

文章编号: 0253-2239(2006)06-0918-3

YVO₄ 晶体的高效受激拉曼散射*

胡大伟 于浩海 王正平 张怀金 许心光 王继扬 邵宗书

(山东大学晶体材料国家重点实验室, 济南 250100)

摘要: 报道了 YVO₄ 晶体在 532 nm、30 ps 脉冲下的高效受激拉曼散射。采用腔外单次通过方式测量了不同长度 YVO₄ 晶体 1 阶斯托克斯受激拉曼散射的阈值, 并得到该晶体的稳态增益系数为 16.0 ± 0.5 cm/GW。实验中观察到 2 阶斯托克斯线(558.6 nm、587.8 nm)和 1 阶反斯托克斯线(508.0 nm), 受激拉曼散射的整体转换效率高于 50%。

关键词: 非线性光学; 受激拉曼散射; 阈值; 稳态增益系数; YVO₄ 晶体

中图分类号: O437.3 文献标识码: A

Efficient Stimulated Raman Scattering of YVO₄ Crystal

Hu Dawei Yu Haohai Wang Zhengping Zhang Huaijin Xu Xin'guang
Wang Jiyang Shao Zongshu

(State Key Lab of Crystal Materials, Shandong University, Jinan 250100)

Abstract: The stimulated Raman scattering (SRS) of 532 nm, 30 ps pulse was investigated in YVO₄ crystal samples. In an external single-pass configuration, the SRS thresholds for the first Stokes line were measured for different crystal lengths, and the steady-state gain coefficient was calculated to be 16.0 ± 0.5 cm/GW. In this experiment, the second Stokes line (558.6 nm, 587.8 nm) as well as the first anti-Stokes line (508.0 nm) was also observed. The total conversion efficiency of SRS was higher than 50%.

Key words: nonlinear optics; stimulated Raman scattering; threshold; steady-state gain coefficient; YVO₄ crystal

受激拉曼散射(stimulated Raman scattering, SRS)属于三阶非线性光学效应,其光束具有激光特性,可使激光波段得到有效拓展。利用固体拉曼激光技术,可以发展新型的黄、橙光激光,以及 1.5 μm 人眼安全激光^[1,2],这些光源将在军事、医疗、显示、遥感、海洋探测等许多领域获得重要应用,因此相关研究日益受到关注。

早期的拉曼激光研究主要集中在气体和液体介质中,包括 H₂、N₂、CH₄、硝基苯、甲苯等。自 20 世纪 80 年代以来,由于 Ba(NO₃)₂、BaWO₄ 等高拉曼增益固体材料的发现以及固体激发光源的商品化,使固体拉曼激光技术有了显著进展^[3~5]。除钨酸、硝酸盐之外,以 YVO₄、GdVO₄ 为代表的钒酸盐也是一类有实

际应用前景的优质拉曼晶体,这些晶体生长周期短、光损伤阈值高、物化性能稳定、拉曼增益系数大,受激拉曼散射的转换效率可高达 60% 以上,其 VO₄³⁻ 基团最强的光学振动模是 A_{1g}(ν₁),分别对应 890 cm⁻¹ (YVO₄) 和 882 cm⁻¹ (GdVO₄) 的拉曼频移^[6]。特别是在掺入稀土离子后容易获得自拉曼特性,从而制作出结构紧凑的全固态自拉曼激光器^[7,8]。

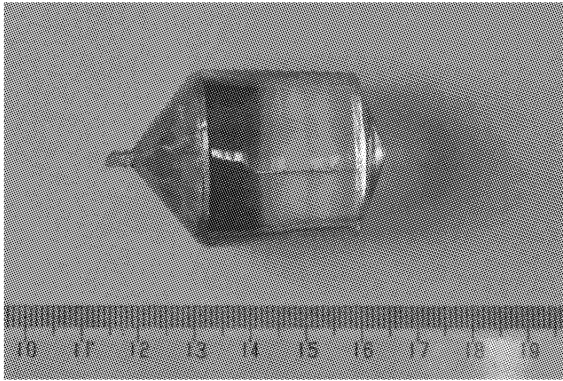
我们通过控制合适的工艺参量,采用熔体提拉法(Czochralski),从化学计量比的熔体中生长出了大尺寸、高质量的 YVO₄ 单晶。图 1 是沿 c 轴生长经过退火处理的无宏观缺陷、均匀透明的 YVO₄ 晶体。长成晶体的直径为 28 mm、长度 40 mm、重量 126 g。将晶体置于 10 mW 的 He-Ne 激光器下照射,未发现散射

