

Nd:Lu₃Al₅O₁₂ 晶体光谱与激光性能研究

王晓丹¹ 徐晓东² 王静雅² 马春兰¹ 徐 军²

(¹苏州科技学院物理科学与技术系, 江苏 苏州 215009
²中国科学院上海硅酸盐研究所 透明光功能无机材料重点实验室, 上海 201800)

摘要 采用提拉法生长 Nd 掺杂原子数分数为 1% 的高质量的 Nd:Lu₃Al₅O₁₂ (Nd:LuAG) 晶体。对晶体的光谱性能进行了表征。研究发现, Nd:LuAG 晶体与相同掺杂浓度的 Nd:YAG 晶体均具有相似的峰形和峰位, 但特征吸收峰和荧光峰均发生了 1 nm 的红移现象。Nd:LuAG 晶体具有比 Nd:YAG 和 Nd:GGG 晶体更长的荧光寿命和更宽的吸收线宽。在抽运功率为 900 mW 的钛宝石激光器抽运下, Nd:LuAG 晶体获得了 420 mW 的连续激光输出, 斜率效率为 47.5%, 激光抽运阈值为 22 mW。

关键词 材料; Nd:LuAG 晶体; 吸收光谱; 荧光光谱; 激光性能

中图分类号 TN244 文献标识码 A doi: 10.3788/CJL201239.0506001

Spectrum and Laser Properties of Nd:Lu₃Al₅O₁₂ Crystal

Wang Xiaodan¹ Xu Xiaodong² Wang Jingya² Ma Chunlan¹ Xu Jun²

¹Department of Physics, Suzhou University of Science and Technology, Suzhou, Jiangsu 215009, China
²Key Laboratory of Transparent and Opto-Functional Inorganic Materials, Shanghai Institute of Ceramics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China

Abstract High quality Nd:Lu₃Al₅O₁₂ (Nd:LuAG) crystal doped with 1% Nd (atom fraction) is grown by the Czochralski method. The spectrum properties of the crystal are characterized. Compared with Nd:YAG with the same Nd concentration, Nd:LuAG single crystal has similar shape of absorption peak and fluorescence peak, but the position of peaks has 1 nm red-shift. Nd:LuAG single crystal has longer fluorescence lifetime and wider absorption line than Nd:YAG and Nd:GGG single crystals. Under Ti sapphire laser pumping with 900 mW power, the maximum output power, the slope efficiency, and the lasing threshold of Nd:LuAG crystal are 420 mW, 47.5% and 22 mW, respectively.

Key words materials; Nd:LuAG single crystal; absorption spectrum; fluorescence spectrum; laser activity

OCIS codes 160.4670; 160.4760; 160.5690

1 引 言

以 Nd³⁺ 为代表的四能级系统晶体, 激光下能级与基态相距较远, 抽运阈值较低, 晶体的吸收和发射截面都较大, 是一种较好的激光增益介质, 如 Nd:YAG, Nd:YVO₄, Nd:GdVO₄ 和 Nd:LuVO₄ 晶体^[1~4], 被广泛应用于固体激光器中。掺 Nd³⁺ 的石榴石晶体具有良好的机械和热力学性能, 能够在高平均功率下工作, 是发展高功率大能量固体激光器最具应用潜力的激光介质之一。2005 年美国诺格

公司利用激光二极管(LD)抽运 Nd:YAG 板条固体激光器, 实现了 25 kW 的连续激光输出, 2008 年演示验证平均功率 100 kW 的加速固体激光器^[5], 2011 年林华等^[6] 报道通过连续波二极管侧面抽运 Nd:YAG 棒状晶体, 实现了脉冲间隔为 28 ps, 峰值功率为 62.9 MW 的激光输出。

Lu₃Al₅O₁₂ (LuAG) 晶体属立方晶系, Ia3d 空间群, 晶胞参数为 1.190 nm。LuAG 晶体结构和性质与 YAG 晶体相似, 晶体熔点为 2060 °C, 具有高的

