

LD 泵浦的 1.3at.%Er³⁺: CaF₂ 中红外高功率固体激光器 (特邀)

宗梦雨¹, 张 振², 刘晶晶¹, 刘 杰¹, 苏良碧²

- (1. 山东师范大学物理与电子科学学院 山东省光场调控及应用中心
山东省光学与光子器件技术重点实验室, 山东 济南 250358;
2. 中国科学院上海硅酸盐研究所, 上海 201899)

摘要: 3 μm 波段激光是高精度外科手术的 ideal 光源, 也可作为长波中红外光参量振荡器的有效泵浦源。LD 直接泵浦 Er³⁺ 掺杂晶体是获得 2.7~3 μm 波段中红外激光的有效技术途径, 具有成本低、结构紧凑简单等优点。由于 Er³⁺ 2.8 μm 激光下能级阻塞问题, 一般需要高浓度掺杂, 但高浓度掺杂易引起强烈的光吸收, 增强了激光晶体的热效应, 从而阻碍了激光功率的提升。低声子能量的氟化钙晶体特有的萤石型结构使得三价稀土离子极易形成“团簇”, 将低浓度 Er³⁺ 掺杂到氟化钙晶体中即可获得高效率的中红外激光增益介质。笔者课题组使用温度梯度法成功生长了低浓度掺杂 1.3at.%Er³⁺: CaF₂ 激光晶体, 利用 LD 直接泵浦获得了 2.2 W 的中红外激光输出, 这是目前利用 LD 端面泵浦同类晶体中的最高中红外激光输出功率。同时, 文中还对上转换泵浦方式下该晶体的 2.8 μm 激光特性进行了研究。实验结果表明, 低浓度掺杂的 1.3at.%Er³⁺: CaF₂ 晶体是一类具有产业化前景的中红外激光材料, 有望推动长波中红外激光器向着结构紧凑、成本低的方向发展。

关键词: 中红外固体激光; Er³⁺ 低浓度掺杂 CaF₂ 晶体; 高功率激光; LD 泵浦; 上转换泵浦
中图分类号: O432.1+2 **文献标志码:** A **DOI:** 10.3788/IRLA20210336

LD pumped high-power mid-infrared solid state lasers based on 1.3at.%Er³⁺: CaF₂ crystal (Invited)

Zong Mengyu¹, Zhang Zhen², Liu Jingjing¹, Liu Jie¹, Su Liangbi²

- (1. Shandong Provincial Engineering and Technical Center of Light Manipulations & Shandong Provincial, Key Laboratory of Optics and Photonic Device, School of Physics and Electronics, Shandong Normal University, Jinan 250358, China;
2. Shanghai Institute of Ceramics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201899, China)

Abstract: 3 μm wavelength laser is an ideal laser source for high precision laser surgery, and can be an effective pump source for mid-infrared optical parametric oscillations. The mid-infrared laser in 2.7-3 μm band can be obtained by laser diode (LD) directly pumping Er³⁺-doped crystal, which has advantages of low cost, compact and simple structure. The Er³⁺ doping concentration is generally high to solve the laser self-termination. However, high concentration causes strong light absorption and up-conversion, which could enhance the thermal effect of laser crystal and hinder the improvement of laser output power. The characteristic fluorite structure of low phonon energy CaF₂ crystals makes trivalent rare earth ions easily form “clusters”. A laser gain medium with high thermal conductivity can be obtained by lightly doping Er³⁺ into the CaF₂ crystal. In this work, high quality 1.3at.%Er³⁺:

收稿日期: 2021-05-26; 修订日期: 2021-07-21

基金项目: 国家自然科学基金 (11974220, 61635012, 61925508)

作者简介: 宗梦雨, 女, 博士生, 主要从事中红外固体激光器方面的研究。

导师简介: 刘杰, 女, 教授, 博士生导师, 主要从事全固态激光技术以及非线性光学方面的研究。

CaF₂ laser crystals were successfully grown by temperature gradient method, diode pumped continuous-wave Er³⁺: CaF₂ laser with maximum output power of 2.2 W was achieved, this is the highest output power in the LD end pumped lightly doping crystals. Furthermore, we demonstrated the 2.8 μm laser continuous-wave performance pumped by 1 532 nm LD. The research of the LD direct pumped high power laser is expected to promote the development of the long-wavelength mid-infrared laser towards the direction of compact structure and low cost.

