



## 2. Описание экспериментальной установки

Исследовались спектры люминесценции кристаллов YAG и YAP, активированных ионами  $\text{Nd}^{3+}$  с концентрацией  $\sim 1\%$ . Эти кристаллы накачивались излучением лазерных диодов и/или Nd:YAG-лазера и его гармоник (рис.2).

Диодная накачка осуществлялась линейкой непрерывных лазерных диодов производства фирмы ThalacSF с  $\lambda_p = 807-808$  нм и средней мощностью до 25 Вт (при токе 30 А). Для уменьшения нагрева кристаллов непрерывное излучение модулировалось прерывателем (длительность «светового окна» составляла  $\sim 6$  мс при частоте повторения импульсов  $\sim 12.5$  Гц). В других экспериментах использовалась импульсная диодная матрица JENOPTIK Laserdiode GmbH с  $\lambda_p = 808$  нм, длительностью импульса генерации 200–300 мкс и пиковой мощностью до 300 Вт. Перестройка длины волны генерации лазерных диодов в некотором диапазоне осуществлялась изменением температуры охлаждающей воды.

Оптическая накачка производилась также 2-й ( $\lambda_p = 532$  нм), 3-й (354.7 нм) или 4-й (266 нм) гармониками импульсного Nd:YAG-лазера (1064 нм), что обеспечивало как прямое, так и каскадное заселение уровня  ${}^2F(2)_{5/2}$  (см. рис.1). Длительность исходного лазерного импульса ( $\lambda_p = 1064$  нм) составляла 10 нс, частота повторения импульсов – 12.5 Гц. Для удвоения частоты генерации Nd:YAG-лазера использовался кристалл CDA, для получения 3-й и 4-й гармоник – кристалл DKDP. Энергия в импульсе 2-й и 4-й гармоник достигала  $\sim 10$  и  $\sim 2$  мДж соответственно, энергия в импульсе 3-й гармоники – примерно 0.5 мДж.

Пучки излучения лазеров фокусировались на исследуемом кристалле. Диодная линейка и матрица имели на выходе цилиндрические линзы, уменьшающие расходимость до  $0.1-1.0^\circ$ . Размеры сфокусированных пучков гармоник импульсного Nd:YAG-лазера и диодных излучателей в кристаллах были равны  $10 \times 0.1$  мм и  $7 \div 10 \times 0.2 \div 0.5$  мм соответственно.

Спектр люминесценции в видимом диапазоне 380 – 650 нм регистрировался автоматизированным спектрометром ДФС-12. Сигнал с ФЭУ-79 усиливался и обрабатывался компьютером через 12-разрядный АЦП. Отношение сигнал-шум улучшалось при усреднении по 10–20 принимаемым импульсам.

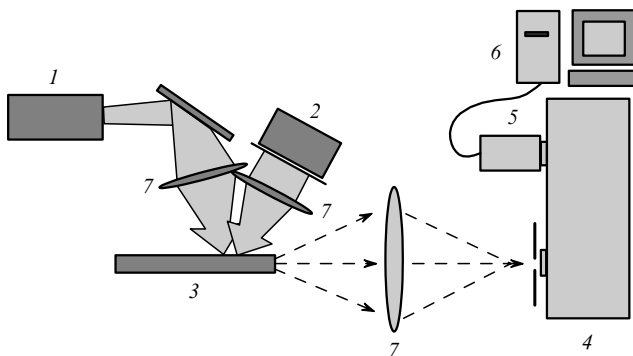


Рис.2. Схема экспериментальной установки:  
1 – Nd:YAG-лазер и генератор гармоник на его основе; 2 – диодный излучатель; 3 – кристалл Nd:YAG или Nd:YAP; 4 – ДФС-12; 5 – ФЭУ-79; 6 – АЦП; 7 – собирающие линзы.

