

# 高效率 599 nm Ba(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub> 外腔喇曼激光器\*

陈慧挺<sup>1,2</sup> 楼祺洪<sup>1</sup> 董景星<sup>1</sup> 陈万春<sup>3</sup>

(1 中国科学院上海光学精密机械研究所, 上海 201800)

(2 中国科学院研究生院, 北京 100039)

(3 中国科学院物理研究所, 北京 100080)

**摘 要** 橘黄色波段固体激光器在基于荧光探测的生物医学诊断和显示等众多方面有着广泛的应用. 报道了利用 532 nm 的 Nd:YAG 倍频激光抽运外置喇曼腔内的硝酸钡晶体, 获得高效率的 599 nm 橘黄色喇曼激光的实验结果. 对外置喇曼腔实验装置和运转参量进行了优化, 喇曼振荡腔由对二阶斯托克斯光有最优化反射率的腔镜构成, 对实验中所得到的二阶斯托克斯喇曼激光脉宽压缩及出现双尖峰的现象进行了分析. 当抽运光功率达到 4.1 W 时, 获得二阶斯托克斯喇曼激光功率为 710 mW, 输出光中心波长为 599.38 nm, 半峰全宽(FWHM)为 1.1 nm, 激光器最大光光转换效率为 17.5%, 斜率效率为 24.8%.

**关键词** 受激喇曼散射; 外腔喇曼激光器; 二阶斯托克斯光; 硝酸钡晶体

**中图分类号** TN248 **文献标识码** A

## 0 引言

受激喇曼散射(SRS)在当今已被广泛运用到激光频率转换领域中, 但对它们绝大多数的研究工作还是集中在气体喇曼频移领域, 为了发展紧凑的、可靠的、高效的喇曼激光器, 越来越多的研究人员开始关注固态喇曼材料的喇曼频移性质研究<sup>[1~3]</sup>. 固体喇曼材料具有很多优点, 它们有比较高的喇曼活性中心浓度, 以及有较好的热学和机械性质, 因而可以制作体积小而增益高的 SRS 激光器. 在大量具有喇曼活性振动模式的晶体中, 硝酸盐和碱土金属作为一种最有潜力的喇曼介质引起人们的关注, 它们有较高的喇曼散射截面和相对较低的 SRS 阈值等明显优势.

硝酸钡晶体是它们当中最有前景的材料之一<sup>[4,5]</sup>. Ba(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub> 晶体属于 Th6-Pa3 空间点群, 晶格常量  $a = 8.11 \text{ \AA}$ . (NO<sub>3</sub>)<sup>1-</sup> 离子位于 C3 位置, 而 Ba<sup>2+</sup> 离子则位于 S6 位置. 根据 Brooker 等人的因子群分析方法, 硝酸离子的每一个 A 振动模式都将引起晶体中的 8 个振动模式(两个非简并模式和两个三重简并模式), 而每个 E 振动模式将引起晶体中的 16 个振动模式(两个双重非简并模式和四个三重非简并模式). 这些模式和它们的相对强度在文献[6]中可找到, 在所有振动模式中, “呼吸”模  $\nu_1(A_1) = 1047 \text{ cm}^{-1}$  占了主导地位. 在室温下这种

模式的线宽是  $1.5 \text{ cm}^{-1}$ , 它是种内部模式, 对所有具有 R<sub>x</sub>(MO<sub>3</sub>)<sub>y</sub> 结构的分子晶体都是普遍存在的. 在这类比较有代表性的晶体中, 如 CaCO<sub>3</sub>, Ba(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>, Pb(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>, NaNO<sub>3</sub>, KNO<sub>3</sub> 等, 已经观察到了 SRS 现象.

