

YbVO₄ 晶体的受激拉曼散射^{*}

胡大伟 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)

(2007 年 6 月 13 日收到 2007 年 7 月 2 日收到修改稿)

采用腔外单次通过方式, 研究了一种新型晶体 YbVO₄ 的受激拉曼散射. 当抽运激光为 532 nm 皮秒脉冲时获得了 3 级斯托克斯线(558.47 nm, 587.92 nm, 620.67 nm)和 1 级反斯托克斯线(507.58 nm), 测得 YbVO₄ 晶体 1 级斯托克斯受激拉曼散射的稳态增益系数为 17.8 ± 0.2 cm/GW, 受激拉曼散射的整体转换效率达到 37%. 实现了 YbVO₄ 晶体对 355 nm 皮秒激光的受激拉曼散射, 观察到 1 级斯托克斯线(366.11 nm) 根据抽运阈值得到相应的拉曼增益为 29.0 ± 0.3 cm/GW.

关键词: 受激拉曼散射, 稳态增益系数, 转换效率, YbVO₄ 晶体

PACC: 4265C, 4255R

受激拉曼散射(stimulated Raman scattering, SRS) 属三阶非线性光学效应, 其光束显示出激光特性, 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 μ m 人眼安全激光^[1-3], 这些光源将在军事、医疗、显示、遥感、海洋探测等领域获得重要应用, 因此相关研究日益受到人们关注. 除 Ba(NO₃)₂, BaWO₄, SrWO₄ 等硝酸钨酸盐^[4-7]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^[8,9], 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, SRS 的转换效率高, 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^[10,11].

YbVO₄ 是一种新型的钒酸盐晶体材料. 2004 年 Zhang 等利用熔体提拉法(Czochralski), 从化学计量比的熔体中生长出了大尺寸、高质量的 YbVO₄ 单晶^[12]. 2006 年, Kaminiskii 等报道了 YbVO₄ 晶体的受激拉曼散射特性, 工作方式为单次通过, 在 1064 nm 皮秒激光抽运下观察到了 4 级斯托克斯(Stokes)和 1 级反斯托克斯(anti-Stokes)光, 在 532 nm 皮秒激光抽运下观察到了 3 级斯托克斯和 1 级反斯托克斯光, 测得其拉曼频移为 897 cm⁻¹. 所用晶体的作用长度较短(6 mm), 532 nm 抽运条件下总的拉曼转换效率

为 25%^[13]. 据我们所知, 这是到目前为止关于 YbVO₄ 晶体受激拉曼散射性质的唯一报道, 因此仍有很多研究工作需要开展.

我们生长 YbVO₄ 晶体的方法是熔体提拉法. 籽晶沿 a 向切割, 使用 $\phi 66 \times 40$ 的钨坩埚在 N₂ + O₂ (1%—2%) 的气氛中生长. 通过控制合适的工艺参数, 经过收颈—放肩—等径—降温—退火等工艺, 得到了直径 26 mm、长度 18 mm、重量 77 g 的无宏观缺陷、均匀透明的 YbVO₄ 晶体, 如图 1 所示. 将该晶体置于 10 mW 的 He-Ne 激光器下照射, 未发现散射颗粒, 说明所生长的 YbVO₄ 单晶具有良好的光学质量. 将 YbVO₄ 原生晶体沿 a 向加工成 2 块样品, 长度均为 15 mm, 截面均为 4 mm \times 4 mm, 各样品两通光端面进行抛光但未镀膜.

采用图 2 所示的实验装置进行 YbVO₄ 晶体的 532 nm 激发受激拉曼散射. 激光光源为美国 Continuum 公司生产的 PY61C 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. 实验方法为单次通过(single pass)方式. 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; M_1 为对 1064 nm 高反, 对 532 nm 高透 ($R > 99\%$, 1064 nm; $T > 90\%$, 532 nm) 的滤色片; PP_1 和 PP_2 为两个偏振器, 其作用是使抽运能量可

^{*} 国家自然科学基金(批准号: 60508010, 50590401) 山东省自然科学基金(批准号: Y2004F05) 山东省泰山学者计划资助的课题.

