

单晶光纤制备及单晶光纤激光器研究进展

王涛^{1,2}, 张健^{1,2}, 张娜^{1,2}, 武柏屹^{1,2}, 王思媛^{1,2}, 贾志泰^{1,2*}, 陶绪堂^{1,2**}

¹ 山东大学晶体材料国家重点实验室, 山东 济南 250100;

² 山东大学功能晶体材料及器件教育部重点实验室, 山东 济南 250100

摘要 单晶光纤(SCF)是体块晶体与常规光纤的结合体,拥有优异的物理和化学性能以及良好的热管理能力,已经逐渐成为固体激光领域的研究热点。详细介绍两种主要的单晶光纤生长方法:激光加热基座(LHPG)法和微下拉(μ -PD)法,以单晶光纤制备及单晶光纤激光器研究为主线,对国内外的研究现状进行综述。最后,结合目前研究基础,分析单晶光纤的研究前景及发展趋势。

关键词 光纤光学; 光纤激光器; 激光加热基座(LHPG)法; 微下拉(μ -PD)法

中图分类号 TN248

文献标识码 A

doi: 10.3788/LOP56.170611

Research Progress in Preparation of Single Crystal Fiber and Fiber Lasers

Wang Tao^{1,2}, Zhang Jian^{1,2}, Zhang Na^{1,2}, Wu Baiyi^{1,2},
Wang Siyuan^{1,2}, Jia Zhitai^{1,2*}, Tao Xutang^{1,2**}

¹ State Key Laboratory of Crystal Materials, Shandong University, Jinan, Shandong 250100, China;

² Key Laboratory of Functional Crystal Materials and Device, Ministry of Education, Shandong University, Jinan, Shandong 250100, China

Abstract Single crystal fiber (SCF) is a combination of bulk crystal and conventional fiber, it has gradually become a research hotspot in the field of solid-state lasers because of the excellent physical and chemical properties accompanying with good thermal management. Laser heated pedestal growth (LHPG) and micro-pulling-down (μ -PD) growth methods are introduced in detail. Meanwhile, the research status about the fabrication of SCF and SCF lasers at home and abroad are summarized. Finally, combined with the current research foundation, the research prospects and development trends of SCF are analyzed.

Key words fiber optics; fiber lasers; laser heated pedestal growth (LHPG); micro-pulling-down (μ -PD)

OCIS codes 060.2280; 060.2310; 160.3380; 260.1180

1 引言

激光由于良好的单色性、方向性、相干性及高能量密度而成为世界的研究热点,相应地,激光的发展也向着更高的目标不断推进。固体激光器的增益介质从广义上讲可分为激光玻璃、激光陶瓷和激光晶体。其中,激光晶体具有清晰明朗的应用发展趋势,包括:1)高功率、大能量激光晶体应用在先进制造技

术、激光武器等领域;2)中远红外激光晶体应用在医疗、遥感、光通信等领域;3)可见光激光晶体应用在全色显示、光刻、海洋通信等领域;4)超快激光晶体应用于LD直接泵浦^[1-3]。目前最具代表性的激光晶体有钕铝石榴石(YAG)和钆镱石榴石(GGG)等。若要实现高功率的激光输出,激光器通常需要高功率能量注入、高能量转换效率及高光束质量。随着高能激光的迅猛发展,美国军方提出“一美元战争”

收稿日期: 2019-02-28; 修回日期: 2019-03-11; 录用日期: 2019-04-09

基金项目: 山东省重点研发计划(2017GGX20116, 2018JMRH0207)、国家自然科学基金科学仪器基础研究专项基金(51227002)

* E-mail: z.jia@sdu.edu.cn; ** E-mail: txt@sdu.edu.cn

的理念,坚持大力发展激光武器,在2014年的资金投入就超过3亿美元,并在波音747上成功搭载化学氧碘激光器,最大输出功率可达MW级。然而,无论是传统的固体激光器还是已成功搭载的化学激光器,体积均过于庞大,维护成本高并在使用过程中会产生大量的废热,极大地降低激光器的使用寿命,限制激光器的应用领域。光纤激光器由于增益介质比表面积大、散热性能优良而成为新一代激光武器的增益载体。

光纤激光器利用掺稀土元素的玻璃光纤作为增益介质,其中 Yb^{3+} 掺杂的玻璃光纤激光器的单模连续激光输出功率已达到3kW,斜效率可达70%以上^[4]。光纤激光器具有较高的光束质量和较大的输出功率,在精确打击和拦截方面具有得天独厚的优势,并在多年的研究中取得了一定进展。但综合来看,以石英玻璃作为增益介质的传统光纤激光器存在明显的技术短板,kW量级已达到玻璃光纤的输出极限。此外,玻璃光纤仍存在大量的问题:1)过低的热导率在光纤内部形成较大的温度梯度,引发热透镜效应,极大地影响光束质量;2)受激拉曼散射(SRS)和受激布里渊散射(SBS)等非线性效应在一定程度上限制了输出功率的进一步提高^[5-6]。作为体块晶体与传统光纤的结合体,单晶光纤在外形上秉承了玻璃光纤的高长径比和大比表面积,同时兼具了体块晶体优异的物理和化学性质,具有良好的热管理优势,解决了大功率激光器散热难的问题,符合目前激光器发展小型化、集成化的趋势,在世界范围内掀起

了研究热潮。

2 单晶光纤的制备与加工

2.1 单晶光纤的生长及表征

单晶光纤领域的相关研究起源于20世纪20年代,von Gomperz^[7]采用导模(EFG)法首次制备出金属单晶纤维,由此拉开了单晶纤维研制的序幕。1967年,Labelle和Mlavsly^[8]采用改进的射频加热提拉法制备出直径范围为50~500 μm 的白宝石光纤,并证明了单晶纤维具有高强度特性。1972年,Haggerty^[9]改进激光加热机制,引入四条激光束加热纤维,制备出蓝宝石、 Y_2O_3 、 TiB_2 单晶光纤。1975年,Burrus与Stone^[10]改良了激光加热浮区法,成功制备出Nd:YAG、Nd: Y_2O_3 、Cr: Al_2O_3 等单晶光纤,其最小直径可达50 μm 。自此,单晶光纤的研究进入了百花齐放的黄金时代,涌现出多种单晶光纤的生长方法,如毛细管连续引出法、毛细管加压馈送法及微下拉(μ -PD)法等,多种功能晶体光纤如非线性光纤、光折变晶体光纤、传导晶体光纤和激光晶体光纤等相继问世。如表1所示,YAG单晶光纤与传统的石英光纤相比具有以下优势:1)更高的熔点(T_m 为晶体熔点, T_g 为玻璃态温度)和机械强度,可在更加恶劣的环境下使用;2)更高的热导率及稀土离子掺杂浓度,极大地提高激光器的热管理能力及泵浦效率;3)热透镜效应减弱,极大程度地避免双折射效应,提高光束质量;4)更低的非线性效应,减少不必要的能量损耗,其理论单模输出极限是石英光纤的100倍以上^[11-17]。

表1 YAG单晶光纤与石英光纤性能比较

Table 1 Comparison of performance between YAG SCF and silica fiber

Material	T_g or $T_m / ^\circ\text{C}$	Thermal conductivity / ($\text{W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$)	Mohs' hardness	Theoretical strength /GPa	Rare earth dopant concentration /%	Brillouin gain coefficient / ($\text{m}\cdot\text{W}^{-1}$)
Silica fiber	about 1000	0.8-1.2	6.5	14.6	<1	5×10^{-11}
YAG SCF	1950	8-10	8.5	56	about 10	$<10^{-13}$
Advantage	2 \times	10 \times	1 \times	>3 \times	>10 \times	>100 \times

