

## 单频连续波金刚石拉曼激光器研究进展 (特邀)

李牧野<sup>1</sup>, 杨学宗<sup>1,2\*</sup>, 孙玉祥<sup>1</sup>, 白振旭<sup>3</sup>, 冯 衍<sup>1,4</sup>

- (1. 国科大杭州高等研究院 物理与光电工程学院, 浙江 杭州 310024;
2. 山东大学 晶体材料国家重点实验室, 山东 济南 250100;
3. 河北工业大学 先进激光技术研究中心, 天津 300401;
4. 中国科学院上海光学精密机械研究所, 上海 201800)

**摘要:** 受激拉曼散射增益具有无空间烧孔特性, 通过简单的腔型设计, 拉曼激光器即可实现稳定单纵模运转。同时拉曼激光波长灵活, 因此拉曼激光器在特殊波长单频激光领域具有重要技术优势。近年来, 随着金刚石合成技术的突破, 以金刚石作为增益介质的单纵模、高功率拉曼激光器获得了快速发展。文中简要介绍了拉曼激光器的单纵模运行机制; 总结了单纵模金刚石拉曼激光器的研究进展; 并对单纵模金刚石拉曼激光器的发展趋势进行了展望。

**关键词:** 金刚石; 固体激光器; 单纵模; 受激拉曼散射

**中图分类号:** O437 **文献标志码:** A **DOI:** 10.3788/IRLA20210970

## Single-frequency continuous-wave diamond Raman laser (*Invited*)

Li Muye<sup>1</sup>, Yang Xuezhong<sup>1,2\*</sup>, Sun Yuxiang<sup>1</sup>, Bai Zhenxu<sup>3</sup>, Feng Yan<sup>1,4</sup>

- (1. School of Physics and Optoelectronic Engineering, Hangzhou Institute for Advanced Study, UCAS, Hangzhou 310024, China;
2. State Key Laboratory of Crystal Materials, Shandong University, Jinan 250100, China;
3. Center for Advanced Laser Technology, Hebei University of Technology, Tianjin 300401, China;
4. Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China)

**Abstract:** Stimulated Raman scattering is a mature technology that provides laser outputs with flexible wavelengths. Stable single-longitudinal-mode (SLM) Stokes is able to be achieved in a simply designed oscillator due to the nature of spatial hole burning free of Raman gain. Therefore, the Raman laser is considered as an attractive and potential method to generate SLM output with a particular wavelength. As the single-crystal diamond synthetic technology matures, high-power continuous-wave SLM diamond Raman lasers have been widely investigated for the past few years. In this review, the mechanism of Raman SLM operation in Raman oscillator and the state art of the SLM diamond Raman lasers are summarized. At last, the future investigations of continuous-wave SLM diamond Raman lasers are proposed.

**Key words:** diamond; solid state laser; single-longitudinal mode; stimulated Raman scattering

收稿日期: 2021-12-15; 修订日期: 2022-01-13

基金项目: 国家自然科学基金 (62005073); 河北省自然科学基金 (F2020202026); 光电信息技术教育重点实验室 (天津大学) 开放基金 (2021KFKT012); 山东大学晶体材料国家重点实验室开放课题 (KF2101)

作者简介: 李牧野, 男, 博士后, 博士, 主要从事拉曼激光器方面的研究。

通讯作者: 杨学宗, 男, 副研究员, 博士, 主要从事固体激光器、光纤激光器方面的研究。

## 0 引言

受激拉曼散射效应 (SRS) 作为一种三阶非线性效应, 是拓宽激光波长范围的重要技术手段。单频 (单纵模) 拉曼激光器具有较窄的光谱线宽, 并且可以实现高功率激光输出, 因此在许多领域都具有重要的应用价值。如激光雷达中, 拉曼激光器可用于大气检测和气体探测, 这通常需要稳定的窄线宽输出 (大约 100 kHz 量级) 来保证足够的精确度; 特殊材料的探测往往需要拉曼技术来提供特定波长的激光<sup>[1-2]</sup>; 在纳导星技术中, 激光波长需精确对准钠原子 D<sub>2a</sub> 的吸收谱线, 即 589.1591 nm, 基于 SRS 技术的单频拉曼激光解决了该波段缺乏高效增益介质的难题, 而且可以提供线宽小于钠谱线自然线宽 (10 MHz) 的高功率激光输出<sup>[3-7]</sup>。此外, 在冷原子、量子计算、光镊、激光同位素分离等领域<sup>[8-12]</sup>, 单频拉曼激光器可为特殊波长窄线宽光源需求提供切实可行的技术方案。

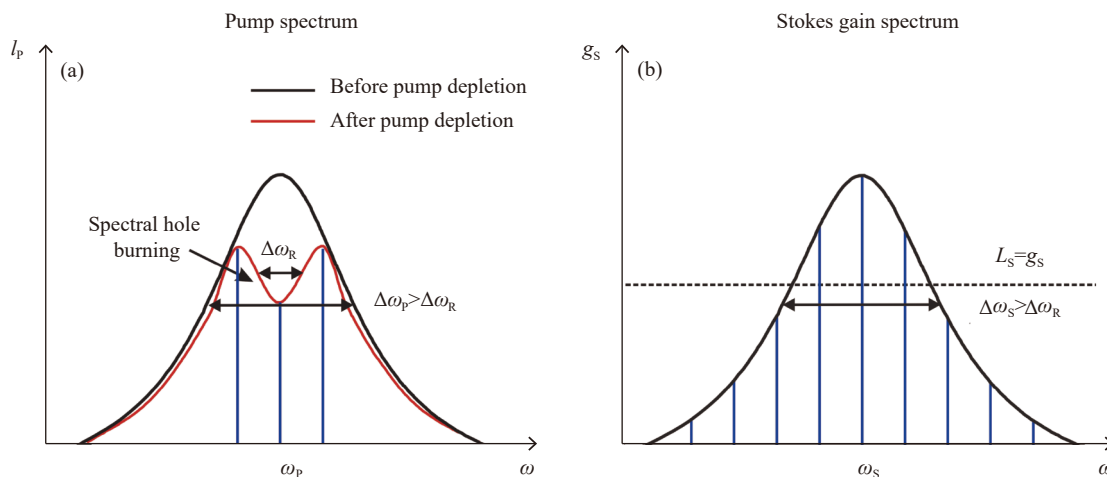
尽管单频拉曼激光器的研究较为深入<sup>[6,13-18]</sup>, 但是实现单纵模斯托克斯光输出的技术方案仍较为传统, 包括短腔法、腔内插入标准具、种子注入等<sup>[19]</sup>。同时, 受限于拉曼增益介质的热学性能, 单频拉曼激光器的输出功率相对较低。金刚石是一种光学性能优异的拉曼晶体材料, 在已知拉曼晶体中有着最大的拉曼频移量 (1332.3 cm<sup>-1</sup>) 和拉曼增益系数 (1 μm 波段增益系数高达 10 cm/GW); 金刚石的拉曼增益线宽较窄, 约为 45 GHz; 金刚石的通光范围极宽, 从紫外 (230 nm) 至远红外 (100 μm) 均具有较高的透射率; 此外, 金刚石还具有其他任何晶体材料都无法比拟的超

高热导率 (2 000 W·m<sup>-1</sup>·K<sup>-1</sup>)<sup>[20]</sup>, 并且其热光系数适中 (15×10<sup>-6</sup> K<sup>-1</sup>), 热涨系数更小 (1.1×10<sup>-6</sup> K<sup>-1</sup>), 因此在高功率运转的拉曼谐振腔中金刚石晶体的热透镜效应较弱<sup>[21]</sup>。综上所述, 金刚石晶体可作为高功率、窄线宽、特殊波长拉曼激光器的理想增益介质。

