

基于实验参数的 Dy^{3+} , Na^+ : PbGa_2S_4 中红外激光理论研究*

余学舟¹⁾²⁾ 黄昌保^{1)†} 吴海信¹⁾ 胡倩倩¹⁾²⁾ 刘国晋¹⁾²⁾
李亚¹⁾²⁾ 朱志成¹⁾²⁾ 祁华贝¹⁾²⁾ 倪友保¹⁾ 王振友¹⁾

1) (中国科学院合肥物质科学研究院, 安徽光学精密机械研究所, 安徽省光子器件与材料重点实验室, 合肥 230031)

2) (中国科学技术大学, 合肥 230026)

(2024 年 2 月 2 日收到; 2024 年 6 月 25 日收到修改稿)

基于加工出的 Dy^{3+} , Na^+ : PbGa_2S_4 晶体元件的吸收光谱测试以及 Judd-Ofelt 理论计算数据, 通过互易法计算出各发光能级间的荧光吸收与发射截面. 通过测试与计算得到的数据, 数值模拟了采用 $1.3\ \mu\text{m}$ 和 $1.7\ \mu\text{m}$ 泵浦源直接抽运 Dy^{3+} , Na^+ : PbGa_2S_4 晶体产生 $4.3\ \mu\text{m}$ 中红外激光的实验方案. 计算分析了激光功率、增益和吸收系数在晶体内的空间分布, 分析比较了泵浦光功率、元件长度和输出镜反射率对输出功率的影响. 模型中在光路中引入 $2.9\ \mu\text{m}$ 级联激光振荡, 以此抽运因为 $4.3\ \mu\text{m}$ 发光堆积在能级 ${}^6\text{H}_{13/2}$ 上的粒子数, 发现其可以有效降低能级 ${}^6\text{H}_{11/2}$ 到 ${}^6\text{H}_{13/2}$ 跃迁的自终止效应, 提高激光输出功率. 计算结果表明: 采用 $1.3\ \mu\text{m}$ 和 $1.7\ \mu\text{m}$ 泵浦源, 当功率都为 $4\ \text{W}$ 时, 最大的输出功率分别为 $103\ \text{mW}$ 和 $315\ \text{mW}$, 斜率效率可达到 2.8% 和 8.0% . 数值模拟的结果对下一步晶体元件的改良加工以及光路搭建参数的选取提供了一定的指导意义.

关键词: 中红外激光, 数值模拟, PbGa_2S_4 晶体

PACS: 42.50.-p, 78.20.Bh

DOI: 10.7498/aps.73.20240223

1 引言

$3\text{--}5\ \mu\text{m}$ 波段中红外激光位于重要的大气窗口之一, 属于“分子指纹区”, 可对应于大气中多种气体的特征吸收峰, 同时包含着水的吸收以及飞机、导弹尾焰的黑体辐射波段, 因此被广泛应用于光电对抗、环境监测、卫星遥感和大气通信等军事、军事领域^[1-4]. 在目前实现 $3\text{--}5\ \mu\text{m}$ 激光输出的手段中, 固体激光器相对于其他输出方式具有小型化、全固态和稳定性高等优势, 在实现大能量、高峰值功率激光输出方面具有显著潜力, 近年来受到了国内外科学学者的广泛关注^[5,6].

目前固体激光器实现中红外 $3\text{--}5\ \mu\text{m}$ 激光输出主要有 3 种方案. 1) 基于磷锗锌、硒碲银等非线性晶体, 通过非线性频率转换技术获得中红外激光输出^[7-9]. 但存在激光器结构较为复杂等劣势. 2) 直接泵浦 Cr^{2+} , Fe^{2+} 等过渡金属离子掺杂的 II—VI 半导体化合物实现激光输出^[10,11]. 过渡金属离子具有超宽吸收和发射光谱, 有利于实现超快激光的输出, 但同时这类晶体生长困难, 掺杂离子浓度不均, 并且对应的泵浦光源尚不成熟, 一定程度上限制了其应用. 3) 采用激光二极管直接泵浦掺 Er^{3+} , Pr^{3+} , Dy^{3+} 的中红外激光晶体实现激光输出^[12-15], 此方案具有结构简单、效率高和光束质量好等优点, 因此备受关注. 在中红外波段, 传统的氧化物晶体

* 国家重点研发计划 (批准号: 2021YFB3601503) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: cbhuang@aiofm.ac.cn

由于具有较高的声子能量, 导致多声子弛豫, 很难实现中红外激光输出; 而声子能量较低的氟、氯化物晶体, 易发生潮解和氧化, 使得其晶体生长和器件加工使用具有一定困难. 相对而言, 硫族化合物拥有较低的声子能量, 不具有吸湿性并且在空气中稳定, 其中 PbGa_2S_4 晶体已经吸引了许多研究者的目光. PbGa_2S_4 属于正交晶系, 空间群 $Fddd-D_{2d}^{24}$ [16], 具有层状结构, 利于稀土离子的掺杂, 同时具有较低的有效声子能量 (280 cm^{-1}) [17], 益于中红外波段激光发射.

在能够实现中红外发射的三价稀土离子中, Dy^{3+} 已经吸引了许多研究者的目光. Dy^{3+} 可以采用 $1.3\text{ }\mu\text{m}$ 和 $1.7\text{ }\mu\text{m}$ 激光二极管作为泵浦源, 其能级 ${}^6\text{H}_{13/2}$ 到 ${}^6\text{H}_{15/2}$ 的跃迁对应 $2400\text{--}3500\text{ nm}$ 波段激光输出, 能级 ${}^6\text{H}_{13/2}$ 到能级 ${}^6\text{H}_{11/2}$ 的跃迁可对应 $3700\text{--}4800\text{ nm}$ 的激光输出 [18]. 同时其 $4f\text{--}4f$ 跃迁对应的壳内电子数是偶数, Stark 劈裂受晶体场的影响较大, 有助于实现宽带激光发射, 从而实现超快激光输出. 在 $3\text{ }\mu\text{m}$ 波段, Dy^{3+} 相对于其他可以实现 $3\text{ }\mu\text{m}$ 激光输出的稀土离子, 有着最宽的发射带宽. 目前, Vincent 等 [19] 在掺 Dy^{3+} 氟化物光纤中实现了功率达 10.1 W 的 $3.24\text{ }\mu\text{m}$ 连续激光输出, 斜效率达到 58% . 在超快激光方面, 2019 年 Wang 等 [20] 利用非线性偏振锁模技术, 在掺 Dy^{3+} 氟化物光纤中实现了脉冲宽度为 828 fs 的激光输出, 中心波长为 $3.1\text{ }\mu\text{m}$; 2023 年, Jackson 等 [21] 在掺 Dy^{3+} 的 InF_3 光纤中实现了高效的 $3.05\text{ }\mu\text{m}$ 激光输出, 输出功率为 0.36 W , 效率高达 82% , 是氟化物光纤激光器所实现的最高效率水平. 总的来说, 在 $3\text{ }\mu\text{m}$ 波段掺 Dy^{3+} 氟化物光纤激光器功率方面虽然还无法超过 ZGP 等非线性频率转换器, 但凭借体积小、高效率、稳定性高的优势, 在民用小型化激光器市场颇具优势. 对于波长更长、研究较少的 $4.3\text{ }\mu\text{m}$ 附近中红外波段, 国外也已经成功在 Dy^{3+} 掺杂的 PbGa_2S_4 , CaGa_2S_4 , LiYF_4 等晶体中实现了激光输出 [13,15,17].

