

Cr⁴⁺:YAG 激光器特性

雷海容 张国威

(北京理工大学光电工程系, 北京, 100081)

摘要: 本文系统地介绍了 Cr⁴⁺:YAG 的晶体结构和光谱特性以及不同运转条件下国外 Cr⁴⁺:YAG 激光器的特性。着重阐述了受激态吸收对调谐范围和输出特性的限制, 以及吸收饱和时的偏振特性及被动调 Q 性能。

关键词: Cr⁴⁺:YAG 受激态吸收 偏振特性

Performances of a Cr⁴⁺-doped YAG laser

Lei Hairong, Zhang Guowei

(Beijing Institute of Technology)

Abstract: The crystal structure, spectrum properties and laser performances of a Cr⁴⁺-doped YAG are introduced systematically in this paper. We also expound the limitation in tuning range and lasing properties by the excited-state absorption, the polarization and the passive Q-switch behavior by saturation absorption.

Key words: Cr⁴⁺-doped YAG(Cr⁴⁺:YAG) excited-state absorption polarization behavior

一、引言

1988年 Petricevic 等^[1]报导了第一种掺 Cr⁴⁺ 晶体——镁橄榄石(Cr⁴⁺:Mg₂SiO₄)的激光作用,其调谐范围为 1.17~1.34 μ m。同年,苏联科学院的 Shestakov 等^[2]首次报导了掺 Cr 钇铝石榴石(Cr:YAG)的激光作用,调谐范围扩展到了 1.35~1.45 μ m。最近,其调谐范围已扩展到 1.31~1.59 μ m^[3]。这样,掺 Cr⁴⁺ 激光材料的出现,把可调谐固体(过渡金属离子)激光器的调谐范围由 Cr³⁺, Ti³⁺ 离子的 0.7~1.0 μ m 谱区扩展到了 1.6 μ m 附近,并向更长波长方向努力。初步实验表明,它与 Cr⁴⁺:Mg₂SiO₄ 晶体相比,不仅有更长的激光波长,而且有优良的机械性能和热性能,容易用提拉法生长成大尺寸的优质晶体,有很大的吸收截面等。其应用前景非常广泛:光通讯波段(1.3~1.5 μ m)正处于 Cr⁴⁺:YAG 发射中心(荧光谱中心波长~1.37 μ m,激光谱中心波长~1.42 μ m),与半导体激光器相比,有易获得高相干性,高输出功率的优点。同时,它还是人眼安全波段(>1.4 μ m)激光器的重要候选者,在技术上和结构上比喇曼频移激光器和光参量激光器简单。作为波长可连续调谐的激光器,它将是这一红外谱区研究激光光谱和非线性光学等的重要光源。它能达到 pm 级光谱分辨率和 fs 级的时间分辨率,因而将是各种激光雷达的主要激光光源。由于 Cr⁴⁺:YAG 在 1.06 μ m 处的饱和吸收特性,它在 Nd:YAG 激光器中作被动调 Q 元件已显示出优越性。若在 Cr⁴⁺:YAG 中掺入 Nd³⁺,就有可能实现自调 Q 运转。另外,随着长波长大功率激光二极管的发展,Cr⁴⁺:YAG 在全固化可调谐激光器中将显示重要地位。

二、Cr⁴⁺:YAG 的晶体结构和光谱特性

YAG(Y₃Al₅O₁₂)属于石榴石晶体家族,具有立方晶格结构 Ia3d(O_h¹⁰)。晶格常数为 12.01Å。三个 Y³⁺ 在十二面体格位上(222 对称),二个 Al³⁺ 在八面体格位上($\bar{3}$ 对称,占 Al³⁺ 的 40%),另三个 Al³⁺ 则在四面体格位上($\bar{4}$ 对称,占 Al³⁺ 的 60%)。一般都采用提拉法生长,掺 Cr⁴⁺ 的晶体呈暗褐色^[2]。掺杂时 Cr⁴⁺ 将取代四面体格位上的 Al³⁺,熔料中 Cr 浓度为 0.04at%,为保证铬离子的 +4 价态,掺入了 0.02at%Ca(或 Mg),以 Ca²⁺(或 Mg²⁺)进行电荷补偿。

