

EPITAKSJA Z FAZY CIEKŁEJ STRUKTUR MIKROLASEROWYCH Cr,Mg:YAG/Yb:YAG

Jerzy Sarnecki¹, Krzysztof Kopczyński²

W procesie epitaksji z roztworu wysokotemperaturowego otrzymano struktury Cr,Mg:YAG/Yb:YAG mogące stanowić materiał wyjściowy do wytworzenia monolitycznych mikrolaserów impulsowych z pasywną modulacją dobroci rezonatora wzbudzanych diodami półprzewodnikowymi. Określono wpływ stężenia Cr₂O₃ w roztworze na wielkość absorpcji optycznej warstw oraz niedopasowanie sieciowe warstw i podłoża. Pomiarzy transmitancji optycznej struktur epitaksjalnych w funkcji gęstości energii wiązki promieniowania o długości fali 1064 nm wykazały, że współczynnik absorpcji warstw Cr,Mg:YAG jest nieliniową funkcją gęstości energii wiązki, a tym samym warstwy te mogą pracować jako absorbery pasywne.

1. WPROWADZENIE

Ideę budowy mikrolasera zaproponowali po raz pierwszy w 1989 roku Zayhowski i Mooradian [1] oraz niezależnie Dixon i Jarman [2]. Interesującą klasę laserów ciała stałego pompowanych diodami półprzewodnikowymi stanowią mikrolasery z modulacją dobroci rezonatora.

Prostotą budowy wyróżniają się monolityczne mikrolasery z pasywną modulacją dobroci rezonatora (*passive Q-switching*) [3]. Struktury takich mikrolaserów otrzymywane są za pomocą dwóch różnych metod – epitaksji i łączenia termicznego. Pasywny modulator i ośrodek czynny tworzą jedną planarną strukturę. Dwa ośrodki: Commissariat a l'Energie Atomique Laboratoire d'Electronique, de Technologie et d'Instrumentation (CEA LETI Grenoble, Francja) oraz Massachusetts Institute of Technology, Lincoln Lab. (Lexington,USA) opanowały w połowie lat dziewięćdziesiątych technologie wykonywania tego typu mikrolaserów. W rozwiązaniu stosowanym przez LETI pasywny modulator stanowi cienka warstwa Cr⁴⁺:YAG naniesiona w procesie wzrostu epitaksjalnego, bezpośrednio na materiale czynnym Nd³⁺:YAG.

¹ Instytut Technologii Materiałów Elektronicznych, ul. Wólczyńska 133, 01-919 Warszawa, e-mail: jerzy.sarnecki@itme.edu.pl

² Instytut Optoelektroniki WAT, 01-908 Warszawa, ul. Kaliskiego 2, e-mail: kkopeczynski@wat.edu.pl

W kryształach Cr⁴⁺:YAG w procesie modulacji wykorzystane jest zjawisko nieliniowej zależności absorpcji od intensywności padającego promieniowania, czyli zjawisko znane również jako prześwietlanie absorbera (ang. bleaching effect). Modulator pasywny nie wymaga zewnętrznego sterowania czy zasilania. Połączenie tych cech z zaletami planarnego układu modulator - ośrodek czynny daje w efekcie strukturę laserową umożliwiającą zwartą konstrukcję mikrolasera integrującego w jednej obudowie również pompującą diodę laserową [4-7].

W ITME opracowano technologię wzrostu warstw Cr,Mg:YAG zawierających w pozycjach tetraedrycznych jony Cr⁴⁺ i wytworzono epitaksjalne struktury mikrolaserowe Nd³⁺:YAG/Cr⁴⁺:YAG, z wykorzystaniem których uzyskano w Instytucie Optoelektroniki WAT w warunkach laboratoryjnych stabilną generację ciągu monoimpulsów laserowych ($\lambda = 1064$ nm) o czasie trwania kilku ns, energii ≤ 5 μ J i częstotliwościach repetycji w zakresie od kilku do kilkunastu kHz [8-9].

Prezentowane obecnie wyniki pomiarów współczynnika absorpcji i zmian stałej sieci warstw Cr,Mg:YAG w funkcji stężenia Cr₂O₃ w roztworze wysokotemperaturowym uzupełniają wcześniejsze badania dotyczące wpływu jonów Cr⁴⁺ usytuowanych w położeniach tetraedrycznych na zjawisko absorpcji w warstwach epitaksjalnych Cr,Mg:YAG, wpływu koncentracji jonów Mg²⁺ będących domieszką kompensującą ładunek na zmianę wartościowości jonów chromu i na skuteczność procesu termicznego generowania centrów Cr⁴⁺ w warstwach Cr,Mg:YAG [10].

Większość prac dotyczących mikrolaserów z pasywną modulacją dobroci rezonatora została zrealizowana dla ośrodków czynnych domieszkowanych jonami Nd³⁺ (YAG, YVO₄, itd.) z wykorzystaniem nieliniowego absorbera jakim jest kryształ Cr⁴⁺:YAG.

Kryształem konkurencyjnym w stosunku do klasycznego już materiału laserowego, jakim jest kryształ Nd:YAG, okazał się intensywnie badany w ostatnich latach kryształ granatu itrowo-glinowego aktywowany jonami Yb³⁺ emitujący promieniowanie o długości fali 1030 nm.

Pomyślne wyniki prób generacji ciągu impulsów z zastosowaniem objętościowego modulatora pasywnego Cr⁴⁺:YAG w układzie z objętościowym kryształem laserowym Yb:YAG [11-12], informacje o mikrolaserach Yb,Cr:YAG wykorzystujących efekt określany terminem *self-Q-switching* [13] i o mikrolaserach Yb:YAG z półprzewodnikowym modulatorem pasywnym typu SESAM [14] spowodowały podjęcie w ITME prac dotyczących wzrostu epitaksjalnego struktur Yb³⁺:YAG/Cr⁴⁺:YAG.

Jesienią 2006 roku ukazała się praca poświęcona zastosowaniu ceramiki laserowej i wykorzystaniu techniki łączenia termicznego w technologii mikrolaserów z pasywną modulacją dobroci rezonatora [15]. Mikrolaser ceramiczny Yb:YAG/Cr⁴⁺:YAG pompowany diodą laserową InGaAs umożliwił generację ciągu impulsów ($\lambda = 1030$ nm) o energii do 30 μ J, czasie trwania kilkuset ps i częstotliwości repetycji do 12 kHz [15]. Dla mikrolasera skonstruowanego z wykorzystaniem ceramicznej struktury Yb:YAG/Cr⁴⁺:YAG uzyskano impulsy o porównywalnych wartościach

czasu trwania, energii oraz częstotliwości repetycji w stosunku do typowych wartości cechujących mikrolasery Nd:YAG/Cr⁴⁺:YAG [16].

