

**ТРАНСФОРМАЦИЯ ОПТИЧЕСКИХ СВОЙСТВ  
КРИСТАЛЛИЧЕСКИХ СРЕД (KGW, YVO<sub>4</sub>) ПРИ ВОЗДЕЙСТВИИ  
НЕПРЕРЫВНЫМ ЛАЗЕРНЫМ ИЗЛУЧЕНИЕМ  
В ПОЛОСЕ ПРОЗРАЧНОСТИ СРЕДЫ**

© 2013 г. И. А. Ходасевич\*, А. А. Корниенко\*\*, Е. Б. Дунина\*\*, А. С. Грабчиков\*

\* *Институт физики им. Б.И. Степанова НАН Беларуси, 220072 Минск, Беларусь*\*\* *Витебский государственный технологический университет, 210035 Витебск, Беларусь**E-mail: a.grabtchikov@dragon.bas-net.by*

Поступила в редакцию 22.01.2013 г.

В работе приводятся данные по исследованию свойств голубого (475 нм) и зеленого (520–560 нм) свечений, возникающих в кристаллах KGW и YVO<sub>4</sub> при возбуждении в полосе прозрачности среды непрерывным инфракрасным лазерным излучением с плотностями мощности киловаттного диапазона. Оба свечения отличаются от стандартной люминесценции узкополосностью, наличием структуры и нелинейным характером. В случае голубого свечения отмечается существенное влияние ВКР-генерации, действующей на кристалл одновременно с лазерной. Демонстрируется возбуждение свечения только лазерным излучением, приводятся его динамические характеристики с собственными временами, отличающимися от соответствующих времен ВКР- и лазерной генерации. Для зеленого свечения демонстрируется его ап-конверсионная природа при возбуждении несколькими фотонами, обусловленная присутствием ионов эрбия с остаточной низкой концентрацией. Сообщается о резком изменении отношения интенсивностей полос ап-конверсионной люминесценции эрбия с ростом возбуждения. Показано, что развивающееся в KGW нелинейное взаимодействие сопровождается трансформацией пропускания. Делается вывод о том, что исследованные процессы развиваются в недопированных кристаллах KGW и YVO<sub>4</sub> вследствие продолжительного воздействия лазерного излучения на среду, приводящего к изменению ее свойств.

DOI: 10.7868/S0030403413090122

**ВВЕДЕНИЕ**

Разработка твердотельных лазерных систем с диодным возбуждением уже несколько десятилетий является приоритетным направлением развития лазерной физики. Эффективность, компактность и другие достоинства этих систем стимулируют исследования по их совершенствованию и расширению сфер применения. В частности, возможности их применений возрастают за счет заполнения лазерным излучением новых спектральных диапазонов при нелинейно-оптическом преобразовании частоты лазерного излучения. Наряду с генерацией гармоник и суммарной частоты, параметрической генерацией вынужденное комбинационное рассеяние (ВКР) является также эффективным методом нелинейно-оптического преобразования [1]. В последние годы достигнут значительный прогресс в получении непрерывной ВКР-генерации на кристаллических средах при возбуждении лазерным излучением, в том числе и от непрерывных твердотельных диодно-накачиваемых лазерных систем [2–4].

Являясь нелинейно-оптическим процессом третьего порядка [5], ВКР характеризуется относи-

тельно низким коэффициентом усиления, что налагает особые условия на достижение порога непрерывной генерации. Одно из таких условий – тщательная минимизация внутрирезонаторных потерь для ВКР-излучения. Второе условие следует из необходимости использования достаточно высоких плотностей мощности возбуждающего излучения. В кристаллических средах для достижения порога непрерывного режима ВКР-генерации требуются плотности мощности накачки порядка 100 кВт/см<sup>2</sup> в ВКР-резонаторе [2]. Хотя на настоящий момент продемонстрирована непрерывная ВКР-генерация на целом ряде кристаллических сред [4] и получена квантовая эффективность преобразования, превышающая 20% [6], обнаружены также и проблемы, препятствующие в некоторых случаях ее дальнейшему развитию. Одной из проблем может являться трансформация оптических свойств используемых сред в условиях воздействия относительно мощного либо генерируемого, либо возбуждающего лазерного излучения [7]. Изменение свойств среды может приводить к росту внутрирезонаторных потерь, поэтому контроль подобных эффектов

важен для обеспечения оптимальных режимов генерации.

Свидетельством трансформационных процессов в кристаллических средах могут являться свечения, возникающие в них под воздействием лазерного излучения, например голубое свечение в области 475 нм в кристалле калий-гадолиниевого вольфрамата (KGW). Впервые голубое свечение наблюдалось в допированном ионами неодима кристалле KGW (KGW:Nd) при ВКР-самопреобразовании лазерного излучения в работе [8]. В этой работе ВКР достигалось за счет повышения интенсивности лазерного излучения при генерации в режиме пассивной модуляции добротности, приводящей также к генерации импульсов с килогерцовой частотой следования. Энергия лазерной генерации, развивающейся на ионах Nd, дополнительно накапливалась в резонаторе для возбуждения ВКР на колебаниях решетки того же кристалла. Дальнейшие наблюдения голубого свечения связаны с получением непрерывной ВКР-генерации в аналогичном лазере без модуляции добротности [3, 9], т.е. в условиях накопления лазерной энергии в резонаторе и продолжительного действия возбуждающего излучения на кристалл. Попытка устранить голубое свечение как паразитный эффект, предполагаемо обусловленный ап-конверсией на ионах Nd [6], за счет использования композитного (т.е. частично допированного по длине) кристалла привела к противоречивому результату – эффективность ВКР-генерации возросла, однако также существенно возросла и наблюдаемая глазом яркость свечения. Был проведен анализ ап-конверсии инфракрасного (ИК) лазерного излучения на ионах тулия и неодима, присутствие которых возможно с остаточными концентрациями, как возможного механизма голубого свечения. Его результаты показали значительное отличие наблюдаемого спектра от спектра испускания тулия. Хотя спектр голубого свечения оказался близким к рассчитанному спектру испускания ионов неодима, оцененная вероятность такого процесса была незначительной [10].

Следует отметить, что на данный момент о наблюдении голубого свечения в ряде других кристаллов сообщалось также в работах [11–15]. Однако, насколько нам известно, окончательного выяснения механизмов, ответственных за развитие голубого свечения в ВКР-кристаллах, сделано не было, поэтому мы считаем важным дальнейшее исследование его свойств.

В нашей работе приводится анализ результатов исследования воздействия непрерывного и квазинепрерывного лазерного излучения на такие широко используемые комбинационно-активные среды, как недопированные (не подвергавшиеся специальному активированию редкоземельными элементами) кристаллы KGW и

ортованадата иттрия (далее YVO<sub>4</sub>). Сообщается о характеристиках голубого и зеленого свечений, возникающих в каналах ИК лазерного излучения в этих кристаллах, а также рассматриваются особенности их развития. Насколько нам известно, обсуждение в литературе зеленого свечения в недопированных кристаллах KGW и YVO<sub>4</sub>, его свойств и природы отсутствует. Отмечается возможность возникновения потерь для лазерного излучения во внутррезонаторных кристаллических элементах, подвергаемых продолжительному лазерному воздействию.

