

Nd:YAG单晶的光谱和激光性能

鲁万成 张庆礼 罗建乔 丁守军 窦仁勤 彭方 张会丽 王小飞 孙贵花 孙敦陆

Spectral and laser properties of Nd:YAG single crystal

Lu Wan-Cheng Zhang Qing-Li Luo Jian-Qiao Ding Shou-Jun Dou Ren-Qin Peng Fang Zhang Hui-Li Wang Xiao-Fei Sun Gui-Hua Sun Dun-Lu

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, **66**, 154204 (2017) DOI: 10.7498/aps.66.154204

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.154204>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2017/V66/I15>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

885nm 双端泵准连续微秒脉冲 1319nm 三镜环形腔激光

A quasi-continuous dual-end 885 nm diode-pumped three-mirror ring-cavity laser operating at 1319 nm

物理学报.2016, 65(15): 154205 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.154205>

掺镱硼酸钙氧钇飞秒激光器及在拉锥光纤中产生跨倍频程超连续光

Generation of octave-spanning super-continuum in tapered single mode fibre pumped by femtosecond Yb:YCOB laser

物理学报.2015, 64(5): 054206 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.054206>

28.2 W 波长锁定 878.6 nm 激光二极管共振抽运双晶体 1064 nm 激光器

A 28.2-W wave-locked 878.6 nm diode-laser-pumped multi-segmented Nd:YVO₄ laser operating at 1064 nm

物理学报.2014, 63(21): 214206 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.214206>

用于光生毫米波的双频微片激光器热致频差特性研究

Thermally induced frequency difference characteristics of dual-frequency microchip laser used optical generation millimeter-wave

物理学报.2013, 62(20): 204205 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.204205>

角抽运 Nd:YAG 复合板条 946 nm 连续运转激光器

Corner-pumped Nd:YAG/YAG composite slab continuous-wave 946 nm laser

物理学报.2013, 62(14): 144205 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.144205>

Nd:YSAG 单晶的光谱和激光性能*

鲁万成¹⁾²⁾ 张庆礼^{1)†} 罗建乔¹⁾ 丁守军¹⁾²⁾ 窦仁勤¹⁾ 彭方¹⁾
张会丽¹⁾ 王小飞¹⁾ 孙贵花¹⁾ 孙敦陆¹⁾

1)(中国科学院安徽光学精密机械研究所, 安徽省光子器件与材料重点实验室, 合肥 230031)

2)(中国科学技术大学, 合肥 230026)

(2017年4月7日收到; 2017年4月27日收到修改稿)

用提拉法生长了(1.5 at.%) Nd³⁺:Y₃Sc₂Al₃O₁₂ (YSAG) 激光晶体, 摇摆曲线表明晶体结晶质量优良. 测量了该晶体的吸收和发光光谱, 表明其适合成熟的808 nm 激光二极管(LD)抽运, 其⁴F_{3/2} → ⁴I_{11/2} 跃迁最强发射波长为1059 nm, 发射截面为 $1.03 \times 10^{-19} \text{ cm}^2$, 同时其激光上能级寿命为253 μs, 表明Nd:YSAG具有和Nd:YAG相近的效率, 但其激光上能级寿命比Nd:YAG长约20 μs. 以LD抽运2 mm × 2 mm × 6 mm Nd:YSAG 激光棒, 激光阈值为0.85 W, 最高输出功率为1.1 W, 激光斜效率为21.1%, 光-光转化效率为18.3%. 综合表明Nd:YSAG单晶作为激光性能优良的全固态激光材料, 更适合全固态调Q激光输出.

