

不同组分的钒酸盐混晶 $\text{Yb}_t : \text{Y}_x \text{Gd}_{1-t-x} \text{VO}_4$ 光谱 与激光性质的比较研究*

刘均海^{1)†} 韩文娟¹⁾ 张怀金²⁾ 王继扬²⁾ Xavier Mateos³⁾ Valentin Petrov⁴⁾

1) (青岛大学物理科学学院, 青岛 266071)

2) (山东大学晶体材料国家重点实验室, 济南 250100)

3) (Física i Cristal·lografia de Materials, Universitat Rovira i Virgili, C/Marcel·li Domingo, s/n,
E-43007 Tarragona, Spain)

4) (Max-Born-Institute for Nonlinear Optics and Ultrafast Spectroscopy, 2A Max-Born-Str., D-12489 Berlin, Germany)

(2010年1月13日收到; 2010年3月22日收到修改稿)

研究了三种掺 Yb 钒酸盐混晶 $\text{Yb}_{0.005} : \text{Y}_{0.298} \text{Gd}_{0.697} \text{VO}_4$, $\text{Yb}_{0.007} : \text{Y}_{0.407} \text{Gd}_{0.586} \text{VO}_4$ 和 $\text{Yb}_{0.009} : \text{Y}_{0.575} \text{Gd}_{0.416} \text{VO}_4$ 的室温偏振吸收谱和发射谱. 结果表明, 最强的吸收和发射相应于 π 偏振, 位于波长 985 nm; 随组分不同, 最大吸收截面 $\sigma_{\text{abs}} = 4.8\text{--}8.5 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$, 吸收带宽 9.5—9.9 nm; 最大受激发射截面 $\sigma_{\text{em}} = 5.8\text{--}10.3 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$. 利用高亮度半导体激光器纵向抽运实现了室温下的连续波激光运转. 研究发现, 不同混晶的激光振荡行为存在很大差异: 在谐振腔输出耦合透过率 $T = 2\%$ 条件下, $\text{Yb}_{0.005} : \text{Y}_{0.298} \text{Gd}_{0.697} \text{VO}_4$ 和 $\text{Yb}_{0.009} : \text{Y}_{0.575} \text{Gd}_{0.416} \text{VO}_4$ 的激光振荡随抽运功率降低而出现 σ, π 偏振态的共存和转变; 而 $\text{Yb}_{0.007} : \text{Y}_{0.407} \text{Gd}_{0.586} \text{VO}_4$ 的激光振荡则保持 π 偏振态不变. 在 $T = 5\%$ 情形, $\text{Yb}_{0.009} : \text{Y}_{0.575} \text{Gd}_{0.416} \text{VO}_4$ 的激光振荡为单纯的 σ 偏振; 而 $\text{Yb}_{0.005} : \text{Y}_{0.298} \text{Gd}_{0.697} \text{VO}_4$ 所产生的激光振荡随抽运功率下降仍出现类似的偏振态变化行为.

关键词: 掺 Yb 钒酸盐混晶, 吸收谱和发射谱, 激光振荡, 偏振态

PACS: 42.55.Rz

1. 引言

固体激光材料通常是由三价稀土离子 Nd^{3+} , Yb^{3+} , Er^{3+} , Tm^{3+} , Ho^{3+} 等以及过渡金属离子 Cr^{3+} , Ti^{3+} 等掺杂在基质中形成的. 从结构上区分, 基质材料包括晶体、玻璃和陶瓷, 而应用最广泛的为各种无机电介质晶体. 在晶态基质材料中, 钒酸盐晶体 TVO_4 ($T = \text{Y}, \text{Gd}, \text{Lu}$) 占有特别重要的地位. 对于技术上最为成熟的 Nd 离子激光器, 钒酸盐晶体已成为继 YAG ($\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$) 之后最重要的基质材料; 而在中小功率全固态激光器中, 掺 Nd 的钒酸盐晶体 (特别是 $\text{Nd} : \text{YVO}_4$) 已成为首选激光介质.

对 Yb 离子固体激光材料和相关器件的研究兴起于上世纪 90 年代末期, 是随着高亮度 InGaAs 半导体激光器技术的发展而出现的. 而钒酸盐晶体作

为 Yb 离子的基质材料受到关注则开始于 2004 年^[1-3]. 与其他 Yb 激光介质相比, 掺 Yb 钒酸盐晶体的突出优点是具有大的吸收截面和受激发射截面, 以及大的吸收和发射带宽. 此外, 这类晶体的热导率为 $5.1\text{--}8.1 \text{ Wm}^{-1} \text{K}^{-1}$ ^[1,4], 高于目前已有的大多数 Yb 晶体如 $\text{Yb} : \text{KT}(\text{WO}_4)_2$ ($T = \text{Y}, \text{Gd}, \text{Lu}$), $\text{Yb} : \text{NaT}(\text{WO}_4)_2$ ($T = \text{La}, \text{Y}, \text{Gd}, \text{Lu}$), $\text{Yb} : \text{TCa}_4\text{O}(\text{BO}_3)_3$ ($T = \text{Y}, \text{Gd}$), 以及 $\text{Yb} : \text{YAl}_3(\text{BO}_3)_4$ 等, 这使得掺 Yb 钒酸盐晶体在高功率条件下的应用更具潜力. 目前, 所有三种钒酸盐晶体 ($\text{Yb} : \text{YVO}_4$, $\text{Yb} : \text{GdVO}_4$, $\text{Yb} : \text{LuVO}_4$) 在纵向抽运条件下所产生的连续波输出功率已达 5—10 W 的水平^[5]. 另外值得指出的是, 掺 Yb 钒酸盐晶体的连续波激光振荡存在光学双稳态行为^[6-8], 这进一步增加了钒酸盐晶体作为 Yb 离子基质材料的重要性. 迄今为止, 除了 $\text{Tm}, \text{Ho} : \text{YLF}$ 晶体之外, 掺 Yb 钒酸盐晶体是唯一能

* 国家自然科学基金 (批准号: 60978023), 欧盟项目 (批准号: DT-CRYS, NMP3-CT-2003-505580) 资助的课题.

† E-mail: junhai_liu@hotmail.com

够产生双稳态激光振荡的一类固体激光介质.

