

Сибирское отделение Российской Академии наук
ИНСТИТУТ ЯДЕРНОЙ ФИЗИКИ им. Г.И. Будкера

В.В. Анциферов, Г.И. Смирнов

ПАРАМЕТРЫ ГЕНЕРАЦИИ ЛАЗЕРОВ
НА ИОНАХ ХРОМА В КРИСТАЛЛАХ ИЗУМРУДА
И КАЛИЙ-СКАНДИЕВОГО ВОЛЬФРАМАТА

ИЯФ 98-97

НОВОСИБИРСК
1998

**Параметры генерации лазеров на ионах хрома в
кристаллах изумруда и калий-скандиевого вольфрамата**

В.В. Анциферов, Г.И. Смирнов

Институт ядерной физики
им. Г.И. Будкера СО РАН
630090, Новосибирск, Россия

Аннотация

Исследованы спектральные и энергетические характеристики излучения лазеров на ионах хрома в кристаллах изумруда и калий-скандиевого вольфрамата. Проведено сравнение параметров генерации исследованных лазеров с параметрами генерации лазера на кристалле александрита. Показано, что свободная генерация ионов хрома в исследованных кристаллах происходит в режиме незатухающих пульсаций интенсивности излучения как и на других исследованных средах.

**Parameters of the laser generation on the chromium ions
in the emerald and kalium-scandium wolframate crystals**

V.V. Antsiferov, G.I. Smirnov

Budker Institute of Nuclear Physics, Siberian Branch of Russian
Academy of Sciences, 630090, Novosibirsk, Russia

Abstract

Spectral and energetic characters of the laser radiation on the chromium ions in the emerald and kalium-scandium wolfromate crystals are investigated. The comparison of the generation parameters of the investigated lasers with the laser generation parameters on the alexandrite crystal is conducted. It is shown that free generation on the chromium ions in the investigated crystals occurs in the regime of undamped pulsations of the radiation intensity as on other investigated media.

© *Институт ядерной физики
им. Г.И. Будкера СО РАН, Россия*

1. Лазер на кристалле изумруда

Впервые генерация трехвалентных ионов хрома в кристалле изумруда на электронно-колебательных переходах ${}^4T_2 \rightarrow {}^4A_2$ была получена в работе [1]. Перестраиваемая генерация лазера на изумруде на переходе ${}^4T_2 \rightarrow {}^4A_2$ при лазерной накачке исследована в работах [2-4], а на R-линиях ионов хрома – в работах [4,5]. Энергетические характеристики генерации лазера на кристалле изумруда, выращенного флюсовым методом, при ламповой накачке исследовались в работе [6].

Кристалл изумруда (хромовый берилл, $\text{Cr}^{3+}:\text{Be}_3\text{Al}_2(\text{SiO}_3)_6$), одноосный, отрицательный имеет показатели преломления $n_o = 1.58$ и $n_e = 1.575$; с концентрацией ионов хрома 0.01–1% он обладает зеленым цветом. Его температура плавления составляет 1470 °С, что на 400 градусов ниже температуры плавления кристалла александрита. Теплопроводность кристалла изумруда почти в шесть раз меньше теплопроводности александрита и составляет $0.04 \text{ Вт}\cdot\text{см}^{-1}\cdot\text{град}^{-1}$. Кристаллы изумруда выращиваются двумя методами: гидротермальным и флюсовым. Флюсовые изумруды имеют лучшее оптическое качество, меньше содержат посторонних примесей. Неселективные потери изумрудов, выращенных гидротермальным методом, составляют порядка 0.1 см^{-1} .

Генерация на электронно-колебательных переходах ${}^4T_2 \rightarrow {}^4A_2$ в кристалле изумруда происходит в диапазоне длин волн 700 – 850 нм. Энергетический зазор между уровнями 4T_2 и 2E ионов хрома в кристалле изумруда составляет 400 см^{-1} , что в два раза меньше, чем в кристалле александрита. При комнатной температуре время жизни возбужденного состояния ионов хрома в кристалле берилла составляет 65 мкс, а сечение перехода - $\sigma = 3.3 \cdot 10^{-20} \text{ см}^2$.

Спектры оптического поглощения кристалла изумруда (рис.1) типичны для матриц, содержащих ионы Cr^{3+} в октаэдрическом окружении ионов кислорода.

