

Nd: YAP 激光晶体偏振光谱的测量与分析

陈颖¹, 蔡志平^{2*}

(1. 厦门大学物理学系, 2. 厦门大学电子工程系, 福建 厦门 361005)

摘要: 从分析 Nd: YAP 和 Nd: YAG 两种激光晶体的优缺点入手, 指出前者的各向异性能够提供许多特殊的用途, 讨论了它的能级和光谱特性, 详细介绍了该晶体偏振吸收谱、偏振受激发射截面谱和荧光寿命的测量方法, 并给出了两块沿 a 轴切割的 Nd: YAP 晶体的测量结果和分析. 这些分析与测量反映了 Nd: YAP 晶体各向异性的特性优势, 将使其在固体激光器应用领域可以成为传统 Nd: YAG 晶体很有潜力的替代者.

关键词: Nd: YAP; 荧光寿命; 受激发射截面; 吸收系数

中图分类号: TN 248

文献标识码: A

文章编号: 0438-0479(2005) Supr 0338-05

掺钕铝酸钇晶体(Nd: YAlO₃ 或 Nd: YAP) 和掺钕铝石榴石晶体(Nd: Y₃Al₅O₁₂ 或 Nd: YAG) 都是用 Y₂O₃-Al₂O₃ 体系生长出来的, 并都可掺入三价稀土钕离子. 前者分子比为 1:1, 呈现钙钛矿相; 后者分子比为 3:5, 呈现石榴石相. 三价钕离子进入 YAP 晶格中, 占据了三价钇离子的位置, 这种掺杂可以避免电荷补偿效应, 使掺杂不会对晶格场的对称性造成太大损害^[1]. Nd³⁺ 的电子壳层结构是 4f³5s²5p⁶, 未满层为 4f 子层, 电子跃迁就发生在这个子层的各个不同的能级间. 因为 4f 子层不是原子的最外层, 所以它的能级受到晶格场的影响比较小, 因此 Nd: YAP 的光谱形状和 Nd: YAG 的非常类似. 但 YAP 属正交晶系, 是各向异性的, 而 YAG 属于立方晶系, 是各向同性的. 各向异性以及由此产生的自然双折射对激光器应用来说更有利, 因为沿着不同晶轴来切割, 可以获得不同的增益系数、偏振方向和受激发射截面^[1]. 这个特性可以用来定制 Nd: YAP 晶体以适应具体的应用. 同时, 像 YAP 这样具有天然双折射特性的基质材料, 对于克服热致退偏振和热透镜效应十分有利^[1]. 人们对 YAP 光学性能的了解不如 YAG 深入, 尤其是它各向异性方面的性能和参数有待更详细的测量和分析, 这对于进一步推广 YAP 晶体的应用是必要的. 本文将研究 YAP 的偏振光谱特性, 同时给出相应的测量与分析.

1 Nd³⁺ 的能级和 YAP 晶体的光轴1.1 Nd³⁺ 的能级

Nd³⁺ 4f 子层的 3 个电子能够处于不同的量子态中, 可以形成一系列的原子能级, 如图 1 所示. 基态是 ⁴I_{9/2}, 平衡态时原子基本上都集中在该能级上. 通过光泵浦, 处于基态上的 Nd³⁺ 离子可以被抽运到 ⁴F_{3/2} 以上的各个激发态中. 其中只有 ⁴F_{13/2} 能级可以提供 Nd³⁺ 一个相对较长的寿命, 大约为 180 μs, 称 ⁴F_{3/2} 为一个亚稳态. 被激发上去的电子通过无辐射弛豫跃迁到这个能级, 然后再跃迁到不同的终态, ⁴I_{15/2}、⁴I_{13/2}、⁴I_{11/2} 和 ⁴I_{9/2}, 形成发射谱中不同的发射波段, 谱线中心分别在 1.340 μm、1.079 μm 和 0.9303 μm. 称它们为发射波段是因为 Nd: YAP 晶体中的钕离子处于基质材料的晶格势场中, 根据斯塔克效应, 孤立原子能级分裂成为若干个能级, 从而形成了若干条具有一定间隔的多重谱线.