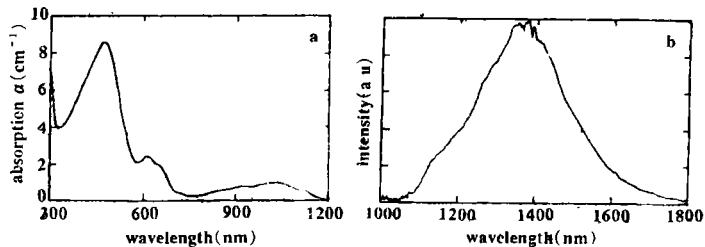


Fig. 1 Room temperature absorption spectra and emission spectra of Cr⁴⁺:YAG

Cr⁴⁺:YAG 的吸收谱和发射谱如图 1 所示^[3],吸收带主要有 0.48μm, 0.65μm 和 1μm。其中 0.48μm 吸收带是由八面体格位上的 Cr⁴⁺ 电荷转移或色心等所造成,其余吸收带则为四面体格位上的 Cr⁴⁺ 所产生。其中 0.65μm 为 ³A₂ → ³T₁ 的吸收跃迁,如图 2^[4],1μm 的红外吸收带是 ³A₂ → ³T₂ 跃迁的结果,它是一个很宽的吸收带。因此,不仅 1.06μm 的 Nd:YAG 是它的理想泵浦源,而且 InGaAs 大功率二极管也是全固化小型化的 Cr⁴⁺:YAG 激光器的首选泵浦源。其荧光发射谱范围也很宽(1.1~1.7μm),峰值在波长 1.37cm 处。室温时的荧光寿命为 3.4~4.5μs^[3]。其主要光谱参数列在表 1 中。

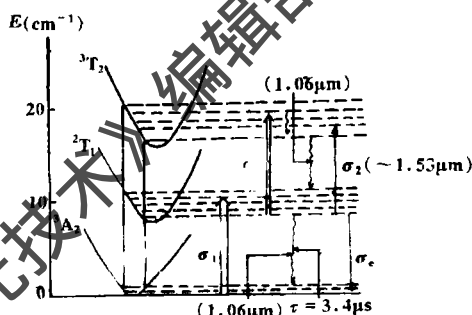


Fig. 2 Energy diagram of Cr⁴⁺ ion absorbing laser emission at λ = 1.06μm

Table 1 Main spectrum parameters of Cr⁴⁺:YAG

Item	Ref. [4]1989	Ref. [5]1992	Ref. [6]1993	Ti ³⁺ :Al ₂ O ₃
absorption cross section of ground state $\sigma_1(\text{cm}^2)$	7×10^{-18} (1.06μm)	$(5.7 \pm 2) \times 10^{-18}$ (1.06μm)	$(3 \pm 0.5) \times 10^{-18}$ (1.06μm)	6.5×10^{-20} (0.49μm)
absorption cross section of stimulated state $\sigma_2(\text{cm}^2)$	5×10^{-19} (1.06μm)	$(8 \pm 2) \times 10^{-19}$ (1.06μm)	$(2 \pm 0.5) \times 10^{-19}$ (1.06μm)	
stimulated emission cross section $\sigma_e(\text{cm}^2)$	3×10^{-19} (1.4μm)			3.8×10^{-19} (0.8μm)
³ T ₂ state life time (μs)	3.4 (T = 300K)			3.2 (T = 300K)
³ T ₁ state life time (ps)	50 ± 5 (T = 300K)			
experimental condition	Q-switch Nd:YAG energy density: 1~2J/cm ² absorption coefficient: $\alpha = 1.6\text{cm}^{-1}$	Q-switch Nd:YAG 10ns power density: 2~100MW/cm ² absorption coefficient: $\alpha = 2.6\text{cm}^{-1}$ ([001]) $\alpha = 2.3\text{cm}^{-1}$ ([111])	Q-switch Nd:YAG 15ns energy density: 0.1~1.5J/cm ² absorption coefficient: $\alpha = 2.7\text{cm}^{-1}$	

