换率不断提高。这与 S1 拉曼增益系数随氘气气压的变化规律基本一致。当气压进一步增大时,最高转换率明显下降,这应该是由高阶斯托克斯拉曼激光的竞争造成的<sup>[14]</sup>。

图 2(a) 所示的在 0.5~1.5 MPa 氘气气压范围内受激拉曼散射产生的阈值与转换效率上升沿曲线的斜率特征验证了文献[15]中报道的规律,即稳态受激拉曼散射条件下气体压强(浓度)越高,增益系数越大,表现为:气压升高,阈值降低,转换效率曲线的斜率变大。如图 2(b)所示,当氘气气压在 2.0~3.5 MPa 之间变化时,受激拉曼阈值与转换效率曲线的斜率相近,符合在气压大于 2 MPa 条件下氘气受激拉曼增益系数随气压的增加趋于一个定值的规律。进一步挖掘图 2(b)所示的实验结果,可以发现不同的气压条件下转换效率曲线上升段的斜率有微小差别,气压越高,增益越占优势,此现象与前文的气压在 2 MPa 以上,S1 增益系数基本不变的结论似乎矛盾<sup>[15]</sup>。实际上该现象可以用“拉曼增益烧孔”的理论解释。“拉曼增益烧孔”是由粒子数

消耗造成的增益系数下降的现象,与“激光烧孔”现象类似。因此,介质气压越低,“拉曼增益烧孔”现象越严重。从阈值到 150 mJ 之间的 2 MPa 和 3 MPa 拉曼转换率曲线的变化规律可以解释“拉曼增益烧孔”效应。在 2 MPa 以下,S1 增益系数受气压变化的影响比较明显,高于 2 MPa 时气体的 S1 增益系数基本为一个常数,可以参考文献[15]。因此,理论预测两者的转换率基本一致,但是实验结果是 3 MPa@118 mJ 和 140 mJ 泵浦能量的转换率明显大于 2 MPa 对应的转换率,其主要原因就是 2 MPa 条件下消耗的粒子数占比更大,表现出更为严重的“拉曼增益烧孔”现象,因此 S1 增益系数明显减小。当然,二阶斯托克斯(S2)拉曼激光的竞争也产生了较大的影响。当泵浦光脉冲能量超过 160 mJ 时,3 MPa 条件下存在更为明显的 S2 竞争,所以 3 MPa 的 S1 转换率逐渐小于 2 MPa 的 S1 转换率。总体来说,“拉曼增益烧孔”和 S2 的竞争是共存的,但是在达到最高转换率之前,“拉曼增益烧孔”起主要作用;在达到最高转换率之后,S2 的竞争起主要作用。当泵浦光脉冲能量刚超过阈值时,S1 转换率比较低,拉曼散射过程对于振动基态氘气的消耗可以忽略不计;当泵浦光脉冲能量远大于阈值时,S1 转换率会增加到比较高的水平,此时拉曼散射过程对于振动基态氘气的消耗变得不可忽略,而增益系数正比于振动基态粒子数密度,所以增益系数会随着转换率的增大而降低。气压越高,相同转换率所消耗的振动基态粒子数占比越低,S1 增益系数随着转换率增大的变化越不明显。以 2 MPa 和 3 MPa 单次聚焦为例,计算如下:氘气存在正氘( $J=0, 2, 4, \dots$ )和仲氘( $J=1, 3, 5, \dots$ ),不同转动量子阶数对



应的振动拉曼频移分别为  $2991.86 \text{ cm}^{-1} (J=0)$ ,  $2989.70 \text{ cm}^{-1} (J=1)$ ,  $2985.39 \text{ cm}^{-1} (J=2)$ , ...; 泵浦激光和拉曼激光的线宽均略小于  $1 \text{ cm}^{-1}$ , 因此具有不同转动量子数  $J$  的氦气存在振动受激拉曼散射的模式竞争, 只有最可几转动能级对应的振动模式可以产生受激拉曼散射。在室温  $298 \text{ K}$  条件下, 转动量子数  $J=2$  的仲氦粒子数占比最高, 达到  $38.5\%$ 。激光发散角为  $1 \text{ mrad}$ , 采用  $f=1500 \text{ mm}$  的透镜单次聚焦时, 激光传输至透镜处的光斑直径为  $9 \text{ mm}$ , 可以计算出激光的焦深约为  $6 \text{ cm}$ , 而焦深区域的体积约为  $0.045 \text{ cm}^3$ 。焦深区域是产生受激拉曼激光最有效的区域,  $2 \text{ MPa}$  和  $3 \text{ MPa}$  条件下该区域的氦气总粒子数分别为  $2.22 \times 10^{19}$  和  $3.33 \times 10^{19}$ , 可以计算出在  $2 \text{ MPa}$  和  $3 \text{ MPa}$  条件下该区域的  $J=2$  的仲氦粒子数分别为  $0.855 \times 10^{19}$  和  $1.28 \times 10^{19}$ 。 $1064 \text{ nm}$  激光的单光子能量为  $1.88 \times 10^{-19} \text{ J}$ , 以  $140 \text{ mJ}$  泵浦能量,  $50\%$  转换率(该焦深区域转换

