

· 学科进展 ·

无序激光晶体研究进展

于浩海 潘忠奔 张怀金* 王继扬

(山东大学晶体材料国家重点实验室, 济南 250100)

[摘要] 脉冲激光具有大能量、短脉宽和高峰值功率的特性,在军事和民用领域具有很多重要的需求和应用。大能量存储能力和宽光谱的激光材料是脉冲激光的理想选择。无序激光晶体结合了玻璃和晶体的特性,具有重要的应用前景。本文总结了石榴石和黄长石类无序激光晶体的生长、基本物理性能和脉冲激光应用进展,指出了该类晶体在脉冲激光技术及器件发展中的潜在应用价值及发展方向。

[关键词] 人工晶体;全固态激光;无序激光晶体;脉冲激光

DOI:10.16262/j.cnki.1000-8217.2015.04.004

自1960年7月美国休斯公司的T. H. Maiman博士成功研制出世界上第一台激光器以来,激光因其单色性好、相干性好、方向性好及高亮度等独特优势,已发展成一个重要的产业。特别是近年来,激光理论、各类激光功能材料和激光技术迅速发展,其应用已经覆盖了物理学、化学、生物学、电子学和技术科学各个学科领域,遍及工业、通讯、军事、医疗卫生及农业等国民经济乃至日常生活的各个方面^[1-5],成为一个国家综合国力的表现之一。

连续、调Q、锁模技术可以分别实现连续激光、短脉冲激光以及超短脉冲激光。通常,连续激光的平均功率可以达到W~kW量级;通过调Q技术获得的脉冲激光其脉冲宽度一般在ns~ μ s量级,脉冲能量在 μ J~mJ量级,峰值功率在kW~mW量级;而通过锁模激光技术获得的脉冲激光,其脉冲宽度可以短至ps~fs量级,脉冲能量在nJ~ μ J量级,峰值功率在kW量级。脉冲激光因具有极短的脉冲宽度以及极高的峰值功率,在激光微加工、生物医疗、强场激光与物质的相互作用、激光核聚变、光通信、激光成像等领域都获得广泛应用,成为激光研究50年发展历程中最活跃的方向之一。从理论上讲,大能量调Q激光需要激光材料具有大的能量存储能力即小发射截面和长荧光寿命;而受限于测不准原则,超短锁模激光要求激光介质具有宽发射谱线,所

以长期以来具有大能量存储和超宽发射光谱激光材料是脉冲激光研究的重点^[6]。

目前常用的固体激光基质主要有玻璃、陶瓷、晶体等几种基质。材料的结构决定其性能,玻璃具有完全无序的原子排列,因此其光谱的非均匀展宽效应使发射光谱线宽达到30—40 nm,可支持百飞秒以下脉冲输出,已在小功率密度军用和民用超短激光中得到实用^[7,8],但其完全无序的结构导致热机械性能较差,难实现高功率密度激光输出。陶瓷属于多晶,与晶体具有类似的性能。长程有序是晶体的本质之一,其结构具有完成性,决定其热机械性能较好,和较窄的光谱线宽,特别是对于应用广泛的铷离子激光,受到4f电子层的屏蔽,所获最短脉冲仅为ps量级,难满足fs激光需求。激光光谱宽度决定于均匀加宽和非均匀加宽,在固体材料中,前者主要由温度决定,后者则由晶格场起伏决定,因此拓展其非均匀加宽是实现宽发射光谱的重要技术。同时,激光介质的发射截面与发射谱宽成反比,宽光谱有利于能量存储能力的加大。借鉴于晶体和玻璃的结构与光谱特性,我们对无序激光晶体进行了深入研究,其结构介于传统晶体和玻璃之间:部分组成离子可在特定晶体格点的随机取代,使其兼具玻璃的非均匀加宽光谱和晶体的高热机械性能的双重优点,是脉冲激光包括调Q和锁模激光的一类潜在材料。

