

文章编号: 0253-2239(2001)02-225-03

# Cr<sup>4+</sup>: YAG 晶体的激发态吸收研究\*

冷雨欣 林礼煌 欧阳斌 万小珂

(中国科学院上海光学精密机械研究所, 上海 201800)

**摘要:** 对 Cr<sup>4+</sup>: YAG 晶体作为 1064 nm 激光的可饱和吸收体进行了研究。利用速率方程, 描述了强激光下晶体的激发态吸收(ESA)的动力学过程。用实验验证了所导出的光强与透过率的理论曲线, 并因此论证了可以利用晶体的激发态吸收进行激光调 Q, 并对其进行优化。

**关键词:** Cr<sup>4+</sup>: YAG; 激发态吸收; 激光调 Q

中图分类号: TN204 文献标识码: A

Cr<sup>4+</sup>: YAG 晶体因有良好的机械和导热性能及光照稳定性而被广泛用作 Nd: YAG 激光器的 Q 开关。它具有比目前激光染料更好的稳定性<sup>[1]</sup>。这种晶体或其他相关晶体的吸收饱和机制的研究都集中于低入射光强下基态粒子对光子的吸收效应。最近, 许多实验已观察到一系列激发态吸收效应<sup>[2,3]</sup>。虽然一些文章在理论计算中考虑了晶体的激发态吸收的影响, 但仅限于在基态吸收的基础上, 认为粒子数仅分布在基态和激发态之间<sup>[3,4]</sup>。而 Cr<sup>4+</sup>: YAG 晶体的激发态吸收的性质有广泛的应用前景<sup>[5]</sup>。本文研究了这种晶体的激发态吸收。

## 1 理 论

在长激光脉冲情况下, Cr<sup>4+</sup>: YAG 晶体与 1064 nm 激光吸收有关的能级与主要跃迁过程可以简化如图 1 所示。基态 3A<sub>2</sub> 上粒子被激发到激发态 3T<sub>2</sub> 能级上, 然后快速弛豫到能级 1E 上, 再通过激发态 1E 吸收跃迁到上能级 1A<sub>1</sub> 上。在长激光脉冲和强激光场的激发下, 各能级上的粒子数密度及入射光强随时间和入射距离变化的基本速率方程为:

$$\partial N_1 / \partial t = - N_1 \sigma_g \phi + (N_2 / \tau_g), \quad (1a)$$

$$\partial N_2 / \partial t = N_1 \sigma_g \phi - (N_2 / \tau_g) - N_2 \sigma_e \phi + (N_0 - N_1 - N_2) / \tau_e, \quad (1b)$$

$$\partial \phi / \partial z = - \phi (\sigma_g N_1 + \sigma_e N_2). \quad (1c)$$

在式中忽略了晶体的其它吸收和散射损耗, 并认为 3T<sub>2</sub> 和 1E 能级间的弛豫极快, 同时 3T<sub>2</sub> 能级到基态

的弛豫极慢, 以至于可以忽略 3T<sub>2</sub> 能级的粒子数密度。N<sub>1</sub>、N<sub>2</sub> 和 N<sub>0</sub> 相应为 3A<sub>2</sub>、1E 能级上和晶体中总的粒子数密度。φ 是光子通量, σ<sub>g</sub> 和 σ<sub>e</sub> 分别是基态 3A<sub>2</sub> 和激发态 1E 上粒子对入射的 1064 nm 波长激光的吸收截面, σ<sub>g</sub> > σ<sub>e</sub>, 而 τ<sub>g</sub> 和 τ<sub>e</sub> 分别是激发态 1E 和 1A<sub>1</sub> 上的粒子寿命, τ<sub>g</sub> ≈ 3 μs ≫ τ<sub>e</sub>。

在连续或长脉冲激光入射的情况下, 各能级上的粒子数可以认为处于稳态。因此, 方程中对时间的微分可以认为是零。根据(1a)式和(1b)式可得 N<sub>1</sub> = N<sub>2</sub> / φτ<sub>g</sub>σ<sub>g</sub> = N<sub>0</sub> / (1 + φτ<sub>g</sub>σ<sub>g</sub> + φ<sup>2</sup>τ<sub>g</sub>σ<sub>g</sub>τ<sub>e</sub>σ<sub>e</sub>)。而透过率 T = I<sub>out</sub> / I<sub>in</sub> = φ<sub>out</sub> / φ<sub>in</sub>, I = φhν 是激光功率密度, hν = 1.87 × 10<sup>-19</sup> J 是单个 1064 nm 波长光子能量。将以上各式代入(1c)式, 积分可得描述晶体透过率与入射激光功率密度关系的公式:

$$T = T_0 \exp[\sigma_g \tau_e \phi_{in} (1 - T)] \left[ \frac{1 + \sigma_e \tau_g \phi_{in} T}{1 + \sigma_e \tau_g \phi_{in}} \right]^{1 - \frac{\sigma_e}{\sigma_g}}, \quad (2)$$

