

紫外 $Ce^{3+} : LuLiF_4$ 晶体激光光谱特性的研究

刘振林* 猿仓信彦 濑川勇三郎

(* 中国科学院长春光学精密机械研究所, 长春 130022)

(理化学研究所光动力学研究中心, 980 日本国宫城县仙台市)

摘要 $Ce^{3+} : LuLiF_4$ 晶体被证明在紫外区域具有较大的增益光谱宽度, 这点对于短脉冲激光应用非常有吸引力。我们获得了较大的小信号增益, 大于 6dB/厘米。而且, 在共焦四程放大结构中, 对连续的氩镭激光的增益达到 20dB。

关键词: 紫外; 小信号增益; 增益光谱宽度

1 引言

现在, 可调谐激光被广泛应用于物理学, 化学, 生物学及环境监测。紫外可调谐激光成为许多科学技术领域中最重要工具。然而, 现有的紫外激光源大多为可调谐可见或近红外激光(通常是染料激光器或掺钛宝石激光器)的倍频或混频输出^[1], 结构复杂, 较昂贵, 效率低, 体积大。如染料激光倍频系统, 除泵浦光源外, 还需要染料循环系统, 倍频器, 波长调谐伺服系统及将紫外光与可见光分离的系统。这些缺点妨碍了现有可调谐紫外激光器的应用。

早在 1977 年, Yang 和 Deluca^[2] 提出了一个简单办法以实现紫外或真空紫外可调谐激光辐射。[2] 的作者建议利用在宽带介电晶体中稀土元素离子的内部组态 5d-4f 跃迁。 Ce^{3+} 离子是紫外光谱范围最有前途的激活媒质。在 1992 年以前, 虽然对 Ce 掺杂的多种材料进行了大量研究工作, 但只有两种材料显示为激光激活媒质^[3,4]。随后的研究发现, 在 Ce 掺杂材料中寻找激光媒质失败的原因在于 Ce^{3+} 离子中 5d 组态的吸收(激发态吸收)^[5,6], Ce 掺杂样品中稳定的或寿命较短的色心的形成^[6], 以及在高功率紫外激光辐射作用下 Ce 掺杂样品中出现的其它复杂过程。在很长一段时间里, 为克服这些问题所遇到的困难使研究者们相信这种紫外激光结构希望很小。然而, 最近的研究表明, 通过适当选择激活媒质-基质组合结构及激活媒质-泵浦光源的组合, 利用 Ce^{3+} 离子中 5d-4f 跃迁, 人们可以得到有效的可调谐紫外激光输出, 而且这些激光相对于泵浦作用是稳定的。

本文将描述 $Ce^{3+} : LuLiF_4$ 晶体的有关光谱特性, 并将其应用于紫外激光放大。

2 $Ce^{3+} : LuLiF_4$ 晶体的光谱特性

$Ce^{3+} : LuLiF_4$ 晶体属于白钨矿(重石)结构型,以 C_4v 空间群为特征。类似于其它所有的稀土元素离子, Ce^{3+} 离子参与激活作用,替代点群 S_4 位置的 Lu^{3+} 离子。

所用的 $Ce^{3+} : LuLiF_4$ 晶体实验样品是采用 Bridgman-Stockbarger 技术,在氟处理气氛下,在石墨坩锅中生长的。

从光谱学的观点来看, Ce^{3+} 离子具有简单的电子结构(基态 $4f^1$ 和激发态 $5d^1$)。由于自旋-轨道耦合作用, $4f^1$ 态分裂成为 $2F_{5/2}$ 和 $2F_{7/2}$ 。由于晶体场作用, $5d^1$ 分裂成为数条能级。受激辐射为最低的晶体场分裂能级到基态的跃迁^[7]。

图 1 中的(a)为 $Ce^{3+} : LuLiF_4$ 晶体中 Ce^{3+} 离子的相应于 $4f-5d$ 跃迁的 π 偏振(偏振方向平行于晶体光轴 c)吸收谱。它说明 KrF 准分子激光器(激光波长为 248nm)可以用作非常合适的泵浦光源。图 1 中的(b)和(c)为 $Ce^{3+} : LuLiF_4$ 晶体中 Ce^{3+} 离子的偏振荧光谱的 π 光光谱和 σ 光(偏振方向垂直于晶体光轴 c)光谱。它们具有大多数掺 Ce 发光体的双凸起特征。荧光光谱的这种形状是与激发态 $5d$ 组态到自旋轨道双重态 $2F_{5/2}$ 和 $2F_{7/2}$ 能级的跃迁相联系的。 $Ce^{3+} : LuLiF_4$ 晶体荧光产生量子效率为 0.88 ± 0.08 。在 KrF 准分子激光泵浦下, $5d^1$ 态辐射寿命为 40 ± 3 纳秒。