随着单晶金刚石晶体生长工艺的日益完善, 金刚石拉曼激光器的研究, 特别是在高功率单频金刚石拉曼激光领域获得了长足发展。文中根据金刚石拉曼激光器产生与维持单纵模运转的机理, 系统性阐述和总结单频金刚石拉曼激光器的研究进展, 并展望未来的发展方向。

## 1 拉曼激光器实现单纵模输出的机理

常见的外腔固体拉曼激光器, 其拉曼激光谐振腔的自由光谱范围 (即斯托克斯纵模模式间隔) 通常远小于拉曼介质的增益带宽, 因此增益带宽内允许多个纵模振荡。拉曼激光器的斯托克斯光增益曲线, 是泵浦光光谱曲线和增益介质的拉曼增益曲线的卷积<sup>[22]</sup>。如图 1(a) 所示, 在 SRS 效应中, 斯托克斯光增益通过消耗泵浦光能量获得, 泵浦光光谱范围内某频率附近能量的消耗只与该频率所对应的拉曼下转换频率最接近的斯托克斯光纵模的增益相对应。当泵浦光的光谱带宽  $\Delta\omega_p$  大于拉曼增益介质的增益曲线宽度  $\Delta\omega_R$  时, 假设拉曼介质增益曲线范围内只有一个斯托克斯模式产生, 该斯托克斯模式将不能完全消耗整个泵浦带宽范围内的泵浦能量, 导致泵浦光光谱出现烧孔现象, 剩余的泵浦能量将允许额外的斯托克斯模式振荡; 同时,  $\Delta\omega_p$  与  $\Delta\omega_R$  卷积



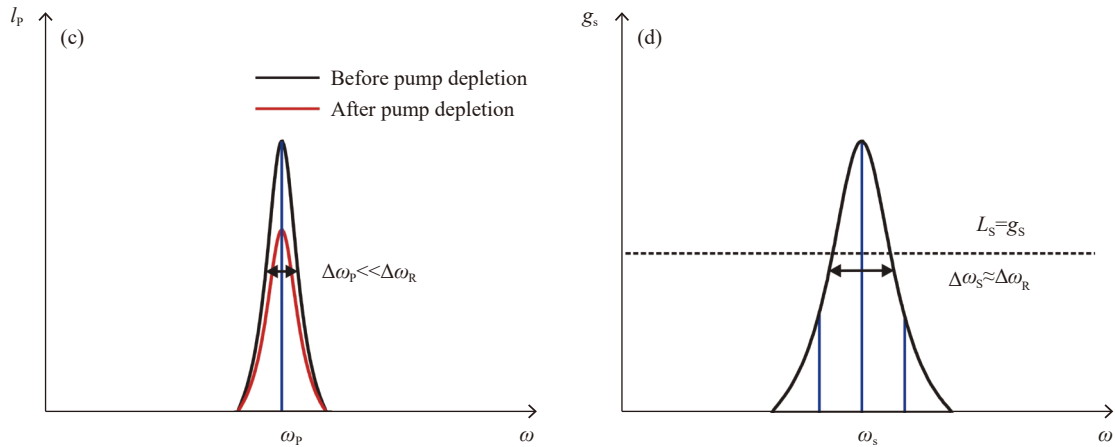


图 1 当泵浦光带宽大于 ((a), (b)) 与远小于 ((c), (d)) 拉曼增益曲线宽度时, 泵浦光的光谱曲线与斯托克斯光的增益曲线

Fig.1 Pump spectrum and Stokes gain spectrum when pump linewidth is longer ((a), (b)) and shorter ((c), (d)) than the Raman gain linewidth

得到的斯托克斯光的增益曲线线宽  $\Delta\omega_S$  将大于拉曼增益介质的增益曲线宽度  $\Delta\omega_R$ , 更多的斯托克斯模式满足增益  $g_S$  等于损耗  $L_S$  的振荡条件, 导致输出的斯托克斯光变为多纵模运转(图 1(b))<sup>[23]</sup>。因此, 为实现单纵模斯托克斯激光输出, 泵浦激光的光谱宽度要远小于拉曼介质增益带宽, 如图 1(c) 所示, 斯托克斯光增益曲线线宽  $\Delta\omega_S$  近似于拉曼增益介质的增益曲线线宽  $\Delta\omega_R$ 。此时拉曼增益类似于粒子数反转增益激光器中的均匀加宽增益, 振荡的斯托克斯模式可以均匀的消耗泵浦场, 对于其他斯托克斯纵模的增益产生较强的饱和效应。由于该模式竞争机制的存在, 输入功率在阈值附近时, 拉曼激光器可以实现较稳定的单纵模运转(图 1(d)), 而且拉曼介质声子振幅(即拉曼增益)与斯托克斯光振幅成正比, 这有助于促进和维持该斯托克斯模式的振荡。

## 2 拉曼增益无空间烧孔效应实现单纵模输出

拉曼激光器与粒子数反转激光器对于驻波腔中的驻波场具有不同的响应。如图 2 所示, 拉曼过程中, 泵浦光与介质相互作用, 将泵浦能量直接转化为斯托克斯光输出与介质声子振动, 没有泵浦能量储存, 因此增益介质内不存在空间烧孔效应。此外, 由于拉曼增益介质的声子场振幅与斯托克斯光强度呈正相关<sup>[24]</sup>, 驻波腔内斯托克斯振荡峰(驻波腔波腹部分)给予振荡波长(频率)的拉曼增益一个正向反馈, 进一步强化该斯托克斯纵模振荡, 最终加强驻波腔单纵模运转的稳定性。而反转粒子数激光器由于增益

饱和现象, 在波腹位置反转粒子数下降, 导致空间烧孔的产生, 这给驻波腔的稳定性带来了负反馈, 使该腔内单纵模稳定性下降。空间烧孔效应是粒子数反转激光器实现单纵模运转的主要技术障碍, 通常需要设计复杂的行波腔结构抑制该效应<sup>[25]</sup>, 与之相比, 拉曼激光器通过行波腔或驻波腔均可实现单纵模输出。

2016 年, 澳大利亚麦考瑞大学的 Oliver Lux 等人在线型驻波腔中, 采用光谱线宽 40 MHz、波长 1 062.8~

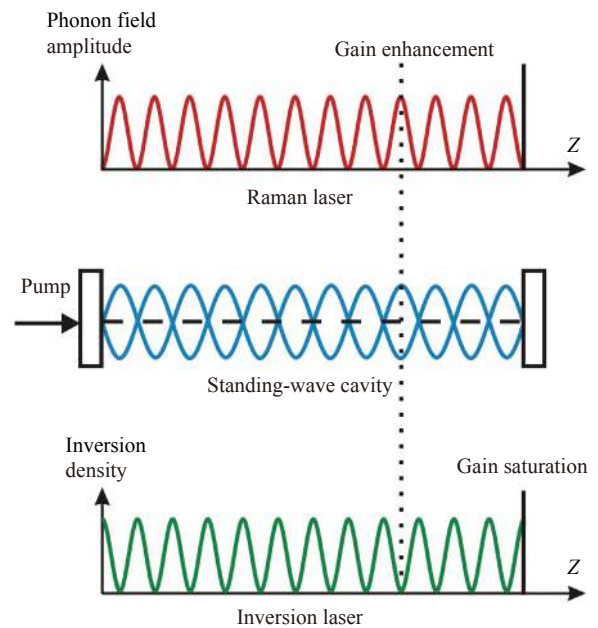


图 2 驻波腔的驻波场对拉曼激光器的声子场振幅与粒子数反转激光器的反转粒子数的作用

Fig.2 Response of phonon field amplitude in Raman laser and the inversion density in a conventional laser when the standing-wave cavity is resonating

