ЛАЗЕРЫ И УСИЛИТЕЛИ

# Перспективы развития фемтосекундных лазерных систем на кристаллах бериллиевых алюминатов, активированных ионами хрома и титана<sup>†</sup>

Е.В.Пестряков\*, А.И.Алимпиев\*\*, В.Н.Матросов\*\*\*

Исследованы физические и лазерные свойства кристаллов бериллиийсодержащих оксидов  $BeAl_2O_4$ ,  $BeAl_6O_{10}$ ,  $Be_3Al_2Si_6O_{18}$  и  $BeLaAl_{11}O_{19}$ , активированных ионами хрома и титана. Показано, что кристаллы  $Cr^{3+}$ : $BeAl_2O_4$ ,  $Cr^{3+}$ : $BeAl_6O_{10}$  и  $Ti^{3+}$ : $BeAl_2O_4$  по своим физическим и лазерным свойствам не уступают известным лазерным средам и перспективны для создания фемтосекундных лазерных систем.

Ключевые слова: фемтосекундные лазеры, твердотельные активные среды, примесные ионы.

#### 1. Введение

В последнее время достигнут значительный прогресс в исследованиях по генерации предельно коротких лазерных импульсов. В оптическом диапазоне получены импульсы длительностью 4.5 фс, что соответствует приблизительно двум периодам колебаний оптического поля [1]. Созданы компактные мощные фемтосекундные лазерные системы, основанные на усилении чирпированных импульсов (СРА) [2,3], что позволило получить световые потоки с интенсивностью до  $10^{20}$  BT/см<sup>2</sup> [4–6]. Все эти достижения в значительной степени связаны с использованием твердотельных активных сред с примесными ионами, имеющими электронно-колебательные полосы усиления [7].

В большинстве современных фемтосекундных лазерных систем используются кристаллы сапфира, активированные ионами Ti<sup>3+</sup>(Ti:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>). Эта активная среда обладает достаточно высоким сечением вынужденного излучения при исключительно широкой электронно-колебательной полосе усиления в области 650–1050 нм и очень высокой теплопроводностью, которая при низких температурах сравнима с теплопроводностью меди [7]. Все это делает Ti:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> очень эффективной средой для генерации и усиления сверхкоротких лазерных импульсов (СКИ) и создания тераваттных фемтосекундных лазерных систем, в том числе и систем, работающих с килогерцевой частотой повторения импульсов [8, 9].

Поступила в редакцию 24 апреля 2001 г.

Наряду с этим активно ведутся работы по созданию фемтосекундных лазерных систем и на других активных средах: кристаллах форстерита  $Cr^{4+}:Mg_2SiO_4$  [10, 11], кристаллах семейства кольквириита  $Cr^{3+}:LiCaAlF_6$ ,  $Cr^{3+}:LiSrAlF_6$ ,  $Cr^{3+}:LiSrGaAlF_6$  [12, 13], стеклах и кристаллах, легированных ионами Yb<sup>3+</sup> [14]. По сравнению с Ti:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> эти среды имеют более высокую квантовую эффективность. Кроме того, они позволяют применять для возбуждения излучение полупроводниковых лазерных диодов, что значительно повышает эффективность лазерной системы в целом. Однако все они уступают Ti:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> по ширине полосы усиления и теплопроводности.

Применение схем, сочетающих разнородные лазерные среды в задающих фемтосекундных лазерах и в усилительных каскадах, позволяет более эффективно использовать достоинства и преимущества различных комбинаций активированных кристаллов [4]. Анализ перспективности активных сред для создания фемтосекундных лазерных систем тераваттного диапазона и лазеров с экстремально короткими импульсами требует всестороннего исследования основных параметров, определяющих эффективность использования самих кристаллических матриц и активных ионов для генерации и усиления лазерных импульсов фемтосекундной и субфемтосекундной длительности.

В настоящей работе рассмотрена перспективность применения в качестве лазерных сред, активированных ионами Cr<sup>3+</sup> и Ti<sup>3+</sup>, бериллийсодержащих оксидных кристаллов ряда *p*BeO – *m*Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> – *n*SiO<sub>2</sub>: кристаллов хризоберилла BeAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub>, гексаалюмината бериллия BeAl<sub>6</sub>O<sub>10</sub>, берилла Be<sub>3</sub>Al<sub>2</sub>Si<sub>6</sub>O<sub>18</sub> и гексаалюмината бериллия-лантана BeLaAl<sub>11</sub>O<sub>19</sub>. Показано, что кристаллы хризоберилла и гексаалюмината бериллия, активированные ионами Cr<sup>3+</sup>, перспективны для использования в усилительных каскадах фемтосекундных лазерных систем, а кристалл хризоберилла, активированный ионами Ti<sup>3+</sup>, – в генераторах СКИ.

<sup>&</sup>lt;sup>†</sup>По материалам доклада на семинаре «Сверхбыстрые процессы в веществах и лазерные фемтотехнологии» (Н.Новгород, Институт прикладной физики РАН, 7–8 декабря 2000 г.)

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

<sup>\*\*</sup>Кострукторско-технологический институт монокристаллов СО РАН, Россия, 630058 Новосибирск, ул. Русская, 43

<sup>\*\*\*</sup>Белорусская государственная политехническая академия, Белоруссия, 220600 Минск-107, Партизанский просп., 77

# 2. Особенности спектральных свойств активных сред фемтосекундных лазеров

Для эффективного формирования и усиления СКИ активные среды фемтосекундных лазерных систем должны обладать определенными, характерными для этих систем свойствами. Параметры сред, определяющие эти свойства, можно разбить на две группы – спектральногенерационные и теплофизические. Наиболее важную роль играют спектрально-генерационные свойства, т. к. именно они определяют особенности генерации и усиления импульсов фемтосекундной длительности. Следует отметить, что требования к этим свойствам определяются как параметрами СКИ, так и физическими процессами, которые используются при формировании и усилении этих импульсов.

