

# Спектроскопия и лазерная генерация моноклинных кристаллов $KY(WO_4)_2:Tm$

С.Н.Багаев\*, С.М.Ватник\*, А.П.Майоров\*, А.А.Павлюк\*\*, Д.В.Плакушев\*

*Исследованы основные спектроскопические и генерационные характеристики кристалла  $KY(WO_4)_2:Tm$  (15%), а также определены сечения переходов, квантовый выход люминесценции, время жизни и коэффициент нелинейной разгрузки верхнего лазерного уровня. Дифференциальная эффективность генерации на длине волны 1950 нм составила 45%. Показана принципиальная возможность перестройки генерации в спектральном диапазоне 1850–1950 нм.*

**Ключевые слова:** анизотропные лазерные кристаллы, спектроскопия, лазерная генерация, новые длины волн.

## Введение

Лазерные кристаллы, легированные тулнием, широко применяются для генерации когерентного излучения двухмикронного диапазона, освоение которого открывает благоприятные перспективы решения многих прикладных задач, включая дистанционное зондирование атмосферы и развитие медицинских лазерных технологий. Интерес к лазерным излучателям на основе туллийсодержащих кристаллов возрастает по мере увеличения выходной мощности и срока службы лазерных диодов и линеек, обеспечивающих эффективную накачку активной среды как в продольной, так и в поперечной геометрии.

В литературе неоднократно отмечалось [1–4], что разработка эффективных твердотельных лазеров на основе туллий- и гольмийсодержащих кристаллов осложнена целым рядом нежелательных факторов, в том числе относительно малым эффективным сечением вынужденных переходов, квазитрехуровневой схемой генерации, для которой характерна конечная населенность нижних лазерных уровней при комнатной температуре, а также наличием многочисленных процессов ап-конверсии, приводящих к нелинейной разгрузке верхних лазерных уровней и в результате – к уменьшению эффективности генерации.

В этой связи особое значение для выбора оптимальной конструкции лазерного излучателя приобретает адекватное моделирование его работы, которое должно проводится на основе соответствующих кинетических уравнений, учитывающих населенности и взаимодействие различных энергетических уровней, а также пространственное распределение накачки и профиль лазерного пучка. Такой подход при различных упрощающих предположениях был реализован в работах [3, 5, 6]; во многих случаях [1, 3, 7] было достигнуто хорошее соответствие между расчетными и экспериментальными данными по

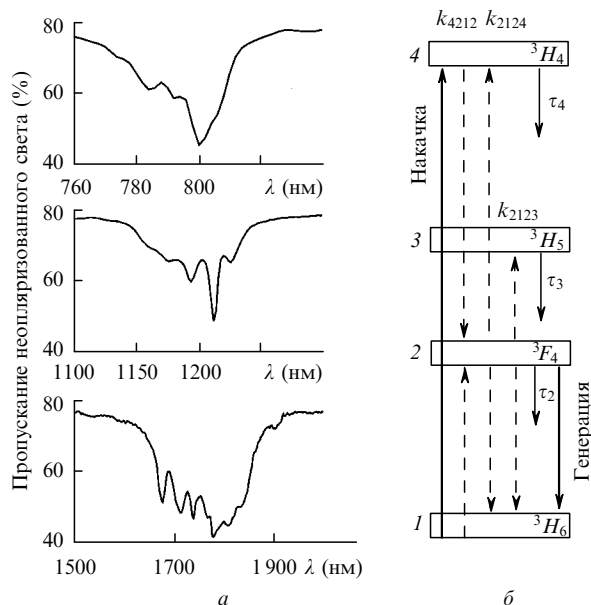


Рис.1. Спектры пропускания пластины  $KYW:Tm$  толщиной 0.92 мм (а) и схема первых четырех уровней  $Tm^{3+}$  и основных каналов релаксации возбуждения (штриховыми линиями показаны кросс-релаксационные и ап-конверсионные процессы) (б).

зависимости порога и КПД генерации кристаллов YAG и YLF, легированных Tm и Ho, от плотности мощности накачки, параметров резонатора и спектроскопических характеристик кристаллов.