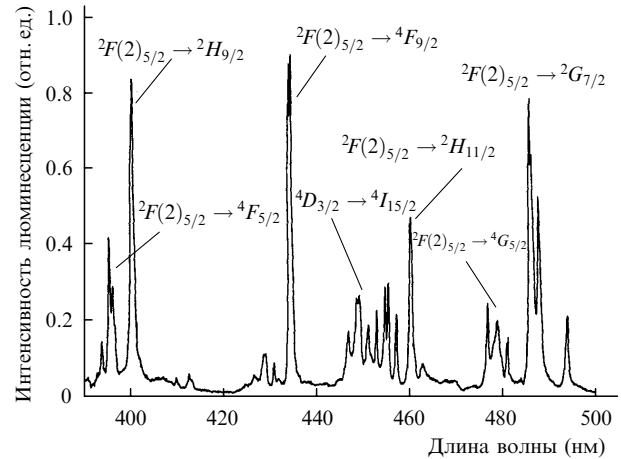


Рис.3. Спектр люминесценции кристалла Nd:YAG при накачке на  $\lambda_p = 532$  или 266 нм.

## 3. Люминесценция кристаллов при накачке излучением гармоник

Исследовались спектры люминесценции кристаллов Nd:YAG и Nd:YAP при накачке импульсами 2-й, 3-й или 4-й гармоник Nd:YAG-лазера.

### 3.1. Люминесценция кристалла Nd:YAG

Измеренные спектры люминесценции кристалла Nd:YAG при накачке 2-й или 4-й гармоникой оказались одинаковыми в диапазоне 400–500 нм (рис.3). Положение наиболее интенсивных спектральных линий в этом диапазоне с хорошей точностью соответствуют переходам, стартовыми уровнями которых являются два нижних штатковских подуровня состояния  ${}^2F(2)_{5/2}$  с энергиями  $37768$  и  $37789$   $\text{см}^{-1}$  [9]. Конечные уровни переходов были идентифицированы как уровни  ${}^2K_{13/2}$ ,  ${}^2G_{9/2}$ ,  ${}^2G_{7/2}$ ,  ${}^4G_{5/2}$ ,  ${}^4F_{9/2}$ ,  ${}^2H_{9/2}$  и  ${}^2F_{5/2}$ . Несколько линий, имеющих меньшую интенсивность, были отождествлены с переходами  ${}^4D_{3/2} \rightarrow {}^4I_{15/2}$ .

Одной из основных целей работы было исследование заселения высокоэнергетического квазиметастабильного уровня  ${}^2F(2)_{5/2}$ . В качестве критерия заселения этого уровня была выбрана люминесценция на линии с  $\lambda_{lum} = 400.5$  нм, соответствующая переходу  ${}^2F(2)_{5/2} \rightarrow {}^2H_{9/2}$  [10]. Исследование интенсивности люминесценции на этой линии показало, что излучение 2-й или 4-й гармоники приводит к заселению уровня  ${}^2F(2)_{5/2}$  ионов  $\text{Nd}^{3+}$  из основного состояния  ${}^4I_{9/2}$ . При этом интенсивность люминесценции на линии с  $\lambda_{lum} = 400.5$  нм квадратично зависела от энергии накачки пучком 2-й гармоники и линейно – от энергии пучка 4-й гармоники (рис.4 и 5). Такие зависимости объясняются соответственно двухступенчатым или одноступенчатым механизмом возбуждения уровня  ${}^2F(2)_{5/2}$  из основного состояния  ${}^4I_{9/2}$ .

В случае накачки излучением 2-й гармоники возбуждение уровня  ${}^2F(2)_{5/2}$  осуществляется каскадно через уровень  ${}^4G_{7/2}$ , имеющий малое время жизни  $\sim 0.37$  нс [11]. В связи с этим эффективность такого возбуждения оказалась малой даже в том случае, когда энергия в импульсе 2-й гармоники была почти в 4 раза больше энергии в импульсе 4-й гармоники.

Измеренный спектр люминесценции кристалла Nd:YAG при возбуждении 3-й гармоникой существенно зависел от энергии накачки. При малой энергии импуль-

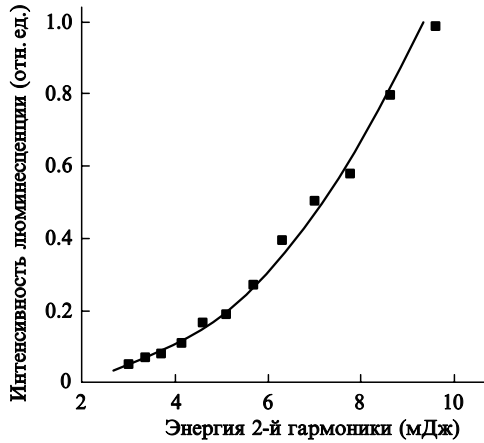


Рис.4. Зависимость интенсивности люминесценции кристалла Nd : YAG на линии с  $\lambda_{lum} = 400.5$  нм от энергии накачки 2-й гармоникой.