关键词: Nd:YSAG, 吸收, 发光, LD抽运固体激光

PACS: 42.55.Xi, 42.70.Hj, 42.70.-a, 81.10.-h

DOI: 10.7498/aps.66.154204

1 引言

Nd:YAG 晶体作为一种非常成熟的激光工作物质, 其有高增益、高效率、低激光阈值、高光学品质等优点^[1,2]. 但是由于离子间的交叉弛豫使得Nd³⁺ 离子在较高掺杂浓度时会引起激光效率降低, 并且其本身的荧光谱线较窄, 难以实现皮秒激光输出. 当Sc³⁺ 离子掺杂YAG中时, 由于Sc³⁺ 离子半径大于Al³⁺ 离子半径而小于Y³⁺ 离子半径, 它会优先取代Al³⁺ 离子位置, 使YAG晶胞增大, Nd³⁺ 离子间距增大, 在减轻Nd³⁺ 离子浓度猝灭效应的同时可增加其荧光谱线的线宽.

Cornacchia等^[3]采用微下拉技术成功生长出Nd:YSAG单晶. Allik等^[4]采用提拉法生长Nd:YSAG晶体, 并研究了其光谱与激光特性, 获得激光二极管(LD)抽运激光斜效率最大为9%. 近年来

对YSAG的研究以透明陶瓷居多, Saikawa等^[5]和Sato等^[6]主要研究了Yb:YSAG和Nd:YSAG透明陶瓷的激光特性; Gheorghe等^[7]研究了Sm:YSAG透明陶瓷的组分与其光学特性的关系; 冯涛等^[8-10]研究了掺杂Ce, Pr, Nd的YSAG透明陶瓷的光学特性, 成功制备出Nd:YSAG透明陶瓷^[10], 其LD抽运激光输出斜效率达到23.6%. 这与此前报道的Nd:YSAG单晶的LD抽运激光性能相差较大, 因而有必要进一步评估其作为激光晶体的潜力.

本文采用提拉法生长Nd:YSAG晶体, 其中Nd³⁺ 离子浓度为1.5 at.%. 通过薄膜X射线衍射仪得到样品摇摆曲线, 得出晶体质量表征. 采用PerkinElmer lambda-950UV/VIS/NIR分光光度计测量样品的透过谱, FLSP-920光谱仪测试样品的荧光光谱以及荧光寿命. 通过LD抽运, 获得Nd:YSAG单晶的激光输出数据.

* 国家自然科学基金(批准号: 51502292, 61405206)、国家重点研发计划(批准号: 2016YFB0402101)、中国科学院创新基金(批准号: CXJJ-16M251, CXJJ-15M055)和安徽省自然科学基金(批准号: 608085ME91)资助的课题.

† 通信作者. E-mail: zql@aiofm.ac.cn

2 实 验

2.1 单晶样品制备

本文采用提拉法生长Nd³⁺离子掺杂的Y₃Sc₂Al₃O₁₂晶体. 首先根据化学计量比Y³⁺ : Sc³⁺ : Al³⁺ = 3 : 2 : 3 (其中Nd³⁺ : Y³⁺ = 0.044 : 0.956) 准确称取原料Y₂O₃ (5N), Sc₂O₃ (5N), Al₂O₃ (5N), Nd₂O₃ (5N). 原料充分混合后, 在1200 °C煅烧24 h作为晶体生长原料. 生长晶体尺寸 $\Phi 30$ mm \times 60 mm, 转速10 r/min, 拉丝速0.4 mm/h^[11]. 晶体生长结束后在硅钼棒退火炉中1480 °C下退火72 h, 将获得的晶体加工成15 mm \times 15 mm \times 1.3 mm的双面抛光的薄片作为光谱测试样品, 加工成2 mm \times 2 mm \times 6 mm端面平行抛光的小棒作为激光实验晶体.

