# 1064 nm 纳秒激光脉冲激发的外腔式 PbWO<sub>4</sub> 拉曼激光器

奚 坤 丁双红 张 骏 王淑梅 刘永纳 王美芹 (烟台大学光电信息科学技术学院,山东烟台 264005)

摘要 研究了外腔式 PbWO<sub>4</sub> 拉曼激光器在纳秒脉冲抽运下的输出特性。利用主动调 Q 的 Nd: YAG 激光器产生的脉冲宽度为31.4 ns,最大输出能量为 200 mJ 的 1064 nm 激光作为抽运源。拉曼激光谐振腔采用的是平凹腔设计。测量了输出的拉曼光脉宽与抽运能量的关系,分析了输出的拉曼光脉冲波形图和光谱图,测量了输出的拉曼光脉冲能量与抽运能量的关系,计算了转换效率与抽运能量的关系。当注入抽运光能量达到 42 mJ 时,得到了一阶斯托克斯光脉冲的最大能量和转换效率分别为 10 mJ 和 24%,获得外腔式 PbWO<sub>4</sub> 拉曼激光器的一阶斯托克斯光脉冲波长为 1177.6 nm,典型的一阶斯托克斯光脉冲脉宽为 20 ns。

关键词 激光器;受激拉曼散射;外腔式拉曼激光器;脉冲抽运;PbWO4 晶体
中图分类号 TN248.1
文献标识码 A
doi: 10.3788/AOS201232.0914003

# External Resonator PbWO<sub>4</sub> Raman Laser Excited by 1064 nm Nanosecond Laser Pulses

Xi Kun Ding Shuanghong Zhang Jun Wang Shumei Liu Yongna Wang Meiqin (Institute of Opto-Electronic Information, Yantai University, Yantai, Shandong 264005, China)

**Abstract** Output charactaristic of external resonator PbWO<sub>4</sub> Raman laser excited by nanosecond pulse is studied. An actively *Q*-switched Nd: YAG laser is used as the pumping source, with pulse width of 31.4 ns and the maximum output energy of 200 mJ at 1064 nm. The Raman laser cavity is a flat-concave one. The relation between the pulse width of output Raman pulses and pumping energy is measured. The optical spectra and the pulse waveforms of Raman pulses are analyzed. The relation between the energy of output Raman pulses and pumping energy is measured, and the relation between the conversion efficiency and pumping energy is calculated. When the pumping energy is 42 mJ, the obtained maximum output energy and conversion efficiency of first-Stokes pulse are 10 mJ and 24%, respectively. The wavelength of the first-Stokes pulse of the Raman laser is 1177.6 nm. The typical pulse width the of the first-Stokes pulses is 20 ns.

Key words lasers; stimulated Raman scattering; external resonator Raman laser; pulse pumping; PbWO<sub>4</sub> crystal OCIS codes 140.3580; 290.5910; 140.3410; 140.3538; 230.5298

1 引

言

受激拉曼散射(SRS)是获得新波段激光的有效 手段。与气体和液体拉曼介质相比,固体拉曼介质具 有增益高、热传导性好、机械特性好和易于全固化等 优点,是近年来非常活跃的研究方向。利用固体拉曼 激光技术,所制成的黄、橙、紫外波段以及 1.5 μm 的 人眼安全拉曼激光器在军事、医疗、显示、遥感和海洋 探测等领域有广泛需求。自 20 世纪 80 年代以来, 由于 Ba(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>,BaWO<sub>4</sub>,SrWO<sub>4</sub>,YVO<sub>4</sub> 和 GdVO<sub>4</sub> 等硝酸、钨酸、钒酸盐高拉曼增益固体材料的发现以 及固体激光光源的商品化,使固体拉曼激光技术有 了显著发展<sup>[1~13]</sup>。