1980 年 Eremenko 等人最早获得了 Ba(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub> 晶体在可见光区域的喇曼激光, 他们用 15 ns, 532 nm, 最大光强度为  $8 \text{ J/cm}^2$  的脉冲激光以单次通过抽运 Ba(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub> 晶体的方式进行受激喇曼散射实验研究<sup>[7]</sup>. 其后, 人们对 Ba(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub> 晶体的 SRS 大量研究都主要集中在红外区, 尤其是对人眼安全的  $1.5 \text{ }\mu\text{m}$  到  $1.6 \text{ }\mu\text{m}$  波段<sup>[8]</sup>, 人们对利用 Ba(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub> 晶体的受激喇曼散射效应获得橘黄色喇曼激光的研究还非常少, 橘黄色波段的激光在基于荧光探测的生物医学诊断和显示方面有着众多的应用<sup>[9]</sup>, 并且这个波段的激光在其它固体激光器中很难获得. 在本论文中, 以 532 nm 激光抽运硝酸钡晶体的振荡腔方式, 获得最大转化效率为 17.5% 的 599 nm 橘黄色二阶斯托克斯喇曼激光输出.

## 1 532 nm 光单次抽运 Ba(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub> 晶体的 SRS 实验研究

硝酸钡晶体样品沿着[110]晶轴方向切割, 样品长度 48 mm, 用 532 nm 的 Nd:YAG 激光器的二倍频输出的偏振脉冲光单次通过抽运, 当抽运光功率达到 1.6 W(换算功率密度为  $90.6 \text{ W/cm}^2$ ) 时, 得到了强烈的一、二阶斯托克斯光及相对较弱的一阶反斯托克斯光, 它们受喇曼四波混频的影响在抽运光轴线方向呈锥型分布, 测得前向散射的一、二、三阶斯托克斯光发散角分别为  $1.7^\circ, 3.5^\circ, 5.0^\circ$ , 一

\* 国家高技术研究发展计划项目(2004AA846020)和国家自然科学基金项目(10334110)及上海市科技发展项目(0211110000)资助

Tel: 021-69918629 Email: htchen4@yahoo.com.cn

收稿日期: 2005-06-21

阶反斯托克斯光发散角为  $1.5^\circ$ 。

呈锥型分布的受激喇曼散射光,经透镜聚焦并用衰减片衰减后输入光谱分析仪(Ocean Optics HR2000 GR-UV-NIR 高精度光谱仪)进行光谱测量. 测量单次通过抽运硝酸钡晶体方式下的喇曼激光的光谱曲线,如图 1. 由于只有在精确的相位匹配条件下,才能得到明显的反斯托克斯光,这个条件比较难以实现,因而实验中获得的反斯托克斯光相对比较微弱. 测到抽运光中心波长  $532.54\text{ nm}$ ,一阶斯托克斯光中心波长  $563.32\text{ nm}$ ,二阶斯托克斯光中心波长  $599.25\text{ nm}$ ,一阶反斯托克斯光中心波长  $504.38\text{ nm}$ .

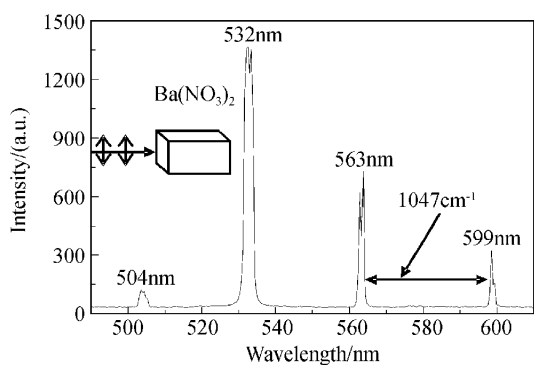


图 1 单次通过抽运  $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$  晶体喇曼激光的光谱曲线图  
Fig. 1 Optical spectrum for the single pass pumped  $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$  crystal Raman laser

由图 1 看出单次抽运方式下的喇曼激光包含了各阶不同波长的斯托克斯光和反斯托克斯光,这不仅降低了各个阶次斯托克斯光的转换效率,而且最终也很难将它们完全分开,给激光器的实际应用带来了很大局限性. 为了获得  $599\text{ nm}$  的二阶斯托克斯喇曼激光的高效率输出,采用了如下节所述的经过优化镀膜的振荡腔结构.

