维普资讯 http://www.cqvip.com

第 50 卷 第 2 期 2001 年 2 月
1000-3290/2001/50(02)/0335-06

物 理 学 报
ACTA PHYSICA SINICA

Vol. 50, No. 2, February, 2001
©2001 Chin. Phys. Soc.

LD 抽运 $Nd:YVO_4$ 晶体中的上转换及其影响*

冯 衍[1)2)] 宋 峰[1)] 赵丽娟[1)] 张潮波[1)] 郭红沧[1)] 张光寅[1)]

[1)](南开大学物理学院光子学中心,天津 300071)

[2)](中国科学院物理研究所,北京 100080)

(2000 年 6 月 1 日收到;2000 年 9 月 25 日收到修改稿)

对激光二极管抽运下 $Nd:YVO_4$ 晶体中的上转换发光做了测量与分析,发现对应 $^4G_{7/2}$ 能级向下跃迁的上转换发光的主导机制为能量传递上转换.接着,对上转换对 LD 抽运 $Nd:YVO_4$ 激光器运转的影响进行了理论分析,并特别讨论了上转换对热效应的影响.

关键词:上转换,固体激光器,热效应

PACC:7855,4255

1 引 言

LD 抽运的固体激光器引起广泛的兴趣,因为它集半导体激光器和固体激光器的优点于一身,又弥补了各自的不足.作为固体激光器抽运的 LD,可以通过改变掺杂组分和控制温度使输出波长与介质吸收谱匹配.再加上光束截面半径很小,一般在介质里形成很高的激发能密度.这产生一些新的问题,特别是在高功率的激光器里,热透镜效应成为影响稳定运转的重要因素[1].当抽运功率从 0 调到几十瓦,介质的热焦距从无穷大变化至几个厘米的量级[2].所以寻找特殊的固体激光腔结构,能在热透镜大幅度变化情况下单模稳定运行,具有重要意义[3,4].

目前,有关各种激光晶体中热产生的机制、热透镜大小的理论计算及热透镜大小的实验测定的研究报道很多[1,2,5—10].而上转换过程对热效应的影响是本文的兴趣所在.实际上,由于上转换过程是非线性的,在高抽运功率情况下,它的作用尤其重要.它不仅是热产生机制的一种,也通过消耗激光上能级布居,直接影响激光运转.在 LD 抽运 $Nd:YVO_4$ 固体激光器的实验中,肉眼就能看见抽运光斑处的黄色上转换发光,特别是无激光输出时.根据文献[7]及我们所知,对 $Nd:YVO_4$ 晶体的上转换过程的研究尚未见报道.

2 上转换发光测量实验装置

掺钕钒酸钇($Nd:YVO_4$)是四方晶体,属锆英石结构,单轴晶系.因为 Nd 离子在晶体中所处位置具有低的点群对称性,所以 4f 组态内的电偶极跃迁振子强度大.所用样品是一 3 mm×3 mm×1 mm 薄片 Nd^{3+} 掺杂浓度为 1 mol% 由山东大学提供.两个 3 mm×3 mm 平面抛光,按一般激光实验的要求,a 轴切割.我们的实验没有考虑偏振.用一个约 800 nm 的二极管激光代替氙灯,在 SPEX FLUOROLOG-2 Model F111AI 荧光光谱仪上进行上转换发光测量.半导体激光控温在 10℃.变换各种光入射、荧光收集方式,在垂直抛光面入射、侧面收集荧光时得到最强的信号.这可能是因为此时激光的中心波长不在 $Nd:YVO_4$ 的最强吸收峰 808.7 nm,因此样品对激光的吸收比较弱,所以表面探测时荧光信号很弱.而垂直入射,侧面收集时,因为收集的是对激光经过样品整个路径上的发射的积分,所以尽管侧面并没有抛光,还是这种方式信号强一些.光束打在离探测面小于 0.5 mm 的地方.所有的实验都在室温下进行.

3 上转换发光实验结果与分析

图 1 是测得的典型谱图.上一个曲线与下一个

* 天津市自然科学基金重点项目(批准号:99380111)及天津市光电子联合科学研究中心资助课题.