1 065.4 nm 可调谐的单频激光器作为泵浦, 利用拉曼增益无空间烧孔效应特性, 首次实现了外腔金刚石拉曼激光器的一阶斯托克斯光单纵模输出<sup>[26]</sup>。得到了

最大输出功率 4 W 的单纵模激光, 斜率效率高达 62%, 单纵模斯托克斯光输出波长在 1 238.1~1 241.9 nm 范围内可调。装置如图 3 所示。

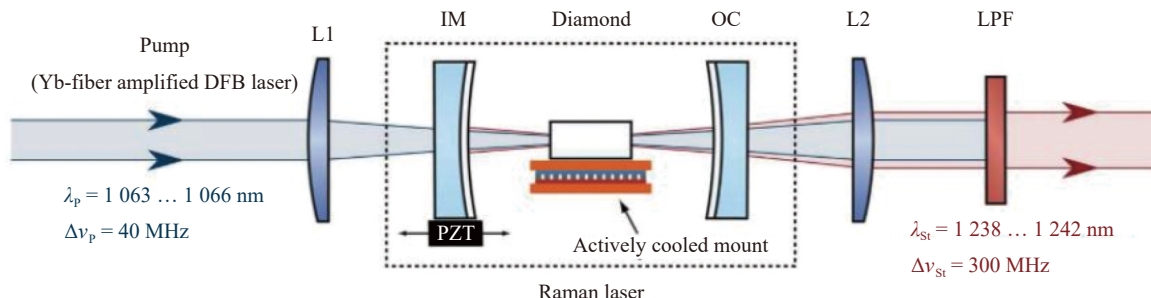


图 3 利用受激拉曼散射的无空间烧孔特性实现单纵模输出拉曼谐振腔光路图。IM 为输入镜, OC 为输出镜, LPF 为长波通滤波器, L1 和 L2 为透镜<sup>[26]</sup>

Fig.3 Schematic of the Raman oscillator based on the free spatial hole burning property in SRS. IM: input mirror, OC: output coupler, LPF: long-pass filter, L1 and L2: lenses<sup>[26]</sup>

拉曼增益的无空间烧孔效应是该谐振腔实现稳定单纵模激光输出的必要因素。实验中, 拉曼振荡阈值功率约为 14 W, 随着泵浦功率的增加, 在泵浦功率高于阈值功率 80% 时依然能够维持单纵模拉曼激光输出。相比之下, 相似条件的粒子数反转激光器由于空间烧孔效应, 只能在阈值附近实现单纵模输出。图 4 是利用自由光谱范围 10 GHz, 光谱分辨率 60 MHz

的法布里-珀罗扫描干涉仪, 测量得到的不同输出功率下的斯托克斯光纵模特性。当输出功率为 1~4 W 时, 斯托克斯光维持单纵模运转, 其线宽是扫描干涉仪的分辨率极限。当输出功率增长至 5 W 时, 出现了新的纵模, 随着功率的进一步增加, 输出的斯托克斯光变成多纵模振荡。在该装置中, 作者通过实验证实, 虽然谐振腔并非泵浦谐振设计, 但是因寄生振荡引起的微弱泵浦谐振效应对拉曼激光输出的功率和单纵模稳定性会产生不利影响。同时, 作者定量分析了热效应 (热胀系数、热光系数) 导致的谐振腔腔长变化对谐振腔稳定性和单纵模稳定性产生的不利影响。此外, 激光器系统本身对环境温度、振动、噪声等比较敏感, 单纯依靠拉曼激光器自身的无空间烧孔效应, 维持高功率单纵模运转较为困难。

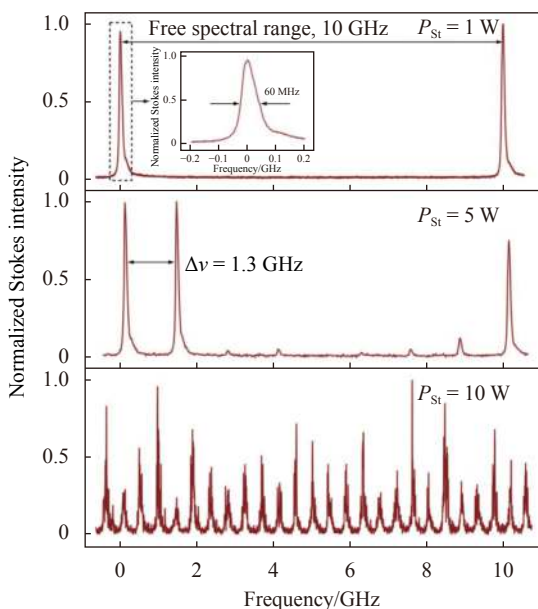


图 4 通过法布里-珀罗扫描干涉仪得到的拉曼激光输出谱线图<sup>[26]</sup>

Fig.4 Scanning Fabry-Pérot interferometer traces of the Raman laser emission<sup>[26]</sup>

### 3 通过腔长锁定提高单纵模运转稳定性

随着泵浦功率的提升, 热致腔长变化使得激光器的输出功率稳定性与单纵模运转稳定性下降。为了实现更高功率下的单纵模输出, 可使用压电陶瓷配合主动锁腔方法进行腔长锁定, 从而提升谐振腔稳定性。

2019 年, 麦考瑞大学的 Soumya Sarang 等人使用光谱线宽 5 MHz 的 1 064 nm 单频激光器泵浦金刚石驻波谐振腔, 实现了输出功率 4.5 W, 频率稳定度 125 MHz

的单纵模拉曼激光的 2 min 稳定输出。当单纵模输出功率为 7.2 W 时,单纵模稳定运行时间缩短到数秒<sup>[27]</sup>。装置如图 5 所示,作者利用腔镜带有的 1% 的泵浦反射,使用 Hänsch-Couillaud(H-C) 锁腔方法<sup>[28]</sup>,通过压电陶瓷驱动位移台,进行腔长锁定以稳定单纵模运转。若压电陶瓷直接驱动输出耦合镜,将有效提升腔长锁定的响应度与稳定性,有助于实现更高功率的稳定单纵模运行。

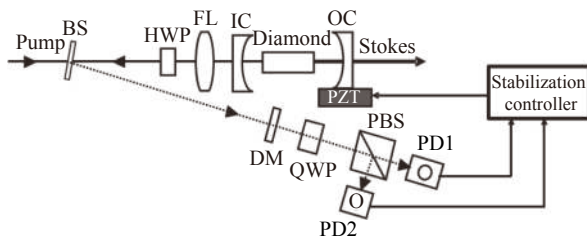


图 5 利用 H-C 锁腔方法实现单纵模输出的拉曼激光器实验装置图。BS 为光束采样镜, HWP 为半波片, FL 为聚焦透镜, IC 为输入耦合镜, OC 为输出耦合镜, PZT 为带有压电陶瓷的位移台。DM 为二向色镜, QWP 为四分之一波片, PBS 为偏振分束器, PD1 与 PD2 为光电探测器<sup>[27]</sup>

Fig.5 Schematic layout of the Raman laser by using H-C locking strategy, BS: beam sampler, HWP: half-wave plate, FL: focusing lens, IC: input coupler, OC: output coupler, PZT: piezoelectric translation stage, DM: dichroic mirror, QWP: quarter-wave plate, PBS: polarizing beam splitter, PD1 and PD2: photodetectors<sup>[27]</sup>