$\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$ 吸收截面的测定有一定难度,这是因为:(1)晶体中同时存在 Cr^{3+} ,而 Cr^{4+} 与 Cr^{3+} 的比例难于确定;(2)在 $1.06\mu\text{m}$ 附近存在受激态吸收。Shestakov 于 1989 年曾用 $1.06\mu\text{m}$ 脉冲激光测定了基态吸收截面 $\sigma_1 = 7 \times 10^{-18} \text{cm}^2$ 和受激态吸收截面 $\sigma_2 = 5 \times 10^{-19} \text{cm}^2$ [4]。其后,美国佐治亚大学的 Eilers 等于 1992 年用 Shestakov 和 Kokta(美国联合碳化物公司)提供的晶体,测定的 $\sigma_1 = 5.7 \times 10^{-18} \text{cm}^2$ 和 $\sigma_2 = 8 \times 10^{-19} \text{cm}^2$ [5]。最近,美国南加州大学 Spariosu 等测出的值为 $\sigma_1 = 3 \times 10^{-18} \text{cm}^2$, $\sigma_2 = 2 \times 10^{-19} \text{cm}^2$ [6]。他们的 σ_1 值相差约一倍左右,而 σ_2 值相差 2.5~3 倍。其原因除测试条件有所不同外,所用的物理模型也有差异(速率方程简化近似不同)。 $\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$ 的 ${}^3\text{A}_2 \rightarrow {}^3\text{T}_2$ 吸收截面由 Ca^{2+} 电荷补偿量计算出 $1\mu\text{m}$ 处下限值为 $3.5 \sim 3.6 \times 10^{-19} \text{cm}^2$ [3]。它比红宝石($\text{Cr}^{3+}:\text{Al}_2\text{O}_3$ 的 $1.22 \times 10^{-20} \text{cm}^2$)和钛宝石($\text{Ti}^{3+}:\text{Al}_2\text{O}_3$ 的 $6.4 \times 10^{-20} \text{cm}^2$)仍高一个量级,而实际测定的值则比这两种晶体大两个量级左右。因此,它表现极好的饱和和吸收性能。其受激态吸收截面 σ_2 比基态吸收截面 σ_1 虽小一个数量级($\sigma_1/\sigma_2 = 7 \sim 15$),但其影响很大。 $\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$ 的受激态发射截面 σ_e 约为 $3 \times 10^{-19} \text{cm}^2$,与 $\text{Ti}^{3+}:\text{Al}_2\text{O}_3$ 相当,但由于其掺杂浓度低,一般 $N_0 \approx 10^{18}/\text{cm}^3$,因此其贮能受到一定的限制。

三、 $\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$ 的激光特性

1. 受激态吸收的影响

Cr^{4+} 的 ${}^3\text{T}_2 \rightarrow {}^3\text{T}_1$ 跃迁的受激态吸收(ESA),如图 2 所示, ${}^3\text{T}_1$ 态对应能量(波数) 14900cm^{-1} , ${}^3\text{A}_2 \rightarrow {}^3\text{T}_1$ 吸收跃迁产生出 $0.65\mu\text{m}$ 的吸收带。而 ${}^3\text{T}_2$ 态为 8400cm^{-1} ,则 ${}^3\text{A}_2 \rightarrow {}^3\text{T}_2$ 跃迁形成 $1\mu\text{m}$ 的红外宽吸收带。因此 ${}^3\text{T}_1$ 与 ${}^3\text{T}_2$ 态之间的能级差约为 6500cm^{-1} ($\sim 1.53\mu\text{m}$) [7]。