收稿日期:2015-03-31;修回日期:2015-05-28

* 通信作者,Email:huaijinzhang@sdu.edu.cn

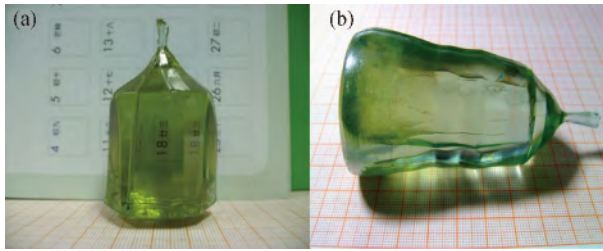


图 1 (a) Nd:CNGG 晶体; (b) Nd:CLNGG 晶体

本文主要介绍几种本课题组研究的几类代表性无序晶体的研究进展。

1 石榴石类无序激光晶体

该类晶体中较典型是钙铈镱石榴石(CNGG)和钙铈铈石榴石晶体(CLNGG)。以 CNGG 晶体为例,该晶体最早是由 N. A. Eskov 于 1985 年合成,具有石榴石的结构、立方晶系、空间群 $Ia\bar{3}d$ 、化学式可表示成 $C_3A_2D_3O_{14}$ ^[9]。晶体结构上的显著特点在于其八面体格位可同时被 Nb^{3+} 和 Ga^{3+} 的离子占据,形成微观晶格场的起伏,导致晶体结构的无序性。而 CLNGG 晶体是将 Li^+ 引入 CNGG 晶体结构可进一步增大其无序度,晶体结构与 CNGG 类似。从生长上说,与传统石榴石晶体 YAG 相比,CNGG 和 CLNGG 具有以下优点^[10-12]:熔点低于 1500 °C,可使用 Pt 金坩埚在无保护气氛下生长;生长过程无应力和杂质集中区,可获得大口径高质量晶体。

采用提拉法,分别生长了 Nd^{3+} 掺杂的 CNGG 和 CLNGG 晶体,照片如图 1(a)和(b)所示。室温下,Nd:CNGG 和 Nd:CLNGG 晶体的热导率分别为 $4.7 Wm^{-1}K^{-1}$ 和 $2.97 Wm^{-1}K^{-1}$,大于 Nd^{3+} 玻璃的热导率(一般为 $1 Wm^{-1}K^{-1}$ 左右)。从 Nd:CNGG 和 Nd:CLNGG 晶体的吸收和发射光谱可看出,Nd:CNGG 和 Nd:CLNGG 晶体吸收峰在 806 nm 附近,二者在该位置的半峰宽分别为 12 nm 和 13 nm,远大于 Nd:YAG 的半峰宽(2.1 nm)、与玻璃相当(12.7 nm)^[13],二者在 1060 nm 附近发射峰的半峰宽分别为 15.1 nm 和 16.6 nm,远大于 Nd:YAG($\sim 0.5 nm$)^[13],从理论上讲可获得超短锁模和大能量调 Q 激光输出。

实现了上述两种晶体的连续、调 Q 和锁模激光输出。在 Nd:CNGG 晶体中,在 15.62 W 的泵浦激光下,获得了最高输出 4.03 W 的连续激光,如图 2 所示。以 Cr^{4+} :YAG 为可饱和吸收体,获得了脉冲宽度为 12.9 ns、脉冲能量为 173.16 μJ 和峰值功率 12.3 kW 的调 Q 激光。通过光谱分析,我们可以看

到输出激光为双波长,分别位于 1059 nm 和 1061 nm^[14]。

以半导体饱和吸收镜锁模(SESAM)作为锁模元件,我们在 Nd:CNGG 晶体中获得了稳定的双波长连续锁模输出,对应的光谱和自相关曲线如图 3 所示。从图中可看出所得到的锁模光谱中心波长分

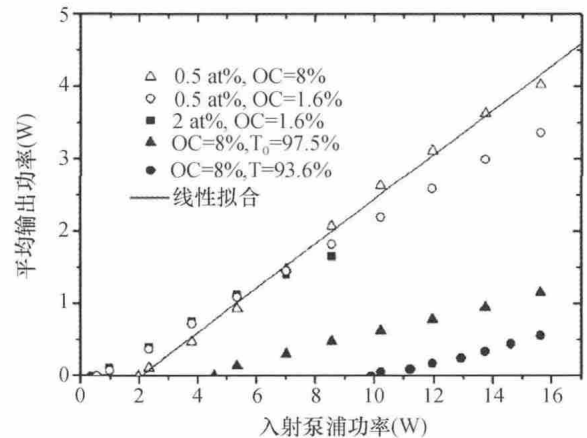


图 2 Nd:CNGG 晶体的连续和调 Q 激光
随入射泵浦功率的变化

T_0 为可饱和吸收体初始透过率,OC 为输出镜透过率^[14]