С целью расширения спектрального диапазона генерации в коротковолновую область представляет интерес изучение других кристаллических матриц, легированных тулнием. В настоящей работе проводились спектроскопические и генерационные исследования моноклинных лазерных кристаллов  $KY(WO_4)_2:Tm$  (15%) (далее  $KYW:Tm$ ), структура и основные свойства которых, а также изоструктурных им кристаллов  $KGd(WO_4)_2$  (KGW) подробно обсуждаются в работах [8, 9]. К наиболее важным особенностям кристаллов этой группы следует отнести их значительную оптическую анизотропию [10, 11] и сравнительно малые пороги ВКР [9, 12], что в принципе позволяет создавать твердотельные лазерные источники с

\*Институт лазерной физики СО РАН, Россия 630090 Новосибирск, просп. акад. Лаврентьева, 13/3

\*\*Институт неорганической химии СО РАН, Россия 630090 Новосибирск, просп. акад. Лаврентьева, 3

уникальными возможностями [13]. В работе [14] была продемонстрирована высокая эффективность генерации кристаллов  $KGW:Nd$  при продольной геометрии накачки, в данной работе получен аналогичный результат для кристаллов  $KYW:Tm$ .

## 1. Модель

Первые четыре уровня энергии трехвалентного туллия схематически изображены в правой части рис.1, где показаны переходы под воздействием накачки, лазерные переходы и другие каналы релаксации энергии возбуждения. Группа кинетических уравнений, описывающих взаимодействие ионов  $Tm^{3+}$  в различных энергетических состояниях, может быть представлена в виде [3]

$$\frac{dN_4}{dt} = R_4 - k_{4212}N_4N_1 + k_{2124}N_2^2 - \frac{N_4}{\tau_4}, \quad (1)$$

$$\frac{dN_3}{dt} = k_{2123}N_2^2 + \beta_{43}\frac{N_4}{\tau_4} - \frac{N_3}{\tau_3}, \quad (2)$$

$$\begin{aligned} \frac{dN_2}{dt} = & 2k_{4212}N_4N_1 - 2(k_{2123} + k_{2124})N_2^2 \\ & + \beta_{42}\frac{N_4}{\tau_4} + \beta_{32}\frac{N_3}{\tau_3} - \frac{N_2}{\tau_2}, \end{aligned} \quad (3)$$

$$N_1 = N_{Tm} - \sum_{i=2}^4 N_i, \quad (4)$$

где  $N_{Tm}$  – объемная концентрация ионов туллия; нумерация всех энергетических уровней и кинетических констант парного взаимодействия ионов идентична обозначениям работы [3] (см. также рис.1,б).

В случае достаточно короткого импульса накачки, действие которого сводится к скачкообразному увеличению плотности ионов  $Tm^{3+}$  на уровне 4, эволюция населенностей уровней 2, 3 и 4 в пределе малой плотности возбуждений ( $kN_2^2 \approx 0$ ) описывается системой линейных уравнений, решение которой легко представить в виде суммы экспоненциальных слагаемых

$$N_i(t) = \sum_{j=2}^4 N_{ij} \exp(-A_j t), \quad i = 2, 3, 4, \quad (5)$$

где

$$A_4 = k_{4212}N_1 + 1/\tau_4; \quad A_3 = 1/\tau_3; \quad A_2 = 1/\tau_2; \quad (6)$$

константы  $N_{ij}$  определяются по начальным условиям  $N_{2,3}(0) = 0$ . При достаточно высоких концентрациях туллия, когда кросс-релаксация является доминирующим механизмом расселения уровня 4, выражение (5) легко преобразовать к виду

$$N_2(t) \propto \exp(-A_2 t) - \exp(-A_4 t). \quad (7)$$

В случае импульсно-периодической накачки, когда возбуждающие импульсы следуют через интервал времени  $t_0$ , все экспоненты в (5), (7) приобретают дополнительные множители, возникающие при суммировании по предыдущим импульсам, поэтому в этих формулах следует произвести замену:

$$\exp(-A_i t) \rightarrow \frac{\exp(-A_i t)}{1 - \exp(-A_i t_0)}. \quad (8)$$

Поскольку уравнения (1)–(4) были подробно исследованы в работе [3] для стационарного и квазистационарного случаев, мы считаем целесообразным привести только краткую сводку основных соотношений, необходимых для последующего обсуждения экспериментальных результатов.