Key words: mid-infrared solid-state laser; lightly Er³⁺-doped CaF₂ crystal; high-power laser; LD pump; up-conversion pump

0 引言

近年来,中红外激光被广泛应用于军事、医疗、大气遥感、分子光谱学、环境检测、空间通信等领域^[1-2]。其中 3 μm 波段位于水分子的强吸收峰附近,在眼科医疗、牙科医疗和外科微创手术中有重要的应用,是高精度激光手术的理想光源,被誉为口腔医学的“黄金激光”,是目前激光领域的研究热点。此外,3 μm 波段的激光器还可以作为中红外光参量振荡器和光参量放大装置的高效泵浦源,在科学研究、大气监测等方面有着重要的应用^[3-5]。

基于 Er³⁺掺杂的激光增益介质可在 Er³⁺:⁴I_{11/2} 和 Er³⁺:⁴I_{13/2} 态之间辐射跃迁产生 2.7~3 μm 波长范围的激光。掺 Er³⁺晶体的强吸收带位于 970 nm 附近,因此它们可以被成熟的激光二极管直接抽运^[6-9],具有成本低、结构紧凑等优点。对于 Er³⁺掺杂的 3 μm 波段激光器来说,传统的抽运机制中激光的上能级 Er³⁺:⁴I_{11/2} 寿命远低于下能级 Er³⁺:⁴I_{13/2},因此存在激光阈值高、效率低的问题,在声子能量高的氧化物基质中还会出现激光自终止现象^[10]。为了解决自终止现象,一般使用 Er³⁺高浓度掺杂的激光晶体来增强离子

间能量传递,提高激光性能。然而,高浓度掺杂会降低晶体的导热系数,导致晶体的热负荷增大,严重的热透镜效应导致激光光束质量的退化,从而阻碍了激光功率的提升^[11-13]。

对于稀土离子掺杂的氟化钙和氟化锶晶体来说,其特有的“萤石型”结构使得晶体掺杂三价稀土离子后极易形成“团簇”,使得稀土离子间距缩小,从而发生离子间强烈的能量传递^[14-16],在中红外波段恰好能利用这种“团簇”效应,在 Er³⁺掺杂浓度较低的条件也能实现 3 μm 波段激光的高效输出,这样就有效的解决了 Er³⁺ 2.8 μm 激光“自终止”问题,同时也克服高浓度掺杂 Er³⁺引发的热效应问题。

文中充分利用激光晶体“低掺杂、高效率”的优势,成功生长了掺杂浓度仅为 1.3at.% 的 Er³⁺:CaF₂ 晶体,首次使用 973 nm LD 直接泵浦,得到了低阈值 0.075 W、高斜效率 32.3% 的 2.2 W 连续激光。表 1 列举了目前已经报道的 LD 直接泵浦不同掺杂浓度的掺 Er³⁺氟化物晶体的最佳连续激光输出。从表 1 可以看出,文中的实验结果是目前已报道的 LD 端面泵浦同类晶体中连续激光输出功率的最高值。另外,文

表 1 LD 泵浦掺 Er 氟化物晶体近 3 μm 连续激光性能汇总

Tab.1 Summary of near 3 μm CW laser performance of LD pumped Er-doped fluoride crystals

Crystal	Concentration/at. %	LD/nm	Output power/W	Year
Er:BaY ₂ F ₈	20	967 end pump	0.25	1996[17]
Er:YLF ₄	15	970 end pump	1.1	1996[18]
Er:YLF ₄	15	980 side pump	4	2003[19]
Er:SrF ₂	5	970 end pump	2	2006[20]
Er:CaF ₂	4/8	974 end pump	0.282/0.112	2016[7]
Er:SrF ₂	3	969 end pump	1.3	2018[21]
Er:CaF ₂ -SrF ₂	3	980 end pump	1.41	2019[22]
Er:CaF ₂	1.3	973 end pump	2.2	Our work