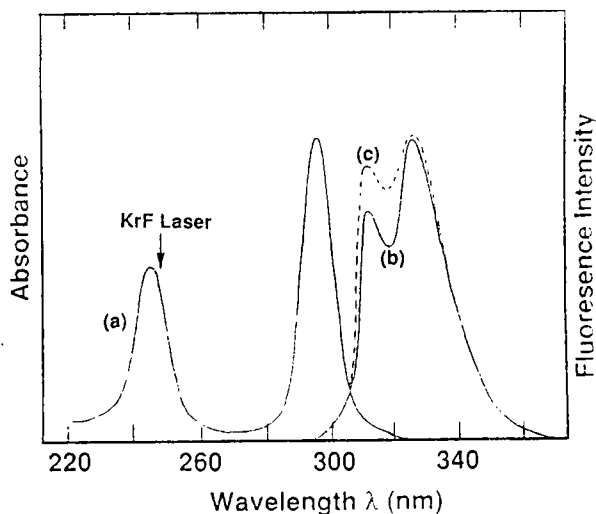


图 1 (a) $Ce^{3+} : LuLiF_4$ 晶体中的 Ce^{3+} 的相应于 $4f-5d$ 跃迁的 π 偏振吸收谱
(b)和(c)为 $Ce^{3+} : LuLiF_4$ 晶体中 Ce^{3+} 的偏振荧光谱的 π 光光谱和 σ 光光谱

Fig. 1 Spectra of $Ce^{3+} : LuLiF_4$ single-crystal: π -polarized absorption (a), and normalized fluorescence (b, π -polarization; c, σ -polarization)

3 实验装置及结果

实验中所用的柱状 $Ce^{3+} : LuLiF_4$ 晶体样品长为 1 厘米,在侧面有一个抛光的平面窗口,样品两个端面及侧平面均没有镀膜。泵浦光源为 KrF 准分子激光器,激光波长为 248 纳米,脉冲宽度为 10 纳秒。

3.1 单程小信号增益

为了测量 $Ce^{3+} : LuLiF_4$ 晶体的单程小信号增益,我们用脉冲宽度为 10 纳秒的 DCM 染料激光的倍频输出(波长选在 325 纳米)作信号光(装置如图 2 所示)。信号光与泵浦准分子激光之间的时间关系由电子延迟器控制,以获得最大的增益。

所测得的增益-泵浦能量关系曲线如图 3 所示。最大单程小信号增益为 6dB/厘米(4.3 倍),对应于 0.5 焦耳/厘米² 的泵浦激光密度。

在密度为 0.5 焦耳/厘米² 的 KrF 激光泵浦下,改变输入信号光脉冲能量的大小,利用

Frantz-Nodvick 关系式^[8],测得 $Ce^{3+} : LuLiF_4$ 晶体的饱和光通量为 50 毫焦/厘米²,它比有机染料的饱和光通量高近两个数量级。这些结果表明, $Ce^{3+} : LuLiF_4$ 晶体很适合用做功率放大介质。

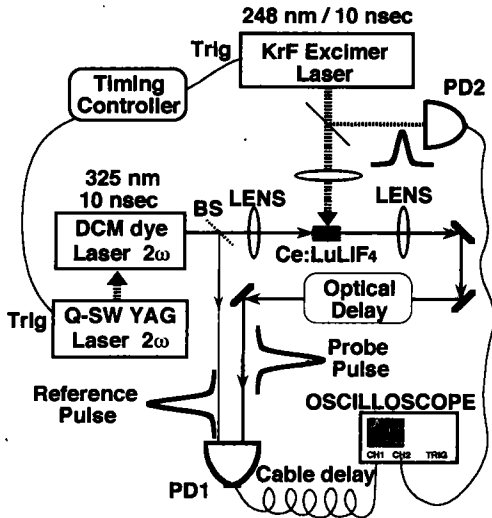


图 2 测量 $Ce^{3+} : LuLiF_4$ 晶体单程小信号增益装置
Fig. 2 The pump and probe experiment schematic diagram for measuring the single-pass small signal gain of $Ce^{3+} : LuLiF_4$ crystal

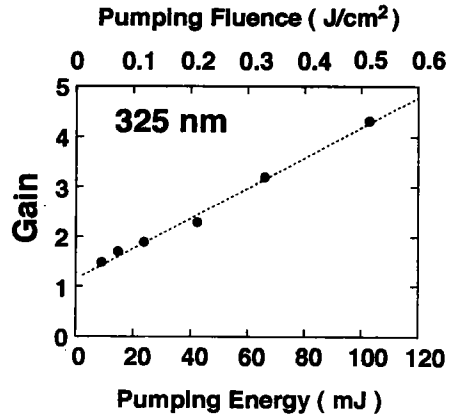


图 3 增益-泵浦能量关系曲线
Fig. 3 The gain dependence of $Ce^{3+} : LuLiF_4$ on pumping power at 325nm