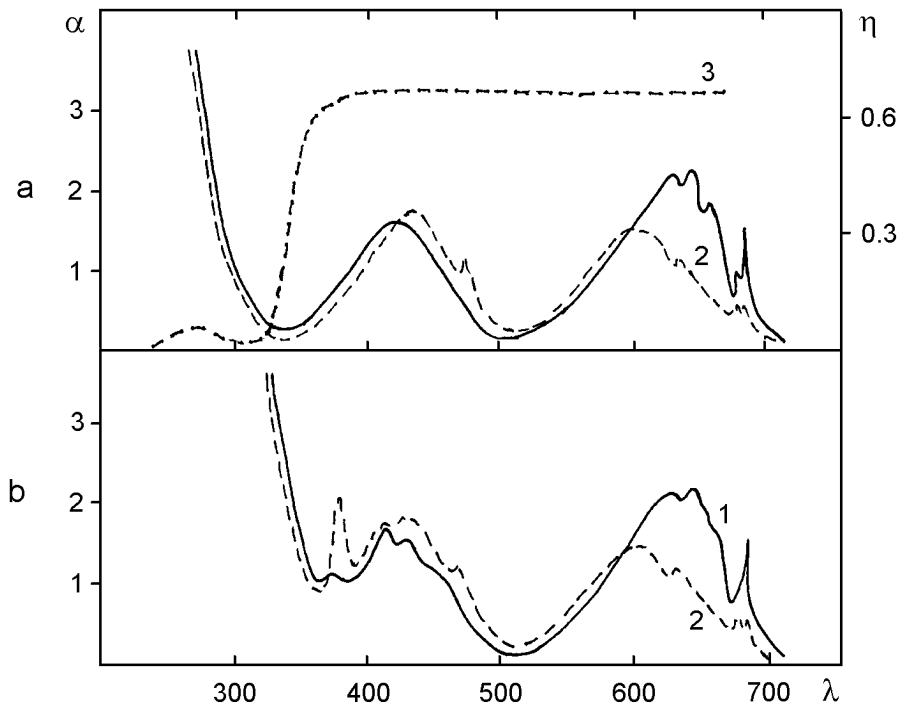


Рис. 1: Зависимости коэффициентов поглощения α (см^{-1})(1,2) и квантового выхода люминесценции η (нм) для флюсового (а) и гидротермального (b) изумрудов при $T = 300$ К, 1 - $\mathbf{E} \parallel \mathbf{C}$, 2 - $\mathbf{E} \perp \mathbf{C}$.

Широкие полосы в синей и красной областях (Y,U) спектра принадлежат разрешенным переходам ${}^4A_2 \rightarrow {}^4T_1, {}^4T_2$ соответственно. Триплетные уровни в изумруде расщепляются тригональной составляющей кристаллического поля, приводя к различиям π и σ компонент в поглощении. Узкие линии поглощения при 681 и 684 нм связаны с запрещенными по спину переходами ${}^4A_2 \rightarrow {}^2E$ (R_1 и R_2 -линии). Тонкая структура U полосы обусловлена электронфононным взаимодействием. Кристалл изумруда характеризуется более сложной структурой и, как следует из положения U полосы, более слабым кристаллическим полем $D_q = 1600$ см^{-1} (для александрита $D_q = 1740$ см^{-1}).

В кристаллах изумруда сильное УФ поглощение начинается при бо-

лее коротких длинах волн, чем для alexandrita, в диапазоне 300 нм для флюсовых кристаллов и 360 нм для гидротермальных; в последнем случае присутствуют дополнительные полосы в области 380-450 нм. Коротковолновое поглощение изумруда обусловлено, в основном, посторонними примесями, прежде всего железа, концентрация которого составляет 0,001 мас. процента во флюсовых образцах и 0,1 мас. процента в гидротермальных.

В спектрах люминесценции ионов хрома в кристалле изумруда (рис.2) доминирует широкая полоса с максимумом на длине волны 770 нм, соответствующая переходу ${}^4T_2 \rightarrow {}^4A_2$.