[†] 通讯作者, E-mail: zpwang@icm.sdu.edu.cn

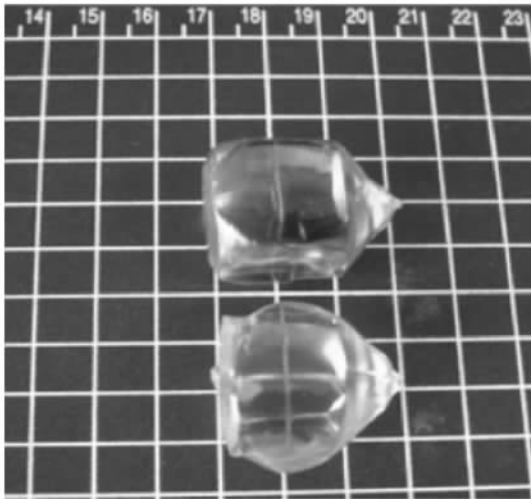


图1 YbVO₄ 原生晶体

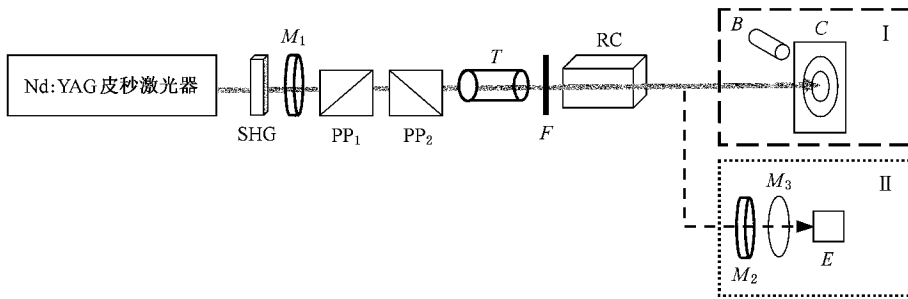


图2 532 nm 抽运单次通过型受激拉曼散射实验装置(I 为 SRS 光谱测量系统 ;II 为 SRS 能量测试系统)

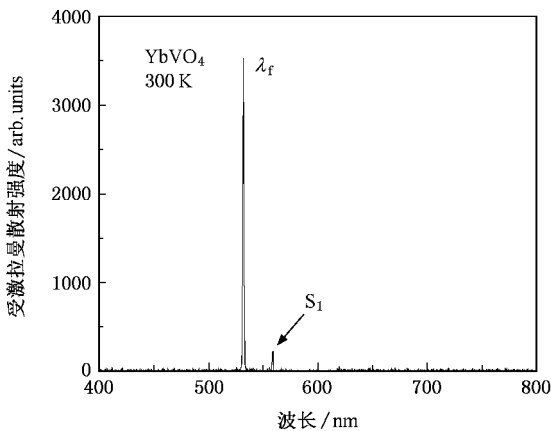


图3 一级 Stokes 阈值附近的光谱图

豫时间 $T_R \approx 1.7 \text{ ps}^{[12]}$. 本实验中抽运脉冲的持续时间 $\tau_p \approx 30 \text{ ps}$ 远大于 T_R , 因此属于稳态受激拉曼散射情况. 此时在产生受激拉曼散射的阈值附近满足如下条件^[14, 15]:

$$g_{\text{ssR}} I_p l \sqrt{5} \quad (1)$$

以连续变化 ; T 为抽运光缩束透镜组 , 以提高入射到晶体上的能量密度 ; F 光栏的孔径为 1 mm ; RC 为拉曼晶体 ; B 为 HR4000CG-UV-NIR 型光谱分析仪 (Ocean Optics Corp.) 的探头 ; C 为观察屏 ; B 和 C 组成拉曼散射光的光谱测试系统 ; M_2 为对 532 nm 高反 , 对 560 nm 部分透过的滤色片 ; M_3 为一会聚透镜 ; E 为 Moletron 公司的 EPM2000 型能量计 , 用以测量拉曼激光的能量 .