通过泵浦谐振的腔长锁定技术,可以有效提高腔内泵浦功率,更容易达到拉曼激光阈值。2017 年,麦考瑞大学的 Ondrej Kitzler 等人使用环形波腔设计,通过功率 5 W 的连续光泵浦输入(波长 790 nm,线宽小于 50 kHz),实现了输出功率 1 W 的 883 nm 单纵模金刚石拉曼激光输出<sup>[29]</sup>。其装置设计如图 6 所示。压电陶瓷贴在谐振腔镜后,用于改变谐振腔长度,通过 H-C 锁腔方法实现锁腔,并同时获得泵浦和一阶斯托克斯光谐振。

斯托克斯光在环形腔的正向和反向具有相同的增益,在不加干预的情况下,斯托克斯光在腔内双向传输。两个传输方向之间的竞争使得斯托克斯光的输出功率和单纵模稳定性在秒级范围波动(见图 7(a), (b))。为提高单纵模激光运转稳定性,作者采用了两种方法:用反射镜将后向输出光反馈回腔内;以及使

用 BBO 晶体,引入泵浦与前向斯托克斯光的和频效应,增加前向斯托克斯光的损耗。两种方法均抑制了

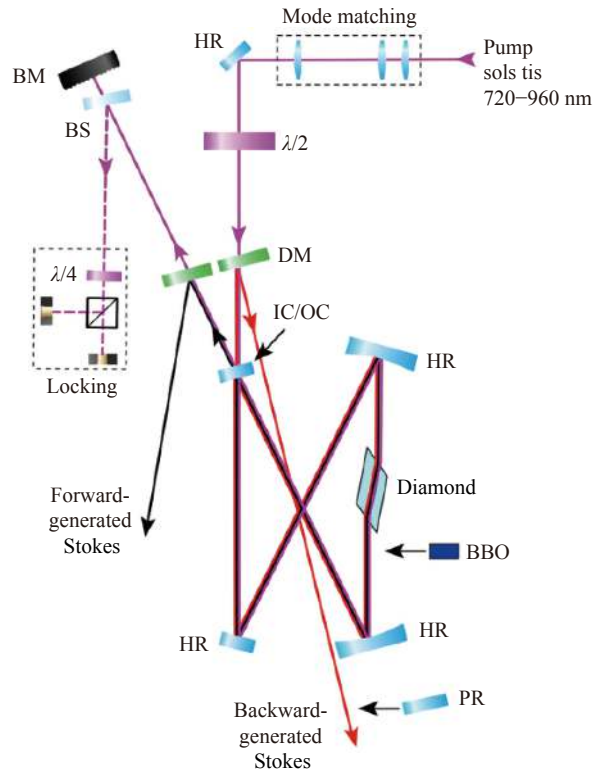
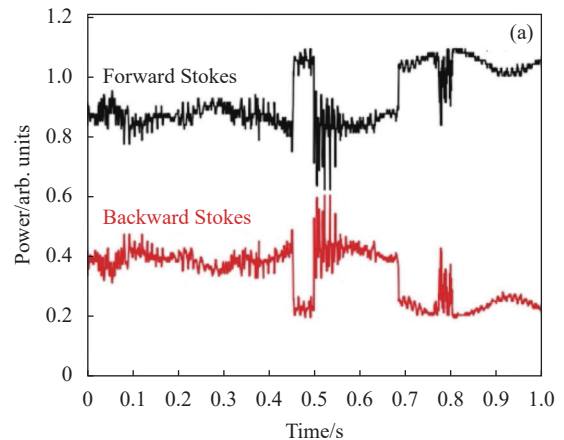


图 6 基于泵浦谐振单向环形腔的拉曼激光器实验装置图。泵浦源是 M Squared 公司的 SolsTis 钛蓝宝石激光器, HR 是高反射镜, PR 是部分反射镜, IC/OC 是输入/输出耦合镜, DM 是对斯托克斯光高反射,对泵浦光高透过的二向色镜, BS 是光束采样镜, BM 是光挡,  $\lambda/2$ ,  $\lambda/4$  分别是半波片和四分之一波片<sup>[29]</sup>

Fig.6 Schematic layout of resonant pumping Raman laser by direction control of field in the ring cavity. The Pump source is the SolsTis Ti:Sapphire laser from M Squared Lasers Ltd. HR: high reflector; PR: partial reflector; IC/OC: input/output coupler; DM: dichroic mirror, HR at Stokes, HT at pump; BS: uncoated beam sampler; BM: beam dump;  $\lambda/2$ : half-wave plate;  $\lambda/4$ : quarter-wave plate<sup>[29]</sup>



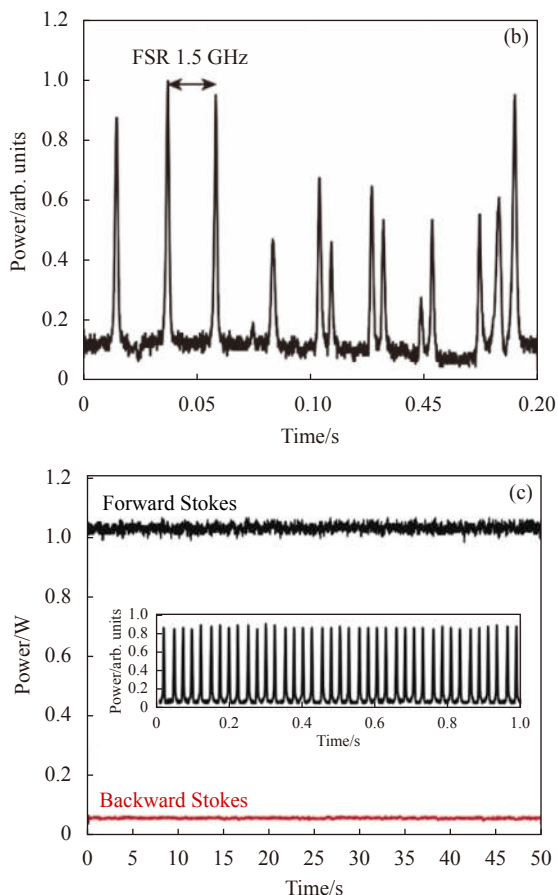


图 7 (a) 谐振腔自由运转时前向和后向斯托克斯光的时域特性; (b) 通过法布里-珀罗扫描干涉仪得到谐振腔自由运转时的斯托克斯谱线; (c) 使用反射镜反馈后, 得到腔内斯托克斯光单向运行时的前向与后向斯托克斯光时域特性, 插图显示了通过法布里-珀罗扫描干涉仪得到的稳定单纵模斯托克斯光运转<sup>[29]</sup>

Fig.7 (a) Temporal behavior of the forward Stokes and backward Stokes of the free-running Raman laser; (b) The Stokes trace of the free-running Raman laser by a scanning Fabry-Perot interferometer; (c) Temporal behavior of a unidirectional Raman laser using a feedback mirror. The inset shows stable single-mode operation of a scanning Fabry-Perot interferometer<sup>[29]</sup>

斯托克斯光的双向腔内振荡, 最终实现了稳定的单向单纵模斯托克斯光输出 (见图 7(c))。

2021 年, 山西大学的曹雪辰等人利用类似的谐振腔设计, 使用泵浦源为单纵模 1064 nm 激光, 在泵浦功率为最大值 9.17 W 时, 得到了 1.48 W 的稳定单纵模的一阶斯托克斯输出<sup>[30]</sup>。值得一提的是, 该单纵模金刚石拉曼激光器在最高输出功率时, 30 min 的功率稳定性 (RMS) 为 1.1% (见图 8)。