## ЭКСПЕРИМЕНТ

В условиях эксперимента продолжительное воздействие на кристаллы KGW и YVO<sub>4</sub> непрерывного или квазинепрерывного лазерного излучения с длинами волн 0.8, 0.97, 1.06 и 1.2 мкм, попадающими в полосу прозрачности обоих кристаллов, приводило к возникновению голубого или зеленого свечений в них. Оба свечения, как правило, хорошо наблюдаются глазом в канале возбуждения и изотропно направлены. Насколько нам известно, все сообщения о наблюдении голубого свечения в ВКР-активных кристаллах соответствуют внутррезонаторной схеме возбуждения, что объясняется необходимостью достижения высокой плотности мощности возбуждающего излучения. Условия возбуждения зеленого свечения в наших экспериментах были более мягкими. Оно наблюдалось при фокусировке лазерного излучения в кристалл вне резонатора.

KGW – двуосный кристалл моноклинной структуры с пространственной группой C<sub>2</sub>/с, широкой полосой пропускания 0.35–5.5 мкм и коэффициентом ВКР-усиления 5.2 см/ГВт (1067 нм). Наиболее интенсивными линиями комбинационного рассеяния являются 767 и 901.5 см<sup>-1</sup> (в зависимости от ориентации кристалла) со спектральной полушириной 7.8 и 5.9 см<sup>-1</sup> соответственно [16]. В экспериментах использовались кристаллы KGW, вырезанные и возбуждавшиеся вдоль оптической оси *b*.

YVO<sub>4</sub> – одноосный кристалл тетрагональной структуры циркона I<sub>4</sub>/amd, полосой пропускания 0.34–5.4 мкм и коэффициентом ВКР-усиления не менее 4.5 см/ГВт (1064 нм). Наиболее интенсивной линией комбинационного рассеяния является 890 см<sup>-1</sup> со спектральной полушириной 3 см<sup>-1</sup> [17]. Все использованные в экспериментах кристаллы имели матированные боковые грани, были вырезаны и возбуждались вдоль оптической оси *a*.

Для исследования спектральных, энергетических и временных параметров голубого и зеленого свечений, возбуждаемых в кристаллах KGW и YVO<sub>4</sub>, были реализованы экспериментальные схе-

мы, обеспечивающие отдельную или одновременную регистрацию параметров как видимого свечения, так и возбуждающего излучения, например спектр свечения и мощность возбуждающего излучения, или временные параметры лазерного, ВКР-излучения и голубого свечения. При внутрирезонаторной реализации возбуждения кристаллов лазер помещался на горизонтальную подвижку, что давало возможность последовательно регистрировать спектр свечения по всей длине канала возбуждения в кристалле. Замена выходного зеркала позволяла генерировать в нем либо только лазерное, либо одновременно лазерное и ВКР-излучение.

Спектры свечения измерялись в  $90^\circ$  геометрии. Для обзорных спектров в области 200–700 нм использовался спектрометр PSI-line SL40 (Солар ТИИ), а в диапазоне 0.2–1.0 мкм – S-100 (Солар ЛС). Для исследования свечения отдельных спектральных полос применялся лабораторный спектрометр на базе монохроматора MS3504i (Солар ТИИ) с охлаждаемой жидким азотом CCD-камерой Spec-10:256E. При этом излучение из перетяжки диодного лазера или канала генерации фокусировалось на входную щель спектрометра и разлагалось в спектр на решетках 300 или 1200 шт/мм для измерения соотношения интенсивностей полос люминесценции в зеленой и красной областях спектра и детального измерения спектров отдельной полосы соответственно. Спектры голубого свечения с максимальным разрешением исследовались с использованием решетки 2400 шт/мм.

В качестве источника возбуждения лазерного излучения в KGW/KGW:Nd-лазере, в котором исследовалось голубое свечение, использовался диодный лазер с длиной волны 808 нм. Излучение диодного лазера на длине волны 808 или 970 нм возбуждало зеленое свечение вне резонатора в кристаллах обоих типов. Мощность диодного лазера достигала 2 Вт. Пучок излучения фокусировался специальным объективом в перетяжку длиной 2 мм и диаметром около 150 мкм. В эксперименте по однофотонному возбуждению примесей редкоземельных металлов в кристалле KGW применялся аргоновый лазер Stabilite 2017, генерирующий на длине волны 514.5 нм. Контроль мощности лазерного излучения осуществлялся измерителем Ophir с детектором 3A-FS-SH.

При временных измерениях выделенное монохроматором МДР-23 излучение голубого свечения с помощью фотумножителя ФЭУ-118 регистрировалось осциллографом Tektronix TDS 5104. Перед ФЭУ устанавливался цветной фильтр СЗС-9 для устранения рассеянного лазерного излучения. Излучение лазерной и ВКР генерации, а также лазерного диода выделялось интерферен-

ционными фильтрами, фокусировалось на фотодиоды ФД-10ГД и подавалось на осциллограф.

Исследование модификации пропускания кристалла KGW проводилось в режиме квазинепрерывного возбуждения среды последовательностью импульсов излучения диодного лазера с длиной волны 808 нм, длительностью 20 мс и частотой следования 10 Гц. Схема эксперимента напоминала используемую в методике Z-scan, в которой среда перемещается вдоль пучка возбуждающего излучения, попадая в участки перетяжки с разными плотностями мощности и подвергаясь, таким образом, разной степени нелинейно-оптического воздействия. Осциллограммы импульсов излучения на входе в кристалл, а также прошедших через него регистрировались при мощности излучения диодного лазера порядка 100 мВт с помощью фотодиода Thorlabs SV2 и осциллографа Tektronics TDS3052. Вывод об изменении пропускания среды делался на основании сравнения прошедших импульсов для кристалла, помещенного в перетяжку и смещенного из нее вдоль пучка излучения, при условии сохранения стабильности сигнала входного излучения.

