

磷酸盐钕玻璃的荧光寿命和损耗对 激光增益特性的影响*

张 华 黄国松 徐世祥 高艳霞 范滇元

(中国科学院上海光学精密机械研究所高功率激光物理国家实验室, 上海 201800)

摘 要 实验研究了目前使用的 N_{2122} 和 N_{3122} 掺钕磷酸盐玻璃中不同的 OH 基浓度对玻璃荧光寿命的影响, 同时从实验和理论上研究了荧光寿命和损耗对激光增益特性的影响, 结果表明: 增加玻璃的荧光寿命是提高增益性能的一个重要方法, 当玻璃的荧光寿命增加 10% 时小信号增益系数提高 5% 左右。提高钕玻璃的荧光寿命, 可适当降低对损耗的要求, 也能够保持它的增益性能不变。

关键词 OH 基, 荧光寿命, 损耗, 增益特性。

1 引 言

掺钕磷酸盐激光玻璃以大的发射截面、高增益逐渐取代硅酸盐激光玻璃。但由于磷酸盐玻璃与水有很强的亲和力, 其原料含有许多水份, 在熔制过程中也极易从空气中吸收水份, 虽然在玻璃的熔制过程中可挥发掉大部分水, 但仍有少部分残留在玻璃中。残留的水分主要以 OH 基形式存在于玻璃网络体中。激光玻璃中的水使荧光严重猝灭, 荧光寿命和量子效率严重下降。本文从实验和理论上研究了荧光寿命和损耗对激光增益特性的影响; 同时实验研究了目前使用的 N_{2122} 和 N_{3122} 掺钕磷酸盐玻璃中不同的 OH 基浓度对玻璃荧光寿命的影响。结果表明: 当玻璃的荧光寿命增加 10% 时小信号增益系数提高 5% 左右。改进玻璃的熔制工艺, 减少玻璃中 OH 基浓度, 提高钕玻璃的荧光寿命, 可适当降低对损耗的要求, 也能够保持它的增益性能不变。本文的结果对高功率固体激光系统的优化设计具有参考价值。

2 磷酸盐玻璃中荧光寿命与 OH 基浓度关系的实验研究

2.1 钕玻璃中的 OH 基浓度

测量 2880 cm^{-1} ($3.47\text{ }\mu\text{m}$) 的吸收系数 K 可以得到单位体积玻璃中 OH 基浓度 C (10^{20} cm^{-3}), C 由下式决定^[1]:

$$C = 0.419K \quad (1)$$

利用日立 270-50 型红外分光光度计测量玻璃样品在 ($1800\sim 4000$) cm^{-1} 波段的吸收光谱, 可得

* 国家高技术 863-416 主题资助项目。

收稿日期: 1997-08-07; 收到修改稿日期: 1997-10-21

吸收系数 K 。所用样品经光学抛光, 厚度为 0.5 mm。

2.2 钕玻璃中的 OH 基对荧光寿命的影响

为了得到玻璃中 OH 基对荧光寿命的影响, 选择了含不同 OH 基浓度的磷酸盐钕玻璃样品, 尺寸为 30 mm × 15 mm × 5 mm, 磨成光学平面, 测量其荧光寿命。荧光寿命的测量采用激光二极管激发, 经光栅单色光计后荧光衰减到 $1/e$ 时的时间为自发辐射寿命。图 1 给出了目前使用的 N_{2122} 和 N_{3122} 掺钕磷酸盐玻璃荧光寿命与 OH 基浓度之间的关系, 玻璃荧光寿命随 OH 基浓度升高而线性下降。而且 N_{2122} 玻璃比 N_{3122} 玻璃下降得快, 如果 N_{2122} 玻璃达到 N_{3122} 玻璃的除水水平, 其荧光寿命要比 N_{3122} 玻璃大。

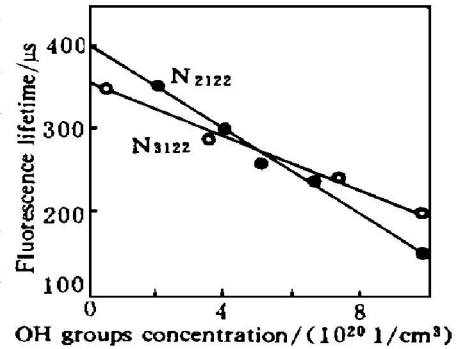


Fig. 1 The relationship between fluorescence life time and OH groups concentration in N_{2122} and N_{3122} phosphate glasses

