

Nd:Y₂O₃ 透明陶瓷⁴F_{3/2}-⁴I_{11/2} 跃迁光谱及高效激光输出

楼森豪¹, 黄运米^{1*}, 王 俊², 段延敏¹, 唐定远², 朱海永¹

- (1. 温州大学 电气与电子工程学院 温州市微纳光电器件重点实验室, 浙江 温州 325035;
2. 江苏师范大学 江苏省先进激光材料与器件重点实验室, 江苏 徐州 221116)

摘要: 报道了采用真空烧结法结合热等静压技术制备的 Nd:Y₂O₃ 透明陶瓷的荧光光谱特性及相关激光输出。通过与 Nd:YAG 透明陶瓷的荧光光谱对比, 表明 Nd:Y₂O₃ 透明陶瓷的⁴F_{3/2}-⁴I_{11/2} 跃迁光谱存在着多个增益相当的谱线, 这更有利于实现同时双波长段激光振荡; 不同斯塔克子跃迁光谱的离散特性有利于通过腔镜镀膜控制不同波长损耗, 获得丰富的 1.0~1.1 μm 波段激光。利用简单的平平两镜腔结构完成进一步的实验, 通过选择的输出镜片镀膜获得了输出功率 3.62 W、转换效率 40.4% 的 1074.6 nm 和 1078.8 nm 的双波长输出和输出功率 1.7 W、转换效率 19.4% 的 1130.3 nm 波长输出。

关键词: Nd:Y₂O₃; 激光透明陶瓷; 双波长; 1130 nm 激光

中图分类号: O436 文献标志码: A DOI: 10.3788/IRLA20210601

⁴F_{3/2}-⁴I_{11/2} transition spectra and high efficient laser operation of Nd:Y₂O₃ transparent ceramic

Lou Senhao¹, Huang Yunmi^{1*}, Wang Jun², Duan Yanmin¹, Tang Dingyuan², Zhu Haiyong¹

- (1. Wenzhou Key Laboratory of Micro-Nano Optoelectronic Devices, College of Electrical and Electronic Engineering, Wenzhou University, Wenzhou 325035, China;
2. Key Laboratory for Advanced Laser Materials and Devices of Jiangsu Province, Jiangsu Normal University, Xuzhou 221116, China)

Abstract: The fluorescence spectra and laser operation of Nd:Y₂O₃ transparent ceramic fabricated by the vacuum sintering plus hot isostatic pressing method were reported. By comparing with the fluorescence spectra of Nd:YAG transparent ceramics, it is shown that the ⁴F_{3/2}-⁴I_{11/2} transition spectra of Nd:Y₂O₃ transparent ceramic have multiple spectral lines with similar gain, which is more beneficial to realize simultaneous dual-wavelength laser oscillation. The spectra discrete characteristic among different Stark transitions of Nd:Y₂O₃ transparent ceramic was beneficial to obtain abundant wavelength lasers around 1.0-1.1 μm through the cavity mirror coating to control the loss of different wavelengths. Furthermore, a simple plane-plane cavity was used, and the output coupler with reasonable coating design was selected for different wavelength laser output. The maximum output power of 3.62 W and the conversion efficiency of 40.4% were obtained for the 1074.6 nm and 1078.8 nm dual-wavelength laser output. The output power of 1.7 W and the conversion efficiency of 19.4% were achieved for 1130.3 nm laser output.

Key words: Nd:Y₂O₃; laser transparent ceramics; dual-wavelength; 1130 nm laser

收稿日期:2021-08-24; 修订日期:2021-10-27

基金项目:国家自然科学基金(62075167); 浙江省自然科学基金(LY19F050012); 浙江省教育厅科研项目(Y202044305)