2.2 样品测试

采用X'pert Pro薄膜X射线衍射仪测试样品的单晶摇摆曲线, 扫描方式为连续扫描, 扫描步长为0.01°/s, 扫描范围23.52°—26.44°. 采用PerkinElmer lambda-950UV/VIS/NIR分光光度计测量样品的透过谱, 测量范围为250—900 nm, 步长为1 nm. 使用FLSP-920光谱仪测试样品的荧光光谱以及荧光寿命, 测试荧光光谱所用的光源为氙灯, 测量范围为850—1400 nm, 测试Nd³⁺离子⁴F_{3/2} \rightarrow ⁴I_{11/2}跃迁的荧光寿命所用光源为微秒灯, 所有测量均在室温下进行. 使用日本JEOL JXA-8100型电子探针显微分析仪测试晶体内部离子浓度, 总共测试晶体放肩部分四个点.

3 结果与讨论

3.1 YSAG晶体结构与质量表征

提拉法生长的Nd:YSAG晶体如图1所示. 电子探针测得四个点Nd³⁺离子的平均原子浓度百分比为0.2277%, Y³⁺离子的平均原子浓度百分比为14.4913%, 由此计算得到晶体放肩部分的掺杂浓度为1.5 at.%. 可以根据原始配料计算出分凝系数为0.35, 文献[11]中Nd³⁺在YSAG中的分凝系数为0.32, 相比较可见本文测量结果可靠. 从图1可以看出, 晶体透明, 有部分裂纹. 开裂原因可能是

生长晶体的温场梯度较大, 温度梯度引起的应力与掺杂晶体晶格畸变引起的内应力共同作用所致.



图1 (网刊彩色) 提拉法生长的(1.5 at.%) Nd:YSAG晶体
Fig. 1. (color online) (1.5 at.%) Nd:YSAG crystal grown by Czochralski method.

用X射线衍射仪对等径部分1.3 mm厚的薄片进行测试, 所得的摇摆曲线如图2所示. 从图2可以看出, 摇摆曲线的峰形尖锐、左右对称、无劈裂和双峰, 衍射峰形的半高全宽值为0.05°, 结果表明实验所得晶体结晶完整, 应力较小, 晶体质量很好.

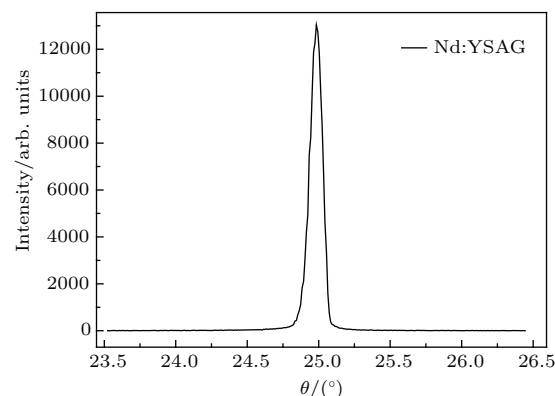


图2 (1.5 at.%) Nd:YSAG晶体X射线摇摆曲线
Fig. 2. X-ray rocking curve of (1.5 at.%) Nd:YSAG crystal.

3.2 Nd³⁺的光谱及其荧光寿命

图3为Nd:YSAG与Nd:YAG的透过谱在波长250—900 nm范围的对比. 从图3可以看出, 在Nd³⁺离子非吸收带处Nd:YSAG晶体的透过率为82%, Nd:YAG晶体的透过率为84%. Nd³⁺离子的最强吸收带都位于770—830 nm之间, 最强吸收峰在808.9 nm处重合.

图4给出了Nd:YSAG晶体在808 nm激发下850—1400 nm范围内的荧光光谱. 从图4中可以看出, Nd:YSAG晶体在波长850—1400 nm范围内主要有3个发射带, 在室温下位于865—946 nm,

1035—1135 nm 和 1310—1365 nm 范围, 分别对应于 Nd³⁺ 离子 $^4F_{3/2} \rightarrow ^4I_{9/2}$, $^4F_{3/2} \rightarrow ^4I_{11/2}$ 和 $^4F_{3/2} \rightarrow ^4I_{13/2}$ 跃迁. 其中最强发射带为 $^4F_{3/2} \rightarrow$

$^4I_{11/2}$ 跃迁的 1035—1135 nm 处, 最强发射峰位于 1059 nm. 与 Nd:YAG 晶体的荧光光谱相比较, Nd:YSAG 的所有峰偏向短波长方向.

