

# 976 nm 激光抽运二氧化硅微球级联拉曼散射激光的研究

张培进 黄玉 郭长磊 黄衍堂<sup>†</sup>

(福州大学物理与信息工程学院, 福州 350018)

(2013年6月6日收到; 2013年8月24日收到修改稿)

利用电极放电产生的电弧高温熔融二氧化硅单锥细纤, 熔融的二氧化硅在表面张力作用下形成表面光滑的微球, 完成高品质因子微球腔的制备. 将 976 nm 激光通过锥光纤以倏逝场方式高效耦合入微球, 研究具有高能量密度回廊模的微球腔中的三阶非线性现象——受激拉曼散射现象. 在实验中测得了六级级联的拉曼散射激光, 各级拉曼散射激光分别测得单纵模或多纵模; 在抽运光功率不少于 582.6  $\mu\text{W}$  时, 测得位于 1200 nm 附近的拉曼散射激光; 当抽运光功率为 3.014 mW 时, 测得位于 1287.04 nm 附近的第六级拉曼散射激光.

**关键词:** 微球腔, 锥光纤, 高品质因子, 拉曼散射激光

**PACS:** 42.65.Dr, 42.65.-k, 42.62.Fi

**DOI:** 10.7498/aps.62.224207

## 1 引言

1962 年, Woodbury 和 Ng<sup>[1]</sup> 研究发现了受激拉曼散射现象. 受激拉曼散射现象是介质的三阶非线性光学现象, 产生受激拉曼散射现象的工作物质有液体 (水<sup>[2]</sup>,  $\text{C}_6\text{H}_{12}$ <sup>[3]</sup>, 苯<sup>[4]</sup>)、气体工作物质 (如高压下的气体  $\text{H}_2$ <sup>[5]</sup>,  $\text{D}_2$ <sup>[6]</sup> 等)、固体物质 (如红宝石<sup>[1]</sup>, 二氧化硅<sup>[7-9]</sup>, 硅<sup>[10]</sup> 等). 随着受激拉曼散射现象的深入研究, 它被广泛应用于各个领域. 20 世纪 90 年代利用多模光纤制造出在可见光区到紫外光区且宽带可调的拉曼散射激光器; 同时还被应用于传感技术、光谱学、光子学、环境监测、生物医学分析、工业控制、自由空间通信<sup>[7-9,11,12]</sup> 和太赫兹辐射<sup>[13]</sup> 等领域.

微球腔具有高的品质因子 (可达  $10^9$ ), 光波在其中以倏逝场传播时形成一种具有小模式体积 ( $300\lambda^3$ )、高能量密度 ( $\text{GW}/\text{m}^3$ ) 的回音壁模式 (WGM). 这种具有 WGM 的微球在量子光学<sup>[14]</sup>、

微传感器<sup>[15,16]</sup>、腔量子电动力学<sup>[17,18]</sup>、微激光器<sup>[7-9,19,20]</sup> 等领域已经有广泛的理论与应用研究, 也是研究非线性光学现象的一个很好的平台. 国外 Vahala 小组<sup>[7-9]</sup> 和 Rong 等<sup>[11]</sup> 做了微球腔拉曼散射的相关研究, 2002 年 Vahala 小组用 2 mW 的 1555 nm 激光抽运直径为 70  $\mu\text{m}$  的二氧化硅微球, 得到 1670 nm 附近的拉曼散射激光; 2003 年 Vahala 小组用 980 nm 激光作为抽运源激发直径为 60  $\mu\text{m}$  的二氧化硅微球, 得到五级级联的拉曼散射激光; 2008 年 Rong 等用 1550 nm 激光抽运微型环腔获得了三级级联的拉曼散射激光. 本实验测得的拉曼散射激光光谱更宽且第三级、第四级和第五级的拉曼散射激光明显看出受到微球腔形貌特征谱的调制; 实验测得了二氧化硅微球第五级拉曼散射激光位于 1200 nm 波段附近, 作为一个较低损耗的光纤通信波段, 已经引起研究者的关注<sup>[21-23]</sup>; 更重要的是测得位于 1287.04 nm 光附近的第六级拉曼散射激光, 这个波段位于光纤通信 O 波段, 其具有很重要的实用价值.