作者简介:楼森豪,男,硕士生,主要从事新型固体激光器方面的研究。

导师简介:朱海永,男,教授,博士,主要从事激光及非线性光学方面的研究。

通讯作者:黄运米,男,讲师,硕士,主要从事光电材料性能测试及表征方面的研究。

0 引言

透明陶瓷作为激光基质材料具备成本低、易生长、损伤阈值高等优良特性而被人们广泛关注^[1-2]。1964年, Dy:CaF₂ 陶瓷首次被证明了可作为激光增益介质^[3]。激光陶瓷的制作工艺经过这半个世纪的发展, 已能制作优良的激光基质材料, 特别是其中的 Nd:YAG 陶瓷, 可达到与晶体相媲美的光学质量和激光效率^[4-5]。近年来, 倍半氧化物(如 Sc₂O₃、Y₂O₃、Lu₂O₃ 等) 由于具有较高的热导率、比 YAG 基质更低的声子能量等优良特性, 逐渐成为研究热点^[6-8]。2001年, Lu 等首次报道了基于 Nd:Y₂O₃ 陶瓷的激光研究, 并在 742 mW 的抽运功率下, 得到最大 160 mW 平均输出功率、32% 斜效率的 1075 nm 和 1079 nm 的双波长输出^[9]。近些年, 针对 Nd:Y₂O₃ 的制作工艺和性能研究有较多报道^[10-13], 相关激光输出功率和效率普遍偏低。最近, 江苏省先进激光材料与器件重点实验室采用真空烧结法结合热等静压技术制作的 Y₂O₃ 透明陶瓷获得较好的光学质量和激光特性^[14]。2018年, 笔者所在课题组采用该 Nd:Y₂O₃ 陶瓷作为激光增益介质, 在 7.0 W 的吸收抽运功率下, 获得了最高输出功率为 3.01 W、波长为 1075 nm 和 1079 nm 双波长激光输出, 斜效率达 49.6%^[15]。1075、1079 nm 的双波长激光频率间隔在太赫兹, 所以在差频产生太赫兹、差分吸收激光雷达等领域具有潜在的应用^[16-17]。

目前, 针对 Nd:Y₂O₃ 透明陶瓷的激光均以 1075、1079 nm 的双波长输出为主^[9-10,14], 而其 ⁴F_{3/2}-⁴I_{11/2} 能级跃迁对应丰富的子跃迁, 相关谱线与常见的 Nd:YAG 有很大差异, 进一步对其光谱和激光研究可丰富固体激光波长。针对 Nd:YAG 材料中 ⁴F_{3/2}-⁴I_{11/2} 能级跃迁对应的弱谱线激光研究较多。2012年, 上海交通大学的 Liu 等采用侧面抽运 Nd:YAG 陶瓷, 通过腔内插入标准具选择性地实现了 1123 nm 激光输出, 在 2 000 W 的功率下得到了 509 W 的激光输出, 光光转换效率达 25.5%^[18]。2013年, 张华年等采用 LD 端面抽运 Nd:YAG 陶瓷, 通过腔镜精确镀膜, 在 16.1 W 的抽运功率下, 获得 3.43 W 的 1116 nm 和 1112 nm 双波长输出, 斜效率达 23.7%^[19]。2013年, 笔者团队利用自主制作的 Nd:YAG 透明陶瓷, 实现了 12.5 W 的 1123 nm 激光输出^[20]。1.1 μm 波段的激光

在环境监测、激光频率转换等方面都有重要用途, 比如可用于远程大气水汽浓度监测, 作为钕离子激光器能级上转换的抽运源^[21], 进一步结合倍频可产生黄光激光输出^[22-23]。

文中对采用真空烧结法结合热等静压技术制作的 Nd:Y₂O₃ 透明陶瓷的 ⁴F_{3/2}-⁴I_{11/2} 跃迁光谱和激光特性进行了研究。对比了 Nd:Y₂O₃ 与 Nd:YAG 陶瓷的光谱差异, 并进一步通过简单的平平两镜腔结构, 结合输出镜片镀膜选择, 对 1.08 μm 和 1.13 μm 激光进行实验研究。