3.2 增益调谐曲线的测量

测量增益-波长调谐关系的实验装置如图 4 所示。探测输入光为锁模 DCM 染料激光的倍频输出,波长调谐范围为 320-340 纳米,重复频率为 76 兆赫。所用倍频晶体为 LBO,采用第一类相位匹配方式。泵浦激光脉冲能量为 100 毫焦。

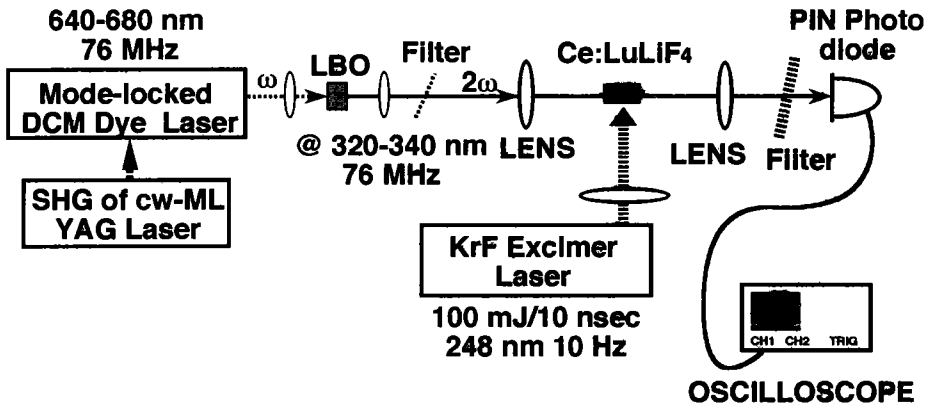


图 4 测量增益-波长调谐关系的实验装置

Fig. 4 The schematic diagram for measuring the gain spectrum of $Ce^{3+} : LuLiF_4$

在示波器上可观察到如图 5 所示的波形,被放大的激光脉冲序列与荧光叠加在一起,但我们可以很容易地减掉荧光的影响,从而得到增益值。

我们获得了从 323 纳米到 335 纳米的增益谱(如图 6 所示)。这个光谱宽度足够用于放大可调谐的飞秒激光脉冲。

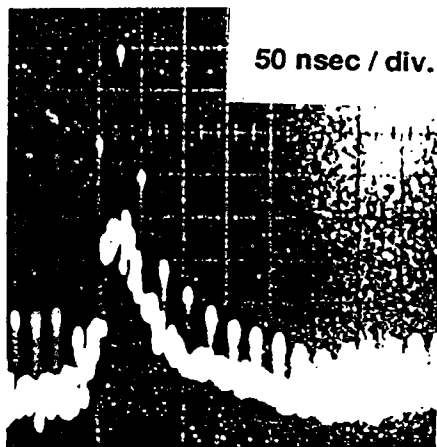


图 5 放大脉冲增益和荧光的示波器显示波形
 Fig. 5 The oscilloscope photograph of the amplified pulse train and the fluorescence. In spite of the presence of the fluorescence background, the gain can be easily estimated.

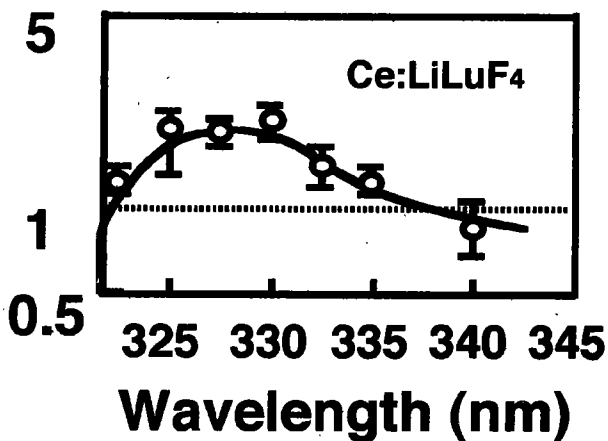


图 6 323nm~335nm 增益谱
 Fig. 6 Gain spectrum of Ce³⁺ : LuLiF₄ for randomly-polarized KrF laser pumping using the second harmonic of a picosecond mode-locked DCM-dye laser as a σ -polarized probe (pumping fluence $\sim 0.1 \text{ J/cm}^2$)

3.3 多程激光放大结构

为了在单一增益介质中得到较大的小信号增益,我们设计了侧面泵浦,共焦四程放大器。它类似于共轴泵浦掺钛宝石激光器的共焦多程放大结构^[9]。这个放大器由共焦透镜对,位于共焦透镜对的束腰处的增益介质和两个偏转棱镜构成。偏转棱镜使光束通过透镜以后有较小的位移(如图 7 所示)。这种结构可以使通过增益介质的光束在较小的泵浦区域内重合得很好。Ce³⁺ : LuLiF₄ 晶体在泵浦波长处(248 纳米)有较大的吸收(3 厘米⁻¹),因此我们采用侧面泵浦方式。