维普资讯 http://www.cqvip.com

曲线对应的激光功率之比为 2.3. 600.5 nm 和 609 nm 峰就是在二极管激光抽运的 Nd:YVO_4 激光器实验中通常肉眼就能观测到的黄色发光，对应$^4G_{7/2}$至$^4I_{11/2}$的跃迁. 我们测量了它的强度随入射激光功率的变化，见图 2，在双对数坐标下，是一斜率约为 1.92 的直线. 所以它是一个双光子过程. 532.5 nm 和 522 nm 发光对应$^4G_{7/2}$至$^4I_{9/2}$的跃迁. 而在 513 nm 处的峰(箭头所指)来源未明. 我们把样品去掉，而换上一白纸片，并在 LD 与样品之间加上滤色片(HB750：波长 750 nm 以下的光滤掉)，依旧能测得这个峰，所以与样品和光源无关. 而且调节激光电源

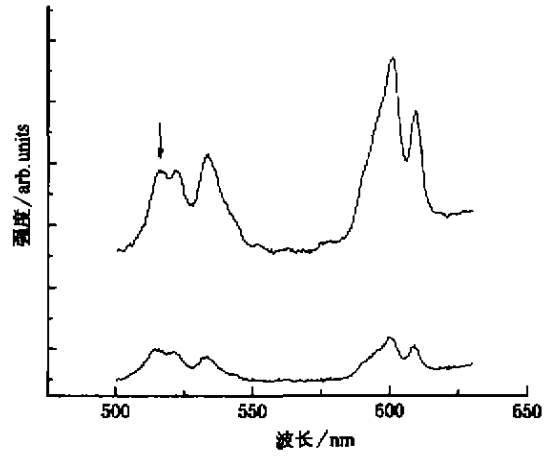


图 1 测量得到的典型谱图(上下两个曲线对应的激光功率之比为 2.3. 其中 600 nm 左右的发光对应$^4G_{7/2}\rightarrow{}^4I_{11/2}$跃迁；530 nm 左右的发光对应$^4G_{7/2}\rightarrow{}^4I_{9/2}$跃迁. 而箭头所指地方的峰(513 nm)与样品无关. 注意它与其他峰位相对强度的变化，可知它的来源不同)

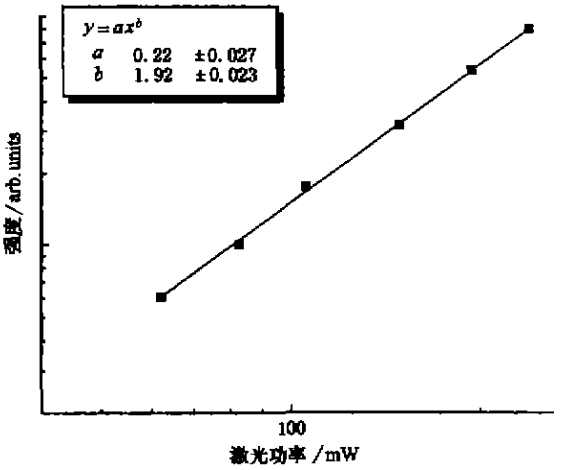


图 2 600 nm 处发光随入射激光功率的变化(在双对数坐标下可很好地拟合为一直线，斜率约为 1.92)

电流时，它线性变化. 从两条曲线中，它与其他峰位相对强度的变化，可以看出与其他峰来源不同. 测量 532.5 nm 峰高随入射激光功率的变化，也近似为平方关系.

这些上转换发光都是由$^4G_{7/2}$能级往下的跃迁. $^4G_{7/2}$能级的激发机制有两种可能性：1)激发态吸收. 抽运光激发 Nd^{3+} 离子至$^4F_{5/2}$能级后，迅速无辐射弛豫至$^4F_{3/2}$能级($^4F_{5/2}$能级的寿命只有 $\sim 10^{-10}$ s[11])，进一步的吸收把 Nd 离子激发到$^2D_{5/2}$能级，然后无辐射弛豫至$^4G_{7/2}$；2)能量传递上转换. 两个处在亚稳态$^4F_{3/2}$能级的离子，其中一个跃迁至下能级而把能量无辐射地传递给另一个离子，把它激发至$^4G_{7/2}$或以上的能级. 图 3 中给出了示意图，其中能级结构是根据 Kaminskii 的数据画的[12].