基金项目:国家自然科学基金(10974168)和山东省高校科技计划(J09LA06)资助课题。

**导师简介:**丁双红(1970—),女,博士,副教授,主要从事激光物理与技术等方面的研究。E-mail: shding@ytu.edu.cn (通信联系人)

收稿日期: 2012-03-28; 收到修改稿日期: 2012-05-10

作者简介:奚 坤(1983—),男,硕士研究生,主要从事固体拉曼激光器方面的研究。E-mail: xk818@qq.com

钨酸铅(PbWO4, PWO)晶体不仅是一种性能 优异的闪烁晶体,同时因其具有红外透过范围宽 (0.33~5.5 μm)、热导率高、可大尺寸生长、中红外 波段拉曼增益高和拉曼频移线宽窄等特点,也是一 种性能优异、应用前景美好的拉曼介质材料。而且 PbWO4 晶体有很强的抗辐照硬度、稳定的物理和化 学性能以及大密度。实验证实,钨酸铅晶体还具有 比 KGd(WO<sub>4</sub>)<sub>2</sub> 好的导热性能<sup>[14]</sup>。特别是近年来 PbWO<sub>4</sub> 生长技术日臻完善,生长大尺寸的 PbWO<sub>4</sub> 晶体已经不成问题,而且生产成本远低于 Ba (NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>, BaWO<sub>4</sub>, SrWO<sub>4</sub>, YVO<sub>4</sub>和 GdVO<sub>4</sub>等热门 拉曼晶体,为进一步开辟新应用领域提供了坚实的 基础。因此,近年来 PbWO4 的拉曼激光性能重新 引起重视。外腔式拉曼激光器是把拉曼晶体置于一 个独立谐振腔内的激光器,它的效率与外谐振腔的 参数(如腔型、腔长和腔镜反射率)有关,同时还与拉 曼晶体的长度和拉曼增益系数有关[15]。外腔式固 体拉曼频移器不需要改变抽运激光器的结构,方便 设计与优化<sup>[16]</sup>。1999 年 Kaminskii 等<sup>[17]</sup>将 PbWO<sub>4</sub> 晶体作为拉曼晶体放入外腔中,用1064 nm Nd:YAG激光器皮秒脉冲抽运,再利用 LBO 作为倍 频晶体,抽运能量为5 mJ 时,得到的一阶斯托克斯 光能量为1 mJ, 倍频后得到的 588.5 nm 的光能量 为0.1 mJ。另外,他们采用了两镜直线腔来验证 He  $\oplus^{[18]}$ 的实验,将 PbWO<sub>4</sub> 晶体放入外腔中,由 Nd:YAG激光器做抽运源产生532 nm倍频光,得到 了一阶斯托克斯光为 558.9 nm,当变换抽运源为 1064 nm的 Nd: YAG 激光器后,产生了1177 nm的一阶 斯托克斯光。之后,Kaminskii 等<sup>[19]</sup> 重新优化了腔镜, 利用纳秒脉冲抽运,得到了包括一阶斯托克斯光在内 的散射光转换效率为20%,其中一阶斯托克斯光 558.9 nm 的最大转换效率为 13%,揭示了在 PbWO<sub>4</sub> 中所展示的纳秒级的受激拉曼散射现 象<sup>[14,18,19]</sup>。Gad等<sup>[20]</sup>在2003年将PbWO<sub>4</sub>晶体放 置于外腔中,对其进行皮秒级1064 nm 抽运,获得 了1316 nm 的二阶斯托克斯光,通过改变晶体的长 度,得到的二阶斯托克斯光的最大转换效率为30%。 他们的实验也证明了PbWO<sub>4</sub>晶体的确是一种优秀的 拉曼晶体。同时PbWO<sub>4</sub>晶体在掺入激活离子后可形 成自拉曼激光晶体,实现中红外激光输出<sup>[17,21,22]</sup>, Chen等<sup>[22]</sup>在2001年已实现了Nd<sup>3+</sup>:PbWO<sub>4</sub>晶体的 自拉曼激光输出,总转换效率为0.1%。

本文的实验所采用的抽运源是电光调 Q 氙灯抽运 Nd:YAG 脉冲激光器,在不改变抽运激光器结构的情况下,通过设计基于 PbWO4 晶体的外腔式拉曼激光器来获得一阶斯托克斯拉曼光输出。当抽运源为 1064 nm 纳秒脉冲激光时,获得的 1177.6 nm 一阶斯托克斯光的最高转换效率为 24%。