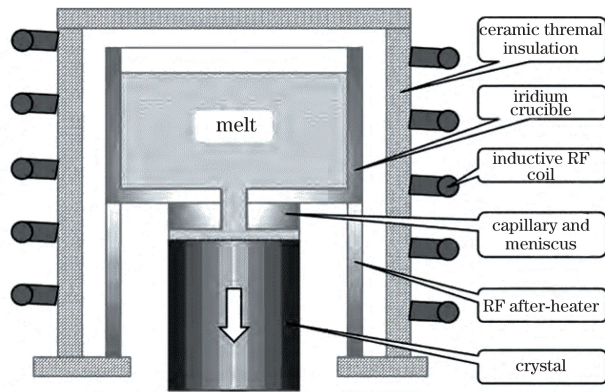
目前最为常用的两种单晶光纤制备方法分别为 μ -PD法和激光加热基座(LHPG)法。 μ -PD法在坩埚底部采用微通道技术,通过电阻加热或射频加热熔体,使其沿微孔道传输并向下牵引进行晶体生长^[18],图1为 μ -PD法晶体生长示意图。该技术作为研究新晶体材料的一种有力武器,主要得益于以下独特的优势:

1) 节约原料。与传统的提拉法相比,原料用量

极少,每次实验用量均保持在10g以内,在满足测试表征条件的同时,极大地降低实验成本。

2) 晶体生长速率快,速率可达1mm/min。通过设计坩埚形状可同时生长多条光纤,极大地提高实验效率。

3) 晶体光纤纵横比大。制备得到的晶体光纤端面可达到 μm 量级,在采用连续加料后光纤长度可达到m级。

图1 采用射频感应加热的微下拉技术原理图^[18]Fig. 1 Schematic diagram of μ -PD system with internal inductive RF heating^[18]

4) 有效分凝系数大。对于固体激光器而言,增益介质内高的激活离子掺杂浓度是实现高功率激光输出的必要条件,而分凝系数大正是实现高浓度掺杂的重要保证。

LHPG法是一种微型的光浮区方法,将环形CO₂激光束聚焦于原料棒顶端形成微熔区,然后将籽晶引入熔体并向上牵引进行晶体生长,图2为LHPG法的装置示意图。该方法在保持 μ -PD法生长优势的同时也有着自身的独特优点:

1) 晶体长径比更大。所得光纤直径不受坩埚及微孔尺寸的限制,仅与原料尺寸和拉送比有关,最小直径可达10 μ m量级。

2) 无坩埚生长,降低坩埚挥发氧化及相互作用带来的生长难题,提高光纤质量。

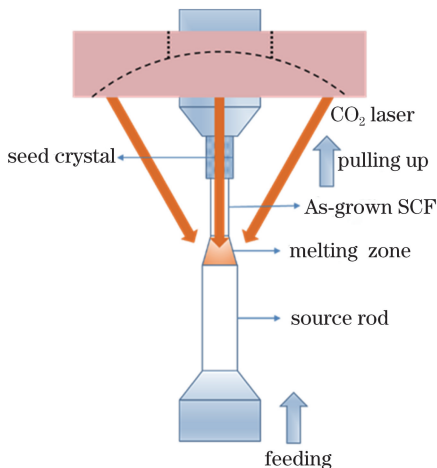


图2 激光加热基座法原理示意图

Fig. 2 Schematic of LHPG method

在晶体光纤制备领域,直径100 μ m是一个关键的分水岭。直径为100 μ m以上的单晶光纤在外形上仍然保留了体块晶体的部分特征,不具有真正意义上的光纤结构,而直径达到10 μ m量级的单晶

光纤真正结合了晶体与光纤二者的优势,有望实现理论输出极限。由于 μ -PD法及EFG法均需使用坩埚生长光纤,而微米级孔道的加工难度过大,所以目前超细单晶光纤的制备多选用LHPG法。LHPG法依靠上下拉速差获得不同直径的晶体光纤,无需使用坩埚,理论上更容易获得10 μ m量级的超细单晶光纤,但目前仍有许多技术难点需要攻克。LHPG法采用CO₂激光作为热源,目前商业化的CO₂激光器功率波动在5%左右,而10 μ m量级单晶光纤的生长功率通常在5 W以下,功率波动过大极大地影响晶体生长界面的稳定性,造成晶体生长的连续性较差、直径起伏较大。目前在超细单晶光纤的制备领域,美国海军实验室(NRL)和罗格斯(Rutgers)大学处于世界领先地位。这两家研究结构通过添加功率稳定系统,将CO₂激光的功率波动控制在0.5%以下,从源头上提高晶体生长界面的稳定性;同时添加直径实时观测系统,通过直径起伏反馈调节功率大小,提高光纤直径的均匀性,光纤直径起伏可从调节前的6%控制到小于1%^[6],如图3所示。

目前美国海军实验室可稳定生长YAG单晶光纤的直径在40 μ m以下,如图4所示。此时单晶光纤已有一定的韧性,弯曲半径可达4 mm,在此基础上成功以直径为100 μ m的光纤为源棒进行二次生长,得到直径为17 μ m的Yb:YAG单晶光纤,这也是目前报道最细的单晶光纤^[19]。

国内在晶体光纤方面的研究起步较晚,但发展势头迅猛。浙江大学、山东大学和国防科技大学等高校作为最早开展单晶光纤研究的团队,在单晶光纤高温传感器、单晶光纤LED光源及单晶光纤放大器等领域均取得许多重要研究成果,引领着国内单晶光纤的研究热潮^[20-22]。山东大学是国内率先开展单晶光纤生长研究的单位之一,其自主设计并研发

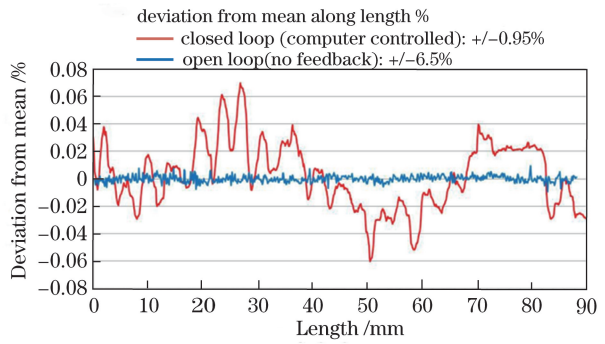
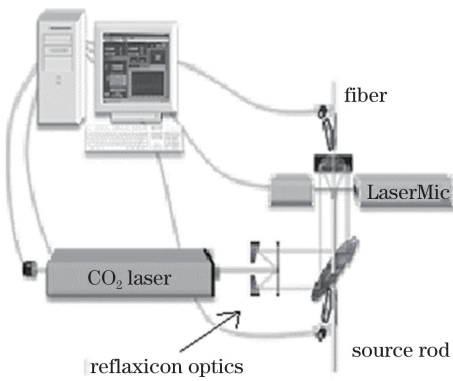


图 3 激光加热基座直径反馈系统^[6]。(a) 系统示意图；(b) 偏差-长度曲线

Fig. 3 Diameter feedback control system of LHPG^[6]. (a) Schematic of the system; (b) deviation vs length