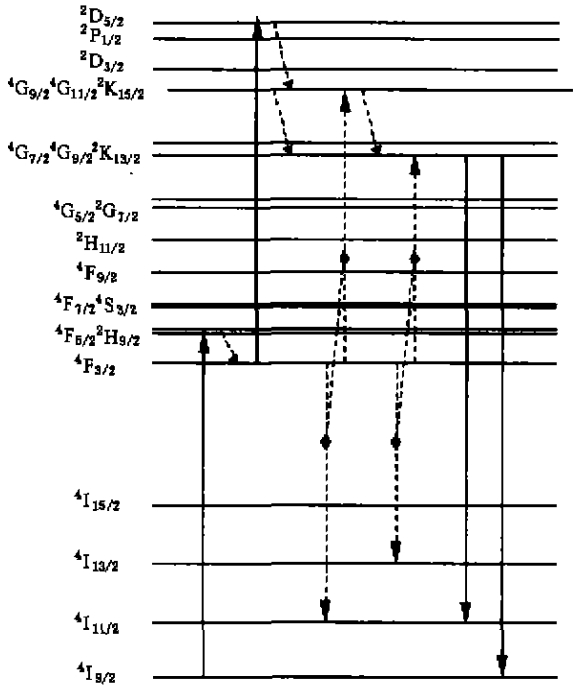


图 3 激发$^4F_{5/2}$能级时，Nd:YVO_4 晶体内的上转换过程示意图(虚线表示无辐射过程，虚线连接的两个虚箭头表示可能的能量传递过程. 结果表明，能量传递上转换是主导机制)

这两种可能性一般是共存的，而需要考虑的问题是：哪一个是主导的机制？通过测量上转换发光激发谱，可以很直接地判明能量传递上转换是否是主导机制. 如果它是的话，激发谱的峰结构应与$^4F_{5/2}$能级的吸收谱一致.

用相干公司出的 FAP-system 16W 半导体激光作抽运，通过调节激光工作温度，测量了 600.5 nm

维普资讯 http://www.cqvip.com

上转换发光的激光谱.温度可调范围为 5—35℃.从随仪器来的测试报告知,20℃ 时激光中心波长在 807.2 nm.再通过波长随温度系数的典型值 0.28 nm/℃,标定了波长值.测量了激光输出功率随温度的变化,来校正激发谱,发现激光功率随温度升高线性降低.结果见图 4.有明显的峰形,重心在 809 nm 左右.但谱峰很宽,峰位值也偏离 808.7 nm,相信这是由激光的线宽(<6 nm)和其他一些误差因素引起的,比如,测试报告上的波长值与测量时激光电流有关.一般测试时激光功率调到最大值(这里是 16W),而相同控温条件下,功率越大波长越大.另外从能级位置计算,800—810 nm 范围内也不存在从 $^4F_{3/2}$ 到上能级的共振激发态吸收的可能性.所以可以确定,$^4G_{7/2}$ 能级的抽运机制主要是能量传递上转换.