## 2 实验装置

实验所采用的抽运源为自制的 Nd: YAG 电光调 Q脉冲氙灯激光器,最大输出能量为 200 mJ,脉冲宽 度为 31.5 ns。实验中所用的 PbWO4 晶体由中国科 学院上海硅酸盐研究所提供,将 PbWO4 晶体沿 c 轴 方向加工为 20 mm×20 mm×80 mm 的样品,两通光 端面进行抛光但未镀膜。实验装置如图 1 所示。由 M<sub>3</sub> 和 M<sub>4</sub> 构成的拉曼腔长度为 100 mm。输入镜 M<sub>3</sub> 为凹面镜,曲率半径为 500 mm,前端面对 1064 nm的抽运光高透(T>90%),对 1178 nm 的一 阶斯托克斯光高反(R>99.8%),后端面对 1064 nm 抽运光高反(R>99.8%),后端面对 1064 nm 抽运光高反(R>99.8%),后端面对 1064 nm



图 1 外腔式 PbWO4 拉曼激光器的实验装置图 Fig. 1 Experimental setup of external resonator PbWO4 Raman laser

面对 1178 nm 的一阶斯托克斯光高透(T > 99.8%)。此次实验的测量仪器是由以色列 OPHIR 公司生产的 Laserstar 能量计,示波器是 Agilent InfiniiVision DSO7104A(1 GHz),光谱仪是 Ando 公司生产的 AQ6317B 光纤光谱仪。

# 3 实验结果与讨论

### 3.1 拉曼光的光谱输出特性

实验中测得输出光的光谱图如图 2 和图 3 所示。









图 2 为输出光的光谱图。图 3 为输出拉曼光的 细致光谱图。从图 3 中可以得出实验中得到的拉曼 光为一阶斯托克斯光  $\lambda_{s1} = 1177.6$  nm。由于在实验 中采用的是对抽运光高反的输出耦合镜,所以在图 2 的光谱图中并没有出现抽运光  $\lambda_p = 1064$  nm 的谱线。 实验中未发现高阶斯托克斯光或反斯托克斯光的存 在,由此可计算出该实验条件下的 PbWO4 晶体拉曼 光相对抽运光的受激拉曼散射频移为 906.2 cm<sup>-1</sup>。

这一数据与文献[17]报道的 PbWO<sub>4</sub> 晶体中 [ $WO_4^{-}$ ]四面体拉曼振动模  $A_g = 901 \text{ cm}^{-1}$ 略有差 异,分析后认为有以下两点原因:1)实验输出的拉曼 光是脉冲的,而使用的光纤光谱仪是扫描式的,虽然 保证了测量精度,但是在输出脉冲光的波形显示上 会出现多个波形,只能通过估读中心波长来获得测 量结果。2)由于实验所用的 PbWO4 晶体中掺杂了 少量的钇离子(Y<sup>3+</sup>),改变了晶体的晶格结构,造成 拉曼频移增大<sup>[23]</sup>。

#### 3.2 拉曼光的时间输出特性

将实验条件代入外腔式拉曼激光器的传输耦合 波方程<sup>[15,16]</sup>中,并在此基础上对其进行了数值 计算。

3.2.1 输出一阶斯托克斯光脉冲宽度与注入抽运 光能量的关系

图 4 中的点是实验测量的结果,实线是对测量的 实验数据拟合后得到的,虚线是理论计算的结果。从 图中可以看出实验结果与理论计算的结果还是相对 吻合的。输出拉曼光脉冲宽度随着注入抽运光能量 的增加呈非线性增长。这是由于随着注入抽运光能 量的增加,腔内拉曼增益变大,抽运光脉冲前沿越早 达到一阶斯托克斯光的阈值,抽运光转换越彻底,一 阶斯托克斯光的脉宽就越宽。随着抽运光能量的增 大,前期输出拉曼光的单脉冲能量变大,峰值功率变 大,一阶斯托克斯光的脉宽增长迅速;后期一阶斯托 克斯光的脉流增长远速;后期一阶斯托



- 图 4 输出一阶斯托克斯光脉冲宽度与注入抽运光 能量的关系
- Fig. 4 Output first-Stokes pulse width versus pump energy for the PbWO<sub>4</sub> Raman laser

