

钕玻璃非线性双光子吸收

邱佩华 赵继然 陈淑琴 王文耀 高福源

(中国科学院上海光机所)

提 要

利用锁模钕玻璃激光器的单个微微秒激光脉冲,研究了掺钕激光玻璃中钕离子的非线性双光子吸收。根据实验和理论计算给出了钕离子的双光子吸收截面 $\sigma = (6.16 \pm 1.1) \times 10^{-33}$ 厘米⁴/瓦,非线性吸收系数 $\gamma = (1.65 \pm 0.29) \times 10^{-12}$ 厘米/瓦以及光强与透过率的函数关系曲线。双光子吸收限制了钕玻璃放大器的输出峰值强度。实验确定放大器的极限峰值强度为 $I_{\text{最大}} = (4.15 \pm 0.73) \times 10^{10}$ 瓦/厘米²。

理 论 分 析

激光玻璃材料的非线性吸收直接影响到超短脉冲激光放大器的性能。在1977年我们进

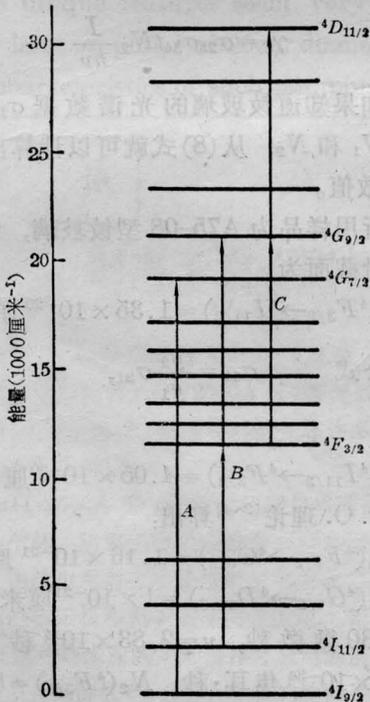


图1 钕离子能级图

行锁模超短脉冲激光终态能级寿命测量时,就发现了这种非线性损耗现象。产生非线性损耗的起因有两种物理过程^[1]:一是双光子吸收,二是两步吸收。图1是钕离子的能级图。过程A是双光子吸收,B和C是两步吸收,具体可写成:

$$A: {}^4I_{9/2} \xrightarrow{2h\nu} {}^4G_{7/2}$$

$$B: {}^4I_{9/2} \xrightarrow{h\nu} {}^4F_{3/2} \xrightarrow{h\nu} {}^4G_{9/2}$$

$$C: {}^4F_{3/2} \xrightarrow{h\nu} {}^4G_{9/2} \xrightarrow{h\nu} {}^4D_{11/2}$$

从基态向上,不可能通过吸收一个波长为1.06微米的光子向上跃迁。因为不存在相应的能级。但是能级 ${}^4I_{9/2}$ 和 ${}^4G_{7/2}$ 之间满足双光子跃迁条件:

$$\Delta J = 0, \pm 1, \pm 2;$$

$$\Delta L = 0, \pm 1, \pm 2;$$

$$\Delta S = 0.$$

两能级的频率间隔 $\omega({}^4G_{7/2} \rightarrow {}^4I_{9/2})$ 正好是激光频率 ω_L 的两倍,即 $\omega = 2\omega_L$ 。所以基态 ${}^4I_{9/2}$ 可以吸收双光子后跃迁到 ${}^4G_{7/2}$ 态。

设一个正比于入射光强 I 的非线性损耗因子 $\gamma I = (\gamma_A + \gamma_B + \gamma_C) I$ 。 γ_A 、 γ_B 和 γ_C 分