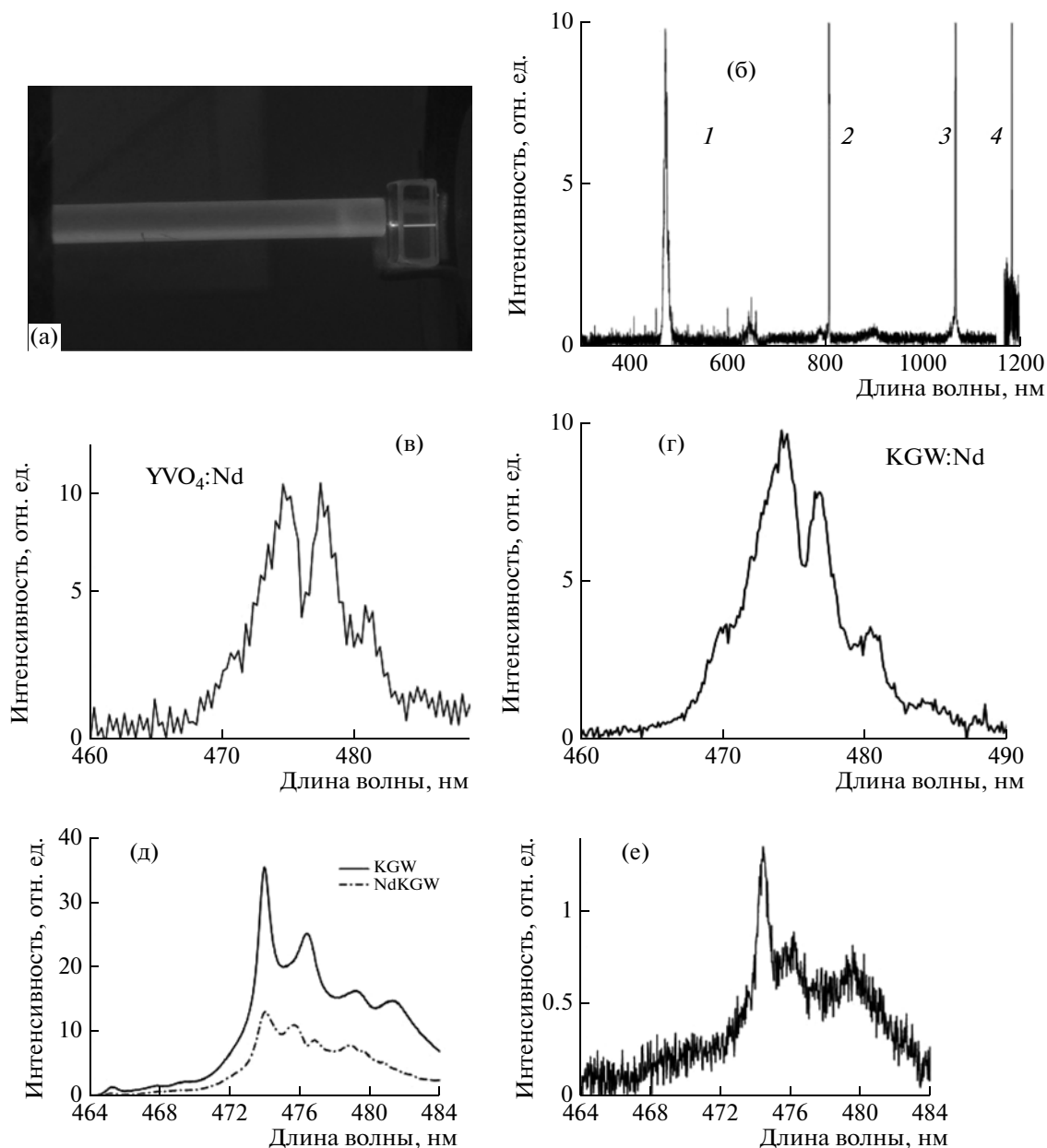
## РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

### *Свойства голубого свечения*

В этих исследованиях использовались композитный кристалл KGW/KGW:Nd(3%) размером  $\varnothing 4 \times (5 + 30)$  мм с нанесенным на торец допированной части входным лазерным зеркалом и с полированной боковой стороной, недопированный кристалл размером  $9 \times 9 \times 4$  мм с просветленными на область 1.06–1.2 мкм торцами и двумя полированными боковыми гранями для улучшения наблюдения канала свечения, а также композитный кристалл  $YVO_4/Nd(0.3\%):YVO_4$ , размером  $3 \times 3 \times (2 + 9)$  мм с просветленными на спектральную область 0.8 и 1.06–1.2 мкм торцами.

Как указывалось ранее, свечение локализуется в канале возбуждения (рис. 1а). При внутрирезонаторном наблюдении голубого свечения с максимумом вблизи 475 нм в спектре регистрируются линии сопутствующих потоков излучения: излучение диодного лазера с длиной волны 808 нм, лазерной генерации на 1064 нм для  $YVO_4:Nd$  и 1067 нм для KGW:Nd и ВКР-генерации на 1180 нм для кристалла KGW (рис. 1б). Плотности мощностей излучения в лазерном резонаторе в этих условиях превышают 100 кВт/см<sup>2</sup> [3]. Особенностью проявления голубого свечения является доминирование его изолированной узкой полосы в видимой части спектра.

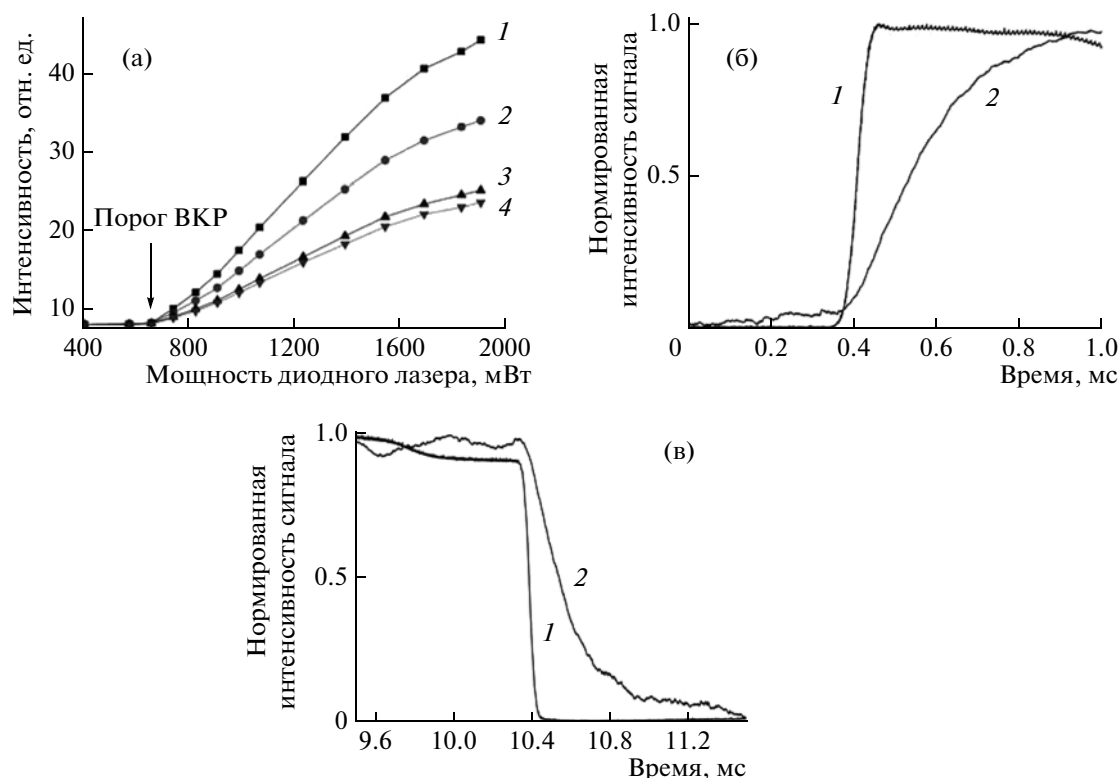
Голубое свечение в кристаллах KGW:Nd и  $YVO_4:Nd$  (рис. 1в, 1г) имеет близкие по форме и положению хорошо структурированные спектры с шириной полосы на полувысоте около 8 нм. Для