收稿日期: 2012-01-18; 收到修改稿日期: 2012-02-12

基金项目: 江苏省高校自然科学基金(11KJB140009)资助课题。

作者简介: 王晓丹(1980—), 女, 博士, 副教授, 主要从事激光材料的生长及性能表征等方面的研究。

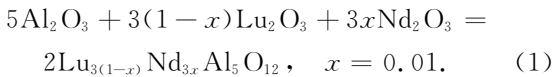
E-mail: xdwang0416@yahoo.com.cn

热导率,优异的物理和化学特性。随着提纯技术的不断提高,得到高纯度的氧化镨,因此以镨元素为基质的晶体得到了进一步的研究。近几年, LuAG 基质引起了科研人员的重视,但相关掺 Nd³⁺ 的 LuAG 晶体的报道较少。据文献调研,仅 Sugiyama 等^[7]研究了不同掺杂浓度下 Nd:LuAG 晶体的闪烁性能。本课题组徐晓东等^[8~10]生长了高质量的 Nd:LuAG 晶体,并对其相关性质作以初步的报道。本文主要研究了 Nd:LuAG 晶体的光谱和激光性能,重点将 Nd:LuAG 晶体与相同掺杂浓度的 Nd:YAG 晶体进行对比,研究晶体的吸收、荧光光谱及能级结构等性质。在钛宝石激光器的抽运下,表征了 Nd:LuAG 晶体的激光性能。

2 实 验

2.1 晶体生长

晶体生长所用的原料为 Lu₂O₃ (5N), Al₂O₃ (5N), Nd₂O₃ (5N), 整个固相反应的方程式为



晶体生长采用中频感应提拉法, 铱坩锅, 中频感应加热, 选择<111>方向的纯 LuAG 晶体作为籽晶, 生长过程中, 转速为 15~30 r/min, 拉速为 1~3 mm/h, 高纯氮气作为保护气体。晶体生长的具体过程参考文献^[9]相关内容。

2.2 吸收光谱和荧光光谱的测试

晶体的吸收光谱是在 V-570 型分光光度计上测定的, 测试范围为 250~1100 nm, 分辨率为 1 nm。荧光光谱由 JOBIN-YVON 公司生产的 TRIAX 550 型光谱仪测得, 抽运波长为 808 nm, 测试范围为 850~1400 nm, 分辨率为 1 nm。光谱测试所用样品均双面抛光, 其尺寸为 10 mm×10 mm×1 mm。所有测试均在室温下进行。

2.3 钛宝石抽运 Nd:LuAG 晶体激光性能测试

钛宝石激光器抽运 Nd:LuAG 激光实验装置如图 1 所示。采用 Ar⁺ 离子激光器抽运的钛宝石激光器为抽运源, 激光腔结构为平凹腔, 腔长 47 mm。

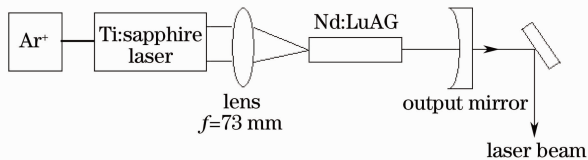


图 1 激光实验装置图

Fig. 1 Schematic diagram of the laser experimental setup

Nd:LuAG 晶体 Nd³⁺ 的掺杂原子数分数为 1%, 晶体尺寸为 5 mm×5 mm×20 mm 和 5 mm×5 mm×28 mm, Nd:LuAG 晶体一面镀 1064 nm 高反膜和 808 nm 增透膜, 另一面镀 1064 nm 增透膜, 输出耦合镜的透射率 T=1%, 3%, 5%。在该装置中, 晶体固定在热沉板上, 热沉板通水冷却。

