

文章编号: 0258-7025(2004)Supplement-0377-04

Nd³⁺:KGd(WO₄)₂ 激光晶体的性能研究

涂朝阳, 李坚富, 游振宇, 朱昭捷, 吴柏昌

(中国科学院福建物质结构研究所, 福建 福州 350002)

摘要 采用熔盐提拉法生长出 $\phi 20 \text{ mm} \times 60 \text{ mm}$ 的优质 Nd³⁺:KGd(WO₄)₂ 晶体, 对晶体三个轴向的光谱进行测试研究表明 *a* 轴向的吸收和荧光谱峰最强, 最适合于进行激光实验研究。用 600 nm 波长的染料短脉冲(束腰为 420 μm)激光纵向抽运 $\phi 3.5 \text{ mm} \times 30 \text{ mm}$ 晶体激光器件, 对 1352.5 nm 激光进行腔内拉曼散射频率自转换, 在 1539.5 nm 人眼安全波段实现了 44 $\mu\text{J}/\text{pulse}$ 的激光输出, 光-光转换效率为 1.26%。用脉冲氙灯抽运 $\phi 3.5 \text{ mm} \times 26 \text{ mm}$ 的激光器件, 在 1.067 μm 处得到 125.5 mJ 的激光输出, 激光阈值为 $\leq 1.6 \text{ mJ}$ 。在同等条件下对 $\phi 3.5 \text{ mm} \times 35 \text{ mm}$ 的 YAG:Nd 激光晶体进行了激光实验研究和 YAG:Nd 晶体相比, KGW:Nd³⁺ 晶体具有激光阈值低、效率高和输出光为偏振光等优点, 因此在小型激光器的应用方面具有明显的优势。

关键词 激光技术 Nd³⁺:KGd(WO₄)₂ 晶体; 熔盐提拉法; 光谱性能; 激光性能

中图分类号 TN244

文献标识码 A

Study on Properties of Nd³⁺:KGd(WO₄)₂ Laser Crystal

TU Chao-yang, LI Jian-fu, YOU Zheng-yu, ZHU Zhao-jie, WU Bai-chang

(Fujian Institute of Research on the Structure of Matter, The Chinese Academy of Sciences,

Fuzhou, Fujian 350002, China)

Abstract The crystal of Nd³⁺:KGd(WO₄)₂ with the size of $\phi 20 \text{ mm} \times 60 \text{ mm}$ was grown by using the modified CZ method. The absorption and emission spectra in the directions of *a*, *b* and *c* axes were measured, the result shows that the intensity of absorption and emission spectra in the direction of *a* axis is the strongest. Therefore, the direction of *a* axis is the most suitable for laser experiment. The intracavity stimulated Raman scattering frequency self-conversion of the 1352.5 nm laser line was obtained under short-pulsed longitudinal pumping at 600 nm. The wavelength is eye-safe at 1539.5 nm and the conversion efficiency was 1.26%. A laser output of 125.5 mJ at 1.067 μm was obtained from the excitation of a Xe lamp. Compared with the YAG:Nd³⁺ laser crystal, which was performed the same laser experiment at the same conditions, Nd³⁺:KGd(WO₄)₂ has the advantages of lower laser threshold and higher efficiency as well as the polarized laser output. Therefore, it is expected that Nd³⁺:KGd(WO₄)₂ crystal will be very useful in the miniature laser.

Key words laser technique Nd³⁺:KGd(WO₄)₂ crystal; spectroscopy character; laser character

1 引言

KGd(WO₄)₂(简称 KGW)属于单斜晶体结构,空间群为 C2/c, 晶胞参数为^[1]: $a=1.0652(4) \text{ nm}$, $b=0.7582(2) \text{ nm}$, $c=1.0374(6) \text{ nm}$, $\beta=130.80(2)^\circ$, $V=0.6342 \text{ nm}^3$, $Z=4$ 。KGW 是一种优秀的激光基质材料^[2]。在 808 nm 附近的吸收线的半高宽为 12 nm, 比 Nd³⁺:YAG 的 1.5 nm 大得多, 这正好处在 LD 发射的主波长范围, 能容纳 LD 发射波长随温度的漂移^[3], 有利于开展二极管抽运的 KGW 激光试验和器件研究。同时其转换效率高, 激光输出能量(功率)较高, 并具有高效的斯托克转换, 因此在应用中具有极大的吸引力。