В настоящее время генерация СКИ в непрерывных твердотельных лазерах осуществляется, в основном, путем формирования солитонного режима при совместном действии амплитудной и фазовой самомодуляции, за счет керровской внутрирезонаторной линзы и компенсации дисперсии групповых скоростей дисперсионными элементами [15, 16].

Для лазеров, работающих на керровском механизме синхронизации мод (KML-лазеры) прежде всего необходимо, чтобы активные среды имели достаточную для генерации фемтосекундных импульсов ширину полосы усиления. Кроме того, очень важно, чтобы активная среда KML-лазера обладала необходимым коэффициентом усиления для включения керровского механизма синхронизации.

Анализ оптимальных условий керровской синхронизации мод, проведенный в работах [17–19], показал, что эффективность синхронизации зависит от многих параметров и ее определение требует конкретных данных не только об активной среде, но и о параметрах резонатора лазера и его не-линейных и дисперсионных элементах. Для стандартной Z-образной геометрии резонатора КМL-лазера на кристалле Ti:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> расчеты дают необходимую внутрирезонаторную мощность порядка 10<sup>5</sup> – 10<sup>6</sup> BT [16].

Необходимое для реализации таких мощностей соотношение между шириной полосы  $\Delta v$  и коэффициентом усиления g(v) лазера может быть получено в приближении максимальной инверсии. В этом случае на электронно-колебательном переходе  $g(v) \approx \sigma(v)N$ , где  $\sigma(v)$  – сечение излучения; N – концентрация активных центров. Проанализируем взаимосвязь между g(v) и  $\Delta v$ , используя соотношение между  $\sigma(v)$  и  $\Delta v$ . При гауссовом профиле полосы люминесценции, связанной с электронно-колебательным переходом, сечение излучения в максимуме полосы усиления [20]

$$\sigma(\nu_{\rm max}) = \frac{2}{8\pi} \left(\frac{\ln 2}{\pi}\right)^{1/2} \frac{\lambda^2}{n^2} \frac{g_1}{g_2} \frac{1}{\Delta \nu_{\rm eff} \tau} , \qquad (1)$$

где  $\Delta v_{\rm eff}$  – эффективная ширина полосы излучения, связанная с интенсивностью люминесценции  $I_{\rm em}$  соотношением

$$\Delta v_{\rm eff} = 2 \left(\frac{\ln 2}{\pi}\right)^{1/2} \frac{\int I_{\rm em}(\nu) d\nu}{I_{\rm em}(\nu_{\rm max})}; \tag{2}$$

 $g_i$  – статистические веса верхнего (i = 2) и нижнего (i = 1) уровней; n – показатель преломления;  $\tau$  – излучательное

время жизни;  $I_{em}(v_{max})$  – интенсивность люминесценции в максимуме.

Это фундаментальное соотношение, связывающее основные спектральные параметры активной среды, можно представить в виде  $\sigma(v_{\text{max}}) = M_{\text{am}}\lambda^2/(\tau\Delta v_{\text{eff}} n^2)$ , где

$$M_{\rm am} = \sigma(v_{\rm max})\tau\Delta v_{\rm eff} (n/\lambda)^2 = (2/8\pi)(\ln 2/\pi)^{1/2} = 0.0374 \ (3)$$

– некая постоянная, универсальная для всех твердотельных лазерных сред с гаусовой формой полос люминесценции и  $g_1 = g_2$ .

Выражение (3) позволяет по заданной длительности импульса  $\tau_{\rm p}$  определить соотношение между временем жизни и сечением излучения активной среды, необходимое для генерации импульса данной длительности. Для генерации спектрально-ограниченного импульса солитонного типа длительностью  $\tau_{\rm p} = 10$  фс ширина полосы усиления должна быть не менее  $\Delta v_{\text{eff}} = 1000 \text{ см}^{-1}$ . Из (3) следует, что для активной среды с n = 1.76 и  $\lambda = 800$  нм произведение  $\sigma(v_{\text{max}})\tau = 7.7 \cdot 10^{-25} \text{ с.см}^2$ , т. е. при времени жизни возбужденного состояния  $\tau = 3$  мкс сечение излучения  $\sigma(v_{\text{max}}) = 2.57 \cdot 10^{-19} \text{ см}^2$ . Полученное значение хорошо согласуется с сечением  $\sigma(v_{\text{max}})$  для электронно-колебательного перехода  ${}^{2}E - {}^{2}T_{2}$  иона Ti  ${}^{3+}$  в кристалле сапфира [7]. Следует отметить, что при анализе не учитывалось сечение поглощения из возбужденного состояния в спектральной области усиления  $\sigma_{esa}(v)$ . В ряде случаев это явление может сужать область усиления, и тогда нужно рассматривать эффективное сечение излучения  $\sigma_{\rm eff}(v) = \sigma(v) - \sigma_{\rm esa}(v)$  [21].