**Рис. 1.** Наблюдение голубого свечения и его спектральные характеристики: а – фотография свечения в активном элементе KGW/KGW:Nd-лазера и дополнительный кристалле KGW в условиях лазерной и ВКР-генерации; б – панорамный спектр излучений в резонаторе лазера (1 – 475, 2 – 808, 3 – 1067 нм, 4 – ВКР-излучение на 1180 нм, зарегистрировано с помощью монохроматора МДР-23 и CCD-линейки на InGaAs, амплитуды спектров излучений, сопутствующих голубому свечению, ограничены); в, г – спектры свечения в кристаллах YVO<sub>4</sub>:Nd и KGW:Nd при лазерной и ВКР-генерации, зарегистрированные на спектрометре PSI-line SL40; д – сравнение спектров свечения в кристаллах KGW и KGW:Nd, зарегистрированных на лабораторном спектрометре; е – спектр свечения в кристалле KGW, возбуждаемый лазерной генерацией с длиной волны 1067 нм.

сравнения можно отметить, что измеренный нами спектр люминесценции кристалла KGW при ламповом возбуждении излучением, попадающим в полосу поглощения среды (317 нм), имел вид широкой бесструктурной полосы в области 400–700 нм с шириной на полувысоте, составляющей 145 нм, что превышает спектральную ширину исследуемого свечения в 20 раз [18]. В работе [19]

при возбуждении люминесценции в кристалле YVO<sub>4</sub> монохроматическим излучением ксеноновой лампы, попадающим в полосу поглощения (267 нм), также наблюдалась широкополосная люминесценция. То есть наблюдаемое нами голубое свечение принципиально отличается от стандартной люминесценции, возбуждаемой излучением лампы в полосу поглощения.



**Рис. 2.** Энергетические и временные характеристики голубого свечения: а – зависимость интенсивности отдельных полос свечения в кристалле KGW от мощности диодного лазера (1 – 475, 2 – 476, 3 – 479, 4 – 481 нм); б, в – динамика нарастания и затухания сигналов излучения в кристалле KGW:Nd: 1 – ВКР-генерации (1180 нм), 2 – голубого свечения (475 нм).

Как отмечалось во введении, в недопированной части кристалла KGW/KGW:Nd голубое свечение имеет более высокую яркость. Для уточнения этого наблюдения были выполнены измерения спектров свечения в допированной и недопированной частях композитного кристалла с частично полированной боковой поверхностью. Результаты измерений спектров голубого свечения, приведенные на рис. 1д, действительно указывают на влияние ионов допирования на яркость свечения. Наряду с общим снижением интенсивности свечения в кристалле KGW:Nd по сравнению с кристаллом KGW наблюдается изменение контура спектра свечения, что может объясняться поглощением ионами неодима в данной спектральной области.

Принимая во внимание близость спектров голубого свечения для рассмотренных кристаллов, проведем более детальный анализ его свойств на примере свечения в кристаллах KGW и KGW:Nd. Характер голубого свечения соответствует ап-конверсионному процессу с увеличением частоты испускания. Зависимость интенсивности голубого свечения в недопированном кристалле KGW от уровня мощности диодного лазера приведена на рис. 2а. Особенность этой зависимости заключается в существовании двух, весьма различных по

характеру участков с перегибом вблизи 650 мВт. На первом участке (до 650 мВт) нарастание интенсивности практически отсутствует. Второй участок (свыше 650 мВт) фактически содержит 5-кратное развитие при 3-кратном нарастании возбуждения от 700 до 2100 мВт. Точка перегиба находится в области порога ВКР (около 700 мВт). Таким образом, хотя свечение возникает до порога ВКР, т.е. под воздействием только лазерного излучения (1067 нм), включение процесса ВКР-генерации кардинально меняет характер зависимости. Кроме того, наблюдается уменьшение порога появления голубого свечения и увеличение его интенсивности при одинаковых значениях мощности в случае повторного включения лазера с интервалом, не превышающим нескольких минут. То есть в кристалле возникает эффект “памяти”. Однозначное выяснение роли ВКР в возбуждении свечения требует дополнительного анализа. Предположительными объяснениями наблюдаемых результатов могут являться смещение длины волны возбуждения с 1067 на 1180 нм с более точным попаданием в возможно существующий резонанс либо возрастающая роль фоонов колебаний кристаллической решетки, обусловленных эффектом ВКР (как известно, фооны могут играть существенную роль в

энергопереносе при ап-конверсии, см., например, [20]).

Поскольку возможность возбуждения голубого свечения исключительно лазерным излучением (1067 нм) [18] является существенным фактом для анализа причин его возникновения, была предпринята попытка регистрации спектра голубого свечения в модифицированной лазерной схеме, обеспечивавшей возбуждение только лазерной генерации. В таком резонаторе частично воспроизводились условия с накоплением лазерной энергии, близкие к необходимому для возбуждения ВКР, и кристалл KGW подвергался аналогичному по плотности мощности воздействию. На рис. 1е представлен спектр зарегистрированного свечения при мощности диодного лазера 2 Вт. Как видно, он неплохо воспроизводит детали спектра свечения над порогом ВКР, при этом интенсивность сигнала в 30 раз меньше по сравнению со случаем ВКР-воздействия (рис. 2а и 1е).

Возбуждение голубого свечения непрерывным или квазинепрерывным (импульсы миллисекундных длительностей) излучением соответствует условиям, близким к стационарным, как с точки зрения ВКР-генерации (время дефазировки молекулярных колебаний соответствует пикосекундной области [21]), так и по отношению к лазерной генерации (время жизни рабочего уровня иона неодима близко к сотне микросекунд [22]). Лазерная генерация на кристаллах KGW:Nd хорошо реализуется и с наносекундной длительностью импульсов при низкой частоте следования, но в этом случае, насколько нам известно, голубого свечения обнаружено не было. Было сделано предположение о том, что для возбуждения голубого свечения требуется более продолжительное воздействие лазерного излучения. Действительно, как показали наши эксперименты, при работе лазера с длительностью импульсов 1 мс и частотой следования 10 Гц голубое свечение в кристалле легко наблюдается глазом.