<sup>†</sup> 通讯作者. E-mail: huangyantang@fzu.edu.cn

## 2 受激拉曼散射激光理论

受激拉曼散射现象可描述为: 入射相干光子与热振动声子相碰产生斯托克斯光子和受激声子, 受激声子与入射光子相碰再产生斯托克斯光子和受激声子, 如此继续下去, 形成雪崩过程. 根据量子电动力学观点: 受激拉曼散射现象为量子化电磁波场(光子场)与散射介质分子体系间的相互作用. 产生散射作用的分子由原来本征能级跃迁到另一本征能级, 产生向低频移动激光或产生向高频移动的激光.

为了得到斯托克斯激光功率和抽运光功率的关系, 文献 [24] 对耦合波方程  $\frac{d}{dz}I_P = -\left(\frac{\omega_P}{\omega_R}\right)g_R I_R I_P, \frac{d}{dz}I_R = g_P I_P I_R$  (其中  $I = \frac{1}{2}n\epsilon_0 c|E|^2$ ) 进行过一系列处理之后, 得到:

$$\frac{dA_P}{dt} = -\left(\frac{1}{2\tau_{ex}} + \frac{1}{2\tau_0}\right)_P A_P - \frac{\omega_P}{\omega_R} g_R^c \cdot |A_{R1}|^2 A_P + \sqrt{\frac{1}{\tau_{ex}}}, \quad (1)$$

$$\frac{dA_{R1}}{dt} = -\left(\frac{1}{2\tau_{ex}} + \frac{1}{2\tau_0}\right)_{R1} A_{R1} + g_{R1}^c \cdot |A_P|^2 A_{R1} - g_{R2}^c \left(\frac{\omega_{R1}}{\omega_{R2}}\right) |A_{R1}|^2 A_{R1}, \quad (2)$$

$$\frac{dA_{R2}}{dt} = -\left(\frac{1}{2\tau_{ex}} + \frac{1}{2\tau_0}\right)_{R2} A_{R2} + g_{R2}^c \cdot |A_{R1}|^2 A_{R2} - g_{R3}^c \left(\frac{\omega_{R2}}{\omega_{R3}}\right) |A_{R3}|^2 A_{R2}, \quad (3)$$

$$\dots$$

$$\frac{dA_{RN}}{dt} = -\left(\frac{1}{2\tau_{ex}} + \frac{1}{2\tau_0}\right)_{RN} A_{RN} + g_{RN}^c \cdot |A_{R(N-1)}|^2 A_{RN}. \quad (4)$$

整理 (1)—(4) 式可得 [7]:

$$P_N = |\kappa_N|^2 |a_N|^2 = \frac{|\kappa_0|^2 |\kappa_N|^2}{g_0^2 \left(\sum_{k=0}^{N/2} \frac{\alpha_{N-2k}}{g_{N-2k}}\right)} P_{in} - |\kappa_N|^2 \sum_{k=1}^{N/2} \frac{\alpha_{N-(2k-1)}}{g_{N-(2k-1)}}, \quad N \text{ 为偶数}, \quad (5)$$

$$P_N = |\kappa_N|^2 |a_N|^2 = \frac{|\kappa_0|^2 |\kappa_N|^2}{g_0 \left(\sum_{k=0}^{(N-1)/2} \frac{\alpha_{N-2k}}{g_{N-2k}}\right)^{1/2}} \sqrt{P_{in}} - |\kappa_N|^2 \sum_{k=1}^{(N+1)/2} \frac{\alpha_{N-(2k-1)}}{g_{N-(2k-1)}}, \quad N \text{ 为奇数}, \quad (6)$$

(5) 和 (6) 式分别表示  $N$  为偶数和奇数时第  $N$  级斯托克斯激光功率和抽运功率关系, 式中  $a_N$  为斯托克斯激光振幅,  $\kappa_N$  为耦合系数,  $g_j$  为腔内拉曼增益系数,  $\alpha_j$  为引入的一个参数  $\alpha_j = 1/(2\tau_j)$ , 其中  $\tau_j$  为光子寿命. 当  $N$  为偶数时, 两者成线性关系;  $N$  为奇数时, 斯托克斯激光功率和抽运光功率的平方根成线性关系 [7].

抽运光通过锥光纤以倏逝场的方式耦合入微球, 光被限制在微球内发生全反射形成 WGM, 可以用  $n, l, m$  表征,  $n$  是径向量子数,  $l$  是轨道量子数,  $m$  是方位角量子数. 当  $n$  较小,  $m \approx l$  时, 光场分布在球表面附近, 光场被压缩到最小的空间范围. 抽运光入射到微球中激发介质的三阶效应产生了频率为  $\omega_s$  或  $\omega_{as}$  的辐射, 产生的光的频率与抽运光频率的差可以是介质拉曼频率的  $\omega_v$  或  $\omega_{av}$  的整数倍.