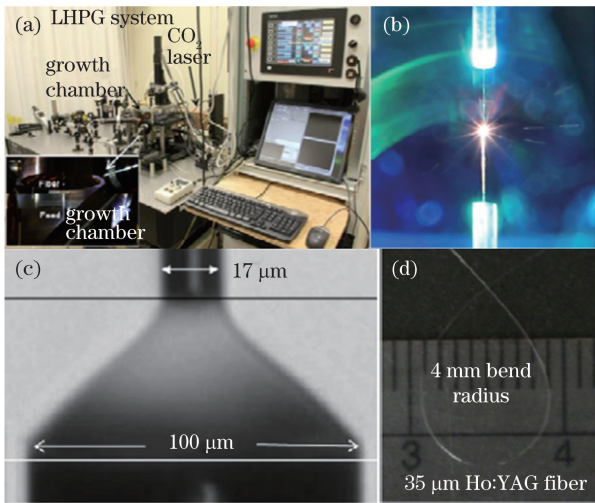


图 4 NRL 单晶光纤^[19]。(a) 激光加热基座系统；(b~c) 17 μm Yb:YAG 单晶光纤生长过程；(d) 弯曲半径为 4 mm、直径为 35 μm Ho:YAG 单晶光纤

Fig. 4 NRL single crystal fiber^[19]. (a) LHPG growth system; (b-c) LHPG growth of 17 μm diameter Yb:YAG fiber; (d) 4 mm bend radius of 35 μm Ho:YAG fiber



图 5 山东大学晶体光纤生长设备。(a) 激光加热基座晶体生长炉；(b) 微下拉晶体生长炉

Fig. 5 Crystal fiber growth equipment in Shandong University. (a) LHPG equipment; (b) μ-PD equipment

的国内首台微下拉生长炉，填补国内在该技术领域的空白。此外，山东大学购置了商品化的激光加热基座炉，使实验室完整具备研制光纤直径从 μm 量级到 mm 量级的单晶光纤生长平台，如图 5 所示。

经过近 10 年的技术摸索，山东大学已成功生长出多种高质量的单晶光纤，例如 YAG、LuAG、Al₂O₃、CGA 等，如图 6 所示。同时利用 LHPG 法加热温度高的优势，成功生长出高质量 ZrO₂ 单晶光纤（熔点高于 2700 °C），克服了超高熔点氧化物晶体光纤的生长难题，也进一步拓宽了单晶光纤的应用领域。

单晶光纤的质量表征与传统的玻璃光纤有一定的区别，既要考虑光纤的结构标准还要满足晶体的质量要求。通过不断摸索，本课题组搭建了

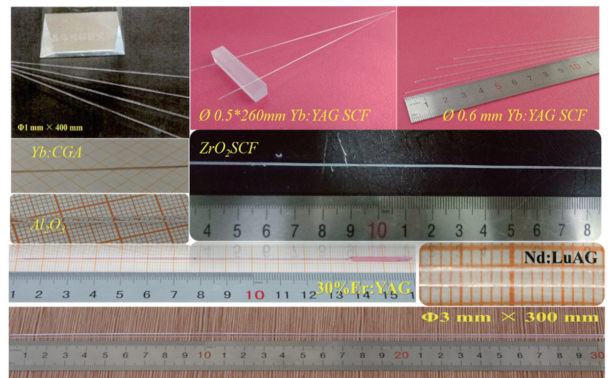


图 6 山东大学所制备的多种单晶光纤

Fig. 6 Single crystal fiber prepared by Shandong University with single crystal fiber配套表征设备，致力于对光纤晶体质量有一个全方位的综合评价。在光纤外形均匀性表征方面，采用精确度可达 1 μm 的激光测微仪分析光纤轮廓尺寸。经测试发现，生长的 YAG

单晶光纤直径起伏小于 2%，达到该领域的领先水平，如图 7 所示。

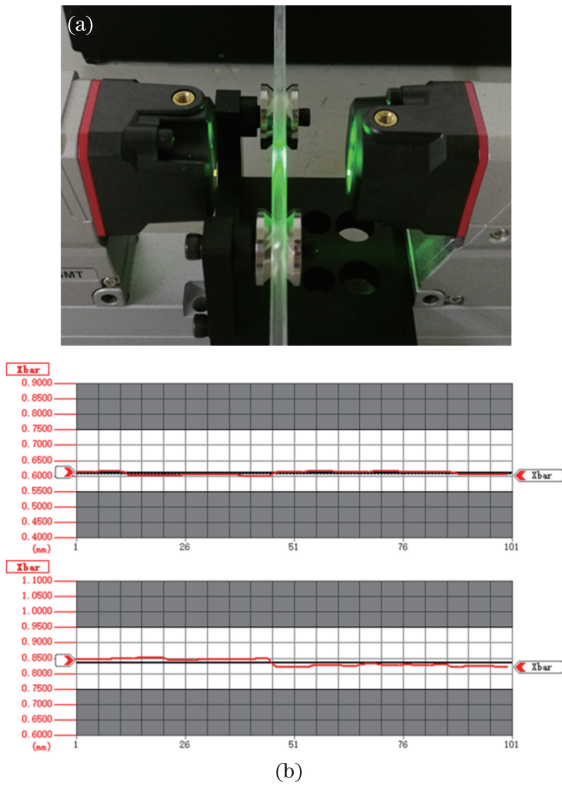


图 7 光纤直径起伏。(a) 激光测微仪；
(b) 不同直径 YAG 单晶光纤的直径起伏
Fig. 7 Fiber diameter fluctuation. (a) Laser micrometer;
(b) diameter fluctuation of YAG SCFs with different diameters

除此之外，晶体质量也是衡量单晶光纤好坏的重要指标，单晶性优异的晶体光纤可在最大程度上发挥其性能优势。相比于传统的体块单晶，晶体光纤尺寸较小，传统的测试手段如摇摆曲线、激光干涉仪等都无法对晶体质量进行表征，为此，本课题组通过 X 射线劳厄衍射仪分析得到的衍射斑点对单晶光纤的晶体质量进行分析表征。如图 8 所示，沿光纤长度方向进行劳厄衍射测试，衍射斑点呈现为 (110) 面衍射图，同时沿轴向间隔取点，衍射图样清晰且一致，说明晶体光纤单晶性良好且呈现出整体一致性。

YAG 单晶光纤作为一种激光增益介质，最终目的是要应用于光学领域，因此对其光学均匀性的表征也至关重要，为此，本课题组搭建以氦氖激光为光源的测试台，通过分析光束畸变大小来判断晶体光纤内部的均匀性。图 9 为测试装置示意图，结果显示，光束通过晶体光纤后未发生剧烈畸变，仍呈现良好的高斯分布，光束质量因子 $M^2 < 1.3$ ，说明晶体内部光学均匀性良好。通过简单、快捷的方法进行验证，保证了后续器件制作的成功率。

2.2 单晶光纤精密加工

晶体光纤的精密加工是从原材料转换为器件必不可少的环节，趋于集成化的器件构造对单晶光纤表面粗糙度、端面加工工艺及组件之间的耦合效率提出了苛刻的要求。晶体光纤在使用过程中的能量