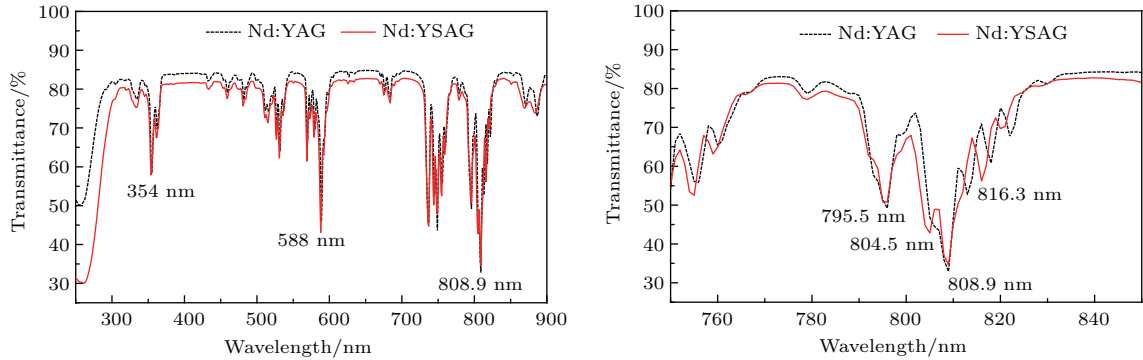


图 3 (网刊彩色) (1.5 at.%) Nd:YSAG 晶体在波长 250—900 nm 范围内的透过谱

Fig. 3. (color online) Transmittance spectra of (1.5 at.%) Nd:YSAG crystal in 250–900 nm.