Изменение интенсивности накачки  $I(z)$  определяется соотношением

$$\frac{dI}{dz} = -\sigma_{14}(N_{Tm} - N_2)I, \quad (9)$$

где  $\sigma_{14}$  – сечение поглощения для данной частоты, поляризации и направления распространения луча, выбранного в качестве оси  $z$ , в то время как в стационарном случае оно определяется выражением

$$\frac{N_2}{N_{Tm}} = \frac{[(I + I_0)^2 + 2k_{Tm}I_0]^{1/2} - (I + I_0)}{2k_{Tm}I_0}. \quad (10)$$

Здесь

$$I_0 = \hbar\omega/A\sigma_{14}\tau_2; \quad k_{Tm} = 2N_{Tm}\tau_2(k_{2123} + Bk_{2124}); \quad (11)$$

численные множители  $A$  и  $B$  при высоких концентрациях туллия примерно равны двум, а их точные значения определены в [3] через параметры кинетических уравнений (см. [3], уравнения (9), (10), (21)). Уравнения (9), (10) нашей работы можно проинтегрировать в элементарных функциях; в результате получим заданную в неявном виде зависимость  $I(z)$ , сопоставление которой с экспериментальными данными позволяет определить  $I_0$  и  $k_{Tm}$  (см. разд.3).

Пороговую мощность лазерной генерации на переходе  $2 \rightarrow 1$  можно оценить, приравняв усиление кристалла за обход резонатора к его полным потерям  $T$ :

$$2 \int_0^L (\sigma_{21}N_2 - \sigma_{12}N_1)dz = T, \quad (12)$$

или

$$\int_0^L N_2 dz = \frac{T + 2\sigma_{12}N_{Tm}L}{2(\sigma_{12} + \sigma_{21})} \equiv T_{ef}, \quad (13)$$

где  $L$  – длина кристалла;  $\sigma_{21}$  и  $\sigma_{12}$  – сечения вынужденного перехода и поглощения из основного состояния на длине волны генерации, в которых уже учтены больцмановские факторы населенностей штарковских компонент соответствующих мультиплетов. При заданных потерях резонатора  $T$  зависимость правой части уравнения (13)  $T_{ef}$  от длины волны может иметь, вообще говоря, немонотонный характер, и ее абсолютный минимум определяет область длин волн, на которых с подавляющей вероятностью будет развиваться лазерная генерация.

## 2. Экспериментальная часть

Из монокристалла  $KYW:Tm$ , выращенного низкоградцентным методом Чохральского из раствора в расплаве  $K_2W_2O_7$ , были изготовлены плоскопараллельные пластины, нормаль к поверхностям которых совпадала с

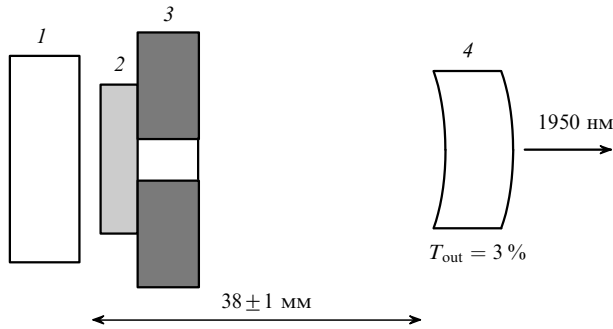


Рис.2. Конструкция излучателя: 1 – «глухое» зеркало; 2 – кристалл; 3 – медный теплоотвод; 4 – выходное зеркало.