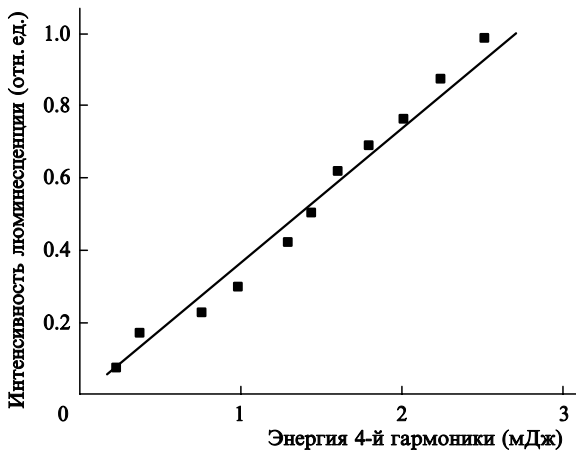


Рис.5. Зависимость интенсивности люминесценции кристалла Nd : YAG на линии с  $\lambda_{lum} = 400.5$  нм от энергии накачки 4-й гармоникой.

сов накачки (не более 0.2 мДж) спектральные линии люминесценции были идентифицированы как переходы  ${}^4D_{3/2} \rightarrow {}^4I_{13/2}$ ,  ${}^2P_{3/2} \rightarrow {}^4I_{11/2}$  и  ${}^4D_{3/2} \rightarrow {}^4I_{15/2}$ ,  ${}^2P_{3/2} \rightarrow {}^4I_{13/2}$  (рис.6). Стартовыми уровнями этих переходов являются достаточно долгоживущие уровни  ${}^4D_{3/2}$  и  ${}^2P_{3/2}$ , имеющие

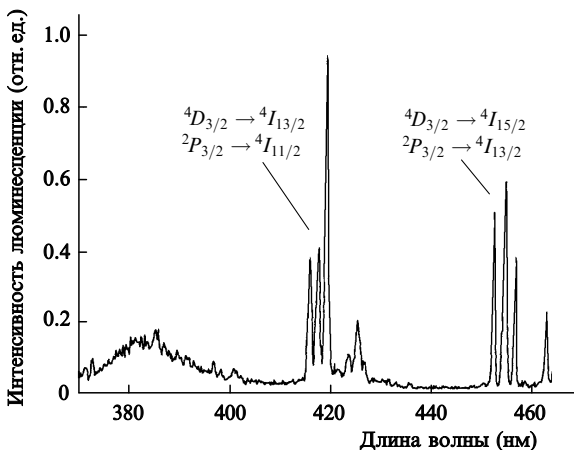


Рис.6. Спектр люминесценции кристалла Nd : YAG при накачке 3-й гармоникой и энергии в импульсе накачки не более 0.2 мДж.

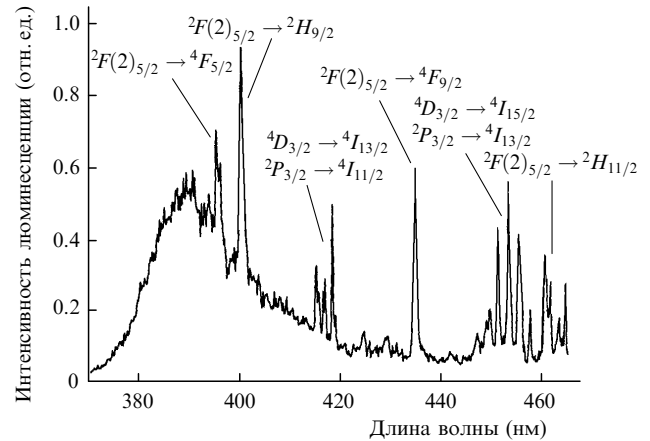


Рис.7. Спектр люминесценции кристалла Nd : YAG при накачке 3-й гармоникой и энергии в импульсе накачки  $\sim 0.5$  мДж.