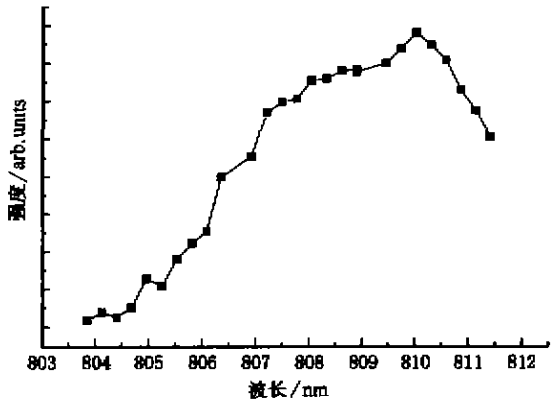


图 4　通过温度调节 FAP system 16W 半导体激光输出波长测得的 600.5 nm 上转换发光的激发谱

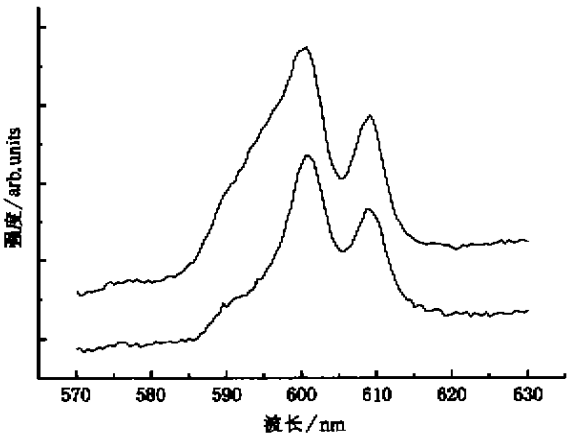


图 5　抽运光束打在样品中心(下谱)与打在靠近荧光收集面边缘时(上谱)600 nm 处上转换发光谱的比较,可明显地看出自吸收的影响

挪动样品,使得激光束打在样品中间位置,再进行测量.图 5 给出两种情况下 600 nm 处发光谱的比较.很明显地 600 nm 峰的左边侧减小许多,这暗示自吸收的影响.发光又被样品自身吸收.所以我们测得的上转换发光峰位与实际值可能会有偏差,对于 600.5 nm 的峰来说,实际波长值可能会小一些.把两个谱图相减,595 nm 处有一峰,对应 $^4G_{5/2}$ 能级.

4　上转换对 Nd:YVO_4 激光器运转及热透镜效应的影响

一般的研究,把激光介质简化成四能级系统或三能级系统,考虑它与腔内光场的互作用.而实际上,并没那么简单,特别是稀土掺杂的固体介质,它们的能级结构很复杂,许多能级间可能通过光场和静电磁场互相作用.在高功率运转时,通过对激光上能级布居数的消减,通过热效应,其他能级的影响就显露出来.因为上转换过程的存在,甚至在抽运激发的能级以上的能级也参与进来.

4.1　上转换对激光运转影响的理论分析

对于二级管抽运 Nd:YVO_4 激光器,考虑纵向抽运、基模运转的理想四能级系统,其速率方程可写为[13]

$$\frac{\mathrm{d}\Delta N(x,y,z)}{\mathrm{d}t} = R(x,y,z) - \frac{\Delta N(x,y,z)}{\tau_f} - \frac{c}{n}\Delta N(x,y,z)\sigma S(x,y,z),$$

$$\frac{\mathrm{d}S(x,y,z)}{\mathrm{d}t} = \frac{c}{n}\sigma\iiint \Delta N(x,y,z)S(x,y,z)\cdot \mathrm{d}V - \frac{c\delta}{2L}S,$$

其中,$\Delta N(x,y,z)$ 为反转粒子数密度;$R(x,y,z)$ 为抽运速率密度;$S(x,y,z)$ 为腔内光子数密度;S 为腔内光子数;τ_f 为增益介质上能级的荧光寿命;σ 为受激发射截面;δ 为腔内的往返损耗,包括输出、散射及吸收等;L 为谐振腔长度;n 为增益介质的折射率;c 为真空中的光速.

考虑进上转换过程,如果是能量传递上转换情况,第一式可写为

$$\frac{\mathrm{d}\Delta(x,y,z)}{\mathrm{d}t} = R(x,y,z) - \frac{\Delta N(x,y,z)}{\tau_f} - \frac{c}{n}\Delta N(x,y,z)\sigma S(x,y,z) - \alpha\Delta N^2(x,y,z),$$

维普资讯 http://www.cqvip.com

式中 α 是能量传递上转换概率.对于激发态吸收情况,同样的考虑,可得第一式:

$$\frac{\mathrm{d}\Delta N(x,y,z)}{\mathrm{d}t} = R(x,y,z) - \frac{\Delta N(x,y,z)}{\tau_f} - \frac{c}{n}\Delta N(x,y,z)\sigma S(x,y,z) - \frac{c}{n}\Delta N(x,y,z)\beta R(x,y,z),$$