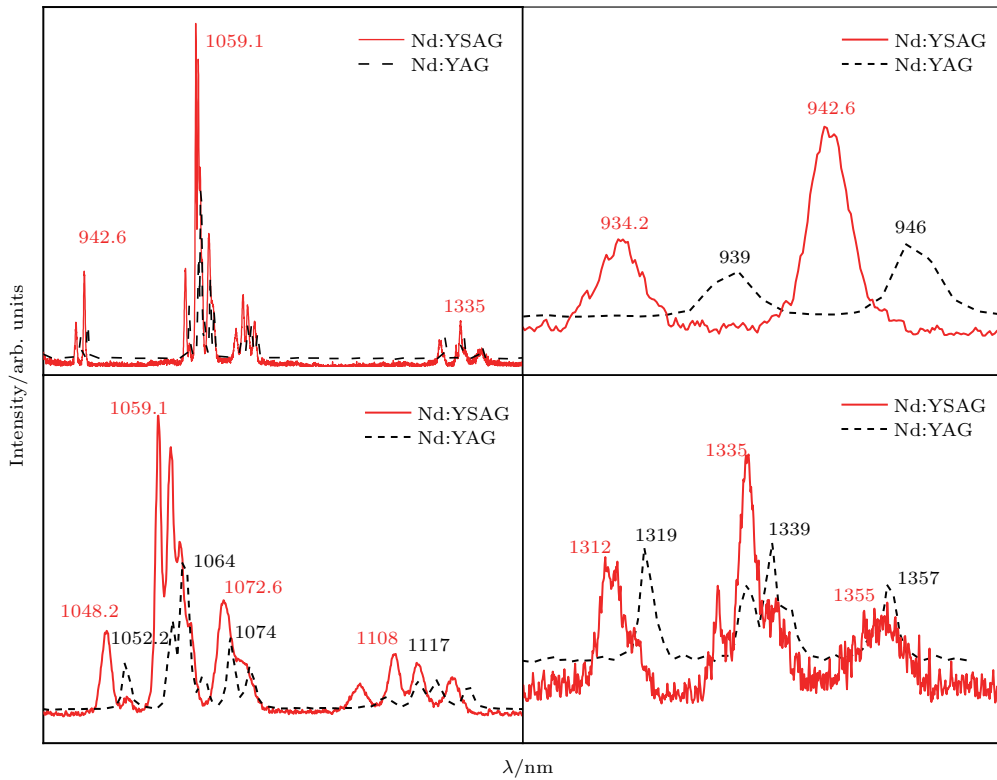


图 4 (网刊彩色) 808 nm 激发下 (1.5 at.%) Nd:YSAG 在波长 850—1400 nm 范围内的荧光光谱

Fig. 4. (color online) Fluorescence spectra of (1.5 at.%) Nd:YSAG in 850–1400 nm under 808 nm excitation.

f 能级到 i 能级的发射截面 σ_{fi} 公式为

$$\sigma_{fi} = \frac{\lambda^4}{8\pi c n^2} \frac{\beta}{\tau} \phi(\lambda), \quad (1)$$

式中 λ 为真空中的波长; c 为真空中的光速; n 为折射率; 对于 1.06 μm 的跃迁, τ 为能级寿命, β 为

$^4F_{3/2} \rightarrow ^4I_{11/2}$ 的荧光分支比, $\phi(\lambda)$ 为线型函数,

$$\phi(\lambda) = \frac{I(\lambda)}{\int I(\lambda) d\lambda}, \quad (2)$$

其中积分是对整个 $^4F_{3/2} \rightarrow ^4I_{11/2}$ 的发射带进行. 根据文献可知, Nd:YSAG 和 Nd:YAG 的 1.06 μm

荧光分支比 β 分别为49.4%和50%^[4], Nd:YSAG在1059 nm的折射率 $n = 1.86$ ^[4], Nd:YAG在1064 nm的折射率是1.82^[12], 上能级寿命分别为253 μs 和235 μs ^[13]. 按同样的方法计算了Nd:YAG的 ${}^4F_{3/2} \rightarrow {}^4I_{11/2}$ 的发射截面(如图5所示), Nd:YSAG在1059 nm的发射截面和Nd:YAG在1064 nm的发射截面分别为 $1.03 \times 10^{-19} \text{ cm}^2$ 和 $0.98 \times 10^{-19} \text{ cm}^2$.

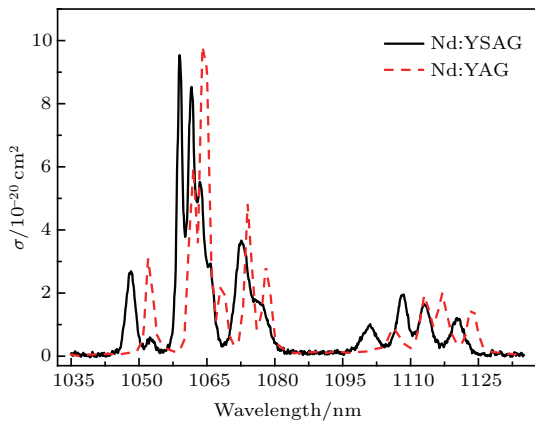


图5 (网刊彩色) Nd:YSAG与Nd:YAG ${}^4F_{3/2} \rightarrow {}^4I_{11/2}$ 跃迁的发射截面

Fig. 5. (color online) The emission cross section of ${}^4F_{3/2} \rightarrow {}^4I_{11/2}$ transition in Nd:YSAG and Nd:YAG.

图6为室温下Nd:YSAG晶体 ${}^4F_{3/2}$ 能级的荧光衰减曲线, 通过单指数拟合^[14]得出荧光寿命为253 μs . 根据文献^[13], Nd^{3+} 离子掺杂浓度为1.0 at.%时Nd:YAG的 ${}^4F_{3/2}$ 能级寿命为235 μs , 相比之下 Nd^{3+} 离子掺杂浓度为1.5 at.%时Nd:YSAG荧光寿命高约20 μs , 表明 Sc^{3+} 离子的掺杂确实有助于降低 Nd^{3+} 离子的浓度猝灭效应, 提高能级寿命, 从而提高储能效率.