当用 $1.06\mu\text{m}$ 进行泵浦时,不仅将在 ${}^3\text{T}_2$ 态形成粒子数的反转分布,而且同时存在对 $1.06\mu\text{m}$ 的 ${}^3\text{T}_2 \rightarrow {}^3\text{T}_1$ 吸收,这是一种 ESA。虽然 ${}^3\text{T}_1$ 的寿命极短(50ps),对亚稳态 ${}^3\text{T}_2$ 上的粒子数密度影响不大,但对 $1.06\mu\text{m}$ 泵浦光却是一种损耗,将影响到激光器的阈值和转换效率。另一种 ESA 是对激光光的吸收,当激光波长与 ${}^3\text{T}_2$ 和 ${}^3\text{T}_1$ 间的能级匹配时,即可能产生这种 ESA。对应 σ_2 值较大的波长,则有较强的 ESA。它对激光是一种损耗,其影响轻则降低激光的输出,重则将使激光作用停止。实验表明,ESA 是 $\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$ 激光器长波端调谐范围受限制的主要原因。图 3 是 Jia 等的 $\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$ 输出与输入的实验曲线[8]。所有的曲线都有一个极大值。这表明在吸收饱和后,进一步提高泵浦能量,只会使 ESA 增强,反而使激光输出下降。实验还表明,ESA 在长波长比短波长方向作用要强得多。如对 $1.53\mu\text{m}$,当泵浦能量大于 135mJ 时,其输出即下降,而对 $1.535\mu\text{m}$,相同泵浦下其激光作用停止。在 135mJ 泵浦时,调谐范围为 $1.36 \sim 1.53\mu\text{m}$,当提高到 180mJ 时,短波长扩至 $1.34\mu\text{m}$,而长波长却未扩展。当降到 120mJ 时,却能调谐到 $1.54\mu\text{m}$ 。Kück 用 $200\mu\text{s}$ 的 $1.06\mu\text{m}$ 长脉冲泵浦时[9],却实现了 $1.31 \sim 1.60\mu\text{m}$ 的调谐(参见下节表 2)。但与 $1.1 \sim 1.7\mu\text{m}$ 荧光发射谱相差尚远。因此,减小 ESA 的影响,可能是 $\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$ 激光器在长波端扩展调谐范围的关键。最后值得一提的是 $\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$ 的激光过程与第二种 ESA 之间的竞争将导致激光振荡的不稳定,这种不稳定性在实验

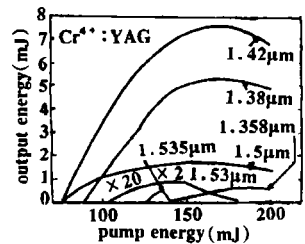


Fig. 3 Output energy of the $\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$ laser as a function of pump energy at $\lambda = 1.06\mu\text{m}$

中已被观察到。

2. 激光脉冲的时间特性^[3,8]

图 4 是脉宽 10ns 的 1.06 μm 脉冲激光泵浦时, Cr⁴⁺:YAG 激光器的激光脉冲建立时间(也称延迟时间)与泵浦能量的实验关系曲线,对 1.42 μm ,在 135mJ 泵浦时,延迟时间约为 260ns,而输出激光的脉冲宽度(FWHM)为 55ns。对所有波长,延迟时间在泵浦能量 150mJ 到 200mJ 之间时最短。这显然不同于 Ti³⁺:Al₂O₃ 激光器那样,随着泵浦能量的增加,延迟时间相应缩短,并单调地趋向一个常量。对 Cr⁴⁺:YAG 而言,不同的输出波长其延迟时间也不同。波长 1.5 μm ,有长得多的延迟时间。泵浦能量在低于 90mJ 和高于 120mJ 时,延迟时间都急剧增长。这同样可用 ESA 作用对激光脉冲建立的影响来解释。这时我们可把 ESA 看成是一种附加的损耗机制。