虽然国外 Jelinkova 等 [17] 以及 Šulc 等 [22] 已经在 $\text{Dy}^{3+}:\text{PbGa}_2\text{S}_4$ 中实现了 $4.3\text{ }\mu\text{m}$ 处的激光输出, 但由于高质量、大尺寸晶体难以生长, 晶体易解离特性使得元件加工困难, 并且 Dy^{3+} 在 $4.3\text{ }\mu\text{m}$ 处发光存在自终止效应, 使得目前激光输出斜率效率和输出功率依然较低, 并且国内还未有相关的激光实验报道. 为了更系统更准确地研究和预测晶体尺

寸、泵浦源、光路参数对直接泵浦 $\text{Dy}^{3+}:\text{PbGa}_2\text{S}_4$ 激光实验的影响, 本文基于之前工作中所生长的 Dy^{3+} , $\text{Na}^{+}:\text{PbGa}_2\text{S}_4$ 元件所测量的光谱参数, 分别建立了采用 1320 nm 和 1730 nm 泵浦源对 Dy^{3+} , $\text{Na}^{+}:\text{PbGa}_2\text{S}_4$ 直接抽运的实验模型, 并在谐振腔中引入能级 ${}^6\text{H}_{13/2}$ 到 ${}^6\text{H}_{15/2}$ 的跃迁对应的 $2.9\text{ }\mu\text{m}$ 激光振荡, 抽运能级 ${}^6\text{H}_{13/2}$ 上粒子到能级 ${}^6\text{H}_{15/2}$, 以减少因能级 ${}^6\text{H}_{13/2}$ 上粒子数堆积导致的能级 ${}^6\text{H}_{11/2}$ 到 ${}^6\text{H}_{13/2}$ 跃迁的自终止效应 [23]. 通过模拟整体分析了不同泵浦波长下, 晶体长度、泵浦功率、谐振腔参数对激光器性能的影响, 预测了合适的晶体加工长度, 输出镜反射率等参数, 以期为之后激光实验中晶体的加工和光路搭建提供指导.

2 理论模型

2.1 理论模型

采用 $1.3\text{ }\mu\text{m}$ 和 $1.7\text{ }\mu\text{m}$ 泵浦源泵浦 Dy^{3+} , $\text{Na}^{+}:\text{PbGa}_2\text{S}_4$ 输出 $4.3\text{ }\mu\text{m}$ 波长激光的三能级和四能级系统示意图分别如图 1(a), (b) 所示. 定义能级 ${}^6\text{H}_{11/2}$ 和能级 ${}^6\text{H}_{13/2}$ 之间跃迁产生的光为信号光 S, 能级 ${}^6\text{H}_{13/2}$ 和能级 ${}^6\text{H}_{15/2}$ 之间跃迁产生的光为信号光 I. 在模型中需要指出的是, 当采用 $1.7\text{ }\mu\text{m}$ 光泵浦时, 能级 ${}^6\text{H}_{13/2}$ 会经历激发态吸收过程, 吸收泵浦光跃迁到能级 ${}^6\text{H}_{7/2}+{}^6\text{F}_{9/2}$, 产生 $1.1\text{ }\mu\text{m}$ 左右的上转换发光 [24], 但由于能级 ${}^6\text{H}_{7/2}+{}^6\text{F}_{9/2}$ 到能级 ${}^6\text{H}_{9/2}+{}^6\text{F}_{11/2}$ 的快速弛豫过程, $1.1\text{ }\mu\text{m}$ 的发光迅速猝灭, 并且能级 ${}^6\text{H}_{13/2}$ 的受激吸收截面远小于基态能级 ${}^6\text{H}_{15/2}$, 所以在计算中未考虑该过程.

根据 Dy^{3+} 离子四能级和三能级系统的能级示意图 (图 1(a), (b)), 可以写出各能级粒子数密度 $N_i(z, t)$ 随时间变化的速率方程. 模型中采用均匀加宽, 认为一个能级在不同波长下的粒子数相同. 由于能级 ${}^6\text{H}_{9/2}+{}^6\text{F}_{11/2}$ 到能级 ${}^6\text{H}_{11/2}$ 的自发辐射速率很小, 可忽略不计. 同时, 因为 PbGa_2S_4 晶体具有较低的有效声子能量 ($\sim 280\text{ cm}^{-1}$), 只考虑能级 ${}^6\text{H}_{9/2}+{}^6\text{F}_{11/2}$ 到能级 ${}^6\text{H}_{11/2}$ 和能级 ${}^6\text{H}_{11/2}$ 到能级 ${}^6\text{H}_{13/2}$ 的非辐射跃迁过程, 其他非辐射跃迁过程可以忽略不计.

2.2 1320 nm 波长泵浦

描述粒子数密度随时间变化的速率方程可表示为

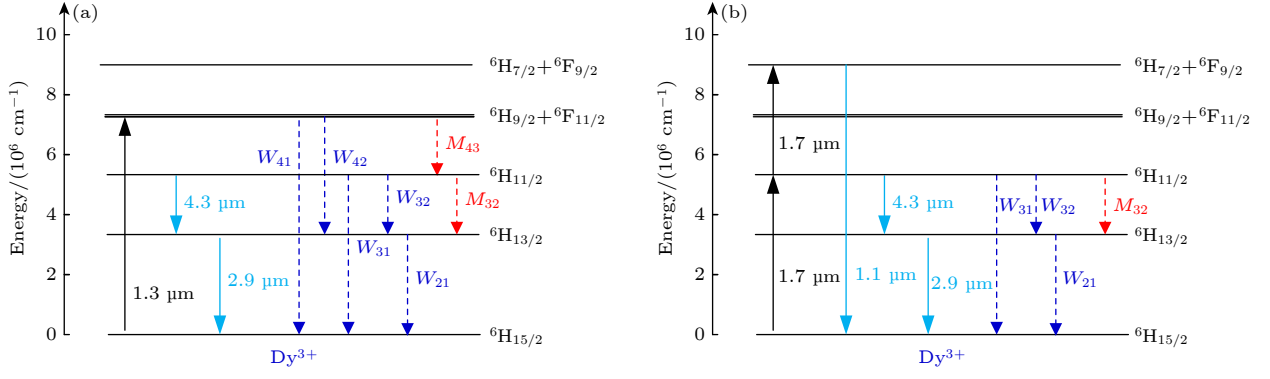

 图 1 Dy^{3+} 部分能级跃迁图 (a) 1320 nm 泵浦源; (b) 1730 nm 泵浦源

 Fig. 1. Partial energy level transition diagram of Dy^{3+} : (a) 1320 nm pumping; (b) 1730 nm pumping.