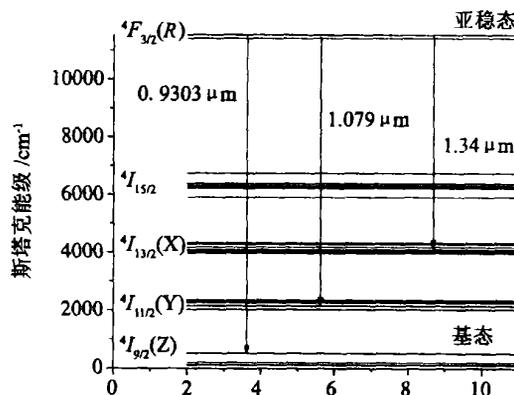


图 1 Nd: YAP 晶体的能级

Fig. 1 Energy level of Nd: YAP

收稿日期: 2005-03-05

基金项目: 国家自然科学基金(602770026, 90206039) 资助

作者简介: 陈颖(1980-), 女, 硕士研究生.

* 通讯作者: zpc@jingxian.xmu.edu.cn

1.2 YAP 晶体的光轴

YAP 是一种负双轴的正交晶系晶体, 属于 D_{2h}^{16} 空间群. 两个光轴位于 ac 平面上, 互成 70° 角, c 轴是它们的角平分线^[2], 如图 2 所示. 因此, 当电场 $E \parallel b$ 时, 偏振的吸收和增益系数都比 $E \parallel a$ 和 $E \parallel c$ 偏振的大. 但是后两者在一个发射带中拥有若干条增益相当的谱线, 可以满足人们的不同要求.

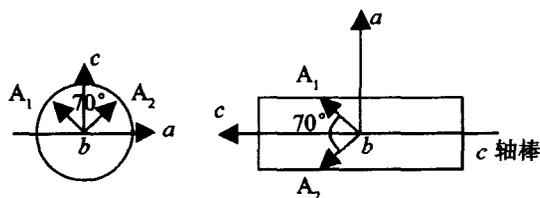


图 2 Nd:YAP 晶体的光轴

Fig. 2 Optical axes of YAP crystal

2 光谱分析

2.1 吸收谱

对于 Nd:YAG 晶体来说, 主要的吸收线出现在 808 nm 附近, 线宽大约为 0.9 nm. 而对于 Nd:YAP 晶体来说, 不同的偏振方向在 800 nm 附近存在着不同的峰值中心. 如果考虑非偏振泵浦光束的话, 总共可以获得 4~5 nm 的吸收带宽, 这个宽度要比 Nd:YAG 大很多. 所以该晶体对于泵浦源热稳定性的要求就没有那么苛刻^[2]. 如果我们用 AlGaAs 激光二极管阵列来泵浦, 780~830 nm 就是主要吸收带, 本文将在实验部分给出相应的吸收系数.

2.2 荧光光谱

2.2.1 ${}^4F_{3/2} \rightarrow {}^4I_{9/2}$ 跃迁

因为这个跃迁的终态是 ${}^4I_{9/2}$ 多重态中一个比较高的斯塔克能级, 该能级很接近基态, 难以形成粒子数反转, 所以这个跃迁的激光通常在较低的温度下获得. 此时, 在它的多重分支中, $R_1 \sim Z_5$ 分支以 ${}^4I_{9/2}$ 多重态的最高能级为终态, 该能级上面的集居数最少, 因而拥有最低阈值, 较易出光, 跃迁波长大约为 0.9303 μm , 荧光强度也不小, 特别是 c 偏振出射. 荧光强度大约是 Nd:YAG 的 3 倍, 故发射截面峰值比后者小. 已往人们的注意力主要集中在 Nd:YAP 晶体的 ${}^4F_{3/2} \rightarrow {}^4I_{11/2}$ 和 ${}^4F_{3/2} \rightarrow {}^4I_{13/2}$ 跃迁波段, 由于这两个波段拥有较大受激发射截面并且易于出光. 然而, 随着蓝色激光器越来越受到关注, 对该晶体在 ${}^4F_{3/2} \rightarrow {}^4I_{9/2}$ 跃迁波段的研究是很有必要的. Zarrabi JH 等人已利用腔内倍频技术研制成了一种输出波长为 465 nm 的小型蓝色激光器^[3].

