

在钕玻璃中双光子共振吸收引起的 非线性折射率*

吴存恺 范俊颖

(中国科学院上海光学精密机械研究所)

引 言

钕玻璃激光介质的非线性折射率系数 n_2 的存在是高功率激光器研制的最大障碍。它不仅引起光束的自聚焦等效因而使玻璃介质损坏,而且会使光束质量严重降低。因此,为了改善高功率钕玻璃激光器的性能,人们寻找各种低非线性折射率系数 n_2 的玻璃基质。对于氧化物玻璃, $n_2 > 1.0 \times 10^{-13}$ 静电单位,如果用氟代替氧可使 n_2 减小,氟硼酸玻璃的 n_2 可达 0.8×10^{-13} 静电单位,氟磷酸玻璃 n_2 可小于 0.5×10^{-13} 静电单位,无氧氟化物玻璃的 n_2 最小,这种玻璃的基本网络是 BcF_2 。这些考虑都是从玻璃基质的角度来分析非线性折射率系数 n_2 。然而,在钕玻璃放大器中,钕离子并不都处于基态,而是在各能级有一定的粒子数分布。因此钕离子对非线性折射率系数有一定贡献。并且,钕离子在 5320 埃附近有一较强的吸收带,当高功率激光在钕玻璃放大器中传播时,钕离子会产生 1.06 微米激光的双光子共振吸收。这种双光子共振吸收对 n_2 有显著影响。本文从 $Nd^{3+}(4f^3)$ 的电子态本征函数出发,计算了双光子共振激发条件下引起的 n_2 。计算表明,即使基质玻璃是无 n_2 的介质,在高功率钕玻璃放大器中,由于 Nd^{3+} 对 1.06 微米激光的双光子吸收也会引起非线性效应。这个非线性折射率系数是无法克服的。我们用 5320 埃波长的简并的四波混频实验初步证实了理论的预言。

计 算 结 果

因为只有双光子共振条件下才对非线性折射率系数有重要贡献。因此我们视钕离子是一个三能级系统,如图 1 所示。其中各能级的位置的数字是根据文献 [1] 所给出的有关能级的数值取平均而得出的,与实际上吸收线峰值的位置略有差别。我们已经给出双光子吸收情况下的非线性极化率为^[2]

$$\chi_{(2\omega)} = \sum_{m,n} B_{mn}^{(2)} p_{mn}$$

其中

* 1979年1月11日收到。

$$B_{mn}^{(2)} = \frac{\sum_k (p_{mk} A_{kn}^{(1)} - p_{kn} A_{mk}^{(1)})}{\hbar(-2\omega + \omega_{mn} - i\Gamma_{mn})}, \quad A_{mn}^{(1)} = \frac{p_{mn}(\rho_{mm}^{(0)} - \rho_{nn}^{(0)})}{\hbar(\omega - \omega_{mn} + i\Gamma_{mn})}$$

式中 $p_{mn} = -\langle m | e r | n \rangle$ 为偶极跃迁矩阵元, $\rho_{mn}^{(0)}$ 为零级近似密度矩阵元, Γ_{mn} 为横向弛豫速率. 于是, 为了求得 $\chi_{(2\omega)}$ 必须求出偶极跃迁矩阵元 p_{mn} . 由文献 [3] 知,

$$p_{mn} = \frac{n^2 + 2}{3n^{1/2}} \sum_{\lambda=2,4,6} \Omega_{\lambda}^{1/2} \langle [S, L] J \| U^{(\lambda)} \| (S' L') J' \rangle,$$

式中 n 为介质的折射率, Ω_{λ} 取自文献 [4]. 对于硅酸盐玻璃系列 K-Ba-Si, $\Omega_2 = 4.27 \times 10^{-20}$ 厘米², $\Omega_4 = 2.32 \times 10^{-20}$ 厘米², $\Omega_6 = 1.94 \times 10^{-20}$ 厘米². Ω_2 的大小标志钕离子