Celem badań, których wyniki przedstawiamy, jest próba odpowiedzi na pytanie: czy metoda epitaksji z fazy ciekłej umożliwia otrzymanie struktur epitaksjalnych Yb:YAG/Cr⁴⁺:YAG o właściwościach wskazujących na możliwość zastosowania takich struktur w technologii mikrolaserów z pasywną modulacją dobroci rezonatora pracujących na długości fali 1030 nm i pobudzanych diodami półprzewodnikowymi.

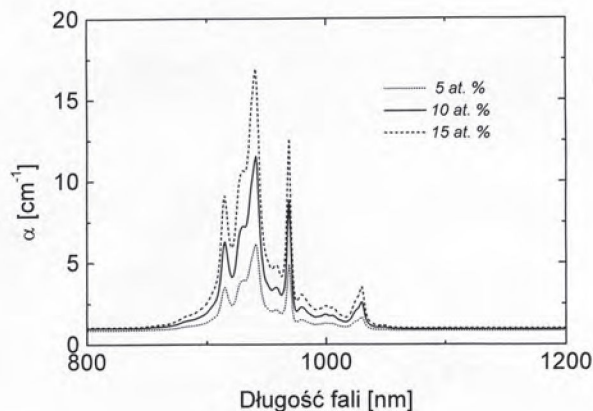
Należy zaznaczyć, że struktury epitaksjalne Yb:YAG/Cr⁴⁺:YAG otrzymano po raz pierwszy. W literaturze przedmiotu brak jest na ten temat doniesień.

2. KRYSZTAŁ LASEROWY YB³⁺:YAG

Struktura poziomów energetycznych jonów Yb³⁺ jest prosta i składa się z dwóch poziomów ²F_{7/2} i ²F_{5/2}. Taki charakter struktury elektronowej jonów Yb³⁺ uniemożliwia występowanie procesu konwersji promieniowania na drodze absorpcji ze stanu wzbudzonego ESA (ang. Excited State Absorption) i zapobiega szkodliwemu procesowi relaksacji skróśnej prowadzącemu w efekcie do tak zwanego koncentracyjnego wygaszania fluorescencji [17].

Te charakterystyczne cechy jonu Yb³⁺ mogą decydować o jego przewadze w stosunku do jonu Nd³⁺ w układach laserowych. Z układu poziomów energetycznych jonu Yb³⁺ w kryształach YAG wynika, że długość fali promieniowania pompującego λ_p jest bliższa długości fali generowanego promieniowania λ_g ($\lambda_p/\lambda_g = 0,91$) niż w przypadku jonu Nd³⁺ ($\lambda_p/\lambda_g = 0,76$). Mniejsza dla jonu Yb³⁺ różnica energii promieniowania pompującego i generowanego prowadzi do mniejszego obciążenia termicznego kryształu laserowego. Pięciokrotnie szersze, w stosunku do jonu Nd³⁺, pasmo absorpcji jonu Yb³⁺ w YAG sprzyja bardziej efektywnej absorpcji promieniowania pompy. Metastabilny poziom laserowy ²F_{5/2} jonu Yb³⁺ o czasie życia ~1,2 ms jest wzbudzany bezpośrednio. W wyniku długiego czasu życia wzbudzonego poziomu ²F_{5/2} możliwa jest generacja impulsów o relatywnie wysokiej mocy szczytowej. Ta cecha w połączeniu z wysokim poziomem domieszkowania czyni kryształ Yb:YAG idealnym kandydatem na pompowane diodowo mikrolasery emitujące promieniowanie w paśmie 1030 nm, czyli w zakresie, w jakim absorber nieliniowy Cr⁴⁺:YAG pracuje w charakterze modulatora pasywnego. Istotną wadą jonu Yb³⁺ w kryształach YAG jest trójpoziomowy schemat generacji i mała różnica energii rozszczepionych poziomów stanu podstawowego. Energia niższego poziomu laserowego jonu iterbu jest niska i wynosi 612 cm⁻¹, co sprzyja cieplnemu obsadzeniu tego poziomu powodując niekorzystne podwyższenie wartości progu wzbudzenia. Mankament ten powoduje konieczność zwiększenia gęstości mocy pompy i równoczesnego chłodzenia kryształu laserowego [17].

Widma absorpcyjne kryształów Yb:YAG o różnej koncentracji jonów Yb³⁺ wyhodowanych w Zakładzie Kryształów Tlenkowych ITME przedstawiono na Rys. 1. Dwustronnie polerowane płytki wykonane z tych kryształów posłużyły jako podłoża przy epitaksji struktur Cr,Mg:YAG/Yb³⁺:YAG.



Rys.1. Widmo absorpcyjne kryształów Yb:YAG o różnej koncentracji Yb³⁺.

Fig.1. Absorption spectra of Yb:YAG crystals for different Yb³⁺ ions concentrations.

3. EPITAKSJA STRUKTUR Cr,Mg:YAG/Yb³⁺:YAG

Wzrost warstw granatów w procesie epitaksji z fazy ciekłej zachodzi z przechłodzonego roztworu wysokotemperaturowego. Fazę granatu Cr,Mg:YAG tworzą tlenki Al₂O₃, Y₂O₃, Cr₂O₃ i MgO rozpuszczone w topniku PbO – B₂O₃. Proces epitaksji odbywa się w warunkach izotermicznych metodą zanurzeniową. W pracach (9-10) określono składy wyjściowe i parametry epitaksjalnego wzrostu warstw Cr,Mg:YAG. Obecnie wykorzystano wyniki tych badań, osadzając na podłożach YAG warstwy o wyższej koncentracji jonów chromu, a w dalszej kolejności na podłożach Yb:YAG warstwy Cr,Mg:YAG o absorpcji nieliniowej w zakresie 800 – 1200 nm, w których wartość współczynnika absorpcji α dla promieniowania lasera Yb:YAG o długości fali 1030 nm dochodzi do $\sim 20 \text{ cm}^{-1}$.