2 晶体的生长实验

KGW 晶体在 1075 $^\circ\text{C}$ 同成分熔化, 在 1005 $^\circ\text{C}$ 发生相变, 因此采用熔盐法生长。但是, 采用单纯的熔盐法生长时, 生长速率很慢, 晶体的纵向尺寸很小, 为此, 采用熔盐提拉法并采用周期性加速旋转坩锅的方法来生长晶体^[4], 以提高熔体的输运速率和晶体的生长速率及质量。

助熔剂采用 60mol% K₂WO₄, 所用原料为分析纯的 K₂CO₃, WO₃ 和 4N 的 Nd₂O₃, Gd₂O₃, Nd₂O₃:Gd₂O₃=5:95, 按各化学式配比进行配料。原料称量后, 用玛瑙研钵研磨混合均匀后装入 $\phi 70 \text{ mm} \times 70 \text{ mm}$ 的铂坩锅内, 采用 *b* 轴向的晶体作为籽晶, 用尝试籽晶法

基金项目: 国家自然科学基金(50072032)资助项目。

作者简介: 涂朝阳(1963-)男, 中国科学院福建物质结构研究所研究员。主要从事新型激光晶体与非线性光学材料的研究。E-mail: tcy@ms.fjirsm.ac.cn

测定熔体的饱和温度，在饱和温度以上约 50 ℃左右恒温 24 h，使熔体熔化完全。然后，在饱和温度以上约 30 ℃左右将籽晶下至熔体中，半小时后降至饱和温度，开始以 2~8 ℃/d 的速率降温，晶体的提拉速率为 1~3 mm/d，坩锅的最大转动速率为 20 rpm，周期为 3.5 min。生长 30 d 后，将晶体提离液面，然后以 50 ℃/h 的速率降至室温，得到尺寸为 $\phi 20 \text{ mm} \times 60 \text{ mm}$ 的透明晶体(如图 1 所示)，从中切割出优质激光器件的尺寸为 $\phi 3.5 \text{ mm} \times 26 \text{ mm}$ 。

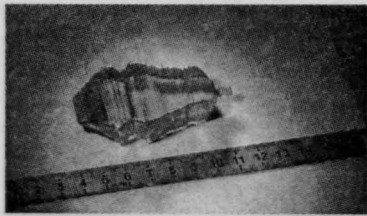


图 1 Nd³⁺:KGd(WO₄)₂ 激光晶体
Fig.1 The as-grown crystal

3 晶体的光谱特性

从晶体中切割出通光方向平行于 *a, b, c* 三个轴向的激光晶体，三个轴向通光长度相等，采用 Lambda 分光光度计测量晶体三个方向的紫外-近红外的吸收光谱，并进行了比较(如图 2)。从图 2 可以看到，晶体存在着 886.3 nm; 812.5(793.74, 811.8, 818.0, 826.7) nm; 765.4(744.18, 749.37, 753.2) nm; 687.3 nm; 590.6(579.0, 587.2, 595.3, 599.9) nm; 525.0 (518.8, 531.13) nm; 479.6 nm; 435.0 nm; 355.2 nm 和 333.2 nm 十个吸收峰带。从图 2 还可以看到：通光方向平行于 *a* 轴向的激光晶体吸收峰最强，可以看到红移的现象；通光方向平行于 *c* 轴向和平行于 *b* 轴向的激光晶体的吸收峰较弱。另外，波长为 812.5

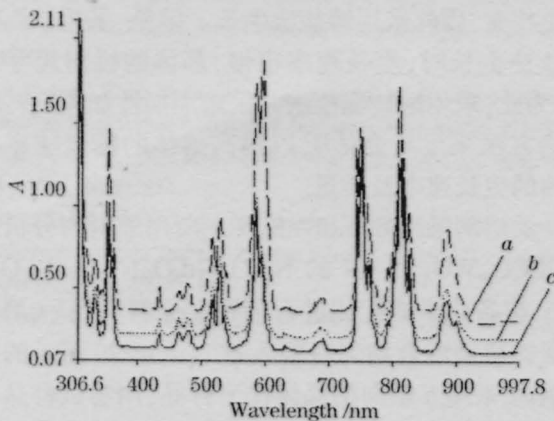


图 2 Nd³⁺:KGd(WO₄)₂ 晶体三个轴方向的吸收光谱图
Fig.2 The absorption spectra of Nd³⁺:KGd(WO₄)₂ crystal in the a, b and c directions

(793.74, 811.8, 818.0, 826.7) nm 的吸收峰很强，它与 AlGaAs 半导体的发射峰可以很好地匹配，有利于进行半导体抽运的激光实验研究。