2.2.2 ${}^4F_{3/2} \rightarrow {}^4I_{11/2}$ 跃迁

这支是 3 个主要的荧光波段中最强的一支, 因为它终态在平衡态下几乎是空的, 极易形成粒子数反转. 处于 YAP 晶体中的钕离子在这个跃迁的带宽比 YAG 中大, 而且它的荧光不是集中于一支, 而是分布在 3 支主要的谱线上, 波长分别为 1.0645 μm 、1.0725 μm 和 1.0795 μm , 所以受激发射截面就比较小. 同时 YAP 晶体中的钕离子具有比较大的平均辐射跃迁几率, 故荧光寿命较短. 这两个原因促使 Nd:YAG 在 1.064 μm 处性能优于 Nd:YAP 在 1.079 μm 处的性能, 此外, YAG 基质的热学特性比较好, 对称性也比较简单. 尽管如此, 研究者们对于 Nd:YAP 在这个波段的跃迁行为仍然是表现出了极大的兴趣. 原因是发展紫外波段 260 nm 到 280 nm 的激光光源被认为是通过大气层进行短距离通讯的一种很有前景的方法. 这种通讯系统广泛地应用于军事和民用方面. 由于该波段处于日光的盲区, 背景噪声比较小, 故只需要中等的激光光强就可以满足要求. 而且要使光源波长具备不连续的可调节性, 则可以提高系统的适应性以允许多信道和双工通讯. 因 Nd:YAP 是一种双光轴的晶体, 它的发射谱在这个跃迁波段是由 1050 nm 到 1105 nm 的几个尖锐的谱线组成, 宽度为 50 nm. 其中, 最强的一支, 位于 1079.5 nm, 为 b 偏振, 它的有效受激发射截面可以和 Nd:YAG 相比拟. 对于 a 偏振或 c 偏振的发射谱来说, 并非只有单独的一条谱线而是由一系列间隔足够大并且强度相当的谱线所组成. 这样, 这两个偏振方向尤其是 c 偏振, 就成为研究 1064~1099 nm 发光并通过倍频和四倍频技术使之过渡到 266~275 nm 紫外波段的一个十分不错的选择^[4].

2.2.3 ${}^4F_{3/2} \rightarrow {}^4I_{9/2}$ 跃迁

对于 1.3 μm 的跃迁波段来说, 虽然 Nd:YAG 在 1.32 μm 仍然拥有比 Nd:YAP 在 1.34 μm 低的阈值, 然而由于后者的受激发射截面较大, 故拥有斜率较大的特征曲线以及最大的输出功率, 因此它的性能较前者是更好的. 同时, Nd:YAP 还具备其他两个优势: 第一, 如前所述, 由于基质的各向异性结构, 它输出的是天然的偏振光, 这是一个非常重要的优势, 因为像 Nd:YAP 这样本身具有双折射特性的晶体, 光束质量不易遭受到热致退偏振的破坏; 第二, Nd:YAP 在这个跃迁波段的分支比也较其它掺钕的晶体材料大^[2]. 这样, 随着在这个波段出现了一些新的应用, 该晶体这个跃迁的性能就引起了人们的极大兴趣. 比如说在医疗方面, 它是一把准确的外科手术刀, 在光纤通信方面, 这个波长位于一个主要的传输窗口, 可以同时实现低损耗和零色散, 非常具有竞争力.

3 测量原理

3.1 吸收系数

将光强为 I_0 的光入射到长度为 l 的晶体棒时, 透射光强为 I , 则晶体棒吸收系数 α 可从下式求得:

$$\alpha = -\frac{\ln(I/I_0)}{l} \quad (1)$$

晶体吸收系数和光入射前位于基态的离子密度 N 成正比, 比例系数为吸收截面 α_a . 如公式(2):

$$\alpha = \alpha_a N \quad (2)$$

由此可以推出受激吸收截面 α_a . 在常温下光入射前位于基态的离子密度 N 其实就是掺杂的浓度.

3.2 荧光寿命

使用荧光衰减的方法测量 ${}^4F_{3/2}$ 能级的荧光寿命. 用信号发生器生成振幅为 2.5 V、频率为 2 kHz 的方波去调制 808 nm 的半导体激光器, 所产生的脉冲激光作为光源, 入射到样品. 利用了光谱仪中的稳定度测量功能, 对探测到的荧光光强进行扫描跟踪, 计算机自动记录, 绘出时间-稳定度曲线, 如图 3 所示.