Procesy epitaksji przeprowadzono w stanowisku LPE zaprojektowanym, skonstruowanym i uruchomionym w ITME. Przebieg procesu epitaksji z fazy ciekłej warstw granatów w warunkach izotermicznych, metodą zanurzeniową z poziomo mocowanym podłożem obracającym się ruchem rewersyjnym wraz z opisem działania laboratoryjnego urządzenia do epitaksji przedstawiono w publikacjach [18-19]. Wzrost warstw epitaksjalnych zachodził w grubościennym tyglu PtIr2%2N5 o wysokości 75 mm, średnicy 50 mm i pojemności 150 ml. Masa typowego wsadu

zajmującego po przetopieniu ~ 50% objętości tygla wynosiła ~ 600 g. Podłoża mocowano w uchwycie z 3 drutów PtIr20% ($\Phi = 2$ mm) przymocowanym do alundowej rurki o średnicy 16 mm związanej przez uchwyt umożliwiający jej centrowanie z wrzecionem mechanizmu obrotowego.

Przy epitaksji struktur mikrolaserowych Cr,Mg:YAG/Yb:YAG jako aktywne podłoże stosowano dwustronnie polerowane płytki o grubości od 1,5 mm do 2,5 mm wycięte z monokryształów Yb:YAG o orientacji $\langle 111 \rangle$ (Rys. 6). Grubość płytek zależała od koncentracji w nich jonów Yb^{3+} . Otrzymano struktury Cr,Mg:YAG/Yb:YAG z dwustronnie osadzonymi warstwami o grubości od 55 do 70 μm .

4. CHARAKTERYZACJA STRUKTUR EPITAKSJALNYCH

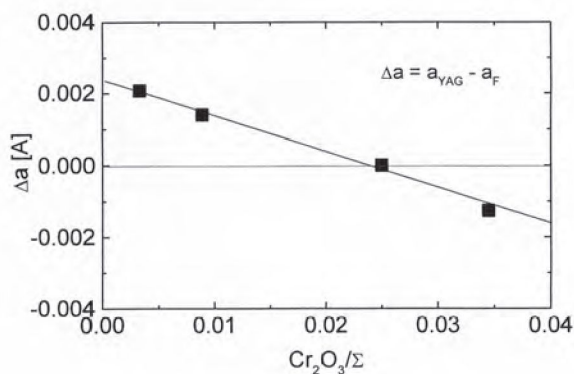
Struktury epitaksjalne scharakteryzowano korzystając z wysokorozdzielczej dyfraktometrii rentgenowskiej oraz badań spektroskopowych.

4.1. POMIARY DYFRAKTOMETRYCZNE

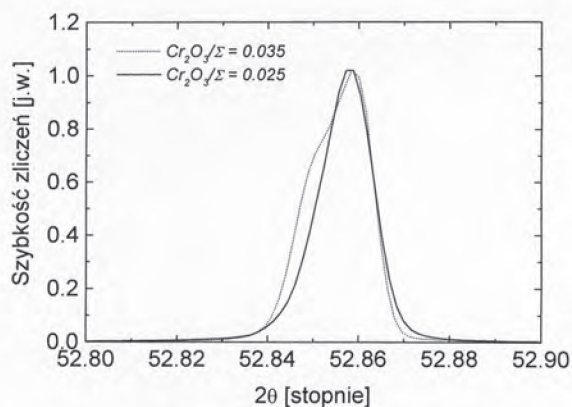
Do oceny jakości strukturalnej warstw i wyznaczenia względnego niedopasowania stałych sieci warstwy a_F i podłoża a_S zastosowano metodę wysokorozdzielczej dyfraktometrii rentgenowskiej [20]. Ze względnego niedopasowania zdefiniowanego jako: $\Delta a/a_S = (a_S - a_F)/a_S$ można wyliczyć Δa dla warstw o różnej koncentracji jonów chromu i magnezu. Niedopasowanie stałych sieci podłoża YAG i warstwy informuje o wpływie domieszkowania na stałą sieci warstwy. Ze wzrostem w warstwach Cr,Mg:YAG koncentracji jonów chromu i dla wyjściowego stosunku stężeń $\text{Cr}_2\text{O}_3/\text{MgO} = 2 \div 4$ otrzymywano warstwy z rosnącą wartością stałej sieci. Dokładne dopasowanie stałych sieci YAG i warstwy epitaksjalnej Cr,Mg:YAG zaobserwowano dla warstw otrzymanych ze składu wyjściowego, w którym ułamek molowy Cr_2O_3 wynosi 0,025 i dla stężenia Cr_2O_3 czterokrotnie większego od stężenia MgO. Należy pamiętać, że wartość stałej sieci warstwy epitaksjalnej YAG osadzonej w procesie LPE jest mniejsza od wartości stałej sieci monokryształu YAG o $\sim 2,5 \times 10^{-3}$ Å [10,20]. Na Rys. 2 przedstawiono zmianę wartości różnicy stałych sieci warstwy i podłoża YAG w zależności od ułamka molowego Cr_2O_3 w roztworze wysokotemperaturowym. Z Rys. 2. wynika, że w przypadku nieobecności w składzie wyjściowym Cr_2O_3 i MgO wartość Δa dąży do $\sim 2,5 \times 10^{-3}$ Å. Dyfraktogram struktur epitaksjalnych Cr,Mg:YAG/YAG otrzymanych odpowiednio ze składów Cr,Mg:YAG_21 ($a_S = a_F$) i Cr,Mg:YAG_28 ($a_S < a_F$) ilustruje Rys. 3.

Wyznaczone z pomiarów dyfraktometrycznych odległości katowe pików $\Delta\theta_{444}$ względne niedopasowanie $\Delta a/a_S$ oraz różnica stałych sieci warstwy i podłoża Δa w strukturach epitaksjalnych Cr,Mg:YAG/YAG zestawiono w Tab. 1. Wartości względnego niedopasowania $\Delta a/a_S$ nie były przeliczane dla stanu bez naprężeń. Dla struktur

mikrolaserowych Cr,Mg:YAG/Yb:YAG nie przeprowadzono pomiarów dyfrakto-metrycznych ze względu na zbyt dużą absorpcję promieniowania rentgenowskiego, spowodowaną znaczną grubością warstw epitaksjalnych powyżej 50 μm .