收稿日期:1979年4月24日。

别表示由双光子吸收 A 和两步吸收 B 、 C 过程对 γ 的贡献。这样, 光进入介质后的强度变化可写为:

$$\frac{dI}{dx} = (\beta - \alpha)I - \gamma I^2 \quad (1)$$

可以设想, 当光足够强时, 介质对光束的增益正好被非线性损耗所抵消。这时, 光在介质中的强度就与距离 x 无关, 即

$$\frac{dI}{dx} = 0。$$

此时光强达到了极大值 $I_{\text{极大}}$, 从(1)式得出:

$$I_{\text{极大}} = \frac{\beta - \alpha}{\gamma} \quad (2)$$

这里 β 是小信号时介质对激光的增益系数, α 是介质的线性吸收系数, γ 是与铈离子有关的非线性吸收系数。解(1)式可以直接获得:

$$I_{\text{出}} = \frac{I_{\lambda} \exp(\beta - \alpha)L}{1 + \gamma I_{\lambda} [\exp(\beta - \alpha)L - 1] / (\beta - \alpha)} \quad (3)$$

从(3)式中, 通过测量 β 、 α 、 I_{λ} 、 $I_{\text{出}}$ 和已知激活介质的长度 L , 就可算出 γ 值。再将 γ 值代入(2)式, 便可以确定超短脉冲的放大极限 $I_{\text{极大}}$ 。

先估算一下两步吸收 B 和 C 过程所引起损耗的大小, 然后再通过实验确定是双光子吸收还是两步吸收起主要作用。根据前面的假设有:

$$\gamma = \gamma_A + \gamma_B + \gamma_C$$

图 2 中, N_1 、 N_2 、 N_3 、 N_4 和 σ_{12} 、 σ_{23} 、 σ_{34} 分别是能级 1、2、3、4 的粒子数密度和相应能

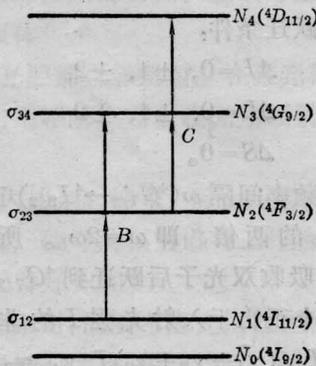


图 2 两步吸收能级图

级的吸收截面。

过程 B 的速率方程可写成为:

$$\frac{dN_1}{dt} = -N_1\sigma_{12} \frac{I}{h\nu} \quad (5)$$

$$\frac{dN_2}{dt} = N_1\sigma_{12} \frac{I}{h\nu} - \frac{N_2}{\tau_2} \quad (6)$$

这里 τ_2 是能级 2 的寿命。在超短脉冲作用的时间 t (30 微微秒) 内, (6) 式中的第二项 $\frac{N_2}{\tau_2}$ 是可以忽略不计的, 即 $N_2/\tau_2 = 0$, 这样从(6)式获得:

$$N_2 = N_1\sigma_{12}t \frac{I}{h\nu} \quad (7)$$

此处 t 是微微秒激光脉冲宽度。能级 2 的第二步吸收为:

$$N_2\sigma_{23} = \sigma_{12}\sigma_{23}tN_1 \frac{I}{h\nu}$$

这就是两步吸收过程 B 造成的非线性吸收 $\gamma_B I$ 。由此得到:

$$\gamma_B = \sigma_{12}\sigma_{23}tN_1 \frac{I}{h\nu} \quad (8a)$$

同理可得:

$$\gamma_C = \sigma_{23}\sigma_{34}tN_2 \frac{I}{h\nu} \quad (8b)$$

如果知道铈玻璃的光谱数据 σ_{12} 、 σ_{23} 、 σ_{34} 、 N_1 和 N_2 , 从(8)式就可以计算出 γ_B 和 γ_C 的数值。

所用样品为 A75-08 型铈玻璃, 它的受激发射截面为

$$\sigma_{21}(^4F_{3/2} \rightarrow ^4I_{11/2}) = 1.35 \times 10^{-20} \text{ 厘米}^2,$$

根据公式 $\sigma_{12} = \frac{g_2}{g_1} \sigma_{21}$,

求出

$$\sigma_{12}(^4I_{11/2} \rightarrow ^4F_{3/2}) = 4.05 \times 10^{-20} \text{ 厘米}^2。$$

利用 J. O. 理论^[2~4]算出:

$$\sigma_{23}(^4F_{3/2} \rightarrow ^4G_{9/2}) = 1.16 \times 10^{-21} \text{ 厘米}^2$$

$$\sigma_{34}(^4G_{9/2} \rightarrow ^4D_{11/2}) = 1 \times 10^{-21} \text{ 厘米}^2$$