3. 偏振特性

YAG 本属各向同性晶体,应无偏振选择性,但当掺 Cr⁴⁺ 后,实验表明它具有了偏振谱。图 5 是两块不同晶体取向样品的偏振谱^[5]。晶体 A 是按 [001] 晶轴生长的(俄罗斯科学院)。晶体 B 则沿 [111] 晶轴生长(联合碳化物公司)。实验样品的取向见图 6,实验时光都沿生长轴方向传播。当 1.06 μm 光入射时,其透射谱如图中所示。当入射功率较小时(小信号吸收),透射光无明显偏振性,它们的透射率分别为 28.5% 和 23%,这表明这时的 YAG 还是各向同性的,在提高输入光功率时,晶体出现吸收饱和。当沿通光的晶轴旋转晶体时,透射能量出现周期地变化,对晶体 A,当偏振光方向与 [100] 轴夹角为 90°, 180°, 270°, 360°(0°) 时透过极大,而 45°, 135°, 225° 和 315° 处透过为极小,有四个周期。而对晶体 B,则存在六个周期。当过饱和时,透过率达到最大,周期性变得不明显。Kück 等在它的激光发射实验中同样观察到类似的周期性的偏振性,如图 7^[9]。其晶体取向如图 6A,结果与图 5 中的晶体 A 的透射谱有相同的周期和极大、极小值位置。特别有意思的是, Cr⁴⁺ 的激光发射也是线偏光,其偏振方向在各个极小值点发生 90° 的突变。如何解释这种各向异性现象呢? Eilers 认为在晶体出现饱和现象时,由基态到受激态跃迁将产生与晶体中某一晶轴相平行的偶极子,这些偶极子的相对取向如图 6 所示。当入射光电矢量平行于 [010] 或 [100] 轴($\theta = 0^\circ$ 或 90°) 时,实现吸收跃迁饱和和要求的能量最小,即通过为最大。而在 $\theta = 45^\circ$ 或 135° 等处,这

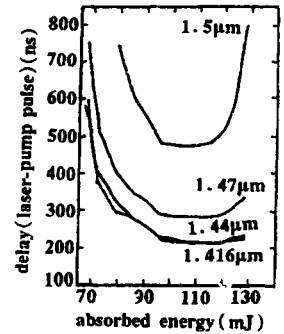


Fig. 4 Delay time between the 1.06 μm pump laser and the Cr⁴⁺:YAG laser vs absorbed energy for different lasing wavelength

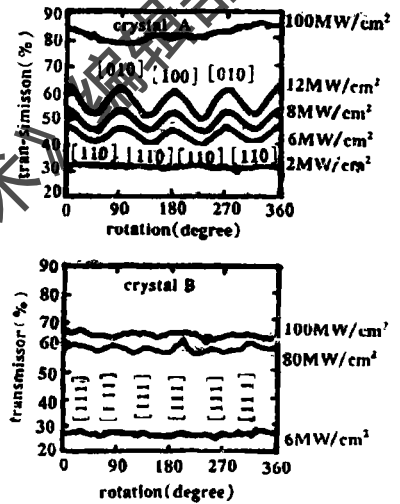


Fig. 5 Top: Percentage energy transmission of linearly polarized 1.06 μm laser as a function of rotation angle for crystal A (light propagating along [001]) and for several values of input intensity Bottom: Same as top, only for crystal B (light propagating along [111])

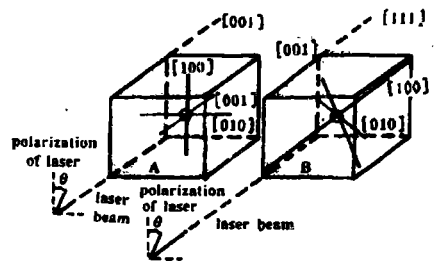


Fig. 6 Position of the effective (ground state) transition moment dipoles deduced for crystals A and B, the positions and angular relationships of these dipole moments explain the observed modulation shown in Fig. 5

