

固体可调谐激光器近十年的进展

邬承就

(中国科学院安徽光学精密机械研究所)

掺钛宝石、金绿宝石等可见—红外高功率可调谐激光器问世,连续输出功率达数瓦;LiF等色心激光在室温工作,脉冲输出达100J。KTP和BBO取代早期非线性光学晶体,产生更高功率和更短波长的激光。二极管泵浦固体激光器的研制成功,导致“全固体化”激光研究的新方向。

1960年世界上第一台激光器诞生,至今已30年。激光已发展成为应用广泛的科学技术领域,成为当代少数几个新技术支柱之一。激光发展的早期(60年代),人们的主要兴趣是研究单色的高功率激光系统。对具有多种多样波长的可调谐激光虽然也在进行研究,但是,由于缺乏应用推动力而进展缓慢。染料激光器的发明代表着可调谐激光器发展的开始。70—80年代,激光应用研究方向发生变化,尤其是激光光谱学、激光化学和激光同位素分离等研究的展开,极大地促进了可调谐激光器的研究和发展。

目前,有许多种类的可调谐激光器。按工作物质分类,有染料(液体)、固体、气体和自由电子激光器四大类(表1)。固体可调谐激光器

按照其不同的工作原理可分为顺磁离子激光器、色心激光器、半导体激光器和非线性效应激光器四种。它们的共同的优点是:(1)结构紧凑;(2)高效率;(3)结实耐用,使用寿命长;(4)建立和维护费用相对较低;(5)使用条件简单,适应性强等。它们的另一个共性是研究的进展都依赖于三方面研究的进步:(1)材料的基础研究;(2)高质量晶体的生长;(3)新型激光器件或系统的设计制造。

本文简述固体可调谐激光器近几年的进展和发展趋势,使读者有概貌的了解,并以此纪念激光诞生30周年。

一、半导体可调谐激光器

半导体激光器是成熟较早、进展较快的一类激光器。目前固定波长半导体激光器的使用数量居所有激光器之首。可调谐的半导体激光器也已有一批实用商品,如GaAlAs-GaAs[(调谐范围750—905nm,CW(连续波)输出功率为1—40mW,效率1—20%)],GaAlAs列阵(790—850nm,CW0.1—1W,脉冲输出功率为1—10W,效率20—40%),InGaAsP(1100—1600nm,CW输出功率为1—10mW)等。最近几年的一个重要进展是二极管激光泵浦固体激光器形成商品,是激光器固体化、小型化的重要突破。其关键是研制出与Nd:YAG等固体激光器泵浦的波长相匹配的半导体激光光源^[1]。这种新型激光系统取消了泵浦灯,体积小,重量轻,转换

表1 可调谐激光器分类

工作物质	工作波段	可调谐激光器	调谐范围(μm)
液体	可见—近红外	染料激光器	0.41—0.74
固体	紫外—红外	顺磁离子激光器	0.3—0.66—2.28
		色心激光器	0.4—4
		半导体激光器	0.8—40
		晶体、光纤非线性扩展	0.19—118
气体	真空紫外、紫外、红外、远红外逐段有限调谐	四波混频	0.035—0.35 逐段
		受激拉曼散射	10^{-1} — 10^2
		高压红外激光	2.5—20
		准分子激光	0.126—0.55 窄段
电子	远红外—近毫米波	自由电子激光器	10^0 — 10^2

效率高,使用寿命大为延长。这些优点使“全固体化”激光成为研究的新方向。无疑,全固体化激光器特别是可调谐固体激光器会使激光的应用推向许多新的领域。

二、非线性光学晶体和技术进展

激光出现不久,非线性光学研究随之而起,理论和技术很快成熟。非线性变频成为激光频移、产生新波段可调谐激光的实用而有效的手段。这方面的技术包括:倍频(二次、三次和多次),拉曼频移(斯托克斯和反斯托克斯),混频(和频、差频),光参量振荡(OPO)等。非线性介质包括晶体、光纤、液体、气体、金属蒸汽等。寻找高性能非线性晶体的工作经历30年时间,筛选过数十种。主要目标是:(1)扩展透光波段(往紫外和红外两端发展);(2)提高转换效率;(3)提高损伤阈值;(4)提高实际输出功率。80年代对非线性晶体研究取得重大进展,研制出高性能的新晶体KTP, BBO等,它们取代了几乎所有的早期非线性晶体。KTP(磷酸氧钛钾)的主要优点是,非线性系数高(有效系数为KDP的15倍),转换效率高(40—70%),损伤阈值较高(0.75—3GW/cm²),而且不潮解。它是目前1.06μm钕激光倍频的最佳材料。BBO(偏硼酸钡)是中国科学院福建物质结构研究所研制成功的短波长非线性晶体。它的透光波长短至1900Å,而且短波长的转换效率仍然很高(40—60%),并已实现短至195nm的紫外可调谐激光,其损伤阈值很高(15—20GW/cm²)。新近^[2],福建物质结构研究所和北京人工晶体研究所又报道了另一种新的非线性晶体LBO(三硼酸锂)。它的截止波长更短(1600Å),损伤阈值更高(25GW/cm²),离散角比BBO小,加上转换效率相当高,可望成为高功率短波长非线性材料。使用它变频,有可能获得更高功率的紫外可调谐激光。