同时采用 Edinburg-Instrument F920 荧光谱仪在室温下对晶体的 *a, b, c* 三个轴向进行了荧光测试，抽运光的波长为 808 nm，测量的 *a, b, c* 三个轴向荧光光谱如图 3 所示。可以看到，三个通光方向的荧光谱都存在有三个发射峰：929.4 nm, 1355 nm 和 1074 nm。通光方向平行于 *a* 轴向的激光晶体的荧光峰最强，其次是通光方向平行于 *c* 轴向，而通光方向平行于 *b* 轴向的激光晶体的荧光峰最弱，特别是对于 929.4 nm 的荧光峰，在通光方向平行于 *b, c* 轴向的激光晶体中非常弱，而在 *a* 轴向却很强。相对于 *c* 轴向的激光晶体，其他两个通光方向的荧光峰都有红移的现象。

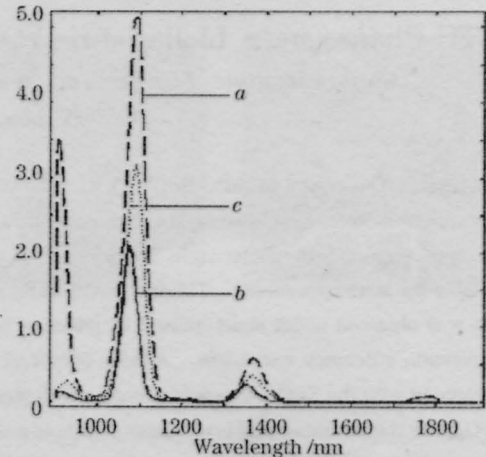


图 3 Nd³⁺:KGd(WO₄)₂ 晶体三个轴向的发射光谱图
Fig.3 The emission spectrum of Nd³⁺:KGd(WO₄)₂ crystal in the directions of a, b and c axes

4 激光实验

4.1 氙灯抽运 Nd³⁺:KGW 和 Nd³⁺:YAG 晶体激光实验

从生长的晶体中加工出 $\phi 3.5 \text{ mm} \times 26 \text{ mm}$ 的激光器件，晶体两端平行差为 $\leq 20'$ ，测定了晶体的光学均匀性，其光学畸变 ≤ 0.02 条/mm。采用脉冲氙灯作为抽运源，谐振腔为平-平腔(腔长为 60 mm，输出镜透过率 $T=65\%$)，激光能量计为美国泰克 S310 型，对 Nd:KGW 和 Nd:YAG 两种晶体进行了器件测试研究，在同等条件下，输入能量为 7.5 J 时，测量了两种晶体的输出能量、偏振特性等参数，结果参数如表 1 所示。

Nd³⁺:KGW 晶体和 Nd³⁺:YAG 晶体相比，具有阈值低，效率高(约为 Nd³⁺:YAG 晶体的两倍)，输出光为

偏振光等优点,因此在小型激光器的应用方面具有明显的优势。

表 1 激光实验结果参数

Table 1 Parameters of Laser experiment

Crystal	Dimensions	Wavelength / μm	Threshold /J	Output /mJ	Polarization
Nd ³⁺ :KGW	$\phi 3.5 \text{ mm} \times 26 \text{ mm}$	1.067	≤ 1.6	125.5	200:1
Nd ³⁺ :YAG	$\phi 3.5 \text{ mm} \times 35 \text{ mm}$	1.064	2.7	63.5	No

4.2 染料激光抽运 1068 nm 激光线的受激拉曼散射(SRS)频率自转换实验

KGd(WO₄)₂ 是拉曼频移最有效的晶体之一,它的拉曼增益系数为 6 cm/GW。采用 600 nm 波长的染料偏振短脉冲(脉冲宽度为 8 ns)激光纵向抽运 $\phi 3.5 \text{ mm} \times 30 \text{ mm}$ 的 Nd³⁺:KGd(WO₄)₂ 激光器件(晶体未镀增透膜),晶体取向为 *b* 轴方向,图 4 是所测定的 *N_m* 偏振吸收光谱,实验表明:*N_m* 偏振吸收光谱为最强。激光谐振腔的平面输入镜在可见光波段高透,在 1068 nm 附近高反,其反射率大于 99.5%,而输出镜为凹面镜(曲率半径为 15 cm),在 1068 nm 高反,反射率为 99%,在 1180 nm 处的透过率为 60%。两个镜面的距离为 7.5 cm,抽运光在晶