При усилении СКИ методом чирпированных импульсов основным параметром, характеризующим эффективность активной среды в СРА-лазерных системах, является предельная интенсивность усиленного излучения *I*<sub>m</sub> [22]. Этот параметр, введенный для СРА-систем, с учетом (3) имеет вид

$$I_{\rm m} = \Delta v_{\rm eff} h v / \sigma(v) = 4\pi (\pi / \ln 2)^{1/2} (n/hc)^2 (hv)^3 \tau \Delta v_{\rm eff}^2 \,. \tag{4}$$

Исходя из соотношений (3), (4), можно констатировать, что общим требованием к активным средам при СРА-усилении и KML-генерации фемтосекундных импульсов является большая ширина полосы усиления  $\Delta v_{\rm eff}$ . Для генерации фемтосекундных импульсов в КМL-лазерах важно иметь сечение излучения, достаточное для получения высокой интенсивности и реализации режима керровской синхронизации мод с формированием солитонного режима. В то же время для получения предельных пиковых интенсивностей усиления в СРА-лазерах, наоборот, необходимы невысокие значения сечения излучения, для того чтобы не возникало ограничений по энергии насыщения при усилении чирпированных импульсов. В соответствии с (3) последнему условию в большей степени отвечают активные среды с большими временами жизни возбужденных уровней. По этой причине для создания тераваттных СРА-лазерных систем перспективны кристаллы и стекла, активированные не только ионами группы железа – Ті, Сг и др. (3*d*-ионы, т. е. ионы с *d*-конфигурацией незаполненной электронной оболочки), но и ионами группы лантанидов – Nd, Yb и др. (4f-ионы). Из-за особенностей заполнения электронных оболочек ионы группы лантанидов имеют менее широкие полосы усиления и, как правило, значительные времена жизни возбужденных состояний. Например, у

иона Yb<sup>3+</sup> в кристаллах и стеклах  $\tau \approx 1$  мс. Для этого иона характерна и очень высокая квантовая эффективность  $\eta = \lambda_{ab}/\lambda_{em}$ , достигающая в ряде сред 0.98. Однако даже в разупорядоченных кристаллических матрицах и стеклах ширина спектра излучения ограничена полосой порядка 100 см<sup>-1</sup>, поэтому предельная длительность импульсов излучения для сред с Yb<sup>3+</sup> находится в районе 100 фс [14].

В настоящее время наибольший интерес вызывают способы формирования импульсов длительностью менее 10 фс [4-6]. Для генерации импульсов длительностью 10 фс и менее необходимо, чтобы ширина полосы усиления превышала 1000 см<sup>-1</sup>. Это условие может быть выполнено при использовании твердотельных матриц с примесными *d*-ионами. Нужно отметить, что получение стимулированного излучения на ионах этого типа гораздо сложнее, т.к. у *d*-ионов верхняя незаполненная оболочка практически не прикрыта, как у f-ионов, другими электронными оболочками и ее свойства очень сильно зависят от окружения примесного центра в матрице. При сильном электронно-колебательном взаимодействии термов иона с колебаниями решетки кристалла происходит значительное уширение спектральных переходов и образование широких вибронных полос излучения, пригодных для усиления излучения [7, 20, 23-25].

Связь между шириной полосы излучения  $\Delta v$  и параметрами кристаллического поля активной среды с электронно-колебательным взаимодействием в модели конфигурационных кривых (рис.1) [24] определяется выражениями

$$\Delta v = 2 \left(\frac{2\hbar}{m_e \omega_{\rm ph}}\right)^{1/2} m \omega_{\rm ph}^2 Q_0$$
  
=  $\frac{70}{16} (21\pi)^{-1/2} \left(\frac{2\hbar \omega_e}{m_e \omega_e^2}\right)^{1/2} (Ze)^{1/5} \langle r^4 \rangle^{1/5} \mathrm{Dq}^{-1/5}.$  (5)

При выводе (5) было учтено, что в одномодовом приближении по колебательному спектру  $S_{\rm g}\hbar\omega_{\rm g} = S_{\rm e}\hbar\omega_{\rm e} = S\hbar\omega_{\rm ph}$  и при октаэдрической координации иона в активной среде смещение  $Q_0$  связано с параметром кристаллического поля Dq и параметром Хуанга–Рисса S [20, 24] соотношениями

$$10\mathrm{Dq} = E_{ab} = \frac{350}{16} (21\pi)^{-1/2} (Ze) \langle r^4 \rangle / Q_0^5, \tag{6}$$

 $E, U_{g}, U_{e}$ 



Рис.1. Оптические переходы между двумя невырожденными состояниями на конфигурационно-координатной диаграмме примесного иона.

$$S\hbar\omega_{\rm ph} = \frac{1}{2}(E_{ab} - E_{\rm em}) = \frac{1}{2}m_{\rm e}\omega_{\rm ph}^2Q_0^2,$$
 (7)

где Ze – эффективный заряд иона; r – эффективный радиус иона;  $\omega_{\rm ph}$  – эффективная частота фонона;  $\omega_{\rm g,e}^2 = k_{\rm g,e}/m_{\rm g,e}$ ;  $k_{\rm g,e} = d^2 U_{\rm g,e}/dQ^2$ ;  $m_{\rm g,e}$  – эффективная масса осцилляторов в основном (g) и возбужденном (e) состояниях иона;  $U_g(Q)$  и  $U_e(Q)$  – потенциальные кривые основного и возбужденного состояний иона; Q – конфигурационная координата (рис.1). Параметр *S* определяет число колебательных квантов решетки  $\hbar\omega_{\rm ph}$ , принимающих участие в электронно-колебательном процессе, и является количественной мерой электронно-фононного взаимодействия [20, 24].

В данной модели предельное смещение  $Q_0$ , при котором еще будет наблюдаться излучение на переходе, определяется соотношением

$$10\mathrm{Dq} > 4S\hbar\omega_{\mathrm{ph}} = 2m\omega_{\mathrm{ph}}^2 Q_0^2,\tag{8}$$

а безызлучательные потери – энергией активационного барьера (рис.1)

$$\Delta E_{\rm a} = \frac{(10\mathrm{Dq} - 2S\hbar\omega_{\rm ph})^2}{4S\hbar\omega_{\rm ph}} = \frac{10\mathrm{Dq} - 2m\omega_{\rm ph}^2 Q_0^2}{4m\omega_{\rm ph}^2 Q_0^2}.$$
 (9)

Соотношения (3)-(8) показывают, что для получения широких полос излучения необходим переход к кристаллам со слабым кристаллическим полем. При этом максимум спектра излучения иона будет сдвигаться в красную область, а полоса люминесценции будет увеличиваться пропорционально  $Dq^{-1/5}$ .

