

文章编号: 0258-7025(2004)08-0955-04

高掺杂浓度 Yb:YAG 晶体的生长 及光谱性能

徐晓东, 赵志伟*, 宋平新, 周国清, 邓佩珍, 徐 军

(中国科学院上海光学精密机械研究所, 上海 201800)

摘要 应用中频感应提拉法生长了掺杂浓度高达 50 at.-% 的 Yb:YAG 晶体,研究了室温下 Yb:YAG 晶体的吸收和发射光谱特性以及荧光寿命,在 939 nm 和 969 nm 处存在 Yb³⁺ 离子的 2 个吸收带,能与 InGaAs 激光二极管(LD)有效耦合,适合激光管二极管抽运。其荧光主峰位于 1032 nm 附近,Yb:YAG 晶体的荧光寿命为 390 μs。比较了高掺杂与低掺杂 Yb:YAG 晶体的光谱参数,指出高掺杂 Yb:YAG 晶体是一种很有前景的高功率激光增益介质。
关键词 材料;Yb:YAG 晶体;提拉法;晶体生长;光谱特性

中图分类号 O 782⁺.5;O 734 **文献标识码** A

Growth of High Doping Yb:YAG Crystal and Its Spectral Performance

XU Xiao-dong, ZHAO Zhi-wei, SONG Ping-xin,

ZHOU Guo-qing, DENG Pei-zhen, XU Jun

(Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, The Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China)

Abstract Yb:YAG (Yb:Y₃Al₅O₁₂) crystal with Yb³⁺ doping level up to 50 at.-% has been grown by Czochralski method. The absorption, emission spectra and fluorescence lifetime of Yb:YAG crystal at room temperature have also been studied. Two absorption bands are centered at 939 nm and 969 nm of Yb³⁺, respectively, which are suitable for InGaAs diode laser pumping, and the main fluorescence band is located around 1032 nm. The fluorescence lifetime of Yb:YAG laser crystal is 390 μs. The spectral parameters of low and high doping Yb:YAG crystals are compared. The results indicate that Yb:YAG with high doping concentration is a promising laser material for high power laser output.

Key words materials; Yb:YAG crystal; Czochralski method; crystal growth; spectral performance

1 引 言

随着激光二极管(LD)的发展,用 LD 抽运代替闪光灯和离子激光抽运已成为固体激光器发展的趋势,这将有利于实现固体激光器的高效、高功率、小型化、集成化、结构紧凑和降低成本^[1]。近年来,随着高性能 InGaAs 二极管(波长为 0.9~1.1 μm)的发展和成本的降低,掺 Yb³⁺ 激光材料引起了人们很

大的研究兴趣^[2~4]。Yb³⁺ 离子量子缺陷较低(8.6%),由抽运光子和发射光子间的能量差而引起的热负载(<11%)仅为掺 Nd³⁺ 同种基质材料的 1/3。在目前研究的掺 Yb³⁺ 激光晶体中,Yb:YAG 晶体由于具有良好的光谱性能、优异的光学、热力学和机械性能而成为掺 Yb³⁺ 激光晶体的佼佼者^[5]。目前 LD 抽运的 Yb:YAG 固体激光器的平均输出功率已经达到 2.65 kW^[6]。

收稿日期:2003-05-13;收到修改稿日期:2003-06-12

基金项目:国家 863 计划(2002AA311030)资助项目。

作者简介:徐晓东(1979—),男,江苏省人,中国科学院上海光学精密机械研究所博士研究生,主要从事激光晶体生长、光谱和激光性能的研究。

* 通信联系人。E-mail:zzw8006@sina.com

Yb^{3+} 离子作为能级结构最简单的激活离子,电子构型为 $4f^{13}$, 仅有两个电子态;基态 $^2F_{7/2}$ 和激发态 $^2F_{5/2}$ 。因此对激光性能不利的因素如上转换和激光态吸收不存在,即使在很高的掺杂浓度下,浓度猝灭效应也很小^[7]。由于 Yb:YAG 晶体可实现较高浓度掺杂,这对实现固体激光器的小型化和集成化将具有十分重要的意义^[5]。