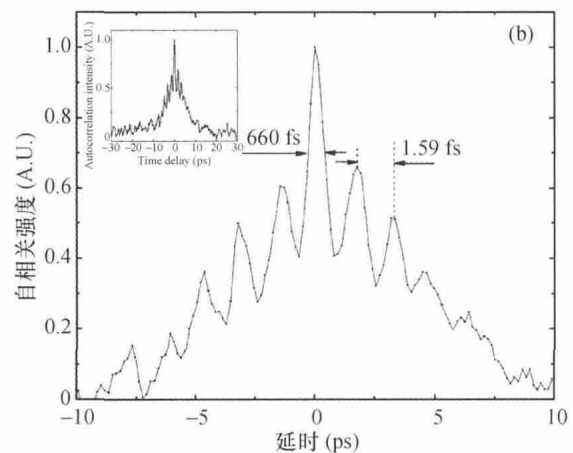
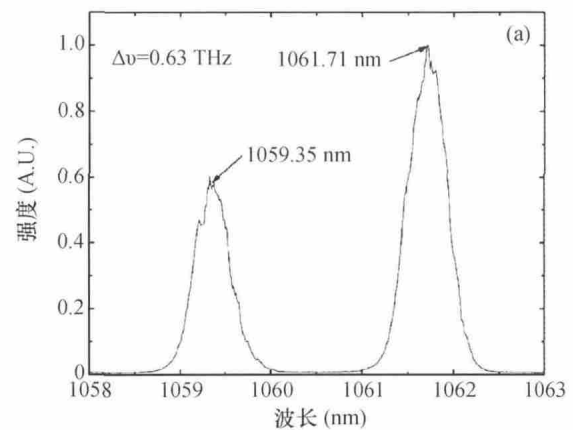


图 3 (a) Nd:CNGG 激光器 SESAM 锁模光谱^[4];
(b) Nd:CNGG 激光器 SESAM 锁模自相关曲线^[4]

别位于 1059.35 nm 和 1061.71 nm 处,二者的半峰宽都约为 0.5 nm;自相关曲线为两波长的拍频,其中心拍半宽为 660 fs^[4]。

在 Nd:CLNGG 晶体,连续和调 Q 激光结果如图 4(a) 所示。在 13.4 W 的泵浦激光下,获得了最大输出功率 3.81 W 的连续激光,斜效率为 30.3%。以 Cr⁴⁺:YAG 为可饱和吸收体,实现了脉冲能量为 199 μ J、脉冲宽度 12.3 ns 和峰值功率 16 kW 的调 Q 脉冲激光。通过分析激光光谱,可发现由于 Li⁺ 离子的存在,使其激光中心波长位于 1060 nm 处^[15]。

采用 SESAM 锁模技术,在 Nd:CLNGG 晶体中获得了稳定的连续锁模输出,对应的光谱和自相关曲线如图 4(b) 所示。从图中可看出其锁模光谱中心波长在 1061 nm 处、半峰宽为 1.8 nm,其自相

关曲线与双曲正割函数拟合较好,锁模脉冲的脉冲宽度约为 900 fs^[16]。与 Nd:CNGG 相比,其更短的锁模脉冲是由于 Li⁺ 的引入进一步拓宽了发射光谱引起的。

通过分析 Nd:CNGG 和 Nd:CLNGG 两晶体的发射光谱,如图 4(c) 所示,可看出两者互补。如果相互结合,可实现更短脉冲激光输出。通过将 Nd:CLNGG 和 Nd:CNGG 并列于锁模激光腔中,实现了 534 fs 的超短脉冲激光,锁模结果如图 4(d) 所示^[17]。该结果是当时最短 Nd³⁺ 离子掺杂无序晶体锁模脉冲,验证了无序激光晶体在超短 fs 脉冲中的应用前景,结合该晶体在生长及结构性能方面的优势,我们认为该类晶体在超短脉冲放大领域应该也有重要的潜在应用前景。

