

掺 Tm 激光晶体的可见与红外发光 转换及双稳多色开关*

李 立^{1)†} 张新陆²⁾ 陈历学¹⁾ 王 冉²⁾

1) 哈尔滨工业大学物理系 哈尔滨 150001)

2) 哈尔滨工程大学理学院 哈尔滨 150001)

(2007 年 9 月 3 日收到, 2008 年 2 月 27 日收到修改稿)

理论研究了 648 nm 激光抽运掺 Tm 晶体的可见与红外发光转换和发光双稳特性. 根据系统的耦合速率方程理论, 推导了发光转换阈值的解析表达式, 数值研究了 Tm^{3+} 能级布居数、辐射光谱以及发光强度等随抽运光强的变化. 数值结果表明, 648 nm 激光抽运下可以实现 452/469 nm 蓝光与 1716 nm 红外光谱的发光转换. 在光子雪崩阈值附近, 可以观察到掺 Tm 晶体的辐射光谱双稳、荧光色度双稳和发光强度双稳等现象. 利用掺 Tm 晶体的可见与红外发光转换与双稳特性, 可以实现抽运功率控制的全固态发光转换器和双稳波长开关.

关键词: 光学双稳, 多色开关, 掺 Tm 晶体, 光子雪崩

PACC: 4265P, 3280B, 3280K

1. 引 言

本征光学双稳器件是未来数据处理系统中用光子取代电子实现全光信息处理的关键技术和核心元件, 具有重要的理论与应用价值. 早期研究的光学双稳系统以包含非线性介质的法布里-珀罗标准具为代表, 光学非线性由介质产生(包括非线性吸收和色散等), 反馈机理由谐振腔镜提供^[1,2]. 近年来, 在三价镧系离子 Yb^{3+} 掺杂玻璃系统及掺杂卤化物 $Cs_3Y_2Br_9$, $Cs_3Lu_2Br_9$, $CsCdBr_3$ 系统中, 实验上观察到了 Yb^{3+} 离子对的可见与红外荧光辐射的无腔镜本征光学双稳现象^[3-7]. 这种光学双稳系统不具有谐振腔镜反馈, 产生双稳态的非线性过程和反馈机理来源于掺杂系统中的三价离子的非线性能量传递过程和离子对的耦合相互作用等微观机理, 是一类新型的本征光学双稳态. 自从 Hehlen 等人^[3]在实验上观察到 Yb^{3+} 离子掺杂固体介质中活性离子辐射的本征光学双稳态以来, 这类原子尺度上的新机理本征光学双稳态引起了人们的积极关注和研究兴趣. 由于无腔镜光学双稳态产生的物理机理复杂, 至

今对三价稀土离子掺杂晶体的本征光学双稳的产生根源尚不完全明确^[3-9]. 而且, 目前稀土离子的发光双稳态研究几乎全部集中于 Yb^{3+} 离子掺杂相关系统. 因此, 研究新的三价稀土离子(如 Tm^{3+} , Ho^{3+} , Er^{3+} 等)掺杂系统的本征光学双稳特性对拓展无腔镜光学双稳的产生范围和探索本征双稳发生的物理机理具有重要的意义^[10,11]. 利用稀土离子掺杂晶体的光学双稳特性可以实现辐射光谱的本征多色开关和双稳波长开关^[12,13], 在光网络技术发展中用来实现全固态波长路由与开关功能.

本文在理论上研究了 648 nm 光子雪崩波长激光抽运单掺 Tm 激光晶体的可见与红外发光转换和发光双稳特性. 根据 Tm^{3+} 离子光谱分析, 建立了合理的能级结构和跃迁模型. 在考虑基态与激发态吸收、横向弛豫、以及能量传递上转换等主要的能量传递过程的情况下, 建立了系统的耦合非线性速率方程理论. 基于速率方程理论, 推导出发光转换阈值的解析表达式, 数值研究掺 Tm 激光晶体的能级布居数双稳, 可见与红外发光转换以及本征双稳多色光开关等特性.

* 高等学校博士学科点专项科研基金(批准号: 20070217014)资助的课题.

† E-mail: lylee_heu@yahoo.com

2. 基本理论

2.1. 速率方程理论

根据 Tm^{3+} 离子光谱分析^[14-17], 考虑 Tm^{3+} 离子双重激发态谐振吸收过程, 图 1 给出了 648 nm 激光抽运下 Tm^{3+} 离子的能级结构及跃迁过程. 在 648 nm 激光抽运下, 抽运光子与 $Tm^{3+} F_4 \rightarrow {}^1G_4$, ${}^3H_4 \rightarrow {}^1D_2$ 激发态发生谐振相互作用, 产生强烈的激发态谐振吸收. 波长为 648 nm 的抽运光子被 3F_4 与 3H_4 Tm^{3+}

吸收分别跃迁到 1G_4 与 1D_2 能级(即(a)过程). 1G_4 与 1D_2 Tm^{3+} 与其周围的 Tm^{3+} 通过横向弛豫过程 ${}^1D_2 + {}^3H_6 \rightarrow {}^1G_4 + {}^3F_4$, ${}^1D_2 + {}^3H_6 \rightarrow {}^3F_2 + {}^3H_4$, ${}^1G_4 + {}^3H_6 \rightarrow {}^3F_2 + {}^3F_4$ 和 ${}^3H_4 + {}^3H_6 \rightarrow {}^3F_4 + {}^3F_4$ (即(b)过程)导致激发态 3F_4 和 3H_4 能级粒子数密度急剧增加. 在强烈的激发态谐振吸收和横向弛豫的共同作用下, 系统诱发雪崩式粒子数反转布居, 即光子雪崩^[18, 19]. 需要指出, 在此过程中抽运光子几乎不发生基态吸收, 基态抽运很弱, 甚至可以忽略.