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial N_4(z, t)}{\partial t} = I_P(z, t)[\sigma_{14}N_1(z, t) - \sigma_{41}N_4(z, t)] - M_{43}N_4(z, t) - \frac{N_4(z, t)}{\tau_4}, \\ \frac{\partial N_3(z, t)}{\partial t} = I_S[\sigma_{23}N_2(z, t) - \sigma_{32}N_3(z, t)] + M_{43}N_4(z, t) - M_{32}N_3(z, t) - \frac{N_3(z, t)}{\tau_3}, \\ \frac{\partial N_2(z, t)}{\partial t} = I_I[\sigma_{12}N_1(z, t) - \sigma_{21}N_2(z, t)] + I_S[\sigma_{32}N_3(z, t) - \sigma_{23}N_2(z, t)] + M_{32}N_3(z, t) \\ \quad + W_{42}N_4(z, t) + W_{32}N_3(z, t) + M_{32}N_3(z, t) - N_2(z, t)/\tau_2, \\ \frac{\partial N_1(z, t)}{\partial t} = I_I[\sigma_{21}N_2(z, t) - \sigma_{12}N_1(z, t)] + I_P[\sigma_{41}N_4(z, t) - \sigma_{14}N_1(z, t)] + W_{41}N_4(z, t) \\ \quad + W_{31}N_3(z, t) + W_{21}N_2(z, t), N_1(z, t) + N_2(z, t) + N_3(z, t) + N_4(z, t) = N. \end{array} \right. \quad (1)$$

泵浦光、信号光 S 和信号光 I 随时间和空间变化的方程可以写为

$$\left\{ \begin{array}{l} \pm \frac{\partial P_P^\pm(z, t)}{\partial z} = \pm[\sigma_{41}N_4(z, t) - \sigma_{14}N_1(z, t) - \alpha - \alpha_P]P_P^\pm(z, t), \\ \pm \frac{\partial P_S^\pm(z, t)}{\partial z} = \pm[\sigma_{32}N_3(z, t) - \sigma_{23}N_2(z, t) - \alpha - \alpha_S]P_S^\pm(z, t), \\ \pm \frac{\partial P_I^\pm(z, t)}{\partial z} = \pm[\sigma_{21}N_2(z, t) - \sigma_{12}N_1(z, t) - \alpha - \alpha_I]P_I^\pm(z, t). \end{array} \right. \quad (2)$$

2.3 1730 nm 波长泵浦

粒子数密度随时间变化的速率方程可表示为

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial N_3(z, t)}{\partial t} = I_P[\sigma_{13}N_1(z, t) - \sigma_{31}N_3(z, t)] + I_S[\sigma_{23}N_2(z, t) - \sigma_{32}N_3(z, t)] \\ \quad - (W_{32} + W_{31} + M_{32})N_3(z, t) - N_3(z, t)/\tau_3, \\ \frac{\partial N_2(z, t)}{\partial t} = I_I[\sigma_{12}N_1(z, t) - \sigma_{21}N_2(z, t)] + I_S[\sigma_{32}N_3(z, t) - \sigma_{23}N_2(z, t)] \\ \quad + (M_{32} + W_{32})N_3(z, t) - N_2(z, t)/\tau_2, \\ \frac{\partial N_1(z, t)}{\partial t} = I_I[\sigma_{21}N_2(z, t) - \sigma_{12}N_1(z, t)] + I_P[\sigma_{31}N_3(z, t) - \sigma_{13}N_1(z, t)] \\ \quad + W_{31}N_3(z, t) + W_{21}N_2(z, t), \\ N_1(z, t) + N_2(z, t) + N_3(z, t) = N. \end{array} \right. \quad (3)$$

泵浦光、信号光 S 和信号光 I 随时间和空间变化的方程可以写为

$$\begin{cases} \pm \frac{\partial P_p^\pm(z, t)}{\partial z} = \pm[\sigma_{31}N_3(z, t) - \sigma_{13}N_1(z, t) - \alpha - \alpha_p]P_p^\pm(z, t), \\ \pm \frac{\partial P_s^\pm(z, t)}{\partial z} = \pm[\sigma_{32}N_3(z, t) - \sigma_{23}N_2(z, t) - \alpha - \alpha_s]P_s^\pm(z, t), \\ \pm \frac{\partial P_l^\pm(z, t)}{\partial z} = \pm[\sigma_{21}N_2(z, t) - \sigma_{12}N_1(z, t) - \alpha - \alpha_l]P_l^\pm(z, t). \end{cases} \quad (4)$$

(1) 式和 (3) 式中, N_1, N_2, N_3, N_4 分别代表能级 ${}^6\text{H}_{15/2}, {}^6\text{H}_{13/2}, {}^6\text{H}_{11/2}, {}^6\text{H}_{13/2}+{}^6\text{H}_{13/2}$ 上的粒子数密度; z 表示在谐振腔中位置坐标; t 表示泵浦持续时间; N 代表晶体中 Dy^{3+} 离子的掺杂浓度; τ_2, τ_3, τ_4 分别为能级 ${}^6\text{H}_{13/2}, {}^6\text{H}_{11/2}, {}^6\text{H}_{9/2}+{}^6\text{F}_{11/2}$ 的能级寿命; σ_{ij} 表示从能级 i 跃迁到能级 j 的受激吸收截面 (当 $i < j$ 时表示受激吸收, 当 $i > j$ 时表示受激发射); W_{ij} 表示从能级 i 到能级 j 的自发辐射速率; M_{ij} 表示从能级 i 到能级 j 的非辐射跃迁速率; I_p, I_s 和 I_l 分别代表功率为 P_p 的泵浦光、功率为 P_s 的信号光 S 和功率为 P_l 的信号光 I 的光强, 其计算公式为

$$I_x(z, t) = \frac{\lambda_x [P_x^+(z, t) + P_x^-(z, t)]}{hcA}, \quad x = P, S, I. \quad (5)$$

式中 λ 代表光的波长; h 表示普朗克常数; c 表示真空中光的速度; P^+, P^- 分别代表光前向和后向传输功率; A 为聚焦光束的光斑面积, A 在谐振腔中的表达式可以写为^[25]

$$A = [1 + (z/f)^2]A_s, \quad (6)$$

式中, A_s 为光束束腰位置的光斑面积, f 为谐振腔焦距.

(2) 式和 (4) 式中 α 代表光在晶体中的传输损耗, 为简单起见, 假设 α 与位置 z 和波长 λ 无关; α_p, α_s 和 α_l 分别代表晶体在泵浦光、信号光 S 和信号光 I 对应波长处的吸收系数.

在 1320 nm 和 1730 nm 泵浦下, 泵浦光、信号光 S 和信号光 I 在谐振腔端面满足的边界条件都为

$$\begin{cases} P_p^+(0) = P_p, \\ P_p^-(L) = R_p P_p^+(L), \\ P_s^+(0) = R_{s1} P_s^-(0), \\ P_s^-(L) = R_{s2} P_s^+(L), \\ P_l^+(0) = R_{l1} P_l^-(0), \\ P_l^-(L) = R_{l2} P_l^+(L), \end{cases} \quad (7)$$

式中, 0 和 L 分别代表谐振腔最左端面和最右端面

位置; R_p 代表谐振腔右端对泵浦光的反射率; R_{s1}, R_{s2} 分别代表谐振腔左端和右端对信号光 S 的反射率; R_{l1} 和 R_{l2} 分别代表谐振腔左端和右端对信号光 I 的反射率. 谐振腔输出功率可以通过向前传输的光束在谐振腔右端面功率以及谐振腔右端对对应输出光的反射率确定, 采用 (8) 式表示:

$$P_{\text{out}}(x) = (1 - R_{x2})P_x^+(L), \quad x = P, S. \quad (8)$$

2.4 参数选取

为了使数值模拟的结果能更加准确地预测 $\text{Dy}^{3+}, \text{Na}^+:\text{PbGa}_2\text{S}_4$ 的激光输出过程, 根据之前的实验结果来计算得到相关的参数. 之前我们采用垂直布里奇曼法成功生长出了较高质量的 $\text{Dy}^{3+}, \text{Na}^+:\text{PbGa}_2\text{S}_4$ 单晶, 并加工出尺寸为 4 mm×6 mm×17 mm 的晶体元件, 对其吸收光谱和荧光发射谱进行测试, 分别如图 2(a), (b) 所示^[26].