Rys. 2. Różnica stałych sieci warstwy Cr,Mg:YAG i podłoża YAG w funkcji ułamka molo-wego Cr_2O_3 w składzie wyjściowym. $\text{Cr}_2\text{O}_3/\Sigma$ oznacza ułamek molowy Cr_2O_3 w roztworze.
Fig.2. The difference between Cr,Mg:YAG film and YAG substrate lattice constant as a func-tion of Cr_2O_3 mol fractions in the melt. $\text{Cr}_2\text{O}_3/\Sigma$ denotes Cr_2O_3 mole fraction in the melt.



Rys. 3. Dyfraktogram struktur epitaksjalnych Cr,Mg:YAG/YAG otrzymanych przy różnej zawartości Cr_2O_3 w roztworze.
Fig. 3. X-ray diffraction patterns of Cr,Mg:YAG/YAG epitaxial structures for various Cr_2O_3 mole fractions in the solution.

Tabela 1. Wyniki pomiarów niedopasowania stałych sieci w strukturach epitaksjalnych Cr,Mg:YAG/YAG, gdzie $\Delta\theta = \theta_s - \theta_f$ i $\Delta a = a_s - a_f$ oraz Cr₂O₃/Σ oznacza ułamek molowy Cr₂O₃ w roztworze wysokotemperaturowym.

Table 1. Table 1. Lattice misfit measurement results for Cr,Mg:YAG/YAG epitaxial structures, where $\Delta\theta = \theta_s - \theta_f$, $\Delta a = a_s - a_f$ and Cr₂O₃/Σ denotes Cr₂O₃ mole fraction in the high temperature solution.

| Nr warstwy | Cr ₂ O ₃ /Σ | Δθ ["] | Δa/a x 10 ⁻⁴ | Δa x 10 ⁻³ [Å] |
|--------------|-------------------------------------|--------|-------------------------|---------------------------|
| | Cr ₂ O ₃ /MgO | | | |
| Cr,Mg:YAG_2 | 0,0033 | - 17 | 1,68 | 2,07 |
| | 5 | | | |
| Cr,Mg:YAG_8 | 0,0089 | - 11,8 | 1,16 | 1,4 |
| | 2,5 | | | |
| Cr,Mg:YAG_21 | 0,025 | 0 | 0 | 0 |
| | 4 | | | |
| Cr,Mg:YAG_28 | 0,0345 | - 10,8 | -1,05 | -1,26 |
| | 4 | | | |

Domieszkowanie jonami Yb³⁺ kryształu YAG powoduje zmniejszenie wartości stałej sieci o ~ 0,18 % przy wzroście koncentracji tych jonów o 10 at. % [21]. Obliczone różnice stałych sieci warstw Cr,Mg:YAG_21 i Cr,Mg:YAG_28 oraz podłoża Yb:YAG o koncentracji jonów iterbu w zakresie 5 – 15 at. % przedstawia Tab. 2.

Tabela 2. Różnica stałych sieci warstw Cr,Mg:YAG i podłoża Yb:YAG. N_{Yb} jest koncentracją jonów iterbu.

Table 2. Lattice constant difference between Cr,Mg:YAG film and Yb:YAG substrate. N_{Yb} denotes the Yb³⁺ ions concentration.

| N _{Yb} [at. %] | Δa [Å] Cr,Mg:YAG_21 | Δa [Å] Cr,Mg:YAG_28 |
|-------------------------|------------------------|------------------------|
| 5 | - 0,0108 | - 0,012 |
| 7,5 | - 0,0162 | - 0,0174 |
| 10 | - 0,0216 | - 0,0228 |
| 15 | - 0,0324 | - 0,0336 |

Oszacowane wartości niedopasowania przekraczają dla koncentracji jonów Yb³⁺ w podłożu wynoszącej 15 at. % największą stwierdzoną doświadczalnie dla warstw granatów wartość Δa = - 0,028 Å[10]. Wzrost warstw o grubości kilkudziesięciu mikrometrów na podłożach Yb:YAG (10 at. %) a tym bardziej Yb:YAG(15 at. %) można określić terminem *faceting growth* Dopasowanie stałych sieci warstw i pod-

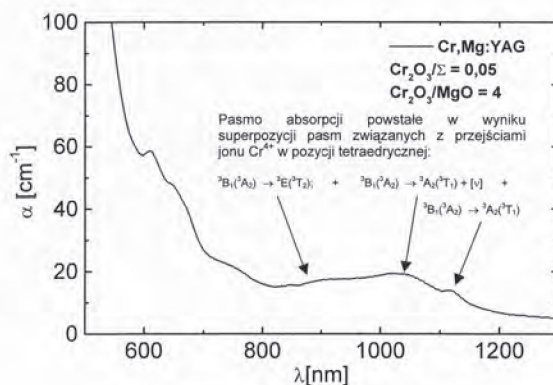
łoża Yb:YAG będzie możliwe, podobnie jak w przypadku warstw falowodowych, dzięki wprowadzeniu do warstw Cr,Mg:YAG jonów Lu^{3+} .

4.2. WIDMA ABSORPCYJNEJ WARSTW EPITAKSJALNYCH Cr,Mg:YAG I STRUKTUR Cr,Mg:YAG/Yb:YAG

W kryształach YAG domieszkowanym czterowartościowymi jonami chromu obserwuje się szerokie pasmo absorpcji nieliniowej 800 – 1200 nm, w którym może zachodzić zjawisko prześwieclania, czyli wzrostu transmisji pod wpływem laserowego promieniowania o dużej intensywności. Efekt prześwieclania pozwala na zastosowanie kryształu Cr^{4+} :YAG jako pasywnego przełącznika dobroci rezonatora w układzie lasera z ośrodkami czynnymi domieszkowanymi jonami Nd^{3+} . Wartość współczynnika absorpcji kryształu Cr^{4+} :YAG w paśmie 800 – 1200 nm zależy od koncentracji jonów Cr^{4+} w pozycjach tetraedrycznych.

W granacie itrowo-glinowym jony chromu, które podstawiają jony Al^{3+} w pozycjach oktaedrycznych, są jonami trójwartościowymi. Wymagana zmiana wartościowości jonów chromu (do np. 4+) może być uzyskana przez wprowadzenie do kryształu jonów $\text{Me}^{2+} = \text{Mg}^{2+}$ lub Ca^{2+} kompensujących ładunek. Wybór magnezu wynikał z mniejszego promienia jonowego magnezu w porównaniu z jonami wapnia [22].