кристаллографической осью  $b$ . Спектры пропускания пластин при нормальном падении неполяризованного света изучались на спектрофотометре Shimadzu в интервале 400–3200 нм, спектры люминесценции были измерены в стандартной геометрии «рассеяние назад» с использованием монохроматора МДР-23У, управляемого ЭВМ, фотоприемников на основе Ge:Au и PbSe, селективного нановольтметра UNIPAN-237 и двух АЦП, один из которых использовался для контроля мощности накачки в течение всего процесса измерений. Монохроматор МДР-23У был откалиброван по линиям излучения аргонового лазера, абсолютная погрешность и спектральное разрешение для всех приводимых ниже данных по люминесценции оценивались как 1 и 0.5 нм соответственно.

Динамика люминесценции при импульсно-периодической накачке кристалла регистрировалась быстродействующим (1 мкс) АЦП с последующим усреднением по результатам многих измерений (300–700). Накачка кристалла осуществлялась лазером на титан-сапфире, который в зависимости от условий эксперимента работал либо в непрерывном режиме с гауссовым распределением профиля пучка, выходной мощностью до 0.5 Вт и шириной линии излучения 0.5 нм, либо в импульсно-периодическом режиме с частотой повторения импульсов 183.2 Гц, длительностью импульса 1.7 мкс и средней мощностью до 20 мВт. Измерения энергетических характеристик лазерных пучков проводились измерителем мощности LM-2. Все спектроскопические и генерационные исследования были выполнены при комнатной температуре.

Лазерная генерация на кристалле KYW:Tm была получена в геометрии продольной накачки. На обе поверхности кристаллической пластины толщиной 1.2 мм наносились однослойные просветляющие покрытия из SiO<sub>2</sub>, обеспечивающие остаточное отражение в диапазоне 1850–1950 нм порядка 0.1%. Кристалл помещался в полусферический резонатор вблизи «глухого» дихроичного зеркала, обладавшего пропусканием 98% на длине волны накачки и отражением 99.8% на длине волны генерации (рис.2). В качестве выходных были использованы сферические зеркала радиусом 37 мм, обладавшие пропусканием на длинах волн генерации 3 и 20%. Излучение накачки фокусировалось в кристалл кварцевой линзой с фокусным расстоянием 100 мм, распределение интенсивности накачки в фокусе линзы измерялось двухкоординатным сканером, управляемым ЭВМ. Полученное распределение соответствует типичной гауссовой зависимости  $\exp(-r^2/\omega_0^2)$ , где  $\omega_0 = 55$  мкм.

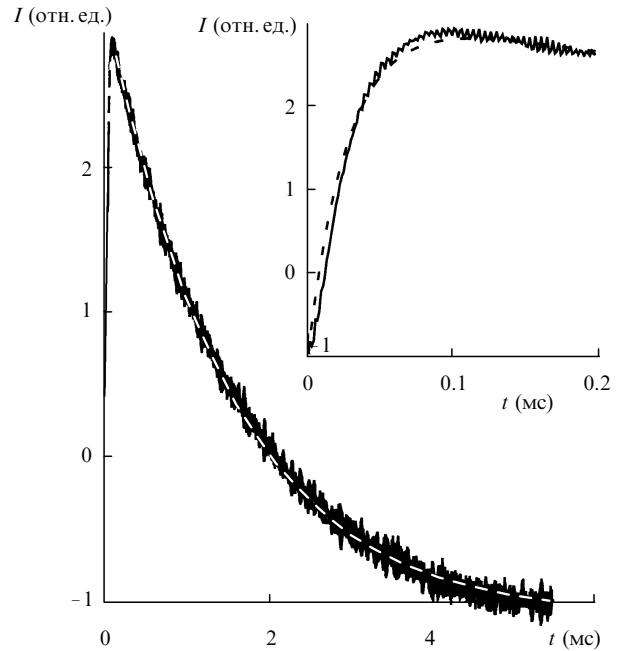


Рис.3. Динамика люминесценции на  $\lambda = 1843$  мкм с уровня  $^3F_4$  при импульсно-периодической накачке и ее аппроксимация уравнениями (7), (8) (штриховая кривая). На вставке показан начальный участок этой зависимости.