## 3 实验与结果分析

### 3.1 锥光纤与微球的制备

试验中采用文献 [19, 25, 26] 中氢气火焰加热法制备锥光纤. 氢气火焰法制备锥光纤过程和参数如下: 将光纤一端接入 1310 nm 激光光源, 另一端接入 1310 nm 光功率计, 调试完毕后将初始损耗设定为 0 dB, 步进电机拉伸速度设定为 100  $\mu\text{m/s}$ , 氢火焰氢气流速设定为 100 mL/min, 步进电机拉伸总长度控制在 4—4.5 cm. 在此参数下制备出的锥光纤细腰直径为 1—3  $\mu\text{m}$  损耗小于 0.5 dB (没有计入光纤本身损耗以及插损). 微球制备方法如下: 用去离子水清洗二氧化硅单锥细纤, 将洗净后的单锥细纤放入电极间放电, 在高温电弧加热下熔融 (如图 1(a) 所示). 熔融状态下的二氧化硅在表面张力作用下形成表面均匀光滑的二氧化硅微球. 一次熔融时形成的微球直径为几到几十微米不等, 多次放电后制备出的微球从几十微米到几百微米.

### 3.2 实验测试及分析

用中心波长为 976 nm 的半导体激光器 (SDL Optics, Inc 生产, 最大单模出纤功率 12 mW) 为抽运激光光源, 用 AQ6370 光谱分析仪 (测量范围为 600—1700 nm, 最高分辨率为 0.02 nm) 测试激发后光纤输出的光谱, 设定扫描范围 900—1300 nm. 利用三维微调整架控制微球与锥光纤进行相切耦合,

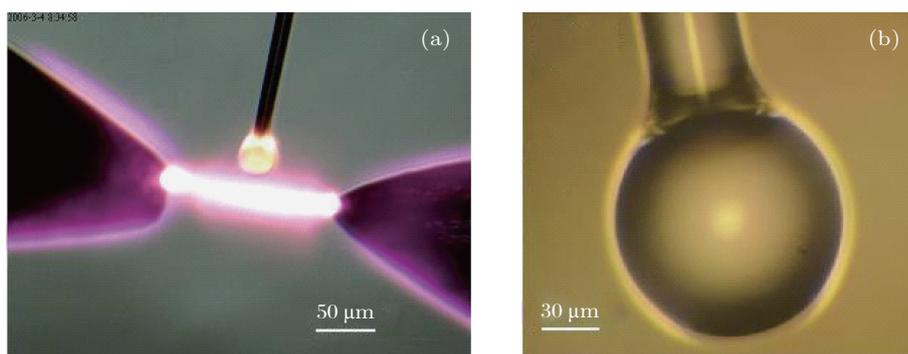


图 1 (a) 电极放电熔融光纤制备微球<sup>[20]</sup>; (b) 光学显微镜 (400×) 下观测到的微球图像

耦合位置位于微球赤道面和锥光纤锥腰最小直径处. 直径为 125 μm 的微球和直径为 1.125 μm 的锥光纤相切耦合, 在抽运光功率为 1230.8 μW (指抽运光出纤功率, 以下同上) 时测得的五级级联拉曼散射激光多纵模光谱如图 2 所示, 插图为耦合实物图. 由图 2 可知各级拉曼散射激光光谱峰值波长分别为 999.1, 1045.8, 1102.0, 1147.1, 1212.8 nm. 由频移公式  $\Delta\nu_{mn} = \frac{1}{\lambda_0} - \frac{1}{\lambda_n}$  ( $n = 1, 2, 3, \dots$ , 式中  $\lambda_n$  指第  $n$  级拉曼散射激光光谱峰值波长,  $\lambda_0$  指抽运光的中心波长  $\lambda_0 = 976$  nm), 计算出每一级拉曼散射激光相对于入射光的频移量分别为  $\Delta\nu_{mn} = 236.9, 683.8, 1171.5, 1528.3, 2000.5 \text{ cm}^{-1}$  ( $n = 1, 2, 3, 4, 5$ ). 由图 2 可知各级拉曼散射激光光谱中宽度最大的接近 40 nm 最小的为 20 nm.