## 2 $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$ 晶体 $599\text{ nm}$ 外腔喇曼激光器

实验采用了单端抽运的外置喇曼激光振荡腔,硝酸钡晶体规格为  $10\text{ mm} \times 10\text{ mm} \times 48\text{ mm}$ ,由中科院物理所利用水溶液降温法生长,沿着  $[110]$  晶轴方向切割晶体. 图 2 为实现  $599\text{ nm}$  外腔喇曼激光输出的实验装置示意图, Nd:YAG 激光器的二倍频  $532\text{ nm}$  激光输出作为抽运源,重复频率  $30\text{ Hz}$ ,脉冲宽度为  $11.6\text{ ns}$ ,该激光器在稳定的工作状态时脉冲能量为  $180\text{ mJ}$ ,输出光束直径尺寸为  $7.5\text{ mm}$ ,发散角约为  $360\text{ }\mu\text{rad}$ . 一个自制的连续精确可调光学衰减器,用来调节和控制入射喇曼晶体的抽运光功率. Nd:YAG 激光器二倍频  $532\text{ nm}$  的输出通过分束镜分为两部分,一部分用作功率监测,另一部

分作为喇曼的抽运源. 为了提高抽运光功率密度,两个焦距分别为  $50\text{ cm}$  和  $10\text{ cm}$  的透镜组成望远系统对抽运光作了缩束,同时也起到了对抽运光束准直的作用,入射硝酸钡的光斑直径为  $1.5\text{ mm}$ .

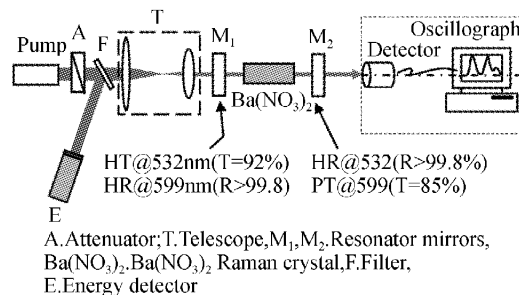


图 2  $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$  晶体外腔拉曼激光实验装置图  
Fig. 2 Experimental setup of  $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$  crystal Raman laser in external resonator

为了在喇曼腔中获得高的功率转换效率,对抽运激光强度、抽运光脉宽、入射光束尺寸、聚焦和作用长度、喇曼腔长度等做了优化设置. 通过仔细的优化这些参量就有可能获得接近理论极限的转换效率  $(\nu_{st}/\nu_p)$ .  $532\text{ nm}$  波长激光抽运硝酸钡晶体  $(\Delta\nu = 1047\text{ cm}^{-1})$  产生二阶斯托克斯光的转换效率理论极限值为  $0.88$ . 由两个平面腔镜  $M_1$  和  $M_2$  构成喇曼激光振荡腔,分别对  $M_1$  和  $M_2$  镀膜,入射腔镜  $M_1$  对抽运光 ( $532\text{ nm}$  波长) 高透,可以达到  $92\%$  的透射率,并对喇曼激光 ( $563\text{ nm}$  和  $599\text{ nm}$  光) 高反,对  $599\text{ nm}$  光有  $99.8\%$  以上的反射率. 出射腔镜  $M_2$  对  $532\text{ nm}$  和  $563\text{ nm}$  波长光高反,对  $532\text{ nm}$  光反射率大于  $99.8\%$ ,对  $599\text{ nm}$  光部分透射,透射率为  $85\%$ . 腔镜  $M_1$  与  $M_2$  之间的距离为  $6.5\text{ cm}$ ,用激光准直仪校准  $M_1$  和  $M_2$  使得它们严格平行,晶体放在两个平面腔镜的中间位置. 用一个带宽为  $1.5\text{ GHz}$  的 LeCroy9362 数字示波器和 THORLABS 公司的 DET210 快速光电二级管探测到的抽运激光和喇曼激光的脉冲如图 3. 得到抽运光脉冲宽度为  $11.6\text{ ns}$ ,二阶斯托克斯喇曼激光脉宽为  $8.2\text{ ns}$ ,脉宽有了一定的压缩. 脉宽能否得到明显压缩及压缩量的大小与斯托克斯光的阈值有关,当抽运光功率上升超过斯托克斯光阈值后,斯托克斯光的功率迅速上升,同时由于抽运光的功率转换到斯托克斯光,剩余抽运光功率减少,使得斯托克斯光的功率也减少,而斯托克斯光功率的减少使得抽运光功率上升,抽运光功率的上升又使得斯托克斯光功率上升,这样循环直到抽运功率小于斯托克斯光的阈值,由于上述原因使得斯托克斯光的脉宽得到压缩,并出现两个明显的尖峰,与文献[10]中得到的有关气体介质中超宽带喇曼脉冲压缩的实验结果非常类似.