* 国家自然科学基金(60508010, 50590401)、教育部优秀青年教师资助计划、教育部留学回国人员科研启动基金(2004.527)和山东省自然科学基金(Y2004F01)资助课题。

作者简介: 胡大伟(1980~),男,山东大学晶体材料研究所博士研究生,主要从事非线性光学、晶体物理的研究。

E-mail: haw@icm.sdu.edu.cn

收稿日期: 2005-08-09; 收到修改稿日期: 2006-01-06

图 1 YVO₄ 晶体Fig. 1 YVO₄ crystal

颗粒,说明所生长 YVO₄ 单晶具有良好的光学质量。将 YVO₄ 原生晶体沿 *c* 向加工成 3 块样品,长度分别

为 25.47 mm, 30.47 mm, 35.35 mm, 截面均为 6 mm × 6 mm, 各样品两透光端面进行抛光但未镀膜。

实验装置如图 2 所示,激光光源为美国 Continuum 公司生产的 PY61 型 Nd:YAG 锁模激光器,输出波长 1064 nm、脉冲宽度 40 ps、重复频率 10 Hz。实验方法为单通方式。图 2 中 SHG 为 KTP 倍频晶体,使通过它的光变为 532 nm,脉冲宽度约为 30 ps; M₁ 为对 1064 nm 高反,对 532 nm 高透($R > 99\%$, 1064 nm 和 $T > 90\%$, 532 nm)的滤色片; P₁ 和 P₂ 为两个起偏器,其作用是使抽运能量可以连续变化; T 为激光束缩束透镜组,以提高入射到晶体上的功率密度; F 为光阑,其孔径为 1 mm; RC 为 YVO₄ 晶体; B 为 USB2000 型 VIS-NIR 光谱分析仪的探头; C 为观察屏。

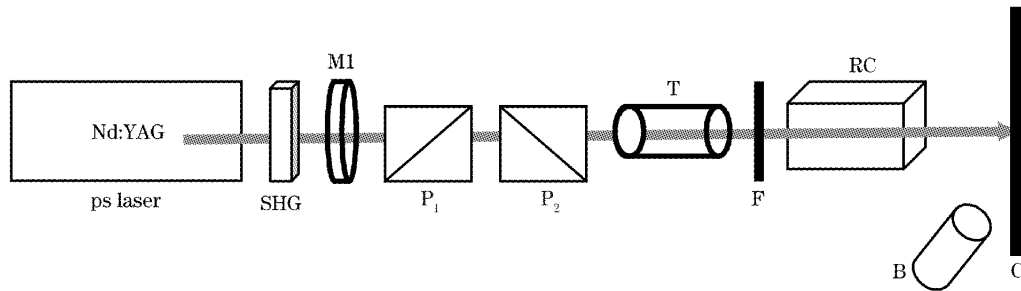


图 2 单次通过型受激拉曼散射实验装置

Fig. 2 Experimental setup for the measurement of the single-pass SRS

利用上述装置,测量了各 YVO₄ 晶体样品 1 阶斯托克斯受激拉曼散射的阈值,结果如表 1 所示。晶体越长,受激拉曼散射的阈值越低,对于 35.35 mm 的 YVO₄ 晶体而言,阈值仅为 449.9 MW/cm²。图 3 是阈值附近的一个典型的光谱图,图中的强峰为抽运光,中心波长位于 532.1 nm 处,小峰为 1 阶斯托克斯光,中心波长位于 558.6 nm 处,由此可计算出其频率间隔为 891 cm⁻¹,与 Kaminskii 等^[6] 890 cm⁻¹ 的报道值基本一致。