время релаксации 2.2 и 300 нс соответственно [12]. Заселение данных уровней из основного состояния происходит при поглощении квантов 3-й гармоники.

Увеличение энергии импульсов 3-й гармоники приводило к появлению новых линий люминесценции, соответствующих переходам с уровня  ${}^2F(2)_{5/2}$  на уровни  ${}^4F_{5/2}$ ,  ${}^2H_{9/2}$  и  ${}^4F_{9/2}$ . Интенсивность этих переходов квадратично зависела от энергии накачки. Такая квадратичная зависимость может быть опять объяснена двухступенчатым поглощением, когда ионы Nd<sup>3+</sup> с возбуждённого уровня  ${}^4D_{3/2}$  при поглощении второго фотона совершают переход на уровни конфигурации  $5d$ . Суммарная энергия такого двухступенчатого возбуждения, равная  $56400 \text{ см}^{-1}$ , соответствует третьей полосе поглощения  $5d$ -оболочки в кристалле Nd : YAG [12]. Термализация возбуждения внутри  $5d$ -оболочки и быстрый безызлучательный переход  $5d \rightarrow 4f$  (за время  $\sim 2$  нс [2]) приводят к заселению уровня  ${}^2F(2)_{5/2}$ , люминесценция с которого и была зарегистрирована (рис.7).

Следует отметить, что результаты проведенных спектроскопических исследований кристалла Nd : YAG при лазерной накачке хорошо согласуются с результатами предыдущих исследований [9–14]. В то же время наши измерения показали наличие нескольких новых (ранее не отмеченных) спектральных линий (в частности, широкой полосы люминесценции в диапазоне 380–400 нм (см. рис.6, 7)).

### 3.2. Люминесценция кристалла Nd : YAP при накачке излучением гармоник

Исследовались спектры люминесценции кристалла Nd : YAP, полученные при накачке 2-й, 3-й и 4-й гармониками импульсного Nd : YAG-лазера (рис.8, 9). При накачке 3-й гармоникой кристалла Nd : YAP (рис.8) была зарегистрирована люминесценция на линиях, соответствующих переходам  ${}^4D_{3/2} \rightarrow {}^4I_{13/2}$ ,  ${}^2P_{3/2} \rightarrow {}^4I_{11/2}$ ,  ${}^4D_{3/2} \rightarrow {}^4I_{15/2}$  и  ${}^2P_{3/2} \rightarrow {}^4I_{13/2}$ , положение которых близко к положению аналогичных линий в кристалле Nd : YAG.

В то же время спектры люминесценции кристалла Nd : YAP при оптической накачке излучением 2-й и 4-й гармоник (рис.9) отличаются от спектров кристалла Nd : YAG при той же накачке. Так, при накачке кристалла Nd : YAP излучением 2-й гармоники наряду с переходами с уровней  ${}^2F(2)_{5/2}$  и  ${}^4D_{3/2}$  зарегистрирован также переход с уровня  ${}^2P_{3/2}$  ( $\lambda_{lum} = 461$  нм), который в спектре люминесценции кристалла Nd : YAG не наблюдался.

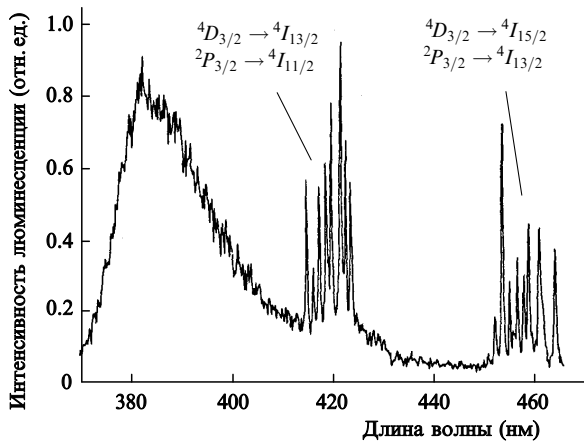


Рис.8. Спектр люминесценции кристалла Nd:YAP при накачке 3-й гармоникой.