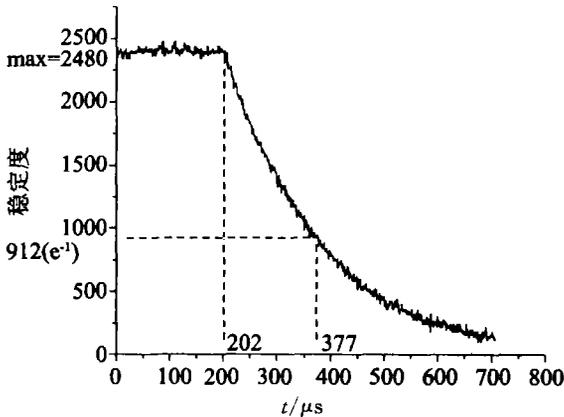


图 3 Nd:YAP 的荧光衰减实验曲线

Fig. 3 Fluorescence attenuation experiment curve of Nd:YAP

根据公式

$$I(t) = I_0 e^{-t/\tau_f} \quad (3)$$

将开始产生荧光的时刻设为 $t = 0$, 相应的荧光光强为 I_0 , 取荧光光强衰减为 I_0/e 的时间为荧光寿命 τ_f . 图 3 中 $t_0 = 202 \mu s$ 是脉冲泵浦结束时刻, 即荧光开始时刻; 光强下降为 I_0/e 的时间为 $t_e = 377 \mu s$, 观测到的荧光寿命 $\tau_f = t_0 - t_e$ 即 $175 \mu s$.

3.3 受激发射截面

受激发射截面可以通过很多方法测出, 本文选用由 Brian F. Aull 所改进的 $\beta\tau$ 的方法^[5].

电子从 $j \rightarrow i$ 能级跃迁时发出的波长为 λ , 光强为 $I_{ji}(\lambda)$, 其受激发射截面 $\sigma_{ji}(\lambda)$ 由下式给出^[5]:

$$\sigma_{ji}(\lambda) = \frac{\eta \lambda^5 \beta_{ji} I(\lambda)}{\tau_f \int N(\lambda) d\lambda F_j 8\pi n^2 c} \quad (4)$$

其中, η 是上能级的辐射量子效率, τ_f 是荧光寿命, β_{ji} 是 $i \rightarrow j$ 跃迁的荧光分支比, F_j 是被抽运上去的粒子数在 j 能级的比例系数, 由玻尔兹曼分布决定. 总的光强 $I(\lambda) = \sum_{ji} I_{ji}(\lambda)$. 通常, 我们假设无辐射弛豫可以忽略不计, 即 $\eta = 1$, $\tau_f = \tau_r$, τ_r 是辐射寿命. $\int N(\lambda) d\lambda$ 是荧光光谱的面积. c 为真空中的光速, n 为晶体的折射率. 如果入射光从不同光轴入射, 考虑到晶体的各向异性, 折射率 n 就和光轴的取向有关. 如果考虑材料的色散和 3 个晶轴的各向异性, 根据 Sellmeier 公式^[6], 折射率 n 必须改写成:

$$n_p^2(\lambda) = 1 + \frac{B_p}{1 - \frac{C_p}{\lambda^2}} + \frac{D_p}{1 + \frac{E_p}{\lambda^2}} \quad (5)$$

其中 $p = a, b, c$ 为 3 个光轴. 式中常数 B_p, C_p, D_p 和 E_p 在 293 K 温度下的值由表 1 给出.

表 1 折射率参数和光轴的关系

Tab. 1 Relationship between refractive index and the optical axes

光轴	B_p	$C_p / 10^{-2} \mu m^2$	$D_p / 10^{-2}$	$E_p / \mu m^2$
a	2.715339	1.237917	9.034607	8.389919
b	2.682368	1.219273	8.804046	8.133462
c	2.643755	1.081181	-11.60196	3.932196

由计算可得出 3 个主要跃迁波段中 b 偏振和 c 偏振光的折射率平均值, 连同荧光分支比, 列在表 2 中. 这样, 公式(4)最后表达为

$$\sigma_{pi}(\lambda) = \frac{\lambda^5 \beta_{pi} P_d(\lambda)}{8\pi n_p^2 \tau_f \int N P_d(\lambda) d\lambda} \quad (6)$$