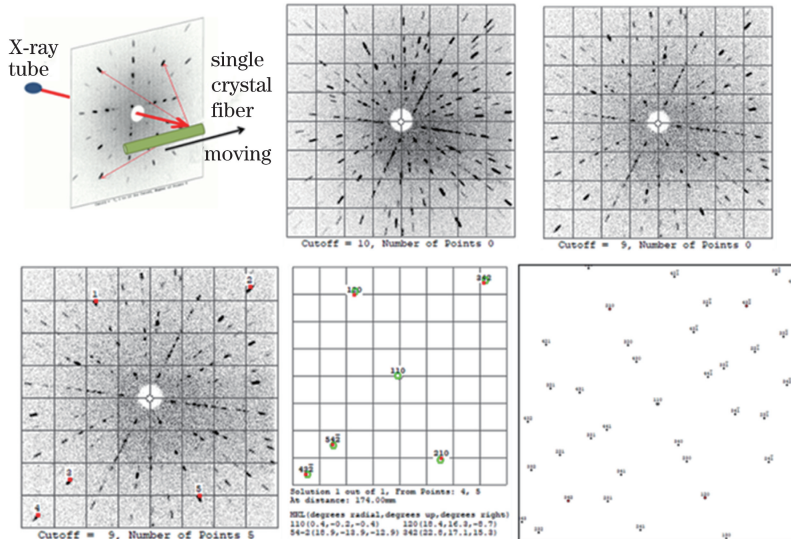


图 8 YAG 单晶光纤劳厄衍射图
Fig. 8 Laue diffraction patterns of YAG single crystal fiber

损耗主要来源于表面的散射损失、内部的非辐射损失，非辐射损失主要由背景吸收、缺陷、激发态猝灭

及荧光俘获构成。美国海军实验室利用波长为 532 nm 的探针测量 YAG 晶体光纤的表面散射损

失,测量装置如图 10 所示,测试样品直径为 $30\ \mu\text{m}$,长度为 $20\ \text{mm}$,测试所得激光的绝对传输效率为 85% ,能量损失由表面的菲涅耳反射造成,说明晶体光纤具有较高的晶体质量和良好的表面抛光工艺。同时利用热像仪对非辐射损失进行系统的测量,经计算可知光纤内部总的非辐射能量损失为 $0.64\ \%/ \text{cm}$,说明光纤具有较高的晶体质量^[23]。罗格斯大学在 2018 年通过改良激光加热基座设备使功率波动小于 0.2% ,大幅度提高光纤质量,测试后可知,采用该方法制备的 YAG 单晶光纤在 $1.06\ \mu\text{m}$ 波段的总损耗为 $0.3\ \text{dB}/\text{m}$,较之前的研究有大幅度提升,是目前世界范围内所报道的单晶光纤的最小光损耗,接近玻璃光纤的损耗水平,其中散射损耗约占总损耗的 30% ^[24]。

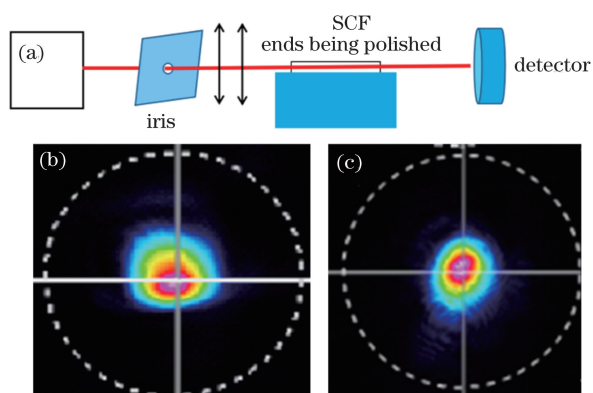


图 9 光学均匀性。(a) 测试原理图;(b) 光源光束质量;(c) 通过光纤后的光束质量

Fig. 9 Optical uniformity. (a) Schematic of the measurement; (b) beam quality of the source; (c) beam quality after passing through the fiber

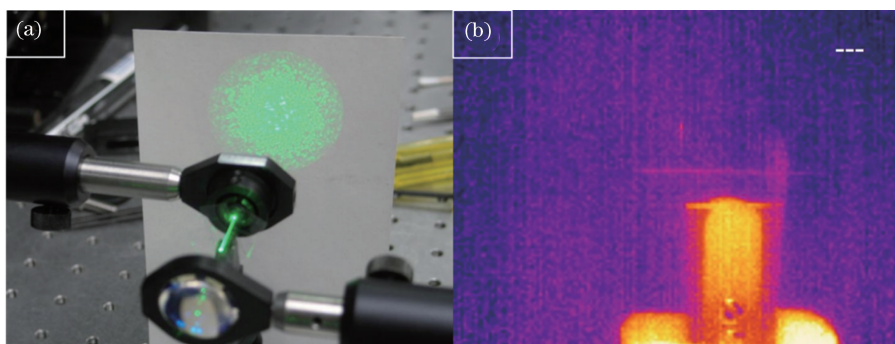


图 10 光纤损耗测试^[23]。532 nm 激光透过(a) 直径为 $35\ \mu\text{m}$ 的 YAG 单晶光纤;(b) 直径为 $90\ \mu\text{m}$ 的 YAG 单晶光纤的热成像

Fig. 10 Fiber loss detection^[23]. 532 nm laser transmission through (a) $35\ \mu\text{m}$ diameter YAG single crystal fiber; (b) thermal image from the $90\ \mu\text{m}$ diameter YAG crystal fiber

要实现低损耗单晶光纤的制备,除了在生长过程中保证晶体质量以外,后续的加工工艺也必不可少。在光纤微纳尺寸加工方面,美国海军实验室于 2012 年报道了直径为 $30\ \mu\text{m}$ 、长度为 $20\ \text{cm}$ 以上的 YAG 单晶光纤的端面加工工艺,采用该工艺制备的单晶光纤的表面粗糙度小于 $3\ \text{nm}$,如图 11 所示,极大地降低了由端面反射引起的能量损失。由于目前大多数光纤器件的基础构件都是石英光纤,单晶光纤与石英光纤部件的连接也是亟待解决的问题,目前常用的连接方式为机械连接,连接处损耗过大且力学性能较差。Thapa 等^[25]使用一种基于灯丝的商用接合器(Vytran GPX-3000)将直径为 $100\ \mu\text{m}$ 的单晶光纤与直径为 $125\ \mu\text{m}$ 的掺 Ge 石英光纤进行拼接,图 12 为拼接处的显微图像,经检测,连接处光损耗总量为 $0.33\ \text{dB}$,且界面处的拉伸强度大于 $50\ \text{kPa}$ 。尽管 YAG 晶体与石英玻璃在材料特性方面存在明显差异,但在开发基于晶体和玻璃的超高

功率集成型激光系统方向上迈出了重要一步。

3 单晶光纤包层制备

包层结构是所有光纤材料必不可少的一部分,单晶光纤也不例外。通过调节包层材料与内部晶体材料的折射率差值能够实现全反射,进而提高激光的输出效率。目前应用最多的包层材料为特种玻璃,其优势在于折射率调节范围较大,可满足多种材料的需求,但玻璃材料的热导率较低且热膨胀系数与晶体材料相比有较大差距,该特征为器件的后期应用带来了一定困难。国际范围内对晶体光纤包层的研究比较广泛,其制备方法主要有磁控溅射法、涂覆法、液相外延(LPE)法及共拉伸激光加热基座(CDLHPG)法。

2018 年 Myers 等^[26]报道了基于磁控溅射法的 YAG 单晶光纤包层制备工艺,将生长制备的 YAG 单晶光纤加工至合适长度,在丙酮或异丙醇中进行

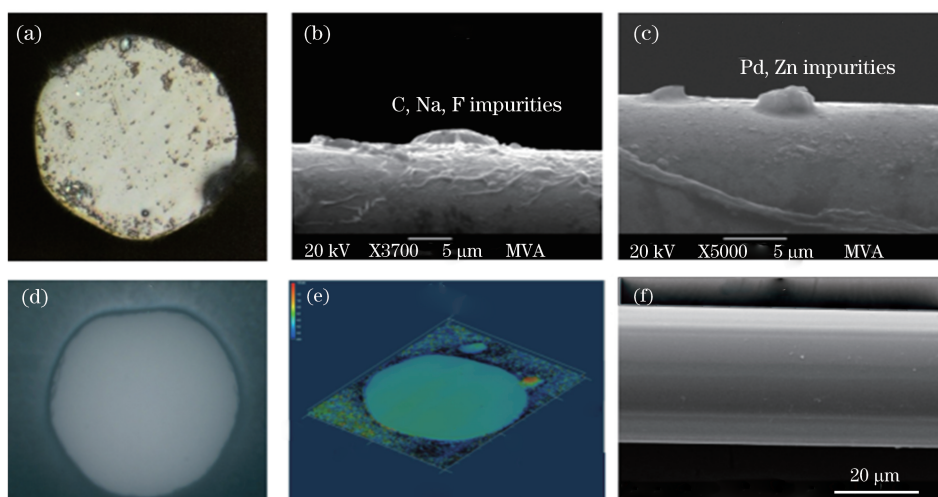


图 11 单晶光纤微加工^[23]。(a) 光纤端面的光学显微镜图片；(b~d) 扫描电镜(SEM)观测的光纤的表面形貌；(e) 共聚焦显微镜中光纤端面图像显示出优良的抛光质量；(f) 光纤末端的 SEM 图像显示出优异的品质