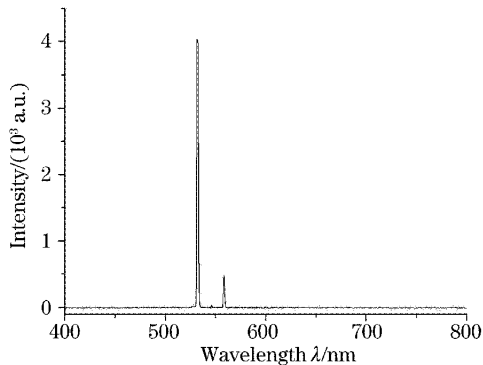


图 3 1 阶斯托克斯阈值附近的光谱图

Fig. 3 Spectra at the 1st Stokes threshold

表 1 不同长度晶体 1 阶斯托克斯受激拉曼散射的阈值及增益系数

Table 1 The 1st Stokes threshold and Raman gain of different YVO₄ crystals

Crystal length /mm	Intensity of pump light /mW	Threshold pump energy of SRS / (MW/cm ²)	Raman gain / (cm/GW)
25.47	1.48	628.1	15.63
30.47	1.17	496.6	16.52
35.35	1.06	449.9	15.72

根据抽运脉冲时间 τ_p 与固体晶格振动弛豫时间 T_R 的相对大小,可将受激拉曼散射分为稳态和暂态两种。对于较为常见的稳态情况,主要判定条件是

$$\tau_p \gg T_R = \frac{1}{\pi \Delta\nu_R} = \frac{1}{\pi c \Delta\nu_R}, \quad (1)$$

其中 $\Delta\nu_R$ 为自发拉曼散射频率谱中相应频移谱线的线宽,单位为 s^{-1} 。而 $\Delta\nu_R$ 为自发拉曼散射波数谱中该频移谱线的线宽,单位为 m^{-1} 。在此条件下,1 阶斯托克斯受激拉曼散射光的强度可以表示为^[9,10]

$$I_{s1}(l) = I_{s1}(0) \exp(g_{ssR} I_p l), \quad (2)$$

式中 $I_{s1}(0)$ 是第一斯托克斯激光辐射种籽源的强度,即在拉曼样品起端($l=0$)的自发拉曼散射的强度; g_{ssR} 是稳态拉曼增益系数; I_p 是抽运激光强度; l 是拉曼晶体长度。当上式中的指数因子 $g_{ssR} I_p l \approx 25 \sim 30^{[9]}$, 转换效率 $I_{s1}/I_p \approx 1\%$, 此时能清楚地判断受激拉曼散射的第 1 阶斯托克斯线已产生, 习惯上将该处的抽运强度定义为稳态受激拉曼散射阈值抽运强度。

YVO_4 晶体的 $T_R \approx 3.5 \text{ ps}^{[6]}$ 。本文实验中抽运脉冲时间 $\tau_p \approx 30 \text{ ps}$, 满足(1)式所示的稳态工作条件, 因此可以利用公式 $g_{ssR} I_p l \approx 25 \sim 30$, 结合测得的受激拉曼散射阈值计算出 YVO_4 晶体的稳态拉曼增益系数, 结果亦如表 1 所示。由表中数值可知, YVO_4 晶体的拉曼增益系数为 $16.0 \pm 0.5 \text{ cm/GW}$, 略低于同等实验条件下 $BaWO_4$ 晶体的测量值 ($18.7 \pm 1.2 \text{ cm/GW}$)。各 YVO_4 晶体样品的增益系数非常接近, 反证了公式 $g_{ssR} I_p l \approx 25 \sim 30$ 对于本实验是适用的, 从而进一步说明本实验条件对 YVO_4 晶体而言是稳态情况。