3 结果与讨论

3.1 光谱性能研究

3.1.1 吸收光谱分析

测量了 Nd³⁺ 的掺杂原子数分数为 1% 的 Nd:LuAG 晶体和 Nd:YAG 晶体的吸收光谱, 如图 2 所示。从图中可以看出, Nd:LuAG 晶体的吸收峰对应的是从基态 ⁴I_{9/2} 到激发态的跃迁。589, 749, 809 nm 的吸收峰分别对应于 ⁴I_{9/2} → ⁴G_{5/2} + ⁴G_{7/2}, ⁴I_{9/2} → ⁴F_{7/2} + ⁴S_{3/2} 和 ⁴I_{9/2} → ⁴F_{5/2} + ²H(2)_{9/2} 的跃迁。Nd:LuAG 晶体与 Nd:YAG 晶体相比, 峰形和峰位基本一致。在相同峰位处, Nd:LuAG 晶体的吸收系数低于 Nd:YAG 晶体。在 300~500 nm 范围的吸收光谱中, Nd:LuAG 晶体的吸收峰出现了朝向短波长倾斜上升的趋势, 此区域透射率随波长的减小而逐渐减小, 分析是由于被测 Nd:LuAG 晶片中的某些缺陷或微量杂质的瑞利散射引起的。瑞利散射对紫外、可见光散射量较大, 而对红外光散射量较小。因此使得晶体的吸收峰出现了短波长区域倾斜上升的现象。截取了 Nd³⁺ 特征的吸收波段 700~830 nm, 画出了两晶体的吸收光谱图, 如图 2 中插图所示。从插图中可以看出, Nd:LuAG 晶体与 Nd:YAG 晶体相比, 峰形基本一致, 但特征峰位发生了微小的红移现象。由 700~830 nm 波段的吸收光谱可以看出, Nd:LuAG 晶体与商用的 AlGaAs 激光二极管的发射波长匹配良好。

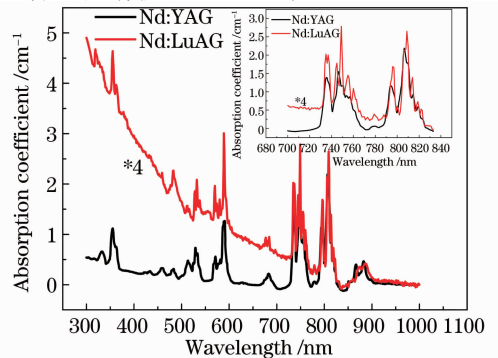


图 2 Nd:LuAG 晶体与 Nd:YAG 晶体的吸收光谱图

Fig. 2 Absorption spectra of Nd:LuAG and Nd:YAG single crystals

3.1.2 荧光光谱分析

Nd:LuAG 晶体与 Nd:YAG 晶体的荧光光谱如图3所示。从图3中可以看出,在 860~950 nm, 1050~1130 nm 和 1310~1360 nm 处的荧光峰对应于 $^4F_{3/2} \rightarrow ^4I_{9/2}$, $^4I_{11/2}$ 和 $^4I_{13/2}$ 的跃迁。与吸收光谱相同,Nd:LuAG 晶体与 Nd:YAG 晶体的荧光光谱在整个光谱范围中峰形和峰位基本一致。截取 1040~1090 nm 波段处的荧光光谱,如图3中插图所示,发现 Nd:LuAG 晶体的特征荧光峰也发生了微小的红移现象,从 Nd:YAG 晶体的 1064 nm 移动到 1065 nm,此荧光峰对应为 $^4F_{3/2} \rightarrow ^4I_{11/2}$ 的能级跃迁。