Widmo absorpcyjne warstwy monokrystalicznej Cr,Mg:YAG otrzymanej według technologii opracowanej w Zakładzie Epitaksji ITME ilustruje Rys. 4. W widmie warstwy można wyodrębnić pasma charakterystyczne dla szeregu przejść jonów Cr^{3+} i Cr^{4+} z koordynacją 6 w pozycjach oktaedrycznych oraz istotne z punktu rozpatrywanych zagadnień pasma związane z jonami Cr^{4+} z koordynacją 4 usytuowane w pozycjach tetraedrycznych.



Rys.4. Widmo absorpcyjne warstw epitaksjalnych Cr,Mg:YAG.

Fig.4. Absorption spectrum of Cr,Mg:YAG epitaxial layers.

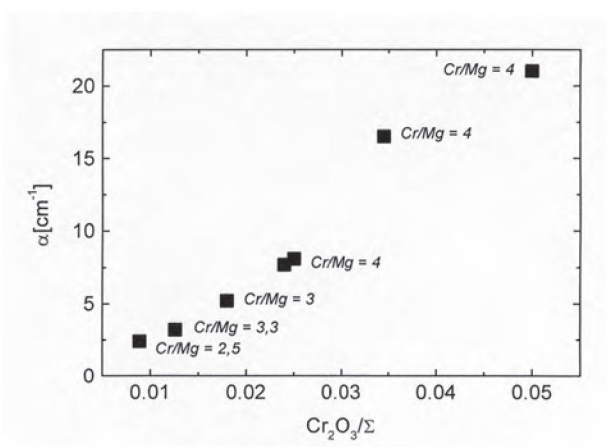
Do wyznaczenia widm absorpcyjnych warstw epitaksjalnych posłużyły wyniki pomiarów transmisji struktur epitaksjalnych i płytek podłożowych YAG. Wartość współczynnika absorpcji obliczono korzystając z zależności :

$$\alpha_f = [\ln(T_f^{-1}) - \ln(T_s^{-1})]/d_f \quad (1)$$

gdzie: α_f jest współczynnikiem absorpcji warstwy epitaksjalnej, T_f i T_s są wartościami transmitancji struktury epitaksjalnej i podłoża oraz d_f jest grubością warstwy.

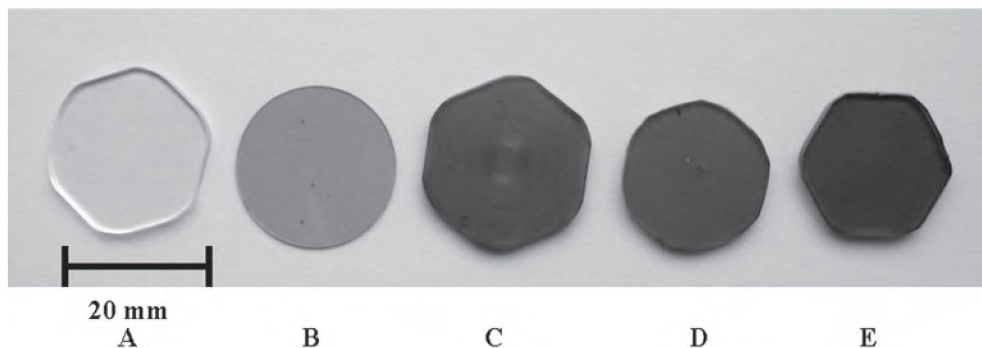
Widma transmitancji zmierzono za pomocą spektrofotometru PERKIN-ELMER LAMBDA 900. Pomiarów widm transmitancji struktur epitaksjalnych przeprowadzono w zakresie widmowym 200 – 3300 nm z rozdzielczością 0,5 nm, zmieniając długość fali z krokiem 1 nm.

Na Rys. 5 przedstawiono wpływ stężenia Cr_2O_3 w roztworze wysokotemperaturowym na wartość współczynnika absorpcji warstw dla promieniowania o długości fali $\lambda = 1064$ nm. Ułamek molowy Cr_2O_3 w roztworze oznaczono jako $\text{Cr}_2\text{O}_3/\Sigma$, natomiast stosunek ułamków molowych Cr_2O_3 do MgO, jako Cr/Mg.



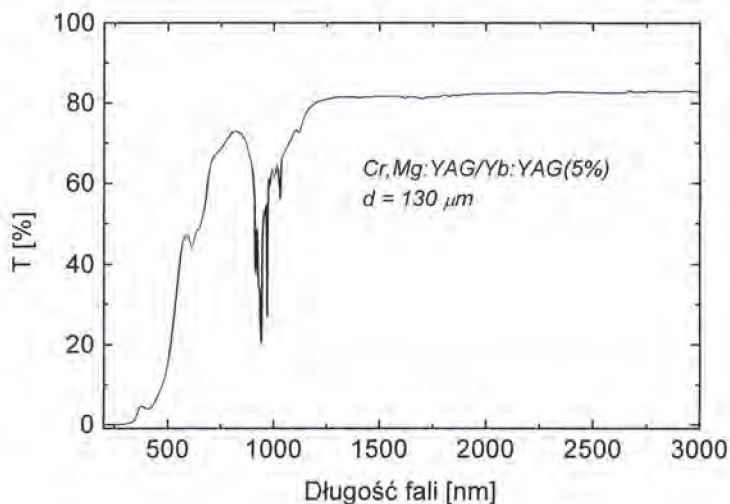
Rys. 5. Współczynnik absorpcji warstw Cr,Mg: YAG dla $\lambda = 1064$ nm w funkcji ułamka molowego Cr_2O_3 w roztworze. Stosunek stężeń wyjściowych Cr_2O_3 i MgO oznaczono jako Cr/Mg.
Fig. 5. Absorption coefficient of Cr,Mg: YAG layers for $\lambda = 1064$ nm as a function of Cr_2O_3 mol fractions in the melt, where Cr/Mg denotes the mole concentration ratio of Cr_2O_3 to MgO.