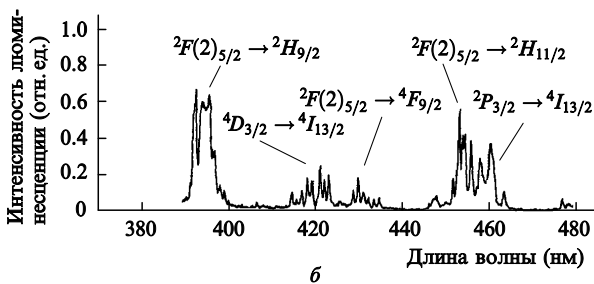
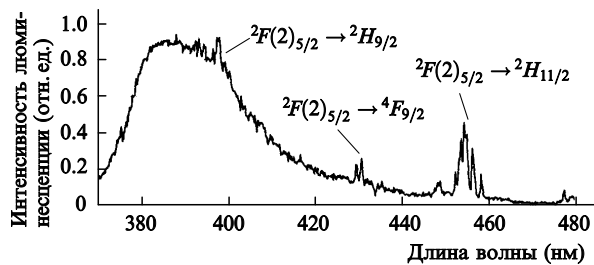


Рис.9. Спектры люминесценции кристалла Nd:YAP при накачке 2-й (а) и 4-й (б) гармониками.

При накачке 4-й гармоникой были зарегистрированы только те линии, которые соответствуют переходам с уровня  ${}^2F(2)_{5/2}$ . Однако эти линии люминесценции в кристалле Nd:YAP были немного смещены в коротковолновую сторону по сравнению с аналогичными линиями в кристалле Nd:YAG. Данный факт можно объяснить тем, что два нижних штатковских подуровня состояния  ${}^2F(2)_{5/2}$  ионов  $\text{Nd}^{3+}$  в матрице YAP расположены немного выше, чем в матрице YAG [11, 14].

Следует отметить, что при лазерной накачке кристалла Nd:YAP наблюдалась еще более интенсивная (по сравнению с накачкой кристалла Nd:YAG) широкополосная люминесценция в диапазоне  $\lambda_{\text{lum}} = 375 - 400$  нм (см. рис.8, 9). Наличие этой полосы люминесценции может быть объяснено переходами с уровней  $5d$ -оболочки, линии которых перекрываются.

#### 4. Коротковолновая люминесценция при комбинированной накачке

Коротковолновая люминесценция (в диапазоне 380–650 нм) исследовалась в кристаллах Nd:YAG и Nd:YAP

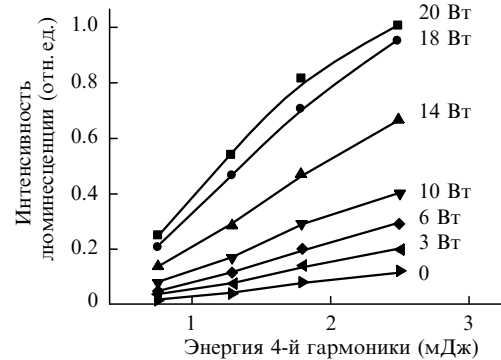


Рис.10. Интенсивность люминесценции кристалла Nd:YAG на линии с  $\lambda_{\text{lum}} = 400.5$  нм при комбинированной накачке линейкой диодных лазеров и 4-й гармоникой импульсного Nd:YAG-лазера в зависимости от энергии в импульсе 4-й гармоникой при различных мощностях диодной линейки.

при накачке диодными излучателями ( $\lambda_p = 808$  нм) и гармониками Nd:YAG-лазера.

При оптической накачке кристаллов Nd:YAG и Nd:YAP одними только диодными излучателями (как непрерывными, так и импульсными) в наших экспериментах не было зарегистрировано люминесценции в диапазоне 380–650 нм вплоть до интенсивности накачки 10–15 кВт/см<sup>2</sup>. В то же время при комбинированной накачке кристалла Nd:YAG диодной линейкой ( $\lambda_p = 808$  нм) и излучением 4-й гармоникой импульсного Nd:YAG-лазера наблюдалось сильное увеличение люминесценции с уровня  ${}^2F(2)_{5/2}$  с ростом интенсивности диодной накачки (рис.10). Интенсивность люминесценции зависела от задержки импульса 4-й гармоникой относительно начала импульса диодной накачки. При увеличении задержки от нуля до 200 мкс имел место практически линейный рост интенсивности коротковолновой люминесценции. Максимум сигнала люминесценции наблюдался при задержке  $\sim 250$  мкс, что соответствует времени жизни метастабильного уровня  ${}^4F_{3/2}$ . При дальнейшем росте временной задержки интенсивность коротковолновой люминесценции не увеличивалась.