3 激光增益特性的理论和实验研究

3.1 荧光寿命对激光增益特性的影响

荧光寿命对激光增益特性的影响可以用光泵速率方程从理论上进行模拟计算。工作物质的基态粒子在抽运到亚稳态的同时, 由于向第二能级的自发辐射而损失能量, 结果只有一部分能量能够转化为亚稳态上的有效粒子数积累, 其余部分变为荧光损失掉了。光泵过程中基态和亚稳态的粒子数变化可用下面的光泵速率方程表示:

$$\begin{cases} N_0 = N_1 + N_3 \\ \frac{dN_3}{dt} = \omega_4(t) N_1 - \frac{N_3}{\tau} \\ N_3 = 0, \quad (t = 0) \end{cases} \quad (2)$$

N_0 为泵浦前基态粒子数, $N_1(t)$ 和 $N_3(t)$ 为光泵过程中基态和亚稳态的粒子数, $\omega_4(t)$ 为抽运速率, 它的波形等同于光泵波形, τ 为荧光寿命, 此方程的解析解为:

$$N_3(t) = N_0 \exp \left[- \int_0^t \left(\omega_4 + \frac{1}{\tau} \right) dt' \right] \int_0^t \omega_4 \exp \left[\int_0^{t'} \left(\omega_4 + \frac{1}{\tau} \right) dt'' \right] dt' \quad (3)$$

可见亚稳态上的粒子数在光泵过程中是时间的复杂函数, 它与 $\omega_4(t)$ 的大小和形状以及荧光寿命 τ 有关。在大多数实验条件下, 可满足弱光泵条件:

$$\omega_4 \ll \frac{1}{\tau}, \quad \text{及} \quad \int_0^{t_0} \omega_4 dt \ll 1 \quad (4)$$

这个条件等效于 $N_3 \ll N_1$, 即只有很少部分的基态粒子被抽运到亚稳态。在这个条件下, (3) 式可简化为:

$$N_3(t) = N_0 \exp \left(- \frac{t}{\tau} \right) \int_0^t \omega_4(t') \exp \left(\frac{t'}{\tau} \right) dt' \quad (5)$$

在一般情况下, $N_3(t)$ 存在极大值, 达到极大值的泵浦时间 t_m 由下列方程确定:

$$\omega_4(t_m) \exp \left(\frac{t_m}{\tau} \right) = \frac{1}{\tau} \int_0^{t_m} \omega_4(t) \exp \left(\frac{t}{\tau} \right) dt \quad (6)$$

可见 t_m 与 $\omega_4(t)$ 绝对大小无关, 仅由 $\omega_4(t)$ 的形状和亚稳态寿命决定。

泵浦过程中的反转粒子数可以用上面的公式计算,但必须先计算抽运速率 $\omega_4(t)$ 。本文从测量某样品的增益来推算 $\omega_4(t)$,然后再去拟合其他各点的增益。具体方法是,设抽运速率的函数形式为:

$$\omega_4(t) = \eta P T(t) \quad (7)$$

P 为泵浦密度, η 为从泵浦能量转化为反转能量的转换系数, $T(t)$ 为光泵的时间波形。测量荧光寿命为 τ_0 的玻璃样品得到的增益系数为 β_0 , 则反转粒子数为: $N_3(t_1) = \beta_0 / \sigma$, t_1 为激光脉冲通过时间。在弱光泵条件下,将(7)式代入(5)式得:

$$\eta = \frac{N_3(t_1) \exp(t_1 / \tau_0)}{N_0 P \int_0^{t_1} T(t') \exp(t' / \tau_0) dt'} \quad (8)$$

这样可以模拟计算不同泵浦功率密度下荧光寿命对增益的影响。

选择损耗相近而荧光寿命不同的六种玻璃样品,在下面工作条件下测量其激光增益。实验装置是一台小信号激光放大器,测量用的信号光为 TEM₀₀, 脉冲宽度为 30 ns, 脉冲能量为 4 mJ; 放大器是单灯泵浦椭圆聚光腔, 氙灯尺寸为 $\Phi 8 \text{ mm} \times 180 \text{ mm}$, 储能电容 800 μF , 放电电感约 30 μH , 泵浦脉冲的时间波形近似为梯形, 放电时间为 600 μs , 半宽度为 400 μs , 延迟时间为 400 μs ; 激光棒尺寸为 $\Phi 8 \text{ mm} \times 220 \text{ mm}$, 有效增益长度 200 mm, 端面磨 2° 。