钒酸盐晶体具有锆英石 ($ZrSiO_4$) 结构, 属于四方晶系, 其空间群和点群分别为 $I4_1/amd$ 和 $4/mmm$. 这类晶体的熔点很接近, 约在 1800°C 附近. 其中 YVO_4 和 $GdVO_4$ 的熔点相差仅为 30°C , 可由提拉法 (Czochralski 法) 生长具有单一晶格结构的任意组分的连续固溶体混晶 $Y_xGd_{1-x}VO_4$ ($0 < x < 1$). 由于 Y 和 Gd 离子在原来单一的 Y (或 Gd) 离子格位上的无规分布, 混晶在结构上存在一定程度的无序, 如出现平移对称性的破缺; 而替代 Y 或 Gd 离子的三价稀土活性离子, 其局域晶体场环境也将发生某种程度的改变. 这些都会引起混晶中激光活性离子的光谱性质和激光振荡特性的变化. 对 $Nd:Y_xGd_{1-x}VO_4$ 的研究表明, 与单一晶体相比, 混晶产生的激光脉冲能量得到显著增强^[9,10]. 由于 Yb 离子的电子-晶格相互作用比 Nd 离子的相应作用强得多, 因而探索钒酸盐混晶中 Yb 离子的激光振荡性质具有重要意义.

本文测量和计算了三种组分的掺 Yb 钒酸盐混晶的偏振吸收谱和反射谱, 并进行了仔细的分析和比较; 在相同的抽运条件下利用同一构型的谐振腔研究和比较了这些混晶的连续波激光性质, 结果表明不同组分的混晶所产生的激光振荡行为存在很大差异.

2. 实验描述

掺 Yb 钒酸盐混晶由提拉法生长, 其生长工艺与 $Yb:YVO_4$ 和 $Yb:GdVO_4$ 的生长工艺类似. 按照由 X 射线荧光分析法确定的 Yb 浓度以及 Y, Gd 的组分, 所生长的三种混晶 $Yb_t:Y_xGd_{1-t-x}VO_4$ 可表示为 $Yb_{0.005}:Y_{0.298}Gd_{0.697}VO_4$ (Yb: $YGdVO_4$ -1), $Yb_{0.007}:$

$Y_{0.407}Gd_{0.586}VO_4$ (Yb: $YGdVO_4$ -2) 和 $Yb_{0.009}:Y_{0.575}Gd_{0.416}VO_4$ (Yb: $YGdVO_4$ -3). 实验所用的晶体样品沿 a 轴切割, 样品截面为 $3.3\text{ mm} \times 3.3\text{ mm}$, 两个端面抛光, 未镀增透膜. 测量吸收谱所用的样品长度有两种, 分别为 1.6 mm 和 6 mm ; 激光实验所用的晶体长度为 2 mm .

产生激光振荡所用的谐振腔由一个平面镜和一个曲率半径为 50 mm 的凹面输出镜构成. 平面镜所镀介质膜在 $1015\text{--}1230\text{ nm}$ 的波长范围内全反 (HR, $>99.8\%$), 而在 $880\text{--}990\text{ nm}$ 范围内高透 ($T >97\%$). 输出镜透过率有两种, $T = 2\%$, 5% (相对于波长 $\sim 1030\text{ nm}$). 实验中调整谐振腔长度使之工作于接近半共心状态, 激光晶体在谐振腔内紧靠平面镜放置. 晶体利用循环水冷却, 其表面温度维持在 12°C . 所用抽运源为一个高亮度光纤耦合半导体激光器, 光纤芯径为 $200\ \mu\text{m}$, 数值孔径 $NA = 0.2$, 其发射波长随输出功率不同在 $974\text{--}985\text{ nm}$ 范围内变化, 发射带宽 $3\text{--}5\text{ nm}$. 抽运源所发出的非偏振光由一个聚焦系统聚焦后, 通过平面镜耦合到激光晶体中, 光斑半径约为 $100\ \mu\text{m}$.

3. 结果与讨论

3.1. 光谱性质及其比较

钒酸盐晶体是四方晶系的单轴晶体, 由 $E//c$ (π 偏振) 和 $E \perp c$ (σ 偏振) 两个偏振谱即可完全表征这类晶体的光谱性质. 图 1 示出了室温下测量得到的三种混晶的 π 偏振吸收谱 (a) 和 σ 偏振吸收谱 (b), 其中纵坐标为吸收截面 σ_{abs} , 是由测量得到的晶体吸收系数 $\alpha(\lambda)$ 和 Yb 离子浓度 N , 根据 $\sigma_{\text{abs}}(\lambda) = \alpha(\lambda)/N$ 计算得到. 利用 σ_{abs} 代替 α 表示吸收

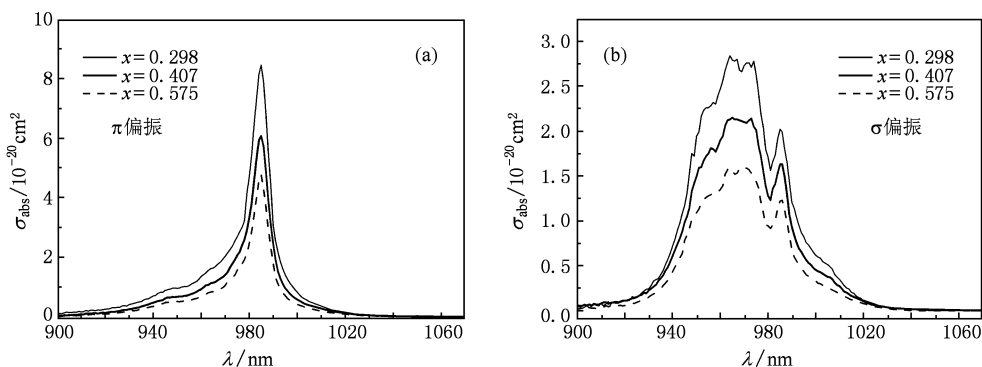


图 1 室温下测量得到的三种 $Yb_t:Y_xGd_{1-t-x}VO_4$ 混晶的偏振吸收谱

谱,可以更准确地描述晶体中吸收过程的内在本质,因为它排除了 Yb 离子浓度的因素.

由图 1 可以看出,无论是 π 偏振还是 σ 偏振,三种混晶吸收谱的轮廓,即 σ_{abs} 随波长 λ 的变化在很大程度上是相似的,这是它们具有相同晶体结构的自然结果.然而,不同组分混晶的吸收谱的相对强度,或 σ_{abs} 的大小,却存在很大差别.反映了混晶中 Y, Gd 离子数之比 N_Y/N_{Gd} 所具有的重要影响.