1 ⁴F_{3/2}-⁴I_{11/2} 能级跃迁光谱分析

Nd:Y₂O₃ 具有特殊的晶体结构 (C2 及 C3i 两个格位), 导致其荧光光谱与 Nd:YAG 及其他钕离子掺杂增益介质材料存在较大差异。相关的荧光光谱已有较多报道。图 1 给出了文中实验所用 Nd:Y₂O₃ 与 Nd:YAG 透明陶瓷 ⁴F_{3/2}-⁴I_{11/2} 能级跃迁对应的荧光光谱。该 ⁴F_{3/2}-⁴I_{11/2} 能级间跃迁由于斯塔克能级分裂产生有 12 个斯塔克分裂子跃迁, 分别由 ⁴F_{3/2} 能级分裂的 R₁ 和 R₂ 两个子能级向 ⁴I_{11/2} 分裂的 Y₁-Y₆ 六个子能级跃迁产生。参考文献 [8] 中给出了室温下 Nd:Y₂O₃ 透明陶瓷 ⁴F_{3/2} 与 ⁴I_{11/2} 的精细分裂能级参数及跃迁关系。由于有些子跃迁光子能量比较相近, 导致测量光谱上的重叠, 所以在光谱图中能看到 9 个强度不均的波峰。对比两个陶瓷的荧光光谱可知, 类似常见的钕离子掺杂的工作介质, 两种陶瓷的最强增益跃迁均来自 ⁴F_{3/2}-⁴I_{11/2} 能级跃迁, 对应的荧光波长在 1.0~1.1 μm 波段。但 Nd:YAG 的跃迁发射谱线比较聚集, 而且各谱线增益差异较大; 而 Nd:Y₂O₃ 的谱线则相对比较疏散, 与 Nd:YAG 发射最强增益谱线在 1064 nm 不同的是, Nd:Y₂O₃ 两条有强度相当的最强谱线在 1075 nm 和 1079 nm, 分别由 R₂-Y₁ 和 R₂-Y₂ 斯塔克分裂子跃迁产生, 在未加任何波长选择元件情况下, 容易实现该双波长激光振荡。目前关于 Nd:Y₂O₃ 陶瓷激光器的报道主要局限在这两个子跃迁对应的激光输出。此外, R₁-Y₆ 子跃迁的增益强度仅次于 1075 nm 和 1079 nm 两个最强跃迁, 对应的谱线在 1106 nm; R₁-Y₁ 和 R₁-Y₂ 两个子跃迁也产生具有相当增益强度的 1052 nm 和 1056 nm 谱线。理论上结合标准具、光栅等波长选择元件可实现所有谱线的激光输出, 但以上相关谱线与

最强增益谱线在光谱上差异在 20 nm 左右, 有望通过简单的腔镜镀膜实现增益控制实现对应波长的激光输出, 杜绝额外的插入损耗。

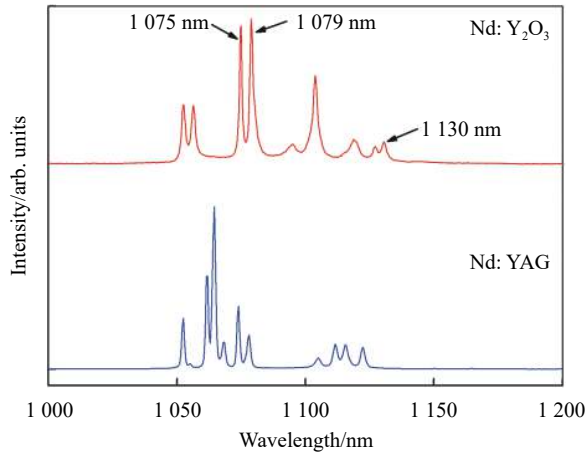


图 1 室温下 Nd:Y₂O₃ 陶瓷和 Nd:YAG 陶瓷的⁴F_{3/2}-⁴I_{11/2} 能级跃迁对应的荧光光谱

Fig.1 Fluorescence spectra of ⁴F_{3/2}-⁴I_{11/2} energy transitions for both Nd:Y₂O₃ and Nd:YAG ceramics at room temperature