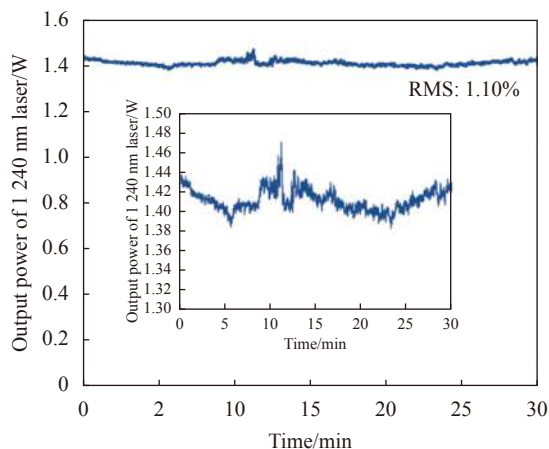


图 8 在最高输出功率时激光的功率稳定性<sup>[30]</sup>

Fig.8 Power stability of laser at highest output power<sup>[30]</sup>

2020 年, 笔者在参考文献 [29] 中工作的基础上, 利用相同的泵浦源, 在波长 855 nm, 泵浦功率 3.86 W 时, 实现了波长 1101.3 nm, 最高功率 364 mW 的二阶斯托克斯光输出, 单纵模最高输出功率为 140 mW<sup>[31]</sup>。激光器光路如图 9 所示, 装置中对环形腔内谐振的泵浦光、一阶斯托克斯光和二阶斯托克斯光均进行了单向控制。当二阶斯托克斯光和一阶斯托克斯光反向传输时, 可得到稳定的单纵模二阶斯托克斯光输出。当二阶斯托克斯光和一阶斯托克斯光同向传输时, 或一阶斯托克斯光腔内双向传输时, 二阶斯托克斯光单纵模输出将变成多纵模输出, 其原因推测为相向传输的光场抑制了腔内光场之间的噪声传递。由于所用腔镜参数并非其最优值, 一阶斯托克斯光在腔内仍然存在一定比例的反向振荡 (正、反向振荡功率比为 3 : 1), 单向性不足影响了二阶斯托克斯光的单纵模输出稳定性。因此, 通过优化腔镜设计, 二阶斯托克斯的最大单纵模输出功率可进一步提升。

#### 4 非线性多纵模自抑制实现单纵模输出

该方法最早由英国南安普敦大学 K.I Martin 等人提出<sup>[32]</sup>, 通过在谐振腔内插入倍频晶体, 实现相邻纵模的自抑制作用, 从而实现单纵模输出。其原理简述为: 在只考虑两个纵模 ( $\omega_1, \omega_2$ ) 振荡的情况下, 假设频率分别为  $\omega_1$  和  $\omega_2$  的主纵模及其相邻纵模 (边模) 的光强分别为  $I(\omega_1)$  和  $I(\omega_2)$ , 在倍频晶体中, 除  $\omega_1$  与  $\omega_2$  各自频率的倍频过程外, 还存在这两个频率的和频过程。将和频与倍频过程等效为两个纵模的损耗, 其表

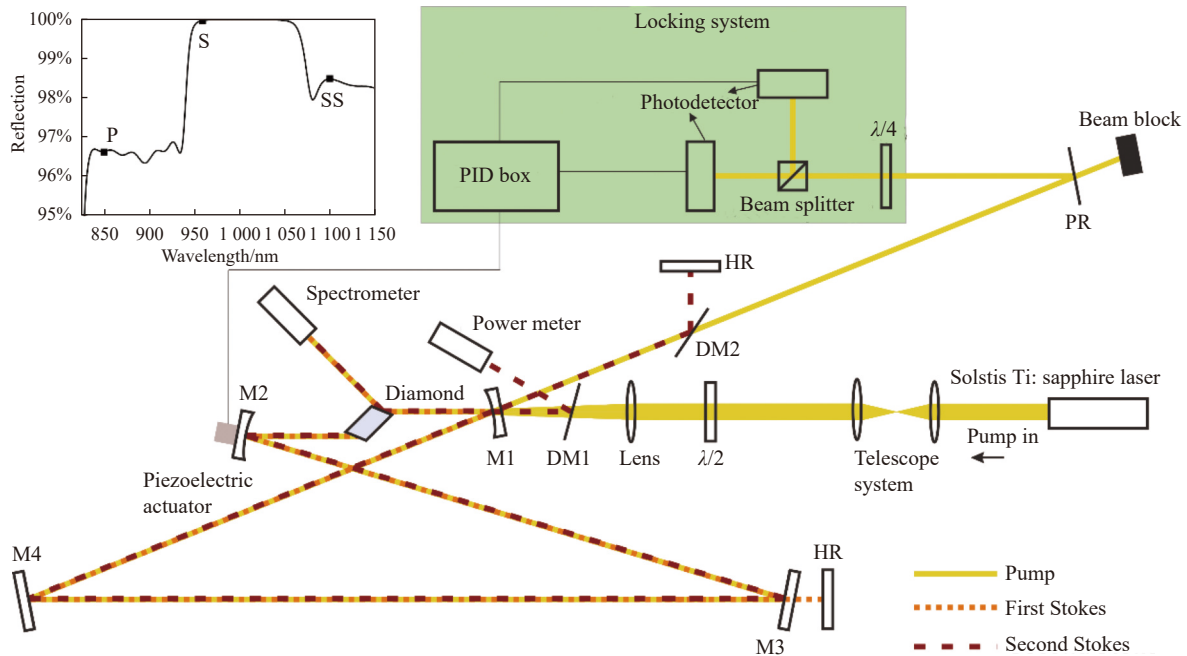


图 9 通过腔长锁定实现环形腔内二阶斯托克斯输出的光路图, 插图为 M1 腔镜的镀膜曲线, 点 P、S、SS 分别代表腔镜对泵浦光、一阶斯托克斯光与二阶斯托克斯光的反射率<sup>[31]</sup>

Fig.9 Schematic layout of the experimental setup of the second Stokes operation in ring cavity by cavity locking. Inset is the coating curve of the M1 mirror, where spot P, S and SS means the reflectivity of the M1 for pump, 1<sup>st</sup> Stokes and 2<sup>nd</sup> Stokes fields<sup>[31]</sup>

达式为:

$$\frac{L(\omega_1)}{L(\omega_2)} = \frac{kI(\omega_1) + 2kI(\omega_2)}{kI(\omega_2) + 2kI(\omega_1)} \quad (1)$$

这里的  $k$  是和非线性强度相关的常数, 由于两个相邻纵模的间隔远小于晶体的可接收带宽, 所以两个频率的  $k$  值近似相等。由于主模式的光强远大于边模光强, 也就是  $I(\omega_2) \ll I(\omega_1)$ , 上述等式趋近于 1/2, 表明光强更强的主振荡模式所受的损耗只有相邻弱振荡模式的一半。因此, 通过腔内引入倍频晶体, 可以有效增加腔内相邻模式的净增益差, 稳定激光器的单纵模运转。

2019 年, 麦考瑞大学的杨学宗等人利用一台最大功率 321 W, 光谱半高全宽 3.3 GHz 的准连续 1064 nm 多纵模 Nd:YAG 激光器作为泵浦源, 通过在金刚石驻波谐振腔中插入倍频晶体 LBO, 得到了输出功率为 11.8 W 的稳定单纵模 1240 nm 一阶斯托克斯光输出, 同时获得了输出功率 38 W 的准连续单纵模 620 nm 倍频光输出<sup>[33]</sup>, 实验装置如图 10 所示。在除倍频晶体外, 未采取其他稳定单纵模特性措施的情况下, 在最高输出功率下除偶尔跳模外, 激光器仍保持稳定的