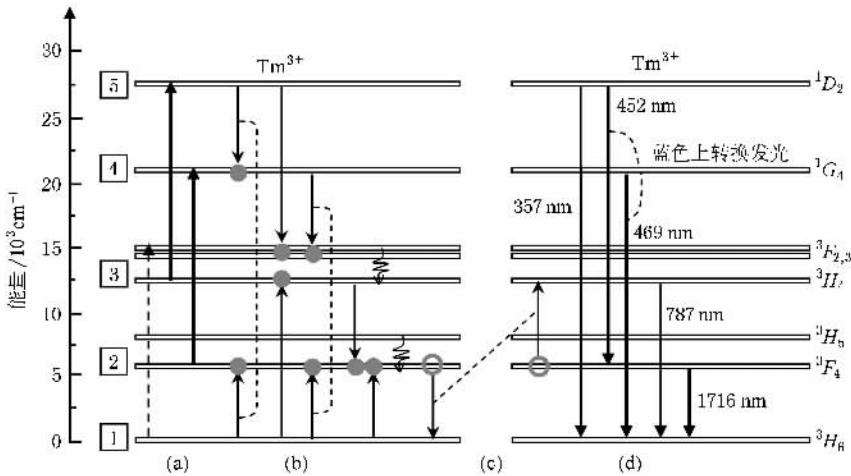


图 1 Tm^{3+} 离子的能级结构及跃迁过程示意图 (a) 基态与激发态吸收; (b) 横向弛豫; (c) 能量传递上转换; (d) 跃迁辐射

在 648 nm 激光抽运下, Tm^{3+} 离子系统的耦合非线性速率方程表述为^[10]

$$\frac{dn_5}{dt} = \frac{P(t)}{Sh\nu} \sigma_{3 \rightarrow 5} n_3 - \beta_{5 \rightarrow 3, 1 \rightarrow 3} n_5 n_1 - \beta_{5 \rightarrow 4, 1 \rightarrow 2} n_5 n_1 - w_5 n_5, \quad (1a)$$

$$\frac{dn_4}{dt} = \frac{P(t)}{Sh\nu} \sigma_{2 \rightarrow 4} n_2 + \beta_{5 \rightarrow 4, 1 \rightarrow 2} n_5 n_1 + w_{5 \rightarrow 4} n_5 - \beta_{4 \rightarrow 3, 1 \rightarrow 2} n_4 n_1 - w_4 n_4, \quad (1b)$$

$$\frac{dn_3}{dt} = \frac{P(t)}{Sh\nu} \sigma_{1 \rightarrow 3} n_1 - \frac{P(t)}{Sh\nu} \sigma_{3 \rightarrow 5} n_3 + 2\beta_{5 \rightarrow 3, 1 \rightarrow 3} n_5 n_1 + \beta_{4 \rightarrow 3, 1 \rightarrow 2} n_4 n_1 - \beta_{3 \rightarrow 2, 1 \rightarrow 2} n_3 n_1 + \alpha n_2^2 + w_{5 \rightarrow 3} n_5 + w_{4 \rightarrow 3} n_4 - w_3 n_3, \quad (1c)$$

$$\frac{dn_2}{dt} = -\frac{P(t)}{Sh\nu} \sigma_{2 \rightarrow 4} n_2 + \beta_{5 \rightarrow 4, 1 \rightarrow 2} n_5 n_1 + \beta_{4 \rightarrow 3, 1 \rightarrow 2} n_4 n_1 + 2\beta_{3 \rightarrow 2, 1 \rightarrow 2} n_3 n_1 - 2\alpha n_2^2 + w_{5 \rightarrow 2} n_5 + w_{4 \rightarrow 2} n_4 - w_{3 \rightarrow 2} n_3 - w_2 n_2, \quad (1d)$$

$$n = n_1 + n_2 + n_3 + n_4 + n_5. \quad (1e)$$

其中 n 为 Tm^{3+} 离子的掺杂浓度, $n_j (j = 1, 2, 3, 4, 5)$ 表示基态和激发态能级的粒子数密度. $P(t)$ 为时间调制抽运光场, P/S 为抽运功率密度, h 和 ν 分别为普朗克常数和抽运光频率. $\sigma_{1 \rightarrow 3}$, $\sigma_{2 \rightarrow 4}$ 和 $\sigma_{3 \rightarrow 5}$ 分别为基态, 激发态 3F_4 和 3H_4 能级的吸收截面. $\beta_{i \rightarrow j, k \rightarrow l}$ 表示能级 $i \rightarrow j$, $k \rightarrow l$ 的横向弛豫速率. α 为能量传递上转换速率, w_j 为第 j 激发态能级的自发辐射跃迁速率. $w_{i \rightarrow j}$ 表示第 i 激发态能级到能级 j 的自发辐射跃迁速率.