图 2 给出了四种泵浦功率密度下增益对荧光寿命关系的实验结果和理论模拟结果,图中的点为实验测量结果,曲线为理论计算结果,增益随荧光寿命的增加而增大,在泵浦密度比较大的情况下尤其明显。理论计算和实验结果是符合得比较好的,有力地支持了本文的实验结果。在 60 J/cm^3 、 80 J/cm^3 、 100 J/cm^3 和 120 J/cm^3 四种泵浦功率密度下拟合系数 η 的相对值分别为 1.38、1.25、1.12、和 1.0。当泵浦密度增大时系数 η 的值减小,这是因为氙灯的电流密度增加时,氙灯的光谱发生紫移,从而使氙灯的光效降低。图 3 给出了 N_{2122} 和 N_{3122} 两种磷酸盐玻璃在 100 J/cm^3 泵浦功率密度下增益系数对荧光寿命的关系曲线,在相同荧光寿命条件下 N_{3122} 玻璃的增益性能比 N_{2122} 玻璃好。

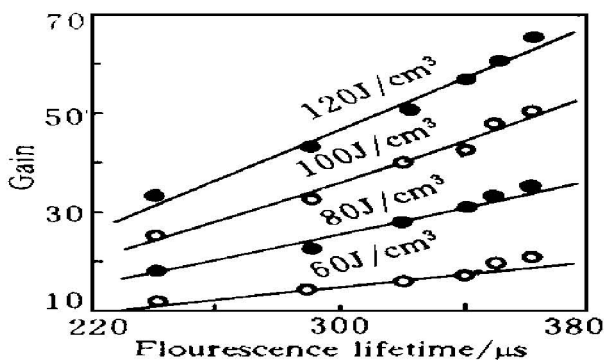


Fig. 2 Gain as a function of fluorescence lifetime under the condition of different pump energy density, (absorption coefficient is 0.0012 1/cm)

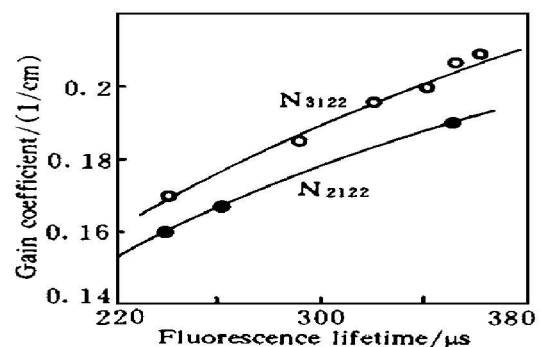


Fig. 3 Gain coefficient vs. fluorescence lifetime in the N_{21} and N_{31} phosphate glasses at the pump density of 100 J/cm^3 , absorption coefficient is 0.0012 cm^{-1}

为了进一步研究高功率固体激光系统中钕玻璃荧光寿命对增益的影响,根据(5)式和(6)式模拟计算了在最佳延迟时间情况下归一化的增益系数对荧光寿命的依赖关系。图 4 是在半正弦泵浦脉冲情况下归一化的小信号增益系数与荧光寿命的关系曲线,保持总的泵浦能量不

变, 泵浦脉冲宽度为 500 μs 、400 μs 和 300 μs , 以荧光寿命等于 340 μs 、泵浦脉冲宽度为 500 μs 时的增益系数为基准归一化。从图中可见当玻璃的荧光寿命增加 10% 时小信号增益系数增加 5% 左右。说明这个关系曲线与抽运速率的绝对大小无关, 只取决于泵浦的形状和玻璃的荧光寿命。从图 4 还可以看出: 缩短泵浦脉冲宽度可以提高增益性能, 但这当然会导致氙灯光谱的紫移, 增加氙灯的直径能抑制光谱的紫移, 如何准确地优化氙灯泵浦还有待于进一步的研究。