式中 T<sub>0</sub> = exp(-σ<sub>g</sub>N<sub>0</sub>d) 是晶体的初始透过率, d 是晶体的通光长度。根据(2)式可得到图 2 曲线。该曲线由相似的两段饱和吸收曲线构成, 随着入射激光功率密度的增强, 晶体的透过率曲线存在一个平

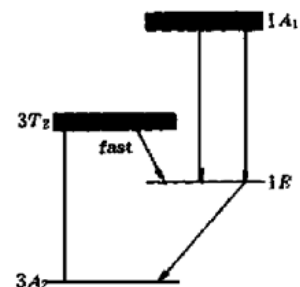


Fig. 1 The scheme of the energy lever of Cr<sup>4+</sup>: YAG crystal

\* 国家自然科学基金(69778008)资助项目。

台,表示基态吸收的饱和,而当入射激光继续增强时,晶体透过率可继续增加到趋向透明,呈与弱入射激光时相似的饱和吸收曲线,表示激发态吸收的饱和。

当入射激光比较弱,即  $\phi_m \tau_e \sigma_g \ll 1$  时,(2) 式可简化为:

$$T = T_0 \left[ \frac{1 + \sigma_e \tau_g \phi_m T}{1 + \sigma_e \tau_g \phi_m} \right]^{1 - \frac{\sigma_g}{\sigma_e}} \quad (3)$$

(3) 式就是基态吸收时的透过率方程.当入射激光增强时透过率趋向基态吸收饱和,基态吸收饱和透过率  $T_s = T_0^{\sigma_g/\sigma_e}$ ,这个结论与文献[6]一致。

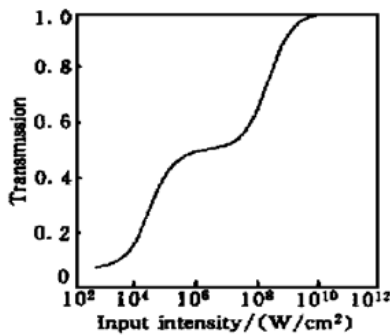


Fig. 2 The curve of the transmission of  $\text{Cr}^{4+}$  : YAG crystal varying with the input intensity, according to Eq. (2)

而当入射激光很强时,即  $\phi_m \tau_g \sigma_e \gg 1$ , (2) 式则可简化为:

$$T = T_s \exp[\sigma_e \tau_e \phi_m (1 - T)] \quad (4)$$

(4) 式就是激发态吸收时的透过率方程.同样地,当入射激光增强时透过率趋向激发态吸收饱和,激发态吸收饱和透过率趋近于 1。

由此可见,式中晶体总的透过率由两部分相乘而成,两项分别代表晶体的基态吸收和激发态吸收对入射激光的作用.当分别考虑弱入射激光和强入射激光时,方程可分别简化为(3) 式和(4) 式.根据推导的结果,可对饱和吸收晶体的应用进行优化。

对用于  $Q$  开关的饱和吸收晶体,损耗阶跃量是衡量晶体开关质量的一个重要参数.在强激光入射调  $Q$  的情况下,晶体对激光的作用主要在于激发态吸收.由于晶体破坏阈值的限制,可能难以达到激发态吸收饱和,但可用(4) 式对开关进行参数优化.根据定义,晶体对激光的损耗阶跃量可表示为:

$$\Delta L = T - T_0 = T_s \exp[\sigma_e \tau_e \phi_m (1 - T)] - T_0 \quad (5)$$

由上式可见,当入射激光光强一定时,损耗阶跃量由晶体的初始透过率确定,而对方程求微分取  $d(\Delta L)/dT_0 = 0$ ,可得到一个最大损耗阶跃量的极

大值  $\Delta L_{\max}$ (见图 3) 及相应的晶体的初始透过率。

$$\Delta L_{\max} = T_0 \frac{\sigma_g/\sigma_e - 1 + T_0 \sigma_g \tau_e \phi_m}{1 - T_0 \sigma_g \tau_e \phi_m} \quad (6)$$