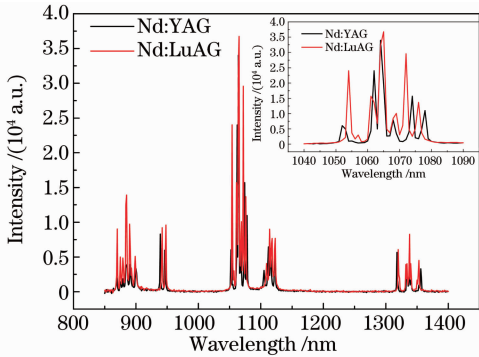


图3 Nd:LuAG 晶体与 Nd:YAG 晶体的荧光光谱图

Fig. 3 Fluorescence spectra of Nd:LuAG and Nd:YAG single crystals

3.1.3 能级结构研究

根据 Nd:LuAG 晶体的吸收光谱与荧光光谱,可以粗略得到 Nd³⁺ 在 LuAG 基质中的 Stark 能级分裂情况(如图4所示)。图中同时给出了相关的能级跃迁情况。

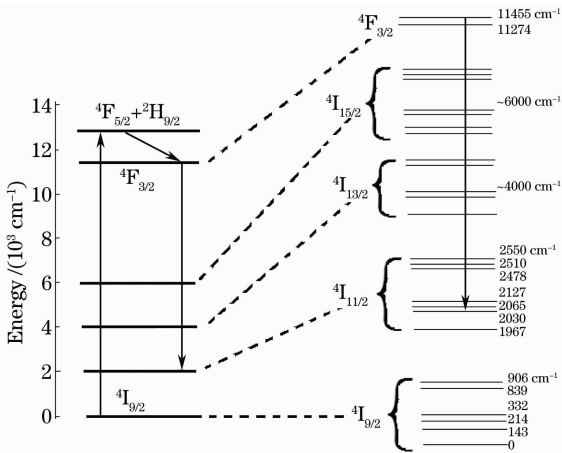


图4 Nd³⁺ 在 LuAG 基质中的能级结构图

Fig. 4 Energy level structure of Nd³⁺ in LuAG

3.1.4 Nd:LuAG 晶体与 Nd³⁺ 掺杂其他石榴石晶体的比较

为了便于比较,同时查找了与 Nd³⁺ 掺杂浓度相

同的 Nd:YAG 和 Nd:GGG 晶体的一些光谱性能数据^[5-7]。因此,Nd:LuAG 晶体与 Nd³⁺ 掺杂其他石榴石晶体光谱参数的比较如表1所列。与 Nd³⁺ 离子在其他基质中的光谱相比发现,Nd³⁺ 离子在 LuAG 晶体中的特征吸收峰和荧光峰向长波方向发生了微小的移动,在图2和图3中也有所体现,并分析发现这与 LuAG 晶体提供的晶格场有关。另外,在室温条件下 Nd:LuAG 晶体具有比 Nd:YAG 和 Nd:GGG 晶体更长的荧光寿命和更宽的吸收线宽(半峰全宽,FWHM)。综上所述发现 Nd:LuAG 晶体是一种有前景的激光晶体。

表1 Nd³⁺ 掺杂石榴石晶体光谱参数的比较

Table 1 Comparison of spectral parameters of Nd³⁺ doped garnet crystal

Contents	Nd:	Nd:	Nd:
	YAG ^[11]	GGG ^[12,13]	LuAG
Nd ³⁺ concentration / (10 ²⁰ cm ⁻³)	1.38	1.27	1.42
Absorption wavelength /nm	807.5	808	809
Absorption FWHM /nm	4	4	5
Absorption cross-section / (10 ⁻²⁰ cm ²)	1.58	2.27	1.86
Emission wavelength /nm	1064	1064	1065
Emission cross-section / (10 ⁻²⁰ cm ²)	28	23	9.67
Fluorescence lifetime /μs	230	240	277

3.2 激光性能研究

3.2.1 抽运波长的选择

进行 Nd:LuAG 晶体激光性能的研究,在实验中,选用钛宝石激光器作为抽运源。首先进行了抽运波长选择实验,即在相同的输入功率下,测量输出功率随抽运波长的变化曲线,如图5所示。从图中可以看出,在选取的5个有代表性的波长点时,当抽运波长为 807.6 nm,激光的输出功率最大,因此选定抽运波长为 807.6 nm。调节抽运源-钛宝石激光