Были получены зависимости интенсивности люминесценции на линии с  $\lambda_{\text{lum}} = 400.5$  нм при комбинированной накачке 4-й гармоникой и диодной лазерной линейкой от средней мощности последней при её различных длинах волн. Длина волны диодной накачки варьировалась путём изменения температуры воды в контуре охлаждения линейки. При этом был определён оптимальный температурный режим работы диодной лазерной линейки (рис.11). В результате оптимизации было достигнуто увеличение интенсивности люминесценции на порядок по сравнению с таковой при накачке только одной 4-й гармоникой. При этом отношение пиковой мощности 4-й гармоникой к мощности линейки составляло  $\sim 10^5$ . Полученный результат показал значительную роль диодной накачки (обеспечивающей заселение уровня  ${}^4F_{3/2}$ ) для наблюдения люминесценции с уровня  ${}^2F(2)_{5/2}$ .

В эксперименте с импульсной диодной матрицей наблюдалась еще более интенсивная люминесценция с уровня  ${}^2F(2)_{5/2}$ . Сигнал люминесценции возрастал примерно в 50 раз при увеличении мощности импульса диодной накачки от нуля до 200 Вт (рис.12). Задержка импульса 4-й гармоникой относительно импульса диодной матрицы подбиралась экспериментально по максимуму

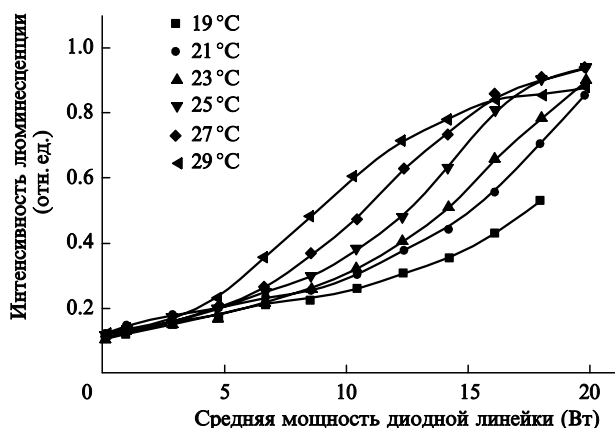


Рис.11. Интенсивность люминесценции кристалла Nd:YAG на линии с  $\lambda_{lum} = 400.5$  нм при комбинированной накачке непрерывным излучением диодной линейки и 4-й гармоникой импульсного Nd:YAG-лазера от средней мощности диодного лазера при разных температурах воды в контуре охлаждения.

люминесценции, который достигался в конце импульса излучения матрицы (при задержке  $\sim 250$  мкс).

Сильное увеличение интенсивности коротковолновой люминесценции в кристалле Nd:YAG при росте мощности диодной накачки можно объяснить двухступенчатым переходом на уровень  ${}^2F(2)_{5/2}$  из основного состояния  ${}^4I_{9/2}$  через промежуточный метастабильный уровень  ${}^4F_{3/2}$  (рис.1). Действительно, излучение диодной накачки на  $\lambda_p = 808$  нм обеспечивает эффективное заселение уровня  ${}^4F_{3/2}$ , который имеет время жизни  $\sim 250$  мкс и является верхним уровнем рабочего лазерного перехода (на длине волны 1064 нм). В условиях нашего эксперимента населённость уровня  ${}^4F_{3/2}$  была довольно большой: оценка ее по усилению слабого сигнала показала, что возбуждается до 10 % всех ионов Nd<sup>3+</sup> (в кристалле Nd:YAG с содержанием ионов Nd<sup>3+</sup>, равным 1 % и соответствующим их концентрации  $1.38 \times 10^{20}$  см<sup>-3</sup> [2]). Поэтому при наличии лазерного пучка 4-й гармоники кроме переходов из основного состояния  ${}^4I_{9/2}$  имеют место переходы