其中, $p = a, b, c; i = 1, 2, 3$. 式中的下标 p, i 分别代表偏振方向和不同的跃迁, P_d 代表探测到的荧光功率. 实验样品的掺杂浓度只有 1%, 所以浓度猝灭可忽略不计. 同时, 被抽运到激发态的电子很快就通过无辐射弛豫跃迁到亚稳态 ${}^4F_{3/2}$, 因此假设 η 和 F_j 为 1 是合理的. ${}^4F_{3/2}$ 能级的荧光寿命可通过荧光衰减实验测量得到. 显然, 只要测量了 YAP 晶体不同光轴的荧光光谱, 按公式(6)就可以计算得 YAP 沿不同光轴的受激发射截面 $\sigma_{pi}(\lambda)$.

表 2 3 个跃迁波段的折射率 n_b 、 n_c 和荧光分支比

Tab.2 Refractive index and fluorescent branching ratio for the three emission band

跃迁波段	$\lambda/\mu\text{m}$	折射率		荧光分支比
		n_b	n_c	
${}^4F_{3/2} \rightarrow {}^4I_{9/2}$	0.867~	1.93169	1.91305	0.24
	0.931			
${}^4F_{3/2} \rightarrow {}^4I_{11/2}$	1.051~	1.92919	1.9084	0.63
	1.106			
${}^4F_{3/2} \rightarrow {}^4I_{13/2}$	1.318~	1.9278	1.9029	0.13
	1.434			

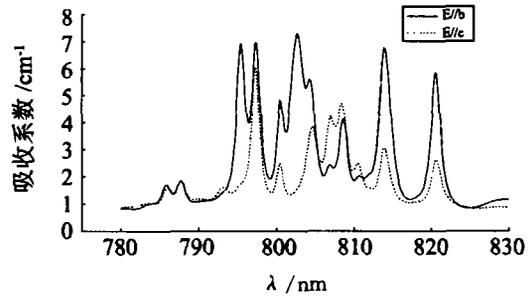
4 实验方法、结果和分析

样品是两块沿 a 轴切割的 Nd:YAP 晶体. 其中, 一块是 $\varnothing 3 \text{ mm} \times 3 \text{ mm}$ 的圆柱体, 用于吸收谱的测量; 另一块是 $4 \text{ mm} \times 4 \text{ mm} \times 5 \text{ mm}$ 的长方体, 用于测量发射谱和荧光寿命, 掺杂浓度都为 1%.

4.1 吸收谱

YAP 不同偏振方向吸收谱差别很大. 本实验的样品是沿 a 方向切割的, 所以必须分别测量 b 方向和 c 方向的偏振吸收谱. 用两种不同的装置配置分别进行了测量. 光源是溴弧灯, 它可以提供比较宽的入射光谱. 晶体样品放在一个黄铜套里面以实现良好的散热. 透射光经由一个凸透镜聚焦, 通过单色仪分光, 再由光电倍增管将光信号转变为电信号, 最后把数据输送到计算机中进行自动处理. 这两个方向测量惟一差别在于偏振片的位置. 配置一, 偏振片被放在晶体样品的前方以实现偏振入射; 配置二, 偏振片被放在样品后面, 这样入射光就是非偏振态的. 据文献[3]的叙述, 从前者获得的吸收系数应是从后者获得的吸收系数的 2 倍. 原因是根据公式(2), 后者的非偏振入射会导致真正对 b 或 c 偏振方向的吸收系数有贡献的有效基态粒子数的下降, 尽管这个 2 倍的关系只是一个粗略的估计. b 和 c 两个方向的偏振吸收谱的测量结果如图 4 所示.