目前,通过晶体的非线性变频技术实现的可调谐激光,最短波长为195nm(染料激光经BBO倍频),最长波长为95—118μm(CO₂激光

经InSn自旋反转拉曼),其次为2—70μm(CO₂激光经GaAs混频)。常用非线性晶体列于表2。

表2 常用非线性光学晶体

晶体	透光波段(μm)	有效非线性系数d _{eff} (KDP)	转换效率(%)	损伤阈值(GW/cm ²)	
KTP	KTiOPO ₄	0.35—4.0	15	40—70	0.75—3
BBO	β-BaB ₂ O ₄	0.19—3.5	6	40—60	7—20
LBO	LiB ₃ O ₅	0.16—2.6	2—3	65	25
Urea	(NH ₂) ₂ CO	0.21—1.4	2.5	35	3—5
KDP	KH ₂ PO ₄	0.2—1	1		0.4
LN	LiNbO ₃	0.4—4.5	13.4		0.1
LI	LiIO ₃	0.3—5.5		44	0.05—0.13

三、色心激光器

透明晶体受到高能电子、中子、γ射线、X射线或真空紫外线辐照,或者在碱金属蒸汽中煅烧,会附加着色,形成色心。其原因是在处理过程中,使晶格中产生阴离子空位(带正电荷),这些空位有可能捕获一些自由电子。这些带有一定电子的空位便是色心(F心),具有特殊的吸收带。利用色心的电子-振动跃迁做成激光器的设想,始于1961年,1965年首次获得振荡(用KCl:Li-F_A(II)心,在液氮温度工作)。但随后对色心的兴趣降低而集中于染料激光的研究。到70年代中期,染料激光器的局限性已很清楚,人们对色心重新进行研究。色心激光器具有许多优良特性:(1)可调谐波长范围是0.4—4μm^[3],是很重要的波段,而染料在红外难以工作;(2)波长稳定性很高,明显地优于染料和半导体激光器;(3)线宽可以做得很窄,例如可以做到1KHz;(4)可以连续波工作,也可以窄脉冲亚微微秒运转,连续波功率达1W以上,明显地优于OPO;(5)技术较简单,装置不复杂;(6)转换效率较高,有的光泵转换效率达50%。色心激光器也有若干不足之处,努力寻找解决的办法是它发展的关键。这些方法是:(1)提高晶体的热稳定性,使色心激光器摆脱通常的液氮低温要求,能在室温工作;(2)解决光稳定性问题,克服退化现象,使激光器能长时间

工作;(3)扩展调谐范围;(4)变激光泵浦为电泵浦。

最近十年来,色心激光器取得了很大的进展,突出的进展是室温工作的色心激光器^[4]。色心激光器的进展可归结为以下几方面:(1)色心材料类型在扩大,从单一碱卤化物扩大到碱土-卤化物、氧化物和金刚石。对色心形成和转变的机理,特别是控制热稳定性、光稳定性的研究有很大进展。(2)已有一批色心晶体实现了室温激光运转。还有一批很有希望,它们主要有 LiF:(F₂[•], F₂⁺, F₂⁻), NaF:(F₂[•], F₂⁻), NaF-Li:(F₂[•])_A, CaF₂-Na:(F₂)_A, SrF₂-Na:(F₂)_A, 金刚石和白宝石(Al₂O₃)等。(3)目前最成熟的 LiF 室温色心晶体,采用钷激光、染料激光和闪光灯泵浦均已成功。最大脉冲峰值功率达 1GW,最大能量为 100J,平均功率为瓦量级,转换效率为 24—30%,阈值为数十焦耳。用 50ps 超短脉冲激光泵浦,得到的色心激光压缩脉宽为 30ps,还实现了脉宽小于 0.5ps 的色心激光。在线宽方面实现了接近单频的 0.01cm⁻¹线宽输出。用 LiF 做成了商品化的室温可调谐激光系统。用脉冲 Nd:YAG (及倍频)激光泵浦,在