单纵模运转。值得注意的是, 即便泵浦光为多纵模激光, 只要其线宽小于金刚石的拉曼增益线宽, 仍然可以得到单纵模斯托克斯光输出, 这极大地提高了泵浦源的灵活性。实验中作者研究了倍频晶体相位失配程度对多纵模自抑制效果的影响。如图 11 所示, LBO 晶体的最佳相位匹配温度为 40 °C, 当 LBO 晶体温度在 39.2~41.5 °C 范围内时, 拉曼激光器能够在最高泵浦功率下维持单纵模运转。随着 LBO 晶体温度过度失谐, 相位匹配程度进一步恶化, 激光器变为多纵模运转。随后, 作者利用该非线性纵模自抑制技术, 先后实现了 22 W 连续波单纵模 589 nm 金刚石拉曼钠导星激光器<sup>[3]</sup> 和 8 W 连续波单纵模 590~615 nm 可调谐金刚石拉曼激光器<sup>[34]</sup>。此外, 作者也对单纵模金刚石拉曼激光器无跳模调谐和单纵模线宽测量进行了研究, 如图 12 所示, 通过非线性纵模自抑制技术, 实现了倍频光 3.7 GHz 范围的连续无跳模调谐, 利用法布里-珀罗扫描干涉仪测得倍频光单纵模线宽约为 8.5 MHz。综上所述, 通过腔内插入倍频晶体, 可有效提高单纵模金刚石拉曼激光的输出功率和稳定性, 得益于倍频晶体 (LBO、BBO) 和金刚石晶体的高

损伤阈值,该方法有望大幅提升连续波单纵模拉曼激光的输出功率水平。

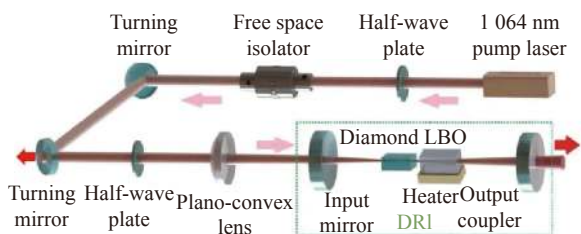


图 10 利用倍频晶体多纵模自抑制效应实现单纵模输出的拉曼激光器的光路图<sup>[33]</sup>

Fig.10 Experimental setup of the single-longitudinal mode Raman lasers by self-mode suppression effect of frequency doubling crystal<sup>[33]</sup>

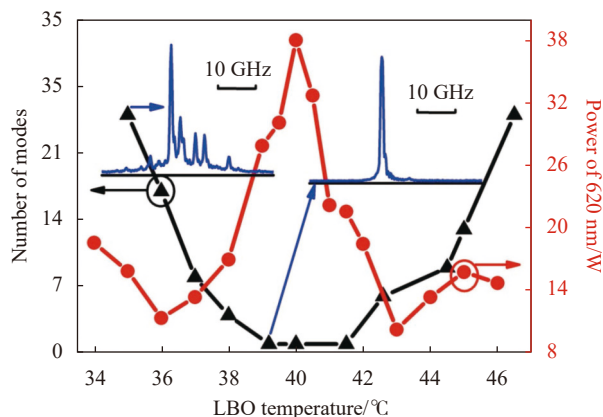


图 11 620 nm 激光输出模式数与 LBO 温度之间的关系,蓝色插图为 LBO 温度在 35.0 °C 和 39.2 °C 时的光谱<sup>[33]</sup>

Fig.11 Number of lasing modes of output power of 620 nm as a function of LBO temperature. The blue insets show spectra at temperatures of 35.0 °C and 39.2 °C<sup>[33]</sup>

虽然实验证实非线性多纵模自抑制技术可应用在单纵模拉曼激光器中,但目前还没有理论模型对拉曼激光器内的这一机制作出定量描述。在粒子数反转激光器领域,2014 年,山西大学的卢华东等人根据粒子数反转激光器的增益饱和性质,提出了非线性多纵模自抑制效应的定量描述<sup>[35]</sup>,将谐振腔内线性损耗与非线性损耗,以及激光晶体的光谱带宽和非线性晶体的非线性可接收带宽等变量,与谐振腔的单纵模谐振和多纵模谐振条件定量联系。其研究对二次谐波的多纵模抑制效应在拉曼增益激光器中的理论模型推导具有重要参考价值。

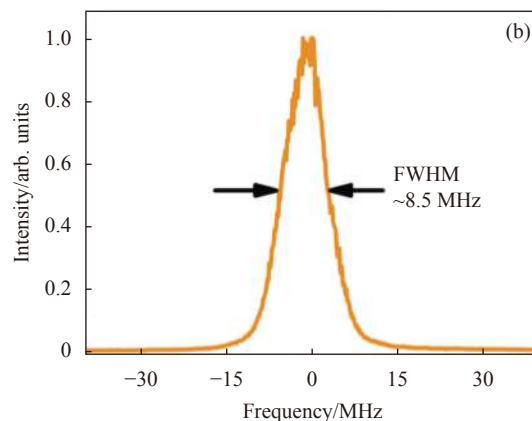
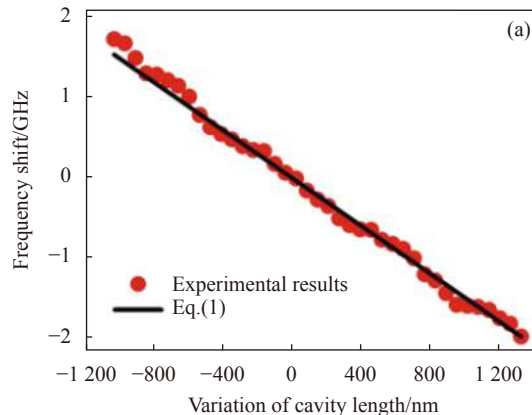


图 12 (a) 输出光频移和腔长的关系; (b) 通过法布里-珀罗扫描干涉仪得到的 589 nm 单频激光的光谱特性

Fig.12 (a) Frequency shift as a function of cavity length for output light; (b) Scanning Fabry-Perot interferometer trace of the single-frequency 589 nm laser

## 5 插入选模元件实现单纵模输出

腔内插入选模元件是一种获得单纵模激光输出的有效手段,在单纵模拉曼激光器和单纵模粒子数反转激光器中应用广泛<sup>[4,36-38]</sup>。选模元件包括 F-P 标准具、双折射滤光器 (BRF)、衍射光栅/体布拉格光栅 (VBG) 等。这些选模元件可以单独使用,也可以组合使用以提升选模效果,并且可以通过温度控制和旋转等方法实现一定范围的波长调谐。

2016 年,麦考瑞大学的 Oliver Lux 等人利用第 2 节中描述的波长 1062.8~1065.4 nm 可调谐的单频激光器作为泵浦源,采用对一阶斯托克斯光低透射 ( $T \sim 1\%$ ),对二阶斯托克斯光部分透射 ( $T \sim 30\%$ ) 的谐振腔镜镀膜,实现了最高输出功率 0.1 W 的单纵模 1483~1488 nm 二阶斯托克斯光输出。随着输出功率



