

激光材料科学与技术前沿

徐 军 主编

上海交通大学出版社

内 容 提 要

本书以最近 10 余年来激光材料的研究热点——LD 泵浦全固态激光材料为主题,结合作者的研究成果,对这类激光材料国内外最新研究成果进行较全面和系统的总结,并对未来发展趋势进行展望。按结构形态(晶态和非晶态)和功能特性进行分类,分别总结了不同材料的制备、缺陷、结构、能级分裂、光谱和激光特性。特别着重论述激光材料的微观结构、晶格点阵、光谱性能和激光性能之间相互作用的规律和物理机理,显示我国在该领域中的研究水平。

本书是一本着重于基础研究的科学专著,对从事激光材料、固体物理、激光技术基础研究的科技人员具有参考价值,也可供大专院校有关专业的师生学习参考。

图书在版编目(CIP)数据

激光材料科学与技术前沿/徐军主编. —上海:上海

交通大学出版社, 2007

(材料科学前沿文库)

ISBN 978-7-313-04733-5

I. 激... II. 徐... III. 激光材料—研究

IV. TN244

中国版本图书馆 CIP 数据核字(2007)第 038719 号

本书出版由上海科技专著出版资金资助

激光材料科学与技术前沿

徐 军 主编

上海交通大学出版社出版发行

(上海市番禺路 877 号 邮政编码 200030)

电话 64071208 出版人 韩建民

昆山市亭林印刷有限责任公司 印刷 全国新华书店经销

开本 787mm×1092mm 1/16 印张:22.75 字数 561 千字

2007 年 4 月第 1 版 2007 年 4 月第 1 次印刷

ISBN978-7-313-04733-5/TN·124 定价 60.00 元

版权所有 侵权必究

出版说明

科学技术是第一生产力。21 世纪 ,科学技术和生产力必将发生新的革命性突破。

为贯彻落实“科教兴国”和“科教兴市”战略 ,上海市科学技术委员会和上海市新闻出版局于 2000 年设立“上海科技专著出版资金” ,资助优秀科技著作在上海出版。

本书出版受“上海科技专著出版资金”资助。

上海科技专著出版资金管理委员会

编委会名单

主编 徐 军

编委 潘裕柏 王士维 蒋丹宇 陈丹平 彭 波

仇晓明 韦 玮 黄艺东 罗遵度 董永军

魏志义 贾玉磊 苏良碧 徐晓东 李 静

王继扬 宋 峰 韩 琳 刘淑静 李红军

赵广军

前 言

激光材料是激光技术发展的核心和基础,具有里程碑的意义和作用(“一代材料、一代器件”)。20世纪60年代第一台红宝石晶体激光器问世,激光诞生;70年代掺钕钇铝石榴石固体激光开始大力发展;80年代钛宝石晶体,使超短、超快和超强激光成为可能,飞秒激光科学技术蓬勃发展,并渗透到各基础和应用学科领域;90年代碲酸钕晶体,固体激光的发展进入新时期——全固态激光科学技术……进入新世纪,20世纪60年代初出现的激光和激光科学技术,正以其强大的生命力推动着光电子技术和产业的发展。激光材料也在单晶、玻璃、光纤、陶瓷等四方面全方位迅猛展开,如微-纳米级晶界,完整性好、制作工艺简单的微晶激光陶瓷和结构紧凑、散热好、成本低的激光光纤,正在向占据激光晶体首席达40年之久的Nd:YAG发出强有力的挑战。激光材料也已从最初的几种基质材料发展到数十种,是受到各国政府、科学界乃至企业界高度重视的领域。

在此背景下,2005年11月15~16日在上海举行了第66期东方科技论坛学术研讨会,论坛主题为“晶态和非晶态激光材料及其应用战略”。中国科学院上海光学精密机械研究所干福熹院士、徐军研究员、山东大学蒋民华院士和天津大学姚建铨院士担任大会执行主席,并与中材人工晶体研究院沈德忠院士、中国科学院上海光学精密机械研究所范滇元院士和中国科学院北京理化技术研究所吴以成院士共同主持了论坛学术报告会和专题讨论会。

本次研讨会汇聚了全国范围内该领域的精英专家,参加本次研讨会的代表有来自中科院上海光学精密机械研究所、山东大学、中科院上海硅酸盐研究所、中科院福建物质结构研究所、天津大学、中材人工晶体研究院、中科院北京理化技术研究所、中科院物理研究所、中国电子科技集团公司第十一研究所、复旦大学、南开大学、华东师范大学、长春理工大学、中国工程物理研究院、上海大学、烽火通信科技股份有限公司、江苏阿尔发光电科技有限公司、中科院基础局、国家自然科学基金委、上海市科技项目管理中心等单位的近60位专家、学者。

本次研讨会分别就21世纪人工晶体的发展战略,传统激光晶体与激光玻璃的发展规律和趋势,具有微纳结构的微晶激光陶瓷、非晶态激光光纤和光子晶体光纤面临的研制难题和发展策略,国家重大激光工程对激光材料的需求和牵引等专题作了报告,并展开了广泛而深入的讨论。在本次研讨会的基础上,我们组织出版了《激光材料科学与技术前沿》一书。

本书主要由参加本次研讨会的部分中青年专家、学者执笔。本书按结构形态(晶态和非晶态)和功能特性进行分类,分别总结了不同激光材料的制备、缺陷、结构、能级分裂、光

谱和激光特性。特别着重论述激光材料的微观结构、晶格点阵、光谱性能和激光性能之间相互作用的规律和物理机理。同时,本书也是作者所在集体在激光材料领域最近几年的研究成果的总结。通过全面而广泛地引用国内外公开发表的研究结果,以及最新的研究进展,力求使本书具有系统性、完整性和新颖性。但由于作者了解的面和专业知识的局限性,可能遗漏了不少重要内容,希望读者,特别是从事激光材料研究、开发和生产的专业人士指正。