无定形二氧化硅的拉曼光谱曲线如图 3(a) 所示, 由公式得出拉曼谱频移量同图中曲线对比, 可知相邻级拉曼谱频移量都落在图中曲线相应位置上. 图 2 中第五级光谱细节图如图 3(b) 所示, 由图可知第五级拉曼散射激光分布在 1190—1225 nm. 研究发现去除二氧化硅中  $\text{OH}^{-1}$  杂质后<sup>[21]</sup>, 1200 nm 附近的光在二氧化硅中的损耗可以降低到可接受的范围 ( $-0.5 \text{ dB/km}$ )<sup>[22]</sup>, 这个波段位于零色散波长 (1300 nm) 附近. 这个波段用于密集波分复用 (DWDM) 光纤通信系统, 若有相应的光放大器可以增加光纤通信容量<sup>[23]</sup>, 作为一个较低损耗的光纤通信波段已经引起了研究者的关注<sup>[21-23]</sup>. 本研究成果有用于此波段激光放大器的可能.

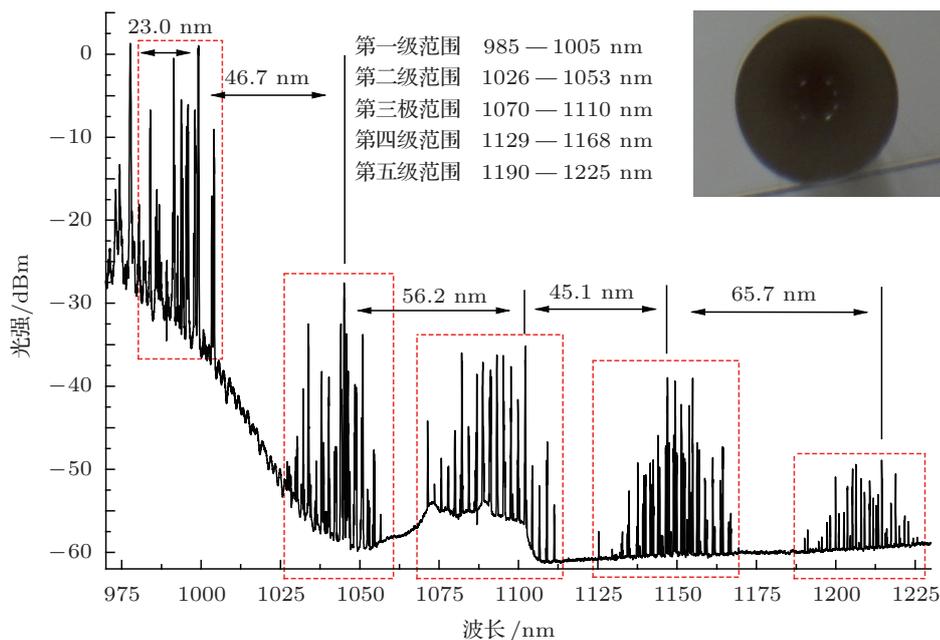


图 2 976 nm 激光抽运二氧化硅微球产生五级级联拉曼散射激光图谱; 插图为耦合实物图

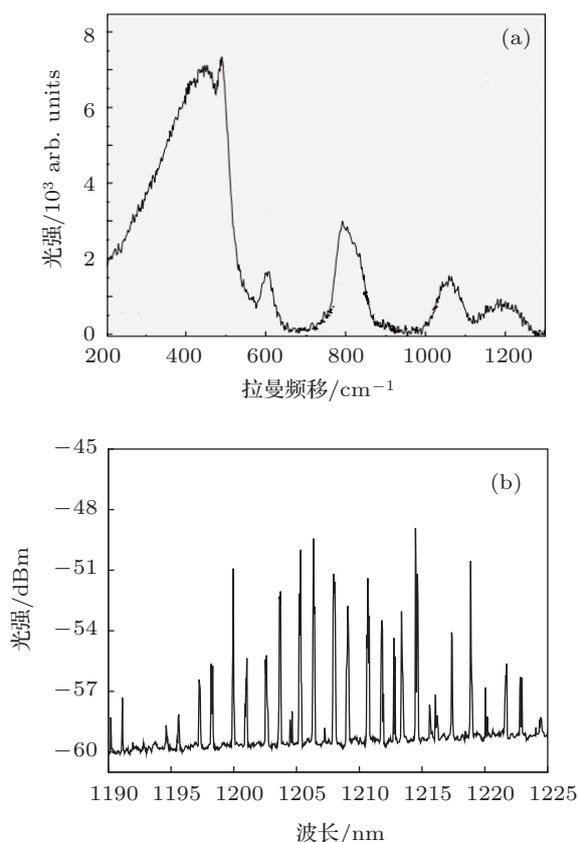


图3 (a) 无定形二氧化硅的拉曼光谱曲线<sup>[27]</sup>; (b) 图2中第五级光谱细节图

在图2中观测到第三级、第四级和第五级的光谱峰值间隔比较均匀,这是微球腔的形貌特征对拉曼散射激光的调制作用引起的.