Zdjęcia struktur epitaksjalnych i płytki podłożowej Yb:YAG (15 at. %) przedstawiono na Rys. 6. Grubości dwustronnie osadzonych warstw Cr,Mg:YAG w strukturach B, C, D i E wynoszą odpowiednio: 15 μm , 67 μm , 68 μm i 55 μm . Widmo transmisyjne struktury mikrolaserowej Cr,Mg:YAG/Yb:YAG ilustruje Rys. 7. Na Rys. 8. przedstawiono widmo absorpcyjne struktury mikrolaserowej Cr,Mg:YAG/Yb:YAG. W pracach dotyczących technologii i charakteryzacji otrzymanych w ITME struktur mikrolaserowych Cr^{4+} :YAG/Nd:YAG wyznaczono wartość przekroju czynnego na



Rys. 6. Zdjęcia struktur epitaksjalnych i podłoża Yb:YAG, gdzie A – Yb:YAG(15 at.%), B – Cr,Mg:YAG/YAG, C – Cr,Mg:YAG/Yb:YAG(15 at.%), D – Cr,Mg:YAG/Yb:YAG(5 at.%), E – Cr,Mg:YAG/Yb:YAG(10 at. %).

Fig. 6. Epitaxial structures and Yb:YAG polished substrate, where A – Yb:YAG(15 at.%), B – Cr,Mg:YAG/YAG, C – Cr,Mg:YAG/Yb:YAG(15 at.%), D – Cr,Mg:YAG/Yb:YAG(5 at.%), E – Cr,Mg:YAG/Yb:YAG(10 at. %).

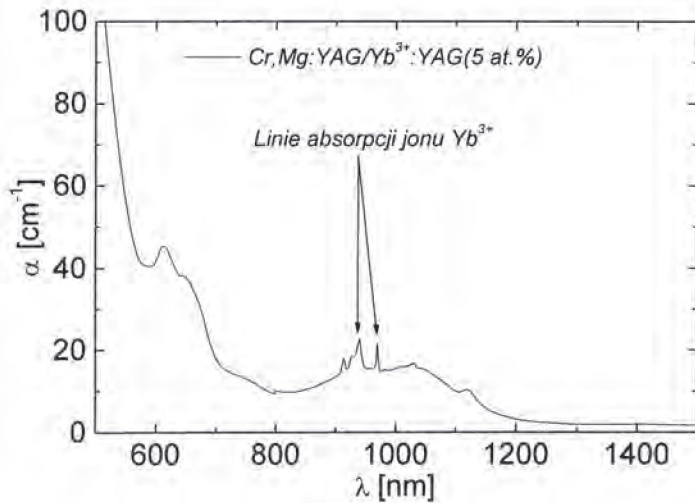


Rys. 7. Widmo transmisyjne struktury epitaksjalnej Cr,Mg:YAG/Yb:YAG.

Fig. 7. Transmission spectrum of Cr,Mg:YAG/Yb:YAG epitaxial structure.

absorbpcję ze stanu podstawowego σ_{GSA} , która dla długości fali 1064 nm wyniosła $3,2 \times 10^{-18} \text{ cm}^2$ [9-10]. Znajomość wartości σ_{GSA} umożliwiła oszacowanie w warstwach koncentracji jonów Cr^{4+} w pozycjach tetraedrycznych N_{Cr} z zależności:

$$\sigma_{GSA} = \alpha N_{Cr}$$



Rys. 8. Widmo absorpcyjne epitaksjalnej struktury mikrolaserowej Cr,Mg:YAG/Yb:YAG .
Fig. 8. Absorption spectrum of Cr,Mg:YAG/Yb:YAG microlaser epitaxial structure.

Wyniki zostały zawarte w Tab. 3.

Tabela 3. Obliczona dla warstw Cr,Mg:YAG koncentracja jonów Cr^{4+} w pozycjach tetraedrycznych w zależności od ułamka molowego Cr_2O_3 w roztworze wysokotemperaturowym.

Table 3. Calculated concentration of tetrahedrally coordinated Cr^{4+} ions in Cr,Mg:YAG epitaxial layers as a function of Cr_2O_3 mole fraction in the high temperature solution.

| Nr | $\text{Cr}_2\text{O}_3/\Sigma$ | $N_{\text{Cr}} \times 10^{18} [\text{cm}^{-3}]$ |
|----|--------------------------------|---|
| 1 | 0,024 | 2,4 |
| 2 | 0,025 | 2,5 |
| 3 | 0,0345 | 5,1 |
| 4 | 0,05 | 6,5 |

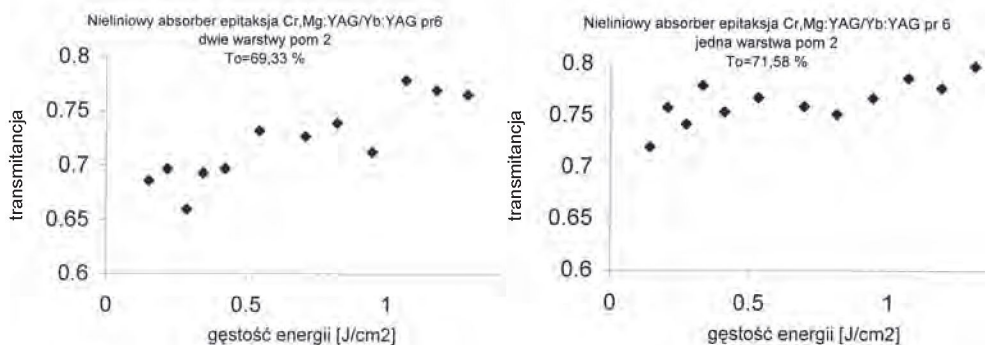
Koncentracje jonów Cr^{4+} zamieszczone w Tab. 3 są o rząd większe niż w typowych, stosowanych w układach laserowych monokrystalicznych modulatorach objętościowych $\text{Cr}^{4+}\text{:YAG}$. Wysoka koncentracja centrów Cr^{4+} w pozycjach tetra-

edrycznych pozwala zmniejszyć wymaganą grubość warstw absorbera pasywnego do kilkudziesięciu mikrometrów, a tym samym ograniczyć czas wzrostu warstw.

4.3. POMIARY DYNAMIKI PRZEŚWIETLANIA STRUKTUR Cr,Mg:YAG/Yb:YAG

Podstawową właściwością materiałów przeznaczonych do pasywnej modulacji rezonatorów laserów jest absorpcja nieliniowa, która polega na zmniejszeniu współczynnika absorpcji wraz ze wzrostem gęstości mocy padającego promieniowania.