脉冲能量为 10 毫焦,脉冲宽

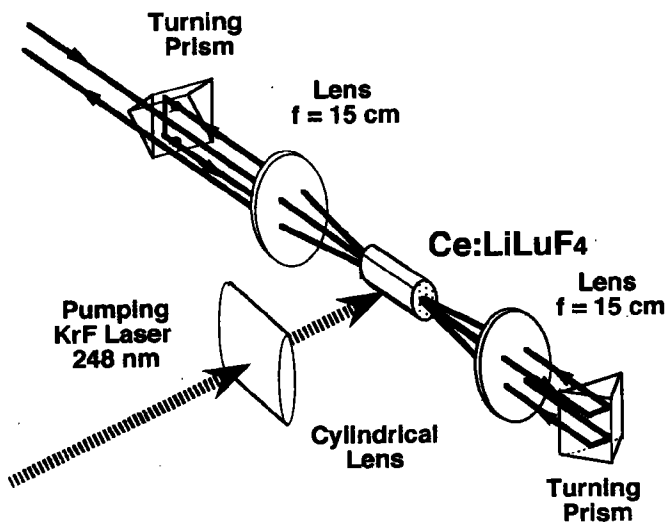


图 7 侧面泵浦,共焦 4 程放大器
 Fig. 7 Side-pumped confocal 4-pass Ce³⁺ : LuLiF₄ amplifier
 The pumping area was 3mm wide and 10mm long. A confocal lens pair and prisms with antireflection coatings were used to reduce the loss.

度为 10 纳秒的 KrF 准分子激光脉冲被较弱地聚焦在 $Ce^{3+} : LuLiF_4$ 晶体上。泵浦激光运转频率为 3 赫兹,以避免在 $Ce^{3+} : LuLiF_4$ 晶体中形成色心,降低增益^[10]。用连续的氦镭激光(波长为 325 纳米)作输入信号光,所得最大的小信号增益为 20dB。这样高的小信号增益在实际应用中足够大。

总之, $Ce^{3+} : LuLiF_4$ 晶体是一个具有较宽增益带宽的激光放大介质,能够应用于紫外超短脉冲激光器。采用多程激光放大结构,我们获得了较高的小信号增益。

参 考 文 献

- [1] Laser Focus World: The Buyer's Guide, on. 26 (1991).
- [2] K. H. Yang and J. A. Deluca, Appl. Phys. Lett., 1997, 31:594
- [3] D. J. Ehrlich, P. F. Moulton and R. M. Osgood, Opt. Lett., 1979, 4:184
- [4] D. J. Ehrlich, P. F. Moulton and R. M. Osgood, Opt. Lett., 1980, 5:339
- [5] R. R. Jacobs, W. F. Krupke and M. J. Weber, Appl. Phys. Lett., 1978, 33:410
- [6] D. S. Hamilton, in Tunable Solid-State Lasers (Berlin:Springer), 1985:80
- [7] M. A. Dubinskii, V. V. Semashko, A. K. Naumov, R. Yu. Abdulsabirov and S. L. Korableva, Laser Physics, 1994, 4:480
- [8] L. M. Frantz and J. S. Nodvick, J. Appl. Phys., 1963, 34:2346
- [9] N. Sarukura and Y. Ishida, J. Quant. Electron., 1992, 28:2134
- [10] K. -S. Lim and D. S. Hamilton, J. Opt. Soc. Am., 1989, B7:1401

Laser Spectroscopic Property Research on Ultraviolet $Ce^{3+} : LuLiF_4$ Crystal

Liu Zhenlin*, Nobuhiko SARUKURA and Yusaburo SEGAWA

(*Changchun Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Changchun 130022)

(Photodynamics Research Center, The Institute of Physical and Chemical Research, Nagamachi Koeji 19-1399, Aoba-Ku, Sendai, Miyagi 980, Japan)

Abstract

$Ce^{3+} : LuLiF_4$ is shown to have a broad gain spectrum, which is attractive for short pulse applications. Large small-signal gain over 6 dB/cm was observed for 10-nsec probe pulses under KrF-excimer laser pumping. In a confocal 4-pass configuration, 20-dB gain was demonstrated for CW laser light.

Key words: Ultraviolet, Small signal gain, Gain spectrum width

刘振林 男,1965年12月生。1986年毕业于南开大学物理系光学专业,1989年于长春光机所获硕士学位,现为在读博士,1993年7月到日本理化学研究所工作。现主要从事红外及紫外区域波长可调谐固体激光器及其应用研究,国内外发表相关论文20余篇。