图 1 所示的结果显示, π 偏振的吸收谱仅包含一个吸收带,吸收峰位于 $\lambda = 985 \text{ nm}$.这是钽酸盐晶体中 Yb 离子的零声子谱线(zero-phonon line),相应于由 $^2F_{7/2}$ 能态的最低 Stark 能级(基态)到 $^2F_{5/2}$ 能态的最低 Stark 能级的跃迁.该跃迁是单纯的电子跃迁,不涉及声子的产生. π 偏振吸收谱所呈现的这种单一吸收带特点,与 Yb:YVO₄, Yb:GdVO₄, 以及 Yb:LuVO₄ 的吸收谱相同^[2,3,11],是钽酸盐晶体中 Yb 离子吸收谱所具有的共同特征.由图 1(a)所示的 π 偏振吸收谱,得到三种混晶的最大吸收截面 $\sigma_{\text{abs}}(\pi) = 8.5 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$ (Yb:YGdVO₄-1), $6.1 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$ (Yb:YGdVO₄-2), $4.8 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$ (Yb:YGdVO₄-3); 而吸收带宽(FWHM) $\Delta\lambda_{\text{abs}}(\pi) = 9.8 \text{ nm}$ (Yb:YGdVO₄-1), 9.9 nm (Yb:YGdVO₄-2), 9.5 nm (Yb:YGdVO₄-3).因此,随着混晶中 Y 和 Gd 离子数之比 N_Y/N_{Gd} 增加,吸收截面显著减小,而吸收带宽则无明显变化.

图 1 所给出的结果还清楚地表明,与 π 偏振的吸收谱相比较, σ 偏振的吸收谱几乎具有完全不同的轮廓特征,反映出晶体光谱所具有的强烈各向异性.在 σ 偏振吸收谱中,位于 $\lambda = 985 \text{ nm}$ 的零声子谱线已不代表主要吸收峰.主要吸收带移向短波一侧,且不存在明显的峰值位置.对于三种混晶,该主要吸收带宽度(FWHM)达 $\sim 35 \text{ nm}$.

σ 偏振吸收谱的上述特征,与单一晶体 Yb:YVO₄ 和 Yb:GdVO₄ 的情形相似^[2,11].然而,仔细的比较发现,不同混晶之间,混晶与 Yb:YVO₄, Yb:GdVO₄ 之间,特别是三种单一晶体 Yb:YVO₄, Yb:GdVO₄, 以及 Yb:LuVO₄ 之间^[2,3,11],在 σ 偏振吸收谱的结构细节方面存在一个明显差别:其 985 nm 的零声子谱线与短波一侧的主要吸收带的相对峰值强度随晶体而异.因此,可以引入一个无量纲参数 ξ_{abs} ,作为表征不同钽酸盐晶体中 Yb 离子 σ 偏振吸收谱的一个特征量. ξ_{abs} 定义为零声子谱线的吸收截面与短波一侧主要吸收带的峰值吸收截面的比值.

对于三种混晶,由图 1(b)得到该特征量的数值分别为 $\xi_{\text{abs}} = 0.71$ (Yb:YGdVO₄-1), 0.76 (Yb:YGdVO₄-2), 0.79 (Yb:YGdVO₄-3),介于两种单一晶体 Yb:YVO₄ ($\xi_{\text{abs}} = 0.88$) 和 Yb:GdVO₄ ($\xi_{\text{abs}} = 0.64$) 的相应值之间.这说明混晶 Yb:Y_xGd_{1-x}VO₄ 的吸收谱兼有两种单一晶体 Yb:YVO₄ 和 Yb:GdVO₄ 的吸收谱特征.

在 σ 偏振吸收谱中,位于短波一侧的主要吸收带的积分强度远大于零声子谱线的强度.这表明对于 σ 偏振光,由 Yb 离子基态($^2F_{7/2}$ 能态的最低 Stark 能级)到 $^2F_{5/2}$ 能态的两个较高 Stark 能级(在晶体场作用下 $^2F_{5/2}$ 分裂为 3 个 Stark 能级)的吸收跃迁强度大于零声子谱线相应的跃迁强度.另一方面,这一连续吸收带的宽度(FWHM)达到 $\sim 35 \text{ nm}$,且无法分辨出分立的吸收峰(谱线).显然,仅由这两个跃迁在晶体中受到的均匀加宽和非均匀加宽难以形成如此宽的连续吸收带(比较钽酸盐晶体中 Nd 离子的吸收谱,位于 $\sim 0.81 \mu\text{m}$ 的吸收带宽度 $\sim 2 \text{ nm}$).这意味着,除了单纯的电子跃迁之外,这一吸收带也包括振动-电子跃迁(vibrational-electronic transition, 也即 vibronic transition)^[12].这与 Yb 离子具有很强的电子-声子相互作用有关^[13].同样,在 π 偏振吸收谱的中央吸收峰的短波一侧,存在一个强度变化缓慢的吸收边带,也起源于晶体的振动-电子跃迁.

将图 1 所示混晶的吸收谱与室温下 Yb:YVO₄ 和 Yb:GdVO₄ 的吸收谱相比较^[2,11],可以发现混晶中 Yb 离子的光谱因结构无序所导致的谱线非均匀加宽效应在表观上并不显著.对于 π 偏振,混晶的吸收带宽 $\Delta\lambda_{\text{abs}}(\pi) = 9.5\text{—}9.9 \text{ nm}$,仅比单一晶体情形(Yb:YVO₄ ($\sim 9.0 \text{ nm}$), Yb:GdVO₄ ($\sim 8.0 \text{ nm}$)) 增大约 5%—25%;而对于 σ 偏振,混晶的吸收带宽与单一晶体相比几乎没有可觉察的变化.这一点与 Nd 离子的情形完全不同.钽酸盐混晶中的谱线非均匀加宽作用使 Nd 离子的光谱变宽,发射截面减小,导致显著的激光脉冲能量增强^[9,10].

钽酸盐混晶中 Yb 离子的谱线非均匀加宽效应不明显,原因正是在于光谱的振动-电子跃迁性质,它掩盖了非均匀加宽作用所引起的 Yb 离子在混晶和单一晶体中的谱线差异.在 10 K 温度下测量得到的低温吸收谱表明, Yb:Gd_{0.64}Y_{0.36}VO₄ 的 π 偏振吸收谱宽度约为 Yb:YVO₄ 的 3 倍,而且低温吸收谱的宽度仅为室温吸收带宽的 $\sim 1/10$ (Yb:Gd_{0.64}Y_{0.36}VO₄) 和 $\sim 1/30$ (Yb:YVO₄)^[14].在这样低的温度下,

光谱由仅受到非均匀加宽作用的单纯电子跃迁所产生,而不存在声子参与的振动-电子跃迁以及晶格振动引起的谱线均匀加宽.