编著者

2006 年 12 月于上海

1 激光晶体材料

1.1 引言

激光材料是激光技术发展的核心和基础,具有里程碑的意义和作用。特别是激光晶体在激光技术发展的各个关键阶段均起了举足轻重的作用:20世纪60年代第一台红宝石($\text{Cr}:\text{Al}_2\text{O}_3$)晶体激光器问世,激光诞生^[1];70年代掺钕钇铝石榴石($\text{Nd}:\text{YAG}$)晶体^[2]问世,使固体激光开始大力发展;80年代掺钛蓝宝石($\text{Ti}:\text{Al}_2\text{O}_3$)晶体问世,使超短、超快和超强激光成为可能,飞秒(fs)激光技术蓬勃发展并渗透到各基础和应用学科领域^[3];90年代掺钕钒酸钇($\text{Nd}:\text{YVO}_4$)晶体^[4]问世,使固体激光的发展进入新时期——全固态激光技术……。进入21世纪,上世纪60年代初出现的激光和激光技术,正以其强大的生命力推动着光电子技术和产业的发展,激光材料也在单晶、玻璃、光纤、陶瓷等4方面全方位迅猛展开,如微纳米级晶界、完整性好、制作工艺简单的多晶激光陶瓷^[5]和结构紧凑、散热好、成本低的激光光纤^[6],正在向占据激光晶体首席达40年之久的 $\text{Nd}:\text{YAG}$ 发出强有力的挑战。“热容”激光、“超快”激光等新概念、新技术也不断涌现,“流体”、“有机”、“纳米”、“光子晶体”激光等面临突破,受到各国政府、科学界乃至企业界的高度重视。

成为世界先进制造业、信息产业强国是我国21世纪的发展战略目标,实现该目标的关键之一是必须能提供基础性的激光材料及其元器件。我国在科研、先进制造业、能源、医疗、国防等众多领域亦将拥有规模巨大的激光及其元器件的应用市场需求。但是目前的现状是:①高技术含量、高附加值的激光器基本从国外进口;②军用“杀手锏”激光武器仍然处于跟踪、模仿阶段,其中主要原因之一是我国对激光器的核心和基础——激光材料的基础研究薄弱,总体上仍然摆脱不了“跟”的状态;③高能强激光武器、超短、超快和超强激光及其在科学技术中的应用,与DPL全固态激光等三个方向已列入我国《国家中长期科学和技术发展规划》。特别是“惯性约束聚变点火工程(2020年)”已确定为《国家中长期科学和技术发展规划》的16项重大专项之一。

围绕激光和光电子产业中的关键性、基础性、带动性技术——激光材料的基础科学问题进行系统的研究,对我国未来高技术产业和国防建设有“不受制于人”的重大战略意义和现实意义。为此,2005年11月15~16日第66期东方科技论坛《晶态和非晶态激光材料及其应用战略》在上海召开,包括8位院士在内的近40位全国范围内激光材料领域的精英专家和激光、激光工程专家一致呼吁,把激光材料的基础科学研究作为国家科技发展战略目标之一,国家和地方各部门应加大科研投入,发挥我国在晶体生长工艺等方面的优势,联合起来,在若干前沿和关键领域取得突破^[7]。

1.2 激光晶体的现状和发展趋势

目前为止,实用化的激光晶体也已从最初的几种基质材料发展到数十种,并在各个方面获得了实际应用。但就其应用范围和广度来说,主要有“三大基础激光晶体”,即掺钕钇铝石榴石(Nd:YAG)、掺钕钒酸盐(Nd:YVO₄)和掺钛蓝宝石(Ti:Al₂O₃)晶体。其中:中、高功率激光应用主要是 Nd:YAG,低功率小型化激光应用主要是 Nd:YVO₄,可调谐、超快激光应用主要是 Ti:Al₂O₃。在以上“三大基础激光晶体”及其相关材料方面,我国科学家在过去 40 余年中也取得了重要成果:如“色心”YAG^[8-9]、“黄棒”Ce:Nd:YAG^[10]、Cr⁴⁺:Yb:YAG^[11-12]、Ti:Al₂O₃ 温梯法晶体生长技术^[13-14]和 Nd:YVO₄ 晶体生长技术突破等^[15]。特别是我国 Nd:YVO₄ 晶体生长技术的突破是对国际激光技术的重大贡献^[4]。“色心”YAG 晶体(后被确认为 Cr⁴⁺:YAG)已被国际上广泛应用于各类 1μm 波段激光的被动调 Q 开关,在激光打标、测距和加工等领域获得实际应用,它的发现、发表和应用要比俄罗斯和美国早 5 年以上^[16-17]。

纵观激光晶体材料的应用现状和发展前景,今后激光晶体的主要发展趋势是需迫切发展如下 4 个方面(图 1-1),并将取得突破和实际应用:①面向全色显示、光存储、光刻等应用的蓝绿紫和可见光激光晶体;②面向人眼安全、遥感、光通信、医疗等应用的中红外激光晶体;③面向先进制造技术、“新概念”激光武器等应用的 1μm 波段高功率、大能量激光晶体;④DPL 超快激光增益和放大介质晶体。以上 4 个方向中,高功率、大能量全固态激光晶体材料和 DPL 超快激光晶体材料又是覆盖其他方向、带有共性基础科学问题的关键方向。

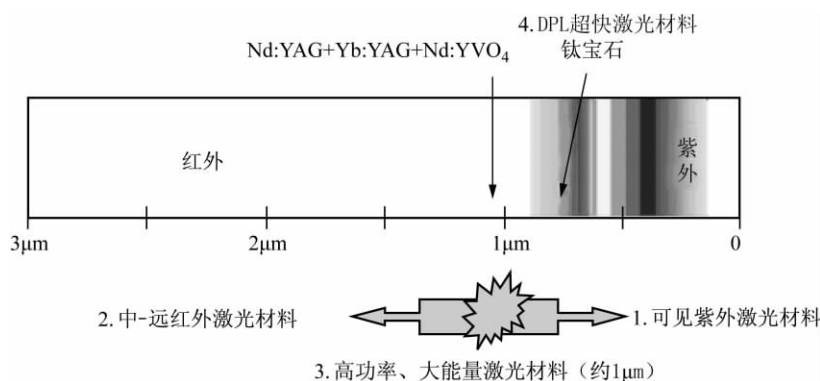


图 1-1 激光晶体材料的 4 大发展方向

1.2.1 蓝绿紫和可见光激光材料

目前实现蓝绿紫和可见光波段激光均采用间接的手段(非线性倍频),至今尚未有合适的材料,但预计将首先在光纤或晶体中实现高效上转换激光输出。目前,采用激光晶体产生可见光激光的主要途径有:①LD 泵浦的腔内倍频 1μm 波段激光;②自倍频激光晶体;③近红外 LD 泵浦上转换可见光激光等。LD 泵浦腔内倍频 Nd³⁺ 激光是目前最成熟的一种技术,一般采用 Nd:YLF 或 Nd:YVO₄ 晶体作为激光介质,KTP 或 LBO 为倍频材料,产生 532nm 绿色激光。Nd:YAB、Yb:YAB 自倍频绿光激光器也是目前性能较好的激光光源,用自倍频激光器实现绿光输出比腔内倍频激光器在原理上简单,是一种比较实用和经济的方法。与 Nd:YAB 相比,