通过之前测试所得的常温近红外吸收光谱 (图 2(a)), 可以根据 (9) 式计算得到晶体在所对应最强吸收位置 1320, 1730 和 2875 nm 处的吸收截面分别为 $8.17 \times 10^{-21}, 4.87 \times 10^{-21}$ 和 $6.3 \times 10^{-21} \text{ cm}^2$.

$$\begin{aligned} \sigma_{\text{abs}} &= \frac{\alpha}{N_c} \\ &= -\frac{1}{dN_c} \ln \frac{-(1-R)^2 + \sqrt{(1-R^4) - 4R^2T}}{2R^2T}, \end{aligned} \quad (9)$$

式中, α 是吸收系数, N_c 是 Dy 离子掺杂浓度, d 是测试晶体片厚度, R 是晶体对应波段反射率, T 是晶体对应波段透过率. 同时, 根据测试得到的 3500—5500 nm 波段荧光发射光谱 (图 2(b)), 通过以下公式计算得到最强发射峰 4325 nm 处对应的发射截面为 $9.0 \times 10^{-21} \text{ cm}^2$ ^[27].

$$\sigma_{\text{em}}(\lambda) = \frac{A_{ij} \lambda^5 I(\lambda)}{8\pi c n^2 \int I(\lambda) \lambda d\lambda}, \quad (10)$$

式中, λ 是荧光发射波长, A_{ij} 是对应能级间自发跃迁几率, $I(\lambda)$ 是荧光强度, c 是真空中光速, n 是晶体折射率.

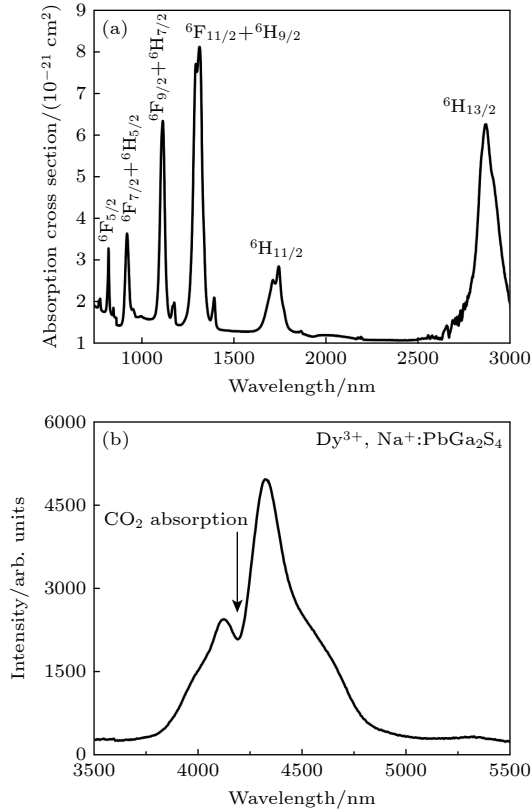


图2 Dy^{3+} , $\text{Na}^{+}:\text{PbGa}_2\text{S}_4$ 晶体的吸收光谱和荧光发射谱^[26]
(a) 500—3000 nm 吸收光谱; (b) 3500—5500 nm 荧光发射谱
Fig. 2. Absorption spectrum and fluorescence emission spectrum of Dy^{3+} , $\text{Na}^{+}:\text{PbGa}_2\text{S}_4$ crystal^[26]: (a) Absorption spectrum range from 500 to 3000 nm; (b) fluorescence emission spectrum range from 3500 to 5500 nm.

由于 4325 nm 处的受激吸收截面无法直接测量, 本文采用倒易法, 根据受激吸收截面和受激发射截面的相互关系进行计算. 在波长 λ 下, 受激发射截面和受激吸收截面之间可以用 (11) 式表示^[28]:

$$\sigma_{\text{em}}(\lambda) = \sigma_{\text{ab}}(\lambda) \frac{Z_l}{Z_u} \exp \left[\left(E_{\text{ZL}} - \frac{hc}{\lambda} \right) / kT \right], \quad (11)$$

式中, E_{ZL} 代表零声子线, 通常取上下多重态最低晶体场分量对应的能量之差; k 为玻尔兹曼常数; T 为温度; Z_u 和 Z_l 分别表示上多重态和下多重态的配分函数. Z_u 和 Z_l 可以根据上下多重态中各能级与各自最低晶体场能级之间的能量差 (E_j , E_i) 以及能级简并度 (g_j , g_i) 通过下式计算得到:

$$Z_l = \sum_j g_j \exp [-E_j / (kT)], \quad (12a)$$

$$Z_u = \sum_i g_i \exp [-E_i / (kT)]. \quad (12b)$$

目前未见有关 Dy^{3+} , $\text{Na}^{+}:\text{PbGa}_2\text{S}_4$ 晶体场参数的报道, 我们采用和 PbGa_2S_4 同为正交晶系的 LaF_3 进行近似处理^[29]. 通过计算得到 4325 nm 处

的受激吸收截面为 $5.21 \times 10^{-21} \text{ cm}^2$, 1320, 1730 和 2875 nm 波段对应的受激发射截面分别为 8.71×10^{-21} , 4.23×10^{-21} 和 $7.97 \times 10^{-21} \text{ cm}^2$. 计算使用的部分参数见表 1.

表 1 计算得到的 Dy^{3+} , $\text{Na}^{+}:\text{PbGa}_2\text{S}_4$ 部分光谱参数

Table 1. Partial calculated spectral parameters of Dy^{3+} , $\text{Na}^{+}:\text{PbGa}_2\text{S}_4$.

λ/nm	$E_{\text{ZL}}/\text{cm}^{-1}$	Z_l/Z_u	$\sigma_{\text{ab}}/(10^{-21} \text{ cm}^2)$	$\sigma_{\text{em}}/(10^{-21} \text{ cm}^2)$
1320	7632	0.83	8.17	8.71
1730	5883	0.91	2.87	4.23
2875	3503	1.13	6.30	7.97
4325	2380	1.24	5.27	9.00

文献 [22] 报道的 PbGa_2S_4 的抗激光损伤阈值约为 5 J/cm^2 , 模拟中给定的最高泵浦功率为 4 W . PbGa_2S_4 晶体的解理面为 $\langle 100 \rangle$, 加工晶体元件时容易沿着解理面发生解离, 导致大尺寸晶体难以制备, 因此在数值模拟中选择的晶体通光长度范围为 5—40 mm. 表 2 列出了数值模拟所采用的具体参数, 其中 M_{43} , M_{32} 是 Jelinkova 等^[17] 在室温下测得的非辐射跃迁速率, 对应的有效声子能量为 280 cm^{-1} , 远小于 Dy^{3+} 处于硫系玻璃基质时所测得的非辐射跃迁速率^[23]. 1320 nm 处吸收系数 α_{p1} 和 1730 nm 处吸收系数 α_{p2} 根据常温下测试的吸收光谱所确定; 能级寿命 τ_4 , τ_3 , τ_2 和能级间自发辐射速率 W_{42} , W_{32} , W_{31} , W_{21} 由 Judd-Ofelt 理论计算得到的振子强度参数推导得到; Dy^{3+} 浓度由 ICP-MS 测试的结果确定^[26]. 将下列参数代入粒子数速率方程和光的传输方程中, 结合边界条件, 采用四阶龙格库塔法对偏微分方程组进行求解, 获得数值仿真结果.