### 3. Результаты и их обсуждение

Спектры поглощения кристалла KYW:Tm, соответствующие переходам из основного состояния на уровни 2, 3 и 4, представлены на рис.1,а. Согласно приведенным данным, при переходе  $1 \rightarrow 4$  наиболее интенсивно поглощается излучение с длиной волны  $800 \pm 1$  нм, которым накачивался кристалл во всех последующих экспериментах. В ходе спектральных исследований была зарегистрирована только одна полоса люминесценции в интервале 1650–2000 нм, соответствующая излучательным переходам  $2 \rightarrow 1$ , интенсивность люминесценции переходов  $4 \rightarrow 3$  ( $\sim 2.4$  мкм) и  $3 \rightarrow 1$  ( $\sim 1.2$  мкм) находилась на уровне шумов измерительной аппаратуры. Зависимость люминесценции от времени при импульсно-периодической накачке изображена на рис.3 сплошной линией, штриховая кривая является ее наилучшей аппроксимацией согласно формулам (6)–(8) с параметрами  $\tau_2 = 1.47$  мс,  $A_4 = 33500$  с<sup>-1</sup>. Необходимо отметить, что при аппроксимации данных по формуле (5) минимум невязки малочувствителен к вариациям  $\tau_3$ ; в настоящее время с учетом экспериментальных погрешностей мы можем дать для  $\tau_3$  только оценку сверху:  $\tau_3 < 30$  мкс.

По данным люминесцентных измерений было определено эффективное сечение вынужденных переходов  $\sigma_{21}$ , которое на основе соотношений теории излучения, подробно обсуждаемых в [15], легко представить в виде

$$\sigma_{21}(\lambda) = \frac{\lambda^3 P(\lambda)}{8\pi n^2 c \tau_2^{\text{rad}} \int P(\lambda) d(Ln\lambda)}, \quad (14)$$

где  $\lambda$  – длина волны;  $n \approx 2$  – показатель преломления кристалла;  $c$  – скорость света в вакууме;  $P(\lambda)$  – спектральная плотность интенсивности люминесценции;  $\tau_2^{\text{rad}}$  – излучательное время жизни уровня 2, причем в дальнейшем предполагается, что доля безызлучательных процессов относительно мала, т.е.  $\tau_2^{\text{rad}} = \tau_2$ . Такое предположение

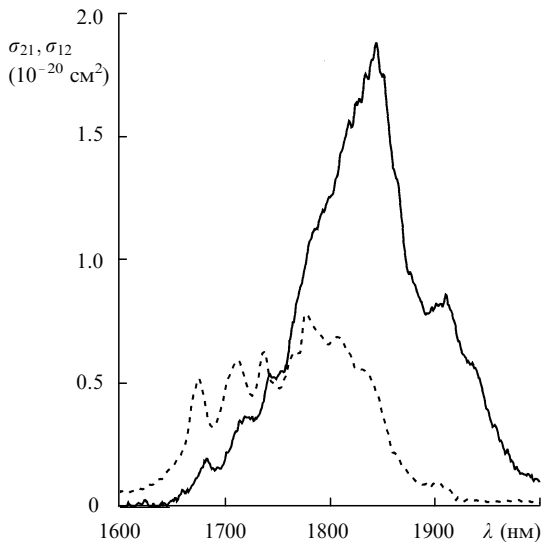


Рис.4. Зависимости эффективных сечений переходов  $\sigma_{21}$  (сплошная кривая) и  $\sigma_{12}$  (штриховая кривая) кристалла  $KYW:Tm$  от  $\lambda$ .

основано на оценках [16], его экспериментальная проверка будет выполнена в одной из последующих работ наряду с измерениями температурных и концентрационных зависимостей кинетических коэффициентов из (1)–(3). На рис.4 показаны эффективное сечение  $\sigma_{21}$ , рассчитанное согласно (14) с поправками на перепоглощение люминесценции, а также эффективное сечение поглощения  $\sigma_{12}$ , определенное по данным рис.1,а.