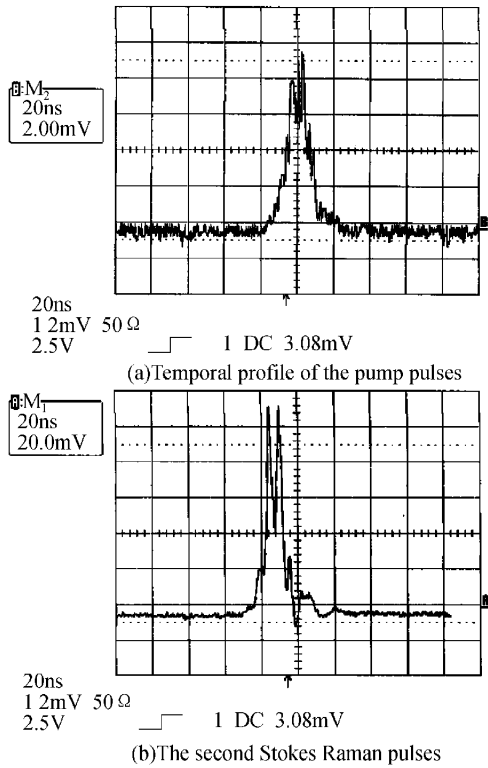


图 3 抽运脉冲光(a)和二阶斯托克斯拉曼脉冲光(b)的波形图  
 Fig. 3 Temporal profile of the pump pulses (a) and the second Stokes Raman pulses (b)

用光谱分析仪测量了该装置的喇曼激光经衰减后的输出光谱曲线,如图 4. 测得喇曼激光输出为单一波长,中心波长为 599.38 nm,半峰全宽为 1.1 nm,正是二阶斯托克斯光. 说明对波长具有选择性的镀膜振荡腔有效地抑制了一阶斯托克斯光振荡,将绝大部分抽运光功率转换成了二阶斯托克斯光,这不仅降低了抽运光的阈值强度,也大大提高了二阶斯托克斯喇曼激光的转换效率.

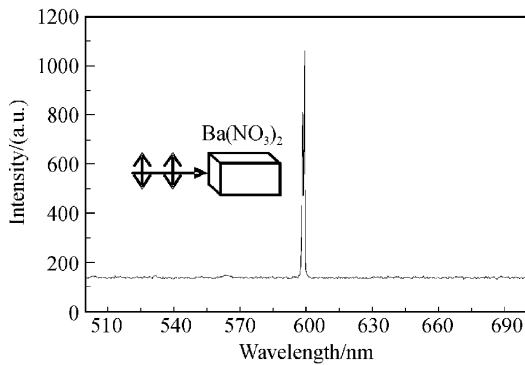


图 4 外置振荡腔中 Ba(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub> 晶体拉曼激光的光谱曲线  
 Fig. 4 Optical spectrum for Ba(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub> crystal Raman laser in the external optical cavity

用功率计测量了二阶斯托克斯喇曼激光输出功率与抽运光功率关系的实验曲线,见图 5. 产生喇曼激光的抽运光阈值功率为 1.1 W,比第一节中单次通过抽运方式下得到的 1.6 W 的阈值功率小. 由