$10\%$ )为例, 将有  $7.44 \times 10^{16}$  个粒子发生受激拉曼散射, 并布居在  $v=1, J=2$  的能态上; 在  $2 \text{ MPa}$  和  $3 \text{ MPa}$  条件下  $J=2 (v=0)$  的能态粒子布居数分别减小了  $0.9\%$  和  $0.6\%$ , 对应的 S1 增益系数也分别减小了  $0.9\%$  和  $0.6\%$ 。虽然两者增益系数差别不够明显, 但是拉曼激光转换率与增益系数  $g$ 、有效作用距离(焦深)以及泵浦光功率密度的  $e$  指数成正比, 所以差别会被明显放大。

如图 3 所示, 对获得的  $1560 \text{ nm}$  波长激光进行光谱与脉冲时间宽度表征。图 3(a)所示为 S1 拉曼激光的输出光谱, 采用的光谱仪为 HORIBA FHR1000 双联体光栅光谱仪, 探测器为利用液氮冷却的钢镓砷探测器。图 3(b)为 S1 拉曼激光的脉冲图, 采用 LeCory 生产的型号为 WEVERUNNER 625Zi 的示波器和 ALPHALAS 生产的型号为 UPD-5N-IR2-P 的光电探测器, 受到所使用的探测器响应速度限制, 采集的脉冲波形时间大于实际激光脉冲宽度。

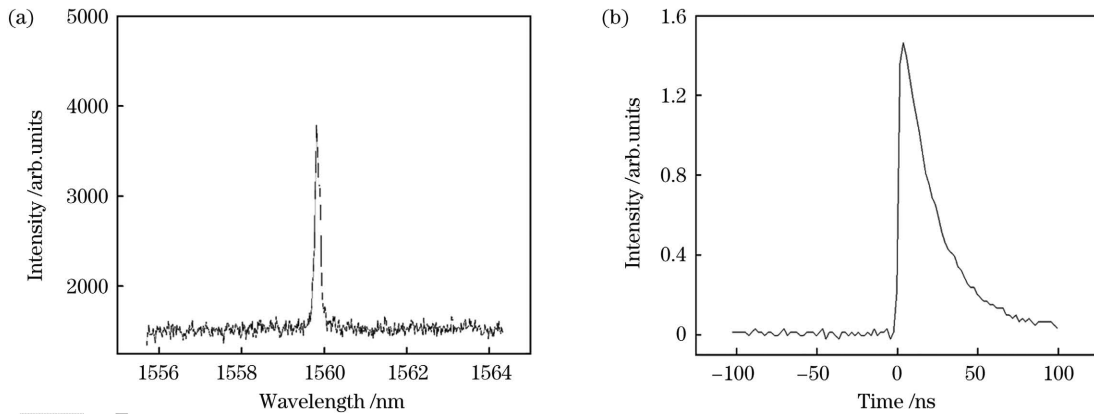


图 3 S1 拉曼激光的光谱与脉冲形状。(a) S1 激光的光谱图; (b) S1 激光的脉冲波形图

Fig. 3 Spectrum and pulse waveform of S1 Raman laser. (a) Spectrum of S1 laser; (b) pulse waveform of S1 laser

由于聚焦条件对拉曼光的转换率具有较大的影响<sup>[16]</sup>, 完全依靠实验探索不同聚焦条件下的受激拉曼阈值和转换率的办法费时费力, 因此本研究采用简单模拟计算辅助实验优化的方法提高受激拉曼转换率。

受激拉曼可以看作一个以自发拉曼激光为种子光的受激拉曼放大过程, 而拉曼光的转换率通常是由总体增益决定的<sup>[17]</sup>。通常条件下反斯托克斯光的转换率比较低(小于  $3\%$ ), 在不考虑高阶拉曼转换的前提下, 拉曼光的转换率会随着总体增益的增大而提高。因此, 在相同的泵浦激光峰值功率条件下, 通过优化聚焦条件的设计, 实现尽可能大的总体增益有利于实现更高的拉曼光转换率。

