

文章编号 : 0253-2239(2001)10-1264-04

高浓度掺钕钇铝石榴石(Nd:YAG)晶体的光谱 与激光特性*

毛艳丽¹⁾²⁾ 邱宏伟¹⁾ 徐 军¹⁾ 邓佩珍¹⁾ 干福熹¹⁾
(1), 中国科学院上海光学精密机械研究所, 上海 201800)
(2), 河南大学物理系, 开封 475001

摘要: 测量了高掺杂浓度 Nd:YAG 晶体的吸收光谱和荧光寿命。晶体的主吸收峰在 808 nm 处, Nd 掺杂的摩尔分数为 0.030 的 Nd:YAG 晶体的吸收系数高达 20.7 cm^{-1} , 荧光寿命为 $150 \mu\text{s}$, 存在浓度猝灭。进行了钛宝石激光抽运高掺杂浓度 Nd:YAG 和 Nd:YVO₄ 晶体的激光性能对比实验, 所用 Nd:YAG 晶体摩尔分数为 0.020 和 0.025, 激光斜率效率分别为 29.7% 和 32%; Nd:YVO₄ 晶体摩尔分数为 0.030, 激光斜率效率为 34.7%, 表明了高浓度 Nd:YAG 晶体在激光性能上与高浓度的 Nd:YVO₄ 晶体相当。

关键词: 高浓度 Nd:YAG; 吸收光谱; 荧光寿命; 温梯法

中图分类号: O734 文献标识码: A

1 引 言

Nd:YAG 晶体具有优越的光谱和激光特性^[1], 是应用最广泛的激光晶体之一。与 Nd:YVO₄ 晶体相比, 前者热导率高, 机械性能好, 生长容易, 并且 Nd:YAG 晶体可以直接用 Cr:YAG 调 Q, 获得高功率、高重复频率的输出^[2,3], 用半导体激光器抽运可以实现 946 nm 激光输出, 倍频后成为非常有用的蓝色光源^[4,5]。但由于 Nd:YAG 晶体掺杂浓度较低, 吸收系数较小, 难以实现激光器的小型化和提高激光效率。现在, 我们采用温梯法获得了大尺寸、高掺杂的 Nd:YAG 晶体, Nd 离子掺杂的摩尔分数可高达 0.030。

本文对不同掺杂浓度的 Nd:YAG 晶体进行了吸收光谱和荧光寿命的测量, 并用钛宝石激光器抽运高掺杂浓度的 Nd:YAG 晶体和 Nd:YVO₄ 晶体, 对比了两者的激光性能, 表明高浓度 Nd:YAG 晶体在激光性能上相当于高浓度的 Nd:YVO₄ 晶体。

2 实验

2.1 样品制备

在 Nd:YAG 晶体中, Nd³⁺ 离子取代 Y³⁺ 离子位

于十二面体的中心位置上, 由于 Nd³⁺ 离子半径 (0.1323 nm) 比 Y³⁺ 离子 (0.1281 nm) 半径大, Nd³⁺ 离子取代 Y³⁺ 离子时将使晶格发生畸变, 因而 Nd³⁺ 离子在 YAG 晶体中的分凝系数较小, 使得常规的提拉法难以实现高浓度掺杂, 必须采取一些有效措施, 其中之一就是改善生长工艺, 寻找新的生长方法。

我们采用的温梯法, 是一种从熔体中生长晶体的高温技术, 整个生长装置处于相对稳定的状态, 坩锅和籽晶都不旋转, 这样熔体中既没有因机械搅拌引起的强迫对流, 又没有因熔体密度引起的自然对流, 固液界面不受干扰, 具有稳定热场, 有利于 Nd³⁺ 离子进入 YAG 晶体。与提拉法相比, 它具有较大的溶质边界层厚度和固液界面推进速度, 从而提高了表观分凝系数; 另外由于 Nd:YAG 晶体的有效分凝系数较小, 初始部位 Nd 离子掺杂较少, 较多的 Nd 离子存在于熔体中, 导致后结晶部位达到较高的掺杂浓度。由于 Nd 离子与 Y 离子半径差别较大, 高浓度掺杂导致晶格畸变比较严重, 晶体的完整性受到较大影响, 对此, 我们进行了精密的退火处理来完善晶体的完整性, 获得了完整性好、光学均匀性优、掺杂浓度高的 Nd:YAG 晶体^[6]。