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 531.82 nm , 小峰为一级 Stokes 光 , 中心波长位于 558.47 nm , 由此可计算出其频率间隔为 897 cm^{-1} , 与文献 13 相同 .

YbVO₄ 晶体自发拉曼散射频移谱线 (897 cm^{-1}) 的线宽 $\Delta\nu_R \approx 5.6 \text{ cm}^{-1}$, 由此可以得到晶格振动弛

其中 g_{ssR} 是稳态拉曼增益系数 , I_p 是阈值抽运激光强度 , l 是拉曼晶体的作用长度 . 由上式结合测得的 SRS 抽运阈值就可得到 YbVO₄ 晶体的稳态拉曼增益系数 , 结果如表 1 所示 . 由表中数值可知 , 在 532 nm 皮秒脉冲激发条件下 YbVO₄ 晶体的稳态拉曼增益系数约为 $17.8 \pm 0.2 \text{ cm/GW}$.

表 1 YbVO₄ 晶体 532 nm 激光抽运一级 Stokes 受激拉曼散射的阈值及增益系数

样品编号	晶体长度/mm	抽运光平均功率/mW	拉曼阈值 (MW/cm^2)	拉曼增益 (cm/GW)
1	15	2.18	925.22	18.01
2	15	2.23	946.64	17.60

在二级 Stokes 拉曼激光出现之前 , 我们测量了一级 Stokes 拉曼激光的能量和转换效率随入射抽运能量的变化关系 , 如图 4 , 图 5 所示 . 一级 Stokes 拉曼激光的最大能量为 0.025 mJ , 最高转换效率为 17% , 由 1# 晶体样品获得 .

在入射激光的功率密度达到 YbVO₄ 晶体一级

Stokes 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.除抽运光(531.82 nm)和一级 Stokes 光(558.47 nm)之外,观察到了显著的二级 Stokes 圆环(黄色),如图 6 所示,用光谱仪测得该散射光的波长为 587.92 nm.二级 Stokes 光的抽运阈值为 1905.61 MW/cm²,相应的

增益系数为 8.75 cm/GW. 进一步提高抽运能量,也会在光谱图上观察到三级 Stokes 光(620.67 nm)和一级 anti-Stokes 光(507.58 nm),如图 7 所示.与图 7 所对应的光谱组成列于表 2,相邻拉曼谱线的频率间隔约为 897 cm⁻¹.总的拉曼转换效率达到 37%,优于国外报道的 25% 的数值^[13].