本文采用文献[18]中定义的总体增益系数  $G$  进行模拟, 并预测探测参考信号(SRS)总体增益系数与透镜位置之间的关系。  $G$  的表达式为

$$G = \int g I_P dz, \quad (1)$$

式中:  $z$  为光轴坐标;  $g$  为 SRS 增益系数;  $I_P$  表示泵浦光的光强。

$$I_P(z) = P_P / S(z), \quad (2)$$

式中:  $P_P$  表示泵浦光功率;  $S(z)$  表示光斑有效面积。  $S(z)$  的计算方法为: 在焦深附近, 采用菲涅耳公式进行计算, 并加入光束质量因子修正; 在其他区域, 采用傍轴光学理论进行计算。

SRS 是很灵敏的信号, 式(2)不能满足要求。实际计算过程中, 为了提高精确度, 本研究对频率的影响进行修正<sup>[19]</sup>, 因此式(1)修正为

$$G(\nu) = \int g(\nu) I_P(\nu) dz, \quad (3)$$

$$g(\nu) = \frac{4\pi^2 c^2 \Delta N}{n_{S1}^2 \hbar^2 \omega_{S1}^3} \left( \frac{d\sigma}{d\Omega} \right) L(\nu), \quad (4)$$

式中： $g(\nu)$ 为增益系数； $L(\nu)$ 为洛伦兹线型； $\Delta N$ 为介质分子基态与振动激发态能级之间的粒子数密度差值； $c$ 为光速； $\hbar$ 为修正的普朗克常量； $n_{S1}$ 为 S1 在介质中的折射率； $\omega_{S1}$ 为 S1 的角频率； $\frac{d\sigma}{d\Omega}$ 为微分散射截面。式(3)的计算结果为一个频率分布函数，取平均值后，即可得到图 4 所示的曲线，其中实心方块代表计算数值，泵浦激光峰值功率  $P_p$  取值为 15 MW。当泵浦激光的峰值功率不同时，计算所得的总体增益  $G$  的数值也会不同，但是随聚焦透镜位置的变化规律是相同的。从图 4 可以看到，随着聚焦透镜向拉曼池窗口移动，总体增益  $G$  不断增大，但是总体增益变化曲线的斜率不断减小。因此，在一定范围内将透镜移向拉曼池，有利于提高拉曼激光的总体增益  $G$ ，从而有利于提高拉曼转换率。当然，还需要考虑高阶拉曼对于 S1 转换率的影响，以及光学元件损伤阈值对于焦点位置的限制等因素，因此实验中透镜只能在初始位置的基础上向拉曼池

最多移动 36 cm。

根据模拟计算得出的规律，在图 1 所示的实验中，将透镜 L1 移向拉曼池，可以改变焦点 1 到透镜 L2 的距离  $l_2$ ，从而改变焦点 2 到透镜 L2 的距离  $f_2$ 。表 1 给出了不同 L1 相对位置所对应的  $l_2$  和  $f_2$  对照关系。图 5 所示为 0.5, 1.0, 2.5, 3.0, 3.5 MPa 条件下 S1 激光最高光子转换率随着 L1 位置的变化曲线。在 1.5 MPa 和 2.0 MPa 条件下曲线的变化规律与 1.0 MPa 的相似，为了提高图 5 的清晰度，这两条曲线没有画出。从图 5 可以看到，除了 3.5 MPa 条件外，S1 激光的最高光子转换率随 L1 向拉曼池入口的移动 ( $l_1$  减小) 而呈现出增加的趋势。3.5 MPa 条件下 S1 激光的最高光子转换率下降的主要原因有两个：1) 产生 S2 的转换已经达到了难以忽略的水平，与 S1 转换构成竞争，造成了 S1 转换率下降；2) 激光诱导击穿 (LIB) 对于 3.5 MPa 转换率的下降也有明显的作用。10 MW 量级峰值功率的激光在聚焦条件下，有可能通过多光子非共振的方式电离氙气分子，而且电离的概率随着泵浦激光的峰值功率和氙气气压的增加而增大。电离产生的电子在激光的电场作用下加速，如果再次与氙气分子发生碰撞，则可以再次发生电离，产生二次电子。如果类似的过程多次发生，则会产生雪崩电离并形成等离子体，该过程也就是 LIB。LIB 的阈值随着氙气气压的增加明显降低，同时形成的等离子体的密度也会随着氙气气压的增加而增大。因此，在忽略 S2 和 S1 竞争与高压气体容易电离的问题，则根据图 5 可以得出合适的氙气气压，并且图 5 所示的结果验证了图 4 理论计算得到的规律。需要说明的是，图 5 中 3.5 MPa 条件下的结果不符合图 4 的理论结果，主要原因是 S2 与 S1 的竞争；3.5 MPa 条件下的转换率明显低于 3 MPa 还有一个重要原因是高压条件会造成激光诱导气体电