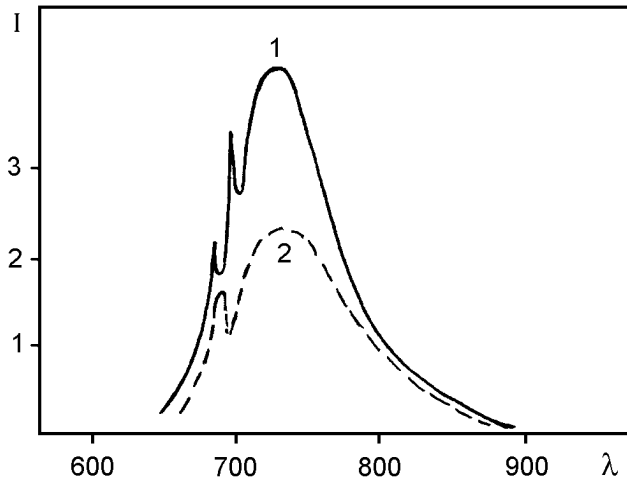


Рис. 2: Зависимости интенсивностей люминесценции I (отн.ед.) кристалла изумруда от длины волны λ (нм) при $T = 300$ К, 1 - $E \parallel C$, 2 - $E \perp C$.

Линии R_1 и R_2 в изумруде выражены слабее, что связано с меньшим энергетическим зазором ΔE между уровнями 2E и 4T_2 . В изумруде уже при комнатной температуре эти уровни находятся практически вблизи теплового равновесия ($kT = 208 \text{ см}^{-1}$) и метастабильный уровень 2 эффективно опустошается через короткоживущий уровень 4_2 . В alexandrite из-за более высокого значения $\Delta E = 800 \text{ см}^{-1}$ это имеет место при более высоких температурах.

Абсолютный квантовый выход люминесценции ионов хрома в кристалле изумруда составляет 0.7 для флюсового и порядка 0.01 - для гидротермального. Постоянство квантового выхода в области поглощения ионов хрома и его уменьшение в области короче 380 нм показывает, что

наблюдаемое в кристаллах коротковолновое поглощение связано с ионами хрома.

Трудности получения кристаллов изумруда со стандартными для лазеров размерами, связанные с очень медленной скоростью роста кристаллов, которая на порядок меньше скорости роста кристаллов alexandrita, и токсичность компонента бериллия препятствуют широкому применению лазеров на кристаллах изумруда.

1.1. Экспериментальная установка

В настоящей работе исследовался кристалл изумруда размером $\varnothing 3 \times 35$ мм, с объемом участвовавшим в генерации $V_g = 0.21 \text{ см}^{-3}$, выращенный флюсовым методом с концентрацией ионов хрома 0.7 массовых процента. Торцы кристалла были скошены на один градус и просветлены. Накачка производилась лампой ИСП-250 в кварцевом моноблочном осветителе. Отсечка УФ-излучения накачки осуществлялось жидкостным фильтром. Сравнение энергетических характеристик излучения лазера на изумруде проводилось с параметрами лазера на alexandrite, исследованными в работах [7-10], в таких же экспериментальных условиях.

Кинетика генерации лазеров исследовалась с помощью фотодиода и осциллографа, спектр генерации регистрировался при использовании спектрографа СТЭ-2, а энергия излучения измерялась прибором ИМО-2М.

1.2. Энергетические и спектральные характеристики излучения

На рис.3 приведены полученные зависимости удельных энергий генерации $E_g/V_g (\text{Дж} \cdot \text{см}^{-3})$ лазеров на изумруде (1) и alexandrite (2) от температуры кристаллов (а) и длины резонаторов (б). В отличие от лазера на alexandrite в лазере на изумруде не наблюдается такой резкой зависимости энергии генерации от температуры активной среды (рис.3,а). Это обусловлено тем, что энергетический зазор между метастабильным уровнем 2E и верхним рабочим уровнем 4T_2 ионов хрома в лазере на изумруде значительно меньше и его эффективное заселение происходит уже при комнатной температуре. Теплопроводность кристалла изумруда значительно меньше теплопроводности кристалла alexandrite, это приводит к более резкой зависимости энергии генерации лазера на изумруде от длины резонатора (рис.3,б). При ламповой накачке в активных средах твердотельных лазеров возникает положительная сферическая тепловая линза, фокус которой значительно меньше в кристалле изумруда.

Возникающая тепловая линза преобразует плоский резонатор лазера в сферический с эквивалентными параметрами [11]. С увеличением длины эквивалентный сферический резонатор лазера на изумруде, имеющий более короткофокусную тепловую линзу, быстрее переходит через границу устойчивости, что приводит к более значительному и быстрому падению энергии генерации лазера на изумруде по сравнению с лазером на александрите.