Yb :YAB 由于在倍频波段没有自吸收,因此是最有希望获得实用化的自倍频晶体,当前存在的主要问题是晶体质量较差。以 Er^{3+} 、 Ho^{3+} 、 Tm^{3+} 为激活离子的红外泵浦上转换可见光激光具有良好的应用前景,一直是人们努力研究的方向。早在 1971 年, Bell 实验室的 Johnson 等采用 960nm 泵浦 Yb^{3+} : Er^{3+} : BaY_2F_8 和 Yb^{3+} : Ho^{3+} : BaY_2F_8 晶体分别获得了 670nm 和 551.5nm 的可见光激光发射^[18]。1997 年,采用钛宝石泵浦 Er^{3+} : Yb^{3+} : LiYF_4 获得了 37mW 的 551nm 激光输出^[19]。2002 年,采用钛宝石泵浦 Er^{3+} : LiLuF_4 获得了 213mW 的绿色激光输出,斜效率为 35%^[20]。一般情况下,基质声子能量越低越有利于能量上转换发光,在 Ba_2ErCl_7 和 $\text{Cs}_3\text{Er}_2\text{Cl}_9$ 等新晶体中获得了强度比 Er : LiYF_4 大两个数量级的上转换绿光^[21]。

1.2.2 中红外激光材料

2 ~ 5 μm 的中红外波段覆盖 H_2O 、 CO_2 等几个重要的分子吸收带,在医学、遥感、激光雷达和光通信等方面有着重要的应用。激光波长位于这一波段的激活离子主要有 Fe^{2+} 、 Cr^{2+} 、 Tm^{3+} 、 Er^{3+} 、 Ho^{3+} 等离子,通常采用的基质晶体主要有 ZnSe、YAG 和 LiYF_4 。1.55 μm 的铟玻璃和掺 Er、Tm、Ho 的 2 μm 波段医疗用晶体激光已实用化,但更高效率的 DPL1.55 μm 、2 μm 和 3 ~ 5 μm 波段的新晶体和光纤材料是中红外激光发展的瓶颈。

早在 1965 年, Johnson 等人在贝尔(Bell)实验室就首次实现钨灯泵浦 Tm :YAG 晶体产生激光振荡^[22],由于当时振荡是在低温条件下(77K 和 85K)进行的,阈值很高,为 200 ~ 500J,因此 Tm :YAG 激光器的进一步研究没有引起重视。1997 年,美国利弗莫尔国家实验室采用 805nm 的 LD 端面泵浦 Tm :YAG 获得了 115W 的 2 μm 连续激光输出,斜效率高达 40%^[23]。但 Tm :YAG 晶体的各吸收带都很窄(~ 4nm),LD 泵浦需要很好的冷却系统。同时, Tm :YAG 晶体的激光性能受温度影响很大,温度猝灭现象较严重,对激光晶体也需要采用良好的冷却方式。

Ho^{3+} :YAG 性质类似于 Tm^{3+} :YAG,但无法采用高亮度的 LD 进行泵浦。位于 Ho^{3+} 吸收带内发射波长为 1.9 μm 的 LD,具有非常宽的发射带(> 12nm)和低的亮度,因此不能与 Ho :YAG 有效耦合。采用 Tm^{3+} 为敏化剂的 Tm :Ho :YAG 在 LD 泵浦作用下 2.1 μm 平均输出功率达 10W,但存在严重的热透镜效应。2000 年, Budni 等采用 LD 泵浦的输出功率为 36W 的 Tm :YLF 激光器共振泵浦 Ho :YAG 获得 19W 的连续激光输出^[24]。采用合适的离子组合或基质晶体实现 LD 泵浦的高效率 Ho^{3+} 激光运转存在很大的发展空间。

Er^{3+} 除了 1.5 μm 激光外, 3 μm 波段激光也被广泛应用。1996 年, LD 泵浦 Er(15%) :YLF 获得 1.1W 的 2.8 μm 的激光输出,斜效率为 35%^[25]。LD 泵浦 Er(50%) :YAG 也获得了 1.15W 的 2.94 μm 激光^[26]。为了获得 Er^{3+} 的 3 μm 激光,一个必要的条件是必须高浓度掺杂(一般 > 10 at. %^{*})。这是因为低浓度掺杂使 Er^{3+} 离子 3 μm 激光的上能级 $^4\text{I}_{11/2}$ 寿命小于下能级 $^4\text{I}_{13/2}$ 激光发射是自终止的。当掺杂浓度增加时,由于 Er^{3+} 离子之间的交叉弛豫作用,激光上、下能级的寿命均下降,而后的下降速率大于前者。因此,当 Er 离子的浓度增加到一定程度时,下能级寿命变得小于上能级,从而有利于 3 μm 激光运转。众所周知, Er 离子高浓度掺杂条件下存在强烈的能量上转换,因此激光效率必然受到限制。可以设想,采用合适的去激发

* at. % 为原子百分浓度。

离子共掺(如 Ce^{3+})与 Er 离子的 $^4\text{I}_{13/2}$ 能级形成共振能量转移,可以大幅度地降低该能级的寿命,从而在适中的掺杂浓度下实现 Er 离子 $3\mu\text{m}$ 高效的激光运转。