中还进一步研究了上转换泵浦方式下 1.3at.%Er³⁺:CaF₂ 晶体的连续激光性能,利用 1532 nm LD 泵浦实现了 331 mW 的连续激光输出。实验结果表明,即使在 Er³⁺掺杂浓度较低的情况下,Er³⁺:CaF₂ 晶体内部仍然存在强烈的能量传递以及合作上转换过程,使得激光上能级集居粒子数增加,且低浓度的 Er³⁺:CaF₂ 晶体易于生长,其较低的声子能量可以大大降低非辐射跃迁的几率^[23-24],从而提高激光效率,是一种具有广阔产业化前景的激光材料。

1 实验设计与实验装置

使用温度梯度法成功生长了掺杂浓度为 1.3at.% 的 Er³⁺:CaF₂ 晶体。晶体尺寸 3 mm×3 mm×12 mm,两端面抛光处理,未镀膜。晶体在室温下的吸收系数和荧光谱线如图 1 所示。根据 ABCD 矩阵光线传播原理,通过模拟和计算,设计了结构紧凑的直线型凹平谐振腔,物理腔长约为 22 mm,晶体后端面振荡光斑半径约为 110 μm。LD 泵浦源的中心波长为 973 nm,最大输出功率 30 W,光纤芯径 105 μm,数值孔径 0.22。图 2

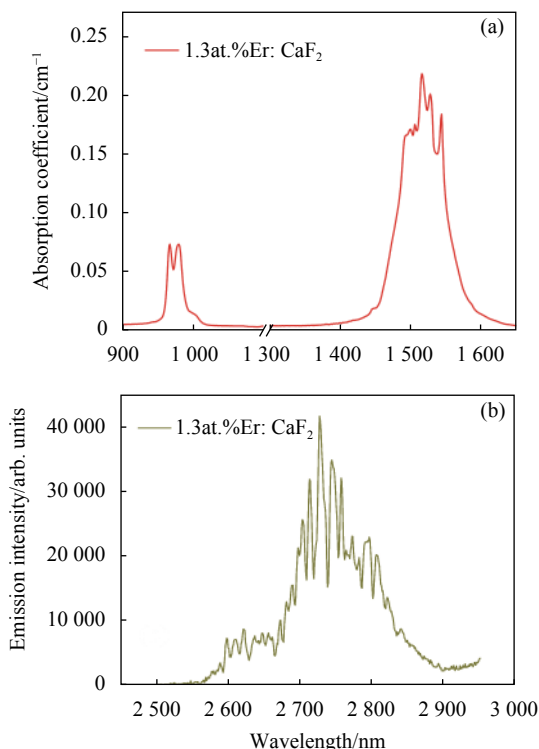


图 1 1.3at.%Er³⁺:CaF₂ 晶体在室温下的吸收系数 (a)、荧光谱线 (b)
Fig.1 (a) Room temperature absorption coefficient and (b) fluorescence spectrum of 1.3at.% Er³⁺:CaF₂

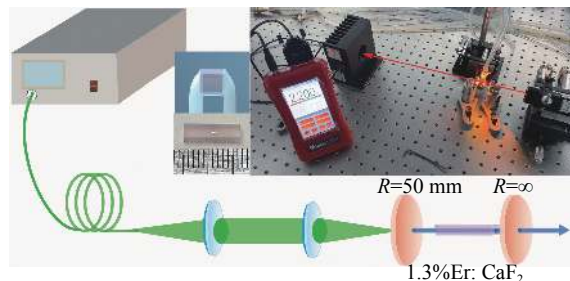


图 2 激光装置示意图及实物图

Fig.2 Schematic and experiment set up of the laser

给出了激光谐振腔示意图,插图为实验装置及晶体实物图。在实物图中用红色箭头标出了泵浦光的传输方向,泵浦光通过耦合比 1 : 2 的聚焦系统注入到增益介质中。从晶体实物图可以看出晶体生长均匀,两端面较光滑。输入镜是曲率半径为 50 mm 的平凹透镜,镀有 972~980 nm 的抗反射膜和 2.7~3.0 μm 的高反射膜。用铝箔包裹晶体置于设定温度为 12 °C 的紫铜水冷夹具上。输出镜采用 2.7~2.95 μm 波段透过率分别为 1%,2% 和 3% 的平镜。