0.84—1.25μm 范围调谐,倍频后在 0.42—0.62 μm 范围调谐。(4)室温色心激光器通过非线性光学技术还可大范围地扩展波段。例如,由混频(GaSe)扩展到 5.5—18μm,由晶体拉曼频移实现 1.2—1.6μm,由光纤拉曼频移实现 1.11—1.3μm 波段的可调谐等。

四、顺磁离子固体可调谐激光器

在激光发展的历史上,红宝石(Cr³⁺:Al₂O₃)和掺钕钇铝石榴石(Nd³⁺:YAG)占有重要的地位,用它们做成了最早和最重要的固体激光器。这两种晶体中激活离子 Cr³⁺和 Nd³⁺分别为过渡金属离子和稀土离子的代表。对这两类离子在顺磁壳层(3d和4f)内的光学跃迁已进行了充分的研究。它们的光谱显示出一种特性:有窄带跃迁(纯电子跃迁)和宽带跃迁(同振动相互作用有关)。宽带主要发生在过渡金属 3d 壳层内。这种宽带辐射是产生可调谐激光的基础。离子的外壳层电子同基质晶格的相互作用强度是产生可调谐激光的关键。过渡金属的 3d 电子同晶场耦合较强,引起宽的振动边带;而稀土

表 3 主要可调谐顺磁离子固体激光器*

晶体材料	调谐范围 (nm)	泵浦源	效率 (%)	辐射截面 (10 ⁻²⁰ cm ²)	荧光寿命 (μs)
1. Cr:BeAl ₂ O ₄	710—820	闪光灯	0.5—5	0.7	260
		Kr ⁺ 激光	51(71)	0.7	262
2. Cr:Be ₃ Al ₂ (SiO ₃) ₆	720—842	Kr ⁺ 激光	34(64)	3.1	65
3. Cr:LiCaAlF ₆	720—840	Kr ⁺ 激光	67	1.23	175
4. Cr:GSGG	742—842	Kr ⁺ 激光	28	0.8	115
5. Cr:ScBO ₃	787—892	Kr ⁺ 激光	29	1.0	115
6. Cr:SrAlF ₃	820—1011		15	2.1	95
7. Cr:ZnWO ₄	980—1090	Kr ⁺ 激光	13	43	8.6
8. Ti:Al ₂ O ₃	660—1070	Ar ⁺ 激光	53	10—20	3.2
		0.53YAG	64		
9. Ti:BeAl ₂ O ₄	730—950	0.53YAG	5	40	4.9
10. Co:MgF ₂	1500—2500	1.32YAG	40	0.15	1200
11. Ni:MgF ₂	1600—1740	1.32YAG	28		12000
12. V:CsCaF ₃	1240—1340	Kr ⁺ 激光	0.06		2500
13. Ho:YLF	2050	闪光灯			12000
14. Ce:LaF ₃	285.5	KF 激光		700	18ns
15. Sm:CaF ₂	708.5	红宝石激光			2

* 1. 效率指斜率效率,辐射截面指峰值。

2. 工作温度除 Cr:ZnWO₄, Ni:MgF₂, V:CsCaF₃ 等在液氮(77—80K)温度外,一般为室温。

离子的 4f 电子由于受 5s 和 5d 电子的屏蔽,受晶场的作用很弱。因此,除少数几种离子外,稀土离子的 4f—4f 跃迁通常仅出现窄的锐光谱,即所谓无声子线,产生单色的不可调谐的激光。

早在 1963 年,第一台可调谐的顺磁离子激光器($\text{Ni}^{2+}:\text{MgF}_2$)即已研制成功,由于 Nd:YAG 和染料激光器的出现,这类研究转入低潮。70 年代中期,金绿宝石($\text{Cr}^{3+}:\text{BeAl}_2\text{O}_4$)由单波长激光发展成为性能很好的可调谐激光,促使顺磁离子可调谐激光的研究进入新阶段。1982 年, $\text{Ti}^{3+}:\text{Al}_2\text{O}_3$ 激光研制成功。这是又一类重要的激光器的代表。这样,在十多年间,已有数十种材料被证明可以产生可调谐激光,对其中有希望的数种晶体进行了各种激光性能试验,顺磁离子可调谐激光的研究达到新高潮^[5]。表 3 汇总了目前取得的结果。包括单波长和可调谐的顺磁离子固体激光器的研究和发展,正在向三大目标推进^[6]:(1)新波长:用于水下通信的蓝绿波段(0.455,0.459,0.525 μm 等),军用激光对抗的可见和红外波段(0.5—0.9 μm ,1.5—5.2 μm),对眼睛安全的红外波段(1.5—2.1 μm)和医疗用波段(如治癌的 0.625—0.635 μm)。(2)高效率、高功率:这主要是为了满足聚变(2.0—10.0 MJ)、对抗(1.0—10J/脉冲)和材料加工(10^3W)的要求。(3)高可靠性和长使用寿命:适应陆地(10^9 脉冲, 10^3h)或空间(10^{10} 脉冲, $5 \times 10^4\text{h}$)的使用要求。可调谐激光的短期目标是第一和第三项。