时[010]和[100]两种偶极子同时受到作用,则饱和需要的能量就大,透过也就变小,达到极小值。

4. 短脉冲的产生

1993年 Shestakov 等首次报导了用 CW $\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$ 进行声光主动锁模获得了 26ps 的脉冲,以后又进一步压缩到 $2.8\text{ps}^{[10]}$ 。1994年美国康奈尔大学 Sennarogla 等采用棱镜进行负群速色散补偿^[11],实现了 $\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$ 的 CW 自锁模,获得 120fs 的短脉冲,并可在 $1.51 \sim 1.53\mu\text{m}$ 调谐。

5. 腔内被动调 Q 作用

Cr^{4+} 由于存在 $1\mu\text{m}$ 的饱和吸收,因此许多掺 Cr^{4+} 的石榴石晶体都有可能成为被动调 Q 材料(如 GSAG, GIGG 等)。文献[6]用 $\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$ 作为饱和吸收调 Q 元件对 Nd:YAG 实现了一种复合腔的“双调 Q”运转,同时得到 $1.06\mu\text{m}$ 和 $1.44\mu\text{m}$ 的输出。

表 2 列出了不同运转方式 $\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$ 激光器国外的最新成果。如上所述 $\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$ 与 $\text{Ti}^{3+}:\text{Al}_2\text{O}_3$ 比较,由于存在很大的吸收截面,即使是较低的 Cr^{4+} 浓度也会有较大的吸收系数。如一个 $\alpha = 2.5\text{cm}^{-1}$ 的晶体,其 $[\text{Cr}^{4+}]$ 仅 $\sim 5 \times 10^{17}/\text{cm}^3$ 。这比 $\text{Ti}^{3+}:\text{Al}_2\text{O}_3$ 约低一个量级,其贮能势必受到很大限制。而其受激态吸收的作用,不仅对泵浦光和激射光都会产生损耗,而且也严重限制了它的调谐范围。近来有人试图利用其它的石榴石基质晶体,改变 $^3\text{T}_1$ 与 $^3\text{T}_2$ 间的能级参数,以达到向长波端扩展的目的,已取得初步的结果。

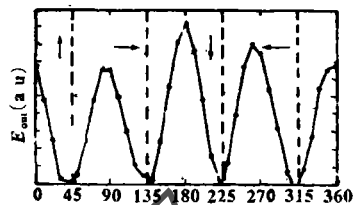


Fig. 7 Output energy as a function of the angle between pump pulse polarization and [100]-direction. the polarization of the $\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$ laser emission is indicated by arrows

Table 2 Performances of $\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$ in different operations

Item	Author		
	Kück S [9] (1993)	Eiler H [3] (1993)	
pump condition (wavelength)	Nd: YLF CW TEM ₀₀ -mode 1.047 μm	Nd: YAG long pulse (200 μs) 1.06 μm	Q-switch Nd: YAG 10ns 10Hz 1.06 μm
crystal dimension (codoping)	$\varnothing 5 \times 17\text{mm}$ Cr: 0.04 at. % Ca: 0.02 at. %	$\varnothing 5 \times 45\text{mm}$ Cr: 0.04 at. % Ca: 0.02 at. %	$\varnothing 5 \times 48\text{mm}$
pump energy (power)	~15W	~250mJ	~250mJ
pump beam size	$\varnothing 0.07\text{mm}$	$\varnothing 1\text{mm}$	$\varnothing 3\text{mm}$
threshold	3.4W (absorbed power)	17mJ ($T = 0.1\%$)	$36 \pm 5\text{mJ}$ (1.42 μm) 60mJ (1.4~1.5 μm)
output energy (power) (wavelength)	1.2W (1.44 μm)	58mJ (1.42 μm)	7.5mJ (1.42 μm)
slope efficiency (output coupler)	12.3% ($T = 2\%$)	28% ($T = 10\%$)	22%
tunable range(μm)	no tuning	1.309~1.596	1.35~1.53 (pump energy 135mJ) 1.35~1.54 (pump energy 120mJ)
others	the pump beam was chopped with a duty cycle of 1:8	the cavity length was 28cm output coupler $r = -1\text{m}$	