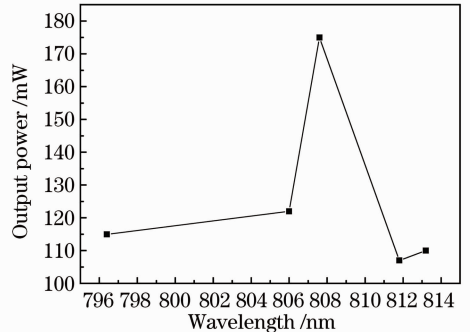


图5 Nd:LuAG 晶体的激光输出功率随波长的变化曲线

Fig. 5 Laser output versus pump wavelength of Nd:LuAG crystal

器的输出波长,固定在 807.6 nm。

3.2.2 钛宝石抽运 Nd:LuAG 激光器研究

采用钛宝石激光器作为抽运源,选择高质量的 Nd:LuAG 晶体,切割成棒。Nd:LuAG 激光棒的尺寸分别为 5 mm×5 mm×20 mm 和 5 mm×5 mm×28 mm,选用 3 种输出耦合镜进行实验。通过实验得到连续激光输出,分别测得激光最大输出功率,激光阈值等参数,所得实验数据如表 2 所列。在实验过程中没有出现饱和现象。钛宝石激光器抽运下激光输出的中心波长为 1065 nm,连续激光输出的输出功率与抽运功率关系曲线如图 6 所示。由以上数据可以看出,当激光棒的尺寸为 5 mm×5 mm×

28 mm 时,采用透射率为 5% 的输出耦合镜,激光的输出功率最大,斜率效率最高,同时也说明生长的掺杂原子数分数为 1% 的 Nd:LuAG 晶体质量较好。

表 2 Nd:LuAG 晶体激光性能参数

Table 2 Laser activity parameters of Nd:LuAG crystal

Coupler transmission / %	5×5×20			5×5×28		
	1	3	5	1	3	5
Maximum output power / mW	191	289	313	287	360	420
Slope efficiency / %	22.2	34.0	37.5	32.8	40.6	47.5
Lasing threshold / mW	4	13	30	9	11	22

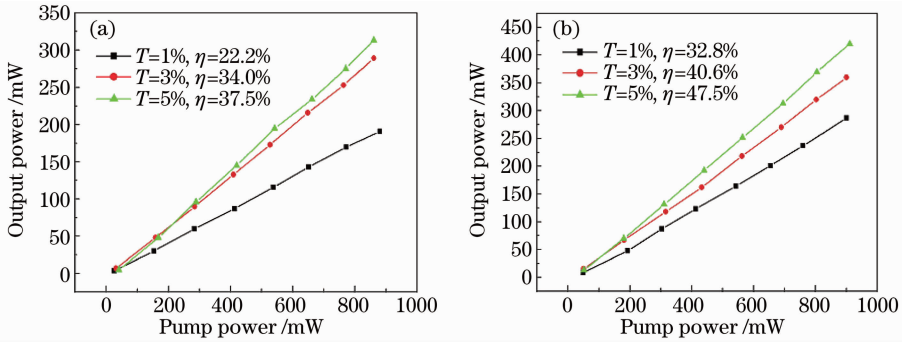


图 6 Nd:LuAG 晶体的激光输出功率随着抽运功率的变化曲线。(a) 晶体尺寸 5 mm×5 mm×20 mm; (b) 晶体尺寸 5 mm×5 mm×28 mm

Fig. 6 Laser output versus absorbed pumping power of Nd:LuAG crystal. (a) Crystal size is 5 mm×5 mm×20 mm; (b) crystal size is 5 mm×5 mm×28 mm