Уравнение (14) может быть использовано также для оценки излучательного времени жизни  $\tau_4$  уровня 4. Если пренебречь больцмановскими факторами населенностей уровней 1 и 4, т. е. считать, что контур линии люминесценции для переходов  $4 \rightarrow 1$  совпадает по форме с зависимостью эффективного сечения  $\sigma_{14}$  от длины волны, определяемого из абсорбционных экспериментов, то при коэффициенте ветвления люминесценции  $\beta_{41} \approx 0.5$  получаем  $\tau_4 \approx 0.5$  мс, что неплохо согласуется с аналогичной величиной для кристалла  $YAG:Tm$  [3]  $\tau_4 \approx 1$  мс.

Квантовый выход люминесценции  $\eta$ , определяемый как увеличение числа возбуждений на уровне 2 при по-

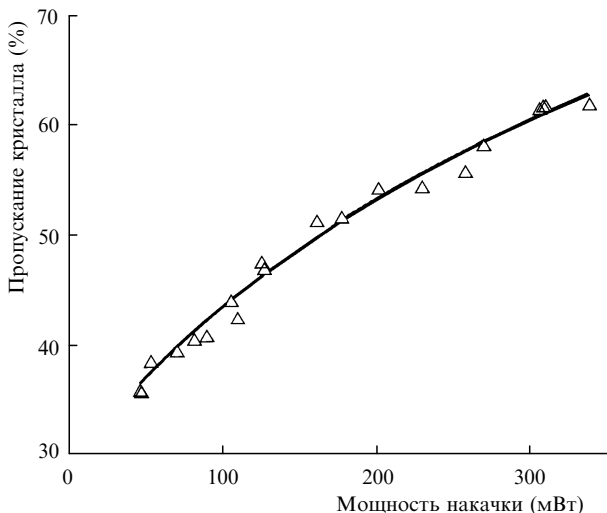


Рис.5. Зависимость пропускания кристалла от падающей мощности при диаметре пятна фокусировки 110 мкм и векторе поляризации луча, направленном вдоль оси оптической индикатрисы [9] (точки – эксперимент, кривая – аппроксимация этой зависимости уравнениями (9)–(11)).

3 Квантовая электроника, т.30, № 4

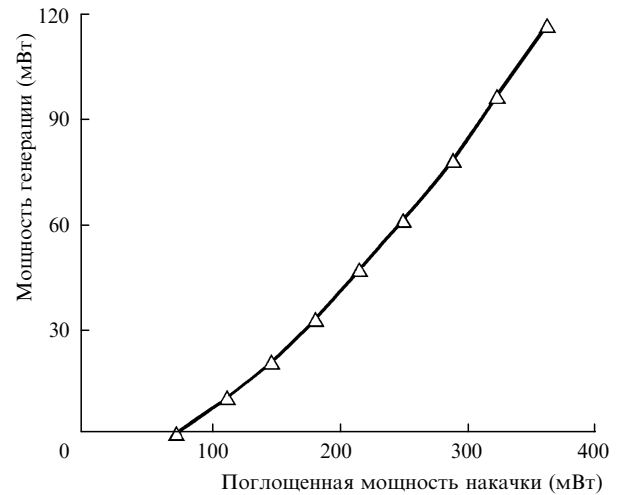


Рис.6. Зависимость выходной мощности генерации от поглощенной мощности накачки при коэффициенте пропускания выходного зеркала 3 %.

глощению одного кванта накачки, можно оценить по найденным  $A_4$ ,  $A_3$  и  $\tau_4$ , используя коэффициенты ветвления люминесценции из работы [3], что дает  $\eta \approx 1.90 \pm 0.07$ . Этот результат подтверждается спектроскопическими данными, поскольку из сравнения отношений сигнал/шум для люминесценции в области 2.4 мкм, соответствующей переходам  $4 \rightarrow 3$ , и 1.9 мкм для переходов  $2 \rightarrow 1$  легко получить оценку  $\tau_4 A_4 > 20$ , что дает  $1.90 < \eta < 2$ .

Интенсивность насыщения  $I_0 = 3300$  Вт/см<sup>2</sup> и коэффициент нелинейной разгрузки  $k_{Tm} = 4.1$  уровня 2 были определены из аппроксимации уравнениями (9)–(11) экспериментальных данных, изображенных на рис.5, при этом множитель  $A$  в (11) был принят равным 2.