本文采用提拉法生长了掺杂浓度高达 50 at.-% 的 Yb:YAG 晶体,研究了室温下晶体的吸收和发射光谱特性以及荧光寿命,并且比较了低浓度和高浓度掺杂晶体的光谱特性。

2 实 验

2.1 晶体生长

晶体生长所用的原料为纯度为 5 N 的 Yb_2O_3 , Al_2O_3 和 Y_2O_3 。在 Yb:YAG 晶体中, Yb^{3+} 离子取代晶格中位于十二面体中心具有八配位的 Y^{3+} 离子格位。其化学式为 $(\text{Y}_{1-x}\text{Yb}_x)_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$, 其中 x 为掺杂浓度,在本实验中 $x = 50$ at.-%。晶体生长采用中频感应提拉法,先将各高纯氧化物粉末在空气中适当地预干燥,然后按化学计量比严格称量,称量精度为 10 mg,并研磨均匀,加压成直径略小于坩埚内径的块体,在空气中 1350°C 恒温预烧数小时后装入铌坩埚中开始生长晶体。晶体生长方向 $\langle 111 \rangle$, 晶转速率 $10 \sim 20$ r/min, 生长速率 1 mm/h, 生长气氛为氮气中加入少许氧气。

2.2 X 射线衍射法 (XRD) 分析

用于 X 射线粉末衍射的样品,取自晶体的顶部,然后在玛瑙研钵中研成粉末,采用电感耦合等离子体原子发射光谱仪 (ICP-AES) 分析粉末中的 Yb^{3+} 离子的浓度为 53.6 at.-%。运用 JUINER HÄJJ 相机测量了晶体的结构,由计算机收集和分析数据。

2.3 吸收和发射光谱测定

用于吸收光谱测试的样品垂直于生长方向 $\langle 111 \rangle$ 切割,样品经粗、细磨和抛光,厚度为 1 mm。吸收光谱的测试是在室温下进行的,所用仪器为 UV/VIS/NIR 光谱仪 (型号 V-570 JASCO)。荧光光谱和荧光寿命的测试用法国 Jobin-Yvon Spex 公司生产的 TRIAX 550 荧光光谱仪,激光波长为 940 nm,日本东芝公司的 V-1050F 100 MHz 型示波器用来观察和记录信号。用于荧光光谱和荧光寿命测试的样品的厚度小于 0.5 mm。

3 结果与讨论

3.1 Yb:YAG 晶体的生长

由于 Yb:YAG 晶体在中性气氛下生长能引发缺陷中心,通过退火基本上能够得到克服,有必要在含少量氧的气氛中生长出无色心的晶体。在生长过程中合理控制转速可以保持整个晶体生长过程界面凸向熔体,实现晶体的稳定生长,使得断层和杂质得以减少甚至排除。为防止晶体开裂,生长结束后以 $15^\circ\text{C}/\text{h}$ 的速率缓慢降温。从炉中取出的晶体毛坯为透明白色,尺寸为 $\phi 50$ mm \times 150 mm,如图 1 所示。通过 X 射线粉末衍射实验分析出掺杂浓度为 53.6 at.-% 的 Yb:YAG 晶体属于立方晶系。其晶胞参数为 $\alpha = 1.197364$ nm, $\beta = 90^\circ$, $V = 1.71664$ nm³,与 YAG 晶体相比,由于 Yb^{3+} 离子的掺杂而引起的晶格缺陷很小。