对于四能级系统的理想可调谐激光器,其光谱性能要达到以下要求:(1)激光能级必须同大分子或晶格的振动有很好的耦合,使调谐范围宽且连续调谐;(2)吸收泵浦光的波长应与激光辐射波长不同,以免激光被材料本身吸收;(3)激发态寿命要短,使材料可以成为好的放大器;(4)激发态的损耗应极小,包括泵浦光被再吸收、无辐射跃迁和激发态能量转移各种损耗。对基质材料本身要求其光学(均匀性和光谱性能)、热学(导热率高)、机械(硬度高和耐热冲击)等性能良好,以及能够生长出高质量晶体。目前,主要仍为单一和复合的氧化物(含盐类)

和氟化物材料。能够在室温工作并且各种性能都较好的材料,目前主要是掺 Cr^{3+} 或掺 Ti^{3+} 的晶体。晶体中 Cr^{3+} 离子的吸收带很宽,有利于产生高效率激光。但是,在不同的基质晶体中,随着 Cr^{3+} 离子所在晶场作用的强度不同,其辐射光谱和激光特性将明显不同。在强的晶场中,例如红宝石, Cr^{3+} 离子的辐射谱中无声子锐线很强,激光为窄线;在较弱的晶场中,例如金绿宝石,其窄线和宽带光谱同时存在,在室温,窄线激光很强,而在较高温度下,激光可以调谐;在更弱的晶场情况下,如 $\text{Cr}^{3+}:\text{KZnF}_3$, 激光可调谐运转,无明显锐峰。至今约有 16 种掺 Cr^{3+} 晶体已表明可以产生可调谐激光,其中 $\text{Cr}^{3+}:\text{BeAl}_2\text{O}_4$, $\text{Cr}^{3+}:\text{Be}_3\text{Al}_2(\text{SiO}_3)_6$ 和 $\text{Cr}^{3+}:\text{LiCaAlF}_6$ 三种^[7]斜率效率大于 50%。金绿宝石激光器可以用弧光灯或 Kr 激光泵浦连续运转,最高 CW 功率为 60W; 也可以用闪光灯泵浦脉冲运转,放大后最大输出能量为数焦耳。激光在 700—820nm 范围内可调谐。在高功率输出方面金绿宝石目前仍占据可调谐顺磁离子激光器的前列。

Ti^{3+} 离子的特点是仅有一个 3d 电子,能态结构简单。在激发态吸收范围内,其泵浦带之上没有能级存在,因此原则上无激发态吸收。掺 Ti^{3+} 离子的激光研究是 80 年代发展起来的。最重要的是掺钛宝石($\text{Ti}^{3+}:\text{Al}_2\text{O}_3$, Ti Sapphire)激光。此外, $\text{Ti}^{3+}:\text{BeAl}_2\text{O}_4$ ^[8], $\text{Ti}^{3+}:\text{YAlO}_3$ ^[9] 等都可以产生调谐激光。掺钛宝石有若干优点^[10]。基质性能好,可在室温工作,可调谐范围宽度在 3000 Å 以上(660—1000nm 以上),可以代替 3—4 种染料,因而特别有吸引力。其峰值辐射截面很大($\sigma_p = 30—40 \times 10^{-20}\text{cm}^2$),激光转换效率较高。由于其激发态荧光寿命很短(3.2—3.8 μs),用闪光灯泵浦比较困难。此外,材料制备中的困难是如何提高晶体内 Ti^{3+} 离子的浓度和如何稳定其三价价态。钛离子在晶体内可以同时存在三种价态: Ti^{4+} , Ti^{3+} 和 Ti^{2+} ,而且可以互相转化。解决上述问题是提高激光性能的关键。最近几年,对 $\text{Ti}:\text{Al}_2\text{O}_3$ 晶体生长的研究和对 $\text{Ti}:\text{Al}_2\text{O}_3$ 各种激光运转特性的全面系