Fig. 11 Micromachining of SCF^[23]. (a) Optical microscope image of the single crystal fiber ends; (b-d) surface morphology of SCF measured by scanning electron microscopy(SEM); (e) confocal microscope surface topographic image of the fiber end showing excellent polishing quality; (f) SEM surface topographic image of the fiber end showing excellent quality

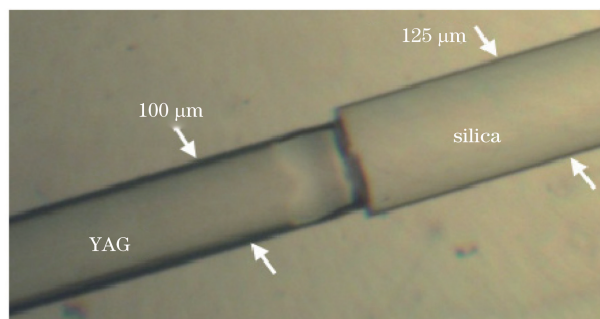


图 12 YAG 光纤与石英光纤熔接显微照片^[25]
Fig. 12 Micrograph of the splice between the silica and YAG fiber^[25]

超声处理(去除表面杂质),然后将处理后的 YAG 光纤放置在沉积室中,通入 Ar 与 O₂ 的混合气,同时使用多个高纯度 YAG 溅射靶来提高包层速率并实现包层的均匀覆盖。这一过程通常会持续数百个小时,包层厚度一般为 20~30 nm,这一方法制备的包层致密性较好,且包层内部无明显的气孔等缺陷,如图 13 所示,利用氦氖激光检测 YAG 单晶光纤的光波导性能,结果显示其在包层区域实现全反射。

涂覆法制备包层的核心内容为前驱体的制备,将前驱体均匀地涂覆到单晶光纤的表面,经过烧结

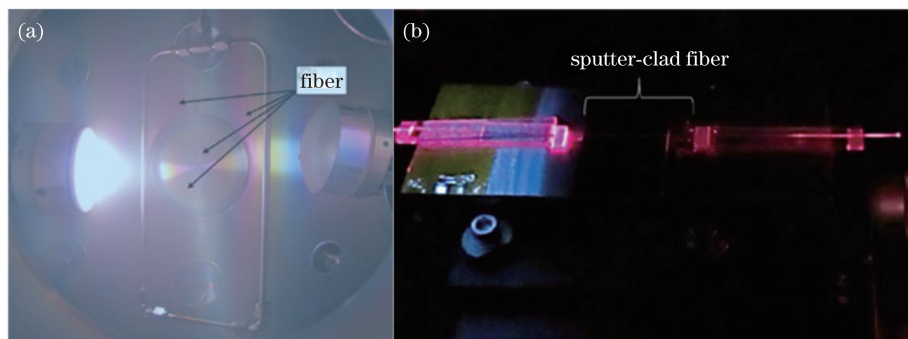


图 13 磁控溅射法包层制备。(a) 磁控溅射装置；(b) 溅射包层单晶光纤用氦氖激光照射^[26]
Fig. 13 Preparation of claddings by magnetron sputtering. (a) Setup of magnetron sputtering; (b) sputter-clad fiber illuminated with a He-Ne laser^[26]

等工艺获得致密的晶体包层。该方法成本较低,制备工艺简单,但包层内部极易生成气孔等缺陷,致密性较低。Chien-Chih 课题组^[27]于 2014 年报道了基

于溶液涂覆法在直径为 40 μm Ti:Al₂O₃ 单晶光纤表面制备晶态 Al₂O₃ 的包层工艺,使低成本、高质量的包层工艺成为可能。如图 14 所示,准备阶段首先

将纳米 Al_2O_3 颗粒、乙醇与表面活性剂按比例充分混合,混合后的溶液充分浸涂到光纤表面,涂覆后的

光纤在空气中静置去除水分,待水分去除后,将其放入烧结炉中,在 $1650\text{ }^\circ\text{C}$ 下烧结 2 h。

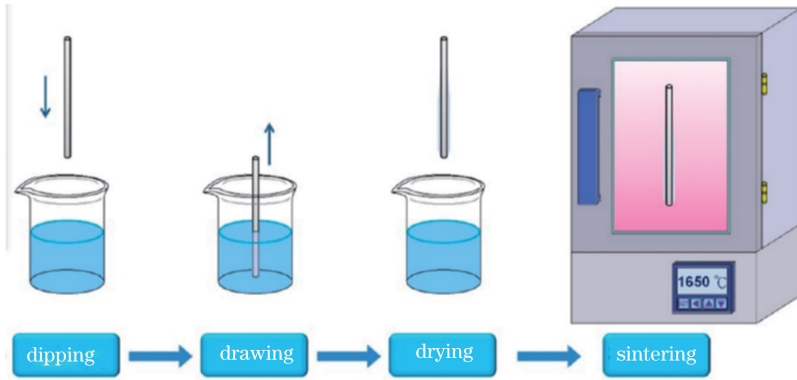


图 14 涂覆法示意图^[27]

Fig. 14 Schematic of the coating method^[27]

该方法制备的包层外部可形成致密的陶瓷状包层,而内部晶粒受晶体的影响,小晶粒在不断长大的同时吞噬周围晶粒,使纤芯周围区域有一定的取向性,且整体性较强,更接近于理论情况下的单晶包层。对其截面进行电子背散射衍射(EBSD)测试,发现其内部晶态包层与纤芯晶体菊池线图样一致,说明内部晶体包层的取向一致。经理论模拟表征发现,光波导被牢牢锁定在纤芯区域,有利于实现单模激光输出,如图 15 所示。

助熔剂中,将包层生长温度控制在 $900\sim 1150\text{ }^\circ\text{C}$ 。该方法制备的包层厚度可通过生长时间进行调控,厚度范围为 $1\sim 150\text{ }\mu\text{m}$ 。如图 16 所示,该方法是在晶体光纤的表面外延生长制备包层,通过横截面观察发现其具有明显的六边形生长特性,取向性较强。“C4”(crystalline-core/crystalline-cladding)结构的单晶光纤外部纯 YAG 晶体包层的折射率要小于内部 Yb:YAG 单晶光纤,而内部纤芯呈现出良好的光波导现象,进行菲涅耳反射修正后,通过溶液法制备的 C4 型光纤的传输损耗仅为 0.011 dB/cm ,获得的最大准连续(quasi-continuous-wave)激光输出为 50 W ,光转换效率高达 70% ^[28]。