用于测定吸收谱和荧光寿命的样品来自四次生长的晶体, 晶体生长条件相同, 掺杂浓度用摩尔分数 x 表示, 分别为 0.030、0.022、0.020、0.018。厚度

* 中国科学院重大课题和 863-715 新材料领域课题资助项目。

均为 1 mm, 两面抛光。激光实验中所用 Nd:YAG 样品尺寸为 5 mm×5 mm×1 mm, 掺杂的摩尔分数为 $x = 0.020$ 和 $x = 0.025$, 两面抛光, 加工精度为三级。Nd:YVO₄ 的晶体尺寸为 3 mm×3 mm×1 mm, 掺杂的摩尔分数为 $x = 0.030$ 。

2.2 吸收光谱和荧光寿命测量

吸收光谱在 Lambda9UV/VIS/NIR 分光计上测定, 荧光寿命在室温下用荧光衰减测得, 用 InGaAs 二极管激发, 激发波长为 808 nm, 脉宽为 1 ms, 用 GDB28 型光电倍增管接收信号。日本东芝公司的 V-1050F 100MHZX 型示波器用来观察荧光衰减, 并记录荧光寿命。

2.3 激光实验

激光实验装置如图 1 所示, Ar⁺ 离子抽运的钛宝石激光器为抽运源, 抽运波长调谐在 808 nm, 激光腔采用平凹腔, 抽运光经 $f = 75$ mm 的聚焦镜聚焦在晶体上。其中 Nd:YAG 晶体一端镀 808 nm 的增透膜和 1.06 μm 的高反膜, 可直接作为平面腔镜, 另一端镀 1.06 μm 的增透膜, 晶体固定在铜块上, 通循环水冷却[图 1(a)]。Nd:YVO₄ 晶体一端镀 808 nm 和 1.06 μm 的增透膜, 另一端镀 1.06 μm 的增透膜, 所以必须在前面放置平面腔镜, 平面腔镜镀 808 nm 增透膜和 1.06 μm 的高反膜, 腔镜直径为 φ25 mm, 紧贴 Nd:YVO₄ 晶体并固定在铜架上[图 1(b)]。输出耦合镜为 $R = 50$ mm 的凹面镜, 透过率 $T_{1.06 \mu\text{m}} = 3\%$, 输出镜后放置 45° 全反镜, 对 808 nm 的光全反射, $T_{1.06 \mu\text{m}} = 94.4\%$, 用来滤掉抽运光, 用 SD2940 型功率计测试功率大小。

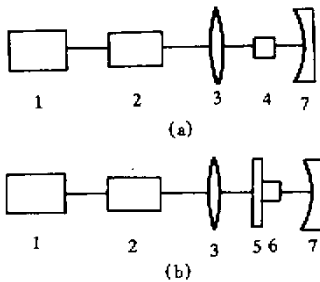


Fig. 1 Experimental setup of the Ti:sapphire pumped Nd:YAG and Nd:YVO₄ laser. (a) Nd:YAG; (b) Nd:YVO₄. 1:Ar⁺ ion laser; 2:Ti:sapphire laser; 3:focusing lens; 4:Nd:YAG; 5:plane mirror; 6:Nd:YVO₄; 7:output coupler

3 结果与讨论

对几个不同掺杂浓度的样品, 吸收光谱的测试

结果如图 2 所示, 测得荧光寿命的大小列于表 1, 经测量计算, 吸收系数的大小也列于表 1。从表中可以看出 Nd:YAG 的主吸收峰在 808 nm 处, 吸收线宽(FWHM)为 6 nm 左右, 随着掺杂浓度的提高, 吸收线宽无明显变化, 而吸收系数明显变大。 $x = 0.030$ 掺杂的样品, 吸收系数高达 20.7 cm^{-1} , 大约是 $x = 0.010$ 掺杂的 Nd:YAG 的 3 倍。不同浓度样品的吸收谱形状基本一样, 未出现畸变结构, 说明能级间相对位置没有变化, 单个离子的格位情况基本没有变化。