Что касается теплофизических свойств активных сред KML- и CPA-лазеров, то для эффективного отвода тепла, выделяемого в активном элементе за счет стоксовых и других линейных и нелинейных потерь, необходимы лазерные среды с высокими теплофизическими параметрами. Особенно это важно для мощных лазеров и систем, работающих с килогерцевой частотой следования СКИ [8, 9].

Для количественного определения пригодности активных сред для KML- и CPA-лазерных систем по теплофизическим свойствам может быть использован параметр термопрочности [26]

$$R_{\rm t} = \chi S_{\rm t} (1 - v_{\rm P}) (E\alpha)^{-1}, \tag{10}$$

где  $\chi$ ,  $S_t$ , E,  $v_P$ ,  $\alpha$  – коэффициент теплопроводности, сопротивление растяжению, модуль Юнга, коэффициент Пуассона и коэффициент линейного теплового расширения соответственно. Как уже отмечалось, кристалл сапфира является абсолютным лидером по параметру  $R_t$ . Большое значение  $R_t$  для сапфира (табл.1), является одним из достоинств данной среды, которое определило ее широкое использование в СРА-усилителях, работающих с килогерцевыми частотами повторения импульсов.

Наряду с сапфиром высокой термопрочностью обладают многие бериллийсодержащие оксидные кристаллы. Следует отметить, что практически все кристаллы бериллиевых алюминатов, к семейству которых относится и александрит, имеют высокие теплофизические характеристики [27–30], т. к. их основу составляют два окисла pBeO – mAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, великолепные теплофизические свойства которых хорошо известны [26].

Тобя 1	Фиринорено и опорт	DO TI III IO VODORT	DIATURE HOROTOR		OROH THUR TO DOP	III IV KOHOTO THOD
таол.т.	Физические и спект	ральные хараки	еристики некотор	рых известных	оксидных лазер	ных кристаллов.

	Cr <sup>4+</sup> :Mg <sub>2</sub> SiO <sub>4</sub>	Ti <sup>3+</sup> :Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Cr <sup>3+</sup> :BeAl <sub>2</sub> O <sub>4</sub>	
Характеристики	[10, 11, 32 - 34]	[7, 26, 35]	[26, 27, 35]	
Плотность $\rho$ (г/см <sup>3</sup> )	3.22	3.99	3.69	
Твердость по Моосу	7	9	8.5	
Теплоемкость $c_p$ (Дж·г <sup>-1</sup> ·К <sup>-1</sup> )	0.74	0.75	0.83	
Коэффициент теплопроводности χ (Вт·м <sup>-1</sup> ·К <sup>-1</sup> )	5	42	23	
Модуль Юнга <i>E</i> (10 <sup>9</sup> H/м <sup>2</sup> )	210*	405*	446*	
Коэффициент Пуассона v <sub>P</sub>	0.24*	0.25*	0.3*	
Коэффициент линейного расширения α (10 <sup>-6</sup> K <sup>-1</sup> )	9.5	5.0 - 6.0	6.0-7.0	
Сопротивление растяжению $S_t$ (10 <sup>6</sup> H/м <sup>2</sup> )	220	440	520	
Параметр термопрочности $R_t$ (Вт/м)	420	5700	3100	
Область генерации $\Delta\lambda$ (нм)	1130 - 1400	700 - 1050	700-790	
Ширина полосы усиления $\Delta v$ (см <sup>-1</sup> )	1700	3800	1650	
Длина волны в центре линии усиления $\lambda$ (нм)	1240	785	750	
Сечение излучения $\sigma_{\rm eff}~(10^{-19}~{ m cm}^2)$	1.15	2.77	0.07	
Время жизни метастабильного уровня τ (мкс):				
T = 77  K	25	3.85	_	
T = 300  K	2.7	3.0	260	
Показатель преломления <i>n</i>	1.63	1.76	1.74	
Нелинейный показатель $n_2 (10^{-16}  \mathrm{cm}^2/\mathrm{Br})$	2.0	3.2	2.9	
Коэффициент потерь в области генерации (см-1)	0.01*	0.001*	0.005*	
Предельная интенсивность излучения I <sub>m</sub> (ТВт/см <sup>2</sup> )	71	104	1876	
*Данные получены на кристаллах, выращенных В.Н.Матросовым.				

На основе полученных соотношений для спектральных и теплофизических параметров активных сред фемтосекундных лазеров был проведен анализ эффективности лазерных сред, получивших наибольшее распространение при создании КМL- и СРА-лазерных систем. В табл.1 эти параметры приведены для трех наиболее известных лазерных сред. Видно, что кристаллы александрита по совокупности параметров, необходимых для СРА-лазерных систем, превосходят даже кристаллы Ti:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> и тем более кристаллы Cr:форстерита.

Учитывая связь спектральных характеристик примесных ионов с параметрами кристаллического поля твердотельных матриц и принимая во внимание высокие теполофизические свойства оксидных бериллийсодержащих соединений, можно сделать вывод о перспективности создания на основе кристаллов из семейства  $pBeO - mAl_2O_3 - nSiO_2$  новых лазерных сред с широкими полосами излучения, пригодными для усиления и генерации фемтосекундных импульсов в KML- и CPAлазерах.