Сделанное предположение также подтверждается результатами изучения динамических характеристик голубого свечения. В эксперименте измерялись времена нарастания и спада сигналов свечения. Результаты, полученные с усреднением по 1000 импульсам, показали, что эти времена превышают длительность нарастания и спада импульсов диодного лазера, лазерной и ВКР-генерации. Так, время спада по уровню 0.9–0.1 для ВКР-излучения составило около 60 мкс, а для голубого свечения – 500 мкс (рис. 2б). Длительность нарастания ВКР-генерации была близка к 60 мкс, а голубого свечения – около 400 мкс (рис. 2в) [23]. Полученные данные указывают на существование собственного времени нарастания и спада голубого свечения, существенно превышающего соответствующие времена спада сопутствующих процессов (излучения диодного ла-

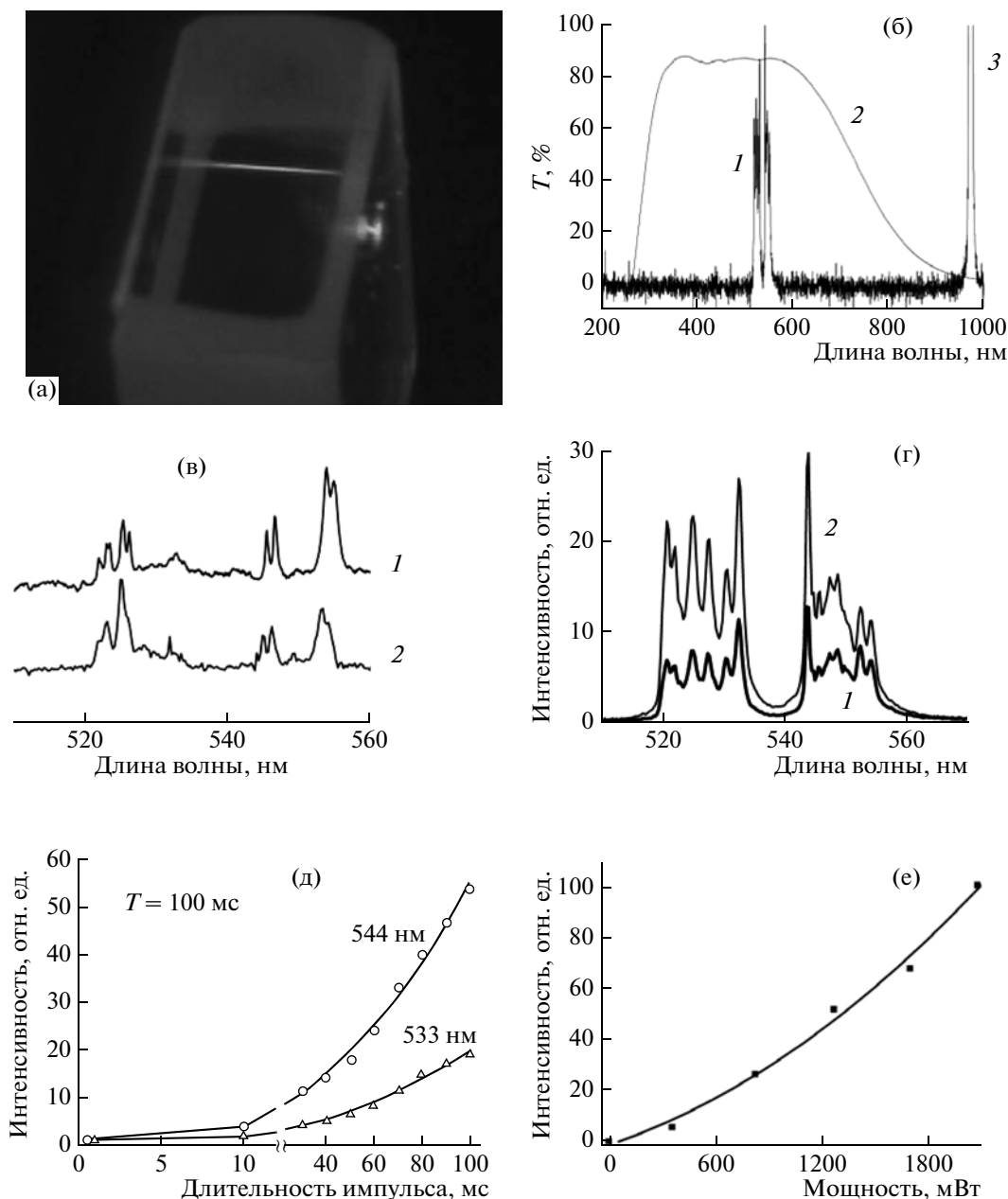
зера, лазерной и ВКР-генерации). Особо следует отметить, что сигнал голубого свечения продолжает нарастать даже при достижении максимума интенсивности сигнала ВКР-излучения. Это позволяет сделать вывод об его особом физическом механизме, напрямую не связанном с ВКР-преобразованием или параметрическими процессами, который обусловлен продолжительностью воздействия лазерного излучения и может быть связан с тепловыми механизмами, трансформацией кристаллической решетки, движением населенностей и другими причинами.

#### *Свойства зеленого свечения*

В изложенных выше исследованиях голубое свечение наблюдалось в KGW/KGW:Nd- и YVO<sub>4</sub>:Nd-лазерах, возбуждаемых излучением диодного лазера с длиной волны излучения 808 нм, которое хорошо поглощается ионами Nd. Поскольку возбуждающее излучение фокусировалось в активную среду и достигало высоких плотностей мощности, мы решили проверить его воздействие на недопированные кристаллы KGW и YVO<sub>4</sub>. Оказалось, что под действием сфокусированного излучения плотностью мощности до 10 кВт/см<sup>2</sup> в них наблюдается достаточно интенсивное зеленое свечение (рис. 3а). Так как причины наблюдаемого зеленого испускания могут иметь разную природу, обусловленную спецификой процесса производства, мы протестировали 5 кристаллов, изготовленных разными производителями. Зеленое испускание наблюдалось в каждом из пяти кристаллов. Таким образом, как и в случае голубого свечения, в кристаллах KGW и YVO<sub>4</sub> наблюдается ап-конверсионное преобразование ИК излучения. Следует отметить, что явление ап-конверсии в кристаллах, допированных редкоземельными элементами, посвящено значительное количество работ [20, 24]. Например, в кристалле KGW:Nd описано возникновение желто-зеленой ап-конверсионной люминесценции [25], что указывает на возможную связь наблюдаемого нами зеленого свечения с ионами Nd. Однако при воздействии на кристаллы KGW и YVO<sub>4</sub> излучением с длиной волны 970 нм, не поглощаемым Nd [26], зеленое свечение также присутствовало.

Поскольку зеленое свечение в недопированных кристаллах KGW и YVO<sub>4</sub>, насколько нам известно, в литературе не обсуждалось, рассмотрим свойства этого свечения более подробно.

Как и в случае с голубым свечением, спектры зеленого свечения в KGW и в YVO<sub>4</sub> являются узкополосными и доминируют в видимом диапазоне. Они характеризуются наличием двух полос 520–535 и 542–558 нм, которые обладают выраженной структурой (рис. 3б, 3в). Сопоставление спектров свечения, возбуждаемых ИК излучени-



**Рис. 3.** Наблюдение зеленого свечения, его спектральные и энергетические характеристики: а – фотография свечения в кристалле KGW; б – панорамный спектр свечения в кристалле KGW, зарегистрированный на спектрометре S100: 1 – свечение, 2 – спектр цветного фильтра СЗС27, 3 – возбуждающее излучение диодного лазера на длине волн 970 нм; в – спектры свечения в кристалле YVO<sub>4</sub>, возбуждаемые излучением с длинами волн 808 (1) и 970 (2) нм, зарегистрированные на лабораторном спектрометре; г – спектры свечения в кристалле KGW, возбуждаемые излучением с длинами волн 808 (1) и 970 (2) нм, зарегистрированные на лабораторном спектрометре; д – зависимость интенсивности свечения в кристалле KGW от длительности импульсов возбуждения с длиной волны излучения 970 нм и периодом между импульсами 100 мс; е – зависимость интенсивности свечения полосы 544 нм от мощности диодного лазера с длиной волны 808 нм.