第三级、第四级和第五级部分光谱细节图分别如图4(a)—4(c)所示,由图可知第三级几个细峰之间的间距为2.16, 2.18, 2.40和2.20 nm,第四级几个细峰之间的间距为2.48, 2.40, 2.48和2.40 nm,第五级几个细峰之间的间距为2.76, 2.72, 2.74和2.64 nm,利用自由频谱公式  $F = \lambda^2 / \pi n D$  ( $\lambda$ 为真空中光波长,  $n$ 为介质的折射率,  $D$ 微球的直径),这里  $\lambda$ 分别取对应级数的峰值波长  $\lambda_3 = 1095.3$  nm,  $\lambda_4 = 1147.1$  nm,  $\lambda_5 = 1206.4$  nm,二氧化硅的折射率  $n = 1.45$ ,代入公式得出对应级数的自由频谱依次为  $F_3 = 2.29$  nm,  $F_4 = 2.51$  nm和  $F_5 = 2.78$  nm,实验值和理论值之间的误差均在5%以内,这说明拉曼散射激光受到微球腔形貌特征谱的调制<sup>[19,28-30]</sup>.

取直径为 155.5  $\mu\text{m}$  的微球和直径为 1.25  $\mu\text{m}$  的锥光纤耦合,在抽运光功率为 573.4  $\mu\text{W}$  时测得的四级级联斯托克斯激光且各级均为单纵模的光谱如图5(a)所示. 1044.2 nm和1099.7 nm

处单纵模激光细节图如图5(b)所示,由图可知1044.2 nm激光,峰值功率为 -24.25 dBm,半高全宽 FWHM = 0.36 nm,边模抑制比 SSR = 39.46 dB; 1099.7 nm激光,峰值功率为 -35.29 dBm,半高全宽 FWHM = 0.36 nm,边模抑制比 SSR = 35.7 dB.说明1044.2 nm和1099.7 nm激光是线宽较窄的激光.