2.2. 荧光辐射模型

在 648 nm 激光抽运下, 随着抽运功率的增加, Tm^{3+} 离子各激发态能级的布居数密度将逐渐增大. 由于激发态能级的有限寿命, 处于激发态能级的 Tm^{3+} 离子将向较低能级发生自发辐射跃迁, 同时伴随着与能级跃迁相对应的特定波长的荧光辐射. Tm^{3+} 离子系统的荧光辐射发光可由如下理论模型描述:

$$K(\lambda) = \sum_{j,k} K(\lambda_{j \rightarrow k})$$

$$= \sum_{j,k} \frac{n_j w_{j \rightarrow k} \rho_{j \rightarrow k}(\lambda)}{I_{\text{total}} \int \rho_{j \rightarrow k}(\lambda) d\lambda} h\nu_{j \rightarrow k}, \quad (2a)$$

$$\rho_{j \rightarrow k}(\lambda) = \exp\left(-|\lambda - \lambda_{j \rightarrow k}|^2 / (\Delta\lambda_{j \rightarrow k}/2)^2\right) \quad (2b)$$

$$I_{\text{total}} = \sum_{j,k} hcn_j w_{j \rightarrow k} / \lambda_{j \rightarrow k}, \quad (2c)$$

其中 $\lambda_{j \rightarrow k}$ 、 $\Delta\lambda_{j \rightarrow k}$ 和 $\nu_{j \rightarrow k}$ 分别为激发态能级 j 到较低能级 k 的辐射中心波长、线宽和辐射光子频率。 $\rho_{j \rightarrow k}(\lambda)$ 为激发态能级 j 到能级 k 辐射谱的高斯线型。 I_{total} 为辐射光子总能量。

3. 数值计算与分析

3.1. 系统参数

数值计算采用的相关参数值如表 1 和表 2 所示。表 1 给出了 Tm^{3+} 离子能级结构和辐射跃迁参数,包括能级跃迁、能隙、辐射波长、线宽和相应的辐射跃迁速率等。表 2 给出了 Tm^{3+} 离子系统能量传递过程的相关参数,包括基态和激发态吸收截面、横向弛豫速率和能量传递上转换速率等。需要指出, Tm^{3+} $F_4 \rightarrow {}^1G_4$ 和 ${}^3H_4 \rightarrow {}^1D_2$ 激发态谐振波长分别为 643 nm 和 654 nm。在 648 nm 激光抽运下, Tm^{3+} $F_4 \rightarrow {}^1G_4$ 和 ${}^3H_4 \rightarrow {}^1D_2$ 激发态吸收截面近似相等。选取晶体样品掺杂浓度为 3% Tm^{3+} , 粒子数密度约为 $n = 5.78 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ 。

表 1 能级结构与辐射跃迁的相关参数

跃迁	能隙 $\Delta E/\text{cm}^{-1a)}$	波长 $\lambda_p/\text{nm}^b)$	线宽 $\Delta\lambda_{\text{eff}}/\text{nm}^b)$	辐射速率 $w/\text{s}^{-1a)}$
${}^1D_2 \rightarrow {}^1G_4$	6689	1495	30	202
$\rightarrow {}^3F_2$	12859	777	51	986
$\rightarrow {}^3F_3$	13455	743	47	1182
$\rightarrow {}^3H_4$	15401	649	35	1464
$\rightarrow {}^3H_5$	19760	506	21	63
$\rightarrow {}^3F_4$	22183	452	16	16192
$\rightarrow {}^3H_6$	28011	357	12	6965
${}^1G_4 \rightarrow {}^3F_2$	6170	1621	222	10
$\rightarrow {}^3F_3$	6766	1478	185	40
$\rightarrow {}^3H_4$	8712	1148	111	204
$\rightarrow {}^3H_5$	13071	765	47	512
$\rightarrow {}^3F_4$	15494	645	34	119
$\rightarrow {}^3H_6$	21322	469	15	1044
${}^3H_4 \rightarrow {}^3H_5$	4359	2294	870	24
$\rightarrow {}^3F_4$	6782	1474	360	102
$\rightarrow {}^3H_6$	12610	787	53	947
${}^3F_4 \rightarrow {}^3H_6$	5828	1716	230	240

a) 文献 [20] b) 计算结果。

表 2 能量传递过程的相关参数

参数	取值
$\beta_{3 \rightarrow 2, 1 \rightarrow 2}/\text{cm}^3 \text{ s}^{-1}$	$8.7 \times 10^{-17a)}$
$\beta_{4 \rightarrow 2, 1 \rightarrow 2}/\text{cm}^3 \text{ s}^{-1}$	$8.7 \times 10^{-17a)}$
$\beta_{5 \rightarrow 4, 1 \rightarrow 2}/\text{cm}^3 \text{ s}^{-1}$	$5 \times 10^{-17a)}$
$\beta_{5 \rightarrow 3, 1 \rightarrow 3}/\text{cm}^3 \text{ s}^{-1}$	$5 \times 10^{-17a)}$
$\alpha/\text{cm}^3 \text{ s}^{-1}$	$1 \times 10^{-18a)}$
$\sigma_{3 \rightarrow 5}/\text{cm}^2$	$5.1 \times 10^{-21b)}$
$\sigma_{2 \rightarrow 4}/\text{cm}^2$	$6.2 \times 10^{-21b)}$
$\sigma_{1 \rightarrow 3}/\text{cm}^2$	$5 \times 10^{-23b)}$

a) 文献 [21] b) 文献 [15]。

基于系统的微观速率方程理论和荧光辐射模型,结合表 1 和表 2 的系统参数,下面将数值研究 Tm^{3+} 离子的能级布居数本征双稳态、可见与红外发光转换及双稳多色开关等特性。