为了研究在上转换泵浦下该晶体的激光性能,采用中心波长为 1532 nm、光纤芯径为 200 μm、光纤数值孔径为 0.22 的光纤耦合 LD 作为泵浦源,研究了在这种泵浦方式下 1.3at.%Er³⁺:CaF₂ 晶体的连续激光特性。泵浦光通过耦合比为 1 : 1 的耦合聚焦系统传输到 1.3at.%Er³⁺:CaF₂ 晶体中,谐振腔其余设计与前者相同。

2 实验结果与讨论

在使用 973 nm LD 作为泵浦源时,晶体对抽运光的吸收效率为 45%,直接抽运 Er³⁺:CaF₂ 得到的连续激光输出功率与晶体吸收泵浦功率之间的关系如图 3(a) 所示。当输出镜的透过率为 2% 时,获得了 2.2 W 的最高功率输出,相应的激光斜效率为 28.3%。当使用透过率为 3% 的输出镜时,激光输出功率为 2.14 W,得到了最大的激光斜效率为 32.3%,理论上的激光最大斜效率为 35.5%。通过对晶体进行镀膜,提高晶体生长质量有望获得更高的激光效率。图 3(b) 描述的是光谱分析仪 (SOL-MS3504i) 测得的连续激光光谱特性,使用透过率为 2% 的输出镜时,激光中心波长为 2744.4 nm,相应的光谱半高全宽为 0.93 nm。图 4 给出了使用刀口法测量的光束质量因子, M²_x 为

1.636, M_y^2 为 1.946。插图为使用光束质量分析仪 (NS2-Pyro/9/5-PRO, Photon) 测得的二维光强分布图。从图中可以看出激光处在 TEM₀₀ 模式, 但光束质量还有待提高, 原因可能是晶体加工过程中两端面存在轻微楔角, 多次反射影响光束质量。由于目前的实验条件还无法测量或估算晶体端面损耗大小, 因此在后续的研究中我们注重于不断优化晶体质量, 希望能够

最大程度的减小晶体质量带来的实验误差, 提高激光效率。

图 5 为 Er³⁺能级示意图及主要跃迁过程。用 N 代表能级粒子数, W 代表受激辐射概率以及受激吸收概率。当使用 973 nm LD 泵浦 Er³⁺:CaF₂ 产生 2.8 μm 激光时, 激光能级对应为三能级系统, 忽略自发辐射和无辐射跃迁, 各能级粒子数随时间变化的方程为:

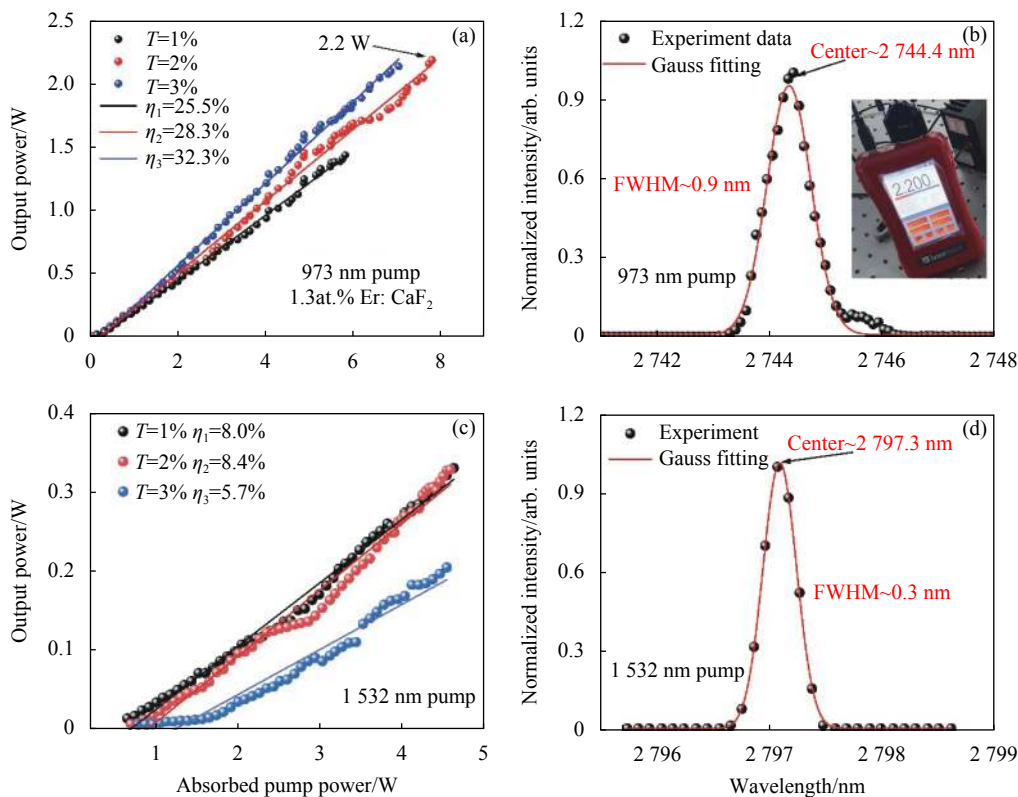


图 3 (a) 973 nm LD 泵浦下输出功率, (b) 973 nm LD 泵浦下激光光谱。 (c) 1532 nm LD 泵浦下输出功率, (d) 1532 nm LD 泵浦下激光光谱
Fig.3 (a) Output power pumped by 973 nm LD, (b) laser spectrum pumped by 973 nm LD. (c) Output power pumped by 1532 nm LD, (d) laser spectrum pumped by 1532 nm LD

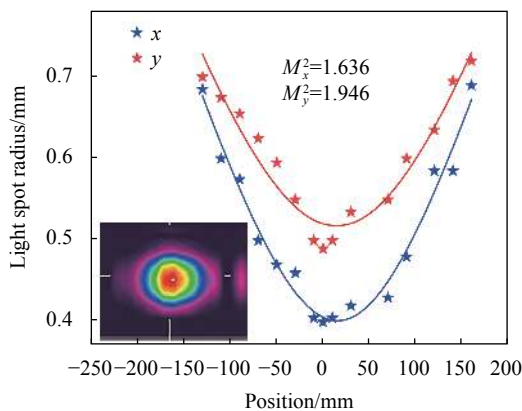


图 4 M² 因子, 插图为光斑二维光强分布

Fig.4 M² values, insert: two-dimensional light intensity distribution

$$\frac{dN_3}{dt} = N_1 W_{13} - N_3 W_{32} \quad (1)$$

$$\frac{dN_2}{dt} = N_3 W_{32} \quad (2)$$

$$N_1 + N_2 + N_3 = N, \quad (3)$$

由于 Er³⁺独特的能级结构, Er³⁺-Er³⁺之间可发生能量上转换过程。E₂ 能级粒子数减少的同时释放的能量被相邻的粒子吸收并向上跃迁到 ⁴I_{9/2} 能级, ⁴I_{9/2} 能级的粒子通过多声子弛豫到 E₃ 能级, 使得产生跃迁的 2.8 μm 上能级 E₃ 寿命高于下能级 E₂, 从而有助于增加激光效率。由于存在多声子交叉弛豫过

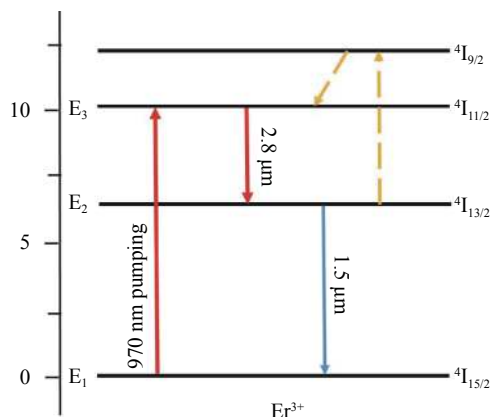


图 5 Er³⁺能级示意图及主要跃迁过程

Fig.5 Energy level diagram of Er³⁺ ion

程、合作上转换, 激发态吸收等多种机制的相互作用, 不能用简单的三能级系统来表示。对于 Er³⁺掺杂的中红外激光器, V. Lupei 等人在 1996 年给出了修正后的激光速率方程, 方程中分析了合作上转换以及离子激发态吸收对于激光输出的影响。结果表明, 3 μm 激光下能级离子间的合作上转换是驱动激光产生的重要过程^[25]。