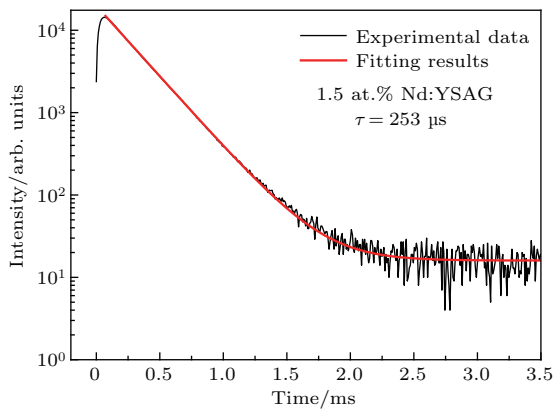


图6 (网刊彩色) (1.5 at.%) Nd:YSAG晶体 ${}^4F_{3/2}$ 能级的荧光衰减曲线

Fig. 6. (color online) Decay time of the ${}^4F_{3/2}$ manifold of (1.5 at.%) Nd^{3+} in YSAG.

3.3 Nd:YSAG的激光性能

图7为Nd:YSAG单晶LD抽运激光实验装置示意图^[15,16], 抽运源为中心波长为808 nm的连续LD激光器, 输入镜与输出镜都为平面镜, 输入镜镀1064 nm全反膜, 输出镜镀1064 nm高反膜, 透过率 $T = 5.2\%$, 谐振腔长12 mm. 晶体小棒加工尺寸为2 mm \times 2 mm \times 6 mm, 端面平行抛光, 且未镀膜. 为确保晶体散热, 实验过程使用水循环冷却, 水温保持在16 $^\circ\text{C}$.

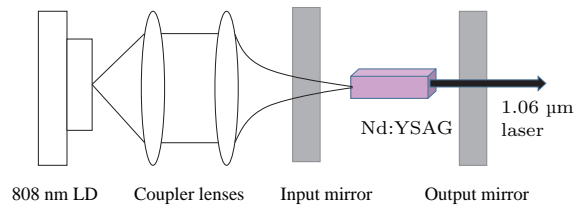


图7 (网刊彩色) Nd:YSAG单晶LD抽运激光实验装置
Fig. 7. (color online) Scheme of LD-pumped Nd:YSAG single crystal laser.

根据图7的实验装置获得的激光输出功率曲线如图8所示. 激光阈值为0.85 W, 在6.02 W的抽运功率下获得了1.1 W的输出功率, 激光斜效率为21.1%, 光-光转化效率为18.3%. 根据文献^[10]的数据, (1.0 at.%) Nd:YSAG透明陶瓷激光阈值为0.4 W, 斜效率为23.6%, 光-光转化效率为18%, 在斜效率与光-光转化效率接近的情况下, Nd:YSAG单晶阈值较高, 可能是因为掺杂浓度高, 工作体积内 Nd^{3+} 离子数较多的缘故. 文献^[4]中Nd:YSAG单晶LD抽运激光输出数据表明, 其获得的最大

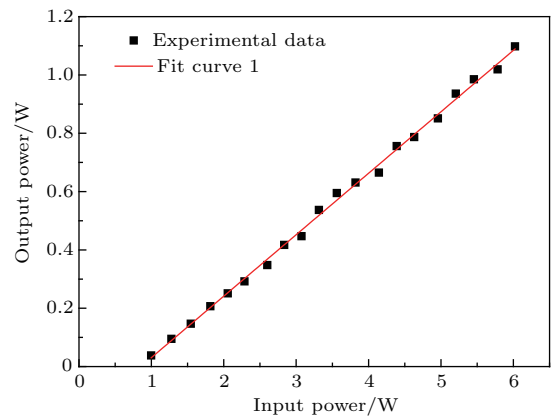


图8 (网刊彩色) 808 nm LD抽运(1.5 at.%) Nd:YSAG 1059 nm激光输出功率

Fig. 8. (color online) Laser output power of (1.5 at.%) Nd:YSAG at 1059 nm pumped by 808 nm LD.