Przeprowadzono pomiary zmian transmitancji próbek z warstwami epitaksjalnymi Cr,Mg:YAG w funkcji gęstości energii promieniowania o długości fali 1064 nm. W układzie pomiarowym zastosowano laser monoimpulsowy CDDN-Zs9a generujący impulsy o energii 20 mJ i czasie trwania 7 ns. Gęstość energii impulsu diagnostycznego zmieniano w zakresie $0,001 \text{ J/cm}^2 \div 1,5 \text{ J/cm}^2$. Badania przeprowadzono dla struktur Cr,Mg:YAG/Yb:YAG/ Cr,Mg:YAG z wytworzonymi warstwami epitaksjalnymi nieliniowego absorbera z obydwu stron płytki ośrodka czynnego, a także dla struktur Cr,Mg:YAG/Yb:YAG z warstwą nieliniowego absorbera z jednej



Rys. 9. Zależność transmitancji struktur Cr,Mg:YAG/Yb:YAG od gęstości energii wiązki promieniowania o długości fali 1064 nm.

Fig. 9. Transmittance versus energy density of radiation at wavelength 1064 nm for Cr,Mg:YAG/Yb:YAG microlaser structure.

strony ośrodka czynnego. Na Rys. 9 przedstawiono wyniki pomiaru zmian transmisji w funkcji gęstości energii promieniowania o długości fali 1064 nm uzyskane dla struktur epitaksjalnych Cr,Mg:YAG/Yb:YAG.

Wyniki pomiaru zależności transmitancji absorbera w funkcji gęstości energii $T(E)$ można aproksymować zależnością Frantza-Nodvika [23]. Wyznaczenie wartości przekroju czynnego dla nieliniowego absorbera nie wykazującego absorpcji ze stanów wzbudzonych polega na porównaniu wyników pomiarów jego nieliniowej

transmisji (zależność $T(E)$) z określoną formułą. Dla zadanej wartości początkowej transmisji nieliniowego absorbera istnieje tylko jedna wartość absorpcyjnego przekroju czynnego (a tym samym energii nasycenia), która dobrze aproksymuje wyniki pomiarów transmitancji nieliniowej. Wyniki pomiarowe wskazują, że w strukturach Cr,Mg:YAG/Yb:YAG warstwa epitaksjalna zawierająca jony Cr^{4+} jest nieliniowym absorberem wykazującym absorpcję ze stanów wzbudzonych. W tym przypadku obraz propagacji promieniowania w absorberze nieliniowym zmienia się zasadniczo. Analizę nieliniowego absorbera, który charakteryzuje dodatkowe pasmo absorpcyjne (drugi poziom wzbudzony) o stosunkowo krótkim czasie życia, przy założeniu, że podstawowe pasmo absorpcyjne (pierwszy poziom wzbudzony) jest długożyciowe, można przeprowadzić analogicznie jak autorzy pracy [24]. Zmianę gęstości energii impulsu w nieliniowym absorberze opisuje następujące równanie [24]:

$$\frac{dE}{dz} = -hvN_0 \left\{ \left(1 - \frac{\sigma_2}{\sigma_1} \right) \left[1 - \exp\left(-\frac{\sigma_1 E}{hv} \right) \right] + \frac{\sigma_2 E}{hv} \right\} - \alpha E \quad (2)$$

gdzie: E - gęstość energii promieniowania, hv - energia fotonu,
 N_0 - całkowita koncentracja centrów absorbujących, $N_0 = N_1 + N_2$,
 N_1 - obsadzenie pierwszego poziomu wzbudzonego,
 N_2 - obsadzenie drugiego poziomu wzbudzonego,
 $\sigma_1 \equiv \sigma_{GSA}$ - absorpcyjny przekrój czynny dla przejść z poziomu podstawowego,
 $\sigma_2 \equiv \sigma_{ESA}$ - absorpcyjny przekrój czynny dla przejść z poziomu wzbudzonego,
 α - współczynnik strat rozproszeniowych (nierezonansowych).

Analizę parametrów spektroskopowych absorberów nieliniowych opisywanych równaniem różniczkowym (2) przeprowadza się metodą optymalizacji nieliniowej z ograniczeniami, rozwiązując zagadnienie odwrotne polegające na wyznaczeniu stałych materiałowych nieliniowego absorbera, takich jak absorpcyjne przekroje czynne σ_{GSA} i σ_{ESA} , koncentracja centrów absorpcyjnych N_0 i straty rozproszeniowe α na podstawie doświadczalnej zależności transmisji absorbera w funkcji gęstości energii padającego promieniowania.

Najlepszą zgodność z wynikami pomiarów zmian transmisji dla struktur Cr,Mg:YAG/YAG wytworzonych w ITME otrzymano dla wartości absorpcyjnego przekroju czynnego σ_{GSA} , która dla długości fali 1064 nm wynosi $3,2 \times 10^{-18} \text{ cm}^2$ [8-10]. Otrzymane warstwy Cr,Mg:YAG cechuje słabsza absorpcja ze stanów wzbudzonych w porównaniu z monokryształami Cr^{4+} :YAG, o czym świadczy wysoka wartość stosunku $\sigma_{GSA} / \sigma_{ESA} > 10$ [8-10].

5. PODSUMOWANIE

W procesie epitaksji z fazy ciekłej otrzymano struktury Cr,Mg:YAG/Yb:YAG o dobrej perfekcji strukturalnej i wysokiej jakości optycznej. Zaobserwowane widma absorpcyjne świadczą o obecności w warstwach Cr,Mg:YAG jonów Cr⁴⁺ usytuowanych w pozycjach tetraedrycznych. Koncentracja jonów Cr⁴⁺ o liczbie koordynacyjnej 4 osiąga wartość $\sim 5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ jest prawie dziesięciokrotnie większą niż w typowych modulatorach objętościowych Cr⁴⁺:YAG. Pomiar dynamiki prześwietlania struktury Cr,Mg:YAG/Yb:YAG (5 at.%) dla długości fali 1064 nm wykazały nieliniowy charakter współczynnika absorpcji warstwy Cr,Mg:YAG. Wynik ten wskazuje na możliwość wykorzystania warstw Cr,Mg:YAG jako absorberów pasywnych w strukturach mikrolaserowych.

Dane literaturowe wskazują, że dla kryształu Yb³⁺:YAG pracującego z pasywnym modulatorem Cr⁴⁺:YAG, czy to w układzie otwartego rezonatora, czy jako łączonej termicznie struktury, najkorzystniejsze parametry generowanych impulsów uzyskać można dla koncentracji jonów Cr⁴⁺ w położeniach tetraedrycznych wynoszącej $\sim 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ oraz koncentracji jonów Yb³⁺ mieszczącej się w zakresie od kilku do kilkunastu at.% [11-12], czyli dla koncentracji właściwych dla otrzymanych struktur Yb:YAG/ Cr,Mg:YAG.