3.2. 能级布居数本征双稳态

首先数值研究 648 nm 激光抽运下 Tm^{3+} 离子能级布居数密度随抽运功率的变化。抽运源采用高斯型时间调制激光脉冲,脉宽 $\tau_0 = 200 \text{ ms}$, 峰值 $P_0/S = 40 \text{ kW/cm}^2$ 。图 2 给出了 Tm^{3+} 离子能级布居数密度的本征光学双稳态。

由图 2 可知,随着抽运光强的增加,在开始较低光强 ($< 5 \text{ kW/cm}^2$) 抽运下, Tm^{3+} 离子能级布居数密度变化非常小。此时激发态 3F_4 和 3H_4 上的 Tm^{3+} 离子布居数很少,抽运光子的激发态谐振吸收过程很弱,系统主要以 Tm^{3+} H_6 基态的边带弱吸收过程为主。随着抽运光强的继续增加,在基态弱吸收 $H_6 \rightarrow {}^3F_{2,3}$, 多声子弛豫 $H_4 \rightarrow {}^3H_5$ 和横向弛豫 $H_4 + {}^3H_6 \rightarrow {}^3F_4 + {}^3F_4$ 过程的作用下, Tm^{3+} 离子激发态 3F_4 和 3H_4 上的布居数密度继续缓慢增加。当抽运光强超过一定水平 ($\sim 12.5 \text{ kW/cm}^2$) 时, Tm^{3+} 离子能级布居数密度发生突变,系统发生雪崩式粒子数反转布居。这是由于此时作为激光谐振抽运能级的 Tm^{3+} F_4 和 3H_4 上具有了一定的粒子布居数密度,足以导致抽运光子的激发态谐振吸收过程 ${}^3F_4 \rightarrow {}^1G_4$ 和 ${}^3H_4 \rightarrow {}^1D_2$ 迅速增强。在激发态抽运下 Tm^{3+} 离子迅速跃迁到更高的 1G_4 和 1D_2 能级。处于 1G_4 和 1D_2 能级的 Tm^{3+} 离子通过与周围离子的横向弛豫过程 ${}^1D_2 + {}^3H_6 \rightarrow {}^1G_4 + {}^3F_4$, ${}^1D_2 + {}^3H_6 \rightarrow {}^3F_2 + {}^3H_4$, ${}^1G_4 + {}^3H_6 \rightarrow {}^3F_2 + {}^3F_4$ 和 ${}^3H_4 + {}^3H_6 \rightarrow {}^3F_4 + {}^3F_4$ (即 (b) 过程),