斜效率为9%，而本次实验获得的激光斜效率为21.1%，表明Nd:YSAG也是优良的激光工作物质。根据图8的数据，当抽运功率从1 W增加到6 W时，抽运功率与输出功率仍然呈线性关系。若能进一步提高晶体质量，优化激光实验参数，有望获得更高的激光效率。

4 结 论

本文通过采用提拉法生长了(1.5 at.%) Nd³⁺:YSAG晶体，其⁴F_{3/2} → ⁴I_{11/2}的最强发射波长为1059 nm，发射截面为1.03 × 10⁻¹⁹ cm²，与Nd:YAG在1064 nm的发射截面0.98 × 10⁻¹⁹ cm²相当；⁴F_{3/2}能级寿命为253 μs，比YAG高约20 μs，具有更好的储能效率。根据LD抽运激光实验，获得激光阈值为0.85 W，最高输出功率为1.1 W，激光斜效率为21.1%，光-光转化效率为18.3%。结果表明Nd:YSAG是一种性能优良的激光晶体。

参考文献

- [1] Ye B Q, Ma Z L, Wang M Q 1988 *Acta Phys. Sin.* **37** 416 (in Chinese) [叶碧青, 马忠林, 王明琪 1988 物理学报 **37** 416]
- [2] Zhao X 2006 *M. S. Thesis (Tianjin: Tianjin University)* (in Chinese) [赵欣 2006 硕士学位论文(天津: 天津大学)]
- [3] Cornacchia F, Simura R, Toncelli A, Tonelli M, Yoshikawa A, Fukuda T 2007 *Opt. Mater.* **30** 135
- [4] Allik T H, Morrison C A, Gruber J B, Kokta M R 1990 *Phys. Rev. B* **41** 21
- [5] Saikawa J, Sato Y, Taira T, Ikesue A 2007 *Opt. Mater.* **29** 1283
- [6] Sato Y, Saikawa J, Taira T, Ikesue A 2007 *Opt. Mater.* **29** 1277
- [7] Gheorghe C, Lupei A, Hău S, Voicu F, Gheorghe L, Vlaicu A M 2016 *J. Alloys Compd.* **683** 547
- [8] Feng T, Shi J L, Jiang D Y 2009 *Ceram. Int.* **35** 427
- [9] Feng T, Shi J L, Jiang D Y 2008 *J. Euro. Ceram. Soc.* **28** 2539
- [10] Feng T, Cai H, Qi Y F, Jiang D Y, Zhou J, Lou Q H, Shi J L 2008 *J. Inorg. Mater.* **23** 1041 (in Chinese) [冯涛, 蔡虹, 漆云凤, 蒋丹宇, 周军, 楼棋洪, 施剑林 2008 无机材料报 **23** 1041]
- [11] Lutts G B, Denisov A L, Zharikov E V, Zagumennyi A I, Kozlikin S N, Lavrishchev S V, Samoylova S A 1990 *Opt. Quant. Electron.* **22** S269
- [12] Jiang B X, Zhao Z W, Xu X D, Song P X, Wang X D, Xu J, Deng P Z 2006 *J. Synthetic Crystals* **35** 757
- [13] Zhao S Z, Chen L, Zhang L, Zhang F J 2004 *Acta Photon. Sin.* **33** 133 (in Chinese) [赵圣之, 陈磊, 张路, 张福军 2004 光子学报 **33** 133]
- [14] Peng F, Zhang Q L, Wang X F, Zhang H L, Ding S J, Liu W P, Luo J Q, Sun D L, Sun G H 2016 *Acta Phys. Sin.* **65** 014211 (in Chinese) [彭方, 张庆礼, 王小飞, 张会丽, 丁守军, 刘文鹏, 罗建乔, 孙敦陆, 孙贵花 2016 物理学报 **65** 014211]
- [15] Mao Y L, Qiu H W, Xu J, Deng P Z, Gan F X 2001 *Acta Opt. Sin.* **21** 1264 (in Chinese) [毛艳丽, 邱宏伟, 徐军, 邓佩珍, 干福熹 2001 光学学报 **21** 1264]
- [16] Chen J K, Sun D L, Luo J Q, Xiao J Z, Kang H X, Zhang H L, Cheng M J, Zhang Q L, Yin S T 2013 *Opt. Lett.* **38** 1218