体入射面的束腰为 420 μm 。实验表明,在 1068.2 nm 处产生了 *N_m* 偏振的脉冲激光,同时也在 1181.7 nm 处观察到频率自转换的 *N_m* 偏振脉冲激光。图 5 是所测定的 1068 nm 激光和 Stokes 1 SRS 脉冲能量与抽运功率的关系曲线,显然 Stokes 1 SRS 的激光阈值高于 1068 nm 激光阈值,最高的 Stokes 1 SRS 转换效率是 4%。

4.3 染料激光抽运 1352.5 nm 激光线的 SRS 频率自转换实验

Nd³⁺:KGd(WO₄)₂ 晶体在 1352.5 nm 激光的产生相应于 Nd³⁺ $^4F_{3/2} \rightarrow ^4I_{13/2}$ 的能级跃迁,虽然在相同的波长范围存在着相应于 $^4F_{3/2} \rightarrow ^4G_{7/2} + ^4G_{9/2} + ^2K_{13/2}$ 的激发态吸收问题,但是从 $^4F_{3/2} \rightarrow ^4I_{13/2}$ 偏振发射谱和激发态吸收的比较结果可知,1352.5 nm 有效的发射截面还是足够大,足以产生激光。采用 J-O 理论计算得到 J-O 强度参数为:

$$\Omega_{2m} = 0.674 \times 10^{-19} \text{ cm}^2, \Omega_{4m} = 0.221 \times 10^{-19} \text{ cm}^2,$$

$$\Omega_{6m} = 0.206 \times 10^{-19} \text{ cm}^2, \Omega_{2g} = 0.265 \times 10^{-19} \text{ cm}^2,$$

$$\Omega_{4g} = 0.152 \times 10^{-19} \text{ cm}^2, \Omega_{6g} = 0.145 \times 10^{-19} \text{ cm}^2,$$

在此用来校准图中的光谱。

采用 600 nm 波长的染料偏振短脉冲(脉冲宽度为 8 ns)激光纵向抽运 $\phi 3.5 \text{ mm} \times 30 \text{ mm}$ 的 Nd³⁺:KGd(WO₄)₂ 激光器件(晶体未镀增透膜),晶体取向为 *b* 轴方向,对 Nd³⁺:KGd(WO₄)₂ 晶体的 1352.5 nm 激光进行腔内拉曼散射频率自转换,在 1539.5 nm 人眼安全波段实现了激光输出。激光谐振腔的平面输入镜在可见光波段高透,在 1352.5 nm 附近高反,其反射率大于 99.7%,在 1540 nm 反射率为 90%,在 1068 nm 处透过率为 4%。而输出镜为凹面镜(曲率半径为 15 cm),在 1352.5 nm 附近高反,其反射率大于 99.7%。两个镜面的距离为 7.5 cm,抽运光在晶体入射面的束腰为 420 μm 。图 6 是所测定的 1352.5 nm 激光和 Stokes 1 SRS 在 1539.5 nm 处脉冲能量与抽运功率的关系曲线。显然 Stokes 1 SRS 的激光阈值高于 1352.5 nm 激光阈值,当抽运光功率为 7 mJ/pulse,在 1352.5 nm 的激光输出为 10 μJ /pulse,在 1539.5 nm 的激光输出为 44 μJ /pulse,计及输入-输出镜的损耗,光-光转

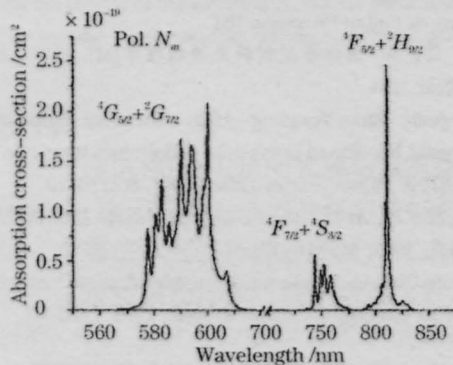


图 4 Nd³⁺:KGd(WO₄)₂ 晶体在 *b* 轴向的 *N_m* 偏振吸收谱

Fig.4 Absorption spectrum of Nd³⁺:KGd(WO₄)₂ crystal in the *b*-direction for the *N_m*-polarization

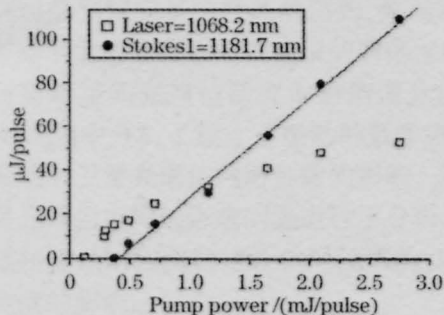


图 5 1068 nm 激光和 Stokes 1 SRS 脉冲能量与抽运功率的关系曲线

Fig.5 Energies of the laser at 1068nm and the Stokes 1 SRS pulses versus the pump power