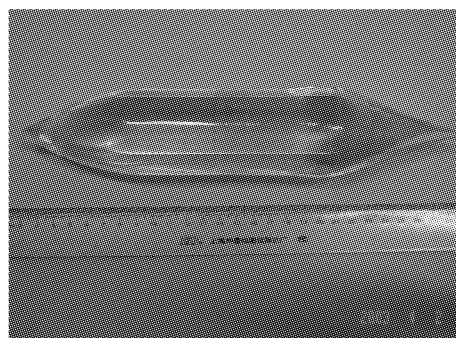


图 1 掺杂为 50 at.-% 的 Yb:YAG 晶体
Fig. 1 Photo of 50 at.-% Yb:YAG crystal

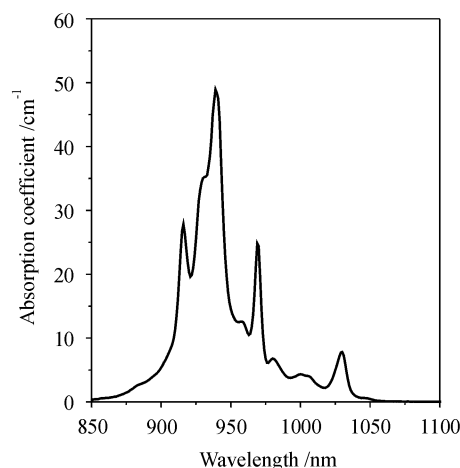


图 2 Yb:YAG 的吸收光谱
Fig. 2 Absorption spectrum of 53.2 at.-% Yb:YAG

3.2 Yb:YAG 晶体的光谱性能

Yb:YAG 晶体中 Yb^{3+} 离子的吸收只出现在波长为 900 ~ 1100 nm 范围内,如图 2 所示。Yb:

YAG 有 4 个主吸收峰, 中心波长分别位于 916, 939, 969 和 1030 nm。两个主吸收峰 939 和 969 nm 处的吸收带宽(FWHM)分别为 21 和 7 nm, 吸收系数为 48.8 和 24.7 cm^{-1} 。在激光二极管抽运的固体激光器中, 激光二极管的发射波长会随着温度的波动而移动, 大的吸收带宽意味着无需复杂的温度控制系统就可以实现激光的稳定输出。因此抽运波长处的吸收带宽是激光晶体很重要的一个参数。

图 2 中, Yb:YAG 晶体在 939 nm 附近强的吸收和宽的吸收带, 能与 InGaAs LD 抽运源有效耦合。吸收截面 σ_{abs} 和吸收系数 α 的关系如下式

$$\sigma_{\text{abs}} = \alpha / C \quad (1)$$

式中 Yb^{3+} 离子浓度 $C = 7.44 \times 10^{21} \text{ ions/cm}^3$ (Yb^{3+} 离子掺杂为 53.2 at.-%), 由式(1)可以得到 Yb:

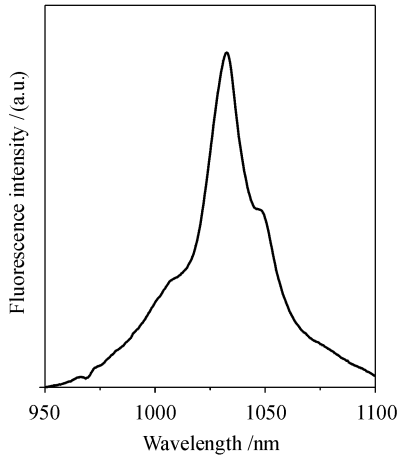


图 3 Yb:YAG 的发射光谱

Fig. 3 Fluorescence spectrum of 53.2 at.-% Yb:YAG

YAG 晶体在 939 和 969 nm 处吸收截面分别为 0.66×10^{-20} 和 $0.33 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$ 。

室温下 Yb:YAG 晶体的荧光光谱如图 3 所示。从图可以看出 Yb:YAG 晶体仅有一个很强的发射峰, 峰值位置在 1032 nm 附近, 1032 nm 附近高达 29 nm 的发射带宽(FWHM)使得该激光器调谐激光输出成为可能。测得 Yb^{3+} 离子的荧光寿命为 390 μs 。