在入射激光的功率密度达到 YVO_4 晶体 1 阶斯托克斯受激拉曼散射的阈值之后, 继续提高抽运能量, 在纸屏上可以观察到拉曼散射的同心色环。环中心的最亮圆斑主要是抽运光(绿色, 532.1 nm) 和 1 级斯托克斯光(黄色, 558.6 nm), 在亮斑外侧出现了 2 阶斯托克斯圆环(橙色), 在中心亮斑的强烈背景下该色环并不清晰, 用光谱仪测得该散射光的波长为 587.8 nm 。进一步提高抽运能量, 也会在光谱图上观察到 1 级反斯托克斯光(508.0 nm) 的出现, 如图 4 所示。图中 1 阶斯托克斯光的强度已经大于抽运光的强度, 说明在此条件下受激拉曼散射的转换效率大于 50% 。

实验表明, 在 532 nm 、 30 ps 的抽运脉冲条件下, YVO_4 晶体 1 阶斯托克斯受激拉曼散射的阈值随晶体长度的增加而显著降低, 稳态拉曼增益系数达到 $16.0 \pm 0.5 \text{ cm/GW}$, 与 $BaWO_4$ 晶体接近。继续增加抽运能量, 观察到了 2 阶斯托克斯和 1 阶反

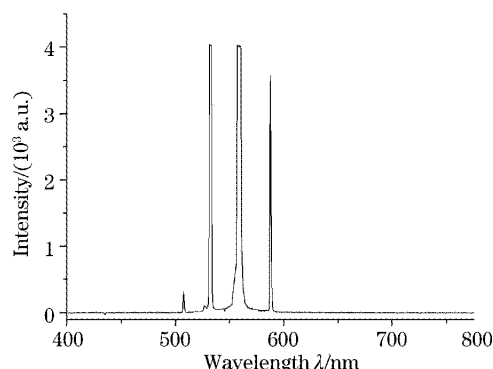


图 4 高阶斯托克斯和反斯托克斯线

Fig. 4 High order Stokes and anti-Stokes lines
斯托克斯谱线, 受激拉曼散射的整体转换效率高于 50% 。

参 考 文 献

- 1 H. M. Pask, J. A. Piper. Practical 580 nm source based on frequency doubling of an intracavity-Raman-shifted Nd:YAG laser[J]. *Opt. Commun.*, 1998, **148**(4~6): 285~288
- 2 Jin Feng. Development of eye-safe Raman lasers[J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2003, **40**(6): 40~42 (in Chinese)
金 峰. 人眼安全拉曼激光技术的发展[J]. *激光与光电子学进展*, 2003, **40**(6): 40~42
- 3 P. G. Zverev, T. T. Basiev, V. V. Osiko *et al.*. Physical, chemical and optical properties of barium nitrate Raman crystal [J]. *Opt. Mat.*, 1999, **11**(4): 315~334
- 4 P. Cerny, P. G. Zverev, H. Jelino *et al.*. Efficient Raman shifting of picosecond pulses using $BaWO_4$ crystal [J]. *Opt. Commun.*, 2000, **177**(1~6): 397~404
- 5 Wang Zhengping, Zhang Huaijin, Xu Xinguang. Stimulated Raman scattering of $BaWO_4$ crystals[J]. *Chin. J. Lasers*, 2004, **31**(12): 1428 (in Chinese)
王正平, 张怀金, 许心光等. $BaWO_4$ 晶体的受激拉曼散射[J]. *中国激光*, 2004, **31**(12): 1428
- 6 Alexander A Kaminskii, Ken-ichi Ueda, Hans Eichler *et al.*. Tetragonal vanadates YVO_4 and $GdVO_4$ -new efficient $\chi^{(3)}$ -materials for Raman lasers [J]. *Opt. Commun.*, 2001, **194**(1~3): 201~206
- 7 Y. F. Chen. Compact efficient all-solid-state eye-safe laser with self-frequency Raman conversion in a Nd:YVO₄ crystal[J]. *Opt. Lett.*, 2004, **29**(18): 2172~2174
- 8 Y. F. Chen. Efficient 1521-nm Nd:GdVO₄ Raman laser[J]. *Opt. Lett.*, 2004, **29**(22): 2632~2634
- 9 F. T. Arecchi, E. O. Schulz-Du Bois. *Laser Handbook* [M]. Amsterdam: North-Holland, 1972. 72~101
- 10 Y. R. Shen. *The Principles of Nonlinear Optics* [M]. New York: Wiley, 1984. 141~184