为了保证所探测到的透射光偏振方向的准确性, 选择 802 nm 为参考波长. 因为在这个点 Nd:YAP 晶体对 b 偏振分量的吸收最强而对 c 偏振分量几乎没有表现出什么吸收, 这样就可以运用出射光强稳定度的测量定出偏振片的准确透光位置. 实验测出的两个偏振方向的吸收峰所在位置和文献中给出的非常吻合. 从图 4 可看出, c 、 b 两个偏振分量的吸收峰值分别出现在 802.7 nm 和 797.2 nm 处. 它们各自有 1.4 nm 和 3.0 nm 的线宽, 如果考虑非偏振泵浦入射, Nd:YAP

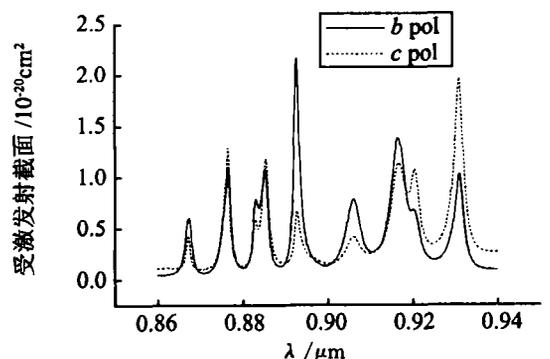
图 4 $E \parallel b$ 和 $E \parallel c$ 时 Nd:YAP 的光吸收谱Fig.4 Absorption spectrum of Nd:YAP at $E \parallel b$ and $E \parallel c$

晶体材料可在 800 nm 附近提供 4~5 nm 的吸收带宽, 这个宽度大约是 Nd:YAG 晶体所能提供的吸收带宽的 5 倍. 这对 Nd:YAP 是一个非常重要的优势. 因为这样, 激光器对泵浦光源的热稳定性的要求就可降低, 对于通常使用的半导体激光器泵浦源来说, 维持它的热稳定性一直是一个棘手的问题, 因为半导体材料的禁带宽度会随着温度的升高而变窄, 这将造成输出波长的红移. 同时, 为了获得最佳效率的吸收, 入射泵浦光的偏振方向必须是 b 方向的. 因为对于 a 切割的晶体棒来说, 这个方向的吸收系数大约是 c 方向的 1.2 倍.

4.2 发射谱

实验样品由输出波长为 808 nm 的半导体激光器来进行端泵浦. 为了防止没有被充分吸收的泵浦光混杂到被探测到的荧光中, 我们在样品后方放置了一个对泵浦波长具有强烈吸收的滤光片. 和吸收谱一样, 对于沿 a 方向切割的长方体晶体, 必须分别测量 b 偏振和 c 偏振的发射谱. 所测得的 ${}^4F_{3/2} \rightarrow {}^4I_{9/2}$ 、 ${}^4F_{3/2} \rightarrow {}^4I_{11/2}$ 和 ${}^4F_{3/2} \rightarrow {}^4I_{13/2}$ 3 种跃迁时 b 偏振和 c 偏振的发射谱, 分别如图 5、6 和 7 所示.

由图可以看出, 除了 ${}^4F_{3/2} \rightarrow {}^4I_{13/2}$ 跃迁之外, 对其

图 5 ${}^4F_{3/2} \rightarrow {}^4I_{9/2}$ 跃迁时 b 、 c 方向发射截面谱Fig.5 Stimulated emission cross spectrum for ${}^4F_{3/2} \rightarrow {}^4I_{9/2}$ at b and c direction

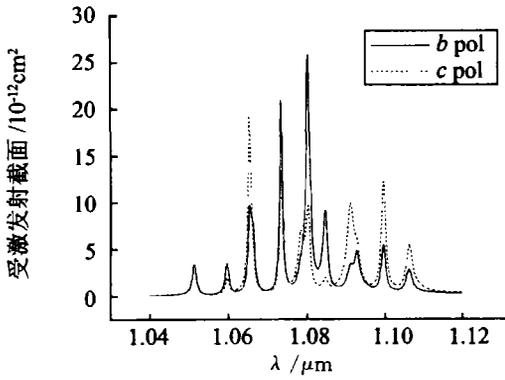


图6 ${}^4F_{3/2} \rightarrow {}^4I_{11/2}$ 跃迁时 b, c 方向发射截面谱
 Fig. 6 Stimulated emission cross spectrum for ${}^4F_{3/2} \rightarrow {}^4I_{11/2}$ at b and c direction