## 3. Активные среды для фемтосекундных лазеров на основе кристаллов бериллиевых алюминатов, активированных ионами Cr и Ti

#### 3.1. Спектроскопические свойства ионов Cr и Ti

Из соединений ряда *p*BeO – *m*Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> – *n*SiO<sub>2</sub> были выращены кристаллы хризоберилла BeAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub>, гексаалюмината бериллия BeAl<sub>6</sub>O<sub>10</sub>, берилла Be<sub>3</sub>Al<sub>2</sub>Si<sub>6</sub>O<sub>18</sub> и гексаалюмината бериллия-лантана BeLaAl<sub>11</sub>O<sub>19</sub>. Кристаллы берилла были выращены гидротермальным и газотранспортным методами. Рост остальных кристаллов осуществлялся методом Чохральского на установках с индукционным нагревом.

Результаты изучения физических свойств кристаллов бериллиевых алюминатов представлены в табл.2. Данные, приведенные в ней, показывают, что все исследованные кристаллы, как и ожидалось, имеют высокие теплофизические параметры, причем у кристаллов  $BeAl_2O_4$  и  $BeAl_6O_{10}$  они самые большие. Из-за близости физических и структурных свойств кристалла гексаалюмината бериллия к свойствам хризоберилла, его можно назвать «псевдохризобериллом».

Спектроскопические характеристики кристаллов, активированных ионами Cr и Ti, показаны на рис.2–5. Спектры поглощения, возбуждения и люминесценции являются типичными для октаэдрически координированных трехвалентных ионов Cr и Ti.

Характерной чертой спектров возбуждения кристаллов, активированных ионами титана (рис.4), является расщепление верхнего возбужденного  ${}^{2}E$ -состояния за счет эффекта Яна – Теллера [31], которое максимально у иона Ті в кристалле BeAl<sub>6</sub>O<sub>10</sub>. Сильное ян-теллеровское взаимодействие приводит к расщеплению и смешению расщепленных компонент верхней потенциальной кривой иона относительно нижней, что ведет к дополнитель-

Табл.2. Физические характеристики кристаллов бериллийсодержащих оксидов.

Характеристики	BeLaAl <sub>11</sub> O <sub>19</sub>	Be <sub>3</sub> Al <sub>2</sub> Si <sub>6</sub> O <sub>18</sub>	BeAl <sub>6</sub> O <sub>10</sub>
Плотность $\rho$ (г/см <sup>3</sup> )	4.17	2.68	3.74
Твердость по Моосу	7	7.5	8.5
Теплоемкость $c_p$ (Дж·г <sup>-1</sup> ·К <sup>-1</sup> )	0.7	0.84	0.8
Коэффициент теплопро- водности χ (Вт·м <sup>-1</sup> ·К <sup>-1</sup> )	10	5.6	12.5
Коэффициент Юнга <i>E</i> (10 <sup>9</sup> H/м <sup>2</sup> )	379	200	381
Коэффициент Пуассона v <sub>P</sub>	0.24	0.24	0.24
Коэффициент линейного расширения α (10 <sup>-6</sup> K <sup>-1</sup> )	6.0 <i>  a</i>	2.6    <i>c</i>	6.8    <i>a</i>
Температура плавления T (°C)	1850	1470	1830



Рис.2. Спектры поглощения иона  $Cr^{3+}$ .



Рис.3. Спектры люминесценции иона Cr<sup>3+</sup>.



Рис.4. Спектры возбуждения иона  $Ti^{3+}$  в кристаллах  $Be_3Al_2Si_6O_{18}$  (1),  $BeLaAl_{11}O_{19}$  (2),  $BeAl_2O_4$  (3),  $Al_2O_3$  (4),  $BeAl_6O_{10}$  (5).



Рис.5. Эффективное сечение излучения иона  $Ti^{3+}$  в кристаллах  $Be_3Al_2Si_6O_{18}$  (*I*),  $BeLaAl_{11}O_{19}$  (*2*),  $BeAl_2O_4$  (*3*),  $Al_2O_3$  (*4*),  $BeAl_6O_{10}$  (*5*).



Рис.6. Температурная зависимость времени жизни возбужденного состояния иона  $Ti^{3+}$  в кристаллах  $Be_3Al_2Si_6O_{18}$  (1),  $BeLaAl_{11}O_{19}$  (2),  $BeAl_2O_4$  (3),  $Al_2O_3$  (4),  $BeAl_6O_{10}$  (5).

Табл.3. Спектроскопические и лазерные характеристики ионов Cr<sup>3+</sup>.

Характеристики	BeLaAl11O19	Be <sub>3</sub> Al <sub>2</sub> Si <sub>6</sub> O <sub>18</sub>	BeAl <sub>6</sub> O <sub>10</sub>
Диапазон люминес- ценции (нм)	690-890	690-900	690-1000
Длина волны максиму- ма люминесценции (нм)	730	720	770
Показатель преломления n	1.79	1.56	1.735
Время жизни метастабильного уровня (при $T = 300$ K) $\tau$ (мкс)	10	60	13.5
Сечение перехода $\sigma$ (10 <sup>-20</sup> см <sup>2</sup> )	1.0	3.4	6.0
Область генерации $\Delta\lambda$ (нм)	_	720-850	780-950
Предельная интенсив- ность излучения <i>I<sub>m</sub></i> (ТВт/см <sup>2</sup> )	_	400	551

ному уширению полосы излучения. Максимальная ширина полосы усиления наблюдается у иона Ті в кристалле BeAl<sub>6</sub>O<sub>10</sub>, она почти в 1.5 раза превышает ширину аналогичной полосы в кристалле Ті:сапфира. Спектральная зависимость сечения излучения на электронно-колебательном переходе  ${}^{2}E - {}^{2}T_{2}$  иона Ті ${}^{3+}$  в кристалле BeAl<sub>6</sub>O<sub>10</sub> (рис.5) показывает, что у иона титана в этом кристалле сильное ян-теллеровское взаимодействие не только в возбужденном, но и в основном состоянии. Это находит отражение в характерной двугорбой форме спектральной кривой, связанной с ян-теллеровским расщеплением основного состояния иона.