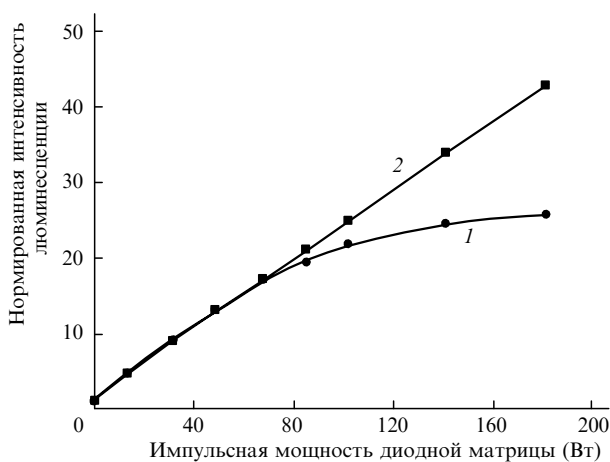


Рис.12. Интенсивность люминесценции кристалла Nd:YAG на линии с  $\lambda_{lum} = 400.5$  нм при комбинированной накачке импульсной диодной матрицей и 4-й гармоникой импульсного Nd:YAG-лазера, нормированная на интенсивность люминесценции при накачке только 4-й гармоникой, в зависимости от импульсной мощности диодной матрицы при постоянной температуре в контуре охлаждения (1) и при понижении её с повышением мощности матрицы (2).

вверх, стартовым уровнем которых является метастабильный уровень  ${}^4F_{3/2}$ . Поглощение излучения 4-й гармоники неодимового лазера из возбуждённого состояния (с уровня  ${}^4F_{3/2}$ ) способно переводить ионы Nd<sup>3+</sup> во вторую полосу 5d-оболочки (на уровни с энергией  $\sim 49000$  см<sup>-1</sup>). При этом такое поглощение из возбуждённого состояния весьма велико, поскольку сечение межконфигурационного перехода  $4f \rightarrow 5d$  (с уровня  ${}^4F_{3/2}$  во вторую полосу 5d-оболочки) на два порядка превышает сечение переходов  $4f \rightarrow 4f$ , а частота 4-й гармоники лежит вблизи резонанса на длине волны 263 нм [2,14].

После такого двухступенчатого перехода в 5d-оболочку происходит безызлучательная релаксация на нижние уровни этой оболочки с последующей безызлучательной релаксацией на верхние уровни 4f-оболочки (за время  $\sim 2$  нс [2]), приводящей, в частности, к заселению квазиметастабильного уровня  ${}^2F(2)_{5/2}$ . Отметим, что несмотря на потери энергии на безызлучательную релаксацию эффективность такого двухступенчатого возбуждения состояния  ${}^2F(2)_{5/2}$  оказалась значительно выше, чем при непосредственном поглощении УФ излучения из основного состояния (переходы  ${}^4I_{9/2} \rightarrow {}^2F(2)_{5/2}$  и  ${}^4I_{11/2} \rightarrow {}^2F(2)_{5/2}$ ).

Эксперименты не выявили увеличения интенсивности коротковолновой люминесценции в кристалле Nd:YAG при комбинированной накачке 2-й гармоникой Nd:YAG-лазера и диодной линейкой, а также 3-й гармоникой того же лазера и той же линейкой. Данный факт можно объяснить малостью энергии квантов излучения 2-й и 3-й гармоник (по сравнению с энергией перехода  $4f \rightarrow 5d$ ) и отсутствием промежуточных резонансов поглощения с метастабильного уровня  ${}^4F_{3/2}$  для этого излучения (рис.1).

Следует отметить также, что увеличения интенсивности коротковолновой люминесценции не наблюдалось и в кристалле Nd:YAP при комбинированной накачке излучением диодной линейки и 2-й, 3-й или 4-й гармоник импульсного Nd:YAG-лазера. Этот результат можно объяснить тем, что энергетическая структура ионов Nd<sup>3+</sup> в кристалле Nd:YAP несколько иная. Из литературных данных известно, в частности, расположение двух полос поглощения в 5d-оболочке кристалла Nd:YAP с резонансными частотами 53400 и 55200 см<sup>-1</sup> [15]. Нетрудно оценить, что суммарная энергия квантов комбинированной накачки (49100 см<sup>-1</sup>) недостаточна для переходов  $4f \rightarrow 5d$ .