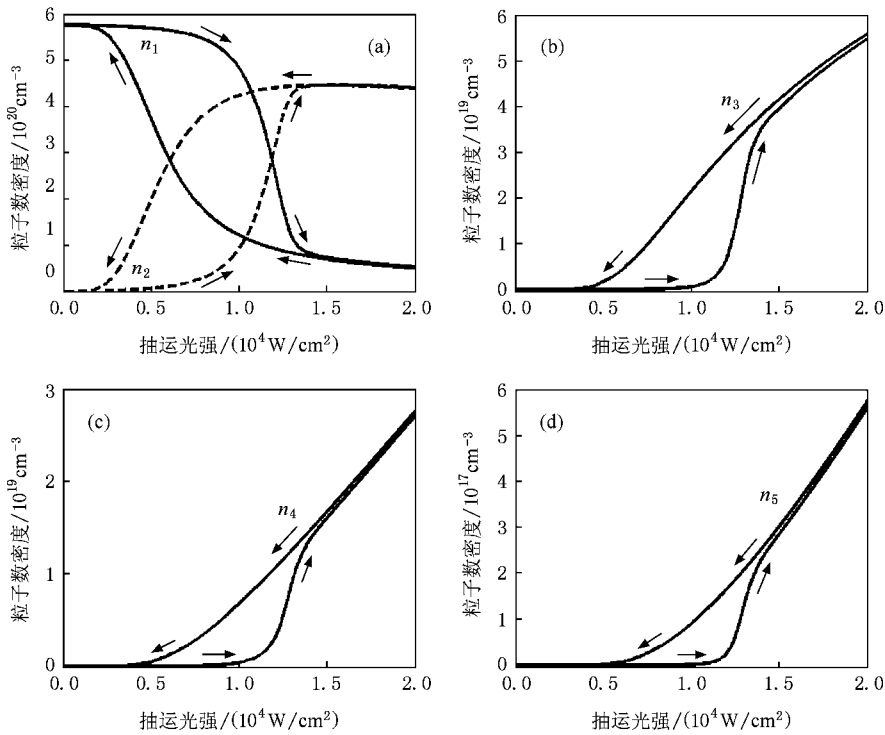


图2 Tm^{3+} 离子能级布居数的本征双稳态

又促使 Tm^{3+} 离子向激发态 3F_4 和 3H_4 能级上迅速布居. 能级 3F_4 和 3H_4 布居数的增加反过来又进一步增强激发态抽运过程. 在强烈的激发态谐振吸收和快速的横向弛豫的共同作用下, 系统形成正反馈, 光子雪崩过程发生, 对应的抽运功率阈值为 P_{th}^{max} . 对抽运光强减小过程, 当抽运光强从较高水平逐渐减小至雪崩阈值附近时, Tm^{3+} 离子系统将保持粒子数反转布居状态. 此时由于激发态 $Tm^{3+} \ ^3F_4$ 和 3H_4 上具有很高的布居数密度, 因此光子雪崩过程仍继续发生. 随着抽运光强的继续减小, 激发态抽运速率逐渐降低, 光子雪崩过程逐渐削弱, 导致 Tm^{3+} 离子激发态能级布居数密度逐渐减小. 这一过程又进一步削弱激发态谐振吸收过程, 系统形成正反馈. 当抽运光强低于一定水平 ($\sim 2.5 \text{ kW/cm}^2$) 时, 正反馈过程急剧增强, 激发态能级迅速解布居, Tm^{3+} 离子能级布居数密度发生突变, 系统几乎恢复到初始的玻尔兹曼分布热力学平衡态, 光子雪崩过程终止, 对应的抽运功率阈值为 P_{th}^{min} . 由此可见, 抽运功率减小过程的雪崩阈值与增加过程的不同, 光子雪崩产生滞后现象, 相应的阈值 P_{th}^{min} 小于 P_{th}^{max} , Tm^{3+} 离子能级粒子数密度 n_j 对抽运激光功率存在双稳回线行为. 数值计算结果显示, 双稳区宽度约为 $\Delta P/S \approx 10 \text{ kW/cm}^2$. 对于 $200 \mu\text{m}^2$ 的抽运光斑, 可以获得约 20 mW 功率宽

度的双稳回线. 在双稳区 $P_{th}^{min} < P < P_{th}^{max}$ 内, 同一抽运功率在抽运功率增加过程和减小过程激发的能级布居数密度不同. 由于 Tm^{3+} 离子激发态能级布居数存在本征双稳行为, 因此可以预言在实验上能够观察到 Tm^{3+} 离子的可见与红外辐射发光双稳.

3.3. 可见与红外发光转换

图3数值模拟了不同激发强度下的 Tm^{3+} 离子连续辐射光谱. 在低激发强度下, 如图3(a)所示, 辐射光谱主要由 $Tm^{3+} \ ^3F_4 \rightarrow ^3H_6$ 跃迁辐射产生, 主辐射峰为 1716 nm 的红外辐射带. 当激发强度增加时, 如图3(b)(c)所示, $Tm^{3+} \ ^3F_4 \rightarrow ^3H_6$ 跃迁对辐射光谱的贡献逐渐削弱, 同时 $Tm^{3+} \ ^3H_4 \rightarrow ^3H_6$ 跃迁(辐射波长为 787 nm), $Tm^{3+} \ ^1G_4 \rightarrow ^3H_6$ 跃迁(辐射波长为 469 nm), $Tm^{3+} \ ^1D_2 \rightarrow ^3F_4$ 跃迁(辐射波长为 452 nm)和 $Tm^{3+} \ ^1D_2 \rightarrow ^3H_6$ 跃迁(辐射波长为 357 nm)对辐射光谱的贡献逐渐增强. 当激发强度足够高时, 如图3(d)所示, 辐射光谱主要由 357 nm 紫外, 452/469 nm 可见和 787 nm 近红外辐射带构成. 其中 452/469 nm 蓝色可见光辐射最强, 是主辐射峰, 357 nm 紫外和 787 nm 近红外辐射相对较弱, 是次辐射峰. 由图3可知, 改变抽运强度, Tm^{3+} 离子系统能够获得可见与红外光谱的辐射波长转换, 切换波长间隔约 1256

nm. 利用 Tm^{3+} 离子系统的辐射波长转换特性, 可以实现抽运功率控制的全固态可见(452—469 nm 蓝

光)与红外(1716 nm)波长发光转换器, 以及本征双色和多色光开关.

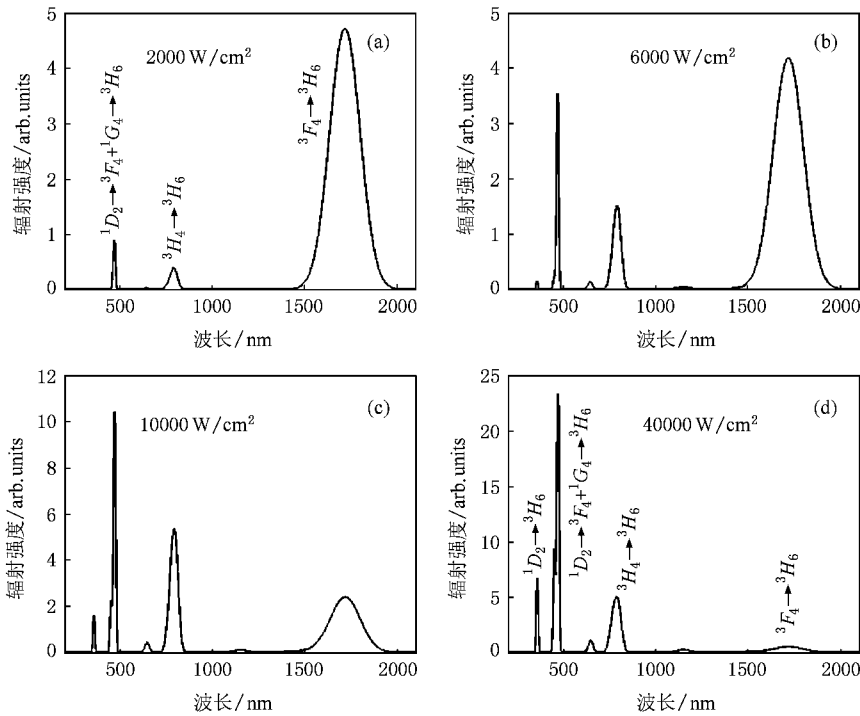


图 3 不同激发强度的 Tm^{3+} 离子连续辐射光谱

可见与红外发光转换过程可由辐射波长的发光比变化来描述. 发光比定义为辐射波长的积分强度占总辐射强度的比重. 发光比的变化反映了不同激发强度下的各波长辐射强弱的转化过程. 图 4 给出了主要辐射中心波长对应的发光比随抽运光强的变化曲线.