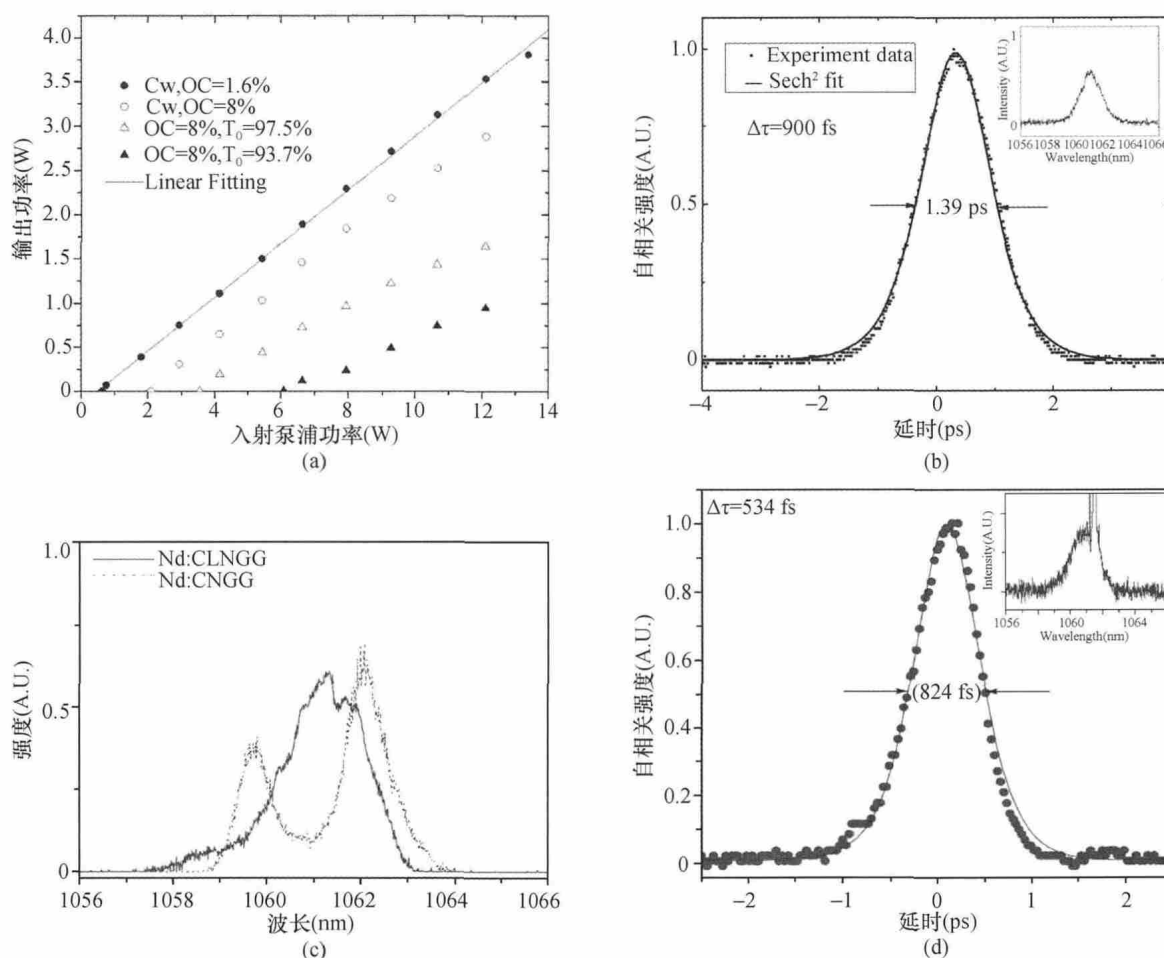


图 4 (a) Nd:CLNGG 晶体的连续和调 Q 激光随入射泵浦功率的变化 (T_0 为可饱和吸收体初始透过率, OC 为输出镜透过率)^[15]; (b) Nd:CLNGG 激光器 SESAM 锁模自相关曲线; 插图为 SESAM 锁模光谱^[16]; (c) Nd:CNGG 和 Nd:CLNGG 晶体锁模脉冲光谱^[17]; (d) Nd:CNGG/Nd:CLNGG 激光器 SESAM 锁模自相关曲线; 插图为 SESAM 锁模光谱^[17]