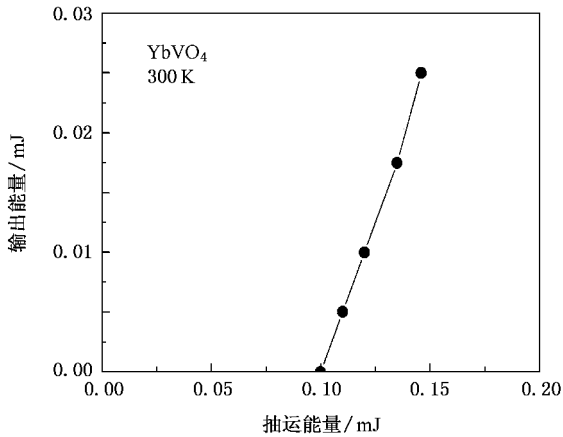


图 4 YbVO₄ 晶体一级 Stokes 拉曼激光的能量变化曲线

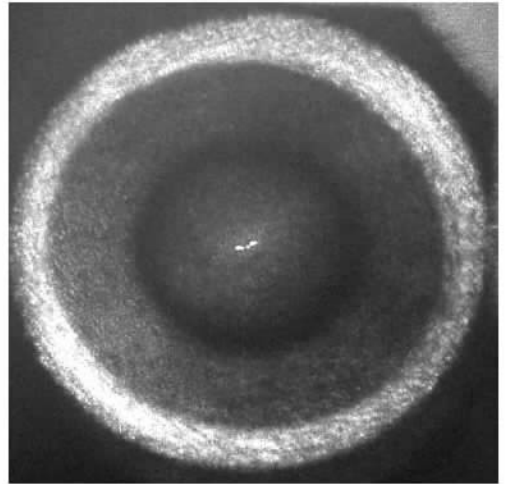


图 6 YbVO₄ 晶体 532nm 激光抽运的二级 Stokes 受激拉曼散射光斑 587.92 nm

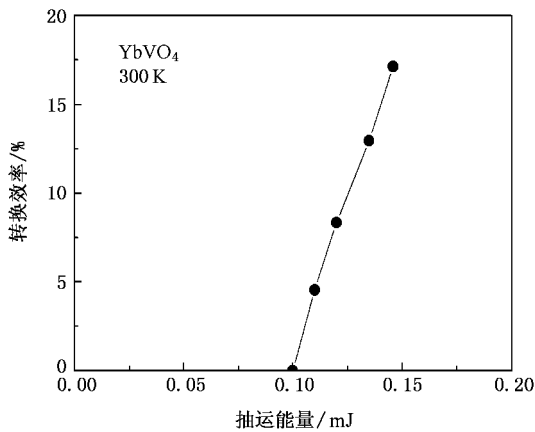


图 5 YbVO₄ 晶体一级 Stokes 拉曼激光的转换效率变化曲线

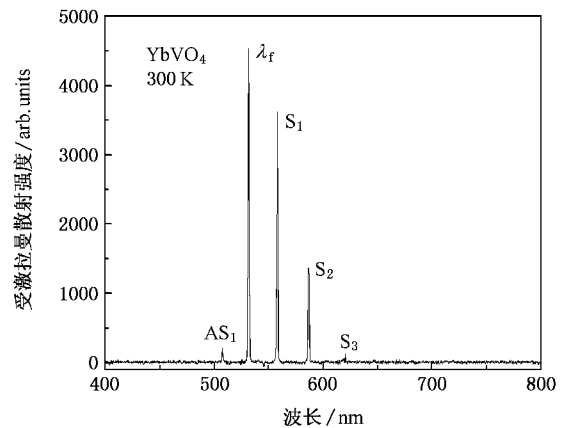


图 7 YbVO₄ 晶体 532 nm 激光抽运受激拉曼散射光谱

表 2 YbVO₄ 晶体 532 nm 激光抽运受激拉曼散射光谱组成

抽运条件		斯托克斯和反斯托克斯光			相邻谱线拉曼频移/cm ⁻¹
$\lambda_f/\mu\text{m}$	抽运配置	波长/ μm	谱线	谱线指认	
0.53182	$K \perp C_4$, $E // C_4$	0.50758	AS ₁	$\omega_f + \omega_R$	897.9
		0.53182	λ_f	ω_f	
		0.55847	S ₁	$\omega_f - \omega_R$	897.3
		0.58792	S ₂	$\omega_f - 2\omega_R$	896.9
		0.62067	S ₃	$\omega_f - 3\omega_R$	897.5

受激拉曼散射的理论和实验均表明,材料的增益系数随抽运波长的增加迅速降低,因此短波抽运产生新波段拉曼激光通常具有增益大、阈值低、转换效率高良好特性,是受激拉曼散射不可忽视的研究方向.本文在 YbVO₄ 晶体中实现了 355 nm 抽运的受激拉曼散射,实验装置如图 8 所示.所用三倍频晶体为 YCOB, M₁ 为只允许三倍频光(355nm)透过的

滤色片.受激拉曼散射光谱如图 9 所示.相应的光谱组成列于表 3.一级 Stokes 光的波长为 366.11 nm,由此可计算出其频率间隔为 897 cm⁻¹,与 532 nm 抽运条件下得到的数值相同.两块样品一级 Stokes 光的抽运阈值分别为 568.71 MW/cm²,581.44 MW/cm²,根据(1)式得到相应的拉曼增益为 29.31 cm/GW 和 28.66 cm/GW,如表 4.