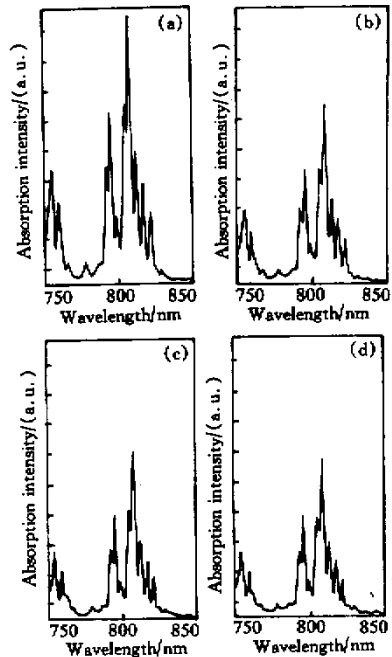


Fig. 2 The absorption spectra of Nd:YAG crystals with different Nd ion concentration. (a) $x = 0.030$; (b) $x = 0.022$; (c) $x = 0.020$; (d) $x = 0.018$

Table 1. The absorption coefficient and fluorescence lifetime of Nd:YAG crystals with different Nd ion concentration

sample No.	mole fraction of Nd ion concentration	absorption coefficient at 808 nm/cm ⁻¹	fluorecence lifetime/μs
1	0.030	20.7	150
2	0.022	13.9	170
3	0.020	12.9	200
4	0.018	11.8	210

从表 1 还可以看出, 随 Nd 离子掺杂浓度的增加, Nd:YAG 晶体的荧光寿命变短。这主要是因为

随浓度增加, Nd 离子间的相互作用加强, 这种相互作用有多种形式, 其中对浓度猝灭起主要作用的是 $^4F_{3/2} \rightarrow ^4I_{15/2}$ 和 $^4I_{9/2} \rightarrow ^4I_{15/2}$ 跃迁间的交叉弛豫和近场电偶极能量共振转移, 根据 Danielmeyer 的理论^[7], Nd:YAG 晶体有八对适于产生交叉弛豫的能级存在, 所以极易形成交叉弛豫, 消耗激活离子, 导致猝灭, 这时的荧光寿命与浓度的平方成反比。能量共振转移同样消耗激活能, 其转移几率正比于浓度的平方, 所以随 Nd 掺杂浓度增加, 共振转移几率增大, 荧光寿命下降。

另外, 由于 Nd 离子与 Y 离子的半径失配造成的晶格畸变而导致的浓度猝灭也随浓度的增加而增强。但是从测量结果可以看出, 即使是 $x = 0.030$ 掺杂的 Nd:YAG 晶体, 其荧光寿命 $150 \mu\text{s}$ 仍然高于 Nd:YVO₄ 晶体的荧光寿命。

激光性能的测试结果如图 3 所示, 其中 Nd:YAG 晶体的摩尔分数为 $x = 0.020$, 斜率效率为 29.7%, 激光抽运阈值为 20 mW, 在抽运功率为 480 mW 时, 输出功率 140 mW。Nd:YVO₄ 晶体的掺杂摩尔分数为 $x = 0.030$, 斜率效率为 34.7%, 激光抽运阈值为 4 mW, 当抽运功率为 500 mW 时, 最大输出功率为 167 mW。

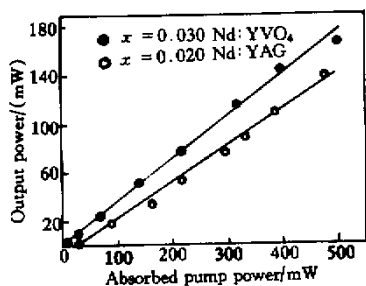


Fig. 3 Laser output power versus absorbed pump power of $x = 0.020$ Nd:YAG and $x = 0.030$ Nd:YVO₄ crystals pumped by Ti:sapphire laser

我们还作了掺杂摩尔分数为 $x = 0.025$ 的 Nd:YAG 晶体的激光性能测试, 采用同样的平凹腔, $T_{1.06 \mu\text{m}} = 3\%$, 晶体一端镀 808 nm 的增透膜和 1.06 μm 的高反膜, 直接作为平面腔镜, 另一端镀 1.06 μm 的增透膜和 808 nm 的高反膜, 测得斜率效率为 32%。