2 黄长石类无序激光晶体

黄长石是一类重要的多功能晶体,具有压电、非线性等性能,特别是其中的 ABC_3O_7 类具有无序结构,其中, $A = Ca, Sr, Ba$; $B = La, Gd$; $C = Ga, Al$, 空间群是 $P\bar{4}2_1m$, A 离子和 C 离子可在八面体格位共存,通过激活离子掺杂可使其成为无序激光晶体,同时该晶体的中级对称性,可实现偏振激光输出。针对该类晶体,采用提拉法生长了高质量的 $Nd: SrLaGa_3O_7$ 、 $Nd: SrGdGa_3O_7$ 和 $Nd: BaLaGa_3O_7$ 晶体,照片如图 5 所示,其基本物理性能如表 1 所示^[18, 19]。从表中可以看到,三种晶体的热导率都优于 Nd^{3+} 玻璃。对于上述三种无序晶体的光谱性质的研究表明, $Nd: SrLaGa_3O_7$ 、 $Nd: SrGdGa_3O_7$ 和 $Nd: BaLaGa_3O_7$ 晶体具有偏振吸收的特性,并且具有大能量存储能力,满足调 Q 激光的要求,而其宽的发射谱线使这种材料适合于锁模和调谐激光器中的应用。

以 $Nd: SrLaGa_3O_7$ 、 $Nd: SrGdGa_3O_7$ 和 $Nd: BaLaGa_3O_7$ 三种晶体为激光增益介质均实现了连续激光输出,其最大输出功率分别为 3.88 W、1.71 W、0.57 W。特别需要指出的是,在 $Nd: SrLaGa_3O_7$ 连

续激光实验中发现,由于其宽发射光谱,激光波长随泵浦功率增加引起的温度变化出现红移,从而成为功率调节的可调谐激光,其调谐范围为 1.42 nm。

利用上述黄长石结构晶体中大的克尔效应和超宽光谱,在 $Nd: SrGdGa_3O_7$ 晶体中首次实现了自锁模脉冲激光输出,其重复频率为 80 GHz,在入射泵浦功率为 6.1 W 时,输出功率达到 415 mW,光转化效率为 6.8%,斜效率为 8.1%,相应的实验装置及结果如图 6 所示。未有色散补偿的情况下,其锁模脉冲宽度达到 616 fs^[20]。这是国际首次在 GHz 自锁模领域获得 fs 输出,该锁模激光在通信领域具有重要的应用需求与广泛的应用前景。

以 SESAM 作为可饱和吸收体,在 $Nd: BaLaGa_3O_7$ 和 $Nd: SrLaGa_3O_7$ 晶体中获得了稳定的被动连续锁模输出,对应的自相关曲线分别如图 7 所示。 $Nd: BaLaGa_3O_7$ 晶体中得到的锁模光谱中心波长位于 1076 nm 附近处,半峰宽约为 5 nm,脉冲宽度约为 290 fs^[21]。在 $Nd: BaLaGa_3O_7$ 晶体中得到的锁模光谱中心波长位于 1061 nm 附近处,半峰宽约为 3.6 nm,脉冲宽度约为 378 fs^[22]。该类黄长石无序激光晶体锁模脉冲宽度与 Nd^{3+} 玻璃相当,证明了其在 fs 激光中的潜在应用。



图 5 $Nd: SrGdGa_3O_7$ (a)、 $Nd: SrLaGa_3O_7$ (b) 和 $Nd: BaLaGa_3O_7$ (c) 晶体^[18]

表 1 $Nd: SrLaGa_3O_7$ 、 $Nd: SrGdGa_3O_7$ 和 $Nd: BaLaGa_3O_7$ 晶体的基本性能

晶体	$Nd: SrLaGa_3O_7$		$Nd: SrGdGa_3O_7$		$Nd: BaLaGa_3O_7$	
	a	c	a	c	a	c
热膨胀系数 ($10^{-6} K$)	5.96	5.66	5.32	5.65	5.49	6.34
比热 ($cal mol^{-1} K^{-1}$)	0.401		0.419	0.365		
密度 ($g. cm^{-3}$)	5.251		5.643		5.531	
导热系数 ($Wm^{-1} K^{-1}$)	1.95	1.7	1.59	1.4	1.96	1.72
808 nm 的吸收峰宽度 (nm)	8		18		15	
1.06 μm 的发射峰宽度 (nm)	14		24		27	
荧光寿命 (μs)	310		298		311	