式中 β 为激发态吸收截面.定义归一化的抽运速率密度 $r_p(x,y,z)$ 和腔内光子数密度 $s_0(x,y,z)$:

$$R(x,y,z) = Rr_p(x,y,z),$$

对增益介质积分

$$\iiint r_p(x,y,z)\mathrm{d}V = 1,$$

$$S(x,y,z) = Ss_0(x,y,z),$$

对整个谐振腔积分

$$\iiint s_0(x,y,z)\mathrm{d}V = 1$$

并定义两个交叠积分:

$$J = \iiint r_p(x,y,z)s_0(x,y,z)\mathrm{d}V,$$

$$J' = \iiint r_p^2(x,y,z)s_0(x,y,z)\mathrm{d}V.$$

一级近似下可求得

$$R_{th} = \frac{n\delta}{2L\sigma\tau_f J}\left(1 + \frac{\alpha J' n\delta\tau_f}{L\sigma J^2}\right)\text{(能量传递情况)},$$

$$R_{th} = \frac{n\delta}{2L\sigma\tau_f J}\left(1 + \frac{c\beta J'\delta}{L\sigma J^2}\right)\text{(激发态吸收情况)}.$$

如所料的,上转换过程使激光阈值升高.

近阈值条件下,一级近似,可推得

$$S = \left(\frac{n^2\delta}{2c\sigma^2\tau_f^2 LJ'' R_{th}^2} - \frac{n\alpha J'}{c\sigma J''\tau_f}\right)\cdot(R - R_{th}) \quad \text{(能量传递情况)},$$

$$S = \left(\frac{n^2\delta}{2c\sigma^2\tau_f^2 LJ'' R_{th}^2} - \frac{\beta J'}{\sigma J''}\right)\cdot(R - R_{th}) \quad \text{(激发态吸收情况)},$$

其中 $J'' = \iiint r_p(x,y,z)s_0^2(x,y,z)\mathrm{d}V$. 由上式,明显地看出,上转换过程也使激光的输出功率和斜效率降低.

通过上述的推导,我们发现,能量传递和激发态吸收两种上转换机制,都对激光运转有削弱作用.它们的不同之处在于前一种情况对激光上能级荧光寿命的依赖更大.

4.2 上转换对热透镜效应的影响

一部分被吸收的抽运光能量通过无辐射过程以热的形式耗散掉,这既降低了激光的效率,又造成热透镜效应,事实上改变了腔参数,使得二极管抽运的固体激光器在大功率变化范围内的稳定运转成为难题.一般来说,抽运光光子能量与激光光子能量之差(量子缺陷)是最基本的热产生源[1].对于 Nd 激光材料,有(1064 - 808)/1064 = 24% 的光能因这一过程变成热.除此之外,交叉弛豫猝灭($^4F_{3/2}$, $^4I_{9/2}\rightarrow 2\,^4I_{15/2}$,接着无辐射弛豫至基态),浓度猝灭,激光的激发态吸收,以及上转换等,也是重要的热产生因素[1,7].

上转换与其他过程的不同点在于,其他过程的速率均正比于激光上能级的粒子数,也就大约正比于抽运光功率;而上转换过程是非线性的,对于两阶过程(下文均以两阶过程为例),能量传递上转换速率约正比于激光上能级粒子数的平方,激发态吸收速率正比于激光上能级粒子数与抽运光功率的乘积.所以在大功率运转时,上转换的影响会越来越显著.

一些文献中的数据显示了上转换的影响,最明显的是文献[7].对一 1 mol% 掺杂的 Nd:YVO_4 晶体,在无激光输出时测得的热焦度与吸收的能量的关系曲线是非线性的,往上翘.而热焦度应该正比于在样品上沉积的热[8].这说明晶体中沉积的热并不正比于吸收的能量.考虑各种热产生机制,只有上转换才能造成这种非线性.