3 仿真结果分析

数值模拟中考虑的是谐振腔在稳态情况下的激光运转情况, 采用连续激光作为泵浦源. 模拟中设信号光在谐振腔内为高斯分布, 光束束腰位置处的光斑面积选取为 $1 \times 10^{-6} \text{ cm}^2$. 光束经过谐振腔左右端面时的损耗忽略不计, 只考虑端面腔镜对光束的透射和反射, 对于信号光 S 和信号光 I, 输出镜耦合率分别是 1-相应输出镜反射率. 采用 1320 nm 和 1730 nm 泵浦源在不同泵浦功率下信号光 S 输出功率随晶体元件长度变化的情况, 如

表 2 Dy^{3+} , $\text{Na}^+:\text{PbGa}_2\text{S}_4$ 激光器的光谱参数^[17,23,26,30]
Table 2. Spectral parameters of Dy^{3+} , $\text{Na}^+:\text{PbGa}_2\text{S}_4$ ^[17,23,26,30].

Parameter	Value	Unit	Parameter	Value	Unit
λ_{P1}	1320	nm	α_{P1}	0.299	cm^{-1}
λ_{P2}	1730	nm	α_{P2}	0.893	cm^{-1}
λ_{S}	4325	nm	τ_4	0.266	ms
λ_{I}	2875	nm	τ_3	2.697	ms
σ_{14}	8.17×10^{-21}	cm^{-2}	τ_2	6.092	ms
σ_{41}	8.71×10^{-21}	cm^{-2}	W_{42}	430	s^{-1}
σ_{13}	6.87×10^{-21}	cm^{-2}	W_{32}	40	s^{-1}
σ_{31}	7.23×10^{-21}	cm^{-2}	W_{31}	320	s^{-1}
σ_{12}	6.30×10^{-21}	cm^{-2}	W_{21}	164	s^{-1}
σ_{21}	7.97×10^{-21}	cm^{-2}	M_{43}	3000	s^{-1}
σ_{23}	5.27×10^{-21}	cm^{-2}	M_{32}	36	s^{-1}
σ_{32}	9.00×10^{-21}	cm^{-2}	R_{S1}	0.99	
A_{S}	1×10^{-6}	cm^2	R_{S2}	0.95	
f	400	mm	R_{I1}	0.99	
L	17	mm	R_{I2}	0.96	
N	1.26×10^{26}	m^3	R_{P1}	0.99	
α	0.2	cm^{-1}	R_{P2}	0.99	

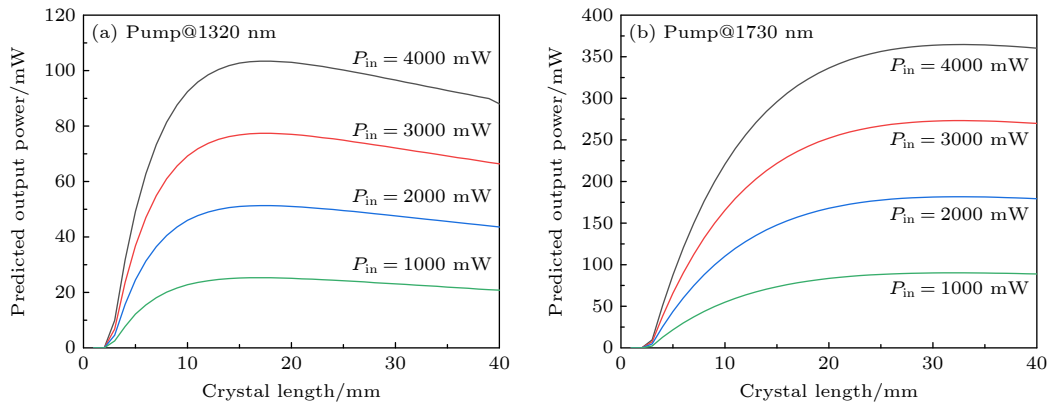


图 3 不同泵浦功率下输出功率随晶体长度变化情况 (a) 1320 nm 泵浦源; (b) 1730 nm 泵浦源

Fig. 3. Output power varying with crystal length in different pump power: (a) Pumped by 1320 nm; (b) pumped by 1730 nm.

图 3 所示. 两种泵浦条件下, 当晶体长度太短时, 信号光 S 获得的增益小于损耗, 不能实现激光输出, 长度达到 3 mm 附近时开始产生信号光 S 输出, 信号光 S 强度初期都随晶体元件长度增大而快速上升, 当晶体长度过长时, 过长部分增益作用小于损耗, 使得输出功率下降. 对于 1320 nm 泵浦, 信号光 S 强度在 17 mm, 18 mm 处达到最大值, 随后开始逐渐衰减, 对于 1730 nm 泵浦, 信号光 S 强度在 32 mm, 33 mm 处达到最大值, 随后开始缓慢衰减. 在采用 1730 nm 泵浦源时, 最佳晶体长度显著高于采用 1320 nm 泵浦源时, 因此在采用

不同泵浦源时, 可以加工对应长度晶体元件以实现最大功率的输出.

图 4 为采用 1320 nm 和 1730 nm 泵浦源, 分别在引入和未引入 2875 nm 信号光 I 振荡时, 预期输出功率随泵浦功率的变化关系图. 晶体长度选取为 17 mm, 输出镜反射率选 0.95. 从图 4 可以看出, 在未引入信号光 I 振荡时, 两个泵浦波长下预测的输出最大功率分别约为 3.8 mW 和 18 mW, 泵浦中由于粒子数在能级 ${}^6\text{H}_{13/2}$ 上不断堆积, 导致能级 ${}^6\text{H}_{11/2}$ 到 ${}^6\text{H}_{13/2}$ 的跃迁发生自终止, 导致了较低输出功率. 为此在模型中引入 2875 nm 的信

号光 I 振荡, 形成能级 ${}^6\text{H}_{11/2}$ 到 ${}^6\text{H}_{13/2}$ 跃迁和能级 ${}^6\text{H}_{13/2}$ 到 ${}^6\text{H}_{15/2}$ 跃迁的级联激光系统, 可以有效将能级 ${}^6\text{H}_{13/2}$ 上的粒子抽运至基态, 消除自终止效应的影响. 引入信号光 I 振荡后, 在泵浦功率从 0—4000 mW 的变化范围内, 两个泵浦波长下的输出功率都随泵浦功率线性增大, 在 1730 nm 和 1320 nm 泵浦源下预测的泵浦阈值分别为 46 mW

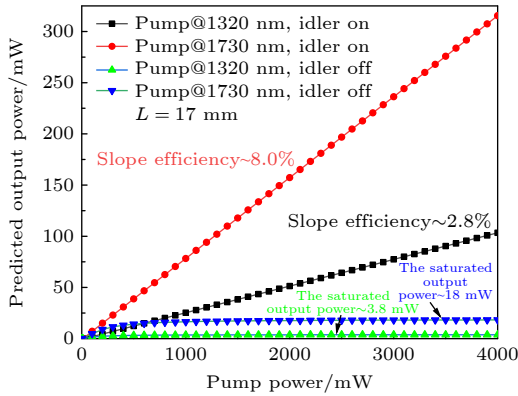


图 4 不同泵浦波长下输出功率随泵浦功率的变化

Fig. 4. Output power varying with pumped power in different pumping wavelengths.

和 12 mW, 预测的斜率效率分别为 8.0% 和 2.8%, 并且在泵浦功率为 4 W 的情况下分别可以实现 315 mW 和 103 mW 的激光输出. 这表明采用 1730 nm 泵浦源直接泵浦 Dy 到发光上能级的方案可以显著提高激光器发光效率, 获得较好的激光性能, 但在实际实验中仍需考虑两种波长泵浦源商品成熟度, 包括其可实现的泵浦功率和光束质量等对实验的影响.