3.2.2 抽运光与一阶斯托克斯光的脉冲波形

实验中得到的注入抽运光和输出一阶斯托克斯 光脉冲波形图如图 5 和图 6 所示。

对比图 5 和图 6 可以看出抽运光的脉冲宽度为 31.5 ns,且波形较平滑;而拉曼光脉冲宽度为 20 ns, 比抽运光脉冲脉宽窄了很多,而且在拉曼光脉冲波形



图 5 抽运光脉冲波形图 Fig. 5 Waveform of the pump pulse for the PbWO4 Raman laser



图 6 输出一阶斯托克斯光脉冲波形图 Fig. 6 Waveform of the output first-Stokes pulse for the PbWO4 Raman laser

前沿有小波包的出现。小波包是由剩余的少量抽运 光产生的。这是由于达到拉曼振荡阈值后,拉曼光 的脉冲信号波形开始建立,由抽运光的脉冲后沿对 其进行放大,并形成稳定的激光输出,直到抽运功率 下降到阈值以下,脉冲才结束。一般抽运光的脉冲 前沿急剧上升,后沿缓慢下降有利于实现受激拉曼 散射。从图 5 中可以看出实验中的抽运光是有利于 实现受激拉曼散射的。在受激拉曼散射的过程中, 初期一阶斯托克斯光还没产生明显的转换,抽运光 脉冲保持输入的形状;接下来,一阶斯托克斯光迅速 增长,抽运光很快被消耗掉,造成其脉冲波形后沿快 速下降,同时拉曼光脉冲前沿非线性增长,由于非线 性增长使得拉曼光的脉冲宽度比抽运光脉宽要窄。 拉曼光的脉宽比抽运光的窄,出现脉宽压缩,这也是 受激拉曼散射的特点之一。

#### 3.3 拉曼光的能量输出特性

实验中测得一阶斯托克斯光的输出能量和转换 效率随注入抽运能量的变化关系如图 7 和图 8 所示。



图 7 输出一阶斯托克斯光脉冲能量与注入抽运 光能量的关系

Fig. 7 Output energy of the first-Stokes pulse versus pump energy for the PbWO<sub>4</sub> Raman laser



图 8 一阶斯托克斯光转换效率与注入抽运光 能量的关系

Fig. 8 First-Stokes conversion efficiency versus pump energy for the PbWO<sub>4</sub> Raman laser

图 7 和图 8 中的点是实验测量的结果,虚线为 理论计算的结果,实线是对实验结果的线性拟合分 析。转换效率的实验结果一般都小于理论结果。这 是因为在实验中,光的横向分布是高斯分布的,而在 理论计算中,传输耦合波方程是基于平面波近似建 立的,认为光束在横向均匀分布,并且忽略了其他的 非线性效应,比如受激布里渊散射、自聚焦、自相位 调制等。同时,实验中光束质量的缺陷及抽运光与 拉曼光之间模式的不完全匹配都限制了散射光的转 换效率。

从图 7 和图 8 可以看出,输出的一阶斯托克斯 光脉冲能量和转换效率都随着注入抽运光能量的增 加而增加。实验得到 PbWO4 晶体外腔拉曼转换的 阈值能量约为 13 mJ,斜效率为 32.4%。当注入抽 运光能量为42 mJ时,获得的拉曼光脉冲最大输出 能量为10 mJ,相对应的一阶斯托克斯光转换效率 为24%。

外腔式结构通常可以获得更高的受激拉曼散射 效率,转换效率可以达到 50%以上。本文得到的转 换效率较低,主要是由以下原因造成的:PbWO4 晶 体两通光端面进行抛光但未镀膜,由于 PbWO4 晶 体的折射率为 2.15,单面透射率只有 85%,所以自 身对光的损耗比较大。而且所用晶体的加工精度达 不到激光晶体的要求,晶体的纯度和端面的抛光精 度都比较低,当抽运光的能量达到 44 mJ 时,晶体通 光端面出现损伤。若对晶体进行精加工和镀膜,散 射光转换效率的提升空间还是很大的。

