

Yb:YAG晶体的可见荧光及其机理研究^{* *}史全林, 杜荣建¹, 田乃良^{1 *}

(长春理工大学高功率半导体激光国家重点实验室, 吉林 长春 130022; 1. 天津理工学院光电信息与电子工程系, 天津 300191)

摘要:在半导体 InGaAs 激光激发 Yb:YAG 晶体的荧光中, 有一组位于 460 ~ 494 nm 的可见荧光。分析了这些可见荧光产生的原因, 指出它不同于红外荧光的发光机理, 是一种离子对的合作吸收和发射。两个离子耦合成的离子对产生的可见荧光, 其强度随激发功率的平方变化。提高晶体中离子对的密度, 可见荧光可以得到增强。

关键词: Yb:YAG 晶体; 可见荧光; 离子对; 机理

中图分类号: O431.2 **文献标识码:** A **文章编号:** 1005-0086(2003)08-0889-04

Study of Visible Fluorescence and the Mechanism in Yb:YAG Crystal

SHI Quan-lin, DU Rong-jian¹, TIAN Nai-liang^{1 *}

(High Power Semiconductor Laser National Key. Lab., Changchun University of Science and Technology, Changchun 130022, China; 1. Department of Optoelectronics Information and Engineering, Tianjin Institute of Technology, Tianjin 300191, China)

Abstract: The series of 460 ~ 494 nm visible fluorescence of Yb:YAG crystal were excited by a semiconductor InGaAs laser. The cause of visible fluorescence were analyzed. The mechanism of visible fluorescent is different to infrared fluorescent, it is cooperative absorption and emission of ion pairs. The emission intensities change with excitation power square. By increasing the density of ion pairs in the crystal. More strong visible fluorescence can be obtained.

Key words: Yb:YAG crystal; visible fluorescence; ion pairs; mechanism

1 引言

近年来, 因 Yb:YAG 晶体具有较高的上能级寿命、较宽的吸收带、优良的机械热力学性能大的晶场分裂能和可进行高浓度掺杂而受到广泛重视。半导体 InGaAs 激光器作为激发源, 延长了储能时间, 与 Yb:YAG 晶体的吸收峰耦合也较好, 使 Yb:YAG 晶体得到更快的发展。在 YAG 晶体里 Yb³⁺ 仅有 1 个激发主态, 位于基态之上约 10^4 cm^{-1} 的能级位置。其独特的能级结构, 使 Yb:YAG 晶体没有激发态吸收, 只有较低的量子缺欠和较小的热噪音。在很多 Yb:YAG 晶体光谱的研究中, 注意比较多的还是 1030 nm 的红外荧光谱线。

而可见荧光谱线, 它是和红外荧光谱同时出现

的, 但有着完全不同的发光机理。这一可见荧光谱线^[1]有别于 YAG 晶体里 Yb 与其它稀土元素共掺的各种能量转移效应, 也有别于 YAG 晶体里其它稀土元素杂质的荧光。这一可见荧光谱线, 荧光强度高谱线宽度窄, 是很有研究价值的荧光谱线。研究这一可见荧光谱线的发光机理, 以及与红外荧光谱线发光机理的区别, 离子对的构成及其运动、离子对在这些可见荧光谱中的作用等, 对开发光学双稳态、光快速计算及可见光激光器件都是非常有意义的^[2,3]。

本文分析了这一可见荧光产生的原因, 指出它不同于红外荧光的发光机理, 是一种离子对的合作吸收和发射。研究了可见荧光与红外荧光的强度随激发功率的变化规律, 并对提高可见荧光的强度提出了建议。

* 收稿日期: 2003-04-04 修订日期: 2003-06-09

* E-mail: tiannail@163.com

2 实验条件和结果

激发光源用 1 W 半导体 InGaAs 激光器^[1],装在水冷系统上。发光区 100 μm ×1 μm 峰值波长 938.9 nm,经焦距 25 mm 的平凸柱透镜聚成 1 mm 的光斑于晶体上。室温下输出功率从 0~1 W 连续可调。所用 Yb:YAG 晶体, Yb 掺杂浓度为 6 at %,晶体切成 10 mm ×10 mm ×2 mm,通光面抛光。全反射镜的反射率为 99 %,聚光透镜为焦距 160 mm 双凸透镜。激发装置的示意图如图 1 所示。