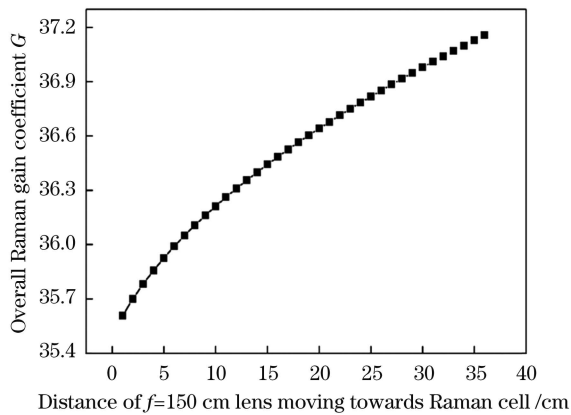


图 4 SRS 总体增益系数  $G$  随聚焦透镜平移距离的变化规律的模拟计算曲线

Fig. 4 Numerical simulation curve of the change for SRS overall gain coefficient  $G$  versus translation distance of focusing lens

表 1 不同 L1 相对位置所对应的  $l_2$  和  $f_2$  对照关系

Table 1 Comparison of  $l_2$  and  $f_2$  corresponding to different L1 relative positions

Position No.	Relative position of the L1 (distance $l_1$ between L1 and Raman entrance)	Distance $l_2$ between focus 1 and L2 /cm	Distance $f_2$ between L2 and focus 2 /cm	Diameter of laser beam at L2 /mm
1	Initial position ( $l_1 = 59.0$ cm)	109.0	92.4	4.9
2	Move 9 cm to the Raman cell entrance ( $l_1 = 50.0$ cm)	100.0	100.0	4.5
3	Move 18 cm to the Raman cell entrance ( $l_1 = 41.0$ cm)	91.0	111.0	4.1
4	Move 27 cm to the Raman cell entrance ( $l_1 = 32.0$ cm)	82.0	128.1	3.7
5	Move 36 cm to the Raman cell entrance ( $l_1 = 23.0$ cm)	73.0	158.7	3.3

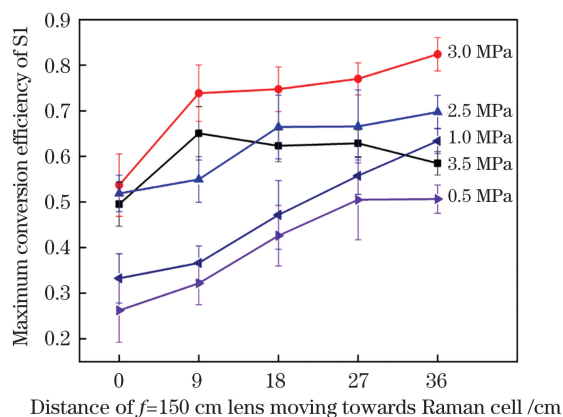


图 5 不同气压条件下, S1 最高光子转换率随着 L1 位置的变化曲线

Fig. 5 Maximum photon conversion efficiency of S1 vs. position of L1 under different deuterium gas pressures

离, 气压压力越高, 激光诱导电离所带来的损耗越大, 从而造成压力增大, 转换率明显下降。

图 6 所示为在 3 MPa 氘气气压, 聚焦透镜 L1 向拉曼池入口移动 36 cm 条件下, S1 光子转换率和脉冲能量随泵浦激光脉冲能量的变化曲线。可以看到: 当泵浦光脉冲能量为 160.9 mJ 时, S1 最高光子转换率为 82.4%, 对应的 1560 nm 拉曼激光的脉冲能量为 90.5 mJ; 而 S1 拉曼激光的最大脉冲能量为 92.7 mJ。随着泵浦能量的进一步增大, S1 的光子转换率和脉冲能量迅速下降, 主要原因是 S2 的竞争以及 LIB 对于泵浦光和产生的拉曼激光的损耗。从图 2 可以看到, 随着拉曼气体气压的降低, 增益系数减小, 而达到最高转换率的泵浦光脉冲能量明显增加, 有利于实现更大脉冲能量的拉曼激光输出。降低气压还有利于提高 LIB 的阈值, 降低由 LIB 带来的损耗。此外, 采用长焦距的透镜可以增大激光束腰尺寸, 从而降低激光的峰值功率密度, 有利于提高 LIB 阈值和降低由 LIB 带来的损耗。为了实现大脉冲能量拉曼激光输出, 采用不聚焦长程池受激拉曼设计, 并且将氘气的气压降低至 1.0 MPa, 其 S1 激光脉冲能量随着泵浦激光脉冲能量的变化曲线如图 7 所示。虽然拉曼激光的能量阈值比较高 (~580 mJ), 最高拉曼光子转换率 (48.8%) 也明显低于图 6 所示的结果, 但是其最大单脉冲能量高达 245 mJ。