荧光寿命对激光增益影响的实验结果比以往的研究都显著, 因为在以往类似的研究中, 玻璃荧光寿命的增加伴随着受激发射截面的减小; 因而寿命变化几十微秒对增益影响并不显著。在本文的研究中, OH 基只使玻璃荧光寿命减小而发射截面不变。在实验测量中, 由于材料损耗难于控制, 要获得相同损耗而寿命不同的样品相当困难。在本文的研究中, 由于玻璃熔制工艺的改进, 损耗明显下降, 工艺稳定性比以往好, 使人们有可能分别孤立地研究寿命和损耗对激光增益的影响, 获得了出乎预料的结果。

3.2 损耗对激光增益特性的影响

激光脉冲通过放大器时, 其光强的变化由下列方程组决定:

$$\begin{cases} \frac{d\beta}{dt} = -\frac{L\beta}{E_s} \\ \frac{dI}{dZ} = (\beta - \alpha)I \end{cases} \quad (9)$$

其中 $\beta = \sigma N_3$ 是小信号增益系数, α 是线性吸收系数, I 是光强, $E_s = h\nu/s\sigma$ 为饱和能量密度, 将此方程对时间积分后得到下列能量密度(通量)放大方程式,

$$\frac{dE}{dZ} = E_s\beta_0[1 - \exp(-\frac{E}{E_s})] - \alpha E \quad (10)$$

此方程在一般情况下无解析解, 但在损耗不太大时利用“集中损耗近似”可以得近似解, 能量密度增益公式为:

$$G = \frac{E_s}{E(0)} \ln \{ 1 + [\exp(\frac{E(0)}{E_s}) - 1] \times \exp(\beta L) \} \exp(-\alpha L) \quad (11)$$

在实际计算中是将激光棒沿长度方向分成许多薄片, 对每一片都利用“集中损耗近似”求其增益, 最后得到总的增益。运用(11)式可以模拟计算损耗对增益的影响, 本文中输入激光棒的激光能量密度为 0.03 J/cm³, 饱和能量密度为 4.6 J/cm³。

选用荧光寿命都是 350 μs 而损耗分别为 0.0012 cm⁻¹、0.0019 cm⁻¹、0.0024 cm⁻¹ 三种玻璃样品, 测量它们在不同泵浦密度下的增益特性。图 5 给出了四种泵

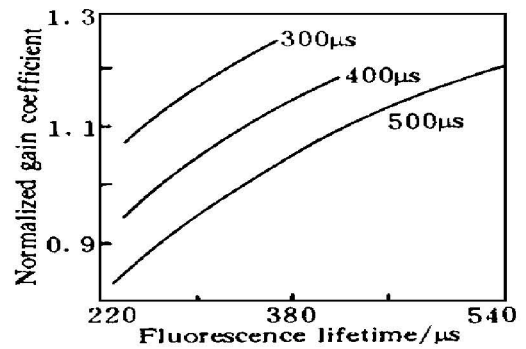


Fig. 4 Normalized gain coefficient vs fluorescence lifetime under the condition of best delayed time for half sinusoidal pump pulse, pump time is 300 μs , 400 μs and 500 μs , respectively

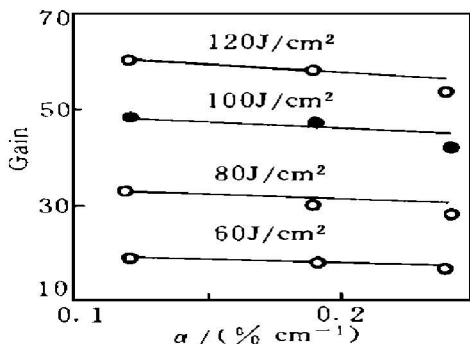


Fig. 5 Gain vs loss coefficient of phosphate glasses, points are experimentally measured values and curves are theoretically calculated results

浦功率密度下增益对损耗关系的实验结果和理论模拟结果。图中的点为实验测量结果，曲线为理论计算结果，可见理论计算和实验结果是符合得比较好的。由于激光玻璃的动态损耗是静态损耗的两到三倍，在(11)式的计算中动态损耗取静态损耗的三倍。四种泵浦密度下的曲线都采用 0.0012 cm^{-1} 的增益来拟合增益系数。