当引入信号光 I 振荡时, 在不同泵浦波长下达到稳态输出后晶体中泵浦功率、信号光 S 功率和信号光 I 功率随晶体分布情况分别如图 5 和图 6(a)—(c) 所示. 同时模拟了是否存在信号光 I 振荡对增益和吸收系数分布的影响, 并分别表示在图 4(d) 和图 5(d) 中. 从图中可以看出, 引入信号光 I 振荡后, 1320 nm 泵浦源对应的吸收系数从 30 m^{-1} 提升到 40 m^{-1} , 1730 nm 泵浦源对应的吸收系数从 1 m^{-1} 提升到 15 m^{-1} , 这也可以证明级联振荡能够一定程度抑制能级 ${}^6\text{H}_{11/2}$ 到 ${}^6\text{H}_{13/2}$ 跃迁强烈的自终止效应, 促进了基态吸收泵浦光向激

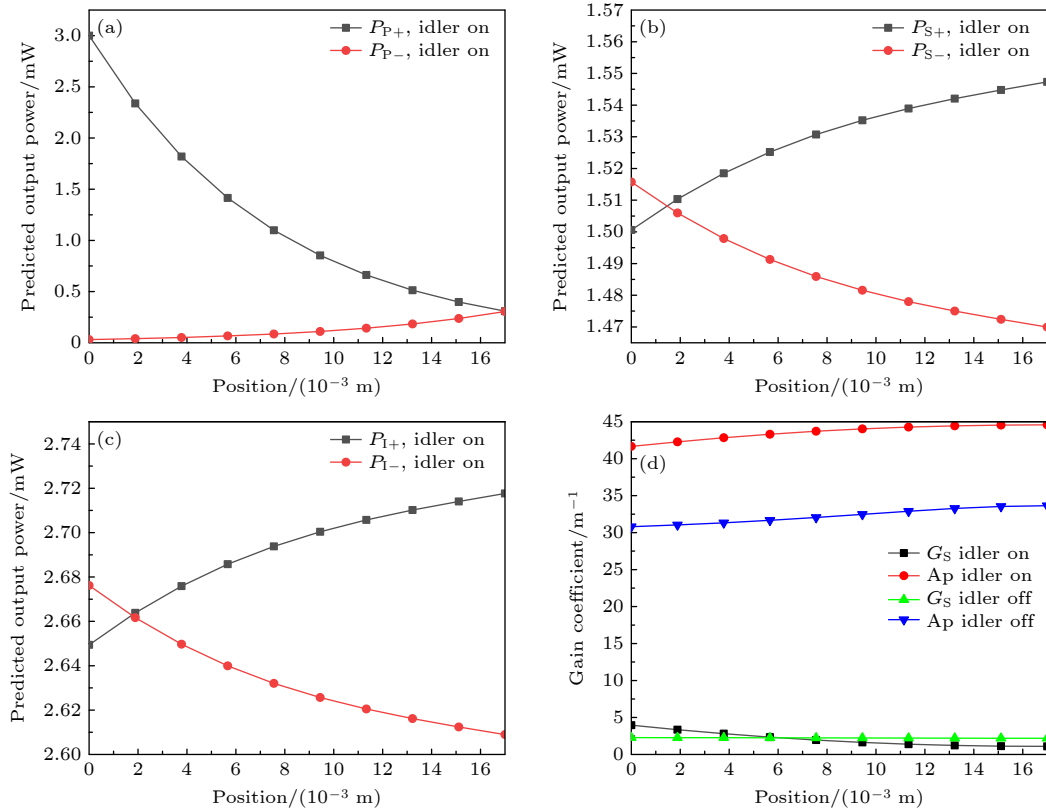


图 5 1320 nm 泵浦源下稳定振荡时泵浦功率 (a)、信号光 S 功率 (b)、信号光 I 功率 (c)、增益和吸收系数 (d) 随位置的变化泵浦光功率

Fig. 5. Pump power (a), signal power (b), idler power (c), and gain coefficient (d) varying with position during stable oscillation pumped by 1320 nm laser.

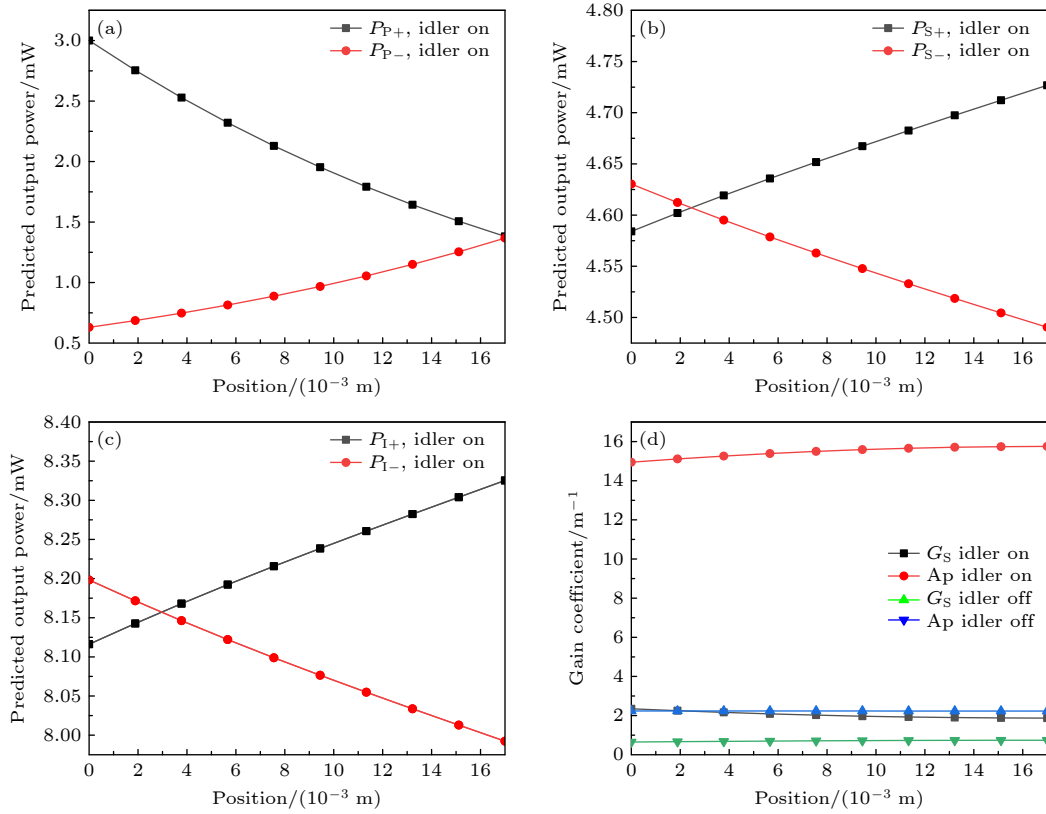


图 6 1730 nm 泵浦源下稳定振荡时泵浦功率 (a)、信号光 S 功率 (b)、信号光 I 功率 (c)、增益和吸收系数 (d) 随位置的变化

Fig. 6. Pump power (a), signal power (b), idler power (c) and gain coefficient (d) varying with position during stable oscillation pumped by 1730 nm laser.