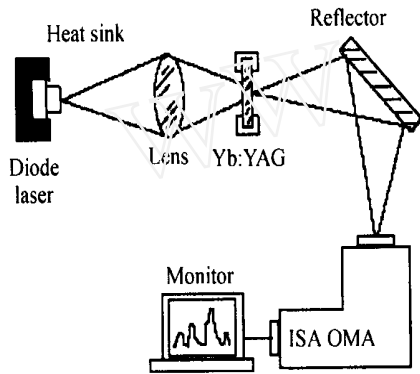


图 1 激发装置示意图
Fig. 1 Schematic of emission

吸收光谱的测量用日本 shimadzu 岛津 uv-vis-nr 双光路分光光度计,测量的吸收谱如图 2 所示。荧光光谱的测量用美国 ISA OMA 系统, CCD 探测接收,狭缝宽度 0.001 mm,曝光时间 0.01 s。得到的可见荧光以 485.8 nm 为最强,光谱宽度为 1.35 nm 如图 3 所示。其它荧光光谱峰的位置为 460.2 nm、471.6 nm、476.7 nm、480.4 nm、491.3 nm 和 494.6 nm 等。

当改变激发光强度时,发现这些可见荧光谱线的强度,随激发光强度的平方而增加。红外荧光谱线

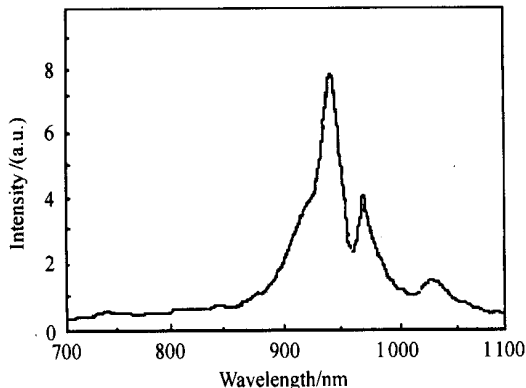


图 2 Yb:YAG晶体的吸收光谱
Fig. 2 Absorption spectra of Yb:YAG crystal

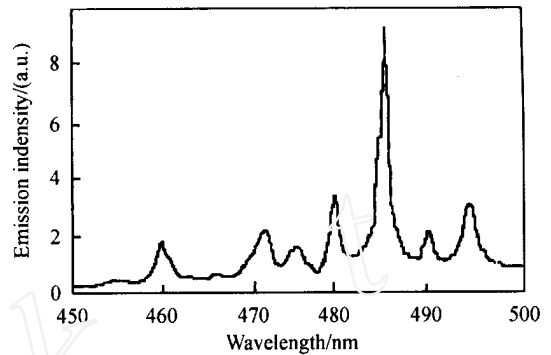


图 3 Yb:YAG晶体的荧光光谱
Fig. 3 Fluorescence spectra of Yb:YAG crystal

1045 nm 的发光强度随激发光强线性增加,如图 4 所示。可见荧光谱线的半宽度:460.2 nm 为 1.9 nm; 471.6 nm 为 1.5 nm; 476.7 nm 为 1.6 nm; 480.4 nm 为 1.1 nm; 485.8 nm 为 1.3 nm; 491.3 nm 为 1.2 nm; 494.6 nm 为 1.5 nm。所有可见光荧光谱线的半宽度都比较窄,约 1.1~1.9 nm。而稀土离子双掺或多掺的能量传递和转移的合作发光,谱线的半宽度都在 12~18 nm。