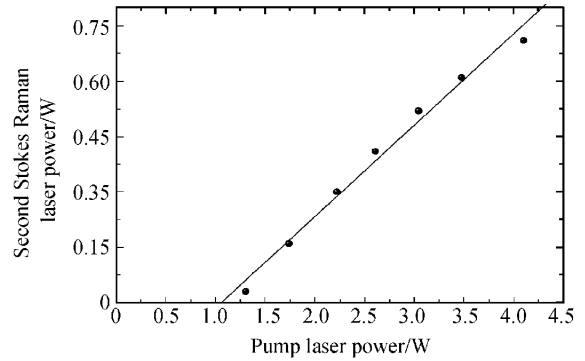


图 5 外置拉曼振荡腔中入射拉曼晶体的抽运光功率与 599 nm 拉曼激光输出功率的测量曲线  
 Fig. 5 Output power at 599 nm from the external Raman resonator as a function of average pump power incident upon the Raman crystal

SRS 理论可知产生斯托克斯光  $I_{st}$  的抽运光阈值条件可以用指数形式来描述:  $I_{stokes} = I_{sp} \exp \{GIL\}$ , 这里  $I_{sp}$  是自发喇曼散射的强度,  $G$  是喇曼增益,  $L$  是非线性介质的作用长度,  $I$  是抽运光强度. 抽运光阈值强度通常定义为  $e$  指数内的量等于 25 时的抽运光强度.

$$GLI^{thesh} = 25$$

由等式可知抽运光阈值强度与喇曼晶体的长度成反比. 喇曼外腔装置的激光振荡作用相当于用  $L_{eff}$  代替了  $L$ , 这里  $L_{eff} = N_{eff}L$ , ( $N_{eff}$  是斯托克斯光通过喇曼晶体的次数), 因而可以减少产生喇曼激光的抽运光阈值功率. 理论与实验结果一致.

当抽运激光功率达到 4.1 W 时, 获得 710 mW 二阶斯托克斯喇曼激光最大功率输出, 输出波长为 599.38 nm, 半峰全宽为 1.1 nm, 激光器最大转换效率为 17.5%, 计算得到斜率效率为 24.8%.

为避免喇曼晶体出现光损伤现象, 没有进一步增加抽运光功率, 但由图 5 的曲线的趋势可以预测在抽运功率密度低于光损伤阈值的条件下, 通过提高抽运光功率可以获得更高功率的喇曼激光输出.

### 4 结论

硝酸钡晶体因为具有很强的 1047 cm<sup>-1</sup> 频率的对称振动, 已经开始成为一种很有前途的固体喇曼材料之一. 本文报道了利用硝酸钡晶体外置喇曼振荡腔产生高效率的 599 nm 波长的喇曼激光输出, 该喇曼激光装置采用倍频 Nd: YAG 的 532 nm 激光作抽运源, 采用特殊镀膜的腔镜对二阶斯托克斯光作优化选择, 有效地抑制了一阶斯托克斯光振荡, 将绝大部分抽运光功率转换成了二阶斯托克斯光, 这不仅降低了抽运光的阈值强度, 也大大提高了二阶斯托克斯喇曼激光的转换效率, 产生喇曼激光的抽运光阈值为 1.1 W. 在抽运激光达到 4.1 W

时,获得 710 mW 的二阶斯托克斯喇曼激光输出,输出中心波长为 599.38 nm,半峰全宽为 1.1 nm,激光器最大转换效率为 17.5%,计算得到斜率效率为 24.8%。这种结构紧凑的固体喇曼激光器转换效率较高,输出 599 nm 的橘黄色激光,有望代替其它相同波段的固体激光器,在基于荧光探测的生物医学诊断和显示方面得到实际应用。