由图可见,入射激光越弱,最大损耗阶跃量越小,而与最大损耗阶跃量对应的晶体初始透过率也越大.当入射激光太强时,则因为晶体吸收立即饱和而损耗阶跃量不存在极大值,只有最大值  $1 - T_0$ 。实际上,由于任何晶体都有其破坏阈值而难以存在这种情况.因此,可以根据实际的实验参数,确定一个晶体的初始透过率以得到最大的调  $Q$  效果。

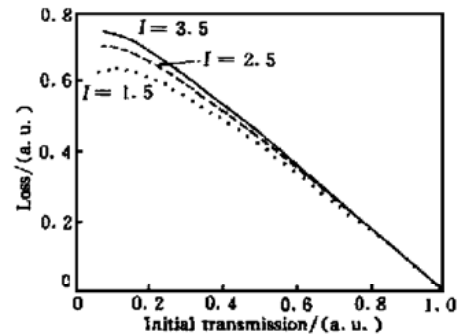


Fig. 3 When the input intensity is 1.5, 2.5 and  $3.5 \times 10^8$   $\text{W}/\text{cm}^2$ , the loss changes with the initial transmission of  $\text{Cr}^{4+}$  : YAG crystal, according to Eq. (5)

## 2 实 验

利用中国科学院上海光学精密机械研究所生长的  $\text{Cr}^{4+}$  : YAG 晶体,对其进行不同入射光强下的透过率测量.实验采用脉冲式被动调  $Q$  Nd: YAG 激光器作为激光源,脉冲宽度稳定为 10 ns.以一块双面镀 1064 nm 的增透膜、初始透过率  $T_0 = 7\%$  的  $\text{Cr}^{4+}$  : YAG 晶体作为样品,通过改变入射晶体的光功率密度,用示波器测量透射光强,计算随入射光强变化的透过率.为避免晶体破坏,适当限制平均入射激光强度在  $3.6 \times 10^8 \text{ W}/\text{cm}^2$  以下。

由于入射激光脉冲存在空间和时间上的强度分布  $I_{\text{in}}(t, r) = \phi_m(t, r) h\nu$ ,于是根据(4) 式,实际上晶体的透过率为:

$$T' = \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} T[I_{\text{in}}(t, r)] I_{\text{in}}(t, r) dt dS}{\int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} I_{\text{in}}(t, r) dt dS} \quad (7)$$

设入射激光脉冲的空间和时间分布是高斯函数  $I_{\text{in}}(t, r) = I_{\text{peak}} \exp(-t^2/k^2) \exp(-r^2/R^2)$ ,  $I_{\text{peak}}$  是入射激光脉冲的峰值光强,入射激光脉冲的脉宽 (FWHM) 可表示为  $\Delta t = 2k \sqrt{\ln 2}$ ,入射激光脉冲的

空间直径可表示为  $\Delta D = 2\Delta r = 2R \sqrt{\ln 2}$ 。可近似假设脉冲在空间的波形是圆锥形, 则脉冲的峰值强度约是平均入射光强的两倍, 再考虑到晶体的其它吸收和散射因素对出射激光的衰减影响  $R$  (在本实验中  $R$  约为 0.14),  $T_e = T_t - R$ , 这里下标 e 和 t 分别表示实验值和理论值, 用(4)式和(7)式对实验点进行拟合, 结果如图 4 所示。

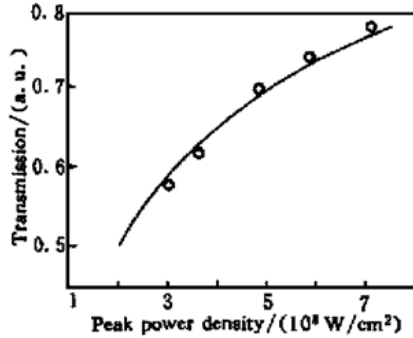


Fig. 4 The curve of the transmission of  $\text{Cr}^{4+}$ : YAG crystal varying with the peak power density, the line agrees with Eq. (4), and the circle is the points from experiment