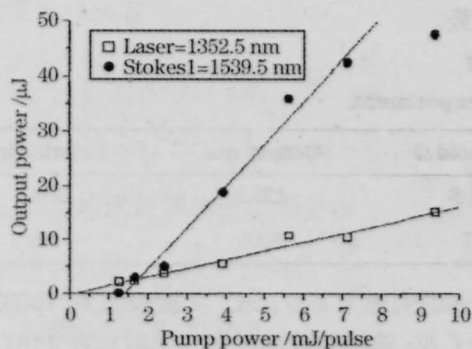


图6 1352.5 nm 激光和 Stokes 1 SRS 1539.5 nm 脉冲能量与抽运功率的关系曲线

Fig.6 The energies of the laser at 1352.5 nm and at pulses 1539.5 nm versus the pump power

换效率为 1.26%。采用镀增透膜的晶体和提高输入镜在 1539.5 nm 的反射率,以及采用更适合于抽运光的较大的输出镜曲率半径,将可以提高光-光转换效率。

5 结 论

采用熔盐提拉法生长出尺寸为 $\phi 20 \text{ mm} \times 60 \text{ mm}$ 的优质 $\text{Nd}^{3+}:\text{KGd}(\text{WO}_4)_2$ 晶体,对晶体 a, b, c 三个轴向的吸收和荧光光谱进行了测试研究,并进行了比较,结果表明 a 轴向的吸收和荧光谱峰最强,最适合于进行激光实验研究。使用染料激光抽运 $\phi 3.5 \text{ mm} \times 30 \text{ mm}$ 的激光器件进行 1068 nm 激光线的受激拉曼散射频率自转换实验,在 1181.7 nm 处观察到频率自转换的 N_m 偏振脉冲激光,最高的 Stokes 1 SRS 转换效率是 4%。采用染料激光抽运进行 1352.5 nm 激光线的受激拉曼散射频率自转换

实验,在 1539.5 nm 的激光输出为 $44 \mu\text{J}/\text{pulse}$, 计及输入-输出镜的损耗,光-光转换效率为 1.26%,实验证明了 $\text{Nd}^{3+}:\text{KGd}(\text{WO}_4)_2$ 晶体是一种有效的拉曼频移晶体。采用新型脉冲氙灯抽运 $\phi 3.5 \text{ mm} \times 26 \text{ mm}$ 的激光器件,在 $1.067 \mu\text{m}$ 处得到 125.5 mJ 的激光输出。在同等条件下对 Nd:YAG 激光晶体进行了激光实验研究,并对两种结果进行了比较,结果表明:与 $\text{Nd}^{3+}:\text{YAG}$ 晶体相比, $\text{Nd}^{3+}:\text{KGW}$ 晶体具有激光阈值低,效率高(约为 $\text{Nd}^{3+}:\text{YAG}$ 晶体的两倍),并且输出光为偏振光等优点,因此在小型激光器的应用方面具有明显的优势。

致谢: 江苏扬州曙光光电有限责任公司罗涛和赖洪章两位高级工程师,法国 Claude Bernard-Lyon1 大学 Brenier Alain 教授,对本工作给予了极大的帮助,在此表示衷心感谢!

参 考 文 献

- 1 M. C. Pujol, M. Rico, C. Zaldo *et al.*. Crystalline structure and optical spectroscopy of Er^{3+} -doped $\text{KGd}(\text{WO}_4)_2$ single crystal[J]. *Appl. Phys.*, 1999, **B68**:187-197
- 2 Luo Zundu, Huang Yidong. Spectrum Physics of Solid State Laser Materials [M]. Fujian: Science and Technology Publishing Company of Fujian Province. 164
罗遵度,黄艺东. 固体激光材料光谱物理学[M]. 福建:福建科学技术出版社. 164
- 3 Zang Jingcun, Zhan Yongling. High-efficiency multiwavelength laser crystal Nd-doped potassium gadolinium tungstate with LD pumped[J]. *J. Photoelectron-Laser*, 1997, **8**(2):10-13
藏竟存,詹永玲.LD 抽运高效多波长激光晶体:掺钕钨酸钾[J]. 光电子·激光, 1997, **8**(2):10-13
- 4 E. O.Schulz-Dubios. Accelerated crucible rotation: hydrodynamics and stirring effect[J]. *J. Crystal Growth*, 1972, **12**:81-87