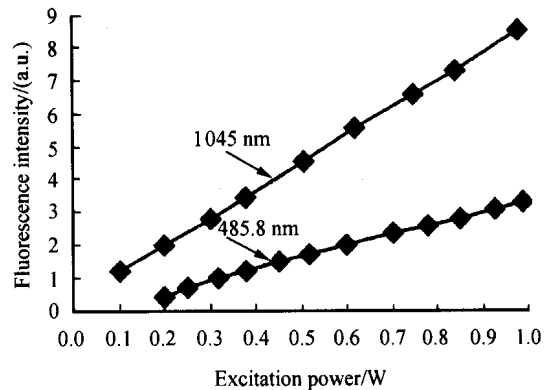


图 4 荧光光谱强度随激发光强的变化

Fig. 4 Fluorescence intensity change with excitation power

3 实验结果讨论

从图 2 可以看到, Yb³⁺ 在 940 nm、970 nm 有较强的吸收峰,这可由 Yb³⁺ 在 YAG 晶体里的能级图得到解释^[4,5]。Yb³⁺ 在 YAG 晶体里仅有 2 个斯塔克分裂能级多重态,稀土离子 Yb 在钇铝石榴石晶场里的,基态下能级 2 F_{7/2} 分裂为 4 个子能级,分别为 0, 565 cm⁻¹、612 cm⁻¹和 725 cm⁻¹,激发态的上能级 2 F_{5/2} 分裂为 3 个子能级,分别为 10 327 cm⁻¹、10 624 cm⁻¹和 10 930 cm⁻¹。从基态 Z₁ 到上能级 A₁ 正是对应 970 nm 吸收峰的位置,从基态 Z₁ 到上能级 A₂ 正是对应 940 nm 吸收峰的位置^[5,6],见图 5。

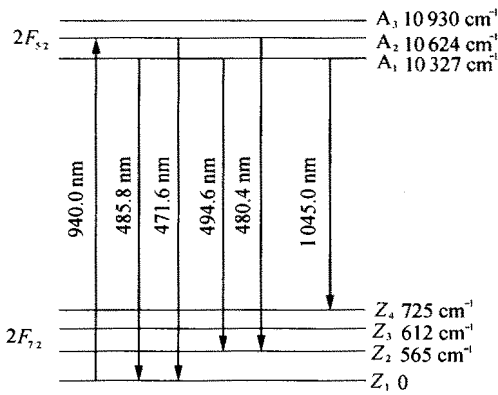


图 5 Yb:YAG 晶体里 Yb³⁺ 的能级图
Fig. 5 Energy level diagram of Yb:YAG indicating stark level separation

当 Yb³⁺ 对被 940 nm 激光激发时,从它们的 2F_{5/2} 多重激发态,不仅发出 1045 nm 近红外的荧光,而且也发射可见光的荧光。红外荧光线是 Yb³⁺ 当吸收发出的 940 nm 激光后,从基态 2F_{7/2} 的 Z₁ 能级跃迁到激发态 2F_{5/2} 的 A₂ 能级 10 624 cm⁻¹,通过无辐射跃迁到 A₁ 能级 10 327 cm⁻¹,再跃迁回到基态 2F_{7/2} 的 Z₄ 能级 785 cm⁻¹ 的发光。当由 2 个 Yb³⁺ 形成离子对时,则是耦合状态的 2 个激发态 (2F_{5/2}, 2F_{5/2}) 的 10 327 cm⁻¹ 能级跃迁回到基态 Z₁ 发出的可见荧光为 485.8 nm。同样道理,对应不同的能级跃迁还有其它可见荧光。

这种合作上转换的发光强度,取决于 Yb³⁺ 对的耦合强度和离子对的数量,离子对的耦合强度,又是离子距离的极强函数。高的 Yb³⁺ 掺杂浓度,容易得到更多的离子对,但有害的 Yb³⁺ 次晶格的能量转移,也随之升高^[7]。

可见光的这些荧光,是一种 Yb³⁺ 特殊状态的发光类型,受 Yb³⁺ 的能量转移过程影响很大。它是与离子间相距很小的离子对的性质有关,这些离子的行为是一起吸收,共同发射。还由于紧密联系的离子相互作用,使得激发态和基态的能级有微小变化。由于 485.8 nm 荧光的合作吸收和发射,激发态出现在用波数表示的能级位置约 20 585 cm⁻¹。Yb³⁺ 合作吸收光谱是与卷积 $f(\lambda)f(E-\lambda)d\lambda$ 符合,这里 f(λ) 是单个离子吸收光谱。Yb³⁺ 合作吸收和发射部分的覆盖了无用杂质的吸收和发射。观测到的以 485.8 nm 为代表的可见荧光是离子对的最好证据^[8]。

图 3 的 485.8 nm 等可见荧光正是 Yb³⁺ 对的 2 个 (2F_{7/2}, 2F_{7/2}) 基态,同时吸收了 2 个 940.0 nm 的

激发光子,跃迁到 (2F_{5/2}, 2F_{5/2}) 激发态的 10 624 cm⁻¹ 能级,然后弛豫到 10 327 cm⁻¹ 位置,再从这里跃迁回到基态。其它几个可见谱峰与 485.8 nm 谱线一样,都是双光子效应。因此可以断定也是离子对发光的结果^[9,10]。若是激发态 (2F_{5/2}, 2F_{5/2}) 的 10 327 cm⁻¹ 位置,跃迁回到基态的 Z₂ 能级,则发出 494.6 nm 的荧光。不过此时的 Z₂ 能级约为 350 cm⁻¹ 并不是 565 cm⁻¹ 的位置。从激发态的 10 624 cm⁻¹ 能级,离子对跃迁回到基态 Z₁ 能级,发出 471.5 nm 的荧光。基态 2F_{7/2} 的 Z 能级的进一步分开,是由 Yb³⁺ 对本身的相互作用引起的。Yb³⁺ 对本身的相互作用,也造成 2F_{5/2} 激发态多重能级 A 的微小变化。