参 考 文 献

- 1 Petricevic V, Gayen S K, Alfano R R. A P L, 1988;52:1040
- 2 Angert N B, Borodin N I, Shestakov A V *et al.* Sovjet J Q E, 1988;18:73
- 3 Eilers H, Kück S, Jia W *et al.* IEEE J Q E, 1993;29:2508
- 4 Zverev G M, Shestakov A V. OSA Proceedings on Tunable Solid-State Lasers, North Falmouth, Optical Society of America, 1989:66
- 5 Eilers H, Hoffman K R, Dennis W M *et al.* A P L, 1992;61:2958
- 6 Spariosu K, Chen W, Shestakov A V. Opt Lett, 1993;18:814
- 7 Kück S, Petermann K, Huber G. OSA Proceedings on Advanced Solid-State Lasers, Washington DC, Optical Society of America, 1991:92
- 8 Jia W, Eilers H, Shestakov A V *et al.* Digest on Advanced Solid-State Lasers, 1992:20
- 9 Kück S, Koetke J, Petermann K *et al.* OSA Proceedings on Advanced Solid-State Lasers, Washington DC, Optical Society of America, 1991:334
- 10 Conlon P T, Taylor J R, Shestakov A V *et al.* OSA Proceedings on Advanced Solid-State Lasers, Washington DC, Optical Society of America, 1994:20
- 11 Sennaroglu A, Pollock C R, Nathel H. OSA Proceedings on Advanced Solid-State Lasers, Washington DC, Optical Society of America, 1994:4



* 作者简介:雷海容(附照片),男,1960年出生。助教。从事固体激光器教学和科研工作,现为在职研究生。

张国威,男,1933年出生。教授。主要从事染料和固体可调谐激光器,分光技术,应用激光光谱技术和红外光波导等领域的教学和科研工作。

收稿日期:1995-04-25

· 简 讯 ·

钛宝石激光晶体通过鉴定

西南技术物理研究所研制的钛宝石激光晶体和北京理工大学研制的可调谐钛宝石激光器,于1995年12月25日在北京理工大学同时通过部级鉴定。

鉴定委员会由王大衍院士、沈德忠院士和梅遂生研究员等10位专家组成。鉴定委员会对西南技术物理研究所的钛宝石提拉法生长研究工作给予了高度的评价。与会专家认为,北京理工大学采用西南技术物理研究所的钛宝石(尺寸12.8mm×9.6mm×29mm)所做成可调谐钛宝石激光器(平平腔,色散棱镜调谐),采用倍频Nd:YAG激光单端纵向泵浦,在重复频率10Hz下,输入能量为330mJ/P时,在764nm处获得脉冲能量为110.1mJ/P的激光输出,能量转换效率36.7%,达到90年代初期同类型可调谐钛宝石激光器的国际先进水平。同一根钛宝石棒在重复频率1Hz的单端泵浦下,获得130.4mJ/P的最大脉冲激光输出,能量转换效率39.4%。

钛宝石晶体达到的其它质量指标还包括, FOM>150;在5mW He-Ne激光照明下无肉眼可见散射颗粒和钛宝石激光器调谐范围达到682~1007nm(>10mJ)。

另一根钛宝石激光棒,由电子部11所提供的测试数据为:在1Hz重复频率下也已获得最大脉冲激光输出能量为140mJ(单向泵浦)和156mJ(双向泵浦)。

陈庆汉 供稿