# 4 结 论

利用主动调 Q 的 Nd: YAG 激光器产生的1064 nm 纳秒脉冲作为抽运源,研究了外腔式 PbWO4 拉曼激光 器的输出特性。实验中获得了 1177.6 nm 一阶斯托克 斯光最大输出能量为 10 mJ,最高转换效率为 24%。实 验结果表明,PbWO4 晶体是一种性价比很高的拉曼介 质,适合用于高能量纳秒脉冲的频率转换,同时外腔型 结构也是提高 PbWO4 晶体拉曼输出性能的有效方式。

#### 参考文献

- 1 P. Cerny, P. G. Zverev, H. Jelinkova *et al.*. Efficient Raman shifting of picosecond pulses using BaWO<sub>4</sub> crystal [J]. Opt. Commun., 2000, 177(1-6): 397~404
- 2 T. T. Basiev, A. A. Sobol, Y. K. Voronko *et al.*. Spontaneous Raman spectroscopy of tungstate and molybdate crystals for Raman lasers[J]. *Opt. Mater.*, 2000, **15**(3): 205~216
- 3 A. A. Kaminskii, Hans J. Eichler, K. Ueda *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
- 4 Wang Zhengping, Hu Dawei, Zhang Huaijin *et al.*. External resonator SrWO<sub>4</sub> Raman laser excited by 1064 nm pico-second pulses[J]. *Chinese J. Lasers*, 2010, **37**(2): 335~338 王正平, 胡大伟, 张怀金 等. 1064 nm 皮秒脉冲激发的外腔式
- SrWO<sub>4</sub> 拉曼激光器[J]. 中国激光, 2010, **37**(2): 335~338 5 Su Fufang, Zhang Xingyu, Wang Qingpu *et al.*. Passively Q-
- switched Nd: GdVO<sub>4</sub> self-Raman laser[J]. Acta Optica Sinica, 2007, **27**(10): 1831~1835 苏富芳,张行愚,王青圃 等. 被动调 Q 自拉曼 Nd: GdVO<sub>4</sub> 激光
- 器[J]. 光学学报, 2007, **27**(10): 1831~1835
- 6 Zhang Xingyu, Wang Qingpu, Chang Jun et al.. All solid state intracavity frequency-doubled Nd: YAG/SrWO<sub>4</sub>/KTP Raman laser[J]. Chinese J. Lasers, 2009, **36**(7): 1798~1801 张行愚, 王青圃, 常 军等. 全固体腔内倍频 Nd: YAG/SrWO<sub>4</sub>/ KTP 拉曼激光器[J]. 中国激光, 2009, **36**(7): 1798~1801
- 7 Wang Zhengping, Hu Dawei, Zhang Huaijin et al.. High efficiency stimulated Raman scattering of BaWO<sub>4</sub> crystal [J]. Chinese J. Lasers, 2009, **36**(8): 2130~2134 王正平, 胡大伟, 张怀金 等. BaWO<sub>4</sub> 晶体的高效受激拉曼散射 [J]. 中国激光, 2009, **36**(8): 2130~2134