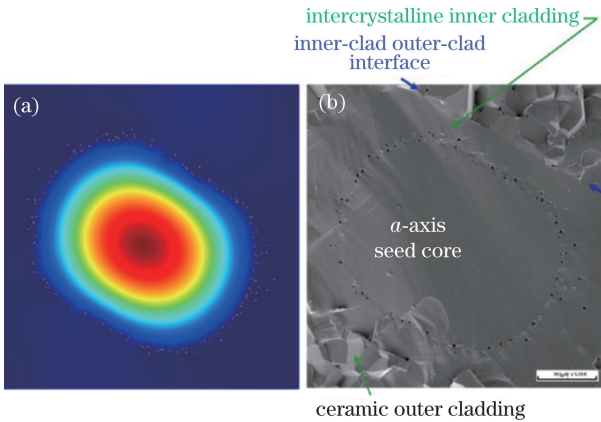


图 15 模场图案与横截面对比^[27]。(a) 计算所得 800 nm 下的模场图形;(b) 端面 SEM 图像

Fig. 15 Comparison of mode field pattern and cross section^[27]. (a) Calculated 800 nm mode-field pattern; (b) SEM image of the cross-section

LPE 的设备主要由以下几部分组成:加热炉、铱金坩埚及移动单元。制备包层首先将制备的单晶光纤放置于熔融的助熔剂中,根据光纤材料确定助熔剂组分。2018 年,美国陆军实验室报道通过 LPE 法在 Yb:YAG 单晶光纤表层制备了一层致密的 YAG 晶体包层,将纳米级 Y_2O_3 和 Al_2O_3 粉末加入

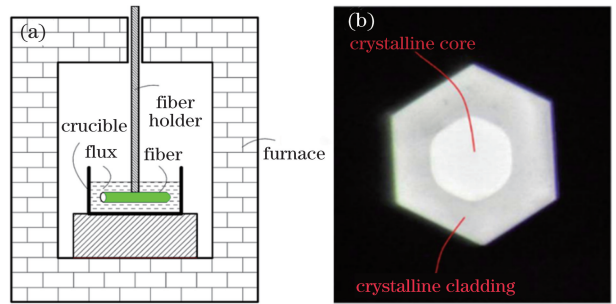


图 16 液相外延法包层制备^[28]。(a) 用于生长晶体包层的液相外延系统示意图;(b) Yb:YAG/YAG 光纤的横截面光学透射图

Fig. 16 Preparation of claddings by LPE method^[28]. (a) Simplified sketch of an LPE growth system for growing crystalline claddings; (b) corresponding cross-section optical transmission image of Yb:YAG/YAG fibers

上述三种方法均是通过后期处理制作单晶光纤包层,使包层多为晶态,但周期普遍较长且难以保证涂覆均匀。相比之下,LHPG 法制备包层的速度更

快,主要用于玻璃包层涂覆,是现阶段较为高效的单晶光纤包层的制备工艺之一。Huang 课题组^[29]报道利用 CDLHPG 法对直径为 76 μm 的 $\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$ 单晶光纤进行特种玻璃包覆,图 17 为 CDLHPG 系统示意图,首先制备一个芯径合适的特种玻璃套管,将生长所得的 $\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$ 单晶光纤放置于套管中,将套管整体作为源棒进行提拉生长,激光加热温度介于玻璃的软化温度(1600 $^{\circ}\text{C}$)与 YAG 的熔点(1970 $^{\circ}\text{C}$)之间,在不破坏晶体光纤的前提下,使外层石英紧密附着在 YAG 单晶光纤的表面,形成致密的玻璃包层。由于套管直径均匀且制备过程为同

步环形加热,CDLHPG 法制备的光纤包层厚度更加均匀,制备周期更短。

4 单晶光纤激光器

随着近几年单晶光纤激光器的基础研究持续升温,美国、法国、意大利及日本等国家都相继开展高质量单晶光纤的生长研究,单晶光纤激光器的研究也已取得一定的成果,国际上将单晶光纤激光器分为两种。第一种是由法国科学家提出的传统体块固体激光器和光纤激光器的中间过渡形式,称之为“过渡型”单晶光纤激光器如图 18 所示。其典型直径为 500 μm ~1 mm,长度为 40~60 mm,较大直径的光纤结构使材料的制备更加简单,晶体光纤的质量得以保证;同时,该方案泵浦光耦合效率高,以空气作为包层,多模泵浦光耦合入单晶光纤并形成波导,信号光的振荡则依靠两端的腔镜来实现,从而保证输出激光的光束质量,可通过增大泵浦光功率实现大功率的激光输出。这类单晶光纤激光器主要面向高能激光及材料加工领域,相对于传统的大功率化学激光器,具有体积小、操作简便、安全系数高等优点,因此有巨大的应用前景^[30]。

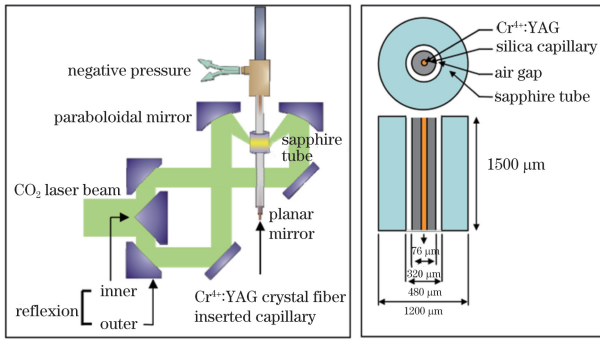


图 17 CDLHPG 系统的原理图^[29]

Fig. 17 Schematic of CDLHPG system^[29]

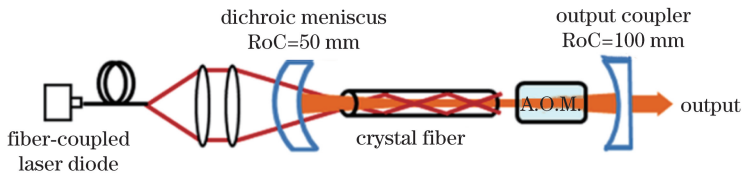


图 18 “过渡型”光纤激光器示意图^[30]

Fig. 18 Schematic of “Transitional” fiber laser^[30]

另一种则是直接借鉴传统玻璃光纤激光的概念,以直径小于 100 μm 的掺杂 YAG 单晶作为纤芯,通过直接拉制或后处理的方式合成包层结构,最终得到“C4”型柔性可弯曲单晶光纤。与传统的玻璃包层相比,这种结构的热膨胀匹配性更好,极大地提高了包层的传热性能和光纤的热管理能力^[27]。

此方案对包层与光纤的耦合程度及泵浦光的质量提出了很高的要求,有利于实现单模激光输出,主要应用于高精度的信息传输及医疗等领域。图 19 即为“C4”型光纤激光器示意图,美国 Rutgers 大学、Shasta Crystals 公司和 Onyx Optics 公司在此领域处于领先地位。

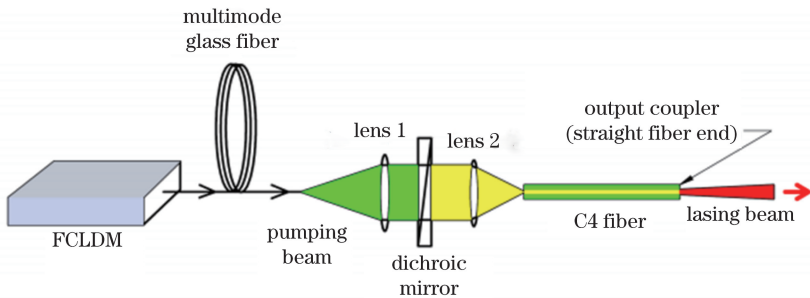


图 19 “C4”型光纤激光器示意图^[28]

Fig. 19 Schematic of “C4” fiber laser^[28]

在 $1\ \mu\text{m}$ 波段单晶光纤激光器研究领域,法国国家科学研究所(CNRS)光学研究所实验室的Délén研究团队,系统研究了Yb:YAG和Nd:YAG单晶光纤在 $1\ \mu\text{m}$ 波段的激光输出,由于该波段能量较高且相对于可见波段不易被吸收,因而被认为是最有可能作为激光武器使用的波段。2012年,该研究团队采用直径为 $1\ \text{mm}$ 、 1% Yb³⁺掺杂的Yb:YAG单晶光纤在 $1030\ \text{nm}$ 处实现了 $251\ \text{W}$ 的最大连续激光输出功率以及 53% 的斜率