使用中心波长为 1532 nm 的 LD 作为泵浦源来研究 Er³⁺:CaF₂ 晶体在上转换泵浦方式下的激光特性。Er³⁺:CaF₂ 晶体对 1532 nm 的泵浦光的吸收效率约为 86%, 远高于 973 nm LD 泵浦下的晶体吸收效率。由于较高的泵浦光吸收, 使得晶体内部热透镜效应加剧, 限制了激光输出功率的提升。使用不同透过率输出镜得到的 Er³⁺:CaF₂ 晶体上转换泵浦连续激光输出见图 3(c)。当选用透过率为 1% 的输出镜时, 得到了最高为 331 mW 的连续输出功率, 相应的激光斜效率为 8.0%。2017 年, 笔者所在课题组通过上转换得到的中红外波段连续激光最大功率为 203 mW^[26]。与之相比, 实验中使用了 Er³⁺掺杂浓度更低, 更容易生长的 1.3at.%Er³⁺:CaF₂ 晶体, 同时对谐振腔进行了优化, 使得连续激光输出功率提高一百多毫瓦。考虑到激光晶体对 1532 nm 泵浦光吸收较高, 为了保护晶体以便进行后续激光特性实验研究, 没有继续增加抽运功率, 晶体吸收未饱和。当使用透过率为 2% 的输出镜时, 得到了最大的激光斜效率为 8.4%。在激光功率较高且稳定的状态下我们测得的激光连续光谱如图 3(d) 所示, 激光发射中心波长约为 2797.25 nm, 半高全宽约为 0.32 nm。

3 结论

文中成功生长了掺杂浓度仅为 1.3at.% 的 Er:CaF₂ 晶体, 并对其在不同抽运波长下的激光特性进行了研究和分析。据笔者所知, 这是首次使用 973 nm LD 直接泵浦 1.3%Er³⁺:CaF₂ 晶体实现了最大功率为 2.2 W 的连续激光输出, 同时研究了该晶体在上转换泵浦方式下的连续激光特性。对于稀土离子掺杂的氟化物晶体来说, 三价稀土离子掺杂浓度越低, 晶体吸收效率相应降低, 晶体热导率以及损伤阈值越高, 更容易得到 LD 直接泵浦的高功率激光。适当降低晶体掺杂浓度、对晶体端面镀膜来减小泵浦光损耗、进一步提高晶体质量以及优化谐振腔设计, 有望实现更高效率的 2.8 μm 中红外激光输出。

参考文献:

- [1] Sanamyan T, Kanskar M, Xiao Y, et al. High power diode-pumped 2.7-μm Er³⁺: Y₂O₃ laser with nearly quantum defect-limited efficiency [J]. *Opt Express*, 2011, 19(55): A1082-A1087.
- [2] Faucher D, Bernier M, Androz G, et al. 20 W passively cooled single-mode all-fiber laser at 2.8 μm [J]. *Opt Lett*, 2011, 36(7): 1104-1106.
- [3] Liu Y A, Yan X S, Wu J W, et al. On-chip erbium-doped lithium niobate microcavity laser [J]. *Sci China Phys Mech*, 2020, 64(3): 234262.
- [4] Uehara H, Tokita S, Kawanaka J, et al. A passively Q-switched compact Er: Lu₂O₃ ceramics laser at 2.8 μm with a graphene saturable absorber [J]. *Appl Phys Express*, 2019, 12: 022002.
- [5] Su X C, Zhang B T, Wang Y R, et al. Broadband rhenium disulfide optical modulator for solid-state lasers [J]. *Photonics Res*, 2018, 6(6): 498-505.
- [6] Qin Z P, Xie G Q, Zhang J, et al. Continuous-wave and passively Q-switched Er: Y₂O₃ ceramic laser at 2.7 μm [J]. *Int J Opt*, 2018, 2018: 3153614.
- [7] Ma W W, Su L B, Xu X D, et al. Effect of erbium concentration on spectroscopic properties and 2.79 μm laser performance of Er: CaF₂ crystals [J]. *Opt Mater Express*, 2016, 6(2): 409-415.
- [8] Ziolk C, Ernst H, Will G F, et al. High-repetition-rate, high-average-power, diode-pumped 2.94-μm Er: YAG laser [J]. *Opt Lett*, 2001, 26(9): 599-601.
- [9] Aydin Y O, Fortin V, Maes F, et al. Diode-pumped mid-infrared fiber laser with 50% slope efficiency [J]. *Optica*, 2017, 4(2):