除了增益较强的谱线, 对增益较小的谱线也有利于丰富固体激光波长, 比如 Nd:Y₂O₃ 的 R₂-Y₆ 跃迁产生的 1130 nm 谱线与 1074.6 nm 和 1078.8 nm 两条谱线相距最远, 与 Nd:YAG 的 1123 nm 跃迁波长类似, 也具备通过腔镜镀膜控制产生激光的条件, 而且该波长的倍频可获得 565 nm 波长的黄光激光。

2 实验装置介绍

在对⁴F_{3/2}-⁴I_{11/2} 能级跃迁光谱分析基础上, 笔者结合实验室现有激光腔镜, 对 Nd:Y₂O₃ 陶瓷的 1075 nm 和 1079 nm 两个最强谱线和 1130 nm 弱谱线激光进行研究。实验中采用半导体激光端面抽运的紧凑型平平两镜腔结构, 装置示意图如图 2 所示。由江苏省先进激光材料与器件重点实验室基于真空烧结法结合热等静压技术制作的 Nd:Y₂O₃ 陶瓷, 晶粒尺寸均匀, 没有发现粒间孔和粒内孔, 具有优良的光学均匀性, 3 mm 厚的该样品对 1 000~2000 nm 波段的透过率均在 81% 以上。实验中, 加工了尺寸为 3 mm×3 mm×5 mm, 5 mm 长的透光方向端面平行抛光未镀膜的 Nd:Y₂O₃ 陶瓷作为增益介质。将该陶瓷用铝箔包裹, 并置于用循环水控温的冷铜块内, 使其表面温度保持

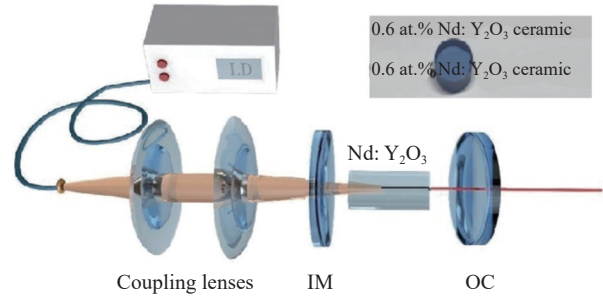


图 2 LD 端面抽运 Nd:Y₂O₃ 陶瓷激光实验装置图 (IM: 抽运光输入腔镜, OC: 激光输出腔镜)

Fig.2 Experimental diagram of the diode end-pumped Nd:Y₂O₃ ceramic laser setup (IM: pump incident mirror, OC: laser output mirror)

在 20 °C。

抽运源为输出波长随功率变化在 803~808 nm 范围内的光纤耦合半导体激光器, 其光纤数值孔径为 0.22, 芯径为 200 μm。抽运光通过一对耦合透镜 (两透镜焦距分别为 50 mm 和 80 mm) 会聚成一个束腰直径为 320 μm 的光斑, 入射到 Nd:Y₂O₃ 透明陶瓷中。由抽运光输入镜 IM 和激光输出镜 OC 组成简单紧凑的平平腔结构, 腔长约 15 mm。输入镜 IM 镀有对 808 nm 的抽运光高透并且对 1000~1200 nm 高反的膜系。输出镜 OC 分别采用对 1.08 μm 和 1.13 μm 波段激光部分透过的镜片, 实现 1075 nm 和 1079 nm 激光输出和 1130 nm 的激光输出。采用型号 PM310D (Thorlabs 公司) 的光功率计对激光输出功率进行测量。为减少抽运光对激光输出功率测量结果的影响, 实验中拉长功率计与输出镜 OC 的距离, 保证剩余抽运光功率扩散后对激光输出功率的影响忽略不计。通过对入射抽运功率和激光运行下的剩余抽运功率测量计算得到吸收抽运功率。

3 实验结果分析

前期采用透过率 10%~50% 之间的不同输出镜片对 Nd:Y₂O₃ 陶瓷的激光性能进行了研究^[15], 表明采用对 1.08 μm 透过率为 10% 左右的输出镜片获得最高的转换效率。因此, 文中实验中直接采用该 10% 透过率镜片对 5 mm 长 Nd:Y₂O₃ 陶瓷 1075 nm 和 1079 nm 激光进行研究, 得到的输出功率随吸收抽运功率的关系如图 3 所示。在 9.0 W 的吸收抽运功率下, 获得了最高输出功率 3.64 W、转换效率达 40.4% 的激光输