的进一步提升,输出激光变为多纵模运转。为实现更高功率的单纵模二阶斯托克斯光输出,作者等人在输出耦合镜 M2 后插入体布拉格光栅 (VBG),该 VBG 在 1486 nm 的反射率为 55%,反射带宽为 100 pm。如图 13 所示,VBG 作为选模元件被加入到输出耦合镜之后,与 M1 镜子组成了另一个谐振腔,使得二阶斯托克斯光在此谐振腔内振荡并实现选模过程。通过这种利用 VBG 作为腔镜形成耦合腔的方式,将单纵模二阶斯托克斯光输出功率提升 5 倍,最终实现输出功率 0.5 W,频率稳定度 40 MHz 的单纵模 1480 nm 激光输出<sup>[1]</sup>。

图 14(a) 为 VBG 插入前后的输出光谱对比,图 14(b) 为波长计在 90 s 时间内测得的激光频率稳定度。

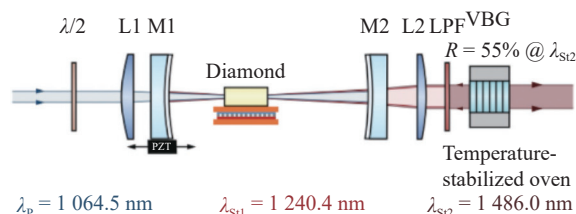


图 13 利用 VBG 实现单纵模输出的拉曼激光器实验光路图<sup>[1]</sup>

Fig.13 Experimental setup of the single-longitudinal mode Raman lasers by using VBG<sup>[1]</sup>

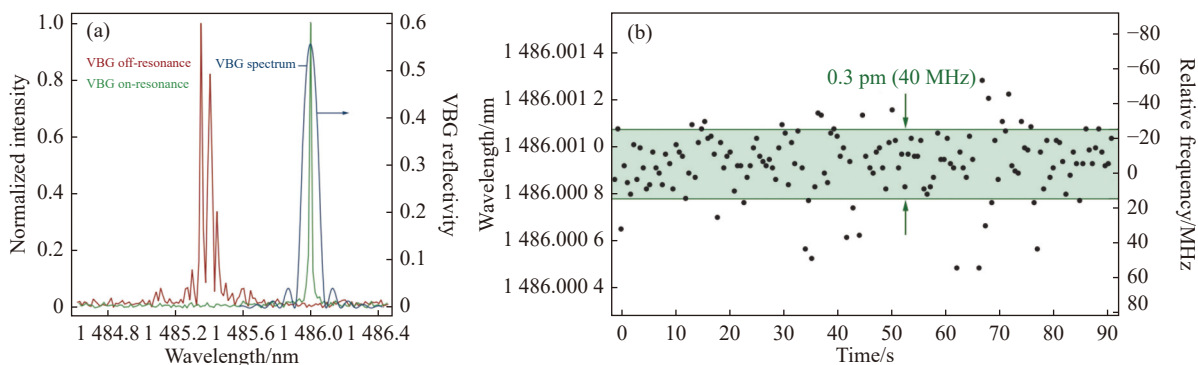


图 14 (a) VBG 插入前后的斯托克斯输出光谱对比; (b) 在 0.5 W 斯托克斯功率下使用波长计测得的 90 s 激光频率稳定度<sup>[1]</sup>

Fig.14 (a) Stokes output spectra with and without optical feedback from the volume Bragg grating (VBG); (b) Temporal fluctuations of the center wavelength in 90 s measured at 0.5 W Stokes power<sup>[1]</sup>

尽管插入选模元件可以提高单纵模激光的输出功率和运行稳定性,但是谐振腔内插入选模元件会导致腔内损耗显著增加,造成较高的激光振荡阈值。此外,受限于插入元件的热畸变或热损伤效应,激光器输出功率较低。因此腔内插入选模元件的方案在高功率单纵模拉曼激光器中应用受限。

## 6 总结与展望

文中总结了单纵模金刚石拉曼激光器的研究进展,并分析了实现和稳定单纵模输出的技术手段。拉曼增益的类均匀加宽特性和无能量存储过程是拉曼激光器实现单纵模运转的基础。相比粒子数反转激光器,拉曼激光器没有空间烧孔效应,使得拉曼激光器能够在简单、易维护的驻波谐振腔中输出单纵模激光的优势。但是随着腔内功率提升,热致腔长浮动加剧,单纵模运转稳定性下降,因此需要其他辅助技术

实现高功率稳定单纵模拉曼激光运转。

选模元件法的特点是简单且直接,但由于插入选模元件导致较大的腔内损耗,致使拉曼激光器阈值升高,从而影响激光转化效率;同时,选模元件的抗热损伤能力较差。因此选模元件在单纵模拉曼激光器中,尤其是外腔连续波拉曼激光器中应用受限。通过谐振腔腔长锁定技术,可实时补偿热致或外部环境导致的腔长变化,提高单纵模运转的稳定性。目前锁腔金刚石单纵模拉曼激光器中,基本都采用 Hänsch-Couillaud(H-C)锁腔方法,针对泵浦信号的强度变化进行锁腔。但这种方法需要谐振腔内具有偏振元件,或利用晶体双折射产生正交偏振信号差异,相比之下 Pound-Drever-Hall(PDH)锁腔方式因其针对泵浦信号的相位进行锁定,具有更高的稳定性,因此更多地应用在超稳激光稳频领域。下一步金刚石拉曼单纵模激光器稳频亦可采用 PDH 方法。非线性多纵模自抑

制法利用了倍频晶体对边模与主模的损耗差别,实现对边模的抑制。纵模抑制效果与倍频晶体的相位匹配程度密切相关。相比于使用选模元件,非线性多纵模自抑制技术具有更优秀的多纵模抑制效果和更高的损伤阈值,可用于高功率单纵模拉曼激光输出。然而,非线性多纵模自抑制技术在拉曼激光器中的作用机制尚需进一步的完善,相应的定量分析模型需要进一步的探究。

此外,多种实现单纵模输出的方式尚未应用在金刚石拉曼激光器中,如对SRS增益介质进行超低温冷却,使得拉曼介质的增益线宽窄化<sup>[16,39-40]</sup>。同时,小尺寸单块金刚石晶体自身作为谐振腔,有效提高谐振腔的自由光谱范围,使短腔法具备可行性<sup>[41]</sup>。目前金刚石单纵模拉曼激光器研究中,单纵模拉曼激光线宽的测量相对不全面,多数受限于测试仪器精度,未能精确表征单纵模拉曼激光线宽。因此,采用更精密的手段,精确测量金刚石单纵模拉曼激光器的输出线宽是下一步研究的重要工作。

综上所述,金刚石拉曼激光器具有宽波长可调谐的特性,结合不同波长的泵浦源,可实现金刚石透过波段(230 nm ~ 100 μm)内的波长输出;金刚石的优秀热学特性,使得百瓦甚至千瓦量级的单纵模输出成为可能。而SRS增益自身无空间烧孔效应的优势使得单频拉曼激光器的谐振腔设计更为灵活。金刚石拉曼激光器宽波段覆盖、高功率、窄线宽输出特性,为引力波探测、生物探测、激光雷达等重要科研和国防领域提供光源解决方案。