采用可调谐的钛宝石激光器抽运得到连续激光输出,与本课题组之前采用 LD 抽运实现的激光输出进行了对比,如表 3 所列。从表中数据可以看出,采用 LD 抽运虽然输出功率较高,但光-光转换效率和斜率效率相对较低。晶体吸收的抽运光只有一小部分转化为激光输出,大部分能量被晶体吸收,因此晶体的热透镜效应比较严重,这必将影响激光的输出效率和光束质量。近年来,LD 抽运的高功率激光器中,为了减小热透镜效应的影响,采用复合结构晶体作为工作物质,实现高功率、高光束质量的激光输出^[14,15]。本文采用相对功率较低的可调谐钛宝

表 3 Nd:LuAG 晶体激光性能比较

Table 3 Comparison of laser activity of Nd:LuAG crystal

Pumping mode	Laser diode pumping	Ti sapphire laser pumping
Pump power / W	17.3	0.9
Maximum output power / W	3.8	0.42
Optical-optical conversion efficiency / %	22.0	46.7
Slope efficiency / %	25.7	47.5

石激光器代替 LD 抽运,进行了激光实验,实验结果显示其光-光转换效率和斜率效率均较高,光束质量较好。通过对比,更进一步证明了生长的 Nd:LuAG 晶体质量较好,丰富了晶体的性质。

4 结 论

采用提拉法生长 Nd³⁺ 掺杂浓度为 1% 高质量的 Nd:LuAG 晶体,并对晶体的光谱和激光性能进行了研究。通过对 Nd:LuAG 晶体吸收光谱和荧光光谱的分析,发现 Nd:LuAG 晶体与相同掺杂浓度的 Nd:YAG 晶体均具有相似的峰形和峰位,但吸收系数略低于 Nd:YAG 晶体,特征吸收峰和荧光峰均发生了 1 nm 的红移现象。结合吸收光谱和荧光光谱得到 Nd:LuAG 晶体的能级结构图。通过 Nd:LuAG 晶体与 Nd³⁺ 掺杂其他石榴石晶体光谱参数的比较,发现 Nd:LuAG 晶体具有比 Nd:YAG 和 Nd:GGG 晶体更长的荧光寿命和更宽的吸收线宽。当钛宝石激光器的抽运功率为 900 mW 时,晶体获得 420 mW 的连续激光输出,斜率效率为 47.5%。