本实验对产生的 1560 nm 拉曼激光使用长度为 2 cm 的温度匹配的 LBO 晶体倍频, 实验装置如图 8 所示, 其倍频能量和效率曲线如图 9 所示。受限于 LBO 晶体以及晶体表面增透膜损伤阈值, 并且拉曼激光脉冲能量的波动性比较大, 1560 nm 激光

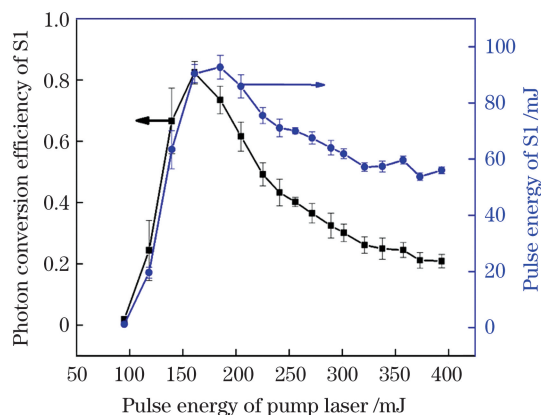


图 6 在 3 MPa 氘气气压, 聚焦透镜 L1 向拉曼池入口移动 36 cm (距拉曼池入口 23 cm) 条件下, S1 光子转换率和脉冲能量随泵浦激光脉冲能量的变化曲线

Fig. 6 S1 photon conversion efficiency and pulse energy vs. pulse energy of pump laser in the condition of 3 MPa deuterium gas pressure and the focusing lens L1 moves 36 cm towards the entrance of the Raman cell (23 cm from the entrance of the Raman cell)

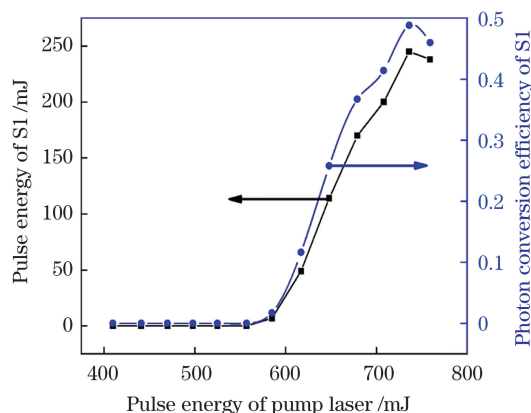


图 7 长程池条件下 S1 激光脉冲能量随泵浦激光脉冲能量的变化曲线

Fig. 7 Pulse energy of S1 laser and photon conversion efficiency vs. pulse energy of pump laser in the long path cell configuration

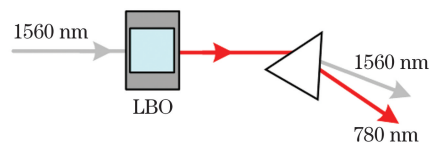


图 8 激光倍频装置示意图

Fig. 8 Experimental setup of second-harmonic generation (SHG)

脉冲能量局限在 160 mJ 以内, 所输出的 780 nm 倍频激光的最大脉冲能量为 57.3 mJ, 此时的最高转换率为 36.1%。温度匹配的 LBO 的倍频效率通常比较高, 但这里倍频效率低的主要原因在于



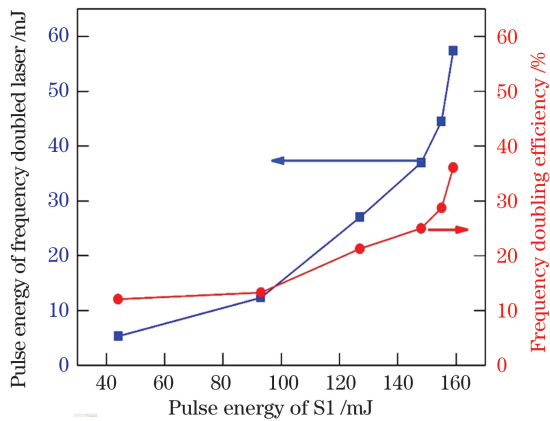


图 9 1560 nm 激光倍频产生 780 nm 激光的效率和脉冲能量曲线

Fig. 9 Conversion efficiency and pulse energy of 780 nm laser produced by 1560 nm laser second harmonic generation

1560 nm 拉曼激光的光束质量比较差。这是由静态拉曼池中氘气受激拉曼热效应引起的。脉冲能量为 160 mJ (10 Hz) 的 1560 nm S1 激光所对应的产热功率大于 510 mW。虽然这些热量对于转换率的影响不明显,但是可能造成激光的光束质量出现比较严重的退化。为了验证这种假设,使用光束质量分析仪(Spiricon M 2-200; CCD 光谱响应范围为 266~1300 nm)测量了 780 nm 倍频激光的光束质量,其光束质量如图 10 所示。可以看到,  $M_x^2 = 5.761$ ,  $M_y^2 = 4.848$ 。泵浦激光的光束质量因子  $M^2 = 3.2$ ,而在没有明显热效应的条件下,拉曼激光的光束质量应该略好于泵浦激光的光束质量<sup>[20]</sup>,同时倍频也有利于改善光束质量<sup>[21]</sup>。因此光束质量退化的主要原因是静态拉曼池中的热效应。