Yb 离子只有两个电子能态: $^2F_{7/2}$ (基态) 和 $^2F_{5/2}$ (激发态). 在基质中由于受到晶体场作用, 这两个能态分别分裂为 4 个和 3 个 Stark 能级. 由于光的吸收和发射过程都发生在这两个能态的各 Stark 能级之间, 因此吸收谱和发射谱存在很大程度的重叠. 这样, 实验测量得到的荧光谱, 将因晶体样品再吸收的影响而与真实的发射谱之间产生很大偏差, 无法由荧光谱出发计算受激发射截面 σ_{em} . 因此, 晶体中 Yb 离子的发射谱, 或 σ_{em} 随波长 λ 的变化关系, 通常是在测量得到的吸收谱的基础上, 根据相关法 (reciprocity method)^[15], 或根据改进的相关法 (modified reciprocity method) 计算得到^[2].

图 2 是计算得到的三种混晶的 π 偏振发射谱 (a) 和 σ 偏振发射谱 (b). 与吸收谱情形相同, 由于晶体的各向异性, 两种偏振发射谱无论是在零声子谱线 (位于 ~ 985 nm) 强度还是在光谱结构方面都显示出很大差异. π 偏振发射谱由单一的发射带构成, 发射峰位于 985 nm, 相应于零声子跃迁. 因此, 发射峰实际上几乎与吸收峰相重叠 (与图 1 (a) 比较). 与 π 偏振吸收谱不同的是, 在发射谱中位于发射峰的长波一侧, 出现一个强度缓慢下降的发射边带, 从 ~ 1000 nm 一直延伸至 ~ 1060 nm. 这个发射边带也主要起源于由声子参与的振动-电子跃迁. 与图 1 相比较不难发现, π 偏振的吸收谱和发射谱在很大程度上呈镜面对称, 这正是振动-电子跃迁所具有的典型光谱特征^[12]. 应当特别指出, 位于长波范围的这一发射边带具有重要实际意义. 由于在发射峰所对应的波长范围内晶体存在着严重的再吸收损耗, 实际的激光振荡总是发生在该长波边

带内.

由图 2 所示的发射谱看出, 受混晶中 Y 和 Gd 离子数之比 N_Y/N_{Gd} 的影响, 不同组分混晶的受激发射截面存在显著差别. 相应于 π 偏振发射峰的最大发射截面 $\sigma_{em}(\pi) = 10.3 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$ (Yb: YGdVO₄-1), $7.4 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$ (Yb: YGdVO₄-2), $5.8 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$ (Yb: YGdVO₄-3). 在 σ 偏振发射谱中, 最强的发射峰出现在 ~ 986 nm, 也相应于零声子跃迁. 三种混晶的最大发射截面 $\sigma_{em}(\sigma) = 2.5 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$ (Yb: YGdVO₄-1), $2.1 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$ (Yb: YGdVO₄-2), $1.6 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$ (Yb: YGdVO₄-3). 除了零声子发射峰之外, σ 偏振发射谱还包括两个较低的发射峰, 分别出现在零声子谱线的两侧, 位于 ~ 975 nm 和 ~ 1005 nm. 长波一侧的发射边峰以及与之相连的发射边带对于实际激光振荡有着重要意义.

与 σ 偏振吸收谱情形相似, 可以引入一个无量纲参数 ξ_{em} 来表征不同钒酸盐混晶 (或单一晶体) 中 Yb 离子的发射谱, 它定义为零声子发射峰与其短波一侧的发射边峰的强度 (σ_{em}) 之比. 由图 2 (b) 得到三种混晶的 ξ_{em} 分别为 $\xi_{em} = 1.30$ (Yb: YGdVO₄-1), 1.41 (Yb: YGdVO₄-2), 1.50 (Yb: YGdVO₄-3), 也介于两种单一晶体 Yb: YVO₄ ($\xi_{em} = 1.77$) 和 Yb: GdVO₄ ($\xi_{em} = 1.14$) 的相应值之间^[5], 表明混晶发射谱兼有两种单一晶体 Yb: YVO₄ 和 Yb: GdVO₄ 的发射谱特征.

表 1 给出了由图 1, 2 所示混晶 Yb_{1-x}Gd_xVO₄ 的吸收谱和发射谱得到的主要光谱学参数. 作为比较, 表中也给出了两种单一晶体 Yb: YVO₄ 和 Yb: GdVO₄ 的相应参数. 此外, 表 1 中还给出了在谐振腔输出耦合透过率 $T = 0.5\% - 5\%$ 条件下, 不同晶体所产生的连续波激光振荡波长 λ_{em} , 以及相应于这些波长的受激发射截面 σ_{em} .