$nm(^3F_4 \rightarrow ^3H_6)$ 跃迁) 红外辐射的发光比逐渐降低, 而 452/469 nm ($^1D_2 \rightarrow ^3F_4, ^1G_4 \rightarrow ^3H_6$ 跃迁) 可见, 787 nm ($^3H_4 \rightarrow ^3H_6$ 跃迁) 近红外和 357 nm ($^1D_2 \rightarrow ^3H_6$ 跃迁) 紫外辐射的发光比逐渐升高. 当抽运光强超过某一特定值(即发光转换阈值) 时, 452/469 nm 蓝色辐射发光比将高于 1716 nm 红外辐射发光比, 辐射光谱开始由红外向可见光谱转移. 随着抽运光强的继续增加, 蓝色上转换发光不断增强, 而红外辐射发光比继续降低, 最终导致红外到可见的发光转换. 图 4 还给出了发光比随抽运光强由高到低减小过程的变化曲线. 由图 4 可知, 在光子雪崩阈值附近, 抽运光强增加过程对应的发光比和抽运光强减小过程的不同, 发光比出现双稳回线行为, 这是由 Tm^{3+} 离子能级布居数的本征双稳性导致的. 需要注意的是, 1716 nm 辐射发光比双稳呈现顺时针回线环, 而其他辐射波长的发光比双稳则呈现逆时针回线环. Tm^{3+} 离子系统的可见与红外发光转换阈值($\sim 17.5 \text{ kW/cm}^2$) 远高于光子雪崩阈值($\sim 10 \text{ kW/cm}^2$).

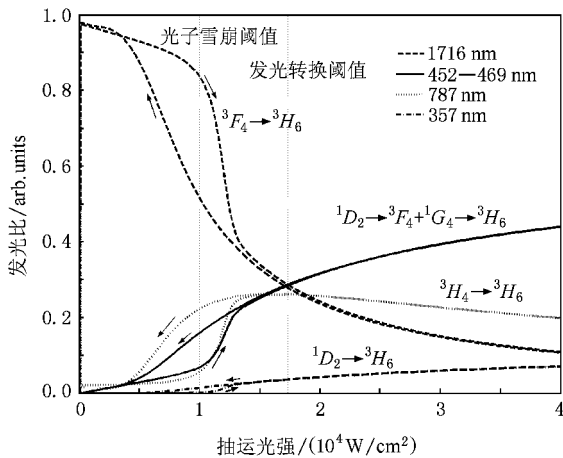


图 4 Tm^{3+} 离子发光比随抽运光强的变化

由图 4 可知, 随着抽运光强由低到高变化, 1716

根据辐射光谱分析, 结合 Tm^{3+} 离子能量传递过程, 图 3 和图 4 给出的可见与红外发光转换可通过激发强度依赖的激发态吸收上转换过程加以解释.

根据系统的速率方程理论, $Tm^{3+} F_4$ 能级布居数变化可由(1d)式描述,其中布居数的增加主要来源于横向弛豫过程,布居数的削减主要由激发态吸收、能量传递上转换和自发辐射跃迁过程导致.在较低抽运强度下,激发态抽运速率很弱,此时有

$$\begin{aligned} & \xi(P)n_2 + 2an_2^2 + n_2/\tau_{\text{eff}} \\ & < \beta_{5 \rightarrow 4, 1 \rightarrow 2} n_5 n_1 + \beta_{4 \rightarrow 3, 1 \rightarrow 2} n_4 n_1 \\ & \quad + 2\beta_{3 \rightarrow 2, 1 \rightarrow 2} n_3 n_1, \end{aligned}$$

其中激发态抽运速率 $\xi(P) = P\sigma_{2 \rightarrow 4}/Sh\nu$. Tm^{3+} 离子主要通过快速横向弛豫过程向亚稳态 3F_4 能级布居,而高阶激发态能级的布居数密度很小,因此 $Tm^{3+} F_4 \rightarrow ^3H_6$ 跃迁辐射是主导的,辐射光谱以 1716 nm 红外辐射为主.当抽运强度增加时,激发态抽运速率逐渐增加.在激发态谐振吸收上转换的作用下, Tm^{3+} 离子不断地向高激发态 1G_4 和 1D_2 能级布居,相应的 $Tm^{3+} G_4 \rightarrow ^3H_6$, $^1D_2 \rightarrow ^3F_4$ 和 $Tm^{3+} D_2 \rightarrow ^3H_6$ 跃迁过程逐渐增强.当抽运光强足够高时,激发态抽运速率迅速增加,从而导致激发态谐振吸收上转换过程大大增强,此时有

$$\xi(P)n_2 + 2an_2^2 + n_2/\tau_{\text{eff}}$$

$$> \beta_{5 \rightarrow 4, 1 \rightarrow 2} n_5 n_1 + \beta_{4 \rightarrow 3, 1 \rightarrow 2} n_4 n_1 + 2\beta_{3 \rightarrow 2, 1 \rightarrow 2} n_3 n_1.$$