表4 固体和染料可调谐激光特性比较

特 性	顺磁离子	色 心	半 导 体	染 料
输出功率,一般	<1W	<1W	<100mW	<2W
CW 个别	$n \sim n \times 10W$	nW	1W(列阵)	
斜率效率%	60—70	<60	20—40	<30
(泵浦方式)	(光泵)	(光泵)	(电泵)	(光泵)
激光模数目	3—15	2—3	n	100—1000
脉冲工作	容 易	容 易	困 难	少
调谐范围 μm	0.66—2.5	0.4—3.8	0.8—40	0.4—1.1
优 点	性能稳定		电泵浦	高放大系数
问 题	短波长难,放大系数小	一般需要低温,热、光不稳定	低温致冷	不稳定,单模较难

统的研究,使 $Ti:Al_2O_3$ 晶体的质量和可调谐激光器的水平取得突破性的提高。从 1988 年起,有多家推出此类晶体和器件商品。目前,用调 Q 的 $Nd:YAG$ 倍频激光泵浦,脉冲可调谐激光输出最高可达 100mJ(10MW)以上;用染料激光泵浦,输出可达 200mJ/脉冲以上;用氙灯泵浦输出为 3J/脉冲以上^[11]。用 Ar^+ 激光泵浦,连续功率为数瓦^[12]。可以预料,推广应用将很快展开。有人认为,1989 年钛宝石的情况和地位可以跟 1968 年 $Nd:YAG$ 的情况和地位相媲美,它是正在升起的激光“明星”。

综上所述,固体可调谐激光器在过去十年间获得了长足的进展。一批激光器已实用化,例如,顺磁离子晶体 $Ti:Al_2O_3(0.67-1.07\mu m)$, $Cr:BeAl_2O_4(0.71-0.82\mu m)$, $Co:MgF_2(1.5-2.5\mu m)$ 激光器,色心晶体 $LiF:(F_2 \rightarrow F_2^+)(0.84-1.10\mu m)$, $LiF:F_2^-(1.09-1.24\mu m)$ 激光器,半导体 $GaAlAs/GaAs(0.75-0.91\mu m)$, $InGaAsP(1.1-1.6\mu m)$ 激光器等。用非线性晶体 KTP , BBO 等可以将调谐范围扩展到紫外,可见光或

红外其他波段。一批新性能和新波段的材料和器件正在加紧研究之中。固体可调谐激光器的竞争对手原是染料激光器,它们的特性对比见表 4。从应用方面情况来看,固体激光器开始在部分领域取代染料激光器,同时正在进入新的应用领域,如空间、车载船运、流动环境等新的场合,前景极好。

- [1] W. Streifer et al., *IEEE J. Quantum Elect.*, **24** (1988), 883.
- [2] 黄朝恩等,人工晶体, **17**(1988), 365; 江爱栋等,人工晶体, **17**(1988), 367.
- [3] L. F. Mollenauer, *Tunable Lasers*, Springer-Verlag, Berlin, (1987), 225.
- [4] T. T. Basiev et al., *IEEE J. Quantum Elect.*, **24** (1988), 1052.
- [5] J. C. Walling, *Tunable Lasers*, Springer-Verlag, Berlin, (1987), 357.
- [6] N. P. Barnes, *SPIE*, **609**(1986), 198.
- [7] S. A. Payne et al., *IEEE J. Quantum Elect.*, **24** (1988), 2243.
- [8] A. I. Alimpiev et al., *Sov. J. Quantum Elect.*, **16** (1986), 579.
- [9] 同[5], 358.
- [10] 郭承就, 物理, **17**(1988), 518.
- [11] Y. A. Carts, *Laser Focus World* **25-8**(1989), 21.
- [12] Y. A. Carts, *Laser Focus World*, **25-2**(1989), 23.

(上接第 568 页)

量 X 射线散射强度的分布,我们就可以从实验上测定晶体缺陷的浓度与结构。从 60 年代末至 70 年代初,经过一系列实验和理论研究,黄散射发展成为一种能直接有效地研究晶体中微观缺陷(如离子注入 Si 单晶的缺陷)的手段。

近年来,在掠射条件下观察到表面层($0.1\mu m$)的黄散射,在中子散射实验中也观察

到黄散射。随着实验手段的日益完善,特别是更加理想的同步辐射光源的利用,我们相信,黄昆先生 40 多年前奠基的黄散射,必将在探索晶体微结构缺陷上发挥更大的作用。

- [1] K. Huang, *Proc. Roy. Soc. A*, **190** (1947), 102.
- [2] 武家扬、蒋四南,物理, **15**(1986), 33.
- [3] H. Peisl and H. Spalt, *Phys. Stat. Solidi*, **23** (1967), K75.
- [4] H. Trinkaus, *Phys. Stat. Solidi (b)*, **51**(1972), 307.