## 5. Заключение

Таким образом, экспериментально исследована люминесценция в кристаллах Nd:YAG и Nd:YAP в видимом диапазоне длин волн (390–650 нм) при накачке диодными излучателями и 2-й, 3-й и 4-й гармониками импульсного Nd:YAG-лазера. Выявлены механизмы заселения высоколежащего квазиметастабильного уровня  ${}^2F(2)_{5/2}$ . Наиболее эффективное заселение этого уровня достигается при комбинированной накачке кристалла Nd:YAG диодным излучателем и 4-й гармоникой Nd:YAG-лазера. В этом случае было отмечено сильное (на порядок и больше) увеличение сигнала люминесценции с высокоэнергетического уровня  ${}^2F(2)_{5/2}$  (яркое голубое свечение кристалла наблюдалось визуально). Механизм заселения обусловлен двухступенчатым возбуждением: диодная накачка приводит к заселению верхнего

метастабильного уровня рабочего перехода, кванты 4-й гармоники обеспечивают поглощение из возбуждённого состояния в результате хорошо разрешенного межконфигурационного перехода  $4f \rightarrow 5d$  с последующей безызлучательной релаксацией на уровень  ${}^2F(2)_{5/2}$ .

Исследованный эффект представляется важным для понимания механизма изменения показателя преломления лазерных кристаллов, связанного с отличием поляризуемости высокоэнергетических уровней от поляризуемости основного состояния [5, 16]. Полученные результаты, по существу, указывают на возможность управления оптической нелинейностью лазерных кристаллов за счёт комбинирования диодной и лазерной накачек, поскольку заселение верхних энергетических уровней даёт существенный вклад в нелинейные изменения показателя преломления [2, 5, 16]. Ещё одним важным следствием проведённых исследований является возможность получения эффективной люминесценции в фиолетово-голубом диапазоне спектра.

Настоящая работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (гранты № 01-02-17674, 02-02-81042 Бел.2002а, 00-15-96675), фонда НАТО «Наука ради мира» (грант SfP 974143), а также МНТЦ (грант ISTC/EOARD 1913р).

1. Каминский А.А., Антипенко Б.М. *Многоуровневые функциональные схемы кристаллических лазеров* (М.: Наука, 1998).
2. Powell R.C. *Physics of solid-state laser materials* (New York – Berlin – Heidelberg: Springer, 1989).
3. Guyot Y., Manaа Н., Rivoire J.Y., et al. *Phys. Rev. B*, **51**, 784 (1995).
4. Guy S., Bonner C.L., Shepherd D.P., et al. *IEEE J. Quantum Electron.*, **34**, 900 (1998).
5. Антипов О.Л., Кужелев А.С., Лукьянов А.Ю., Зиновьев А.П. *Квантовая электроника*, **25**, 891 (1998).
6. Antipov O.L., Kuzhelev A.S., Vorob'ev V.A., Zinov'ev A.P. *Opt. Commun.*, **152**, 313 (1998).
7. Antipov O.L., Chausov D.V., Kuzhelev A.S., et al. *IEEE J. Quantum Electron.*, **37**, 716 (2001).
8. Antipov O.L., Ereмейкин O.N., Vorob'ev V.A., et al. *Techn. Dig. XVII Intern. Conf. Nonlinear Optics (ICONO'2001)* (Minsk, Belarus, 2001, p. 253).
9. Горбань И.С., Гуменюк А.Ф., Дегода В.Я. *Оптика и спектроскопия*, **58**, 217 (1985).
10. Venikouas G.E., Quarles G.J., King J.P., Powell R.C. *Phys. Rev. B*, **30**, 2401 (1984).
11. Басиев Т.Т., Дергачев А.Ю., Орловский Ю.В. и др. *Труды ИОФ РАН*, **46**, 3 (1994).
12. Kramer M.A., Boyd R.W. *Phys. Rev. B*, **23**, 986 (1981).
13. Багдасаров Х.С., Володин И.С., Коломийцев А.И. и др. *Квантовая электроника*, **9**, 1158 (1982).
14. Konstantinov N.Yu., Karaseva L.G., Gromov V.V., et al. *Phys. Stat. Sol. (a)*, **83**, 153 (1984).
15. Дубинский А.М., Столов А.Л. *ФТТ*, **27**, 2194 (1985).
16. Antipov O.L., Kuzhelev A.S., Chausov D.V., Zinov'ev A.P. *J. Opt. Soc. Am. B*, **16**, 1072 (1999).