对比以上结果, 估计 $x = 0.030$ 的 Nd:YAG 晶体的抽运阈值会高于 Nd:YVO₄, 但其激光输出的斜率效率与相同浓度的 Nd:YVO₄ 晶体相当。

结论 高掺杂浓度 Nd:YAG 晶体吸收光谱、上能级荧光寿命和激光性能的测量表明, 我们采用自创的温梯法, 成功地生长出高光学质量、高掺杂摩尔分数的 Nd:YAG 激光晶体, 最高掺杂的摩尔分数为 0.030, 吸收系数高达 20.7 cm^{-1} , 光谱形状未出现畸变。高浓度的 Nd:YAG 晶体存在浓度猝灭, 但仍有较高的荧光寿命。用钛宝石激光器抽运, 对比了高浓度 Nd:YAG 和 Nd:YVO₄ 晶体的激光性能, 表明高浓度 Nd:YAG 晶体在激光性能上相当于 Nd:YVO₄ 晶体, 但 Nd:YAG 晶体具有很好的机械性能和激光性能, 生长容易, 是应用最广泛的晶体之一。高浓度掺杂 Nd:YAG 晶体的生长成功, 为它的应用开创了更广阔的前景。

感谢张影华、刘玉璞、黄国松老师在晶体激光性能和荧光寿命的测试工作中所给予的帮助。

参 考 文 献

- [1] 栉田孝司. 固体レーザー材料の特性. 应用物理, 1969, **38**(10):985~994
- [2] Zayhowski J J, Dill III C. Diode-pumped passively Q-switched picosecond microchip lasers. *Opt. Lett.*, 1994, **19**(18):1427~1429
- [3] Shimony Y, Burshtein Z, Baranga A B-A *et al.*. Repetitive Q-switching of a CW Nd:YAG laser using Cr⁴⁺:YAG saturable absorbers. *IEEE J. Quant. Electron.*, 1996, **QE-32**(2):305~310
- [4] Freitag I, Henking R, Tiinnermann A *et al.*. Quasi-three-level room-temperature Nd:YAG ring laser with high single-frequency output-power at 946 nm. *Opt. Lett.*, 1996, **20**(24):2499~2501
- [5] Clarkson W A, Koch R, Hanna D C *et al.*. Room-temperature diode-bar-pumped Nd:YAG laser at 946 nm. *Opt. Lett.*, 1996, **21**(10):737~739
- [6] Zhou Yongzong. Growth of high quality large Nd:YAG crystals by temperature gradient technique (TGT). *J. Crystal Growth*, 1986, **78**(1):31~35
- [7] Danielmeyer H G, Blatte M. Fluorescence quenching in Nd:YAG. *Appl. Phys.*, 1973, **1**(6):269~274

Spectra and Laser Characteristics of High-Doped Nd:YAG Laser Crystals

Mao Yanli¹⁾²⁾ Qiu Hongwei¹⁾ Xu Jun¹⁾ Deng Peizhen¹⁾ Gan Fuxi¹⁾

(1), *Shanghai Institute of Fine Mechanics, The Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800*)
(2), *Department of Physics, He'nan University, Kaifeng 475001*

(Received 15 March 2000 ; revised 29 June 2000)

Abstract : The absorption spectra and fluorescence lifetime of high-quality and highly doped Nd:YAG crystals, grown by the temperature gradient technique in our laboratory were measured. The main absorption peak of Nd:YAG crystal was 808 nm. The absorption coefficient of Nd:YAG crystal with 0.030 mole fraction of Nd ion concentration was up to 20.7 cm^{-1} . The fluorescence lifetime was found to be $150 \mu\text{s}$, and concentration quenching was shown. The laser characteristics comparative experiments of highly doped Nd:YAG and Nd:YVO₄ crystals pumped by a Ti:sapphire laser were demonstrated. The mole fractions of concentration of Nd doped YAG crystals were 0.020 and 0.025, and the laser slope efficiency was 29.7% and 32% respectively. The mole fraction of concentration of Nd doped YVO₄ was 0.030, and its laser slope efficiency was 34.7%. It suggested that high-doped Nd:YAG crystal was comparable in laser characteristics to high-doped Nd:YVO₄ crystal.

Key words : high-doped Nd:YAG; absorption spectra; fluorescence lifetime; temperature gradient technique(TGT)