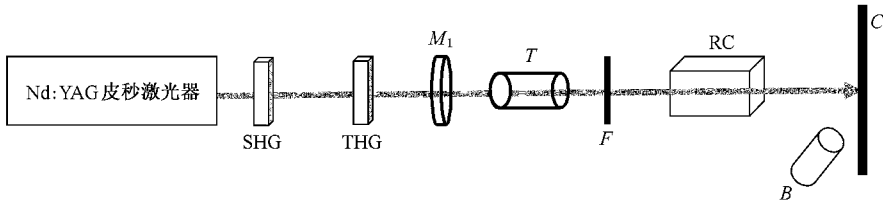


图 8 355 nm 抽运单次通过型受激拉曼散射实验装置(SHG 为 KTP 倍频晶体;THG-YCOB 三倍频晶体;M₁ 为透 355 nm 的滤色片;T 为缩束系统;F 为光阑;RC 为拉曼晶体;B 为光谱分析仪探头;C 为观察屏)

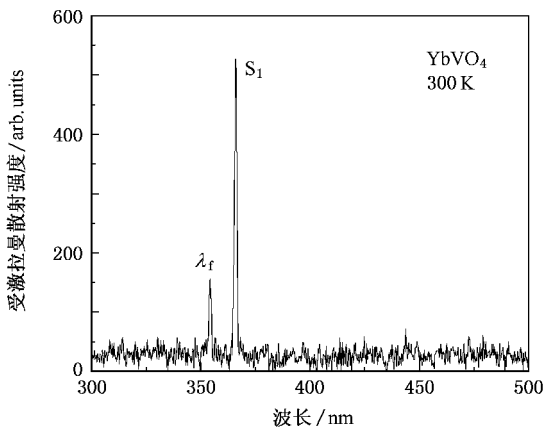


图 9 YbVO₄ 晶体 355 nm 激光抽运受激拉曼散射光谱

表 3 YbVO₄ 晶体 355nm 激光抽运受激拉曼散射光谱组成

抽运条件	斯托克斯和反斯托克斯光			相邻谱线拉曼频移/cm ⁻¹
	抽运配置	波长 /μm	谱线谱线指认	
λ _f /μm	K ⊥ C ₄	0.35447	λ _f	ω _f
	E // C ₄	0.36611	S ₁	ω _f - ω _R

表 4 不同 YbVO₄ 晶体样品 355 nm 激光抽运受激拉曼散射阈值与增益

样品编号	晶体长度 /mm	抽运光平均功率/mW	拉曼阈值 (MW/cm ²)	拉曼增益 (cm/GW)
1	15	1.34	568.71	29.31
2	15	1.37	581.44	28.66

本文报道了一种新型晶体 YbVO₄ 的受激拉曼散射性质.采用腔外单次通过方式,在 532 nm 皮秒激光脉冲抽运条件下获得了 3 级 Stokes 线(558.47 nm,587.92 nm,620.67 nm)和 1 级 anti-Stokes 线(507.58 nm),受激拉曼散射的整体转换效率达到 37%,优于国外同类报道的结果.报道了 YbVO₄ 晶体 355 nm 激发的受激拉曼散射,得到了新拉曼谱线(366.11 nm).实验表明,YbVO₄ 晶体是一种新型、有效的钒酸盐拉曼介质,对 532 nm 皮秒脉冲的一级 Stokes 稳态拉曼增益为 17.8 ± 0.2 cm/GW,对 355 nm 皮秒脉冲的一级 Stokes 稳态拉曼增益达到 29.0 ± 0.3 cm/GW.