Были проведены исследования зависимости энергии генерации от изменения величины коэффициента пропускания T_2 выходного зеркала резонатора при одном уровне энергии накачки, равной 0.4 кДж (рис.4.а). В лазере на изумруде максимальная энергия генерации достигается при более высоких значениях коэффициента T_2 , чем в лазере на александрите. Пороговая энергия накачки в лазере на изумруде была значительно ниже, чем в лазере на александрите во всем диапазоне изменения коэффициентов T_2 . При оптимальных коэффициентах пропускания выходных зеркал с увеличением энергии накачки рост энергии генерации исследованных лазеров за исключением малых энергий накачки происходил нелинейно (рис.4,b). Причем энергия генерации лазера на изумруде нарастала при небольших энергиях накачки более резко, а при более высоких энергиях накачки происходило более быстрое ее насыщение, чем в лазере на александрите, так что при энергии накачки равной 0.5 кДж удельные энергии генерации обоих лазеров были практически одинаковыми. Это обусловлено более значительными деформациями кристалла в лазере на изумруде.

Спектры генерации TEM_{mnq} лазера на изумруде (рис.5) практически не отличались от подобных спектров генерации лазера на александрите [8]. При наличии даже очень слабой паразитной селекции продольных мод, вносимой скошенными на небольшой угол и просветленными торцами кристалла, спектры генерации лазера на изумруде, как и лазера на александрите, имели мелкую дискретную структуру. При комнатной температуре и невысоких уровнях накачки генерация лазера на изумруде происходит в широком спектральном интервале с максимумом на длине волны 770 нм. С увеличением энергии накачки спектр генерации уширяется, в основном, в коротковолновую область, и при восьмикратном превышении энергии накачки над пороговой ширина спектра генерации лазера на изумруде составляла порядка 20 нм. Ширина спектра генерации практически линейно зависела от энергии накачки. При таких небольших размерах кристалла изумруда срезать его торцы под углом Брюстера и тем самым полностью устранить паразитную селекцию продольных мод не удалось. То можно с уверенностью предположить, что как и в ла-

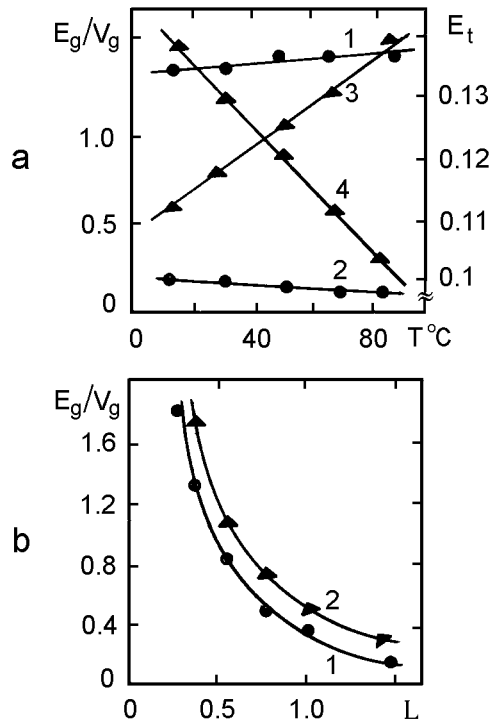


Рис. 3: *a*- зависимости удельных энергий генерации E_g/V_g (Дж·см⁻³) (1,3) и пороговых энергий накачки E_t (кДж) (2,4) лазеров на изумруде (1,2) и алемандрите (3,4) от температуры кристалла $T^\circ\text{C}$, $E_p = 0.4$ кДж, $L = 0.4$ м; *b*- зависимости удельных энергий генерации E_g/V_g (Дж·см⁻³) лазеров на изумруде (1) и алемандрите (2) от длины резонатора L (м), $E_p = 0.4$ кДж, $T = 70^\circ\text{C}$.