Согласно результатам генерационных экспериментов, представленным на рис.6, пороговая мощность накачки составляет 70 мВт; с увеличением мощности накачки дифференциальная эффективность слабо растет и достигает 45 % при  $P_p > 200$  мВт. Коэффициент поглощения накачки был определен по данным рис.5 для мощности, соответствующей порогу генерации, поскольку при дальнейшем увеличении мощности населенности уровней 1 и 2 не изменяются. Лазерная генерация была

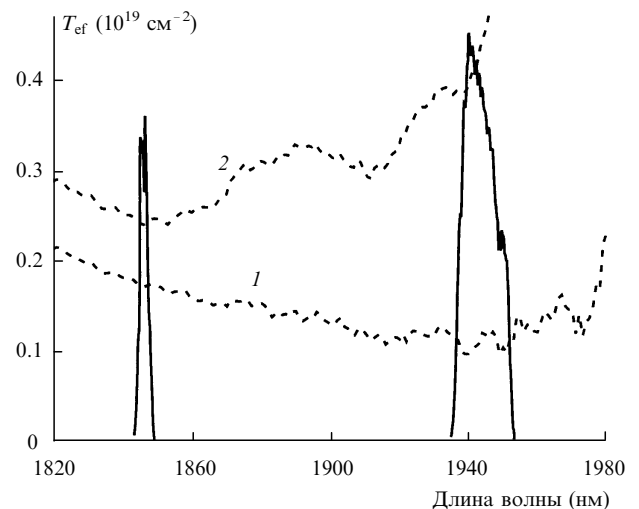


Рис.7. Спектральный состав излучения (сплошные кривые) и зависимости от длины волны правой части (13)  $T_{ef}$ , рассчитанные по данным рис.4 для  $T = 3$  (1) и 20 % (2).

Кристалл	$\tau_2$ (мс)	$\sigma_{21}^{\max}$ ( $10^{-20}$ см <sup>2</sup> )	$k_{\Sigma\text{Tm}}$ ( $10^{-18}$ см <sup>3</sup> /с)	$I_0$ (Вт/см <sup>2</sup> )	Диапазон генерации (нм)	Пороговая мощность накачки (мВт)	Дифференциальная эффективность генерации (%)
KYW:Tm (15%)	1.47	1.9	1.5	3300	1850–1950	70	45
YAG:Tm (6–12)%	12 [3]	0.5 [3]	1.2–3.5 [3]	2600 [3]	1920–2130 [17]	50 [3], 200 [17]	~60 [3*, 17]

\*с учетом внутрирезонаторных потерь.

также получена при коэффициенте пропускания выходного зеркала 20%; из-за высокого порога генерации удалось измерить только спектральный состав излучения, изображенный на рис.7 сплошными линиями (штриховыми кривыми показаны зависимости от длины волны правой части (13), рассчитанные по данным рис.4). В полном соответствии с комментариями к выражению (13) минимумы этих зависимостей действительно соответствуют длинам волн лазерной генерации.

Основные спектроскопические и генерационные параметры кристалла KYW:Tm представлены в таблице, где также приведены аналогичные данные для кристалла YAG:Tm (6%) из [3] и YAG:Tm (12%) из [17]. Сравнение показывает, что интенсивности насыщения  $I_0$  и коэффициенты ап-конверсии  $k_{\Sigma\text{Tm}}$  у обоих кристаллов практически идентичны, в то время как произведение  $\sigma_{21}^{\max}\tau_2$ , обратно пропорциональное порогу генерации, примерно вдвое больше для кристалла YAG:Tm. Диапазон возможной перестройки генерации для кристалла KYW:Tm (1850–1950 нм), куда попадают некоторые линии поглощения водяных паров и двуокиси углерода, хорошо дополняет спектральный интервал генерации YAG:Tm (1920–2130 нм) [17].