上一节我们测量及分析了约 808 nmLD 抽运时 Nd:YVO_4 里的上转换过程.离子通过能量传递被激发至 $^4G_{7/2}$ 等上能级后,一部分发射荧光,而大部分通过无辐射过程回到 $^4F_{3/2}$ 能级.这是因为 Nd^{3+} 离子的上能级很密集.激光上能级的常规荧光谱实验也发现,从这些能级的发射很弱,而对应 $^4F_{3/2}$ 能级的发射很强.在这些过程中,放出大量的热.在这一循环后,因为两个处在 $^4F_{3/2}$ 能级的离子只剩下近似一个,而辐射掉的能量很小,所以可以估算,参与上转换的激发态能量约二分之一转化为热.

上转换对热透镜效应的影响不仅表现在更多的热量的产生上.另外,由于上转换概率约与抽运光功率密度的平方成正比(其他的热产生机制是一次方的),所以在抽运光的光束截面内,上转换加剧了热不均匀性,使热透镜效应增大.

在我们实验室,用 808 nmLD 抽运 Nd:YVO_4 的激光实验中,肉眼就观察到了典型的 Nd^{3+} 离子的黄色的上转换荧光.特别是无激光输出时,发光很

维普资讯 http://www.cqvip.com

强,而有激光输出时,弱许多.这是很容易理解的.有激光输出时,由于腔内的粒子数平衡,激光上能级的粒子数减少,使得上转换概率变小.所以说,在调 Q 运转的激光里,上转换的影响尤其强烈.

[1] T. Y Fan *IEEE J. QE.*, **29**(1993), 1457.

[2] B. Neuenschwander, R. Weber, H. Weber, *IEEE J. QE.*, **31** (1995), 1082.

[3] G. Y. Zhang, *Acta Physica Sinica*, **40**(1991), 1065(in Chinese) [张光寅,物理学报,**40**(1991),1065].

[4] G. Y. Zhang, F. Song, Y. Feng, *Acta Physica Sinica*, **49**(2000) (in Chinese)[张光寅、宋峰、冯衍,物理学报,**49**(2000)].

[5] B. Comaskey, B. D. Moran, G. F. Albrecht, R. J. Beach, *IEEE J. QE.*, **31**(1995), 1261.

[6] M. E. Innocenzi, H. T. Yura, C. L. Fincher, R. A. Fields, *Appl. Phys. Lett.*, **56**(1990), 1831.

[7] J. L. Blows, T. Omatsu, J. Dawes, H. Pask, M. Tateda, *IEEE Photon Tech. Lett.*, **10**(1998), 177.

[8] J. L. Blows, J. Dawes, T. Omatsu, *J. Appl. Phys.*, **83**(1998), 2901

[9] B. Ozygus, J. Erhard, *Appl. Phys. Lett.*, **67**(1995), 1361.

[10] B. Ozygus, Q. Zhang, *Appl. Phys. Lett.*, **71**(1997), 2590.

[11] J. L. He, Doctoral Dissertation, 1998[何京良,博士学位论文,"大功率全固态 Nd:YVO_4 激光器",1998 年].

[12] A. A. Kaminskii, Laser Crystal, Translated by H. F. Ivey (Springer-Verlag, 1981), p. 130.

[13] A. J. Alfrey, *IEEE J. QE.*, **25**(1989), 760.

维普资讯 http://www.cqvip.com

UPCONVERSION IN Nd:YVO_4 CRYSTAL UNDER LD PUMP AND ITS INFLUENCE*

FENG YAN[1][2] SONG FENG[1] ZHAO LI-JUAN[1] ZHANG CHAO-BO[1] GUO HONG-CANG[1] ZHANG GUANG-YIN[1]

[1] (*Photonics Center, Nankai University, Tianjin 300071, China*)

[2] (*Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100080, China*)

(Received 1 July 2000; revised manuscript received 25 September 2000)

ABSTRACT

Upconversion fluorescence in Nd:YVO_4 crystal under a laser diode (LD) pump was investigated. It is proved that the predominant mechanism for excitation of $^4G_{7/2}$ level is an energy transfer upconversion. Then, a theoretical approach to upconversion effect on LD pumped Nd:YVO_4 laser is given. In addition, the role of upconversion in thermal effect is discussed in detail.

Keywords: Upconversion, Solid state laser, Thermal effect

PACC: 7855, 4255

* Project supported by the Natural Science Foundation of Tianjin, China (Grant No. 99380111)