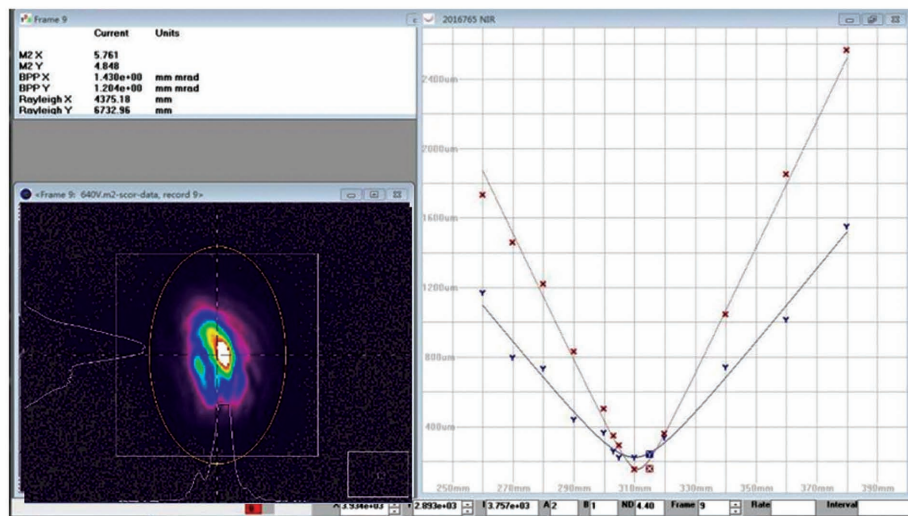


图 10 780 nm 激光光束质量

Fig. 10 Beam quality of 780 nm laser

## 4 结 论

采用两次聚焦并且调节焦点位置以及氘气气压实现了最高 82.4% 的 S1 拉曼激光转换率,这也是目前自由空间 1064 nm 泵浦氘气受激拉曼激光的最高转换率;发现并且解释了拉曼增益烧孔现象,适当地增大拉曼介质的气压有利于抑制拉曼增益烧孔现象,从而有利于在大脉冲能量(高功率)泵浦条件下维持较高的受激拉曼转换率。为了进一步提高拉曼激光的脉冲能量,本研究采用降低拉曼介质气压并且增大泵浦激光束腰尺寸的方式,最终获得的最大单脉冲能量为 245 mJ。经过温度匹配的 LBO 晶体倍频,实现了最大脉冲能量为 57.3 mJ 的 780 nm 倍频激光输出,倍频效率为 36.1%。通过

光束质量的测量证实了受激拉曼热效应造成拉曼激光光束质量退化,从而明显降低倍频效率。为了进一步提高 780 nm 倍频激光的脉冲能量,需要采用拉曼介质循环冷却技术。

## 参 考 文 献

- [1] Spuler S M, Mayor S D. Raman shifter optimized for lidar at a 1.5  $\mu\text{m}$  wavelength [J]. *Applied Optics*, 2007, 46(15): 2990-2995.
- [2] Mayor S D, Spuler S M. Raman-shifted eye-safe aerosol lidar [J]. *Applied Optics*, 2004, 43(19): 3915-3924.
- [3] Eichhorn M. High-efficiency multi-kilowatt  $\text{Er}^{3+}$ : YAG solid-state heat-capacity laser [J]. *Optics Letters*, 2011, 36(7): 1245-1247.