效率,这是到目前为止采用单晶光纤获得的最高连续激光输出功率和最高转换效率^[31]。实验原理图及激光输出曲线如图20、图21所示,“过渡型”单晶光纤在高功率激光方面仍有较大的发展空间。山东大学晶体材料研究所一直从事毫米级单晶光纤的生长探索,采用 μ -PD法制备的毫米级直径Nd:YAG单晶光纤已获得 $10\ \text{W}$ 级的连续激光输出,斜率效率可达 48.9% ,光束质量因子 $M^2=1.1$ 。

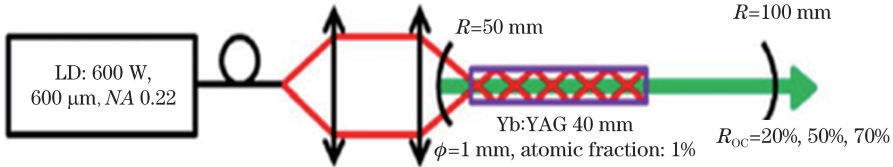


图 20 Yb:YAG 光纤激光器示意图^[31]

Fig. 20 Schematic of Yb:YAG fiber laser^[31]

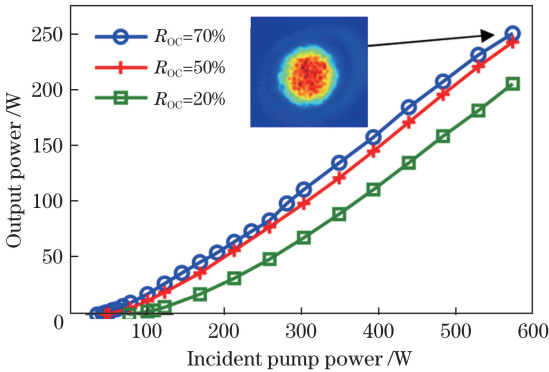


图 21 Yb:YAG 单晶光纤输出功率与泵浦功率关系曲线^[31]

Fig. 21 Output power versus pump power of Yb:YAG SCF^[31]

在 $2\ \mu\text{m}$ 波段,罗格斯大学与克莱门森大学合作实现了YAG单晶光纤在 $2\ \mu\text{m}$ 波段的激光输出,通过LHPG法制备了直径为 $320\ \mu\text{m}$ 的Ho:YAG单晶光纤,获得了 $23.5\ \text{W}$ 的连续激光输出功率,光转换斜率效率为 67.5% ,是目前使用单晶光纤在 $2\ \mu\text{m}$ 波段获得的最大连续激光输出功率^[32]。

如图22所示,shasta公司对直径为 $100\ \mu\text{m}$ 的

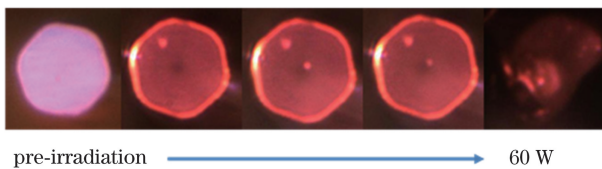


图 22 Nd:YAG 单晶光纤激光损伤阈值实验^[6]

Fig. 22 Optical damage experiment of Nd:YAG single crystal fiber^[6]

Nd:YAG单晶光纤进行了损伤阈值的测试,测试结果显示其损伤阈值高达 $6\ \text{MW}/\text{cm}^2$,这得益于超细单晶光纤优异的热管理能力^[6]。目前单晶光纤制备工艺存在局限性,生长直径为 $30\ \mu\text{m}$ 以下超细单晶光纤存在较大困难,晶体质量仍无法满足高效激光输出的标准。为最大化发挥光纤的尺寸优势,研究人员又提出使用玻璃光纤制备工艺生长晶体光纤。与传统的玻璃光纤制备方法不同的是,光纤预制棒芯部替换为所需晶体光纤材料,外部为石英套管,在进行晶体光纤生长的过程中同时实现包层制备,如图23所示,目前已经有科研机构开展相关研究,其中山东大学所制备的Yb:YAG衍生石英光纤(Yb:YAG-derived silica fiber, YDSF)芯部直径可达 $6.3\ \mu\text{m}$,长度可达数米,如图24所示,获得的最大连续输出功率可达 $6\ \text{W}$,斜率效率为 21.7% ^[33-34],为后续单晶光纤激光器的发展提供了全新思路。

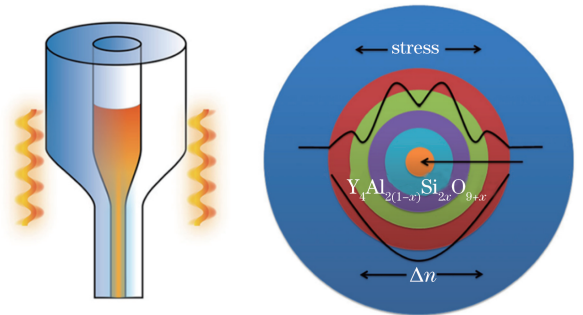


图 23 “熔体-管”式光纤生长方法示意图^[33]

Fig. 23 Schematic of the “Melt-in-Tube” fiber drawing method^[33]

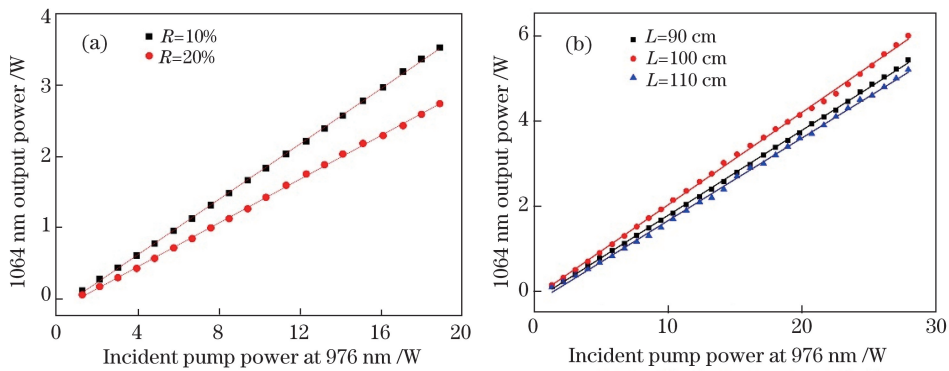


图 24 1064 nm 激光输出^[34]。(a) 不同输出镜反射率 R 下;(b) 不同谐振腔长度 L 下

Fig. 24 1064 nm laser output^[34]. (a) At different reflections of output mirror; (b) at different cavity lengths

5 结 论

单晶光纤经过近年来的发展,从材料种类到光纤尺寸均有一定的进步,已经逐渐走入大众视野,但高质量的微米级单晶光纤制备困难,同时单晶光纤器件效率较低等问题仍然存在。从晶体生长的角度考虑,采用高质量的晶体光纤作为源棒并进行多次缩径生长,从而获得直径均匀、结晶性良好的超细单晶光纤;从器件制作的角度看,需要进一步优化加工工艺,提高包层适配度,降低端面的反射损耗及光纤连接处的能量损耗,实现单晶光纤器件的模块化。随着研究的不断深入,单晶光纤的生长技术及加工工艺已经愈发成熟和多样化, Al_2O_3 、 $\text{Nd}:\text{YAG}$ 、 $\text{Yb}:\text{YAG}$ 等晶体光纤器件的模块化已初步实现,相信在不久的将来,单晶光纤将走出实验室,真正服务于日常生活的各个领域。

参 考 文 献

- [1] Jiang M H. Crystal and optoelectronic functional materials[J]. *Functional Materials Information*, 2004, 1(2): 3-10.
蒋民华. 人工晶体与光电功能材料[J]. *功能材料信息*, 2004, 1(2): 3-10.
- [2] Nilsson J, Payne D N. High-power fiber lasers[J]. *Science*, 2011, 332(6032): 921-922.
- [3] Richardson D J, Nilsson J, Clarkson W A. High power fiber lasers: current status and future perspectives[J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 2010, 27(11): B63-B92.
- [4] Beier F, Hupel C, Nold J, *et al.* Narrow linewidth, single mode 3 kW average power from a directly diode pumped ytterbium-doped low NA fiber amplifier[J]. *Optics Express*, 2016, 24(6): 6011-6020.
- [5] Parker S I, Kenney C J, Segal J. 3D: a proposed new

architecture for solid-state radiation detectors[J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 1997, 395(3): 328-343.