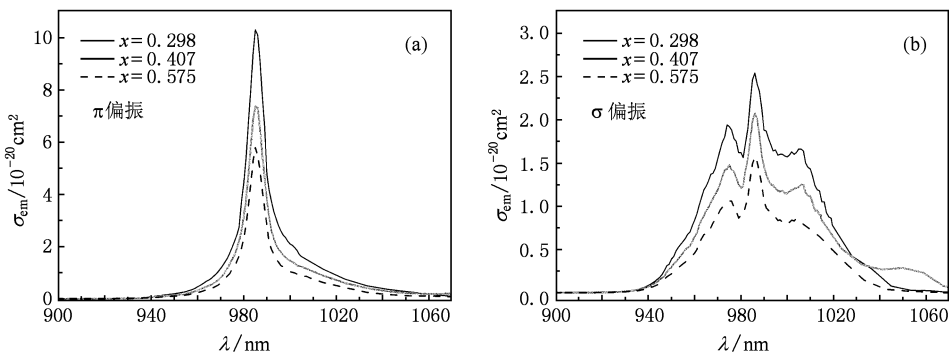


图 2 根据吸收谱计算得到的三种 Yb_{1-x}Gd_xVO₄ 混晶的偏振发射谱

表 1 钒酸盐晶体(混晶)中 Yb 离子的基本光谱学参数

参数	晶体	$Y_{0.298}Gd_{0.697}VO_4$	$Y_{0.407}Gd_{0.586}VO_4$	$Y_{0.575}Gd_{0.416}VO_4$	YVO_4 [2]	$GdVO_4$ [11]
		Yb:0.5 at. %	Yb:0.7 at. %	Yb:0.9 at. %	Yb:1.62 at. %	Yb:3 at. %
$\sigma_{abs}(\pi)/10^{-20} \text{ cm}^2$		8.5	6.1	4.8	7.4	7.3
峰值波长/nm		985	985	985	985.4	984.3
$\Delta\lambda_{abs}(\pi)/\text{nm}$		9.8	9.9	9.5	9.0	8.0
$\sigma_{abs}(\sigma)/10^{-20} \text{ cm}^2$		2.8	2.1	1.6	2.0	2.3
峰值波长/nm		964	973	964	970	973
$\Delta\lambda_{abs}(\sigma)/\text{nm}$		43	44	44	~45	40
ξ_{abs}		0.71	0.76	0.79	0.88	0.64
$\sigma_{em}(\pi)/10^{-20} \text{ cm}^2$		10.3	7.4	5.8	9.5	8.9
峰值波长/nm		985	985	985	985.4	984.7
$\sigma_{em}(\sigma)/10^{-20} \text{ cm}^2$		2.5	2.1	1.6	2.2	2.3
峰值波长/nm		986	986	986	985.4	985.6
ξ_{em}		1.30	1.41	1.50	1.77	1.14
$\lambda_{em}(\pi)/\text{nm}^*$		1016—1045	1022—1044	1021—1044	1020—1047	1018—1045
$\sigma_{em}(\pi, \lambda_{em})/10^{-20} \text{ cm}^2$		1.08—0.34	0.57—0.28	0.48—0.14		0.55—0.22
$\lambda_{em}(\sigma)/\text{nm}^*$		1011—1031		1009—1024	1021—1036	1013
$\sigma_{em}(\sigma, \lambda_{em})/10^{-20} \text{ cm}^2$		1.37—0.36		0.75—0.37		0.96

* 其中混晶为本工作实验结果,单一晶体结果引自文献[5].

3.2. 连续波激光性质及其比较

利用前面提到的平凹谐振腔,调整谐振腔的长度使之满足近半共心条件,三种掺 Yb 钒酸盐混晶均实现了室温下的连续波激光振荡. 图 3 给出了谐振腔输出耦合透过率 $T=2\%$ 条件下得到的三种混晶的连续波输出功率 P_{out} 随晶体吸收的抽运功率 P_{abs} 的变化关系,测量是在 P_{abs} 下降过程中进行的. 由于掺 Yb 钒酸盐晶体激光振荡存在双稳态行为, P_{abs} 上升和下降过程中在阈值点附近 P_{out} 随 P_{abs} 的变化一般不同 [6—8].

图 3 所示结果表明,不同组分的混晶,所产生的激光振荡有着不同的输出特性,而偏振态变化方面的差异尤为明显. 对于 Yb:YGdVO₄-1,在高功率下所产生的激光振荡是 π 偏振的; $P_{abs} = 7.84 \text{ W}$ 时输出功率达到 2.66 W ,光-光转换效率 $\eta_{opt} = 34\%$,而斜率效率 $\eta_s = 54\%$. 随着抽运功率降低, π 偏振的激光振荡一直维持至 $P_{abs} = 3.7 \text{ W}$,低于该功率水平后激光振荡中同时出现 π 和 σ 两种偏振成分. 该共存区由 $P_{abs} = 3.7 \text{ W}$ 延续至 $P_{abs} = 3.3 \text{ W}$. 抽运功率继续下降时,激光振荡变为单纯的 σ 偏振. 此后, σ 偏振的激光振荡一直保持至阈值点 $P_{abs} = P_{th} = 2.5 \text{ W}$. 而在 Yb:YGdVO₄-2 混晶情形,所产生的激

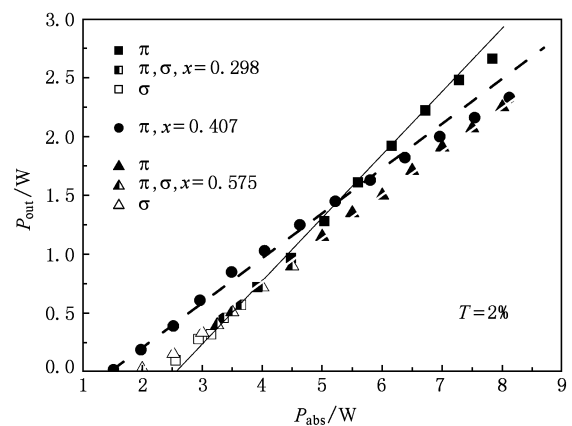


图 3 $T=2\%$ 条件下得到的三种 $Yb:Y_xGd_{1-x}VO_4$ 混晶的连续波激光振荡输出特性

光振荡在整个抽运功率范围内都是 π 偏振的,不存在偏振态随抽运功率的变化. 在 $P_{abs} = 8.12 \text{ W}$ 时,所产生的最大输出功率 $P_{out} = 2.33 \text{ W}$,相应的光-光转换效率 $\eta_{opt} = 29\%$,而斜率效率 $\eta_s = 38\%$. 由图 3 可以看到,对于第三种混晶 Yb:YGdVO₄-3,其激光振荡输出特性在斜率效率方面与 Yb:YGdVO₄-2 很接近;而在偏振态随抽运功率的变化行为方面则与 Yb:YGdVO₄-1 的情形相似. 所不同的是,这里的 σ , π 共存区功率范围为 $P_{abs} = 4.5—3.2 \text{ W}$,比 Yb:

YGdVO₄-1 相应的共存区宽得多.

在自由运转条件下,随抽运功率的变化固体激光器的激光振荡出现两个相互正交偏振态的共存与转变,这一现象最初是在 Yb:GdVO₄ 晶体的激光振荡中发现的^[11]. 随后的研究表明,在目前已有的三种掺 Yb 单一钒酸盐晶体中,只有 Yb:GdVO₄ 晶体的激光振荡呈现这样的独特行为^[5]. 除了钒酸盐之外,类似的偏振态变化现象也已在 Yb:YCa₄O(BO₃)₃ 和 Yb:GdCa₄O(BO₃)₃ 晶体的激光振荡中观察到^[16,17].