#### 参考文献:

- [1] Lux O, Sarang S, Williams R J, et al. Single longitudinal mode diamond Raman laser in the eye-safe spectral region for water vapor detection [J]. *Optics Express*, 2016, 24(24): 27812.
- [2] Lux O, Rhee H, Fritsche H, et al. Barium nitrate Raman laser at 1.599 μm for CO<sub>2</sub> detection[C]//Allakhverdiev K R. XIX International Symposium on High-Power Laser Systems and Applications, SPIE, 2013, 8677: 342-348.
- [3] Yang X, Kitzler O, Spence D J, et al. Diamond sodium guide star laser [J]. *Optics Letters*, 2020, 45(7): 1898.
- [4] Sheng Q, Li R, Lee A J, et al. A single-frequency intracavity Raman laser [J]. *Optics Express*, 2019, 27(6): 8540.
- [5] Taylor L R, Feng Y, Calia D B. 50 W CW visible laser source at 589 nm obtained via frequency doubling of three coherently combined narrow-band Raman fibre amplifiers [J]. *Optics Express*, 2010, 18(8): 8540.
- [6] Yang X, Zhang L, Cui S, et al. Sodium guide star laser pulsed at Larmor frequency [J]. *Optics Letters*, 2017, 42(21): 4351.
- [7] Duan Y, Zhu H, Huang C, et al. Potential sodium D<sub>2</sub> resonance radiation generated by intra-cavity SHG of a c-cut Nd: YVO<sub>4</sub> self-Raman laser [J]. *Optics Express*, 2011, 19(7): 6333.
- [8] Curtis J E, Koss B A, Grier D G. Dynamic holographic optical tweezers [J]. *Optics Communications*, 2002, 207(1-6): 169-175.
- [9] Wineland D J, Itano W M. Laser cooling of atoms [J]. *Physical Review A*, 1979, 20(4): 1521-1540.
- [10] Yamamoto R, Kobayashi J, Kuno T, et al. An ytterbium quantum gas microscope with narrow-line laser cooling [J]. *New Journal of Physics*, 2016, 18(2): 023016.
- [11] Greenland P T. Laser isotope separation [J]. *Contemporary Physics*, 1990, 31(6): 405-424.
- [12] Steane A. Quantum computing [J]. *Reports on Progress in Physics*, 1998, 61(2): 117-173.
- [13] Meng L S, Roos P A, Carlsten J L. Continuous-wave rotational Raman laser in H<sub>2</sub> [J]. *Optics Letters*, 2002, 27(14): 1226-1228.
- [14] Rong H, Jones R, Liu A, et al. A continuous-wave Raman silicon laser [J]. *Nature*, 2005, 433(7027): 725-728.
- [15] Shi J, Alam S, Ibsen M. Highly efficient Raman distributed feedback fibre lasers [J]. *Optics Express*, 2012, 20(5): 5082.
- [16] Lee C Y, Chang C C, Tuan P H, et al. Cryogenically monolithic self-Raman lasers: Observation of single-longitudinal-mode operation [J]. *Optics Letters*, 2015, 40(9): 1996.
- [17] Liu Z, Men S, Cong Z, et al. Single-frequency Nd: GGG/BaWO<sub>4</sub> Raman laser emitting at 1178.3 nm[C]//Conference on Lasers and Electro-Optics, 2016: SM3 M. 3.
- [18] Spuler S M, Mayor S D. Raman shifter optimized for lidar at a 1.5 μm wavelength [J]. *Applied Optics*, 2007, 46(15): 2990-2995.
- [19] Sheng Q, Ma H, Li R, et al. Recent progress on narrow-linewidth crystalline bulk Raman lasers [J]. *Results in Physics*, 2020, 17: 103073.
- [20] Mildren R P. Intrinsic Optical Properties of Diamond[M]//Optical Engineering of Diamond. Weinheim, Germany: Wiley-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, 2013: 1-34.
- [21] Williams R J, Nold J, Strecker M, et al. Efficient Raman frequency conversion of high-power fiber lasers in diamond [J]. *Laser & Photonics Reviews*, 2015, 9(4): 405-411.
- [22] Spence D J. Spatial and spectral effects in continuous-wave intracavity Raman lasers [J]. *IEEE Journal on Selected Topics*

- in Quantum Electronics*, 2015, 21(1): 134-141.
- [23] Bonner G M, Lin J, Kemp A J, et al. Spectral broadening in continuous-wave intracavity Raman lasers [J]. *Optics Express*, 2014, 22(7): 7492-7502.
- [24] Shen Y R, Bloembergen N. Theory of stimulated brillouin and raman scattering [J]. *Physical Review*, 1965, 137(6A): A1787.
- [25] Guo Y, Peng W, Su J, et al. Influence of the pump scheme on the output power and the intensity noise of a single-frequency continuous-wave laser [J]. *Optics Express*, 2020, 28(4): 5866.
- [26] Lux O, Sarang S, Kitzler O, et al. Intrinsically stable high-power single longitudinal mode laser using spatial hole burning free gain [J]. *Optica*, 2016, 3(8): 876.
- [27] Sarang S, Kitzler O, Lux O, et al. Single-longitudinal-mode diamond laser stabilization using polarization-dependent Raman gain [J]. *OSA Continuum*, 2019, 2(4): 1028.
- [28] Hänsch T W, Couillaud B. Laser frequency stabilization by polarization spectroscopy of a reference cavity [J]. *Optics Communications*, 1980, 35(3): 441-444.
- [29] Kitzler O, Lin J, Pask H M, et al. Single-longitudinal-mode ring diamond Raman laser [J]. *Optics Letters*, 2017, 42(7): 1229.
- [30] Cao Xuechen, Wei Jiao, Jin Pixian, et al. Cavity resonance-enhanced watt-level single frequency 1240 nm Raman laser [J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2021, 48(5): 0501011. (in Chinese)
- [31] Li M, Kitzler O, Spence D J. Investigating single-longitudinal-mode operation of a continuous wave second Stokes diamond Raman ring laser [J]. *Optics Express*, 2020, 28(2): 1738.
- [32] Martin K I, Clarkson W A, Hanna D C. Self-suppression of axial mode hopping by intracavity second-harmonic generation [J]. *Optics Letters*, 1997, 22(6): 375.
- [33] Yang X, Kitzler O, Spence D J, et al. Single-frequency 620 nm diamond laser at high power, stabilized via harmonic self-suppression and spatial-hole-burning-free gain [J]. *Optics Letters*, 2019, 44(4): 839.
- [34] Yang X, Bai Z, Chen D, et al. Widely-tunable single-frequency diamond Raman laser [J]. *Optics Express*, 2021, 29(18): 29449.
- [35] Lu H, Su J, Zheng Y, et al. Physical conditions of single-longitudinal-mode operation for high-power all-solid-state lasers [J]. *Optics Letters*, 2014, 39(5): 1117.
- [36] Casula R, Penttinen J-P, Kemp A J, et al. 1.4  $\mu\text{m}$  continuous-wave diamond Raman laser [J]. *Optics Express*, 2017, 25(25): 31377-31383.
- [37] Liu Z, Men S, Cong Z, et al. A pulsed single-frequency Nd:GGG/BaWO<sub>4</sub> Raman laser [J]. *Laser Physics*, 2018, 28(4): 045002.
- [38] Zhang X L, Li L, Cui J H, et al. Single longitudinal mode and continuously tunable frequency Tm, Ho: YLF laser with two solid etalons [J]. *Laser Physics Letters*, 2010, 7(3): 194-197.
- [39] Zverev P G. The influence of temperature on Raman modes in YVO<sub>4</sub> and GdVO<sub>4</sub> crystals [J]. *Journal of Physics: Conference Series*, 2007, 92(1): 012073.
- [40] Liu M S, Bursill L A, Praver S, et al. Temperature dependence of the first-order Raman phonon line of diamond [J]. *Physical Review B-Condensed Matter and Materials Physics*, 2000, 61(5): 3391-3395.
- [41] Granados E, Chrysalidis K, Fedosseev V N, et al. Monolithically integrated widely tunable single-frequency diamond Raman lasers[C]//Advanced Solid State Lasers, 2021: 3-4.