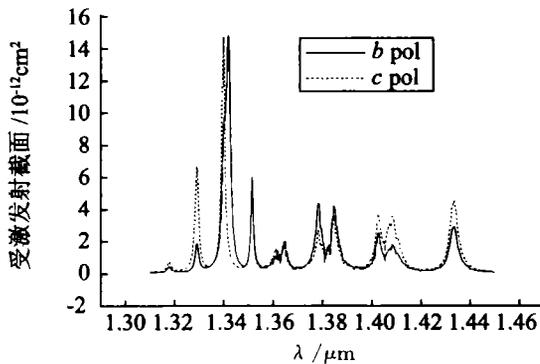


图7 ${}^4F_{3/2} \rightarrow {}^4I_{13/2}$ 跃迁时 b, c 方向发射截面谱
 Fig. 7 Stimulated emission cross spectrum for ${}^4F_{3/2} \rightarrow {}^4I_{13/2}$ at b and c direction

余两个跃迁, b 偏振方向的受激发射截面都比 c 偏振方向大很多, 所以采用 b 偏振出光可以有效降低泵浦的阈值, 提高输出效率. 将测量结果和文献中给出的 Nd: YAG 晶体的相应值做比较可知, 对 ${}^4F_{3/2} \rightarrow {}^4I_{11/2}$ 来说, 前者的峰值截面和后者差不多; 而对于 ${}^4F_{3/2} \rightarrow {}^4I_{13/2}$ 跃迁来说, 前者的峰值截面大概是后者的 2~ 3

倍, 因此 Nd: YAP 的发光性能比 Nd: YAG 更胜一筹.

5 结 论

本论文详细讨论了 Nd: YAP 晶体的光谱特性, 将它和固体激光器中最常用的 Nd: YAG 晶体光谱进行了对比, 指出前者的优势在于该材料各向异性的特性. 这种特性有两方面好处, 其一, 选择不同的晶轴和偏振方向, 可以获得迥异的光谱特性, 从而可以为满足不同的需要提供便利; 其二, 固有的双折射性质可以有效地降低热致退偏振和热透镜效应对光束质量造成的危害, 这点对于固体激光器来说是非常有利的.

参考文献:

- [1] Weber M J, Varitimos T E. Optical spectra and intensities of Nd^{3+} in $YAlO_3$ [J]. J. Appl. Physics, 1971, 42 (12): 4 996- 5 005.
- [2] Boucher M, Musset O, Boquillon J P, et al. Multiwatt CW diode end pumped Nd: YAP laser at 1.08 and 1.34 μm : influence of Nd doping level [J]. Opt. Comm., 2002, 212: 139- 148.
- [3] Zarrabi Joseph H, Gavrilovic Paul, Singh Shobha. Intracavity, frequency doubled, miniaturized Nd: $YAlO_3$ blue laser at 465 nm [J]. App. Phys. Let., 1995, 67(17): 2 439 - 2 441.
- [4] Hanson F, Poirier P. Multiple wavelength operation of a diode pumped Nd: $YAlO_3$ laser [J]. J. Opt. Soc. Am. B, 1995, 12(7): 1 311- 1 315.
- [5] Aull Brian F, Jensen Hans P. Vibronic interactions in Nd: YAG resulting in nonreciprocity of absorption and stimulated emission cross sections [J]. IEEE. J. Quantum Electronics, 1982, QE- 18(5): 925- 930.
- [6] Zeng Z D, Shen H Y, Huang M L, et al. Measurement of the refractive index and thermal refractive index coefficient of Nd: YAP crystal [J]. Applied Optics, 1990, 29(9): 1 281- 1 287.

Measurement and Analysis for Polarized Spectrum of Nd: YAP Crystal

CHEN Ying¹, CAI Zhir ping²

(1. Dept. of Phys., Xiamen Univ., 2. Dept. of Electronic Engineering, Xiamen Univ., Xiamen 361005, China)

Abstract: This paper starts with analyzing advantages and disadvantages of Nd: YAP and Nd: YAG. It indicates that the anisotropic feature of the former can provide some special utilities. The energy levels and spectral properties for Nd: YAP are delivered. Techniques for measuring the polarized absorption spectrum, polarized stimulated emission cross section and fluorescent lifetime of Nd: YAP crystal are fully discussed. The measured results and analyses of two Nd: YAP samples which are cut along a crystallographic axis are also presented. These analyses and measurement comprehensively indicate that the superiority of Nd: YAP coming from its anisotropic feature will make it become a very promising substitute for the traditional Nd: YAG crystal in the practical field of solid state lasers.

Key words: Nd: YAP; fluorescence lifetime; stimulated emission cross section; absorption coefficient