- [6] Soleimani N, Ponting B, Gebremichael E, *et al.* Coilable single crystal fibers of doped-YAG for high power laser applications[J]. *Proceedings of SPIE*, 2013, 8959: 895903.
- [7] von Gomperz E. Untersuchungen an einkristalldrähten [J]. *Zeitschrift für Physik A Hadrons and Nuclei*, 1922, 8(1): 184-190.
- [8] Labelle H E, Mlavsky A I. Growth of sapphire filaments from the melt[J]. *Nature*, 1967, 216(5115): 574-575.
- [9] Haggerty J S. Production of fibers by a floating zone fiber drawing technique[J]. *NTRS*, 1972: NAS3-14328.
- [10] Burrus C A, Stone J. Single-crystal fiber optical devices: a $\text{Nd}:\text{YAG}$ fiber laser[J]. *Applied Physics Letters*, 1975, 26(6): 318-320.
- [11] Mimura T, Hiyamizu S, Fujii T, *et al.* A new field-effect transistor with selectively doped $\text{GaAs}/\text{n-Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ heterojunctions[J]. *Japanese Journal of Applied Physics*, 1980, 19(5): L225-L227.
- [12] Bridges T J, Hasiak J S, Strnad A R. Single-crystal AgBr infrared optical fibers[J]. *Optics Letters*, 1980, 5(3): 85-86.
- [13] Que W X, Zhou Y, Lam Y L, *et al.* Cladding and characteristics of LiNbO_3 single crystal fibre[J]. *Journal of Modern Optics*, 2000, 47(6): 1127-1136.
- [14] Ribeiro R M, Fiasca A B A, dos Santos P A M, *et al.* Optical activity measurements in the photorefractive $\text{Bi}_{12}\text{TiO}_{20}$ single crystal fibers[J]. *Optical Materials*, 1998, 10(3): 201-205.

- [15] Nubling R K, Harrington J A. Optical properties of single-crystal sapphire fibers[J]. *Applied Optics*, 1997, 36(24): 5934-5940.
- [16] Yang P Z, Deng P Z, Xu J, *et al.* Growth of high-quality single crystal of 30 at% Yb:YAG and its laser performance[J]. *Journal of Crystal Growth*, 2000, 216: 348-351.
- [17] Fukuda T, Rudolph P, Uda S. Fiber crystal growth from the melt [M]. Berlin, Heidelberg: Springer, 2004.
- [18] Fukuda T, Chani V I. Shaped crystals: growth by micro-pulling-down technique[M]. Berlin, Heidelberg: Springer, 2007.
- [19] Shaw L B, Bayya S, Kim W, *et al.* Fabrication of cladded single crystal fibers for all-crystalline fiber lasers[C]//Proceedings of 2018 OSA International Conference on Specialty Optical Fibers, July 2-5, 2018, Zurich, Switzerland. Washington, D. C.: OSA, 2018: SoW2H.3.
- [20] Shen Y H. Sapphire fiber thermometer ranging from the room temperature to 1800 °C[J]. *Acta Optica Sinica*, 2000, 20(1): 83-87.
沈永行. 从室温到 1800 °C 全程测温的蓝宝石单晶光纤温度传感器[J]. *光学学报*, 2000, 20(1): 83-87.
- [21] Ye L H, Song L, Li G, *et al.* Growth and characteristics of Ce³⁺ ions-doped YAG single-crystal optical fibers for LED white light sources[J]. *Acta Optica Sinica*, 2009, 29(s1): 169-171.
叶林华, 宋丽, 李刚, 等. 用于 LED 白光源的 Ce³⁺:YAG 单晶光纤的生长与特性[J]. *光学学报*, 2009, 29(s1): 169-171.
- [22] Wang Y L, Wang Q. Research progress in single-crystal fiber amplifiers[J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2018, 55(10): 100006.
王雅兰, 王庆. 单晶光纤放大器研究进展[J]. *激光与光电子学进展*, 2018, 55(10): 100006.
- [23] Kim W, Florea C, Baker C, *et al.* Single crystal fibers for high power lasers[J]. *Proceedings of SPIE*, 2012, 8547: 85470K.
- [24] Nie C D, Bera S, Harrington J A. Growth of single-crystal YAG fiber optics[J]. *Optics Express*, 2016, 24(14): 15522-15527.
- [25] Thapa R, Gibson D, Gattass R R, *et al.* Fusion splicing of highly dissimilar YAG crystal fiber and silica fiber with reaction bonding[J]. *Optical Materials Express*, 2016, 6(8): 2560-2566.
- [26] Myers J D, Kim W, Shaw L B, *et al.* Development of thin film claddings for single crystal optical fiber [C]//2018 Novel Optical Materials and Applications, July 2-5, 2018, Zurich, Switzerland. Washington, D. C.: OSA, 2018: NoTu4D.4.
- [27] Lai C C, Gao W T, Nguyen D H, *et al.* Toward single-mode active crystal fibers for next-generation high-power fiber devices[J]. *ACS Applied Materials & Interfaces*, 2014, 6(16): 13928-13936.
- [28] Dubinskii M, Zhang J, Fromzel V, *et al.* Low-loss 'crystalline-core/crystalline-clad' (C4) fibers for highly power scalable high efficiency fiber lasers[J]. *Optics Express*, 2018, 26(4): 5092-5101.
- [29] Huang K Y, Hsu K Y, Jheng D Y, *et al.* Low-loss propagation in Cr³⁺:YAG double-clad crystal fiber fabricated by sapphire tube assisted CDLHPG technique[J]. *Optics Express*, 2008, 16(16): 12264-12271.
- [30] Sangla D, Martial I, Aubry N, *et al.* High power laser operation with crystal fibers[J]. *Applied Physics B*, 2009, 97(2): 263-273.
- [31] Délen X, Piehler S, Didierjean J, *et al.* 250 W single-crystal fiber Yb:YAG laser[J]. *Optics Letters*, 2012, 37(14): 2898-2900.
- [32] Li Y, Miller K, Johnson E G, *et al.* Lasing characteristics of Ho:YAG single crystal fiber[J]. *Optics Express*, 2016, 24(9): 9751-9756.
- [33] Zhang Y M, Qian G Q, Xiao X S, *et al.* A yttrium aluminosilicate glass fiber with graded refractive index fabricated by melt-in-tube method[J]. *Journal of the American Ceramic Society*, 2018, 101(4): 1616-1622.
- [34] Xie Y Y, Liu Z J, Cong Z H, *et al.* All-fiber-integrated Yb:YAG-derived silica fiber laser generating 6 W output power[J]. *Optics Express*, 2019, 27(3): 3791-3798.