1.2.3 $1\mu\text{m}$ 波段高功率、大能量激光材料

此类材料以石榴石($\text{Nd}:\text{YAG}$ 、 $\text{Yb}:\text{YAG}$)晶体和陶瓷为主,还有 $\text{Nd}:\text{GGG}$ 晶体和 Yb -玻璃光纤。与 $\text{Nd}:\text{GGG}$ 相比, $\text{Nd}:\text{YAG}$ 在热性能和物化性能方面较卓越,如其热透镜效应仅是 $\text{Nd}:\text{GGG}$ 的 $1/2$ 。热应力极限下, $\text{Nd}:\text{YAG}$ 的激光输出理论值比 $\text{Nd}:\text{GGG}$ 高出 $1/3$ 。如能突破 $\text{Nd}:\text{YAG}$ 晶体生长中心无应力集中区——即“核芯”区,意义将十分重大,可避开美国利弗莫尔(LLNL)国家实验室的“高能量猝发固体热容激光器”专利^[27],且技术路线好于 $\text{Nd}:\text{GGG}$ 。2006 年 3 月,美国利弗莫尔国家实验室用 LD 泵浦的 $\text{Nd}:\text{YAG}$ 陶瓷激光器的输出功率已经达到 67kW ,这是目前国际上最高功率的固体热容激光器^[28]。2004 年,德国 Trumpf 公司的 $\text{Yb}:\text{YAG}$ 圆盘激光器的输出功率已经达到 6kW 。国内:中国科学院上海光学精密机械研究所(以下简称为中科院上海光机所)于 1995 年前后在国内率先开展 $\text{Yb}:\text{YAG}$ 晶体研究^[29,30],并与法国 LULI 实验室联合正在发展 LD 泵浦 $\text{Yb}:\text{YAG}$ 平均输出 kW 级、 $100\text{J}(\text{ns})$ 的 LUCIA 激光系统,2005 年实现 $\text{Nd}:\text{YAG}$ 的大于 2kW 输出。2005 年清华大学 LD 泵浦 $\text{Yb}:\text{YAG}$ 晶体获得大于 1kW 的连续激光输出^[31]。2006 年中国工程物理研究院也已报道 LD 泵浦 $\text{Nd}:\text{YAG}$ 固体热容激光输出大于 3kW 。上海硅酸盐研究所对激光陶瓷的研究始于 2000 年,最近在国内首次实现激光输出^[32]。近日上海光机所制备出直径为 85mm 无核心的 $\text{Nd}:\text{YAG}$ 晶体盘片,光学均匀性较好,晶体质量较好。

按照美国利弗莫尔国家实验室的热容激光武器方案,其功率必须达到 100kW 以上, $\text{Nd}:\text{YAG}$ 晶体或陶瓷的直径至少必须 $\phi 160\text{mm}$ 以上。所以,大直径优质激光晶体或陶瓷是发展高能量强激光的瓶颈。

高平均功率(HAP)输出的固体激光器(SSL)在工业、科学和军事等领域都有着非常诱人的应用前景。设计高功率固体激光器的主要困难有两个^[33]:对泵浦过程中无法避免的废热进行处理以及消除由于将废热去除而导致的后果。在激光工作过程中如果不对增益介质冷却,就会导致其温度升高,使得增益系数降低,最终导致不能工作。去除废热就会引起热透镜、机械应力及其他许多问题的产生,进而可能使激光光束质量下降、降低激光输出功率,甚至可能导致固体激光增益介质的破裂。

针对高功率固体激光器上述两个发展瓶颈,解决的方法有两个:一是由于产生废热是不可避免的,所以要尽量消除由于消除废热而引起的后果。我们必须减小热量和热流密度,减小热流的传导路程和对激光场的影响。几年来,关于这方面的研究有比较多的方法和设计模型,总体上的发展趋势是:从快体介质向具有大比表面积的薄片和纤维介质、从静止介质向运动介质、从固体介质向流动介质。已形成比较理想的设计模型有:盘片激光、固体热容激光、光纤激光。

1.2.3.1 盘片激光

盘片激光是从一个大面上将热量导走,并且热流的距离非常短,即使用大的泵浦能量也不会在盘片产生大的温度梯度。如果盘片的直径远大于厚度,则热流可以看作是沿一维方向的并且平行于激光方向,这样就会大大地降低热机械效应^[34]。

过去的 10 年里,德国斯图加特大学的科学家们用微片激光的概念,使得二极管泵浦的固

体激光器的激光输出得到了很大的发展^[35]。利用 $224\mu\text{m}$ 厚 9% 掺杂的 Yb :YAG 晶体获得了 647W 光光效率为 51% ,最近他们又获得了 2kW 的光。德国 Rofin-Sinar 公司已经利用二极管泵浦的 Yb :YAG 盘片晶体获得了 4.4kW 的激光输出 ,用二极管泵浦的 Nd :YAG 晶体棒获得了 6kW 的激光输出。2000 年 ,日本的 MITI Project^[36] 宣称他们已经用棒状和盘片状 Nd :YAG 分别获得了平均 3.3kW 峰值为 13kW 的激光输出。Boeing 公司^[37] 致力于 CAMIL 技术发展 ,考虑使用 Nd :YAG、Nd :GGG、Nd :Glass、Yb :S-FAP 等激光增益介质并制作成紧凑结构 ,构建激光放大器和激光振荡器结构 ;CAMIL 技术的一个主要优点 :可以获得较宽范围的激光平均功率值 ,提升功率可以通过增加口径尺寸或激光振荡器中模块数量获得。

Trumpf(Plymouth ,MI) 产生 LD 泵浦 1kW 连续波的薄片激光器 ,谐振腔中由两个薄片组成 ,光束质量 6-mm-mrad ,输出可以耦合到直径为 $150\mu\text{m}$ 的光纤中去 ;目前 Trumpf 最新的薄片激光器包含 4 个薄片 ,独立泵浦 ,输出为 4 kW ,光束质量 7-mm-mrad ,输出可以耦合到直径为 $200\mu\text{m}$ 的光纤中去 ,发射 1030nm。

2004 年 ,中国工程物理研究院用两块 $\phi 13\text{mm} \times 1\text{mm}$ 的 Nd(1.4at. %) :YAG 薄片 ,采用之字形 ,平凹腔稳腔结构 ,获得了峰值功率为 1440W ,平均为 216 W 的准连续激光输出^[38]。