$Tm^{3+} F_4$ 能级上的粒子通过强烈的激发态吸收上转换过程迅速向高激发态布居,导致 $Tm^{3+} D_2$, 1G_4 能级获得了较高的布居数密度.又由于 $Tm^{3+} D_2 \rightarrow ^3F_4$, $^1G_4 \rightarrow ^3H_6$ 跃迁通道具有非常高的辐射跃迁速率(见表1),从而导致很强的 452/469 nm 蓝色上转换发光,实现了红外与可见光谱的发光转换.令归一化布居数密度 $\eta_i = n_i/n$ ($i = 1, 2, 3, 4, 5$),根据上述分析,忽略高激发态能级的自发辐射跃迁过程,考虑如下近似关系 $\eta_1 \ll 1$, $\eta_3 \ll 1$, $\beta_{5 \rightarrow 4, 1 \rightarrow 2} \sim \beta_{4 \rightarrow 3, 1 \rightarrow 2} \sim \beta_{3 \rightarrow 2, 1 \rightarrow 2} \approx \beta$, 可得到一级近似下发光转换的阈值条件

$$\frac{P_{\text{th}}}{S} \approx \frac{h\nu}{\sigma_{2 \rightarrow 4}} \left[n \left(\frac{\beta}{\gamma} - 2\alpha \right) - \frac{1}{\tau_{\text{eff}}} \right], \quad (3)$$

其中 $\gamma = n_2/n_1$ 和 τ_{eff} 分别表示 $Tm^{3+} F_4$ 能级粒子反转布居比和能级有效寿命.结合表1的参数和 $\tau_{\text{eff}} \approx 2.5 \text{ ms}^{[20]}$, 求得发光转换阈值 $P_{\text{th}}/S \approx 18.3 \text{ kW/cm}^2$, 与数值结果 17.5 kW/cm^2 基本一致,误差约 4.5%.这表明,尽管解析推导过程中作了一些必要的简化和近似,但得到的阈值条件仍是有效的.由阈值条件(3)式可知,发光转换阈值随着横向弛豫速率的增加而增加,随着激发态吸收截面和能量传递

上转换速率的增加而降低.

3.4. 本征双稳多色开关

根据 Tm^{3+} 离子系统在光子雪崩阈值附近的布居数双稳和发光比双稳特性,可以推测 Tm^{3+} 离子的双稳辐射发光谱.为了直观地观察双稳辐射发光过程,图5给出了不同的抽运光强变化过程(增加和减小过程)对应的辐射发光光谱.由图5可见,当激发强度远低于和远高于光子雪崩阈值($\sim 10 \text{ kW/cm}^2$)时,如图5(a)和(f)所示,抽运光强增加过程的发光光谱和减小过程的几乎没有差别.正如图4的结果所期望的,在这些激发光强下, Tm^{3+} 离子不存在双稳发光现象.当抽运光强处于光子雪崩阈值附近时,如图5(b)–(e)所示,在特定的激发强度下, Tm^{3+} 离子的辐射发光光谱形状依赖于抽运光强的变化方式.抽运光强减小过程的发光光谱与增加过程的相比较,出现了显著的差别,其中 1716 nm 红外辐射带的辐射发光减弱,而 787 nm 近红外、452/469 nm 可见和 357 nm 紫外辐射带的辐射发光增强,这与图4的结果是一致的.

图6给出了主要峰值波长的辐射积分强度随抽运光强变化的双稳行为.由图6可知,双稳态的上跃变阈值和下跃变阈值分别为 12.5 kW/cm^2 和 2.5 kW/cm^2 , 双稳回线环具有约 10 kW/cm^2 宽的光强变化范围.当抽运光强逐渐变化时, 1716 nm 红外, 787 nm 近红外, 452/469 nm 蓝色可见和 357 nm 紫外发光的双稳切换操作几乎同时发生,且双稳环开关方向一致,都呈现逆时针方向.需要注意的是, 1716 nm ($Tm^{3+} F_4 \rightarrow ^3H_6$) 红外发光的辐射强度双稳回线的切换方向(逆时针)恰好与其发光比双稳回线的切换方向(顺时针)相反.这表明,尽管抽运光强减小过程对应的 1716 nm 红外发光强度高于抽运光强增加过程的发光强度,但是由于抽运光强减小过程的 $Tm^{3+} F_4$ 能级布居数密度高于增加过程(见图2),在激发态吸收上转换过程的作用下, 452/469 nm 蓝色上转换发光和 787 nm 近红外发光迅速增强,对辐射谱的贡献迅速提高,从而导致 1716 nm 红外发光对辐射谱的贡献相对降低,发光比减小.以上分析结果表明,利用 Tm^{3+} 离子的辐射谱双稳和发光双稳特性,可以实现全固态本征双稳多色开关和波长转换,辐射峰值波长的输出变化可以通过改变抽运光强或引入控制脉冲来控制双稳态的开关操作.