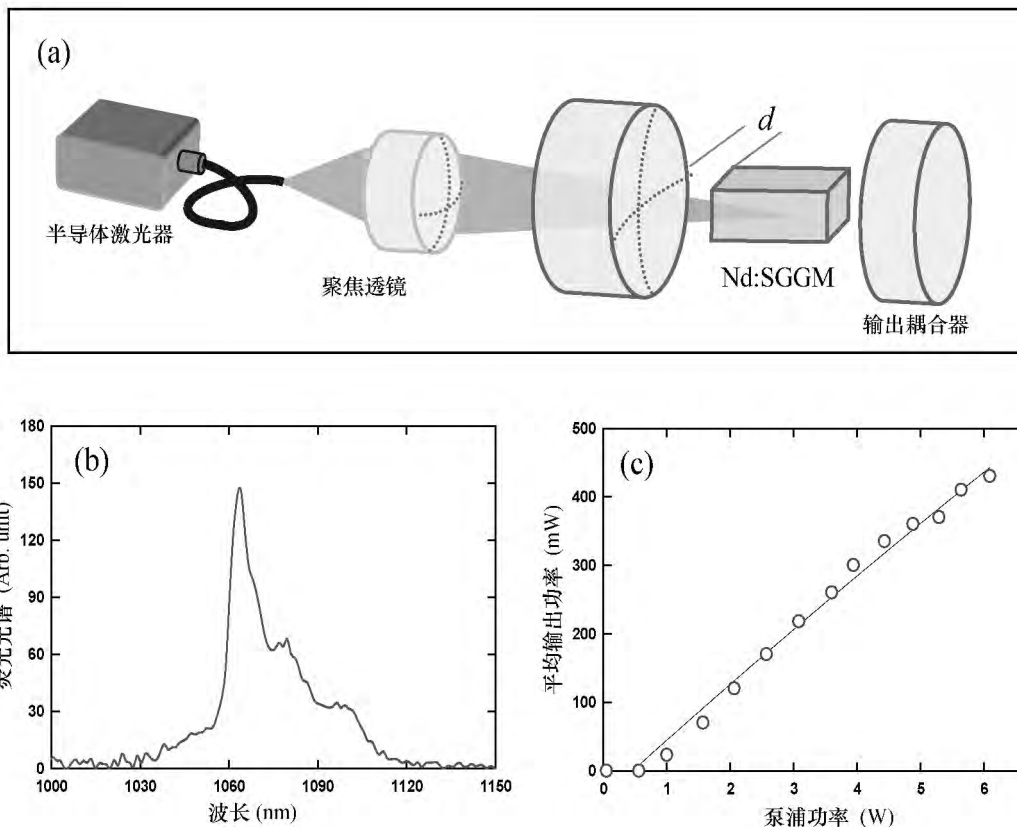


图 6 (a) 自锁模激光系统实验装置; (b) 室温下 ${}^4F_{3/2} \rightarrow {}^4I_{11/2}$ 能级发射光谱; (c) 平均功率输出结果^[20]

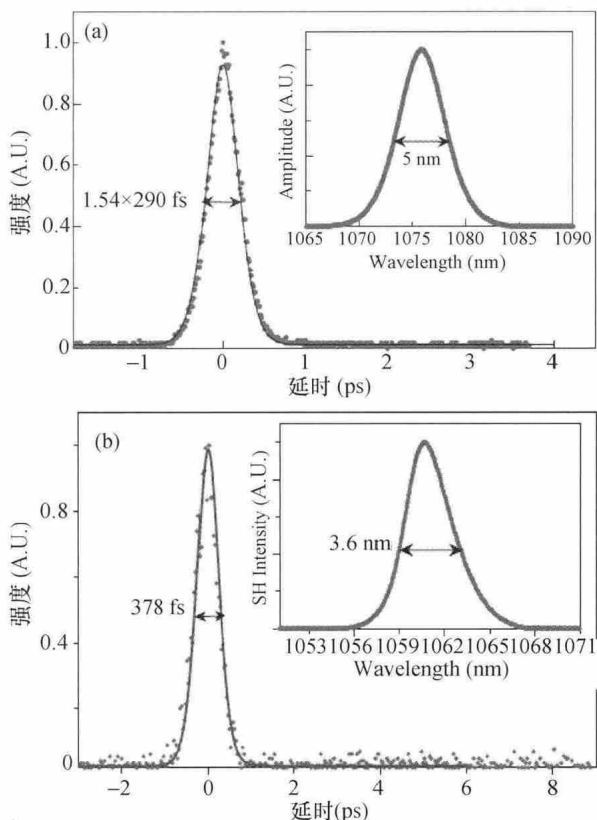


图 7 (a) Nd:BaLaGa₃O₇ 激光器 SESAM 锁模自相关曲线; 插图为 SESAM 锁模光谱^[21]; (b) Nd:SrLaGa₃O₇ 激光器 SESAM 锁模自相关曲线; 插图为 SESAM 锁模光谱^[22]