#### 参考文献

- 1 孙秀平,冯克成,张喜和,等. 单模圆光纤中受激喇曼散射光谱偏振特性的研究. 光子学报,2005, **34**(8): 1169~1171  
Sun X P, Feng K C, Zhang X H, *et al.* *Acta Photonica Sinica*, 2005, **34**(8): 1169~1171
- 2 杜戈果,阮双琛,苏红新,等. 单模石英光纤中受激喇曼散射的研究. 光子学报,2004, **33**(8): 923~926  
Du G G, Ruan S C, Su H X, *et al.* *Acta Photonica Sinica*, 2004, **33**(8): 923~926
- 3 姜海明,王亚非. 光纤喇曼增益系数的简捷测量. 光子学报,2004, **33**(6): 666~668  
Jiang H M, Wang Y F. *Acta Photonica Sinica*, 2004, **33**(6): 666~668
- 4 Cerny P, Jelinkova H, Zverev P G, *et al.* Solid state lasers with Raman frequency conversion. *Progress in Quantum Electronics*, 2004, **28**(2): 113~143
- 5 Grabtchikov A S, Lisinetskii V A, Orlovich V A, *et al.* Multimode pumped continuous-wave solid-state Raman laser. *Opt Lett*, 2004, **29**(21): 2524~2526
- 6 Zverev P G, Jia W, Liu H, *et al.* Vibrational dynamic of the Raman-active mode in nitrate crystal. *Opt Lett*, 1995, **20**(23): 2378~1380
- 7 Eremenko A S, Karpukhin S N, Stepanov A I. Stimulated Raman scattering of the second harmonic of a neodymium laser in nitrate crystals. *Sov J Quantum Electron*, 1980, **10**(1): 113~114
- 8 Takai N, Suzuki S, Kannari F. 20 Hz operation of an eye-safe cascade Raman laser with a Ba(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub> crystal. *Appl Phys B*, 2002, **74**(6): 521~527
- 9 Simons J, Pask H, Dekker P, *et al.* Small-scale, all-solid-state, frequency-doubled intracavity Raman laser producing 5 mW yellow-orange output at 598 nm. *Optics Communications*, 2004, **229**(6): 305~310
- 10 楼祺洪,徐剑秋,董景星,等. 氢气中的超宽带喇曼脉冲压缩. 中国激光,2000, **27**(1): 64~68  
Lou Q H, Xu J Q, Dong J X, *et al.* *Chin J Lasers*, 2000, **27**(1): 64~68

## High Efficiency 599 nm Ba(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub> Raman Laser in External Resonator

Chen Huiting<sup>1,2</sup>, Lou Qihong<sup>1</sup>, Dong Jingxing<sup>1</sup>, Chen Wanchun<sup>3</sup>

<sup>1</sup> Shanghai Institute of Optics & Fine Mechanics, CAS, Shanghai 201800

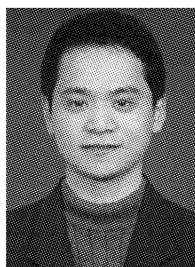
<sup>2</sup> Graduate School of the Chinese Academy of Sciences, Beijing 100039

<sup>3</sup> Institute of Physics, CAS, Beijing 100080

Received date:2005-06-21

**Abstract** The solid-state lasers in the yellow-orange region of the spectrum have a variety of promising applications in biomedical diagnostic (based on fluorescence detection) and display. Operation of a high efficient 599 nm yellow-orange Raman laser with a Ba(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub> crystal in the external Raman cavity pumped by the harmonic of Nd : YAG laser (532 nm) was reported. Barium nitrate crystal was grown by the aqua-solution cooling method with the length of 48 mm long. To achieve conversion efficiency about the theoretical limit, the parameters of pump laser and external Raman cavity were optimized. The Raman cavity was composed of diachronic mirrors with optimal reflectivity for the second Stokes wavelength. The use of the external cavity with optimal reflectivity output coupler reduced the threshold pump intensity and increased overall efficiency with respect to single pass cell. The second Stokes Raman laser's pulse compression phenomenon and two little peaks temporal behaviour were recorded and analysed. When the pump laser was operated at laser power of 4.1 W, the maximum second Stokes Raman output power of 710 mW was obtained with FWHM of 1.1 nm at output wavelength of 599.38 nm, and the maximum conversion efficiency of 17.5% was observed. The slope efficiency was calculated as 24.8%.

**Keywords** Stimulated Raman scattering (SRS); external resonator Raman laser; second Stokes pulses; Barium nitrate crystal



**Chen Huiting** was born in 1981 in Dongyang, Zhejiang Province, P. R. China. He received his M. S. degree in Harbin Institute of Technology in 2004. Now he is a Ph. D. candidate at Shanghai Institute of Optics & Fine Mechanics, CAS. His major research interests include solid-state Raman lasers and fiber lasers.