取 $t = 30$ 微微秒, $\nu = 2.83 \times 10^{14} \text{ 秒}^{-1}$, $h = 6.602 \times 10^{-34} \text{ 焦耳} \cdot \text{秒}$, $N_2(^4F_{3/2}) = 5 \times 10^{18} \text{ 粒子数/厘米}^3$ (有光泵时) 和 $N_1(^4I_{11/2}) =$

2.6×10^{16} 粒子数/厘米³, 则由(8)式可以得到:

$$\begin{aligned} \gamma_B &= 3.93 \times 10^{-16} \text{ 厘米/瓦}, \\ \gamma_C &= 1.86 \times 10^{-15} \text{ 厘米/瓦}. \end{aligned} \quad (9)$$

实验和结果讨论

实验装置如图3所示。钕玻璃被动锁模微微秒激光器, 产生间隔为10毫微微秒的超短脉冲系列。经由双45° 铌酸锂电光开关和光触发火花球隙组成的单脉冲选择器, 选出单个微微秒脉冲。再经三级放大器, 从未级放大器输出的单一超短脉冲的脉宽为30微微秒, 方向性为0.5毫弧度, 输出能量为200毫焦耳。为使激光束能很好地进入样品, 并提高输入功率, 我们用一焦距为2.5米的凸透镜将光束加以会聚, 利用分束板将入射光束分出8%的能量, 引入接收器I, 以监测光束能量。透过分束板的激光束, 通过可变滤光片组和样品棒, 进入接收器II。激光器的输出保持相对稳定。利用调节可变滤光片来改变进入样品的超短激光脉冲的功率。样品放在透镜焦点的前面, 样品中光束截面为5毫米²。两接收器用同一束激光做了精确的相对标定。通过测量可以获得每次进入样品前激光的能量和透过样品的能量, 从而得出随光强的改变样品透过率的变化。具体测量数据列于表1。各组数据是2至4次测量值的平均值。高灵敏炭斗标定误差在2%左右, 加上测量误差对数据的影响, 一并在表1中

给出。测试样品的透过率随光强的变化绘于图4中。

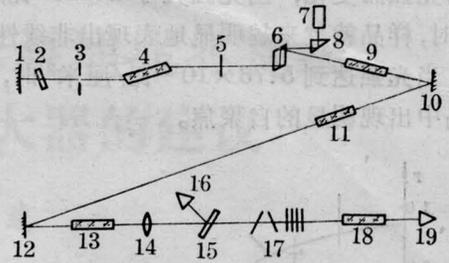


图3 测量钕玻璃非线性吸收的实验装置
1—全反射镜; 2—染料盒; 3—选模光阑; 4—振荡器棒; 5—半透膜; 6—电光开关; 7—光触发火花隙; 8—棱镜; 9—放大器I; 10—全反射镜; 11—放大器II; 12—全反射镜; 13—放大器III; 14—透镜; 15—分束板; 16—接收器I; 17—衰减片; 18—样品; 19—接收器II

进入样品的光能量在6到170毫焦耳之间变化。相应峰值光强为 2.23×10^9 瓦/厘米² 到 5.73×10^{10} 瓦/厘米² 之间变化。由于样品未光泵, 从公式(3)注意到 $\beta=0$, 便可得到:

$$T = \frac{-\alpha \exp(-\alpha L)}{\gamma I_\lambda [\exp(-\alpha L) - 1] - \alpha} \quad (10)$$

样品长度 $L=18$ 厘米, 线性吸收系数 $\alpha=0.0015$ 厘米⁻¹, 取一组实验数据

$$\begin{aligned} I_\lambda &= (1.33 \pm 0.15) \times 10^{10} \text{ 瓦/厘米}^2, \\ T &= 69.7\%, \end{aligned}$$