- 8 C. Zhang, X. Y. Zhang, Q. P. Wang *et al.*. Efficient extracavity Nd: YAG/BaWO<sub>4</sub> Raman laser [J]. *Laser Phys. Lett.*, 2009, 6(7): 505~508
- 9 Su Fufang, Zhang Xingyu, Wang Qingpu *et al.*. Output properties of external resonator SrWO<sub>4</sub> Raman laser[J]. *Acta Optica Sinica*, 2006, **26**(5): 693~696 苏富芳,张行愚, 王青圃 等. 外腔式 SrWO<sub>4</sub> 拉曼激光器的输出 特性研究[J]. 光学学报, 2006, **26**(5): 693~696
- 10 Jing Xu, Chen Gao, Mao Rui. Investigation of characteristics of stimulated Raman scattering in Ba(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub> crystal at ultraviolet wave band[J]. *Chinese J. Lasers*, 2010, **37**(8): 1950~1955 井 旭,陈 高,毛 瑞. 硝酸钡晶体紫外波段受激拉曼散射特性研究[J]. 中国激光, 2010, **37**(8): 1950~1955
- 11 Y. M. Duan, F. G. Yang, H. Y. Zhu *et al.*. Continuous-wave 560 nm light generated by intracavity SrWO<sub>4</sub> Raman and KTP sum-frequency mixing [J]. *Opt. Commun.*, 2010, **283** (24): 5135~5138
- 12 Ding Shuanghong, Zhang Xingyu, Wang Qingpu et al.. Theoretical and experimental research on the multi-frequency Raman converter with KGd(WO<sub>4</sub>)<sub>2</sub> crystal[J]. Opt. Express, 2005, 13(25): 10120~10128
- 13 T. T. Basiev, A. A. Sobol, Y. K. Voronko *et al.*. Spontaneous and stimulated Raman scattering in ZnWO<sub>4</sub> crystals [J]. *Quantum Electron.*, 2011, **41**(4): 370~372
- 14 J. Findeisen, Hans J. Eichler, A. A. Kaminskii. Efficient picosecond PbWO<sub>4</sub> and two-wavelength KGd(WO<sub>4</sub>)<sub>2</sub> Raman laser in the IR and visible [J]. *IEEE J. Quantum Electron.*, 1999, 35(2): 173~178
- 15 Ding Shuanghong. Theoretical and Experimental Research on All Solid-State Raman Lasers [D]. Jinan: Shandong University, 2006. 18 丁双红 今田太拉島激光界理论与实验研究[D] 这声 山太士

丁双红.全固态拉曼激光器理论与实验研究[D].济南:山东大学,2006.18

16 Lin Shaojie, Ding Shuanghong, Zhang Jun *et al.*. Theoretical research on coherent anti-Stokes Raman shifters of Stokes seed method in Raman crystals[J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2011, **48**(7): 071402 林绍杰,丁双红,张 骏等.斯托克斯光种子法固体相干反斯托 克斯拉曼频移器的理论研究[J]. 激光与光电子学进展, 2011,

**48**(7): 071402 17 A. A. Kaminskii, Hans J. Eichler, K. Ueda *et al.*, Properties

- of Nd<sup>3+</sup> doped and undoped tetragonal PbWO<sub>4</sub>, NaY(WO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>, CaWO<sub>4</sub>, and undoped monoclinic ZnWO<sub>4</sub> and CdWO<sub>4</sub> as laseractive and stimulated Raman scattering-active crystals[J]. *Appl. Opt.*, 1999, **38**(21): 4533~4547
- 18 C. He, T. H. Chyba. Solid-state barium nitrate Raman laser in the visible region [J]. Opt. Commun., 1997, 135 (4-6): 273~278
- 19 A. A. Kaminskii, C. L. McCray, H. R. Lee *et al.*. High efficiency nanosecond Raman lasers based on tetragonal PbWO<sub>4</sub> crystals[J]. Opt. Commun., 2000, 183(1-4): 277~287
- 20 Gad M. A. Gad, Hans J. Eichler, Alexander A. Kaminskii *et al.*. Highly efficient 1. 3-μm second-Stokes PbWO<sub>4</sub> Raman laser [J]. Opt. Lett., 2003, 28(6): 426~428
- 21 I. S. Mirov, W. Fedorov, I. S. Moskalev *et al.*. Spectroscopic characterization of Ho<sup>3+</sup> doped PbWO<sub>4</sub> crystals for laser and stimulated Raman scattering applications in the mid-infrared spectral range[J]. Opt. Mater., 2008, **31**(1): 94~101
- 22 W. Chen, Y. Inagawa, T. Omatsu *et al.*. Diode-pumped, selfstimulating, passively Q-switched Nd<sup>3+</sup>:PbWO<sub>4</sub> Raman laser [J]. Opt. Commun., 2001, **194**(4-6): 401~407
- 23 Xiong Wei, Chen Liang, Yuan Hui. Study on spectral properties of self-stimulating Raman crystal Er: PbWO<sub>4</sub> [J]. J. Synthetic Crystals, 2010, **39**(1): 5~9

熊 巍,陈 良,袁 晖. 自拉曼激光晶体 Er:PbWO4的光谱性 质研究[J]. 人工晶体学报, 2010, **39**(1): 5~9