4 讨 论

4.1 减小玻璃的 OH 基浓度以提高荧光寿命，可以补偿损耗增加带来的增益损失

钕玻璃的荧光寿命对激光增益有重要影响，当玻璃的荧光寿命增加 10% 时，小信号增益系数增加 5% 左右。这是十分令人鼓舞的结果。因为在目前的玻璃熔制条件下，实现了对荧光寿命的实时监控，即可以在熔制过程中监控玻璃的 OH 基浓度。这样可以提高玻璃的成品率，并有可能进一步提高玻璃的荧光寿命，而玻璃的损耗在熔制过程中则很难控制。因此，改进玻璃的熔制工艺，进一步减少 OH 基的浓度，有可能使玻璃的荧光寿命在 $340 \mu\text{s}$ 的基础上提高 $10 \mu\text{s} \sim 20 \mu\text{s}$ ，从而降低对玻璃激光损耗的要求(例如小于 0.002 cm^{-1})，而保持激光增益不低于原设计指标。表 1 的实验结果证明了这是现实可行的办法。

实验测量了两组不同荧光寿命和损耗的玻璃样品在相同泵浦条件下的增益，表 1 给出了实验测量结果。荧光寿命为 $320 \mu\text{s}$ 、损耗为 0.0007 cm^{-1} 的钕玻璃与荧光寿命为 $350 \mu\text{s}$ 、损耗为 0.0024 cm^{-1} 的钕玻璃具有同样的增益性能；荧光寿命为 $340 \mu\text{s}$ 、损耗为 0.0011 cm^{-1} 的钕玻璃与荧光寿命为 $350 \mu\text{s}$ 、损耗为 0.0019 cm^{-1} 的钕玻璃也具有同样的增益性能。

Table 1. The gains of two groups Nd^{III} glass of different fluorescence lifetime and loss

pump density	gain		gain	
	$320 \mu\text{s } 0.0007 \text{ cm}^{-1}$	$350 \mu\text{s } 0.0024 \text{ cm}^{-1}$	$340 \mu\text{s } 0.0011 \text{ cm}^{-1}$	$350 \mu\text{s } 0.0019 \text{ cm}^{-1}$
60	17	17	17	18
80	29	28	31	30
100	42	42	43	45
120	53	53	57	58

4.2 要正确认识 N_{2122} 和 N_{3122} 两种磷酸盐玻璃的优缺点

OH 基对 N_{2122} 玻璃的影响较 N_{3122} 玻璃严重。这是受玻璃基质的影响，在 N_{2122} 玻璃中钡含量较高，它与 Nd^{3+} 场作用较弱，因此 OH 基的影响相对较强烈。以往 N_{2122} 玻璃的增益性能较差是因为除水工艺太差。当 N_{2122} 玻璃的荧光寿命从 $250 \mu\text{s}$ 提高到 $340 \mu\text{s}$ 时，增益系数提高了 18%。当 N_{2122} 玻璃的除水达到 N_{3122} 玻璃的水平时，它比 N_{3122} 玻璃具有较长的荧光寿命。其荧光寿命应在 $380 \mu\text{s}$ 左右，激光增益性能比 N_{3122} 玻璃好。

参 考 文 献

- [1] D. Zhuo, G. Qi, B. Peng, Determination of water content in phosphate laser glass. *Chinese Physics - Lasers*, 1986, **13**(3) : 213~215

The Influence of Fluorescence Lifetime and Loss in Phosphate Laser Glass on Its Gain Property

Zhang Hua Huang Guosong Xu Shixiang
Gao Yanxia Fan Dianyuan

(*National Laboratory on High Power Laser and Physics, Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics,
The Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800*)

(Received 7 August 1997; revised 21 October 1997)

Abstract The relationship between fluorescence lifetime and OH groups concentrations in the N_{2122} and N_{3122} phosphate laser glass used in the Shenguan Facility is investigated experimentally. We also study experimentally and theoretically the influence of fluorescence lifetime and loss on gain property in phosphate glass. It is shown that to increase fluorescence lifetime of glass can effectively improve the gain property. When fluorescence lifetime of glass adds 10 percent, its gain coefficient will increase 5 percent. We also measured the gain of two groups glasses (4 samples) with different fluorescence lifetime and loss under the same pump condition. The results indicate that in case of keeping the gain property unchanged, we can increase its fluorescence lifetime and reduce its loss requirement.

Key words OH groups, fluorescence lifetime, loss, gain property.