(18955 厘米⁻¹) 3 ————— 4 $G_{7/2}$ + 4 $G_{9/2}$ + 2 $K_{13/2}$

(11459 厘米⁻¹) 2 ————— 4 $F_{3/2}$

(0) 1 ————— 4 $I_{9/2}$

图 1 参与双光子吸收的钕离子能级

Nd^{3+} 处 4f 轨道与周围阴离子外层电子轨道的混杂程度, 而 Ω_4, Ω_6 值与 Nd^{3+} 的对称性有关. Judd^[5] 已经给出了包含基能级 $4I_{9/2}$ 跃迁的约化矩阵元 $\langle f^3 [4I_{9/2}] \| U^{(\lambda)} \| f^3 [S' L'] J' \rangle$. 但在我们的计算中需要激发态的约化矩阵元. 为了求得这些约化矩阵元, 我们用 Wybourne^[6] 给出的 Nd^{3+} 电子态的本征函数. 此本征函数考虑了自旋轨道耦合, 认为 J 是好量子数. 例如,

$${}^4F_{3/2} = -0.0562 {}^4S_{3/2}^{(00)} - 0.0622 {}^2P_{3/2}^{(11)} - 0.0121 {}^4D_{3/2}^{(20)} \\ + 0.2268 {}^2D_{3/2}^{(20)} - 0.0577 {}^2D_{3/2}^{(21)} + 0.9685 {}^4F_{3/2}^{(10)}$$

即具有相同 J 但 (S, L) 值不同的态严重混合. 用这些波函数, 由 Judd^[7] 给出的约化矩阵元表就可求出所需要的约化矩阵元. 结果列于表 1 中.

表 1 激发态约化矩阵元 $\langle [SL] J \| U^{(\lambda)} \| (S' L') J' \rangle$

$(S' L') J'$	$(SL) J$	$\langle (SL) J \ U^{(2)} \ (S' L') J' \rangle$	$\langle (SL) J \ U^{(4)} \ (S' L') J' \rangle$	$\langle (SL) J \ U^{(6)} \ (S' L') J' \rangle$
${}^2K_{13/2}$	${}^4F_{3/2}$	0	-0.0622	-0.0329
${}^4G_{7/2}$	${}^4F_{3/2}$	-0.9382	+0.5242	-0.5316
${}^4G_{9/2}$	${}^4F_{3/2}$	+0.9680	-0.4491	+0.5916

对于含 Nd_2O_3 重量比浓度为 1.2% 的硅酸盐玻璃, 钕离子的浓度约为 1.2×10^{20} 离子/厘米³. 由上面给出的数据求得

$$\chi_{(2\omega)} = 6.37 \times 10^{-34} \text{ 静电单位/原子,}$$

从而得 $n_2^{2\omega} \approx 0.38 \times 10^{-13}$ 静电单位. 这个数值很接近氟磷酸玻璃的非线性折射率系数.

用 Nd:YAG 激光输出倍频光 5320 埃做泵浦源, 采用文献 [8] 给出的实验装置, 研究了铈玻璃介质的简并的四波混频作用. 当强泵浦束的能量为 25 毫焦耳, 入射光的能量为 8 毫焦耳时, 明显地观察到后向反射波. 后向反射波的强度约为 4×10^{-2} 毫焦耳. 大约为重火石玻璃 ZF₅ 做介质时后向反射波强度的六分之一. 但是用基质白玻璃做介质时, 在相同的条件下没有观察到后向反射波. 对于 ZF₅, $n_2 \simeq 6.6 \times 10^{-13}$ 静电单位, 因而对于 5320 埃, 此种硅酸盐铈玻璃的 $n_2 \simeq 2.7 \times 10^{-13}$ 静电单位. 这表明铈玻璃中铈离子的共振吸收对介质的非线性折射率系数有重要影响.

铈玻璃在 5320 埃附近有一吸收带, 在共振吸收情况下有^[9]

$$n_2 = \frac{\pi p^4 N}{\hbar^3 (\Omega - \omega)^3},$$

式中 p 为偶极跃迁矩阵元, Ω 是跃迁频率, ω 为光波频率. 因此当靠近共振时, n_2 变得很大. 我们所使用的激光谱线全宽度约为 5 厘米^{-1} . 用前面给出的数据可以求得 $n_2 \simeq 2.3 \times 10^{-13}$ 静电单位, 这与四波混频实验结果很接近.

由于双光子共振吸收引起的非线性折射率系数 n_2 与铈玻璃中铈离子的浓度有关, 因此建议在铈玻璃放大器中使用低浓度的铈玻璃介质.