[1] Pask H M , Piper J A 1998 *Optics Communications* **148** 285
 [2] Jin F 2003 *Laser & Optoelectronics Progress* **40** 40 (in Chinese) [金峰 2003 激光与光电子学进展 **40** 40]
 [3] Zang J C , Xu L Y , Li X , Zhang D X , Feng B H 2007 *Acta Phys. Sin.* **56** 2689 (in Chinese) [臧竞存、谢丽艳、李 晓、张东香、冯宝华 2007 物理学报 **56** 2689]
 [4] Zverev P G , Basiev T T , Osiko V V , Kulkov A M , Voitsekhovskii V N , Yakobson V E 1999 *Optics Materials* **11** 315

[5] Cerny P , Zverev P G , Jelinkova H , Basiev T T 2000 *Optics Communications* **177** 397
 [6] Wang Z P , Zhang H J , Xu X G , Wang J Y , Shao Z S , Jiang M H 2004 *Chinese Journal of Lasers* **31** 1428 (in Chinese) [王正平、张怀金、许心光、王继扬、邵宗书、蒋民华 2004 中国激光 **31** 1428]
 [7] Hu D , Wang Z , Zhang H , Xu X , Wang J , Shao Z 2006 *Chinese Physics Letters* **23** 2766

- [8] Kaminskii A A , Ueda K , Eichler H J , Kuwano Y , Kouta H , Bagaev S N , Chyba T H , Barnes J C , Gad G M A , Murai T , Lu J 2001 *Optics Communications* **194** 201
- [9] Hu D W , Yu H H , Wang Z P , Zhang H J , Xu X G , Wang J Y , Shao Z S 2006 *Acta Optica Sinica* **26** 918 (in Chinese) [胡大伟、于浩海、王正平、张怀金、许心光、王继扬、邵宗书 2006 光 学学报 **26** 918]
- [10] Chen Y F 2004 *Optics Letters* **29** 2172
- [11] Chen Y F 2004 *Optics Letters* **29** 2632
- [12] Zhang H , Yu Y , Cheng Y , Liu J , Li H , Ge W , Cheng X , Xu X , Wang J , Jiang M 2005 *Journal of Crystal Growth* **283** 438
- [13] Kaminskii A A , Bagayev S N , Oka K , Shibata H , Ueda K , Takaichi K , Eichler H J , Rhee H 2006 *Laser Phys. Lett.* **3** 263
- [14] Kaiser W , Maier M 1972 *Laser Handbook* (Amsterdam : North-Holland) p72
- [15] Shen Y R 1984 *The Principles of Nonlinear Optics* (New York : Wiley) p141

Stimulated Raman scattering of YbVO₄ crystal^{*}

Hu Da-Wei Wang Zheng-Ping[†] Zhang Huai-Jin Xu Xin-Guang Wang Ji-Yang Shao Zong-Shu

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

(Received 13 June 2007 ; revised manuscript received 2 July 2007)

Abstract

With an ultra-cavity single-pass configuration , the stimulated Raman scattering (SRS) of a new crystal YbVO₄ was investigated. When the pump source was a 532 nm pico-seconds laser , as many as three Stokes lines (558.47 , 587.92 and 620.67 nm) and one anti-Stokes line (507.58 nm) were observed. The steady-state Raman gain coefficient for the first Stokes line was measured to be 17.8 ± 0.2 cm/GW , and the total conversion efficiency reached 37% . For the first time , the SRS of YbVO₄ crystal for 355 nm pump laser was realized. The first Stokes line (366.11 nm) was observed , and according to the pumping thresholds , the steady-state Raman gain coefficient was determined to be 29.0 ± 0.3 cm/GW .

Keywords : stimulated Raman scattering , steady-state gain coefficient , conversion efficiency , YbVO₄ crystal

PACC : 4265C , 4255R

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 60508010 , 50590401) , the Natural Science Foundation of Shandong Province , China (Grant No. Y2004F05) , and the Program for Taishan Scholar of Shandong Province , China.

[†] E-mail : zpwang@icm.sdu.edu.cn