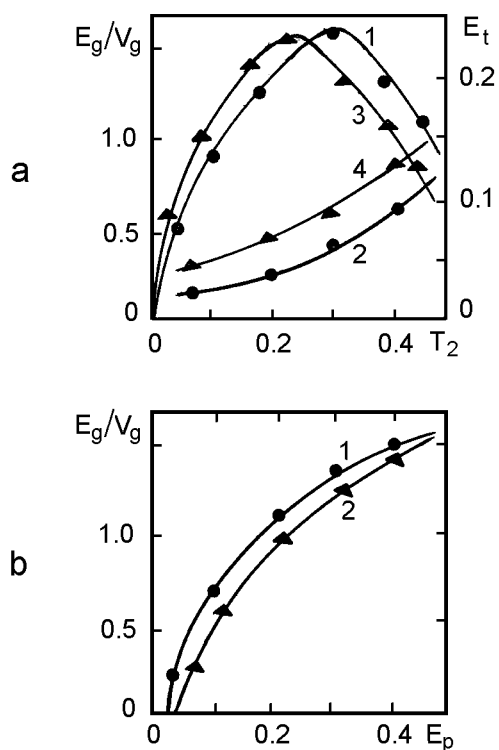


Рис. 4: *a*- зависимости удельных энергий генерации E_g/V_g (Дж·см⁻³) (1,3) и пороговых энергий накачки E_t (2,4) лазеров на изумруде (1,2) и александрите (3,4) от коэффициента пропускания выходного зеркала резонатора T_2 , $E_p = 0.4$ кДж, $L = 0.4$ м, $T = 70^\circ\text{C}$; *b*- зависимости удельных энергий генерации E_g/V_g (Дж·см⁻³) лазеров на изумруде (1) и александрите (2) от энергии накачки E_p (кДж), $L = 0.4$ м, $T = 70^\circ\text{C}$.

зере на александрите, при полном устранении селекции продольных мод в лазере на изумруде также должна исчезнуть мелкая структура спектра и только тогда можно наблюдать колебательную структуру спектра в лазере на изумруде.

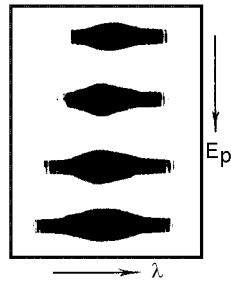


Рис. 5: Спектрограммы излучения TEM_{mnq} мод лазера на изумруде при $T = 20^\circ\text{C}$ в зависимости от энергии накачки $E_p = 3, 4, 6, 8E_t$ (сверху-вниз).

Перестройка длины волны генерации лазера на изумруде осуществлялась в дисперсионном резонаторе с помощью трех дисперсионных призм из стекла ТФ-5 с общей угловой дисперсией порядка 3 угл.мин/нм. Была получена перестройка длины волны генерации в диапазоне 710 - 830 нм со стабилизацией длины волны излучения в пределах ~ 1 нм.

Экспериментально было установлено, что генерация TEM_{ooq} и TEM_{mnq} мод в лазере на изумруде, как и на остальных активных средах с ионами хрома, происходит всегда в режиме незатухающих пульсаций интенсивности излучения. Характер развития спектра генерации во времени лазера на изумруде также, как и лазера на александрите, зависит от физического состояния кристаллов изумруда и наличия паразитной дискриминации продольных мод в резонаторе лазера. В условиях не полной отсечки УФ-излучения накачки характер развития спектра генерации лазера на изумруде во времени существенно изменялся.

2. Лазер на ионах хрома в кристалле калий-скандиевого вольфрамата

В целях расширения спектрального диапазона генерации твердотельных лазеров представляет интерес исследование широкого спектра кристаллов с примесью ионов хрома, генерирующих на электронно-колебательных переходах.

Генерация трехвалентных ионов хрома на электронно-колебательных переходах в кристаллах вольфраматов была получена в $Zn(WO_4)$ [12] и $Sc_2(WO_4)_3$ [13]. Выращивание кристаллов двойных вольфраматов с трехвалентными ионами хрома представляет определенные трудности, связанные с образованием шеелитовой структуры кристалла при фазовом переходе с уменьшением температуры кристалла от расплава до комнатной, в которую трехвалентные ионы хрома очень сложно внедряются. В работе [14] была впервые получена генерация ионов Cr^{3+} на кристалле двойного вольфрамата калия-скандия и исследованы некоторые энергетические характеристики излучения. Было показано, что в этих кристаллах практически отсутствует концентрационное тушение люминесценции до значений концентраций активатора 10 весовых процентов.

Спектр поглощения кристалла $Cr^{3+}:KSc(WO_4)_2$ с содержанием ионов хрома пять весовых процентов приведен на рис.6. По сравнению с кристаллом рубина максимум спектра поглощения ионов хрома в кристалле калий-скандиевого вольфрамата сдвинут в длинноволновую область спектра. Широкие полосы поглощения в синей и красной областях спектра (V и U-полосы) соответствуют разрешенным переходам ${}^4A_2 \rightarrow {}^4T_1$ и 4T_2 соответственно.