- [4] Ter-Gabrielyan N, Merkle L D, Kupp E R, et al. Efficient resonantly pumped tape cast composite ceramic Er: YAG laser at 1645 nm [J]. *Optics Letters*, 2010, 35(7): 922-924.
- [5] Chu H W, Zhao J, Li T, et al. KTP OPO with signal wave at 1630 nm intracavity pumped by an efficient  $\sigma$ -polarized Nd, MgO: LiNbO<sub>3</sub> laser [J]. *Optical Materials Express*, 2015, 5(4): 684-689.
- [6] Peng Y F, Wei X B, Xie G, et al. A high-power narrow-linewidth optical parametric oscillator based on PPMgLN [J]. *Laser Physics*, 2013, 23(5): 055405.
- [7] Chen Y B, Wang Z F, Li Z X, et al. Ultra-efficient Raman amplifier in methane-filled hollow-core fiber operating at 1.5  $\mu\text{m}$  [J]. *Optics Express*, 2017, 25(17): 20944-20949.
- [8] 李仲慧, 郑天成, 蔡向龙, 等. 1064 nm 激光泵浦 D<sub>2</sub> 产生 1560 nm 拉曼激光 [J]. *现代应用物理*, 2019, 10(2): 020302.  
Li Z H, Zheng T C, Cai X L, et al. Conversion efficiency of 1560 nm Raman laser in deuterium gas pumped by 1064 nm pulsed laser [J]. *Modern Applied Physics*, 2019, 10(2): 020302.
- [9] 崔宇龙, 黄威, 周智越, 等. 基于空芯光子晶体光纤的单程高效氘气转动拉曼激光光源 [J]. *光学学报*, 2020, 40(2): 0214001.  
Cui Y L, Huang W, Zhou Z Y, et al. Single-pass high-efficiency rotational Raman laser source based on deuterium-filled hollow-core photonic crystal fiber [J]. *Acta Optica Sinica*, 2020, 40(2): 0214001.
- [10] 黄威, 李智贤, 崔宇龙, 等. 反共振空芯光纤中氘气受激拉曼散射实验研究 [J]. *中国激光*, 2020, 47(1): 0101001.  
Huang W, Li Z X, Cui Y L, et al. Experimental research on stimulated Raman scattering of deuterium gas in anti-resonance hollow-core fibers [J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2020, 47(1): 0101001.
- [11] Li H, Huang W, Cui Y L, et al. 3 W tunable 1.65  $\mu\text{m}$  fiber gas Raman laser in D<sub>2</sub>-filled hollow-core photonic crystal fibers [J]. *Optics & Laser Technology*, 2020, 132: 106474.
- [12] Li Y Q, Bai Z X, Chen H, et al. Eye-safe diamond Raman laser [J]. *Results in Physics*, 2020, 16: 102853.
- [13] Zhang L, Jiang H W, Yang X Z, et al. Nearly-octave wavelength tuning of a continuous wave fiber laser [J]. *Scientific Reports*, 2017, 7: 42611.
- [14] Liu D, Cai X L, Li Z H, et al. The threshold reduction of SRS in deuterium by multi-pass configuration [J]. *Optics Communications*, 2016, 379: 36-40.
- [15] 曹开法, 黄见, 胡顺星. H<sub>2</sub>、D<sub>2</sub> 及 H<sub>2</sub>/D<sub>2</sub> 混合气体受激拉曼特性研究 [J]. *光学学报*, 2015, 35(3): 0319001.  
Cao K F, Huang J, Hu S X. Investigation of stimulated Raman scattering characteristics in D<sub>2</sub>, H<sub>2</sub> and D<sub>2</sub>/H<sub>2</sub> mixtures [J]. *Acta Optica Sinica*, 2015, 35(3): 0319001.
- [16] Li Z H, Liu D, Cai X L, et al. Stimulated Raman scattering in carbon dioxide gas pumped by Nd:YAG laser at 1064 nm [J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2018, 45(3): 0308001.  
李仲慧, 刘栋, 蔡向龙, 等. 1064 nm Nd:YAG 激光抽运二氧化碳气体中的受激拉曼散射 [J]. *中国激光*, 2018, 45(3): 0308001.
- [17] 冷静. 气体中的受激拉曼散射研究及其在激光波长转换中的应用 [D]. 大连: 中国科学院大连化学物理研究所, 2006: 22-26.  
Leng J. Study on stimulated Raman scattering in gas medium and its application in laser wavelength conversion [D]. Dalian: Dalian Institute of Chemical Physics, Chinese Academy of Sciences, 2006: 22-26.
- [18] Hanna D, Pointer D, Pratt D. Stimulated Raman scattering of picosecond light pulses in hydrogen, deuterium, and methane [J]. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 1986, 22(2): 332-336.
- [19] Shen C C, Cai X L, Su X J, et al. Wavelength-tunable narrow-linewidth gaseous Raman laser [J]. *Applied Optics*, 2021, 60(18): 5465-5470.
- [20] Reintjes J, Lehmborg R H, Chang R S F, et al. Beam cleanup with stimulated Raman scattering in the intensity-averaging regime [J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 1986, 3(10): 1408-1427.
- [21] Chen Y, Li F Q, Liu K, et al. High-efficiency 2-mJ 5-kHz picosecond green laser generation by Nd:YAG innoslab amplifier [J]. *IEEE Photonics Technology Letters*, 2015, 27(14): 1531-1534.