1.2.3.2 固体热容激光

大多数固体激光器系统在工作时连续冷却 ,以避免热损伤。废热从激光介质内传至表面 ,由水等冷却剂带走 ,这样做的后果就是在激光增益介质中产生大的温度梯度。大的温度梯度会导致机械应力、物理变形、光学畸变 ,最终会使光学元件断裂。所以高功率固体激光器面临的主要问题是泵浦过程中的热破坏。传统激光器采用发光过程中同时冷却的方法 ,很容易造成在激光介质中产生热机械应力。这种应力断裂极限决定着激光器的最高输出能量。固体热容激光器(SSHCL)的创新之处就是激光工作过程中(10 ~ 20s)是绝热过程 ,停止泵浦后再冷却激光工作物质。因此固体热容激光器表面的温度就会高于中心温度。因此 ,废热在热容激光介质中的淀积是压应力 ,而传统激光器为张应力。理论分析表明 :压应力的破坏阈值为张应力的 5 倍以上。因而固体热容激光器可以工作于更高的温度状态。

1995 年 ,Walters 等人发表了关于固体热容激光器的研究文章 ,1996 年 6 月 ,美国利弗莫尔国家实验室的 Albrecht 等人申请了“ 高能量促发固体热容激光器 ”的专利。1998 年 Albrecht 在“ Laser and Particle Beams ”中发表了一篇文章中详细介绍固体热容盘片激光的概念和理论计算。最近美国利弗莫尔国家实验室利用 4 片 $100\text{mm} \times 100\text{mm} \times 25\text{mm}$ 的 Nd :YAG 陶瓷获得了 25kW 的激光输出 ,同时他们用 5 片获得了 37kW 的激光输出 ,但是没有给出光束质量 ,可能光束质量不好。

2005 年中科院上海光机所用自己发明的温梯法生长的 Nd :YAG 晶体 ,用热容方案获得了 2kW 的激光输出。由于温度梯度法生长 Nd :YAG 激光晶体可以避免传统的提拉法生长 Nd :YAG 晶体时所遇到的晶体中间存在核心问题 ,从而提供大尺寸晶片 ,这是一个非常有前途的发展方向。

1.2.3.3 高平均功率光纤激光^[39]

与传统的固体激光器相比 ,光纤激光器的工作介质极其细长 ,这种几何形状使得光纤激光器具有非常多的优点 :①工作介质的表面积、体积比很大。在同样体积下 ,光纤激光器的表面积比其他块状工作物质大 2 ~ 3 个数量级 ,散热效果好。②由于是波导结构 ,激光模式由纤芯直径 d 和数值孔径 NA 决定 ,不受介质中无用热的影响。因此在光纤激光器中不存在块状

工作物质中的热效应影响激光光束质量的问题。③纤芯直径很小 ,容易实现均匀的高平均功率密度泵浦 ,激光器效率高、阈值低。④采用双包层结构大大提高了泵浦效率。

当前连续工作的光纤激光器的输出功率已经可以与块状工作物质媲美 ,百瓦、千瓦级的光纤激光器比块状工作介质激光器更容易获得高光束质量。但继续再增加功率就变得困难了 ,特别是脉冲 Q 开关工作 ,由于纤芯横截面积小 ,高峰值功率可能造成破坏及非线性效应 ,所以限制了输出能量。

2003 年 SPI 公司与英国南安普顿大学采用大模芯径掺 Yb 光纤 ,纤芯直径 $43\mu\text{m}$,数值孔径为 $N.A. = 0.09$,归一化频率 $\nu = 11$,获得了 1.01kW 连续激光输出 ,斜效率 80% ,由于纤芯直径较大 ,已经不是基模工作了。

2005 年 3 月 ,IPG 公司在网上公布采用纤芯直径 $19\mu\text{m}$ 的掺 Yb 光纤获得 2kW , $M^2 < 1.2$ 的连续激光输出。 $19\mu\text{m}$ 的纤芯直径基模工作是完全可能的。

1.2.4 LD 抽运超快激光晶体

DPL(LD 直接泵浦)是超快激光增益和放大介质晶体。飞秒激光以其特有的超短脉冲(10^{-15}s)、高峰值功率和宽光谱等特点 ,在超快光谱学、微电子加工、光钟、计量、全息、高容量和高速度光通信等众多领域具有广泛的潜在应用(图 1-2)^[40]。20 世纪 90 年代发展起来的基于钛宝石晶体的飞秒激光器是目前可以获得最短脉冲、使用最多的超快激光装置。然而 ,钛宝石振荡源或放大级需要的 532nm 泵浦源具有体积大、电效率低 ,特别是价格昂贵等缺点 ,限制了其作为商用飞秒激光器向便携式、低成本方向的发展 ,制约了其作为工业和民用产品广泛推广和应用。

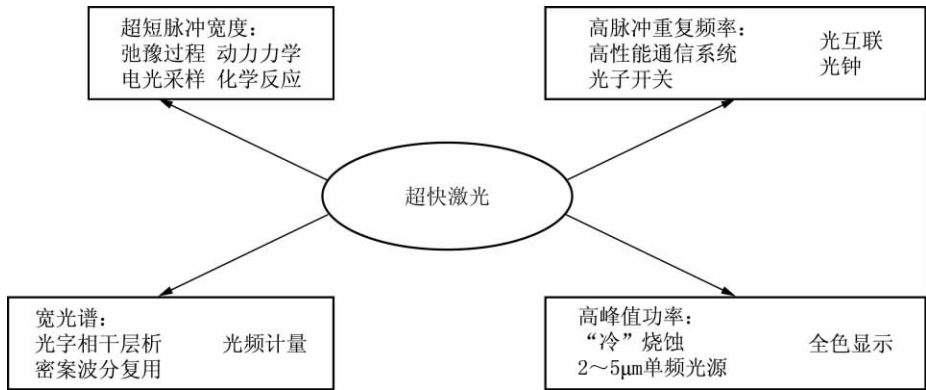


图 1-2 超快激光的应用示意图

可以预测 ,随着具有更加优异综合性能基质晶体的出现 ,考虑到超快激光器在加工、医疗等方面应用的独特优势 ,LD 泵浦全固态超快激光器不但在科研 ,而且在工业化技术上的应用也必将获得突破。