Температурная зависимость времен жизни возбужденных состояний ионов титана, представленная на рис.6, показывает, что активационный барьер  $\Delta E_a$  максимален у Ті в кристалле хризоберилла и близок к  $\Delta E_a$  в сапфире. В остальных кристаллах активационный барьер ниже, что указывает на рост безызлучательных потерь с уменьшением параметра кристаллического поля Dq. По этой же причине прослеживается тенденция к увеличению ширины полосы излучения при переходе от кристалла BeAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> к BeAl<sub>6</sub>O<sub>10</sub>, связанная с усилением электронноколебательного взаимодействия.

Спектроскопические и лазерные характеристики ионов  $Cr^{3+}$  и Ti<sup>3+</sup> в кристаллах бериллиевых алюминатов представлены в табл.3 и 4 соответственно.

#### 3.2. Лазерные свойства иона Cr<sup>3+</sup>

Лазерные свойства кристаллов, активированных ионами Cr<sup>3+</sup>, исследовались при импульсном ламповом возбуждении в полосы поглощения, связанные с переходами  ${}^{4}A_{2} - {}^{4}T_{2}$  (510–690 нм) и  $A_{2} - {}^{4}T_{1}$  (380–480 нм). Накачка осуществлялась с помощью ксеноновых ламп из

Табл.4. Спектроскопические и лазерные характеристики ионов Ti<sup>3+</sup>.



Рис.7. Зависимости выходной энергии от энергии накачки для лазеров на ионах  $Cr^{3+}$  в кристаллах  $BeAl_2O_4$  (750 нм) и  $BeAl_6O_{10}$  (830 нм) и экспериментальная схема (1-зеркала; 2-активированный кристалл; 3-дисперсионная призма).



Рис.8. Контуры усиления лазеров на ионах  $Cr^{3+}$  в кристаллах  $BeAl_2O_4$  и  $BeAl_6O_{10}$  при ламповой накачке.

плавленого кварца, легированного ионами церия. Ионы церия повышают эффективность системы накачки при возбуждении ионов Cr<sup>3+</sup> за счет конверсии излучения разряда из УФ области спектра в область поглощения перехода  ${}^{4}A_{2} - {}^{4}T_{1}$ . Это позволило получить в резонаторе с дисперсионной призмой из стекла ТФ-8 дифференциальную эффективность около 1% в центре полос усиления лазеров на кристаллах Cr:BeAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> (750 нм) и Cr:BeAl<sub>6</sub>O<sub>10</sub> (830 нм). Зависимость выходной энергии каждого из этих лазеров от энергии накачки представлена на рис.7, а спектральные зависимости усиления

BeLaAl11O19	$Be_3Al_2Si_6O_{18} \\$	BeAl <sub>2</sub> O <sub>4</sub>	BeAl <sub>6</sub> O <sub>10</sub> 620-1150	
650-1050	630-950	650 - 1050		
780	730	760	770, 900	
6.0	5.2	7.5	3.2	
4.5	1.0	5.0	1.7	
1.96	4.54	2.14	2.39	
815	740	780	905	
3300	2500	3300	4600	
_	_	710 - 1070	_	
150	47	130	210	
	BeLaAl <sub>11</sub> O <sub>19</sub> 650-1050 780 6.0 4.5 1.96 815 3300 - 150	$\begin{tabular}{ c c c c c } \hline BeLaAl_{11}O_{19} & Be_3Al_2Si_6O_{18} \\ \hline 650-1050 & 630-950 \\ \hline 780 & 730 \\ \hline \\ \hline 6.0 & 5.2 \\ 4.5 & 1.0 \\ 1.96 & 4.54 \\ 815 & 740 \\ 3300 & 2500 \\ \hline \\ \hline \\ - & - \\ 150 & 47 \\ \hline \end{tabular}$	$\begin{array}{c c c c c c c c c c c c c c c c c c c $	

даны на рис.8. Следует отметить, что даже при неоптимальной длительности импульса ламповой накачки (100 мкс) по отношению к времени жизни возбужденного состояния (13.5 мкс) в лазере на Cr:BeAl<sub>6</sub>O<sub>10</sub> была получена достаточно высокая эффективность генерации и очень широкая полоса усиления, занимающая область 780–920 нм.

Полученные экспериментальные результаты по ламповому возбуждению позволяют считать, что при оптимизации условий накачки по длительности и использовании для возбуждения излучения лазерных диодов с  $\lambda =$ 650 нм может быть достигнута квантовая эффективность  $\eta$ , определяемая только стоксовыми потерями:  $\eta =$ 650 нм/830 нм = 78 % для Cr:BeAl<sub>6</sub>O<sub>10</sub> и η = 650 нм/750 нм = 87 % для Cr:BeAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub>. Необходимо подчеркнуть, что для диодной накачки наиболее перспективен кристалл Cr:BeAl<sub>6</sub>O<sub>10</sub>, в котором легко достигается без существенного ухудшения оптического качества высокая концентрация ионов Cr<sup>3+</sup>. К достоинствам этого кристалла следует отнести также то, что полоса поглощения, связанная с переходом  ${}^{4}\!A_{2} - {}^{4}T_{2}$ , у него смещена в красную область спектра по сравнению с полосой в кристалле Cr:BeAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub>, что позволяет использовать для накачки диоды с длиной волны излучения 670 нм.