上述激光振荡偏振态的共存与转变源自 Yb 离子的准三能级特性. 由于激光下能级(²F_{7/2}能态的三个较高 Stark 能级之一)与基态(²F_{7/2}能态的最低 Stark 能级)的能量间隔一般小于 1000 cm⁻¹, 室温下激光下能级上分布有相当多的粒子,它们对所产生的激光辐射具有共振吸收作用. 因此,准三能级激光介质所产生的增益不仅决定于受激发射截面 $\sigma_{em}(\lambda)$, 而且与吸收截面 $\sigma_{abs}(\lambda)$ 有关, 介质增益系数随波长的变化可由增益截面 $\sigma_g(\lambda) = \beta\sigma_{em}(\lambda) - (1 - \beta)\sigma_{abs}(\lambda)$ 表征. 这里的 β 为粒子数反转比, 即因抽运作用而激发到²F_{5/2}能态的粒子数密度与总的粒子数密度(即 Yb 离子的浓度)之比. 通常情况下, $\sigma_g(\lambda)$ 的最大值总是位于远离发射峰($\sigma_{em}(\lambda)$ 的最大值)的长波一侧的发射边带上. 这一点与振荡波长同样位于 $\sim 1 \mu\text{m}$ 的 Nd 离子激光的⁴F_{3/2}→⁴I_{11/2}的跃迁(四能级系统)有着本质差别. 对于 Nd 离子的这一跃迁,介质的最大增益相应的波长总是与发射峰位置相一致. 因此 Nd 离子激光的发射波长(和偏振态)一般不随抽运功率而变化.

随抽运功率的变化而出现不同偏振态振荡的共存和转变,其直接原因在于不同偏振态的 $\sigma_g(\lambda)$ 随波长 λ 的变化关系不同. 此外,偏振态的变化与激光发射波长随抽运功率的移动有着内在的联系. 随着抽运功率的提高,激光晶体内部的热载荷(thermal load)增加而引起温度上升,因热激发导致的激光下能级粒子数增加,共振吸收损耗加剧,从而迫使激光振荡移向共振吸收较弱的长波一侧. 而抽运功率下降时则相反,激光振荡波长将移向短波方向,以获得更大的增益. 在一定条件下,振荡波长随抽运功率的这种移动往往引起偏振态的变化.

图 4 给出了谐振腔输出耦合透过率 $T = 2\%$ 条件下,不同抽运功率下测量得到的三种混晶的激光发射谱,显示了激光振荡波长随 P_{abs} 的变化. 从图 4

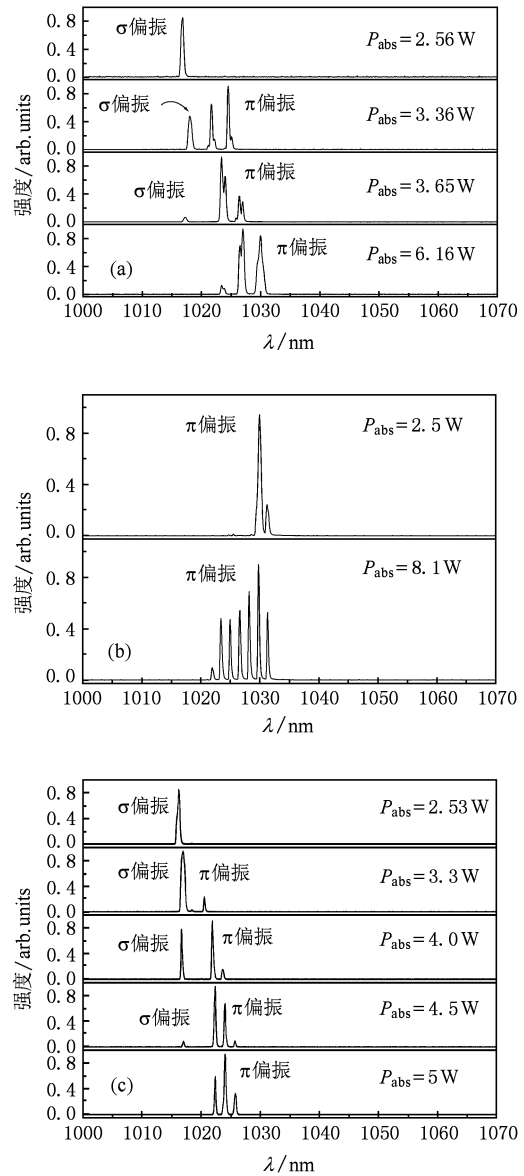


图 4 $T = 2\%$ 条件下得到的三种混晶的连续波激光振荡波长随抽运功率的变化 (a) 相应于 Yb:YGdVO₄-1; (b) 相应于 Yb:YGdVO₄-2; (c) 相应于 Yb:YGdVO₄-3

(a) 所示 Yb:YGdVO₄-1 的发射谱看出,随着抽运功率 P_{abs} 由 6.16 W 下降到 3.65 W,主要的激光发射波长由 $\sim 1027\text{--}1030 \text{ nm}$ 移至 $\sim 1023\text{--}1027 \text{ nm}$; 此时位于 1017 nm 的 σ 偏振成分开始出现,激光振荡进入 π, σ 共存区. 共存区的出现是由于 σ 偏振的增益截面 $\sigma_g(\sigma)$ 和 π 偏振的增益截面 $\sigma_g(\pi)$ 在某些特定的不同波长具有相近的数值,两种偏振成分的增益相差不大,因而一种偏振的振荡难以完全抑制另一种偏振的振荡. 当抽运功率进一步下降到 $P_{abs} = 3.36 \text{ W}$ 时, π 偏振的振荡波长长移至 $\sim 1021\text{--}$

1024.5 nm,而此时1018 nm的 σ 偏振的振荡已变得很强.当抽运功率降低至 $P_{\text{abs}} < 3.3$ W时, π 偏振成分被完全抑制,激光振荡成为单纯的 σ 偏振.

图4(c)所示的Yb:YGdVO₄-3混晶的激光发射谱随 P_{abs} 的变化与Yb:YGdVO₄-1的情形相似.所不同的是,这里的 π, σ 共存区宽得多.然而,Yb:YGdVO₄-2混晶的激光发射谱与另外两种混晶的情形完全不同:在 P_{abs} 由8.1 W下降到2.5 W的过程中,激光振荡保持 π 偏振不变,而且振荡波长几乎不发生移动,由~1022—1031 nm变为~1030—1031 nm,只是高功率下的发射谱宽得多.这意味着Yb:YGdVO₄-2混晶的 $\sigma_g(\lambda)$ 与另外两种混晶相比一定存在重要差别,同时也反映出混晶中Yb离子的局域晶体场环境对其光谱结构以及激光性质的重要影响.