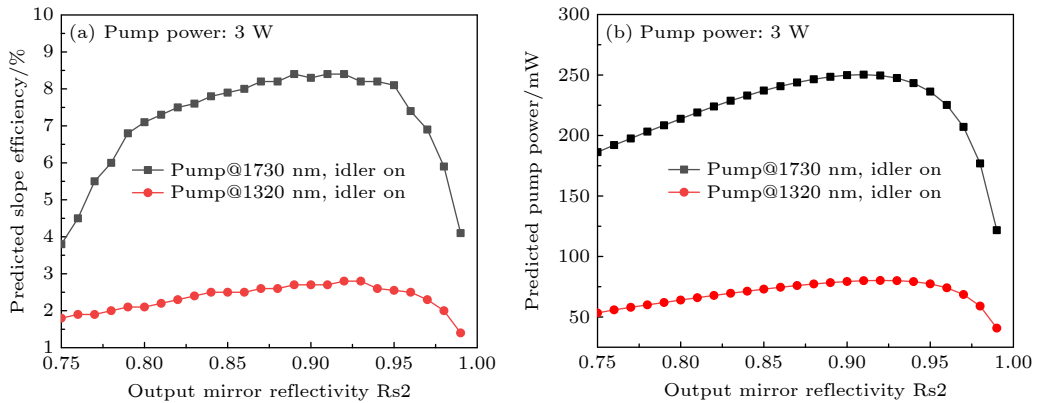


图 7 斜率效率 (a) 和信号光 S 功率 (b) 随输出镜反射率变化情况斜率效率

Fig. 7. Slope efficiency (a) and signal S power (b) varying with reflectance of output mirror.

发态跃迁. 在两种泵浦波长下, 在引入信号光 I 振荡后, 增益系数在晶体中的分布都随着信号光 S 功率的增大而单调减小, 在小信号增益的情况下, 1320 nm 泵浦源对应的增益系数可达 3.9 m^{-1} , 1730 nm 泵浦源对应的增益系数可达 2.3 m^{-1} .

图 7 为在两种泵浦波长下输出镜 Rs2 的反射率对斜率效率和信号光 S 输出功率的影响. 从图 7(a) 可以看出, 在两种泵浦波长下, 斜率效率都先随着

输出镜反射率提高而上升, 随后快速下降. 采用 1320 nm 和 1730 nm 泵浦源时, 斜率效率分别在输出镜反射率为 0.93 和 0.92 时达到最大值. 根据图 7(b) 所示, 两种泵浦波长下, 信号光 S 输出功率都先随输出镜反射率提高而上升, 在 0.92 附近达到最大值, 随后逐渐降低. 不难看出, Rs2 在 0.85—0.95 内, 激光器同时具有较高的斜率效率和信号光 S 输出功率, 可以为实验中输出镜反射率的选取

提供一定参考.

4 结 论

通过实验测试和 Judd-Ofelt 理论计算, 得到了 Dy^{3+} , $\text{Na}^+:\text{PbGa}_2\text{S}_4$ 的相关光谱参数, 构建了分别采用 1320 nm 和 1730 nm 泵浦源泵浦 PbGa_2S_4 产生 4325 nm 激光激光器的理论模型. 基于粒子数速率方程和光的传输方程, 使用四阶龙格库塔法对方程组进行求解, 数值模拟了不同泵浦波长下, 晶体长度、泵浦光功率和输出镜反射率对 4325 nm 信号光 S 输出功率以及斜率效率的影响. 证明引入 2875 nm 信号光 I 振荡, 实现级联激光输出可以有效降低 Dy^{3+} , $\text{Na}^+:\text{PbGa}_2\text{S}_4$ 激光器中的自终止效应, 并得到在 1320 nm 和 1730 nm 泵浦下最优晶体长度为 17 mm 和 33 mm, 输出镜反射率应选取在 0.85—0.95 内. 预估出引入信号光 I 振荡下, 激光器斜率效率分别可以达到 2.8% (1320 nm) 和 8.0% (1730 nm). 数值模拟的结果可以为 Dy^{3+} , $\text{Na}^+:\text{PbGa}_2\text{S}_4$ 晶体元件的加工, 以及后续激光器的设计与搭建提供一定的指导意义.

参考文献

- [1] Sorokina I T 2003 *Solid-State Mid-Infrared Laser Sources* (Palo Alto: Springer) pp89–262
- [2] Tan G J, Xie J J, Zhang L M, Guo J, Yang G L, Shao C L, Chen F, Yang X X, Ruan P 2013 *Chin. Opt.* **6** 501 (in Chinese) [谭改娟, 谢冀江, 张来明, 郭劲, 杨贵龙, 邵春雷, 陈飞, 杨欣欣, 阮鹏 2013 *中国光学* **6** 501]
- [3] Zhong M, Ren G 2007 *J. Ordnance Equip. Eng.* **28** 7 (in Chinese) [钟鸣, 任钢 2007 *四川兵工学报* **28** 7]
- [4] Ebrahim-Zadeh M, Sorokina I T 2008 *NATO Science for Peace and Security Series B: Physics and Biophysics* (Bielefeld : Springer) pp161–170
- [5] Zhu C L, Kang M Q, Deng Y, Li W W, Zhou S, Li J B, Zhen J G, Zhu Q H 2022 *Laser Infrared* **52** 956 (in Chinese) [朱灿林, 康民强, 邓颖, 李威威, 周松, 李剑彬, 郑建刚, 朱启华 2022 *激光与红外* **52** 956]
- [6] Pan Q K 2015 *Chin. Opt.* **8** 557 [潘其坤 2015 *中国光学* **8** 557]
- [7] Wei L, Xiao L, Han L, Wu J Y, Wang K Q 2012 *Chin. J. Lasers* **39** 0702006 (in Chinese) [魏磊, 肖磊, 韩隆, 吴军勇, 王克强 2012 *中国激光* **39** 0702006]
- [8] Lippert E 2015 *Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO)* California, San Jose, May 10–15, 2015 pSW3O.3
- [9] Gu X A, Zhu W Z, Luo Z W, Angeluts A A, Evdokimov M G, Nazarov M M, Shkurinov A P, Andreev Y M, Lanskii G V, Shaiduko A V 2012 *Chin. Opt.* **5** 660 (in Chinese) [古新安, 朱韦臻, 罗志伟, Angeluts A A, Evdokimov M G, Nazarov M M, Shkurinov A P, Andreev Y M, Lanskii G V, Shaiduko A V 2012 *中国光学* **5** 660]
- [10] Mirov S, Fedorov V, Moskalev I, Martyshkin D, Kim C 2010 *Laser Photon. Rev.* **4** 21
- [11] Zhang L M, Zhou S H, Zhao H, Zhang D Y, Feng Y T, Li Y, Zhu C, Zhang K, Wang X F 2012 *Laser Infrared* **42** 360 (in Chinese) [张利明, 周寿桓, 赵鸿, 张大勇, 冯宇彤, 李尧, 朱辰, 张昆, 王雄飞 2012 *激光与红外* **42** 360]
- [12] Barnes N P, Esterowitz L, Allen R E 1984 *Conference on Lasers and Electro-Optics pWA5*
- [13] Esterowitz L, Rosenblatt G H, Pinto J F 1994 *Electron. Lett.* **30** 1596
- [14] Bowman S R, Shaw L B, Feldman B J, Ganem J 1996 *IEEE J. Quantum Electron.* **32** 646
- [15] Nostrand M C, Page R H, Payne S A, Krupke W F, Schunemann P G, Isaenko L I 1999 *Advanced Solid State Lasers* **26** pWD4
- [16] Wu K, Pan S L, Wu H P, Yang Z H 2015 *J. Mol. Struct.* **1082** 174
- [17] Jelinkova H, Doroshenko M E, Osiko V V, Jelínek M, Šulc J, Němec M, Vyhřídál D, Badikov V V, Badikov D V 2016 *Appl. Phys. A* **122** 738
- [18] Majewski M R, Woodward R I, Jackson S D 2020 *Laser Photon. Rev.* **14** 1900195.1
- [19] Vincent F, Frédéric J, Maxence L, Martin B, Réal V 2019 *Opt. Lett.* **44** 491
- [20] Wang Y C, Jobin F, Duval S, Fortin V, Vallée R 2019 *Opt. Lett.* **44** 395
- [21] Ososkov Y, Lee J, Fernandez T T, Fuerbach A, Jackson S D 2023 *Opt. Lett.* **48** 2664
- [22] Šulc J, Jelinkova H, Doroshenko M E, Basiev T T, Osiko V V, Badikov V V, Badikov D V 2010 *Opt. Lett.* **35** 3501
- [23] Xiao X S, Xu Y T, Guo H T, Wang P F, Cui X X, Lu M, Wang Y S, Peng B 2018 *IEEE Photonics J.* **10** 1501011
- [24] Majewski M R, Jackson S D 2016 *Opt. Lett.* **41** 2173
- [25] Chen J Q, Wang J H 2010 *Laser Principle* (Vol. 2) (Hangzhou: Zhejiang University press) pp122–127 (in Chinese) [陈钰清, 王静环 2010 *激光原理* (第2版) (杭州: 浙江大学出版社) 第122—127页]
- [26] Yu X Z, Huang C B, Ni Y B, Wang Z Y, Wu H X, Hu Q Q, Liu G J, Zhou Q, Wei L L 2023 *J. Lumines.* **262** 119951
- [27] Walsh B M, Barnes N P, Bartolo B D 1998 *J. Appl. Phys.* **83** 2772
- [28] Payne S A, Chase L L, Smith L K, Kway W L, Krupke W F 1992 *IEEE J. Quantum Electron.* **28** 2619
- [29] Carnall W T, Goodman G L, Rajnak K, Rana R 1989 *J. Chem. Phys.* **90** 3443
- [30] Kang M Q, Zhu C L, Deng Y, Zhu Q H 2022 *Acta Opt. Sin.* **42** 0714002 (in Chinese) [康民强, 朱灿林, 邓颖, 朱启华 2022 *光学学报* **42** 0714002]