Pomiary charakterystyk generacyjnych struktur epitaksjalnych Yb:YAG/Cr⁴⁺:YAG zostaną wkrótce przeprowadzone w Laboratorium Mikrolaserów Instytutu Optoelektroniki WAT.

PODZIĘKOWANIA

Autorzy pragną podziękować mgr Krystynie Mazur za przeprowadzenie badań struktur epitaksjalnych metodą wysokorozdzielczej dyfraktometrii rentgenowskiej.

BIBLIOGRAFIA

- [1] Zayhowski J.J., Mooradian A.: Single frequency microchip Nd lasers, *Opt. Lett.*, 14 (1989) 24-26
- [2] Dixon G.J., Jarman R.H.: Properties of miniature lithium neodymium tetrphosphate microlasers with high intensity IR pumping, *CLEO 89, Tech.Digest, TUJ62*
- [3] Zayhowski J. J.: Q-switched operation of microchip lasers, *Opt.Lett.*, 16 (1991), 575-577
- [4] Molva E.: Microchip lasers, *MST News 20/97* (1997) 26–28
- [5] Molva E.: Microchip lasers and their applications in optical microsystems, *Opt. Mat.*, 11 (1999) 289 – 299
- [6] Zayhowski J.J.: Microchip lasers create light in small spaces, *Laser Focus World*, (1996) 73- 78

- [7] Zayhowski J.J., Dill III C., Cook C., Daneu J. L.: Mid- and High – Power Passively Q – Switched Microchip Lasers, *OSA TOPS 26 Advanced Solid - State Lasers*, (1999) 178 – 186
- [8] Sarnecki J., Kopczyński K., Mierczyk Z., Skwarcz J., Młyńczak J.: Struktury epitaksjalne do mikrolaserów z pasywną modulacją dobroci rezonatora, *Elektronika*, XLVI 2-3 (2005) 71-72
- [9] Kopczyński K., Sarnecki J., Młyńczak J., Mierczyk Z., Skwarcz J.: Comparison of technology and laser properties of epitaxially grown 1.06 μm and eye safe microchip laser, *Proceedings SPIE*, 5958 (2005) 5958E1-5958E8
- [10] Sarnecki J.: Otrzymywanie epitaksjalnych warstw granatów dla techniki laserowej, Rozprawa doktorska, ITME 2005
- [11] Kalisky Y., Labbe C., Waichman K., Kravchik L., Rachum U., Deng P., Xu J., Dong J., Chen W.: Passively Q-switched diode-pumped Yb:YAG laser using Cr^{4+} -doped garnets, *Opt. Mat.* 19 (2002) 403-413
- [12] Dong J.: Numerical modelling of CW-pumped repetitively passively Q-switched Yb:YAG lasers with Cr:YAG as saturable absorber, *Opt. Comm.*, 226 (2003) 337-344
- [13] Dong J., Shirakawa A., Huang S., Feng Y., Takaichi K., Musha M., Ueda K., Kaminskii A.A.: Stable laser-diode pumped microchip sub-nanosecond Cr,Yb:YAG self-Q-switched laser, *Laser Phys. Lett.*, 2 (2005) 387-391
- [14] Spühler G.J., Paschotta R., Kullberg M.P., Graf M., Moser M., Mix E., Huber G., Harder C., Keller U.: A passively Q-switched Yb:YAG microchip laser, *App. Phys. B* 72 (2001) 285-287
- [15] Dong J., Shirakawa A., Takaichi K., Ueda K., Yagui H., Yanagitani T. and Kaminskii A.A., All-ceramic passively Q-switched Yb:YAG/ Cr^{4+} :YAG microchip laser, *Electronics Letters*, 42 (2006) 1154-1156
- [16] Zayhowski J.J. and Wilson A.L Jr.: Pump-inducend bleaching of the saturable absorber in short-pulse Nd:YAG/ Cr^{4+} :YAG passively Q-switched microchip laser, *IEEE J. Quant. Elect.*, 39 (2003), 1588-1593
- [17] Weber M.J.: Handbook of lasers, CRC Press LLC 2001
- [18] Sarnecki J., Malinowski M., Skwarcz J., Jabłoński R., Mazur K., Litwin D., Sass J.: Liquid phase epitaxial growth and characterization of Nd:YAG/YAG structures for thin film lasers, *Proceedings SPIE* 4237 (2000) 5-11
- [19] Sarnecki J.: Wzrost z fazy ciekłej i charakteryzacja laserowych struktur falowodowych Nd:YAG/YAG, *Materiały Elektroniczne*, 30 (2002) 5-19
- [20] Jabłoński R., Sarnecki J., Mazur K., Sass J., Skwarcz J.: ESR and X-ray diffraction measurements of Nd substituted yttrium aluminum garnet films, *J.Alloys Comp.*, 300-301 (2000) 316-321
- [21] Xu X., Zhao Z., Xu J., Deng P.: Distribution of ytterbium in Yb:YAG crystals and lattice parameters of crystals, *J. Cryst. Growth*, 255 (2003) 338-341
- [22] Shannon R. D. and Prewitt C. T.: Effective Ionic Radii in Oxides and Fluorides, *Acta Cryst. B*25 (1969) 925-946

- [23] Frantz L.M. and Nodvik J.S.: Theory of pulse propagation in a laser amplifier, *J. Appl. Physics*, 34, 8 (1963) 2346-2349
- [24] Avizonis P. V. and Grotbeck R. L.: Experimental and theoretical ruby laser amplifier dynamics, *J. Appl. Physics*, 37 (1966) 687- 693

SUMMARY

LIQUID PHASE EPITAXY GROWTH OF Cr,Mg:YAG/Yb:YAG MICROLASER STRUCTURES

Liquid phase epitaxy from high temperature solution was used to grow Cr,Mg:YAG/Yb:YAG structures in order to prepare suitable material for diode-pumped passively Q-switched microchip laser. The influence of Cr₂O₃ molar ratio in the melt on the optical absorption and lattice mismatch between the film and substrate was determined. According to spectroscopic and transmission saturation measurements we concluded that the Cr,Mg:YAG layers could be used as a saturable absorber for microlaser operating near 1 μm.