开展 LD 可直接泵浦的掺(Yb 钇)激光晶体和全固态飞秒激光器的研究已成为开发新一代紧凑型、高效率、低成本飞秒激光器的热点^[41—44]。与 Nd^{3+} 等其他稀土离子不同 ,由于 Yb^{3+} 离子的 $4f$ 壳层电子受外界影响大 ,在晶场中具有强的电-声子耦合效应 ,掺 Yb 激光介质普遍具有较宽的吸收和发射带 ,有利于 LD 泵浦和产生超短脉冲。另外 , Yb^{3+} 的电子构型为 $4f^{13}$,掺 Yb 激光晶体仅有两个电子态 ,基态 $^2F_{7/2}$ 和激发态 $^2F_{5/2}$,由于在 $^2F_{5/2}$ 这个上能级之上不存在任

何其他激光态能级,所以可以避免上转换、激发态吸收和弛豫振荡等激光能量损耗。在晶格场作用下,能级发生分裂,激光过程最有可能发生在上能级 $^2F_{5/2}$ 最低的 Stark 能级和下能级 $^2F_{7/2}$ 的子能级之间,形成准三能级的激光运行机制。

表 1-1 列出了几种已经实现飞秒激光输出的掺 Yb^{3+} 激光晶体的特性^[45—49]。虽然 LD 泵浦 $\text{Yb}:\text{YAG}$ 晶体连续激光输出已经达到数千瓦水平,但由于 $\text{Yb}:\text{YAG}$ 晶体相对窄的发射带宽,使得 $\text{Yb}:\text{YAG}$ 晶体相比其他掺 Yb 激光晶体,难以成为满足超短脉冲激光输出的理想材料。目前在 $\text{Yb}:\text{BOYS}$ 、 $\text{Yb}:\text{KYW}$ 和 $\text{Yb}:\text{SYS}$ 晶体中,都获得了 70fs 左右的超短脉冲。 $\text{Yb}:\text{GSO}$ 、 $\text{Yb}:\text{LSO}$ 、 $\text{Yb}:\text{BOYS}$ 、 $\text{Yb}:\text{SYS}$ 和 $\text{Yb}:\text{CaF}_2$ 晶体,相比其他晶体具有更宽的发射带宽,有望成为实现最短激光脉冲输出的掺 Yb^{3+} 激光晶体。

表 1-1 各种掺 Yb^{3+} 超快激光晶体的特性

基质	泵浦波长/nm	激光波长/nm	发射带宽/nm	荧光寿命/ms	脉冲宽度/fs	平均功率/mW
YAG	942	1050	8.5	0.95	136	3.1
YAB	970	1040	20	0.68	198	440
CALGO	979	1050	60	0.42	47	38
YVO_4	980	1021	31	0.32	120	300
CaF_2	979	1043	80	2.4	150	880
YCOB	976	1052	45	2.28	210	160
GdCOB	976	1045	44	2.6	90	40
KYW	940	1057	24	0.7	71	120
KGW	940	1037	25	0.75	100	126
Sc_2O_3	976	1044	11.6	0.8	230	540
Lu_2O_3	976	1033.5	13	0.82	220	266
BOYS	975	1062	60	1.1	69	80
SYS	979	1066	73	0.8	70	156
YSO	978	1040	48	1.74	198	2610
LSO	978	1060	67	1.80	260	2600
GSO	976	1031	72	1.76	639	384

可依据晶体激光输出波长处的发射截面 σ_e 和净透过时的最小泵浦功率密度 $I_{\min}$ 两个参数来评估 Yb 激光晶体^[50],其中

$$I_{\min} = \frac{\sigma_a h\nu}{\sigma_a + \sigma_e \sigma_{\text{ap}} \tau} \quad (1-1)$$

式中 σ_a 为激光输出波长处的吸收截面, σ_{ap} 为泵浦波长处的吸收截面, τ 为 $^2F_{5/2}$ 能级寿命。激光晶体的最小泵浦功率密度 $I_{\min}$ 是用来描述在忽略谐振腔损耗的情况下,晶体材料达到阈值时所需吸收的最小泵浦功率,或者表示激光放大器在选定的激光输出波长处,吸收和增益相抵消的情况下所需的泵浦功率密度,因此 $I_{\min}$ 越小越好。而发射截面 σ_e 是用来描述处于上能级的每个原子由于受激发射所具有的有效截面积,对于给定尺寸的增益介质,发射截面越大,则激光增益的增益越大。

然而,这种方式的评估在晶体的激光实验中遇到了一些挑战。图 1-3 为几种常见掺 Yb 激光晶体的发射截面 σ_e 和最小泵浦功率 $I_{\min}$, 尽管 Yb^{3+} 的能级结构十分简单,但由于基质晶体的不同导致配位场的不同和 Yb^{3+} 所处的格位不同,从而使 Yb^{3+} 在不同的激光基质晶体中的

和 $^2F_{5/2}$ 两能级的最低子能级之间的跃迁。976nm 两吸收带的半高宽分别为 19nm ,远大于 Yb^{3+} :YAG 的 4nm ,有利于实行 LD 泵浦。与其他 Yb^{3+} 掺杂晶体对比, Yb^{3+} :GSO 晶体光谱性能的一个显著特点是零线附近的发射光谱具有很低的强度。也就是说,吸收光谱和发射光谱之间的重叠很小,更多的辐射跃迁处于长波长区域而导致小的再吸收损耗。特别地, Yb^{3+} :GSO 在 1088nm 具有最大的发射截面,而几乎没有再吸收损耗,因而有可能形成高效的类四能级激光运转。实验测得 Yb^{3+} 上能级发射寿命为 1.1ms。