图5所示为谐振腔输出耦合透过率 $T = 5\%$ 条件下得到的两种混晶Yb:YGdVO₄-1和Yb:YGdVO₄-3的输出功率 P_{out} 随 P_{abs} 的变化关系,也是在抽运功率下降时测量的.另外一种混晶Yb:YGdVO₄-2在 $T = 5\%$ 条件下很难产生激光振荡.

由图5所示的结果可以看出,混晶Yb:YGdVO₄-1的激光振荡行为与 $T = 2\%$ 时的情形相似:在高功率下振荡为 π 偏振;随着 P_{abs} 降低出现 σ, π 共存区;当 P_{abs} 降低到一定水平之下时得到单纯 σ 偏振的振荡.然而,与 $T = 2\%$ 情形不同的是,这里 σ, π 共存区出现在 $P_{\text{abs}} = 6.72\text{—}6.45$ W范围.与 $T = 2\%$ 情形相比,共存区整体移向高功率一侧而使 π 偏振的振荡范围缩小,而 σ 偏振的振荡范围则得到很大扩展. σ 偏振的最高输出功率达到~1 W($T = 2\%$ 情形仅为~0.3 W).与Yb:YGdVO₄-1完全不同,另一种混晶Yb:YGdVO₄-3所产生的激光振荡在整个抽运功率范围内为单纯的 σ 偏振,偏振态不随 P_{abs} 变化;而振荡波长则由高功率时的1013 nm移

至阈值附近的1009 nm.这表明,谐振腔输出耦合透过率 T 对这两种混晶的影响有着明显差异.

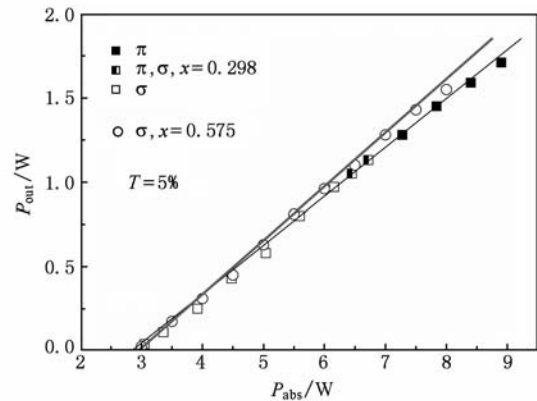


图5 $T = 5\%$ 条件下得到的Yb:Y_xGd_{1-x}VO₄混晶的连续波激光振荡输出特性

为便于比较,表2给出了在输出耦合透过率 $T = 2\%$ 和 $T = 5\%$ 两种条件下,三种不同组分的混晶所产生的激光振荡的主要性质和参数.包括:达到振荡阈值时晶体吸收的抽运功率 P_{th} ;阈值附近振荡的偏振态 $\text{Pol}(P_{\text{th}})$ 和振荡波长 $\lambda_{\text{em}}(P_{\text{th}})$;所产生的最大输出功率 P_{max} ;最大输出功率时的偏振态 $\text{Pol}(P_{\text{max}})$,振荡波长 $\lambda_{\text{em}}(P_{\text{max}})$,光-光转换效率 η_{opt} ;以及平均斜率效率 η_s .

4. 结 论

本文测量和计算了三种不同组分的掺Yb钒酸盐混晶Yb_{0.005}:Y_{0.298}Gd_{0.697}VO₄, Yb_{0.007}:Y_{0.407}Gd_{0.586}VO₄,以及Yb_{0.009}:Y_{0.575}Gd_{0.416}VO₄的室温偏振吸收谱和发射谱,并进行了详细的分析、比较和讨论. π 偏振的吸收谱由峰值位于985 nm的单一吸收带构成,最大吸收截面 $\sigma_{\text{abs}} = 4.8\text{—}8.5 \times 10^{-20}$ cm²,而吸收带宽 $\Delta\lambda_{\text{abs}} = 9.5\text{—}9.9$ nm; σ 偏振的吸收谱峰值较低,但吸收带宽达到43—44 nm. π 偏振的发射谱

表2 三种钒酸盐混晶在 $T = 2\%$ 和 $T = 5\%$ 两种条件下所产生的激光振荡的主要性质和参数

晶体	T /%	P_{th} /W	$\text{Pol}(P_{\text{th}})$	$\lambda_{\text{em}}(P_{\text{th}})$ /nm	P_{max} /W	$\text{Pol}(P_{\text{max}})$	$\lambda_{\text{em}}(P_{\text{max}})$ /nm	η_{opt} /%	η_s /%
Yb _{0.005} :Y _{0.298} Gd _{0.697} VO ₄	2	2.5	σ	1017	2.66	π	1030	34	54
Yb _{0.007} :Y _{0.407} Gd _{0.586} VO ₄	2	1.5	π	1030	2.33	π	1031	29	38
Yb _{0.009} :Y _{0.575} Gd _{0.416} VO ₄	2	2.0	σ	1016	2.25	π	1026	28	38
Yb _{0.005} :Y _{0.298} Gd _{0.697} VO ₄	5	3.0	σ	1011	1.71	π	1019	19	30
Yb _{0.009} :Y _{0.575} Gd _{0.416} VO ₄	5	3.0	σ	1009	1.55	σ	1013	12.5	32

也由中心位于 985 nm 的单一发射带组成,最大受激发射截面 $\sigma_{em} = 5.8\text{--}10.3 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$. 对于实际激光振荡有意义的是长波一侧 $\sim 1010\text{--}1050 \text{ nm}$ 的发射边带,该边带包含着振动-电子跃迁的贡献. 在一个接近半共心状态的平凹谐振腔中利用半导体激光器纵向抽运,实现了室温下的连续波激光振荡. 研究表明,在相同运转条件下,不同组分的混晶所产生的激光振荡行为存在很大差异. 在 $T = 2\%$ 条件

下, $\text{Yb}_{0.005} : \text{Y}_{0.298} \text{Gd}_{0.697} \text{VO}_4$ 和 $\text{Yb}_{0.009} : \text{Y}_{0.575} \text{Gd}_{0.416} \text{VO}_4$ 的激光振荡随抽运功率下降而出现 π, σ 偏振态的共存和转变;而 $\text{Yb}_{0.007} : \text{Y}_{0.407} \text{Gd}_{0.586} \text{VO}_4$ 的激光振荡则保持 π 偏振态不变. 但在 $T = 5\%$ 条件下, $\text{Yb}_{0.007} : \text{Y}_{0.407} \text{Gd}_{0.586} \text{VO}_4$ 很难产生激光振荡; $\text{Yb}_{0.009} : \text{Y}_{0.575} \text{Gd}_{0.416} \text{VO}_4$ 的振荡为单纯的 σ 偏振;而 $\text{Yb}_{0.005} : \text{Y}_{0.298} \text{Gd}_{0.697} \text{VO}_4$ 的激光振荡随抽运功率的下降仍出现类似的偏振态变化行为.