出,拟合得到斜效率为 45.2%。结果表明转换效率和斜效率略低于参考文献 [15] 中采用 3 mm 长陶瓷的 43% 和 49.6%,但更长的增益介质,获得更多吸收,从而获得更高的输出功率,激光阈值约为 0.8 W 左右。使用光栅单色仪 (ZOLIX,型号 Omini-λ500) 扫描输出激光光谱,测得阈值附近的激光为 1074.6 nm 单波长。随着抽运功率的增加,1078.8 nm 激光起振。在最高输出功率时对应的 1074.6 nm 和 1078.8 nm 的双波长激光光谱如图 3 所示。由于两个波长激光光谱上较为靠近,未能对不同波长功率进行分别测量,只给出双波长总输出功率曲线,但从光谱图中可以看出 1074.6 nm 的谱线强度略高于 1078.8 nm,这是由于 1074.6 nm 波长的激光阈值比 1078.8 nm 低,但随着吸收抽运功率的进一步提高,1078.8 nm 的谱线强度能达到与 1074.6 nm 谱线相当。

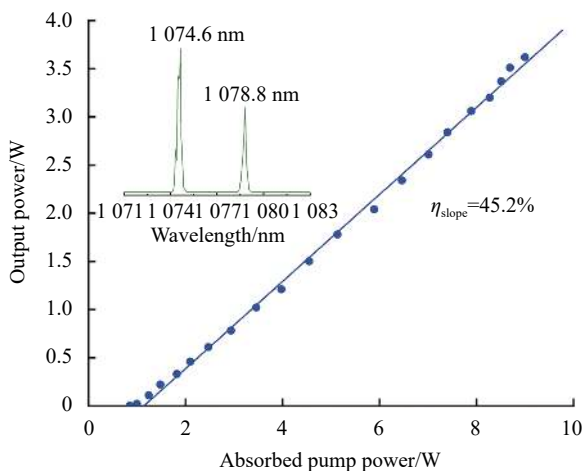


图 3 Nd:Y₂O₃ 陶瓷 1.08 μm 波段激光谱线和输出功率曲线

Fig.3 Laser spectra and output power curve of Nd:Y₂O₃ ceramic lasing around 1.08 μm waveband

为进一步实现 1130 nm 波长激光输出,输出镜片 OC 改用对 1.13 μm 透过率 2%,同时对 1.08 μm 透过率约为 90% 的镜片,以抑制 1075 nm 和 1079 nm 两条最强谱线在腔内形成振荡。该镜片的透过率参数如图 4 所示。对装置调整优化后测量其输出功率和激光谱线结果如图 5 所示。光栅单色仪从 1000 nm 测到 1150 nm,未测到最强增益谱线对应的 1075 nm 和 1079 nm 激光,获得了 1130 nm 单波长激光输出,中心波长 1130.3 nm,线宽 0.29 nm。激光阈值对应的吸

收抽运功率为 1.2 W。在 8.86 W 的吸收抽运功率下,实现了最高功率 1.72 W 激光输出,斜效率 23.0%,转换效率 19.4%。

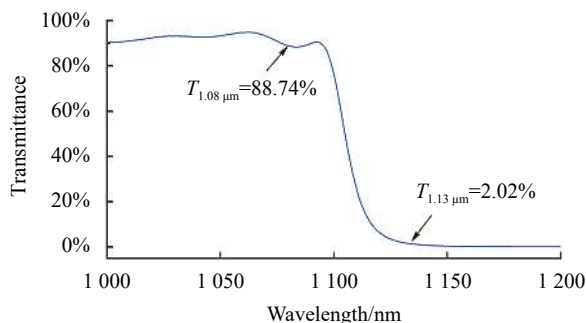


图 4 实现 Nd:Y₂O₃ 陶瓷 1130 nm 波长激光的输出腔镜透过率曲线图

Fig.4 Transmittance curve of the output mirror for 1130 nm laser emission in the Nd:Y₂O₃ ceramic laser setup