代入(10)式求得:

$$\gamma_A = (1.65 \pm 0.29) \times 10^{-12} \text{ 厘米/瓦} \quad (11)$$

将 γ_A 代入(10), 并利用 I_λ 的变化求出 T 值, 将 I_λ 与 T 的数值绘于图4中, 图4中十字又是实验点, 而实曲线是计算结果。两者符

表1 样品透过率随入射光强的变化

输入能量 E_λ (毫焦耳)	6.69	11.8	22	39.8	87.7	123.2	172*
输出能量 $E_{出}$ (毫焦耳)	6.38	10.0	17.1	27.6	45.8	57.1	65.2
透过率 T (%)	95.4 ± 8.1	84.7 ± 5.6	77.7 ± 3.9	69.7 ± 4.6	52.2 ± 1.8	46.4 ± 1.7	37.9 ± 1
功率强度 $I_\lambda \times 10^9$ (瓦/厘米 ²)	2.23 ± 0.17	3.9 ± 0.3	7.3 ± 0.7	13.3 ± 1.5	29.2 ± 2.2	41.1 ± 3.2	57.3 ± 3.3

* 出自聚焦

合得很好。从图4看出,当输入光强小于 2×10^9 瓦/厘米²时,样品的吸收基本上不随入射光强而变化,当光强大于 2×10^9 瓦/厘米²时,样品就越来越明显地表现出非线性吸收。当光强达到 5.73×10^{10} 瓦/厘米²时,在样品中出现明显的自聚焦。

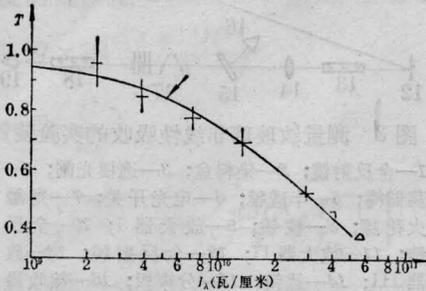


图4 钕玻璃样品透过率随入射光强的变化
(三角形点表示出现自聚焦,箭头所示为 $\gamma = 1.65 \times 10^{-12}$ 厘米/瓦)

从(9)和(11)式看出 $\gamma_A \gg \gamma_B + \gamma_C$,即双光子吸收较两步吸收要强三到四个数量级。所以钕玻璃激活介质中,产生的非线性损耗,主要是以双光子吸收的形式出现。这样可以认为 $\gamma = \gamma_A$ 。

将 γ 值代入(2)式,样品的增益系数 $\beta = 0.07$ 厘米⁻¹,求出放大器的极限功率强度:

$$I_{\text{极大}} = (4.15 \pm 0.73) \times 10^{10} \text{ 瓦/厘米}^2$$

放大器中的激光强度达到极大强度后,激活介质的增益和非线性损耗互相抵消,再增加

放大器已属无益。

由 γ 和 $N_0(^4I_{9/2})$ 可算出双光子吸收截面的数值:

$$\begin{aligned} & \sigma(^4I_{9/2} \xrightarrow{2h\nu} ^4G_{7/2}) \\ &= \gamma / N_0(^4I_{9/2}) \\ &= (6.16 \pm 1.1) \times 10^{-33} \text{ 厘米}^4/\text{瓦} \quad (12) \end{aligned}$$

受激双光子吸收截面 $\sigma(^4I_{9/2} \rightarrow ^4G_{7/2})$ 的大小,与双光子吸收造成的非线性损耗系数 γ 和基态 $^4I_{9/2}$ 粒子数密度有关。当光泵时,一部分粒子被泵到较高的能态上去,所以基态上的粒子数密度有所减少,吸收截面会受到一定的影响,但是所有泵到高能态上的粒子的大部分将落到亚稳态 $^4F_{3/2}$ 上,此态上的粒子数 $N(^4F_{3/2})$ 约为 5×10^{18} 粒子数/厘米³,又知基态 $N_0(^4I_{9/2})$ 上的粒子数密度为 2.688×10^{20} 粒子数/厘米³,所以说绝大多数的粒子仍处于基态,高能态 $^4F_{3/2}$ 上的粒子数密度仅为基态的 1% 量级。因此,双光子吸收截面在光泵和未光泵时可以认为是一样的。

参 考 文 献

- [1] A. Penzkofer, W. Kaiser; *Appl. Phys. Lett.*, 1972, **12**, 427.
- [2] B. R. Judd; *Phys. Rev.*, 1962, **127**, 750~761.
- [3] G. S. Ofelt; *J. Chem. Phys.*, 1962, **37**, 511~520.
- [4] F. William; *IEEE J. Quant. Electr.*, 1974, **QE-10**, No. 4, 450.