- 235-238.
- [10] Chen J K, Sun D L, Luo J Q, et al. Spectroscopic properties and diode end-pumped 2.79 μm laser performance of Er, Pr: GYSGG crystal [J]. *Opt Express*, 2013, 21(20): 23425-23432.
- [11] Zhang Z, Ma F K, Guo X S, et al. Mid-infrared spectral properties and laser performance of Er^{3+} doped $\text{Ca}_x\text{Sr}_{1-x}\text{F}_2$ single crystals [J]. *Opt Mater Express*, 2018, 8(12): 3820-3828.
- [12] Fan M Q, Li T, Zhao J, et al. Continuous wave and ReS_2 passively Q-switched Er : SrF_2 laser at $\sim 3 \mu\text{m}$ [J]. *Opt Lett*, 2018, 43(8): 1726-1729.
- [13] Dinerman B J, Moulton P F. 3- μm cw laser operations in erbium-doped YSGG, GGG, and YAG [J]. *Opt Lett*, 1994, 19(15): 1143-1145.
- [14] Liu J J, Zhang C, Zhang Z, et al. 1886-nm mode-locked and wavelength tunable Tm-doped CaF_2 lasers [J]. *Opt Lett*, 2019, 44(1): 134-137.
- [15] Zu Y Q, Guo X S, Liu J J, et al. Passively Q-switched operation of a novel Tm^{3+} , La^{3+} co-doped CaF_2 single crystal near 2 μm [J]. *Infrared Phys and Techn*, 2019, 102: 103010.
- [16] Hao Q Q, Pang S Y, Liu J, et al. Tunable and passively Q-switched laser operation of Nd, Lu: CaF_2 disordered crystal [J]. *Appl Opt*, 2018, 57(22): 6491-6495.
- [17] Pollnau M, Lüthy W, Weber H P, et al. Investigation of diode-pumped 2.8- μm laser performance in Er: BaY_2F_8 [J]. *Opt Lett*, 1996, 21(1): 48-50.
- [18] Jensen T, Diening A, Huber G, et al. Investigation of diode-pumped 2.8- μm Er: LiYF_4 lasers with various doping levels [J]. *Opt Lett*, 1996, 21(8): 585-587.
- [19] Dergachev A, Moulton P F. Tunable CW Er: YLF diode-pumped laser [C]//Advanced Solid-State Photonics, 2003, 83: ASSP.2003.3.
- [20] Basiev T T, Orlovskii Y V, Polyachenkova M V, et al. Continuously tunable cw lasing near 2.75 μm in diode-pumped Er^{3+} : SrF_2 and Er^{3+} : CaF_2 crystals [J]. *Quantum Electron*, 2006, 36(7): 591-594.
- [21] Švejkar R, Šulc J, Jelínková H, et al. Diode-pumped Er: SrF_2 laser tunable at 2.7 μm [J]. *Opt Mater Express*, 2018, 8(4): 1025-1030.
- [22] Liu J J, Zhang F, Zhang Z, et al. Watt-level continuous-wave and high-repetition-rate mid-infrared lasers based on a Er^{3+} -doped $\text{Ca}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{F}_2$ crystal [J]. *Appl Phys Express*, 2019, 12(11): 115505.
- [23] Zong M Y, Yang X J, Liu J J, et al. Er: CaF_2 single-crystal fiber Q-switched laser with diode pumping in the mid-infrared region [J]. *J Lumin*, 2020, 227: 117519.
- [24] Zhang Z, Wu Q H, Wang Y X, et al. Efficient 2.76 μm continuous-wave laser in extremely lightly Er-doped CaF_2 single-crystal fiber [J]. *Laser Phys Lett*, 2020, 17(8): 085801.
- [25] Lupei V, Georgescu S. Erbium 3- μm laser as an upconversion system [J]. *Opt Eng*, 1996, 35(5): 1265-1272.
- [26] Liu J J, Liu J, Yang J M, et al. Efficient mid-infrared laser under different excitation pump wavelengths [J]. *Opt Lett*, 2017, 42(19): 3908-3911.