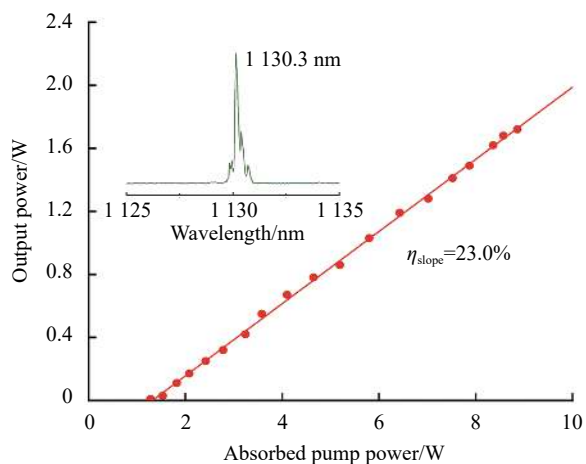


图 5 Nd:Y₂O₃ 陶瓷 1.13 μm 波段激光谱线和输出功率曲线

Fig.5 Laser spectra and output power curve of Nd:Y₂O₃ ceramic lasing around 1.13 μm waveband

4 结 论

文中对采用真空烧结法结合热等静压技术制备的 Nd:Y₂O₃ 透明陶瓷的荧光光谱特性及相关激光输出特性进行了研究分析。对比了 Nd:Y₂O₃ 与 Nd:YAG 透明陶瓷的⁴F_{3/2}-⁴I_{11/2} 跃迁光谱,表明 Nd:Y₂O₃ 陶瓷荧光光谱存在着多个增益相当的谱线,更有利于实现双波长激光振荡,而且不同子跃迁光谱上的离散特性更有利于通过控制简单腔镜镀膜获得丰富的 1.0~1.1 μm 波段激光。进一步通过简单的平平两镜腔结构,结合输出镜片镀膜选择,对 1.08 μm 和 1.13 μm 波

段激光进行实验。在 9.0 W 的吸收抽运功率下, 获得了输出功率 3.62 W、转换效率 40.4% 的 1074.6 nm 和 1078.8 nm 双波长激光输出; 在 8.86 W 吸收抽运功率下, 获得了输出功率 1.7 W、转换效率 19.4% 的 1130.3 nm 连续波单波长输出。实验证明了 Nd:Y₂O₃ 透明陶瓷是一种优良的激光增益介质, 此外进一步通过腔镜镀膜的设计, 可望获得 1052 nm 和 1056 nm 双波长和 1106 nm 等新型波长的激光输出。

参考文献:

- [1] Xiao Z H, Yu S J, Li Y M, et al. Materials development and potential applications of transparent ceramics: A review [J]. *Materials Science and Engineering:R:Reports*, 2020, 139: 100518.
- [2] Chen C, Xu Q, Sun R, et al. Q-switched mode-locked all-solid-state Tm: LuAG ceramic laser [J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2021, 50(4): 20190563. (in Chinese)
- [3] Hatch S E, Parsons W F, Weagley R J, et al. Hot-pressed polycrystalline CaF₂: Dy²⁺ laser [J]. *Applied Physics Letters*, 1964, 5: 153-154.
- [4] Zhu H Y, Xu C W, Zhang J, et al. Highly efficient continuous-wave Nd: YAG ceramic lasers at 946nm [J]. *Laser Physics Letters*, 2013, 10: 075802.
- [5] Lin Y Y, Li J T, Zhu H Y, et al. Multiple weak-line laser operation from Nd: YAG ⁴F_{3/2}-⁴I_{13/2} transition in ceramic and crystal [J]. *Acta Physica Sinica*, 2015, 64(20): 204204. (in Chinese)
- [6] Serivalsatit K, Kokuoz B, Kennedy M, et al. Synthesis, processing, and properties of submicrometer-grained highly transparent yttria ceramics [J]. *Journal of the American Ceramic Society*, 2010, 93: 1320-1325.
- [7] Wang J, Ma J, Zhang J, et al. Yb:Y₂O₃ transparent ceramics processed with hot isostatic pressing [J]. *Optical Materials*, 2017, 71: 117-120.
- [8] Yin D L, Ma J, Liu P, et al. Submicron-grained Yb:Lu₂O₃ transparent ceramics with lasing quality [J]. *Journal of the American Ceramic Society*, 2019, 102: 2587-2592.
- [9] Lu J R, Lu J H, Murai T, et al. Nd³⁺:Y₂O₃ Ceramic Laser [J]. *Japanese Journal of Applied Physics*, 2001, 40(2): L1277-L1279.
- [10] Hyeon M O, Ha N K, Young J P, et al. Optical properties and laser performance of Nd: Y₂O₃ ceramics with fine-grained microstructure [J]. *Journal of the European Ceramic Society*, 2021, 41(7): 4419-4423.
- [11] Zhang L, Pan W. Structural and thermo-mechanical properties of Nd: Y₂O₃ transparent ceramics [J]. *Journal of the American Ceramic Society*, 2015, 98(10): 3326-3331.
- [12] Zhang X R, Fan G F, Wang X H, et al. Effects of sintering parameters and Nd doping on the microwave dielectric properties of Y₂O₃ ceramics [J]. *Ceramics International*, 2016, 42(7): 7962-7967.
- [13] Gan L, Park Y J, Kim H, et al. Fabrication and microstructure of hot pressed laminated Y₂O₃/Nd:Y₂O₃/Y₂O₃ transparent ceramics [J]. *Journal of the European Ceramic Society*, 2016, 36(3): 911-916.
- [14] Yin D L, Wang J, Liu P, et al. Fabrication and microstructural characterizations of lasing grade Nd:Y₂O₃ ceramics [J]. *Journal of the American Ceramic Society*, 2019, 102: 7462-7468.
- [15] Zhu H Y, Zhang Y C, Duan Y M, et al. Highly efficient CW operation of a diode pumped Nd:Y₂O₃ ceramic laser [J]. *Optical Materials Express*, 2018, 8: 3518-3525.
- [16] Xu C W, Yang C D, Zhang H, et al. Efficient laser operation based on transparent Nd:Lu₂O₃ ceramic fabricated by spark plasma sintering [J]. *Optics Express*, 2016, 24(18): 20571-20579.
- [17] Walsh B M, McMahon J M, Edwards W C, et al. Spectroscopic characterization of Nd:Y₂O₃: application toward a differential absorption lidar system for remote sensing of ozone [J]. *Journal of the Optical Society of American B*, 2002, 19(12): 2893-2903.
- [18] Liu W, Zhang D, Zeng Y, et al. Diode-side-pumped 1123 nm Nd:YAG ceramic laser [J]. *Ceramics International*, 2012, 38(8): 6969-6973.
- [19] Zhang H N, Chen X H, Wang Q P, et al. Continuous-wave dual-wavelength Nd:YAG ceramic laser at 1112 and 1116 nm [J]. *Chinese Physics Letters*, 2013, 30(10): 4202.
- [20] Pan X, Zhu H Y, Duan Y M, et al. Diode-end-pumped Nd:YAG ceramic and crystal operation at 1123 nm [J]. *Journal of Russian Laser Research*, 2013, 34(5): 458-462.
- [21] Paschotta R, Moore N, Clarkson W A, et al. 230 mW of blue light from a thulium doped upconversion fiber laser [J]. *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronit's*, 1997, 4: 1100-1102.
- [22] Zhou J T, Huang J X, Li L. Nd:GGG laser at 1110 nm and frequency-doubled laser at 555 nm [J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2015, 44(3): 867-871. (in Chinese)
- [23] Telford W, Murga, Hawley M, et al. DPSS yellow-green 561 nm lasers for improved fluorochrome detection by flow cytometry [J]. *Cytometry Part A*, 2005, 68: 36-44.