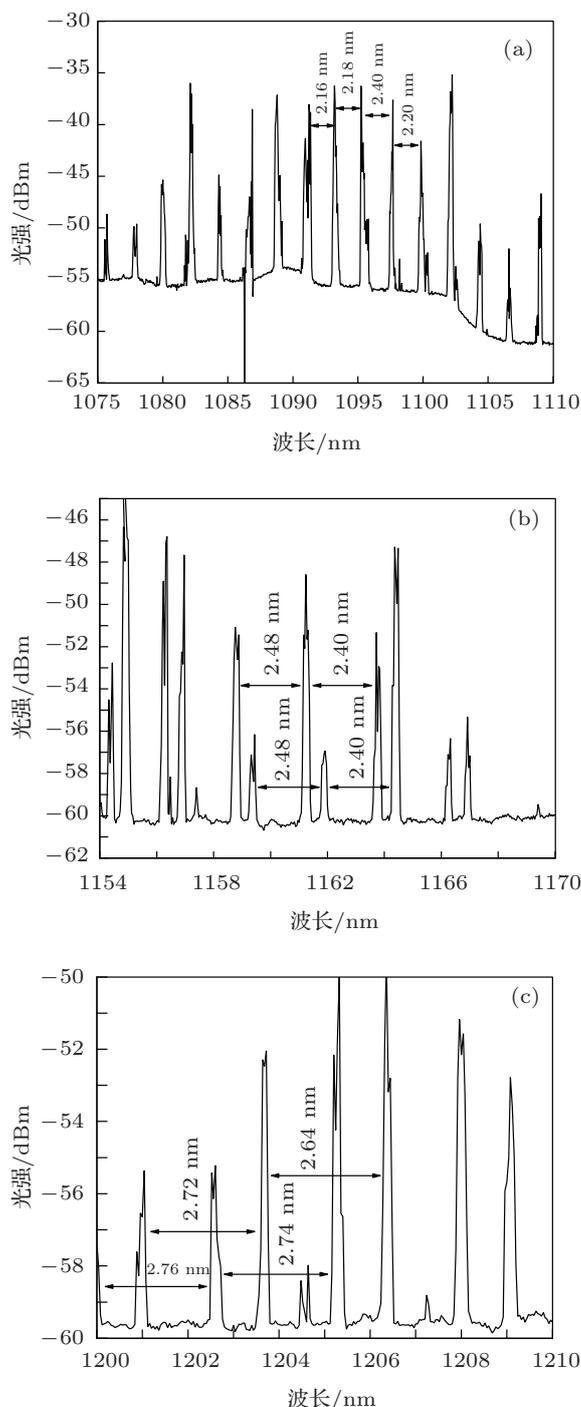


图4 (a) 第三级部分光谱细节图; (b) 第四级部分光谱细节图; (c) 第五级部分光谱细节图

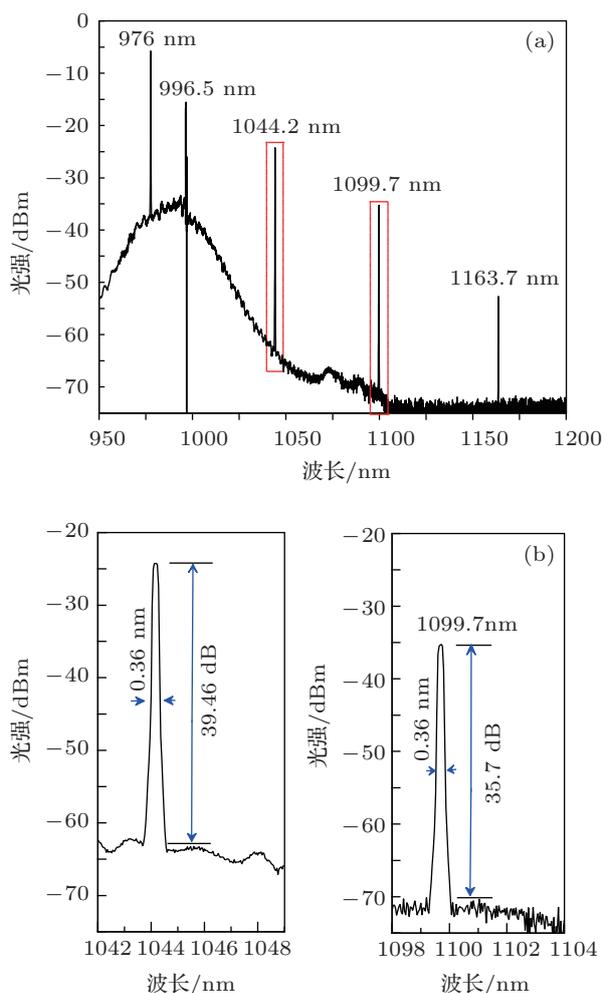


图5 (a) 各级次为单纵模的拉曼散射激光; (b) (a) 图中 1044.2 nm 和 1099.7 nm 处单纵模激光细节

取直径为 142.5  $\mu\text{m}$  的微球和直径为 1.25  $\mu\text{m}$  的锥光纤耦合, 在抽运光功率为 3.014 mW 时测得了六级级联拉曼散射激光光谱图如图 6 所示, 插图为第六级拉曼散射激光细节. 由图可知第六级的斯托克斯光位于 1287.04 nm 光附近, 此波长位于通信波段 O 波段 (1260—1360 nm), 这是首次在二氧化硅微球腔中测得位于 O 波段的拉曼散射激光, 具有潜在的应用价值.

实验中改变耦合位置, 测得的光谱图会有所变化. 在一个耦合位置测得多纵模, 换个耦合位置后有可能变成单纵模, 图 2 和图 5(a) 为不同微球不同耦合点测得的光谱图. 实验中还观察到, 微球腔内的第一级拉曼散射激光不断地在微球内表面进行全反射, 当第一级拉曼散射激光功率足以在第二级拉曼散射激光波长区域产生增益, 将激发第二级的拉曼散射激光<sup>[11]</sup>, 此时第一级拉曼散射激光功率随着第二级拉曼散射激光的产生出现暂时饱和, 这是由于第二级拉曼散射激光的产生会消耗第一级

拉曼散射激光功率<sup>[11]</sup>; 产生第三级拉曼散射激光时, 第二级拉曼散射激光会出现暂时饱和, 此时第一级拉曼散射激光功率会继续增加<sup>[9]</sup>. 依次类推, 产生第三级、第四级、第五级……. 图 5(a) 中第四级拉曼散射激光功率不足以在第五级拉曼散射激光波长区域产生增益, 因此不能产生第五级拉曼散射激光.