Spectral and laser properties of Nd:YSAG single crystal*

Lu Wan-Cheng¹⁾²⁾ Zhang Qing-Li^{1)†} Luo Jian-Qiao¹⁾ Ding Shou-Jun¹⁾²⁾ Dou Ren-Qin¹⁾
Peng Fang¹⁾ Zhang Hui-Li¹⁾ Wang Xiao-Fei¹⁾ Sun Gui-Hua¹⁾ Sun Dun-Lu¹⁾

1) (Key Laboratory of Photonic Devices and Materials of Anhui Province, Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics,
Chinese Academy of Sciences, Hefei 230031, China)

2) (University of Science and Technology of China, Hefei 230026, China)

(Received 7 April 2017; revised manuscript received 27 April 2017)

Abstract

In order to solve the problem of low segregation coefficient of Nd³⁺ ions in YAG crystal, Sc³⁺ ions are used to replace some Al³⁺ ions in YAG, so that the YAG cell becomes bigger, thereby the segregation coefficient of Nd³⁺ ion increases. In this paper, the spectra and laser characteristics of Nd:YSAG single crystal are studied. The (1.5 at.%) Nd³⁺:Y₃Sc₂Al₃O₁₂ (YSAG) laser crystal is grown by Czochralski method, and X-ray rocking curve shows that the crystal quality is good. The concentration of ions in Nd:YSAG is measured by an electronic probe. The segregation coefficient of Nd³⁺ ion is calculated to be 0.35, which is approximately twice as much as that of Nd³⁺ in YAG. The absorption and emission spectra are measured, which indicates that it can be pumped by an 808 nm-laser diode (LD). The strongest emission from the transition ⁴F_{3/2} → ⁴I_{11/2} of Nd:YSAG peaks at 1059 nm with an emission cross section of 1.03 × 10⁻¹⁹ cm², and the lifetime of ⁴F_{3/2} is about 253 μs, which indicates that Nd:YSAG has roughly an efficiency equal to that of Nd:YAG, but the laser upper level lifetime is longer than that of Nd:YAG, which is more favorable for Q-switched laser operation. The 808 nm-LD is used to pump Nd:YSAG rod of 2 mm × 2 mm × 6 mm, the laser operation with a threshold of 0.85 W and a maximum output power of 1.1 W is realized: the laser slope efficiency is 21.1%, and the optical conversion efficiency is 18.3%. All of the above results show that Nd:YSAG single crystal is a good solid state laser material, which is more favorable for Q-switched laser operation.

Keywords: Nd:YSAG, absorption, fluorescence, laser diode pumped solid-state laser

PACS: 42.55.Xi, 42.70.Hj, 42.70.-a, 81.10.-h

DOI: 10.7498/aps.66.154204

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 51502292, 61405206), the National Key R&D Program of China (Grant No. 2016YFB0402101), the Knowledge Innovation Program of the Chinese Academy of Sciences (Grant Nos. CXJJ-16M251, CXJJ-15M055), and the Anhui Provincial Natural Science Foundation, China (Grant No. 608085ME91).

† Corresponding author. E-mail: zql@aiofm.ac.cn