从图 4 的 485.8 nm 荧光的相对强度,随半导体 940 nm 激发光强平方的变化,可知这是一种双光子效应,它表明离子对的存在。从图 4 也可看出,红外荧光的相对强度,是随 InGaAs 激光器 940.0 nm 激发光强的 1 次方线性变化。从图 3 还可以看出,这些离子对的可见荧光,都具有很窄的谱线宽度。它不同于 YAG 晶体的稀土离子双掺或多掺的能量传递和转移的合作发光,这些可见荧光都有较宽的谱线,一般在 12~18 nm。而 Yb³⁺ 对耦合的发光,平均只有 1.0~1.5 nm 的谱线宽度。增大离子对在晶体中的浓度,可见荧光谱线强度可得到增加。

4 结 论

在半导体 InGaAs 激光器 940 nm 激光的激发下,Yb:YAG 晶体发出一组谱线很窄的可见荧光,这组可见荧光具有 1.0~1.5 nm 的谱线宽度,荧光强度随半导体 940.0 nm 激发光强平方的增大而增加,初步认为可见荧光是由离子对效应产生的。这种离子对之间的相互作用,可引起基态 2F_{7/2} 和激发态 2F_{5/2} 的子能级进一步分开。

参 考 文 献:

[1] Nailiang TIAN, Xingde ZHANG, Baoxun DU, et al. Blue luminescence of 940 nm laser diode pumped Yb:YAG crystal[J]. Chinese Journal of Luminescence 2000, 21: 282. (in Chinese)
[2] Ph Goldner, F Pelle, D Meichenin, et al. Cooperative luminescence in ytterbium doped C_sC₆B₁₃[J]. Journal of Luminescence 1997, 71: 137-150.
[3] M P Hehlen, A Kudicher, S C Rand, et al. Site-selective, intrinsically bistable luminescence of Yb³⁺ ion pairs in

- $C_5C_4B_{13}$ [J]. Phys. Rev. Lett., 1999, **82**:3050-3053.
- [4] WAN Chunming, WANG Hui, Qu Yi. 940 nm aluminum-free two-quantum-well array semiconductor laser [J]. Chinese Journal of Lasers, 2002, **A29**:1061-1063. (in Chinese)
- [5] H W Bruesselbach, David Sumida, R A Reedeer, et al. Low-heat high-power scaling using InGaAs diode pumped Yb: YAG laser [J]. Quantum Electronics, 1997, **3**: 105-115.
- [6] WU Haisheng, YAN Ping, GONG Mali, et al. M^2 1.14 diode-pumped Yb: YAG microchip laser [J]. Chinese Journal of Lasers, 2002, **A29**:961-964. (in Chinese)
- [7] Setsuhisa Tanabe, Taku Kouda, Teiichi Hanada. Energy transfer and 1.3 μm emission in Pr-Yb co-doped tellurite [J]. Journal of Non-crystal Solids, 2000, **274**:55-61.
- [8] A Kudicher, M P Hehlen, C M Florea, et al. Intrinsic bistability of luminescence and stimulated emission in Yb and Tm-doped glass [J]. Physical Review Letters, 2000, **84**: 1898-1901.
- [9] G S Maciel, A Biswas, P N Prasad. Infrared-to-visible Eu^{3+} energy up-conversion due to cooperative energy transfer from and Yb^{3+} ion pair in a sol-gel processed multi-component silica glass [J]. Optics Communications, 2000, **178**:65-69.
- [10] G S Maciel, A Biswas, R Kapoor, et al. Blue cooperative up-conversion in Yb^{3+} -doped multi-component sol-gel processed silica glass for three-dimensional display [J]. Applied Physics Letters, 2000, **76**:1978-1981.

作者简介:

史全林 (1954 -), 男, 高级工程师, 高功率半导体激光国家重点实验室副主任, 主要从事大功率半导体激光和半导体光电子学、半导体激光激发固体激光器的研究。