ем на длинах волн 808 и 970 нм, демонстрирует их достаточно полное совпадение как в KGW, так и в YVO<sub>4</sub> (рис. 3в, 3г). В свою очередь сравнение спектров зеленого свечения для KGW и YVO<sub>4</sub> указывает на существенные различия в структуре полос, хотя их спектральное местоположение

совпадает. Дальнейшее рассмотрение свойств зеленого свечения проведем на примере кристалла KGW.

Было проведено изучение влияния длительности воздействия ИК излучения на развитие зеленого свечения в KGW (рис. 3д). В эксперименте

использовался недопированный кристалл размером  $9 \times 9 \times 4$  мм с просветленными на область 1.06–1.2 мкм торцами и двумя полированными боковыми гранями. Результаты показали, что изменению длительности возбуждающих импульсов с длиной волны 970 нм от 1 мс до непрерывного режима соответствовало нелинейное возрастание интенсивности свечения более чем на два порядка. Нелинейный рост интенсивности свечения, по нашему мнению, указывает на постепенный процесс формирования излучающих центров, либо на процесс непрямого заселения уже существующих. Так как количество излучающих центров не может возрастать бесконечно даже при непрерывном воздействии излучения на кристалл, то можно утверждать, что временной интервал регистрации сигнала в эксперименте меньше, чем продолжительность воздействия, требуемая для достижения максимально возможной интенсивности свечения. Приведенные данные показывают особую роль продолжительности воздействия лазерного излучения на запуск механизма, ответственного за проявление зеленого свечения и его интенсивность.

Как известно, характер зависимости интенсивности ап-конверсионного свечения от уровня возбуждения несет информацию о количестве фотонов, участвующих в процессе возбуждения [27]. Если в случае голубого свечения такая оценка затруднена вследствие одновременного действия на кристалл лазерного и ВКР-излучения с разными длинами волн, то для зеленого свечения ситуация проще. На рис. 3е приведена зависимость интенсивности зеленого свечения в полосе 544 нм, возбуждаемого в недопированном кристалле KGW с полированными боковыми гранями, от мощности излучения диодного лазера на длине волны 808 нм. Оценки показывают, что показатель степени этой зависимости соответствует 1.6, т.е. процесс возбуждения осуществляется по двухфотонному механизму с участием безызлучательной передачи энергии. На первый взгляд вывод о двухфотонности возбуждения вызывает недоумение, так как он должен соответствовать поглощению в KGW на длине волны 404 нм, которая находится в области прозрачности кристалла (край полосы поглощения соответствует диапазону 310–350 нм). Однако, как мы увидим позднее, дальнейшие исследования подтверждают верность вывода.

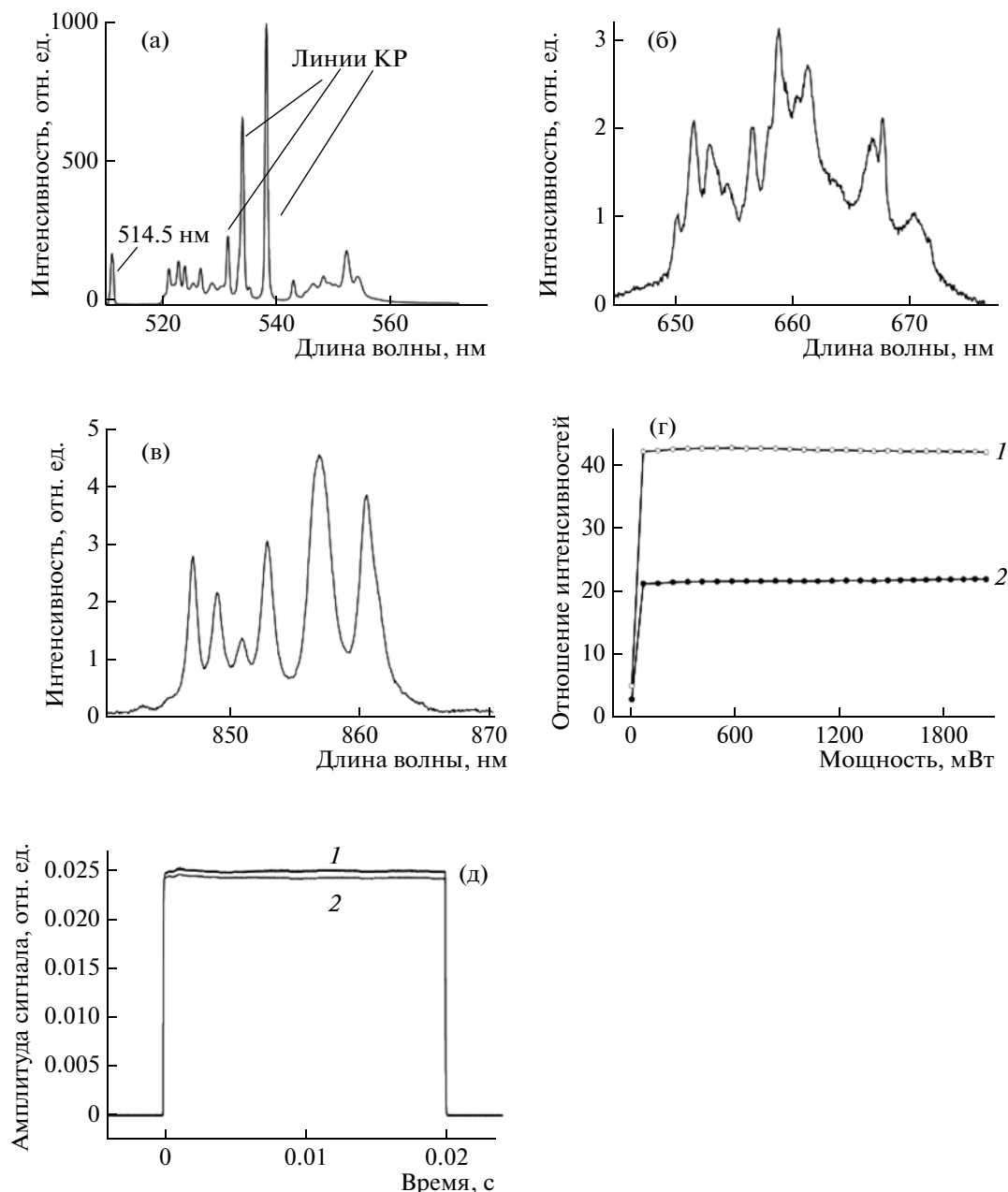
Характерный спектр зеленого свечения позволил провести сопоставление с известными данными по наблюдению ап-конверсионного свечения в этой области. В результате этого было обнаружено, что зарегистрированный в наших экспериментах двухполосный спектр с выраженной структурой достаточно полно совпадает со спектром ап-конверсии на ионах эрбия в KGW, регистрируемым в той же области [28]. Положение спектра зеленого

свечения в  $YVO_4$ , его структура и возможность возбуждения излучением с длинами волн 808 и 970 нм позволяют также предположить его связь с ионами эрбия [29].