Полуширина спектра люминесценции ионов хрома в кристалле калий-скандиевого вольфрамата при ламповой накачке составляет 780-950 нм с максимумом на длине волны 870 нм (рис.7). В случае лазерной накачки второй гармоникой лазера на ионах неодима полуширина спектра люминесценции несколько сужается и составляет 810-940 нм с центром на длине волны 875 нм.

В настоящей работе были исследованы кристаллы двойного вольфрамата калия-скандия с примесью ионов хрома ($Cr^{3+}:KSc(WO_4)_2$, Cr:KSW) размером 4x4x5 мм, выращенные методами спонтанной кристаллизации, с концентрацией ионов хрома пять весовых процента. Измеренное время жизни верхнего рабочего уровня при комнатной температуре составило 15 мкс. Накачка активного элемента Cr:KSW производилась лазером на рубине в режиме свободной генерации с длительностью импульса порядка 1 мс и энергией излучения в импульсе 2 Дж.

Регистрация спектра генерации производилась спектрографом СТЭ-2, кинетика генерации исследовалась при использовании фотодиода и осциллографа С8-13.

При комнатной температуре была получена генерация ионов хрома на электронно-колебательных переходах ${}^4T_2 \rightarrow {}^4A_2$ в лазере Cr:KSW с центром на длине волны 870 нм и шириной спектра генерации порядка 20 нм при пятикратном превышении энергии накачки над пороговой. По-

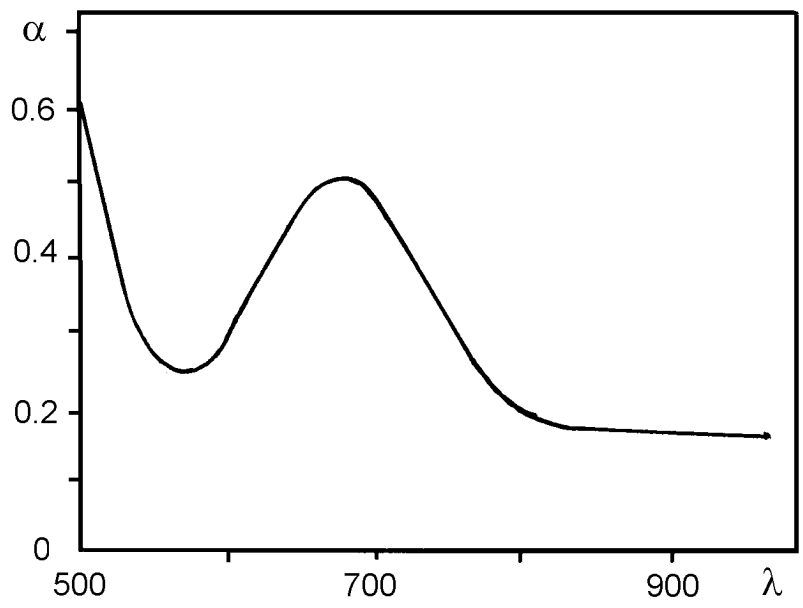


Рис. 6: Зависимость коэффициента поглощения α (см^{-1}) от длины волны λ (нм) ионов Cr^{3+} в кристалле калий-скандиевого вольфрамата при $T=300$ К.

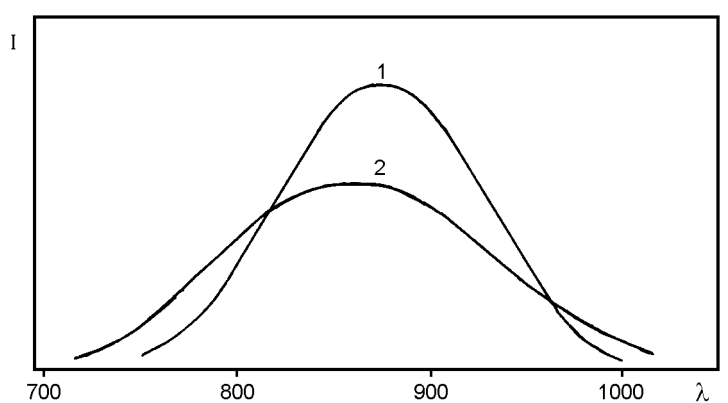


Рис. 7: Зависимости интенсивностей люминесценции I (отн.ед) ионов Cr^{3+} в кристалле калий-скандиевого вольфрамата от длины волны λ (нм) при лазерном (1) и ламповом (2) возбуждении при $T = 300$ К.