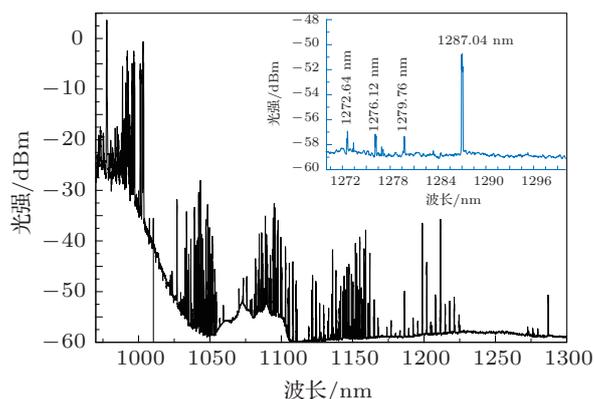


图6 六级级联拉曼散射激光光谱; 插图为第六级拉曼散射激光细节

由于空气扰动、平台微振动等因素, 在相同测试条件下用光谱分析仪重复扫描, 测得拉曼激光光谱图会有差异, 但拉曼散射激光光谱形貌基本一致.

## 4 结论

采用锥光纤作为耦合器将 976 nm 抽运激光耦合入二氧化硅微球腔, 激发产生了最长达六级级联的拉曼散射激光. 锥光纤与微球在不同耦合条件下产生的各级拉曼散射激光可能是单纵模, 也可能是多纵模激光. 在产生的五级级联多模拉曼散射激光中, 观测到了各级拉曼散射激光光谱都有较大宽度, 最大谱宽 40 nm, 最小光谱宽为 20 nm, 其中第五级的拉曼散射激光位于 1190—1225 nm, 作为一个较低损耗的光纤通信波段已经引起了研究者的关注. 当抽运功率加大时, 观察到了第六级波长为 1287.04 nm 的拉曼散射激光, 这些波段位于光纤通信的 O 波段. 这样锥光纤与二氧化硅微球耦合, 在常见的 976 nm 大功率半导体激光的激发下, 产生第六级拉曼散射激光成为 O 波段微腔激光器的可能方案. 研究中并不是任意直径的微球与锥光纤耦合都能产生受激拉曼散射现象, 微球直径与锥光纤直径需要满足一定的匹配关系才能产生受激拉曼散射现象. 寻找两者直径匹配关系是接下来研究工作的重点.