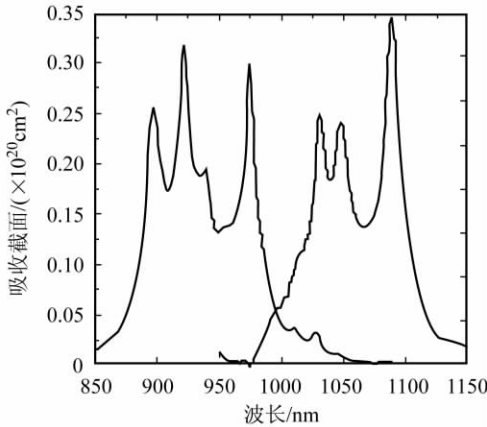


图 1-5 Yb^{3+} (10 at. %) :GSO 晶体的室温非偏振吸收和发射光谱

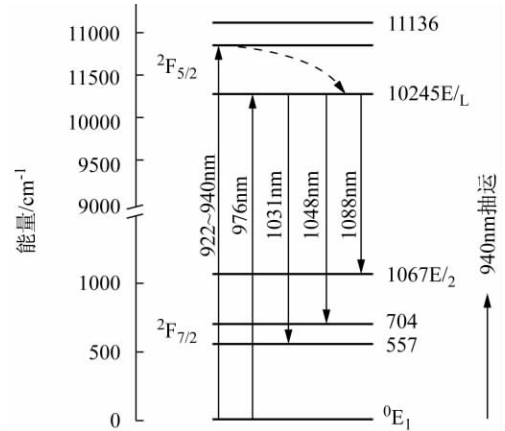


图 1-6 Yb^{3+} :GSO 晶体格位 II 中 Yb^{3+} 的能级结构简图

Yb^{3+} :GSO 晶体中格位 II 的黄氏因子数值是格位 I 的 4 倍,格位 II 中的 Yb^{3+} 能级分裂值将大于格位 I。因此,根据室温吸收和发射光谱可以粗略地确定格位 II 中的 Yb^{3+} 能级分裂情况,如图 1-6 所示。 Yb^{3+} :GSO 中 Yb^{3+} 基态 $^2F_{7/2}$ 能级分裂值达到 1067cm^{-1} ,大于 Yb^{3+} :YSO 的 964cm^{-1} 和 Yb^{3+} :LSO 的 971cm^{-1} ,这是由于 GSO 晶体结构各向异性更强,所形成的层状结构内原子堆积密度更高。 Yb^{3+} :GSO 晶体的 1088nm 辐射跃迁的终态能级正是 Yb^{3+} 基态 $^2F_{7/2}$ 能级的最高子能级“能级 4”,即 1067cm^{-1} ,与其他掺 Yb^{3+} 晶体相比, Yb^{3+} :GSO 的“5→4 能级”跃迁具有最大荧光分子比(图 1-7,其物理机理有待研究),即在 1088nm 具有最大的发射截面。根据玻耳兹曼分布函数

$$N_2/N_1 = \exp[-E_{21}/(k_B T)]$$

式中 N_2 和 N_1 分别为能级 E_2 和 E_1 上分布的粒子数, E_{21} 为两能级之间的能量差,可以计算出室温下 1067cm^{-1} 能级上粒子热分布比为 6×10^{-3} ,比 Yb^{3+} :YAG 晶体 1030nm 激光下能级的热分布数 5.3×10^{-2} 小 1 个数量级。因此,可以预测 Yb^{3+} :GSO 在 1088nm 具有非常低的激光泵浦阈值。

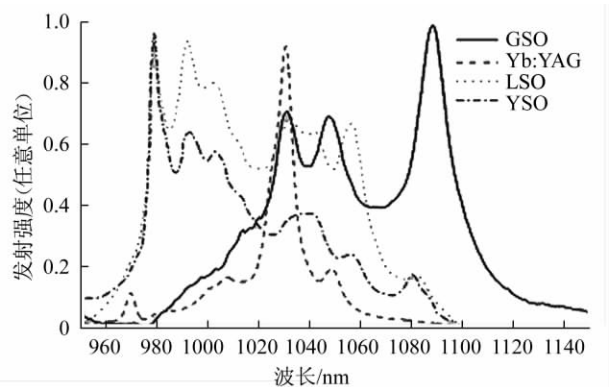


图 1-7 Yb^{3+} :GSO 的“5→4 能级”跃迁具有最大荧光分子比

$\text{Yb}^{3+}:\text{GSO}$ 晶体的激光性能:2005 年 5 月,首次实现 LD 泵浦 1 090nm 激光输出($P_{\text{th}} = 190\text{mW}$, $P_{\text{out}} = 360\text{mW}$, $\eta = 20\%$),阈值为 $1.27\text{kW}/\text{cm}^2$,小于 $\text{Yb}:\text{YAG}$ 晶体的理论值 ($2.8\text{kW}/\text{cm}^2$)。并先后实现连续、调谐、调 Q、锁模激光输出^[42 53—58],最近又在 $\text{Yb}^{3+}:\text{GSO}$ 晶体中获得低阈值、宽调谐超快激光输出^[54] 974nm LD 泵浦,波长为 1 092.5nm,是迄今为止实现激光输出中心波长最长的 Yb 激光材料,阈值仅为 77mW,斜效率高达 86%,获得 97nm 的宽调谐输出,并初步实现了连续锁模 639fs 激光脉冲输出。进一步的激光性能研究工作正在进行之中。

最近,又发现 $\text{Yb}^{3+}:\text{LYSO}$ 、 $\text{Yb}^{3+}:\text{GYSO}$ 等混晶体改善了单晶体的生长特性和光谱、激光性能^[59—61]。初步的激光实验探索验证了 $\text{Yb}^{3+}:\text{LYSO}$ 混晶体比文献报道的 $\text{Yb}^{3+}:\text{LSO}$ 和 $\text{Yb}^{3+}:\text{YSO}$ 单晶体具有更宽的调谐特性,获得了从 1 030nm 到 1 111.1nm 的宽调谐激光输出,调谐带宽为 81.1nm。甚至在 $\text{Yb}^{3+}:\text{LYSO}$ 混晶体中实现了斜效率高于 90% 的激光输出^[61]。

1.3 结论和建议

当前,激光晶体的四大主流发展方向为:紫蓝绿和可见光激光晶体;中红外激光晶体;(1 μm 波段)高功率、大能量激光晶体;LD 泵浦超快激光增益和放大晶体。总体上看,一些国际上刚开始起步的前沿新兴领域,如掺 Yb^{3+} 单晶、陶瓷、光子晶体光纤 DPL 等方面,我国与国外的差距并不大。

在激光晶体方面,未来 5~10 年激光晶体亟待解决的几个关键科学问题^[7]是:①激光晶体生长科学和技术的基础问题;②晶体中离子的发光特性、能量传递及其与晶格相互作用的机理;③LD 泵浦高功率密度下($10^4 \sim 10^7\text{W}/\text{cm}^2$)激光晶体的热效应;④激光损伤的微观机理;⑤高功率密度下晶体的新物理效应(如 ASE、饱和和色心)及对激光性能的影响等。