роговая энергия накачки составила порядка 25 мДж. С ростом энергии накачки ширина спектра увеличивалась практически линейно. В дисперсионном резонаторе была получена перестройка длины волны генерации в диапазоне 820-930 нм. Энергия генерации лазера Cr:KSW имела практически линейную зависимость (рис.8) от энергии накачки лазера на рубине.

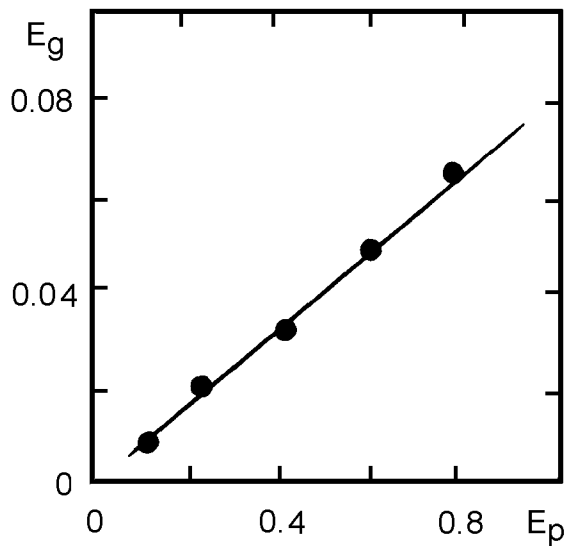


Рис. 8: Зависимость энергии генерации E_g (Дж) лазера на ионах хрома в кристалле калий-скандиевого вольфрамата от энергии накачки E_p (Дж) лазера на рубине.

Генерация продольных и поперечных мод в лазере Cr:KSW с плоскими зеркалами в обычных условиях и при устранении влияния технических возмущений резонатора происходит всегда в режиме незатухающих пульсаций интенсивности излучения, как и на остальных активных средах с ионами хрома.

Литература

- [1] *Shand M.L., Walling J.C.* // IEEE J.Quant.Electron., 1982, v.18, N 11, p.1829-1830.
- [2] *Buchert J., Alfano R.R.* // Laser Focus, 1983, N 9, p.117-123.
- [3] *Shand M.L., Lai S.T.* // IEEE, J.Quant.Electron., 1984, v.20, N 2, p.105-108.
- [4] *Buchert J., Katz A., Alfano R.R.* // IEEE J.Quant.Electron., 1983, v.19, N 10, p.1477-1478.
- [5] *Hasan Z., Keany S.T., Manson N.B.* // J.Physic C: Solid State Physic, 1986, N 19, p.6381-6387.
- [6] *Гулев В.С., Елисеев А.П., Солнцев В.П. и др.* // Квант. электрон., 1987, т.14, N 10, с.1990-1992.
- [7] *Анциферов В.В., Калягин В.А., Хабурзания Г.В., Шарнов А.В.* // Препринт СФТИ-89-1, Москва, ЦНИИАтоминформ, 1989, 14с.
- [8] *Анциферов В.В., Алимпиев А.И., Иванов Е.В., Хабурзания Г.В.* // ЖТФ, 1992, т.62, N 3, с.9-17.
- [9] *Анциферов В.В., Иванов Е.В., Смирнов Г.И.* // Препринт ИЯФ 93-107, Новосибирск, 1993, 26с.
- [10] *Анциферов В.В.* // Автореф.на соиск.уч.степ. д-ра физ.-мат.наук, Взаимодействие лазерного излучения с пучками H^- и H , ИАиЭ СО РАН, Новосибирск, 1993.
- [11] *Анциферов В.В.* // Автореф. на соиск.уч.степ. канд-та физ.-мат. наук, ИФП СО АН СССР, Новосибирск, 1973.
- [12] *Kolbe W., Peterman K., Huber G.* // IEEE J.Quant.Electron., 1985, v.21, N 10, p.1596-1599.
- [13] *Peterman K., Mitzcherligh P.* // IEEE J.Quant.Electron., 1987, v.23, N 7, p.1122-1126.
- [14] *Гулев В.С., Забазнов А.М., Коптев В.Г. и др.* // Авторское свидетельство SU N 1364189 A1, H01S 3/16, от 14.11.85.