3 结 语

针对脉冲激光对高储能、宽光谱激光增益介质的需求,结合玻璃的无序结构和晶体的优良热机械性能,发展了石榴石和黄长石类无序激光晶体,拓宽了晶体发射光谱,实现了其综合性能表征,获得了大能量调 Q 和 fs 脉冲锁模激光输出,证明了其优良的脉冲激光性能,所获无序激光晶体及激光器件在通信、脉冲放大、强场物理、医疗等领域具有潜在的应用价值,丰富了可用激光介质学科种类。但晶体结构的无序度、晶体物理性能、脉冲激光应用间关系的基本科学问题仍需进一步深入探索。

致谢 本研究得到国家自然科学基金(50672050, 51025210)的资助。部分研究工作由上海交通大学的钱列加教授课题组、台湾国立交通大学的 Y. F. Chen 教授、新加坡南洋理工大学的 Dingyuan Tang 教授课题组和德国 Max Born Institute for Nonlinear Optics and Short Pulse Spectroscopy 的 V. Petrov 博士课题组完成的。

参 考 文 献

- [1] Keller U. Recent developments in compact ultrafast lasers. *Nature*, 2003, 424: 831—838.
- [2] Basiev TT, Es'kov NA, Karasik, AY, Osiko VV, Sobol AA, Ushakov SN, Helbig M. Disordered garnets $\text{Ca}_3(\text{Nb, Ga})_5\text{O}_{12}:\text{Nd}^{3+}$ —prospective crystals for powerful ultra-short-pulse generation. *Opt Lett*, 1992, 17: 201—203.
- [3] Cundiff ST, Weiner AM. Optical arbitrary waveform generation. *Nat Photon*, 2010, 4: 760—766.
- [4] Xie GQ, Tang DY, Luo H, Zhang HJ, Yu HH, Wang JY, Tao XT, Jiang MH, Qian LJ. Dual-wavelength synchronously mode-locked Nd:CNGG laser. *Opt Lett*, 2008, 33: 1872—1874.
- [5] Sibbett W, Lagatsk AA, Brown CTA. The development and applications of femtosecond laser systems. *Opt Express*, 2012, 20: 6989—7001.
- [6] Ell R, Morgner U, Kärtner FX, Fujimoto JG, Ippen EP, Scheuer V, Angelow G, Tschudi T, Lederer MJ, Boiko A, Luther-Davies B. Generation of 5-fs pulses and octave-spanning spectra directly from a Ti:sapphire laser. *Opt Lett*, 2001, 26: 373—375.
- [7] Au JAD, Morier-Genoud DKF, Moser M, Keller U. 60-fs pulses from a diode-pumped Nd:glass laser. *Opt Lett*, 1997, 22: 307—309.
- [8] Agnesi A, Greborio A, Pirzio F, Reali G. 80-fs Nd:silicate glass laser pumped by a single-mode 200-mW diode. *Opt Express*, 18, 2010: 10098—10103.
- [9] Eskov NA, Faerman MD, Surova NA, Ostrovsci IV, Groshenko NA. Continuous series of solid-solutions with the garnet structure in the $\text{CaO-Nb}_2\text{O}_5\text{-Ga}_2\text{O}_3\text{-GeO}_2$ system. *Sov Ukr Chem Mater*, 1985, 5: 1457.
- [10] Voronko YK, Sobol AA, Karasik AY, Eskov NA, Rabochkina PA, Ushakov SN. Calcium niobium gallium and calcium lithium niobium gallium garnets doped with rare earth ions—effective laser media. *Opt Mater*, 2002, 20: 197—209.
- [11] Lupei A, Lupei V, Ragobete L, Osiac E, Gheorghe L, Petraru A. Inhomogeneous broadening effects in optical spectra Nd^{3+} in CNGG and CLNGG. *CFH2, Conference Digest, CLEO-2000*: 385.
- [12] Lupei A, Lupei V, Gheorghe L, Rogobete L, Osiac E, Petraru A. The nature of nonequivalent Nd^{3+} centers in CNGG and CLNGG. *Opt Mater*, 2001, 16: 403—411.
- [13] Naito K, Yokotani A, Sasaki T, Okuyama T, Yamanak M, Nakatsuka M, Nakai S, Fukuda T, Timoshechkin MI. Efficient laser-diode-pumped neodymium-doped calcium-niobium-gallium-garnet laser. *Appl Optics*, 1993, 32: 7387—7390.