## High Energy Pulsed Laser in 1.6 $\mu\text{m}$ Waveband Based on Deuterium Gas Stimulated Raman Scattering

Cai Xianglong<sup>1,2</sup>, Li Zhonghui<sup>3</sup>, Liu Dong<sup>2</sup>, Wang Pengyuan<sup>2</sup>, Chen Ying<sup>2</sup>, Liu Jinbo<sup>2</sup>,  
Shi Jing<sup>1</sup>, Wang Tingting<sup>1</sup>, Cai Hongxing<sup>1\*</sup>, Guo Jingwei<sup>2\*\*</sup>

<sup>1</sup> School of Science, Changchun University of Science and Technology, Changchun 130022, Jilin, China;

<sup>2</sup> Key Laboratory of Chemical Lasers, Dalian Institute of Chemical Physics, Chinese Academy of Sciences, Dalian 116023, Liaoning, China;

<sup>3</sup> Wuxi Zhongke Optoelectronics Technology Co., Ltd., Wuxi 214115, Jiangsu, China

### Abstract

**Objective** In atmospheric transmission windows,  $\sim 1.6 \mu\text{m}$  is a significant waveband, and lasers with emission wavelengths longer than  $1.4 \mu\text{m}$  are called eye-safe wavebands. Based on the above advantages, lasers of  $1.6 \mu\text{m}$  waveband are used as laser sources for aerosol lidar, laser range finder system, and other applications. The pulse energy (or average power) of the laser is a key parameter in determining the measurement distance of this type of instrument, and the large pulse energy of a  $1.6 \mu\text{m}$  waveband laser is imminently required. Several methods for generating lasers with a  $1.6 \mu\text{m}$  waveband, such as Er:YAG and 1064 nm pumped OPO lasers, are available; each has its advantages and applications. Stimulated Raman scattering (SRS) is a convenient method for generating lasers with new wavelengths. Gaseous Raman lasers have high conversion efficiency, high damage threshold, and high peak power (large pulse energy), among others. In this study, we present a  $1.56 \mu\text{m}$  Raman laser generated by 1064 nm laser-pumped high-pressure deuterium.

**Methods** A Q-switched Nd:YAG laser of 1064 nm is used as the pump source. The laser beam diameter is 8 mm, the maximum output energy is 900 mJ, the full width at half maximum (FWHM) is approximately 10 ns, and the repetition frequency is 10 Hz. Pressurized deuterium gas is used as a laser Raman active medium. The gas pressure varies 0.5–3.5 MPa. A double focus configuration is used for the SRS experiment. Further, the relationships between the conversion efficiency under different gas pressures, focus numbers, and focus positions are investigated. To study the beam quality of Raman laser, the frequency is doubled to 780 nm.

**Results and Discussions** A double focus configuration is used for the SRS experiment. Experimental parameters, such as the pressure of deuterium and focus condition are optimized under the assistance of theoretical simulation, and the maximum photon conversion efficiency of the Raman laser is 82.4% (Fig. 6). In this study, the hole-burning effect of the Raman gain coefficient is identified and explained. This indicates that a higher pressure of Raman active gas is beneficial for maintaining a high conversion efficiency under the condition of a big pulse energy pump laser. Although a high conversion efficiency can be achieved using double focus configuration, the pulse energy is limited. To increase the pulse energy of the Raman laser, the pressure of the Raman active gas is decreased to 1 MPa, the beam waist size and pump laser energy are increased, and a maximum of 245 mJ Raman laser is achieved, whereas the photon conversion efficiency decreases to 48.8% (Fig. 8). A temperature-matched LBO crystal is used to double the frequency of a  $1.56 \mu\text{m}$  Raman laser, and a 780 nm laser with a maximum conversion efficiency of 36.6% (Fig. 9) is obtained. By comparing the beam qualities of the pump and 780 nm lasers, it is inferred that the thermal effect of the SRS process caused the limited frequency doubling efficiency.

**Conclusions** In this study, the highest photon conversion efficiency of the first Stokes laser is 82.4%, which is also the highest conversion efficiency of deuterium gas stimulated Raman scattering pumped by Nd:YAG 1064 nm wavelength in free space. The phenomenon of Raman gain hole-burning is discovered and explained. Appropriately increasing the gas pressure of Raman medium is conducive for inhibiting Raman gain hole-burning, which is useful in maintaining pump laser high conversion efficiency at the stimulated Raman wavelength shifting of large pulse energy laser. To further improve the pulse energy of the Raman laser, we reduce the pressure of the Raman medium and

increase the waist size of the pump laser beam to achieve maximum single pulse energy of 245 mJ. Additionally, we employ LBO crystal to obtain the second-harmonic generation with an output wavelength of 780 nm, maximum energy of 57.3 mJ, and conversion efficiency of 36.1%. The measurement of beam quality confirms that the gas thermal effect degrades the Raman laser beam quality, which reduces the laser energy conversion efficiency of frequency doubling. Raman medium circulating or cooling technology is a method for increasing the pulse energy of the laser.

**Key words** laser physics; pulsed laser; stimulated Raman scattering (SRS); deuterium gas; conversion efficiency