Непрерывная лазерная генерация при накачке излучением аргонового лазера ( $\lambda = 488$  и 514.5 нм) была получена на кристаллах Cr:Be<sub>3</sub>Al<sub>2</sub>Si<sub>6</sub>O<sub>18</sub> и Cr:BeAl<sub>6</sub>O<sub>10</sub> в неселективном сферическом резонаторе. Возбуждение ионов хрома осуществлялось через коротковолновую область полосы поглощения  ${}^{4}A_{2} - {}^{4}T_{2}$ , что не очень эффективно для ионов Cr<sup>3+</sup>. Была также получена генерация в лазере на кристалле Cr:Be<sub>3</sub>Al<sub>2</sub>Si<sub>6</sub>O<sub>18</sub> ( $\lambda = 765$  нм) и на кристалле Cr:BeAl<sub>6</sub>O<sub>10</sub> ( $\lambda = 830$  нм) при пороговой мощности накачки 0.5 Вт. Высокое качество кристаллов Cr:Be<sub>3</sub>Al<sub>2</sub>Si<sub>6</sub>O<sub>18</sub>, выращенных гидротермальным методом, делает их перспективными для использования в лазерных системах, накачиваемых лазерными диодами с длиной волны 650 или 670 нм.

## 3.3. Лазерные свойства иона Ti<sup>3+</sup>

Генерация вынужденного излучения на ионах Ti<sup>3+</sup> была осуществлена только в кристаллах BeAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub>, оптическое качество которых позволило иметь достаточно низкие потери в области 700 – 1000 нм. Кристаллы других алюминатов бериллия, активированные ионами титана, были выращены со значительными ростовыми дефектами, что исключало возможность проведения экспериментов по генерации вынужденного излучения. На рис.9 представлены перестроечные характеристики лазеров на ионах Ti<sup>3+</sup> в кристаллах Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> и BeAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub>, полученные в



Рис.9. Спектральные контуры излучения непрерывных лазеров на ионах Ti $^{3+}$  в кристаллах  $Al_2O_3$  и  $BeAl_6O_{10}.$ 

идентичных условиях. В обоих случаях использовался один и тот же трехзеркальный V-образный резонатор с фильтром Лио в качестве перестроечного элемента. Накачка активных сред осуществлялась излучением аргонового лазера ( $\lambda = 488$  и 514.5 нм). Видно, что максимум полосы усиления лазера на кристалле Ti:BeAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> сдвинут на 29 нм в длинноволновую область спектра по сравнению с аналогичным максимумом для лазера на Ti:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, как и ожидалось согласно модели конфигурационных кривых.

Генерация фемтосекундных импульсов в лазере на Ti:BeAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> была реализована по традиционной схеме в Z-образном резонаторе с компенсацией дисперсии двумя призмами из стекла ТФ-8. При накачке излучением аргонового лазера кристалла длиной 15 мм была получена керровская синхронизация мод с длительностью импульсов 75 фс. При использовании кристаллов более высокого оптического качества полоса усиления Ti:BeAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> позволяет получать длительности импульсов менее 10 фс [25].

#### 4. Заключение

Таким образом, кристалл Ti:BeAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> является второй активной средой, на которой было получено вынужденное излучение ионов Ti<sup>3+</sup>. Генерация реализована в непрерывном режиме при когерентной накачке и керровской синхронизации мод. Как лазерная среда Ti:BeAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> не имеет существенных преимуществ перед Ti:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, генерационные параметры обоих активных сред близки между собой. Кристаллы Ti:BeAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> могут применяться, в основном, в KML-лазерах, т. к. в более мощных CPAлазерных системах требования к теплофизическим характеристикам более высокие, а по этим параметрам хризоберилл уступает сапфиру (см. табл.1).

Большой интерес для развития фемтосекундных лазерных систем представляет кристалл Ti:BeAl<sub>6</sub>O<sub>10</sub>, обладающий аномально широкой полосой усиления. Однако использование этой среды в настоящее время ограничено из-за недостатков технологии выращивания бездефектных кристаллов.

Из лазерных сред на основе кристаллов бериллийсодержащих оксидов, активированных ионами Cr<sup>3+</sup>, следует выделить среды, позволяющие использовать для возбуждения лазерные диоды, излучающие в области 650-670 нм. К ним относятся кристаллы Cr:BeAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub>, Cr:Be<sub>3</sub>Al<sub>2</sub>Si<sub>6</sub>O<sub>18</sub> и Cr:BeAl<sub>6</sub>O<sub>10</sub>. Из этих сред условиям диодной накачки в большей степени соответствуют кристаллы Cr:BeAl<sub>6</sub>O<sub>10</sub>. При ширине полосы усиления этой активной среды 2600 см<sup>-1</sup> предельная длительность СКИ, которую можно получить при керровской синхронизации мод, составляет 4 фс.

В СРА-лазерных системах, согласно полученным экспериментальным данным, наиболее успешно в качестве активных сред могут применяться кристаллы Cr:BeAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> и Cr:BeAl<sub>6</sub>O<sub>10</sub>. Обе среды обладают высокими теплофизическими свойствами и позволяют использовать для возбуждения ламповую и когерентную лазерную накачку. Оценки показывают, что на основе этих сред возможно построение мощных тераваттных фемтосекундных лазерных систем.

Проведенные исследования демонстрируют перспективность развития фемтосекундных KML- и СРА-лазерных систем на основе кристаллов бериллиевых алюминатов, активированных ионами титана и хрома. На кристаллах Ti:BeAl<sub>6</sub>O<sub>10</sub>, Cr:BeAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> и Cr:BeAl<sub>6</sub>O<sub>10</sub> возможно создание компактных лазерных систем, позволяющих генерировать импульсы длительностью несколько фемтосекунд и усиливать их до тераваттных мощностей. Лазерные системы такого типа открывают широкие возможности для проведения исследований по нелинейной оптике предельно коротких импульсов и релятивистской лазерной физике. Они могут применяться в химии, биологии, медицине и технике.