从图中可见, 实验点与理论曲线基本符合, 其位置基本处在基态吸收基本饱和而激发态吸收尚未饱和的阶段。在强激光的入射下, 晶体的透过率超过基态饱和吸收点  $T_s$  而继续增加, 并有饱和趋势。许多文献所提供的晶体参数差异很大<sup>[1, 5-8]</sup>。我们根据文献[1, 5], 取参数为:  $\sigma_g = 8.7 \times 10^{-18} \text{ cm}^2$ ,  $\sigma_e = 2.2 \times 10^{-18} \text{ cm}^2$ , 与本实验点拟合得到  $\tau_e \approx 550 \text{ ps}$ , 此结果与我们以前的实验结果基本一致<sup>[9]</sup>。用(4)式得到的理论曲线可以解释其它晶体实验得到的、用基态饱和吸收无法解释的相似的实验现象。

**结论** 用速率方程推导了强激光入射下(包括饱和吸收晶体的激发态吸收)的透过率与入射激光光强的方程, 并且用  $\text{Cr}^{4+}$ : YAG 晶体的实验加以证实。推

算出  $\text{Cr}^{4+}$ : YAG 晶体第二激发态能级的寿命  $\tau_e$  约为 550 ps。所得的方程和能级寿命的测量方法可以推广到以  $\text{Cr}^{4+}$ : YAG 晶体为代表的、存在激发态吸收(ESA)的饱和吸收晶体与激光相互作用。应用所得表达式, 对晶体的  $Q$  开关性质进行了优化。

## 参 考 文 献

- [1] Shimony Y, Kalisky Y, Chai B H T. Quantitative studies of  $\text{Cr}^{4+}$ : YAG as a saturable absorber for Nd: YAG laser. *Opt. Material*, 1995, **4**(4): 547~ 551. or Shimony Y, Burshtein *et al.*. Repetitive  $Q$ -switching of a CW Nd: YAG laser using  $\text{Cr}^{4+}$ : YAG saturable absorbers. *IEEE J. Quant. Electron.*, 1996, **32**(2): 305~ 310
- [2] Wan Xiaoke, Lin Lihuang, Ouyang Bin *et al.*. Sturable excited state absorption of  $\text{Cr}^{4+}$ : YAG for  $Q$ -Switching Nd: YAG laser. *J. Chinese Lasers*, 1997, **B6**(3): 1~ 3
- [3] Brushtein Z, Blau P, Kalisky Y *et al.*. Excited state absorption studies of  $\text{Cr}^{4+}$  ions in several garnet hot crystal. *IEEE J. Quant. Electron.*, 1998, **34**(2): 292~ 299
- [4] Xiao Guohua, Bass M. A generalized model for passively  $Q$ -switched lasers including excited state absorption in the saturable absorber. *IEEE J. Quant. Electron.*, 1997, **33**(1): 41~ 44
- [5] 王加贤, 张文珍, 王清月等.  $\text{Cr}^{4+}$ : YAG 在对撞脉冲锁模的 Nd: YAG 激光器中实现被动锁模的研究. *光学学报*, 1998, **18**(8): 983~ 987
- [6] 欧阳斌, 丁彦华, 万小珂等.  $\text{Cr}^{4+}$ : YAG 可饱和吸收特性与被动  $Q$  开关性能研究. *光学学报*, 1996, **16**(12): 1665~ 1670
- [7] Yim S H, Lee D R, Rhee B K *et al.*. Nonlinear absorption of  $\text{Cr}^{4+}$ : YAG studied with laser of different pulse widths. *Appl. Phys. Lett.*, 1998, **73**(22): 3193~ 3195
- [8] Dascalu T, Philipps G, Weber H. Investigation of a  $\text{Cr}^{4+}$ : YAG passive  $Q$ -switch in CW pumped Nd: YAG lasers. *Opt. & Laser Technology*, 1997, **29**(3): 145~ 149
- [9] 万小珂, 林礼煌, 欧阳斌等.  $\text{Cr}^{4+}$ : YAG 被动调  $Q$  与激发态吸收饱和. *光学学报*, 1997, **17**(11): 1567~ 1570

## Absorption of Excited State of $\text{Cr}^{4+}$ : YAG Crystal

Ren Yuxin Lin Lifuang Ouyang Bin Wan Xiaoke

(Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, The Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800)

(Received 28 June 1999; revised 29 January 2000)

**Abstract:**  $\text{Cr}^{4+}$ : YAG is studied as a saturable absorber of 1064 nm laser. The dynamic process of excited state absorption (ESA) is described by using rate equations, with the crystal interacting with low or high power laser. The function about intensity varying with the transmission derived by rate equations is demonstrated by experiment. Therefore, it is shown that the  $Q$  switching is possible and can be optimized by using the ESA of the crystal.

**Key word:**  $\text{Cr}^{4+}$ : YAG; excited absorption;  $Q$ -switch