Yb^{3+} 离子的发射截面 σ_{em} 根据实测的吸收截面利用倒易法计算获得

$$\sigma_{\text{em}}(\lambda) = \sigma_{\text{abs}}(\lambda) \frac{Z_l}{Z_u} \exp[(E_{\text{ZL}} - hc/\lambda)/kT] \quad (2)$$

其中, Z_l 和 Z_u 分别为下能级和上能级的配分函数, k 为玻耳兹曼常数, E_{ZL} 为零线能量, 对应 $^2F_{5/2}$ 和 $^2F_{7/2}$ 的最低斯塔克能态能量差, 也即 $^2F_{5/2}(1)$ 和 $^2F_{7/2}(1)$ 的能量差, 相当于 $hc\lambda^{-1}$ 。由倒易法确定的受激发射截面是波长的函数, 仅取决于吸收光谱, 与荧光光谱测试结果无关, 从而避免了荧光光谱测试中的再吸收引起的误差。 E_{ZL} , Z_l 和 Z_u 的值可由文献 [8] 获得, 通过式(2) 计算得到的 $\sigma_{\text{em}}(1030 \text{ nm}) = 1.89 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$ 。

3.3 与低掺杂浓度 Yb:YAG 晶体的比较

为了便于比较, 同时测试了室温下掺杂浓度为 5.4 at.-% 的 Yb:YAG 晶体的吸收光谱和荧光光谱, 如图 4 所示。表 1 比较了低掺杂浓度和高掺杂浓度 Yb:YAG 晶体的光谱参数, 高浓度掺杂 Yb:YAG 晶体的荧光寿命要比低浓度掺杂的小, 这主要是由于浓度猝灭效应的影响 [8]。

表 1 高浓度和低浓度掺杂 Yb:YAG 晶体光谱参数的比较

Table 1 Spectroscopic parameters of high and low doping Yb:YAG

Properties	Yb^{3+} (5.4 at.-%):YAG	Yb^{3+} (53.2 at.-%):YAG
Absorption peak /nm	915, 941, 969, 1029	916, 939, 969, 1030
Absorption band-width /nm	20	21
Absorption cross section /(10^{-20} cm^2)	0.76	0.66
Fluorescence peak /nm	969, 1030, 1048	1032
Emission band-width /nm	10	29
Emission cross section /(10^{-20} cm^2)	1.89	1.89
Fluorescence lifetime /ms	1.15	0.39
$M/(10^{-22} \text{ cm} \cdot \text{s})$	1.241	3.619

众所周知, 连续激光器的阈值与增益介质的品质因子 M 成反比。品质因子 M 定义为 [9]

$$M = \sigma_{\text{abs}} \sigma_{\text{em}} \tau_f C \quad (3)$$

其中, τ_f 为激光上能级寿命, M 值越大的晶体意味

着更适合于固体激光输出。 Yb^{3+} (5.4 at.-%):YAG 晶体中 Yb^{3+} 离子浓度为 $7.51 \times 10^{20} \text{ ions/cm}^3$ 。从表 1 中列出的 σ_{abs} , σ_{em} 和 τ_f 的值通过式(3) 可以计算出两者的品质因子。 Yb^{3+} (53.2 at.-%):