Поскольку следы полос поглощения Eg в спектре пропускания наших образцов отсутствовали, то для подтверждения вывода о наличии ионов эрбия в них были сделаны дополнительные спектральные измерения по обнаружению характерных для Eg полос испускания [30]. Вблизи зеленой полосы также находятся полосы испускания эрбия в красной (около 660 нм) и ИК (около 850 нм) областях спектра, которые соответствуют переходам  ${}^4F_{9/2} \rightarrow {}^4I_{15/2}$  и  ${}^4S_{3/2} \rightarrow {}^4I_{13/2}$ . Испускание излучения в эти полосы может происходить при возбуждении уровня  ${}^2H_{11/2}$ , т.е. в полосу поглощения около 510–520 нм. Поэтому было выполнено однофотонное возбуждение этого уровня излучением аргонового лазера с длиной волны 514.5 нм. Для этого мы использовали недопированный кристалл KGW, размером  $4 \times 4 \times 2$  мм с матированными боковыми гранями, наблюдаемая яркость зеленого свечения в котором была наибольшей по сравнению с другими исследованными образцами. Чтобы исключить нелинейно-оптическое взаимодействие этого излучения с кристаллом, его плотность мощности была ограничена 40 мВт/см<sup>2</sup>. Результаты эксперимента, приведенные на рис. 4б, 4в, подтвердили наличие в спектре исследуемого образца кристалла KGW полос, присущих ионам эрбия, и связь зеленого свечения с ним. Поскольку спектр, соответствующий зеленому свечению в области 520–560 нм (рис. 4а), модифицирован наложенным спектром комбинационного рассеяния кристалла KGW, также возбуждаемого излучением с длиной волны 514.5 нм, то существенной информацией является сравнительно низкая амплитуда сигнала зеленого свечения по сравнению с сигналом комбинационного рассеяния. Это говорит о весьма низкой концентрации ионов эрбия в кристалле и объясняет отсутствие признаков поглощения эрбия в зарегистрированном нами спектре пропускания. Отметим, что зарегистрированные в одинаковых условиях полосы люминесценции значительно отличаются по интенсивности, и зеленая полоса существенно доминирует над остальными (рис. 4а, 4б, 4в).

Так как ап-конверсия на ионах Eg является эффектом, сильно зависящим от мощности возбуждения, то представляет интерес сопоставление такого поведения для разных ап-конверсионных полос. На рис. 4г приведена зависимость отношения интенсивности свечения на длинах волн 554 и 656 нм использованного ранее при однофотонном возбуждении кристалла KGW от мощности излучения с длиной волны 808 нм. Его особенностью является скачкообразный (до 40 раз) харак-





**Рис. 4.** Проявление связи зеленого свечения с наличием ионов Er в кристалле KGW. Спектры полос люминесценции ионов эрбия при однофотонном возбуждении кристалла излучением с длиной волны 514.5 нм, зарегистрированные на лабораторном спектрометре: а – полоса в области 520–560 нм на фоне спектра комбинационного рассеяния, б – полоса в области 650–680 нм, в – полоса в области 840–865 нм. г – зависимость отношения интенсивностей зеленых (525 и 554 нм) и красной (656 нм) полос в спектре свечения кристалла KGW, возбуждаемого излучением 808 нм, д – осциллограммы импульсов прошедшего через кристалл KGW излучения с длиной волны 808 нм: 1 – кристалл находится вне перетяжки лазерного пучка, 2 – кристалл расположен в перетяжке лазерного пучка.

тер изменения отношения интенсивностей полос с момента возникновения свечения.

Известно, что ап-конверсионное свечение в кристаллической среде может сопровождаться также и изменением пропускания среды [31]. Изменение пропускания нами исследовалось по осциллограммам импульсов излучения, прошедших через кристалл KGW длиной 2 мм в схеме, анало-

гичной Z-scan. Характерные результаты измерений приведены на рис. 4д. Как видно, сигнал для кристалла, помещенного в перетяжку, имеет меньшую амплитуду по сравнению со случаем, когда кристалл выдвинут из перетяжки. Зарегистрированная разность в суммарных потерях составляет 1–3% на протяжении импульса. Оцененные в данном случае потери могут являться ре-

зультатом проявления нелинейной рефракции, нелинейного поглощения [32], поглощения свободными носителями [33], которые, например, в кремнии могут оказывать существенное воздействие на непрерывную ВКР-генерацию [34], и других эффектов. Величина потерь в несколько процентов не является высокой для диодной накачки, однако может быть значительной для излучения, распространяющегося в таком внутрирезонаторном элементе, особенно в случае непрерывной генерации, обладающей малым усилением.

### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Рассмотрены результаты измерений, связанные с развитием свечений ап-конверсионного характера (голубого 475 нм и зеленого 520–560 нм), наблюдаемых в недопированных кристаллах KGW и YVO<sub>4</sub> при воздействии непрерывного ИК излучения в полосу прозрачности. Эти свечения возникают в канале возбуждения лазерным излучением. Их особенностью является доминирование в видимом диапазоне спектра. Спектры свечений характеризуются относительно узкими полосами с хорошо выраженной структурой. Зависимости интенсивностей свечений от плотности возбуждающей мощности носят нелинейный характер. Основные результаты получены для кристалла KGW, однако подобие условий наблюдения и спектральных характеристик позволяет считать, что сделанные выводы в значительной степени распространяемы на YVO<sub>4</sub>.

Подробно рассматривается наблюдавшееся ранее [8] голубое свечение. Приводятся его динамические характеристики – времена нарастания и спада импульсов свечения, которые в десять раз превышают соответствующие времена лазерного и ВКР-излучений, ответственных за возбуждение, и достигают 400 и 500 мкс. Отмечается особая роль ВКР-генерации, развитие которой приводит к резкому с изломом увеличению интенсивности голубого свечения при росте возбуждения.

Насколько нам известно, зеленое свечение в недопированных кристаллах ранее не рассматривалось. Наши результаты характеризуют его как двухфотонную ап-конверсию (при возбуждении излучением с длиной волны 808 нм), связанную с ионами эрбия. Отличительными особенностями эффекта зеленого свечения являются очень низкая концентрация ионов эрбия, не позволяющая наблюдать следы их поглощения в стандартных измерениях, а также впервые обнаруженное резкое перераспределение интенсивностей между красной и зеленой полосами ап-конверсионной люминесценции эрбия.