Nonlinear two-photon absorption in Nd glasses

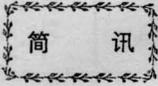
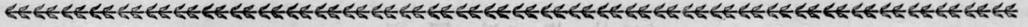
Qiu Peihua Zhao Jiran Cheng Shuqin
Wang Wenyao Gao Fuyan

(Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Academia Sinica)

Abstract

The nonlinear two-photon absorption of Nd ions in Nd-doped laser glasses was studied with single picosecond laser pulses from a mode-locked Nd glass laser. With the aid of ex-

periments and theoretical calculations, we obtained the cross section for two-photon absorption of Nd ions $\sigma = (6.16 \pm 1.1) \times 10^{-33} \text{cm}^4/\text{W}$, the nonlinear absorption coefficient $r = (1.65 \pm 0.29) \times 10^{-12} \text{cm}/\text{W}$ and profiles for the function relationship between the optical intensity and the transmissivity. The peak output intensity for Nd glass amplifiers is limited by two-photon absorption. It was determined experimentally that the maximum peak intensity of the amplifiers is $I_{\max} = (4.15 \pm 0.73) \times 10^{10} \text{W}/\text{cm}^2$.



全国晶体生长与材料学术会议在苏州举行

由中国硅酸盐学会主持召开的 1979 年全国晶体生长与材料学术会议于 1979 年 11 月 21 日至 28 日在江苏省苏州召开。这是继 1974 年福州会议以来又一次全国规模的晶体会议。

出席这次会议的有来自中国科学院、国防科委、高等院校和产业部门的专家、教授、科技工作者和领导干部共 260 多人。

大会共征集到学术论文二百六十多篇。属于激光工作物质方面的有七十多篇；非线性光学、电光、声光晶体方面的有近八十篇；压电、超硬、红外、光学等晶体方面的有九十多篇。其中有一百六十多篇在大会或分组会议上宣读，大部分报告都在展会上作了交流。

为了检阅我国三十年来在晶体生长及材料的研制生产方面取得的成绩，大会特举办了展览会。全国四十二个单位提供了近三百件展品。内容包括光学、压电、激光工作物质、电光、声光、非线性光学、光电导、半导体和超硬等九十八种晶体材料及二十一种晶体元、器件。

从本次会的各种学术交流活动中可以看出，与 1974 年相比，我国晶体生长与材料的科研与生产水平有了较大的提高。具体表现在以下几个方面：(1)各单位普遍展开了晶体生长机理的研究。提出了一些理论模型来解释晶体生长中遇到的实验现

象，为晶体生长工艺的改进和晶体质量的提高指明了方向。(2)一批单晶的质量有了显著的提高。在工业和科研应用上已成熟的一些晶体，经过几年的努力质量都得到了改善。如氟金云母、水晶、激光红宝石、大尺寸氟化钙、铈酸锂和掺钕钇石榴石晶体等。其中有些晶体的质量已超过或接近国际先进水平。(3)有了我国自己的新晶体。几年来先后研制成了一系列新晶体品种，如激光工作物质中的磷酸盐系、铍酸盐系、硼酸盐系晶体，填补了国内空白。另外从理论上进行了新型非线性光学晶体的设计，生长出了硼氧化物、 $2\text{KIO}_3 \cdot \text{HCl}$ 、磺基水杨酸钠等新晶体。这标志着我国新晶体材料的探索已进入了独立设计的新阶段。(4)晶体生长技术的新发展。国内各单位设计和改进了一些新的晶体生长技术。如用籽晶旋转法生长五磷酸铍大晶体，用溶剂变更法生长 ATGS 单晶，用导向温梯法生长白宝石单晶等都是近几年中在我国首先采用的。在晶体生长自动控制和设备改进方面也进行了许多有益的工作，取得了一定的进展。

在这次会议上，正式成立了中国硅酸盐学会晶体生长与材料专业委员会。在专业委员会的第一次全体委员会议上讨论确定了下一次全国晶体生长与材料会议的时间和地点。

(黄德群)