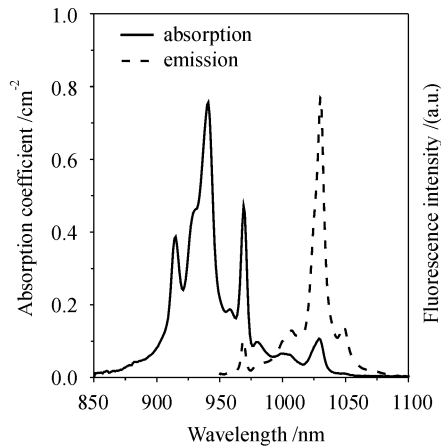


图4 Yb:YAG晶体的吸收和发射光谱
Fig. 4 Absorption and emission spectra of
5.4 at.-% Yb:YAG

YAG晶体的品质因子为 Yb^{3+} (5.4 at.-%):YAG晶体的3倍,由此可见高掺杂浓度Yb:YAG是一种有前景的激光增益介质。

4 结 论

用提拉法成功生长了 Yb^{3+} 掺杂浓度高达50 at.-%的Yb:YAG晶体。研究了晶体的生长工艺参数,在生长的中性气氛中加入少许氧气可以克服生长中形成的色心。研究了室温下Yb:YAG晶体的吸收和发射光谱特性,Yb:YAG晶体在939和969 nm处吸收截面分别为 0.66×10^{-20} 和 $0.33 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$,在1032 nm处的发射带宽高达29 nm,使得调谐激光输出成为可能,其荧光寿命为390 μs 。同时比较了高掺杂和低掺杂浓度Yb:YAG晶体的光谱参数,由此得出高掺杂浓度Yb:YAG是一种有前景的激光增益介质。

致谢 在荧光光谱测定方面得到中国科学院上海光学精密机械研究所黄国松老师和李顺光的热情支持,特表谢意。

参 考 文 献

- 1 Yang Peizhi, Deng Peizhen, Huang Guosong *et al.*. Spectroscopy performances of Yb^{3+} doped YAG crystal [J]. *Spectroscopy and Spectral Analysis*, 2000, **20**(3):286~289
杨培志,邓佩珍,黄国松等. Yb:YAG晶体的光谱性能[J]. *光谱学和光谱分析*, 2000, **20**(3):286~289
- 2 Qiu Hongwei, Zhong Heyu, Li Hongjun *et al.*. Thermal properties of Yb:YAG laser crystal [J]. *Chinese J. Lasers*, 2002, **A29**(2):173~175
邱宏伟,钟鹤裕,李红军等. Yb:YAG晶体的热学性质[J]. *中国激光*, 2002, **A29**(2):173~175
- 3 H. W. Bruesselbach, D. S. Sumida, R. A. Reeder *et al.*. Low-heat high-power scaling using InGaAs-diode-pumped Yb:YAG lasers [J]. *IEEE J. Select. Topics Quantum Electron.*, 1997, **3**(1):105~116
- 4 W. F. Krupke. Ytterbium solid-state lasers-the first decade [J]. *IEEE J. Select. Topics Quantum Electron.*, 2000, **6**(6):1287~1297
- 5 Qiu Hongwei, Yang Peizhi, Zhao Guangjun *et al.*. Thermal properties of Yb:YAG crystal and its influence on laser properties [J]. *Acta Optica Sinica*, 2002, **22**(4):501~504
邱宏伟,杨培志,赵广军等. Yb:YAG晶体的热学性质及其对激光性能的影响[J]. *光学学报*, 2002, **22**(4):501~504
- 6 H. Bruesselbach. Presented at the Optical Society of America 2001 Annual Meeting, Long Beach, Calif., October 14~18, 2001
- 7 Yongyuan Xu, Xinghong Gong, Yujin Chen *et al.*. Crystal growth and optical properties of $\text{YbAl}_3(\text{BO}_3)_4$: a promising stoichiometric laser crystal [J]. *J. Cryst. Growth*, 2003, **252**:241~245
- 8 Peizhi Yang, Peizhen Deng, Zhiwen Yin. Concentration quenching in Yb:YAG [J]. *J. Lumin.*, 2002, **97**(1):51~54
- 9 F. D. Patel, E. C. Honea, J. Speth *et al.*. Laser demonstration of $\text{Yb}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ (YbAG) and materials properties of highly doped Yb:YAG [J]. *IEEE J. Quantum Electron.*, 2001, **37**(1):135~144