参 考 文 献

- [1] M. M. Mann, L. G. Deshazer, *J. Appl. Phys.*, **41** (1970), 2951.
- [2] 吴存恺, “多能级原子系统三级极化率理论”, 待发表.
- [3] W. F. Krupke, *IEEE J. Quantum Electronics*, **QE-10** (1974), 450.
- [4] 干福熹, 科学通报, **12**(1978), 723.
- [5] B. R. Judd, *Phys. Rev.*, **127** (1962), 750.
- [6] B. G. Wybourne, *J. Chem. Phys.*, **34** (1961), 279.
- [7] B. R. Judd, *Proc. Roy. Soc.*, **250** (1959), 562.
- [8] 吴存恺、杨天龙、舒海珍、王志英, 物理学报, 待发表.
- [9] D. Grischkowsky, J. A. Armstrong, *Phys. Rev.*, **A6** (1972), 1566; D. M. Bloom, G. C. Bjorklund, *Appl. Phys. Lett.*, **31** (1977), 592.

THE NONLINEAR REFRACTIVE INDEX OF Nd³⁺:GLASS RESULTED FROM TWO-PHOTON RESONANT ABSORPTION BY Nd³⁺ IONS

WU CUN-KAI FAN JUN-YIN

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

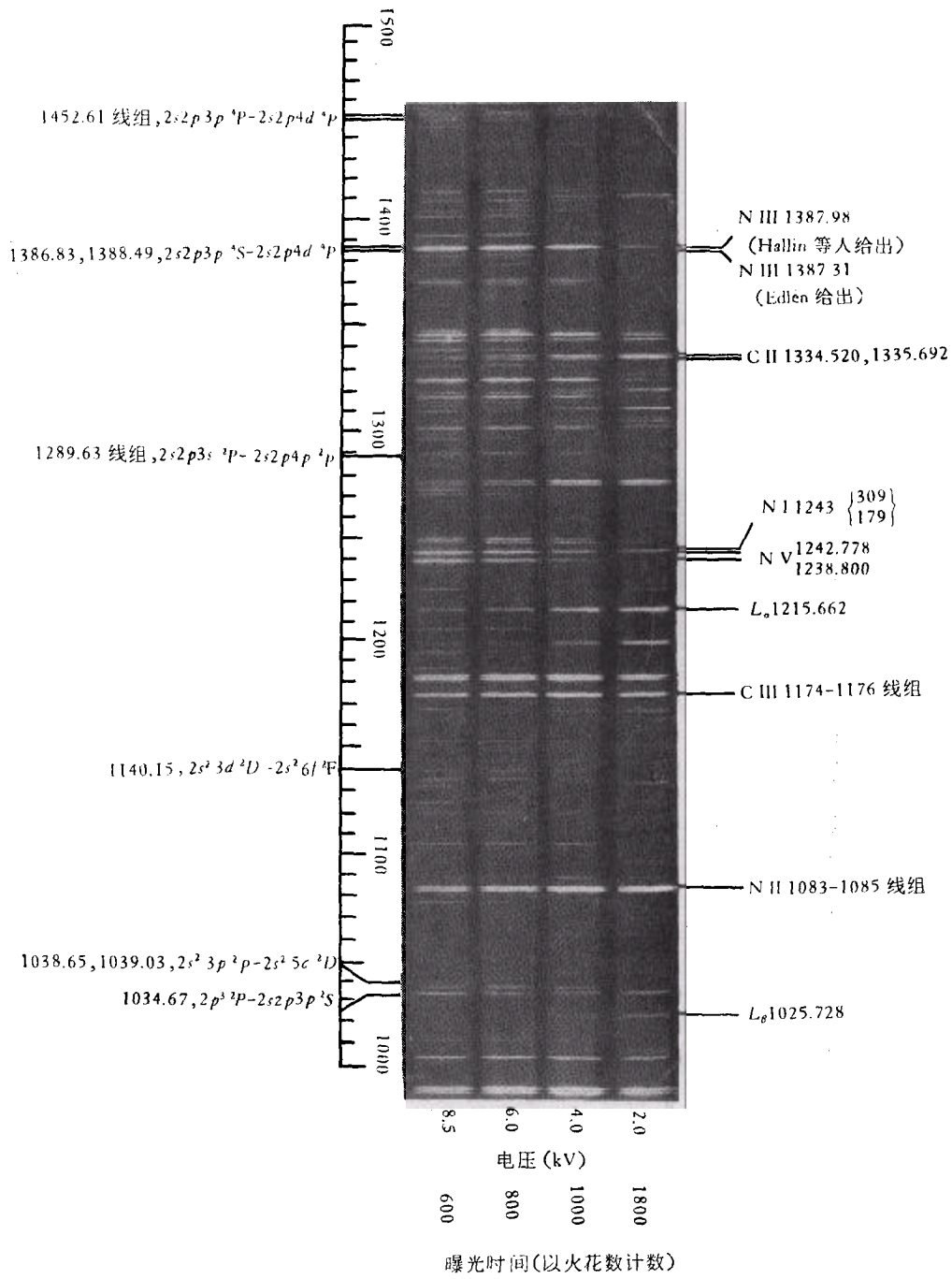


图 1 部分 NIII 新线及其强度随放电电压的变化情形

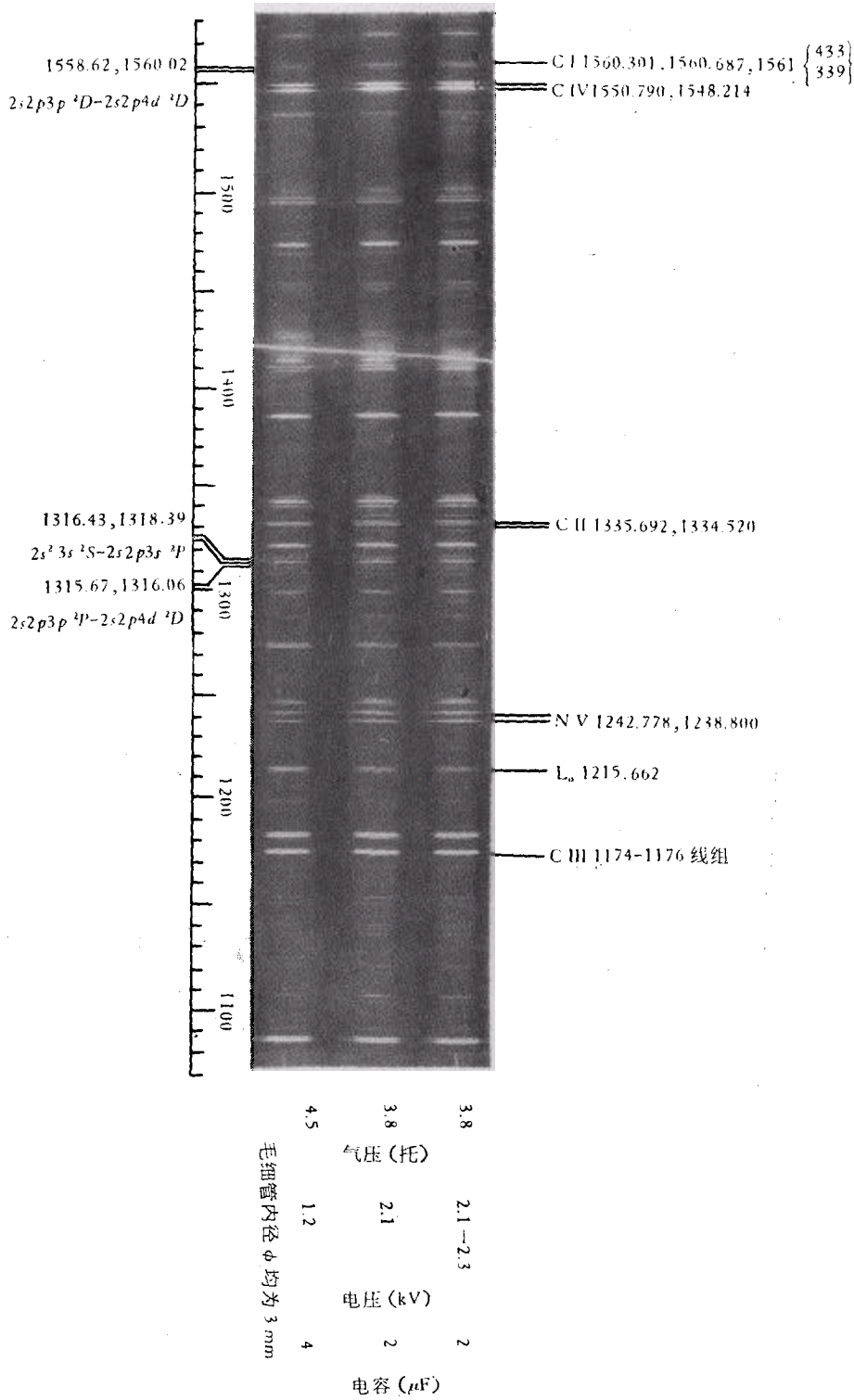


图 4 NIII 1315.67 Å, 1316.06 Å 和 1558.62 Å, 1560.02 Å 谱线