- [14] Yu HH, Zhang HJ, Wang ZP, Wang JY, Yu YG, Shi ZB, Zhang XY, Jiang MH. High-power dual-wavelength laser with disordered Nd:CNGG crystals. *Opt Lett*, 2009, 34: 151—153.
- [15] Yu HH, Zhang HJ, Wang ZP, Wang JY, Yu YG, Shi ZB, Zhang XY, Jiang MH. Continuous-wave and passively Q-switched laser performance with a disordered Nd:CLNGG crystal. *Opt Express*, 2009, 17: 19015—19020.
- [16] Xie GQ, Tang DY, Tan WD, Luo H, Zhang HJ, Yu HH, Wang JY. Subpicosecond pulse generation from a Nd:CLNGG disordered crystal laser. *Opt Lett*, 2009, 34: 103—105.
- [17] Xie GQ, Qian LJ, Yuan P, Tang DY, Tan WD, Yu HH, Zhang HJ, Wang JY. Generation of 534 fs pulses from a passively mode-locked Nd:CLNGG-CNGG disordered crystal hybrid laser. *Laser Phys Lett*, 2010, 7: 483—486.
- [18] Zhang YY, Zhang HJ, Yu HH, Wang JY, Gao WL, Xu M, Sun SQ, Jiang MH, Boughton RI. Synthesis, growth, and characterization of Nd-doped $\text{SrGdGa}_3\text{O}_7$ crystal. *J Appl Phys*, 2010, 108: 063534.
- [19] Zhang YY, Zhang HJ, Yu HH, Sun SQ, Wang JY, Jiang MH. Characterization of Disordered Melilite Nd: $\text{SrLaGa}_3\text{O}_7$ crystal. *IEEE J Quantum Electron*, 2011, 47: 1506—1513.
- [20] Chen YF, Liang HC, Tung JC, Su KW, Zhang YY, Zhang HJ, Yu HH, Wang JY. Spontaneous subpicosecond pulse formation with pulse repetition rate of 80 GHz in a diode-pumped Nd: $\text{SrGdGa}_3\text{O}_7$ disordered crystal laser. *Opt Lett*, 2012, 37: 461—463.
- [21] Agnesi A, Pirzio F, Tartara L, Ugolotti E, Zhang HJ, Wang JY, Yu HH, Petrov V. Tunable femtosecond laser based on the $\text{Nd}^{3+}:\text{BaLaGa}_3\text{O}_7$ disordered crystal. *Laser Phys Lett*, 2014, 11: 035802.
- [22] Agnesi A, Pirzio F, Tartara L, Ugolotti E, Zhang HJ, Wang JY, Yu HH, Petrov V. 378 fs pulse generation with $\text{Nd}^{3+}:\text{SrLaGa}_3\text{O}_7(\text{Nd;SLG})$ disordered crystal. *Laser Phys Lett*, 2013, 10: 105815.

Investigation of disordered laser crystals

Yu Haohai Pan Zhongben Zhang Huaijin Wang Jiyang

(State Key Laboratory of Crystal Materials, Shandong University, Ji'nan 250100)

Abstract Pulsed lasers have important applications in military and in our daily life, due to their large energy, short pulse width and high peak power. The laser crystals with large energy storage properties and broad spectra are favorable by pulsed lasers. Disordered crystals combining the advantages of glass and crystals have promising applications in the pulsed laser field. In this paper, the garnet and melilite disordered crystals are reviewed including their crystal growth, basic physical properties and pulsed laser performance, and their potential values and possible development directions in the pulsed lasers are highlighted.

Key words crystals; solid-state lasers; disordered laser crystals; pulsed lasers