激光抽运阈值为 22 mW。将这一结果与 LD 抽运时的激光性能进行了比较,发现在钛宝石激光器的抽运下,光-光转换效率和斜率效率较高。

参 考 文 献

- 1 Chunyu Zhang, Ling Zhang, Zhiyi Wei *et al.*. Diode-pumped continuous-wave Nd:LuVO₄ laser operating at 916 nm[J]. *Opt. Lett.*, 2006, **31**(10): 1435~1437
- 2 F. Chen, X. Yu, J. Gao *et al.*. Efficient generation of 914 nm laser with high beam quality in Nd:YVO₄ crystal pumped by π -polarized 808 nm diode-laser[J]. *Laser Phys. Lett.*, 2008, **5**(9): 655~658
- 3 Juntao Wang, Ren Zhu, Jun Zhou *et al.*. Conductively cooled 1-kHz single-frequency Nd:YAG laser for remote sensing[J]. *Chin. Opt. Lett.*, 2011, **9**(8): 081405
- 4 Xiao Chongli, Wan Chunming, Ling Ming. Side-pumped Nd:YAG pulsed laser with conduction cooling [J]. *Acta Optica Sinica*, 2011, **31**(4): 0414001
肖崇凛, 万春明, 凌 铭. 传导冷却侧面抽运 Nd:YAG 脉冲激光器[J]. *光学学报*, 2011, **31**(4): 0414001
- 5 Ren Guoguang, Huang Yunian. Diode pumped solid-state laser stride forward 100 kW[J]. *Laser & Infrared*, 2006, **36**(8): 617~622
任国光, 黄裕年. 二极管抽运固体激光器迈向 100 kW[J]. *激光与红外*, 2006, **36**(8): 617~622
- 6 Hua Lin, Jinfeng Li, Jinping He *et al.*. High-power picosecond regenerative amplifier based on CW diode side-pumped Nd:YAG with high beam quality[J]. *Chin. Opt. Lett.*, 2011, **9**(8): 081404
- 7 Makoto Sugiyama, Yutaka Fujimoto, Takayuki Yanagida *et al.*. Crystal growth and scintillation properties of Nd-doped Lu₃Al₅O₁₂ single crystals with different Nd concentrations[J]. *Optical Materials*, 2011, **33**(6): 905~908
- 8 X. D. Xu, X. D. Wang, J. Q. Meng *et al.*. Crystal growth, spectral and laser properties of Nd:LuAG single crystal[J]. *Laser Phys. Lett.*, 2009, **6**(9): 678~681
- 9 Wang Xiaodan, Xu Xiaodong, Zang Taocheng *et al.*. Growth and spectral properties of Nd:Lu₃Al₅O₁₂ crystal [J]. *Journal of Inorganic Material*, 2010, **25**(4): 435~440
王晓丹, 徐晓东, 臧涛成等. Nd:Lu₃Al₅O₁₂ 晶体的生长与光谱性能研究[J]. *无机材料学报*, 2010, **25**(4): 435~440
- 10 J. Di, X. Xu, J. Meng *et al.*. Diode-pumped continuous wave and Q-switched operation of Nd:LuAG crystal[J]. *Solid State and Liquid Lasers*, 2011, **21**(5): 844~846
- 11 Walter Koechner. Solid-State Laser Engineering[M]. Sun Wen, Jiang Zewen, Cheng Guoxiang Transl.. Beijing: Science Press, 2002. 39~45
克希耐尔. 固体激光工程[M]. 孙 文, 江泽文, 程国祥译. 北京: 科学出版社, 2002. 39~45
- 12 Jiang Benxue, Zhao Zhiwei, Xu Jun *et al.*. Growth and spectral properties of high average power solid state laser (HAP SSL) crystal Nd₃Gd₃Ga₅O₁₂ [J]. *Chinese J. Laser*, 2004, **31**(12): 1465~1468
姜本学, 赵志伟, 徐 军等. 高功率固体激光晶体 Nd³⁺:Gd₃Ga₅O₁₂ 的生长和光谱性能的研究[J]. *中国激光*, 2004, **31**(12): 1465~1468
- 13 Jiang Benxue, Zhao Zhiwei, Xu Xiaodong *et al.*. Spectral properties of large sized highly doped Nd:GGG and Nd:YAG crystals[J]. *Journal of Synthetic Crystals*, 2006, **35**(4): 757~760
- 14 Zhao Zhigang, Dong Yantao, Pan Sunqiang *et al.*. Investigation on LD double-end-pumped high power Q-switched YVO₄-Nd:YVO₄-YVO₄ fundamental mode solid state laser[J]. *Chinese J. Laser*, 2010, **37**(9): 2409~2414
赵智刚, 董延涛, 潘孙强等. LD 双端抽运 YVO₄/Nd:YVO₄/YVO₄ 复合晶体的高功率调 Q 基模固体激光器研究[J]. *中国激光*, 2010, **37**(9): 2409~2414
- 15 Li Long, Nie Jianping, Shi Peng *et al.*. Temperature field characteristic of YAG-Nd:YAG composite crystal rod end-pumped by laser diode[J]. *Chinese J. Laser*, 2010, **37**(4): 917~922
李 隆, 聂建萍, 史 彭等. 激光二极管端面抽运 YAG-Nd:YAG 复合晶体棒温度场特性[J]. *中国激光*, 2010, **37**(4): 917~922

栏目编辑: 韩 峰