Theoretical study of Dy^{3+} , Na^+ : PbGa_2S_4 mid-infrared laser based on experimental parameters^{*}

Yu Xue-Zhou¹⁾²⁾ Huang Chang-Bao^{1)†} Wu Hai-Xin¹⁾ Hu Qian-Qian¹⁾²⁾
 Liu Guo-Jin¹⁾²⁾ Li Ya¹⁾²⁾ Zhu Zhi-Cheng¹⁾²⁾ Qi Hua-Bei¹⁾²⁾
 Ni You-Bao¹⁾ Wang Zhen-You¹⁾

1) (*Crystal Lab of Laser Technology Research Center, Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics,*

Hefei Institutes of Physical Science, Chinese Academy of Sciences, Hefei 230031, China)

2) (*University of Science and Technology of China, Hefei 230026, China)*

(Received 2 February 2024; revised manuscript received 25 June 2024)

Abstract

According to the absorption spectra of Dy^{3+} , Na^+ : PbGa_2S_4 crystal elements, as well as the theoretical calculations obtained from Judd-Ofelt analysis, we derive partial fluorescence absorption and emission cross sections. For energy levels that cannot be directly measured, we employ the reciprocal method to calculate their respective absorption cross-section and emission cross-section. Combining the experimental measurements and the calculation results, the experimental setup, which can generate a 4.3- μm mid-infrared laser through directly pumping dysprosium and Dy^{3+} , Na^+ : PbGa_2S_4 crystals by 1.3 μm and 1.7 μm diode lasers, is investigated through numerical simulation. The spatial distributions of laser power, gain coefficient, and absorption coefficient within the crystal are obtained through numerical calculation. Furthermore, the effects of pumping power, crystal length, and output mirror reflectance on laser performance are analyzed. In this model, a 2.9- μm laser oscillation is introduced in the optical path and the changes of output power before and after introduction are observed. Our results demonstrate that the introduction of 2.9- μm laser oscillation effectively facilitates the particle number transfer from the ${}^6\text{H}_{13/2}$ level to the ground state ${}^6\text{H}_{15/2}$, thereby reducing the self-terminating phenomenon during the transition between the ${}^6\text{H}_{11/2}$ and ${}^6\text{H}_{13/2}$ levels, and enhancing both output power and slope efficiency of the laser system. Numerical results indicate that maximum power output for the 1.3- μm diode laser pumping is achieved at 103 mW with a pumping threshold of 12 mW and a slope efficiency of 2.8%, while for the 1.7- μm diode laser pumping, the power output reaches up to 315 mW with a pumping threshold of 46 mW and a slope efficiency of 8%. Additionally, the calculation results show that the optimal crystal length is 17 mm for the 1.3 μm diode laser pumping, and 32 mm for the 1.7 μm diode laser pumping. Finally, the best reflectance value for the output mirror is 0.92. These numerical results are of great significance for guiding the crystal processing and the selection of optical path structure parameters.

Keywords: mid-infrared laser, theoretical modeling, PbGa_2S_4 crystal

PACS: 42.50.-p, 78.20.Bh

DOI: 10.7498/aps.73.20240223

^{*} Project supported by the National Key Research and Development Program of China (Grant No. 2021YFB3601503).

[†] Corresponding author. E-mail: cbhuang@aiofm.ac.cn



基于实验参数的 Dy^{3+} , Na^+ : PbGa_2S_4 中红外激光理论研究

余学舟 黄昌保 吴海信 胡倩倩 刘国晋 李亚 朱志成 祁华贝 倪友保 王振友

Theoretical study of Dy^{3+} , Na^+ : PbGa_2S_4 mid-infrared laser based on experimental parameters

Yu Xue-Zhou Huang Chang-Bao Wu Hai-Xin Hu Qian-Qian Liu Guo-Jin Li Ya Zhu Zhi-Cheng Qi Hua-Bei Ni You-Bao Wang Zhen-You

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 73, 164203 (2024) DOI: 10.7498/aps.73.20240223

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.73.20240223>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

基于铋纳米片可饱和吸收被动调 Q 中红外单晶光纤激光器

Bismuth nanosheets based saturable-absorption passively Q -switching mid-infrared single-crystal fiber laser

物理学报. 2020, 69(18): 184205 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200337>

基于台阶声光调 Q 外腔泵浦 MgO:PPLN 光参量振荡器的 $3.4\ \mu\text{m}$ 中红外脉冲串激光器

$3.4\ \mu\text{m}$ mid-infrared pulse train laser based on stepped acousto-optic Q -switched external cavity pumped MgO:PPLN optical parametric oscillator

物理学报. 2024, 73(4): 044206 <https://doi.org/10.7498/aps.73.20231348>

基于光学反馈频率锁定的窄线宽稳定中红外激光产生技术研究

Research on generation of stable mid-infrared lasers with narrow linewidths based on optical feedback locking

物理学报. 2024, 73(1): 014205 <https://doi.org/10.7498/aps.73.20231049>

基于级联跃迁的 $2.8\ \mu\text{m}$ 低掺铒氟化物光纤激光器数值分析与优化

Numerical analysis and optimization of $2.8\ \mu\text{m}$ lightly-erbium-doped fluoride fiber laser based on cascaded transition

物理学报. 2023, 72(22): 224205 <https://doi.org/10.7498/aps.72.20230903>

基于二维纳米材料可饱和吸收体的中红外超快光纤激光器

Two-dimensional material as a saturable absorber for mid-infrared ultrafast fiber laser

物理学报. 2020, 69(18): 188101 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200472>

驱动激光波长对超短脉冲与原子相互作用产生高次谐波发射的影响

Influence of driving-laser wavelength on emission of high-order harmonic wave generated by atoms irradiated by ultrashort laser pulse

物理学报. 2022, 71(23): 233205 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220743>