Предпринятые нами измерения пропускания кристалла KGW указывают на его изменение в

диапазоне 1–3% вследствие воздействия возбуждающего излучения.

Полученные данные позволяют сделать вывод о влиянии продолжительности воздействия лазерного излучения на кристалл как определяющем факторе, обеспечивающем возникновение свечений и трансформацию оптических свойств среды, а также объясняющем отсутствие описаний их наблюдения при возбуждении одиночными импульсами.

Изменения характеристик среды, в частности пропускания в кристаллическом элементе внутри лазерного резонатора, могут являться существенными источниками потерь при развитии генерации в условиях с невысокими значениями коэффициентов усиления, например как при ВКР-генерации. Поэтому, хотя наиболее очевидное значение наши результаты имеют для разработки твердотельных лазерных систем с непрерывной ВКР-генерацией, представляется также важным их значение и для обычных лазерных систем, включая системы с диодной накачкой, использующие такие кристаллы, в частности композитные.

Авторы выражают благодарность В.А. Орловичу, В.П. Козичу, В.С. Чирвоному и М.А. Ходасевичу за обсуждение предмета исследований, а также П.В. Шпаку за участие в части экспериментов по исследованию голубого свечения и А.П. Ступаку за измерение спектра люминесценции KGW при ламповом возбуждении.

### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Koechner W.* Solid State Laser Engineering. N.Y.: Springer-Verlag, 2006. 766 p.
2. *Grabtchikov A.S., Lisinetskii V.A., Orlovich V.A., Schmitt M., Maksimenka R., Kiefer W.* // Opt. Lett. 2004. V. 29. P. 2524.
3. *Demidovich A.A., Grabtchikov A.S., Lisinetskii V.A., Burakevich V.N., Orlovich V.A., Kiefer W.* // Opt. Lett. 2005. V. 30. P. 1701.
4. *Pask H., Dekker P., Mildren R., Spence D., Piper J.* // Prog. Quant. Electr. 2008. V. 32. P. 121.
5. *Penzkofer A., Laubereau A., Kaiser W.* // Prog. Quant. Electr. 1979. V. 6. P. 55.
6. *Lisinetskii V.A., Grabtchikov A.S., Demidovich A.A., Burakevich V.N., Orlovich V.A., Titov A.N.* // Appl. Phys. B. 2007. V. 88. P. 499.
7. *Christodoulides D.N., Khoo I.Ch., Salamo G.J., Stegeman G.I., Van Stryland E.W.* // Adv. Opt. and Photon. 2010. V. 2. P. 60.
8. *Grabtchikov A.S., Kuzmin A.N., Lisinetskii V.A., Ryabtsev G.I., Orlovich V.A., Demidovich A.A.* // J. Alloys Comp. 2000. V. 300–301. P. 300.
9. *Pask H.M.* // Opt. Lett. 2005. V. 30. P. 2454.
10. *Ходасевич И.А., Корниенко А.А., Дунина Е.Б., Грабчиков А.С.* // ЖПС. 2012. Т. 79. С. 45.

11. Zhu H.Y., Duan Y., Zhang G., Huang Ch., Wei Y., Chen W., Huang Y., Ye N. // Opt. Lett. 2009. V. 34. P. 2763.
12. Duan Y., Yang F., Zhu H., Zhu Zh., Huang Ch., You Zh., Wei Y., Zhang G., Tu Ch. // Opt. Commun. 2010. V. 283. P. 5135.
13. Fan L., Fan Y.-X., Li Y.-Q., Zhang H., Wang Q., Wang J., Wang H.-T. // Opt. Lett. 2009. V. 34(11). P. 1687.
14. Lee A.J., Pask H.M., Piper J.A., Zhang H., Wang J. // Opt. Express. 2010. V. 18. № 6. P. 5984.
15. Zhu H., Duan Ya., Zhang Ge, Zhang Ya., Yang F. // Jpn. J. Appl. Phys. 2011. V. 50. P. 090203-1.
16. Mochalov I.V. // Opt. Eng. 1997. V. 36. P. 1660.
17. Kaminskii A.A., Ueda K., Eichler H.J., Kuwano Y., Kouta H., Bagaev S.N., Chyba T.H., Barnes J.C., Gad G.M.A., Murai T., Lu J. // Opt. Commun. 2001. V. 194. P. 201.
18. Khodasevich I.A., Kornienko A.A., Shpak P.V., Orlovich V.A., Grabtchikov A.S. // Technical Digest of the ICONO/LAT-2010. Kazan, 2010. P. ITuQ45.
19. Wang X., Song J., Haiyi Sun, Zhizhan Xu, Jianrong Qiu // Opt. Express. 2007. V. 15. № 3. P. 1384.
20. Auzel F. // Chem. Rev. 2004. V. 104. № 1. P. 139.
21. Басуев Т.Т. // УФН. 1999. Т. 169. С. 1149.
22. Moncorg R., Chambon B., Rivoire J.Y., Garnier N., Descroix E., Laporte P., Guillet H., Roy S., Mareschal J., Pelene D., Doury J., Farge P. // Opt.Mater. 1997. V. 8. P. 109.
23. Ходасевич И.А., Шпак П.В., Грабчиков А.С., Корниенко А.А., Орлович В.А. // Сб. статей 7-го Белорусско-Российского семинара "Полупроводниковые лазеры и системы на их основе". Минск, 2009. С. 186.
24. Scheps R. // Prog. Quant. Electr. 1996. V. 20. № 4. P. 271.
25. Bourgeois F., Brenier A., Metrat G., Muhlstein N., Boulon G. // Eur. Phys. J. AP. 1999. V. 6. P. 155.
26. Константинова А.Ф., Филиппов В.В., Палто С.П., Евдищенко Е.А., Имангазиева К.Б., Орехова В.П. // Кристаллография. 2007. Т. 52. № 6. С. 1125.
27. Pollnau M., Gamelin D.R., Luethi S.R., Guedel H.U. // Phys. Rev. B. 2000. V. 61. P. 3337.
28. Rico M. // Appl. Phys. B. 2001. V. 72. P. 157.
29. Ryba-Romanowski W., Solarz P., Dominiak-Dzik G., Lisiecki R., Lukasiewicz T. // Laser Physics. 2004. V. 14. № 28. P. 29673.
30. Pujo M.C., Rico M., Zaldo C., Sole R., Nikolov V., Solans X., Aguilo M., Diaz F. // Appl. Phys. B. 1999. V. 68. P. 187.
31. Joubert M.-F. // Opt. Mater. 1999. V. 11. P. 181.
32. Sheik-Bahae M., Said A.A., Wei T.-H., Hagan D.J., Van Stryland E.W. // IEEE J. Quant. Electr. 1990. V. 26. № 4. P. 760.
33. Brandt C., Fredrich-Thornton S.T., Petermann K., Huber G. // Appl. Phys. B. 2011. V. 102. P. 765.
34. Rong H., Jones R., Liu A., Cohen O., Hak D., Fang A., Paniccia M. // Nature. 2005. V. 433. № 1. P. 725.