- [1] Petit J, Viana B, Goldner P, Vivien D, Louiseau P, Ferrand B 2004 *Opt. Lett.* **29** 833
- [2] Kisel V E, Troshin A E, Tolstik N A, Shcherbitsky V G, Kuleshov N V, Matrosov V N, Matrosova T A, Kupchenko M I 2004 *Opt. Lett.* **29** 2491
- [3] Liu J, Mateos X, Zhang H, Wang J, Jiang M, Griebner U, Petrov V 2005 *Opt. Lett.* **30** 3162
- [4] Cheng Y, Zhang H J, Yu Y G, Wang J Y, Tao X T, Liu J H, Petrov V, Ling Z C, Xia H R, Jiang M H 2007 *Appl. Phys. B* **86** 681
- [5] Liu J, Han W, Zhang H, Mateos X, Petrov V 2009 *IEEE J. Quantum Electron.* **45** 807
- [6] Liu J, Petrov V, Griebner U, Noack F, Zhang H, Wang J, Jiang M 2006 *Opt. Express* **14** 12183
- [7] Liu J, Wan Y, Han W, Yang H, Zhang H, Wang J, Petrov V 2010 *Acta Phys. Sin.* **59** 293 (in Chinese) [刘均海、万 勇、韩文娟、杨红卫、张怀金、王继扬、Petrov V 2010 物理学报 **59** 293]
- [8] Liu J, Han W, Zhang H, Yang H, Petrov V 2010 *Appl. Phys. B* **98** 87
- [9] Liu J, Meng X, Shao Z, Jiang M, Ozygus B, Ding A, Weber H 2003 *Appl. Phys. Lett.* **83** 1289
- [10] Liu J, Wan Y, Han W, Yang H, Zhang H, Wang J 2010 *Appl. Phys. B* **98** 69
- [11] Liu J, Mateos X, Zhang H, Wang J, Jiang M, Griebner U, Petrov V 2006 *Opt. Lett.* **31** 2580
- [12] Fox M 2009 *Optical Properties of Solids* (Beijing: Science Press) pp186—203
- [13] Powell R C 1998 *Physics of Solid-State Laser Materials* (New York: AIP Press, Springer) pp359—377
- [14] Kisel V E, Tolstik N A, Troshin A E, Kuleshov N V, Matrosov V N, Matrosova T A, Kupchenko M I, Brunner F, Paschotta R, Morier-Genoud F, Keller U 2006 *Appl. Phys. B* **85** 581
- [15] DeLoach L D, Payne S A, Chase L L, Smith L K, Kway W L, Krupke W F 1993 *IEEE J. Quantum Electron.* **29** 1179
- [16] Liu J, Zhang H, Wang J, Petrov V 2007 *Opt. Lett.* **32** 2909
- [17] Liu J, Yang H, Zhang H, Wang J, Petrov V 2008 *Appl. Opt.* **47** 5436

Comparative study on the spectroscopic and laser properties of mixed vanadates $\text{Yb}_t : \text{Y}_x \text{Gd}_{1-t-x} \text{VO}_4$ with different compositions^{*}

Liu Jun-Hai^{1)†} Han Wen-Juan¹⁾ Zhang Huai-Jin²⁾ Wang Ji-Yang²⁾ Xavier Mateos³⁾ Valentin Petrov⁴⁾

1) (College of Physics, Qingdao University, Qingdao 266071, China)

2) (State Key Laboratory of Crystal Materials, Shandong University, Jinan 250100, China)

3) (Física i Cristal·lografia de Materials, Universitat Rovira i Virgili, C/Marcel·li Domingo, s/n, E-43007 Tarragona, Spain)

4) (Max-Born-Institute for Nonlinear Optics and Ultrafast Spectroscopy, 2A Max-Born-Str., D-12489 Berlin, Germany)

(Received 13 January 2010; revised manuscript received 22 March 2010)

Abstract

The room-temperature polarized absorption and emission spectra of Yb doped mixed vanadates $\text{Yb}_{0.005} : \text{Y}_{0.298} \text{Gd}_{0.697} \text{VO}_4$, $\text{Yb}_{0.007} : \text{Y}_{0.407} \text{Gd}_{0.586} \text{VO}_4$, and $\text{Yb}_{0.009} : \text{Y}_{0.575} \text{Gd}_{0.416} \text{VO}_4$ have been studied. The results show that the strongest absorption and emission, occurring at wavelength of 985 nm, correspond to the π polarization, depending on the composition the maximum absorption cross section ranges from 4.8 to $8.5 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$, with bandwidths of 9.5—9.9 nm, whereas the maximum stimulated emission cross section varies in the range of 5.8 — $10.3 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$. Continuous-wave laser operation has been realized at room temperature with the mixed crystals through longitudinal pumping with a diode laser. It was found that the laser oscillation behavior differs significantly from one mixed crystal to another; in the case of $T = 2\%$ (T is the output coupling of the resonator), the coexistence and switching of σ , π polarization states occur on reducing the pump power in the laser oscillation of $\text{Yb}_{0.005} : \text{Y}_{0.298} \text{Gd}_{0.697} \text{VO}_4$ and $\text{Yb}_{0.009} : \text{Y}_{0.575} \text{Gd}_{0.416} \text{VO}_4$, while the laser oscillation of $\text{Yb}_{0.007} : \text{Y}_{0.407} \text{Gd}_{0.586} \text{VO}_4$ is capable of maintaining its π polarization state. In the case of $T = 5\%$, however, the laser oscillation generated with $\text{Yb}_{0.009} : \text{Y}_{0.575} \text{Gd}_{0.416} \text{VO}_4$ is purely σ -polarized, whereas the laser behavior of $\text{Yb}_{0.005} : \text{Y}_{0.298} \text{Gd}_{0.697} \text{VO}_4$ is similar to that exhibited in the case of $T = 2\%$.

Keywords: Yb doped mixed vanadates, absorption and emission spectra, laser oscillation, polarization state

PACS: 42.55.Rz

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 60978023) and the EU Project (Grant No. DT-CRYS, NMP3-CT-2003-505580).

[†] E-mail: junhai_liu@hotmail.com