Дифференциальная эффективность генерации кристалла KYW:Tm приведена в таблице без учета паразитных потерь резонатора, которые по нашим оценкам составляют 1–1.5%, что после соответствующей коррекции дает эффективность ~60%, практически совпадающую с полученными для кристалла YAG:Tm [3, 17] результатами.

## Заключение

Представленные результаты позволяют сделать вывод о том, что по всей совокупности спектроскопических и генерационных характеристик кристаллы KYW:Tm являются перспективными активными средами для получения генерации в области ~1.9 мкм. Необходимо отметить, что интенсивности накачки, при которых была получена и исследована лазерная генерация, легко могут быть достигнуты при фокусировке излучения мощных лазерных диодов. Относительно большое сечение поглощения накачки с длиной волны в области 800 нм позво-

ляет уменьшить толщину кристалла до миллиметра и менее, что делает возможным создание как микрочипов, так и перестраиваемых излучателей двухмикронного диапазона с выходной мощностью в сотни милливатт, накачиваемых излучением ваттных лазерных диодов.

Авторы выражают свою признательность А.В.Кожину и В.М.Тарасову за техническую помощь в подготовке и проведении экспериментов. Работа выполнена в Институте лазерной физики СО РАН при финансовой поддержке РФФИ (грант № 02-97-18435).

1. Fan T.Y., Huber G., Byer R.L., Mitzscherlich P. *IEEE J. Quantum Electron.*, **24**, 924 (1988).
2. Peterson P., Gavrielides A., Sharma P.M. *Optics Comms*, **109**, 282 (1994).
3. Rustad G., Stenersen K. *IEEE J. Quantum Electron.*, **32**, 1645 (1996).
4. Никитичев А.А. *Квантовая электроника*, **15**, 1462 (1988).
5. Fan T.Y., Byer R.L. *IEEE J. Quantum Electron.*, **23**, 605 (1987).
6. Risk W.P. *J. Opt. Soc. Amer. B*, **5**, 1412 (1988).
7. Laporta P., Brussard M. *IEEE J. Quantum Electron.*, **27**, 2319 (1991).
8. Каминский А.А., Клевцов П.В., Ли Л., Павлюк А.А. *Неорганические материалы*, **8**, 2153 (1972).
9. Мочалов И.В. *Оптич. ж.*, **11**, 4 (1995).
10. Каминский А.А., Саркизов С.Э., Павлюк А.А., Любченко В.В. *Неорганические материалы*, **16**, 720 (1980).
11. Аюпов Б.М., Протасова В.И., Павлюк А.А., Харченко Л.Ю. *Неорганические материалы*, **22**, 1156 (1986).
12. К.Андрюнас К., Барила А., Вишакас Ю., Михайлов А., Мочалов И.В., Петровский Г.Т., Сырус И.В. *Препринт ИФ «Кристаллические активные среды с высокой кубической нелинейностью»* (Вильнюс, 1987).
13. Каминский А.А., Устименко Н.С., Гулин А.В., Багаев С.Н., Павлюк А.А. *ДАН*, **359**, 179 (1998).
14. Graf T., Balmer J.E. *Opt. Engng*, **34**, 2349 (1995).
15. Каминский А.А. *Лазерные кристаллы* (М. Наука, 1975, с. 16–28).
16. Каминский А.А., Перлин Ю.Е. В кн. *Физика и спектроскопия лазерных кристаллов* (М., Наука, 1986, с.125–150).
17. Stoneman R.C., Esterowitz L. *Optics Letts*, **15**, 486 (1990).

S.N.Bagaev, S.M.Vatnik, A.P.Maiorov, A.A.Pavlyuk, D.V.Plakushchev.  
The spectroscopy and lasing of monoclinic Tm:KY(WO<sub>4</sub>)<sub>2</sub> crystals.

The principal spectroscopic and lasing characteristics of a Tm(15%):KY(WO<sub>4</sub>)<sub>2</sub> crystal were investigated. The transition cross sections, the luminescence quantum yield, and the lifetime and the nonlinear depopulation coefficient of the upper active state were also determined. The slope efficiency of lasing at the 1950 nm wavelength was 45%. The feasibility of tuning in the spectral range 1850–1950 nm was demonstrated in principle.