- [1] Woodbury E J, Ng W K 1962 *Proc. TRE.* **50** 2347
- [2] Li Z L, Wang Y D, Zhou M, Men Z W, Sun C L, Li Z W 2012 *Acta Phys. Sin.* **61** 064217 (in Chinese) [李占龙, 王一定, 周密, 门志伟, 孙成林, 里佐威 2012 物理学报 **61** 064217]
- [3] Liang H M, Du J L, Wang H B, Wang Z H, Luo S R, Yang J G, Zheng W G, Wei X F, Zhu Q H, Huang X J, Wang X D, Guo Y 2007 *Acta Phys. Sin.* **56** 6994 (in Chinese) [梁慧敏, 杜惊雷, 王宏波, 王治华, 罗时荣, 杨经国, 郑万国, 魏晓峰, 朱启华, 黄晓军, 王晓东, 郭仪 2007 物理学报 **56** 6994]
- [4] Jiang Y H, Sun C L, Li Z L, Cao A Y, Li Z W 2011 *Acta Phys. Sin.* **60** 064211 (in Chinese) [姜永恒, 孙成林, 李占龙, 曹安阳, 里佐威 2011 物理学报 **60** 064211]
- [5] Brasseur J K, Repasky S K, Carlsten J L 1988 *Lasers and Electro-Optics* **19** 373
- [6] Xu B, Yue G M, Zhang Y C, Hu H L, Zhou J, Hu S X 2003 *Chin. Phys.* **12** 1021 [徐贲, 岳古明, 张寅超, 胡欢陵, 周军, 胡顺星 2003 中国物理 **12** 1201]
- [7] Kippenberg T J, Spillane S M, Armani D K, Vahala K J 2004 *Opt. Lett.* **29** 1224
- [8] Spillane S M, Kippenberg T J, Vahala K J 2002 *Nature* **415** 621
- [9] Min B, Kippenberg T J, Vahala K J 2003 *Opt. Lett.* **28** 1507
- [10] Liu Z X, Feng M, Guo Q H, Qiao L, Lü K C 2011 *Acta Phys. Sin.* **60** 014214 (in Chinese) [刘组学, 冯鸣, 郭清华, 乔丽, 吕可称 2011 物理学报 **60** 014214]
- [11] Rong H S, Xu S B, Cohen O, Raday O, Lee M, Sih V, Paniccia M 2008 *Nature Photon.* **2** 170
- [12] Wang Y H, Peng Y J, He X, Song Y F, Yang Y Q 2009 *Chin. Phys. B* **18** 1463
- [13] Li Z Y, Yao J Q, Xu D G, Zhong K, Wang J L, Bing P B 2011 *Chin. Phys. B* **20** 054207
- [14] Peng B L, Shao Y G, Fu L L 2011 *Phys. Rev. A* **83** 054306
- [15] Cai Z P, Xu H Y 2003 *Sens. Actuat. A: Phys.* **108** 187
- [16] Laine J P, Tapalian C, Little B, Haus H 2001 *Sens. Actuat. A: Phys.* **93** 1
- [17] Seguin V L, Haroche S 1997 *Mater. Sci. Engineer. B* **48** 53
- [18] Vmooy D W, Furusawa A, Georgiades N P, Iichenko V S, Kimble H J 1998 *Phys. Rev. A* **57** 2293
- [19] Guo C L, Huang Y, Zhang P J, Huang Y T 2012 *Chin. J. Lasers* **40** 0302004 (in Chinese) [郭长磊, 黄玉, 张培进, 黄衍堂 2012 中国激光 **40** 0302004]
- [20] Huang Y T, Guo C L, Huang Y, Zhang P J 2013 *Appl. Mech. Mater.* **278–280** 1063
- [21] Zhou B, Lin H, Pun E Y 2010 *Opt. Express* **18** 18805
- [22] Thomas G A, Shraiman B I, Glodis P G, Stephen M J 2000 *Nature* **404** 262
- [23] Driesen K, Tikhomirov V K, Görrler-Walrand C, Rodriguez V D, Seddon A B 2006 *Appl. Phys. Lett.* **88** 073111
- [24] Kippenberg T J 2004 *Ph. D. Dissertation* (California: California Institute of Technology Pasadena)
- [25] Guo C L, Huang Y 2012 *Trans. Proc. SPIE* **8418** 84180G
- [26] Brambilla G 2010 *J. Opt.* **12** 043001
- [27] Vandembroucq D, Deschamps T, Coussa C, Perriot A, Etienne B, Champagnon B, Martinet C 2008 *J. Phys. : Condens. Matter* **20** 485221
- [28] Seguin V L 1999 *Opt. Mater.* **11** 153
- [29] Sandoghdar V, Treussart F, Hare J, Lefèvre-Seguin V, Raimond J M, Haroche S 1996 *Phys. Rev. A* **54** 1777
- [30] F'eron P 2004 *Annales de la Fondation Louis de Broglie* **29** 317

# Study of cascaded raman scattering laser in silica microsphere pumped by 976 nm laser

Zhang Pei-Jin Huang Yu Guo Chang-Lei Huang Yan-Tang<sup>†</sup>

( College of Physics and Information Engineering, Fuzhou University, Fuzhou 350018, China )

( Received 6 June 2013; revised manuscript received 24 August 2013 )

## Abstract

High-quality-factor microspheres with smooth surface are fabricated through surface tension by heating and fusing a single tapered fiber using arc of electrodes discharge. Stimulated Raman scattering of the third order nonlinear phenomena of microspheres with high power density whispering gallery modes was studied by coupling 976 nm laser into microspheres through tapered fiber as evanescent wave. The total six cascaded Raman lasers were observed in the experiment. At each order, single longitudinal mode and multi longitudinal mode Raman lasers were observed. The Raman laser at around 1200 nm was measured with pump power less than 582.6  $\mu$ W. The sixth-order Raman laser at around 1287.04 nm was observed when pump power is 3.014 mW.

**Keywords:** microspheres, tapered fiber, high-quality-factor, Raman scattering laser

**PACS:** 42.65.Dr, 42.65.-k, 42.62.Fi

**DOI:** 10.7498/aps.62.224207

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail: huangyantang@fzu.edu.cn