Авторы выражают благодарность С.Н.Багаеву за внимание и поддержку данной работы, В.В.Петрову, В.И.Трунову, А.В.Кирпичникову, А.Г.Волкову, И.И. Зубринову и С.В.Богданову за участие в изучении физических, спектроскопических и лазерных свойств кристаллов, Т.А.Матросовой, В.И.Алимпиеву за помощь при синтезе и выращивании кристаллов, А.Я.Родионову за предоставление кристаллов берилла, выращенных газотранспортным методом.

Работа выполнена при частичной поддержке РФФИ (грант № 01-02-16845), СО РАН (проект ИГ2000-8) и программ РФ «Лазерная физика» и «Фундаментальная метрология».

- Sartania S., Sheng Z., Lenzner M., Tempea G., Spielmann Ch., Krausz F., Ferencz K. *Optics Letts*, 22, 1562 (1997).
- 2. Stickland D., Mourou G. Optics Comms, 56, 219 (1985).
- Maine P., Stickland D., Bado P., Pessot M., Mourou G. *IEEE J.Quantum Electron.*, 24, 398 (1988).
- Backus S., Durfee III Ch., Murmane M., Kapteyn H.C. Rev.Sci. Instrum., 69, 1207 (1998).
- Walker B.C., Toth C., Fittinghoff D.N., Guo T., Kim D., Rose-Petruck Ch., Squier J.A., Yamakana K., Wilson K.R., Barty C.P.J. *Optics Express*, 5, 196 (1999).
- Bonlia J.D., Patterson E., Price D., White B., Springer P. Appl. Phys. B, 70, S155 (2000).
- Moulton P.F. Proc.IEEE, 80, 348 (1992); J.Opt.Soc.Amer.B, 3, 125 (1986).
- Hentshel M., Cheng Z., Krausz F., Spielmann Ch. *Appl.Phys.B*, 70, S161 (2000).
- 9. Bagnound V., Salin F. Appl. Phys. B, 70, S165 (2000).

- 10. Janusauskaus G., Oberle J., Rulliere C. Optics Letts, 23, 918 (1998).
- Togashi T., Nabekawa Y., Sekikawa T., Nagasawa Y., Watanabe S. Appl.Phys.B, 60, 169 (1999).
- Beaud P., Richardson M., Miesak E. *IEEE J.Quantum Electron.*, 31, 317 (1995).
- Korf D., Weingarten K.J., Zhang G., Moser M., Emanuel M., Beach R.J., Skidmore J.A., Keller U. *Appl.Phys.B*, 65, 235 (1997).
- Honninger C., Paschotta R., Graf M., Morier-Genoud F., Zhang G., Moser M., Biswal S., Braun A., Mourou G.A., Johannsen I., Giesen A., Seeber W., Keller U. *Appl.Phys.B*, 69, 3 (1999).
- 15. Spence D.E., Kean P.N., Sibbett W. Optics Letts, 16, 42 (1991).
- Krausz F., Fermann M.E., Brabec T., Curley P.F., Hofer M., Ober M.H., Spielmann Ch., Winter E., Schmidt A.I. *IEEE J. Quantum Electron.*, 28, 2097 (1992).
- Haus H.A., Fujimoto J.G., Ippen E.P. *IEEE J.Quantum Electron.*, 28, 2086 (1992).
- Калашников И.Л., Кример Д.О., Полойко И.Г. Квантовая электроника, 30, 927 (2000).
- 19. Komarov A.K., Komarov K.P. Optics Comms, 183, 265 (2000).
- 20. Di Bartolo B. Optical interactions in solids (N.Y., Wiley, 1968).
- 21. Petermann K. Opt.Quantum Electron., 22, 199 (1990).
- 22. Mourou G. Appl. Phys. B, 65, 205 (1997).
- Физика и спектроскопия лазерных кристаллов. Под ред. А.А.Каминского (М., Наука, 1986).
- 24. Kenyon P., Andrews L., McCollum B., Lempicki A. *IEEE J. Quantum Electron.*, **18**, 1189 (1982).
- Pestryakov E.V., Petrov V.V., Kirpichnikov A.V., Trunov V.I., Komarov K.P., Alimpiev A.I. Laser Physics, 8, 612 (1998).
- Krupke W.F., Shinn M.D., Marion J.E., Caird J.A., Stokowski S.E. J.Opt.Soc.Amer.B, 3, 102 (1986).
- Walling J.C., Peterson O.G., Jenssen H.P., Morris R.C., O'Dell E.W. IEEE J.Quantum Electron., 16, 1302 (1980).
- 28. Pan P.-C., Ma X.-S., Hu Z.-W. Cryst. Res. Technol., 27, 321 (1992).
- Pestryakov E.V., Petrov V.V., Zubrinov I.I., Semenov V.I., Trunov V.V., Kirpichnikov A.V., Alimpiev A.I. J. Appl. Phys., 82, 3661 (1997).
- Alimpiev A.I., Gulev V.S., Mokruchnikov P.V. Cryst.Res.Technol., 30, 295 (1995).
- Берсукер И.Б. Эффект Яна-Теллера и вибронные взаимодействия в современной химии (М., Наука, 1987).
- Лифшиц М.Г., Мишкель Я.И., Тарасов А.А. Квантовая электроника, 18, 1319 (1991).
- 33. Sennaroglu A. Optics Comms, 174, 215 (2000).
- 34. Chassagne B., Ivanov A., Rulliere C. Optics Comms, 141, 69 (1997).
- 35. Penzkofer A. Progr. Quantum Electron., 12, 291 (1988).