掺 Yb^{3+} 激光陶瓷和光纤也值得关注。从 20 世纪 90 年代以来,许多国际著名研究机构如美国利弗莫尔国家实验室、林肯实验室(MIT)、德国斯图加特大学和 JENA 大学、瑞士联邦工学院、英国南安普敦大学、法国 LULI 实验室、日本大阪大学和 HOYA 公司等纷纷开展了 Yb 激光器件的研究,将其视为发展超快激光的一个主要途径。中科院上海光机所、山东大学、中科院福建物质结构研究所(以下简称中科院福建物构所)、中科院上海硅酸盐研究所(以下简称中科院上海硅酸盐所)、成都 209 所、中国电子科技集团公司第十一研究所(以下简称中电十一所)、中科院安徽光学精密机械研究所(以下简称中科院安徽光机所)等也先后开展了掺 Yb 铝酸盐、硼酸盐、钽酸盐、钨酸盐和正硅酸盐等晶体的工作,但鲜有飞秒输出的报道。目前,国内外对掺 Yb^{3+} 激光材料研究的系统性还很不够,其中还有许多未开垦的处女地^[62]。

致谢:赵广军副研究员、苏良碧博士、徐晓东博士、李红军博士、董永军博士、严成锋博士、姜本学博士、郑丽和博士、王晓丹博士、赵志伟副研究员、梁晓燕研究员等参加了本文的工作和讨论、整理。文中的部分工作是与天津大学、华东师范大学、清华大学、中国工程物理研究院、中国科学院物理研究所和法国 LULI 实验室等合作研究的成果,得到国家基金委(60425516、60544003)、上海市重点项目(05JC14082)的资助。文中许多观点均为第一次发表或个人思考意见,敬请读者批评指正!

徐 军

参考文献

- [1] MAIMAN T H. Stimulated optical radiation in ruby masers[J]. Nature ,1960 ,187 :493—494.
- [2] DANIELMEYER H G. , OSTERMAYER F. W. Diode-pump-modulated Nd : YAG laser [J]. J. Appl. Phys. ,1972 ,43 :2911—2913.
- [3] MOULTON P F. Spectroscopic and laser characteristics of Ti : Al₂O₃ [J]. J. Opt. Soc. Amer B 1986 ,3 :125—133.
- [4] SHAZER D L. Vanadate crystals exploit diode-pump technology[J]. Laser Focus World ,1994 ,30 :88—93.
- [5] IKESUE A , KINOSHITA T , KAMATA K , et al. Fabrication and Optical Properties of High-Performance Polycrystalline Nd : YAG Ceramics for Solid-State Lasers[J]. J. Am. Ceram. Soc. ,1995 ,78 :1033—1040.
- [6] JEONG Y , SAHU J K , PAYNE D N , et al. Ytterbium-doped large-core fiber laser with 1.36kW continuous-wave output power[J]. Opt. Exp. 2004 ,12 :6088—6092.
- [7] 第66期东方科技论坛. 晶态和非晶态激光材料及其应用战略[EB/OL]. (2005-11-15) <http://efst.sh.cn>.
- [8] 张世文,王福章,姚广涛,等. 新型掺杂 YAG 特性及其重复率锁模运转[J]. 中国激光 ,1983 ,548 :8—9.
- [9] 桂尤喜,冀天来,罗先正,等. 多掺杂 YAG 激光晶体的生长与多功能特性. 激光与红外[J] ,1983 ,10 :25—30.
- [10] 翟清永,张思远,王庆元,等. 掺钕和铈的钇铝石榴石激光晶体的生长技术. 中国 ,ZL88102651.4[P]. 1989-02-01.
- [11] 徐军,邓佩珍,周国清. 自调制激光晶体 Cr⁴⁺, Yb³⁺:Y₃Al₅O₁₂. 中国 ,ZL97106292.7[P]. 1998-09-02.
- [12] DONG J , DENG P Z , XU J. The growth of Cr⁴⁺, Yb³⁺:YAG crystal and its absorption spectra properties [J]. J. Crystal Growth ,1999 ,203 :163—167.
- [13] DENG P Z. Investigation on improvement of laser quality of tunable Al₂O₃:Ti³⁺ crystals[J]. Proc. SPIE , 1990 ,1338 :207—215.
- [14] 干福熹,邓佩珍. 激光材料[M]. 上海:上海科学技术出版社,1995.
- [15] 李敢生,吴喜泉,位民,等. 大尺寸优质钒酸钇(YVO₄)双折射晶体生长[J]. 人工晶体学报 ,1999 ,28 :27—30.
- [16] ANGERT N B , BORODIN N I , GARMASH V M , et al. Lasing due to impurity color centers in yttrium aluminum garnet crystals at wavelengths in the range 1.35-1.45μm[J]. Sov. J. Quantum Electron. ,1988 ,18 ,No.1 :73—74.
- [17] PETRICEVIC V , GAYEN S K , ALFANO R R. Laser action in chromium-activated forsterite for near-infrared excitation : Is Cr⁴⁺ the lasing ion ? [J]. Appl. Phys. Lett. 1988 ,53 :2590—2592.
- [18] JOHNSON L F , GUGGENHEIM H J. Infrared-pumped visible laser[J]. Appl. Phys. Lett. ,1971 ,19 :44—47.
- [19] MOBERT P E A , HEUMANN E , HUBER G. Green Er³⁺:YLiF₄ upconversion laser at 551nm with Yb³⁺ codoping : anovel pumping scheme[J]. Opt. Lett. ,1997 ,22 :1412—1414.
- [20] HEUMANN E , BÄR S , KRETSCHMANN H , HUBER G. Diode-pumped continuous-wave green upconversion lasing of Er³⁺:LiLuF₄ using multipass pumping[J]. Opt. Lett. 2002 ,27 :1699—1701.
- [21] EGGER P , ROGIN P , RIEDENER T , et al. Ba₂ErCl₇—a new near IR to near UV upconversion material [J]. Adv. Mater. ,1996 ,8 :668—672.
- [22] JOHNSON L F , GEUSIC J E , VAN UITERT L G. Coherent oscillations from Tm³⁺, Ho³⁺, Yb³⁺ and Er³⁺