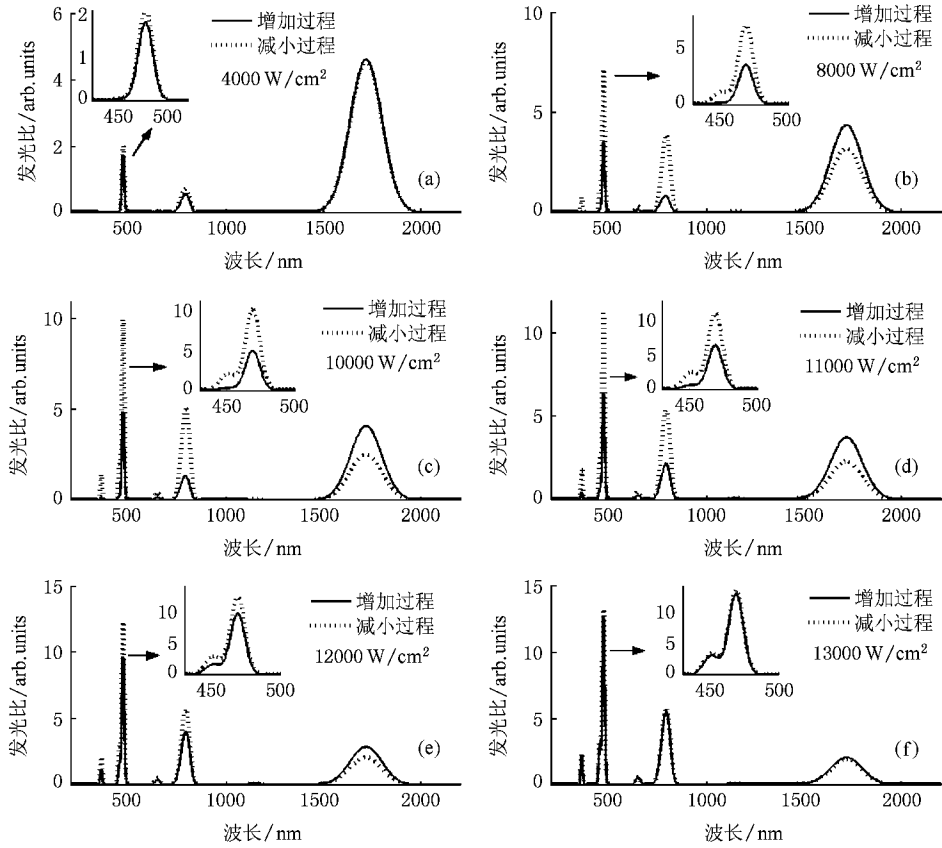


图 5 不同激发强度下 Tm³⁺ 离子的双稳辐射发光谱

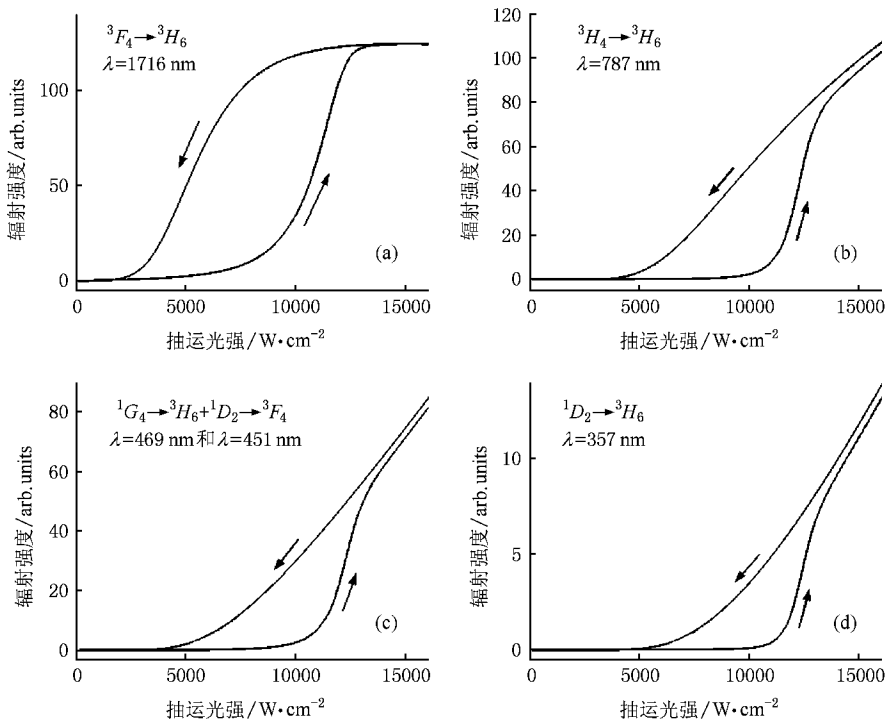


图 6 Tm³⁺ 离子主要辐射波长的发光双稳

4. 结 论

本文理论研究了 648 nm 激光雪崩抽运掺 Tm 晶体的可见与红外发光转换及发光双稳特性. 根据系统的非线性速率方程理论, 推导了发光转换阈值的解析表达式, 数值研究了能级布居数本征双稳态, 可见与红外辐射光谱转换及辐射强度双稳等. 数值结果表明, 648 nm 激光抽运下可以实现可见与红外光

谱的发光转换和波长开关. 在光子雪崩阈值附近, 可以观察到掺 Tm 激光晶体的辐射光谱双稳, 荧光色度双稳和发光强度双稳等现象. 利用掺 Tm 晶体的可见与红外发光转换与发光双稳特性, 可以实现抽运功率控制的全固态发光转换器和双稳波长开关. Tm³⁺ 离子掺杂晶体不仅在 2 μm 全固态激光器方面具有重要的应用, 而且本征光学双稳特性的存在必将拓宽其应用领域和提高其潜在的应用价值.

- [1] Szöke A, Daneu V, Goldhar J, Kumit N A 1969 *Appl. Phys. Lett.* **15** 376
- [2] Gibbs H M, McCall S L, Venkatesan T N C 1976 *Phys. Rev. Lett.* **36** 1135
- [3] Hehlen M P, Güdel H U, Rai J, Rai S, Rand S C 1994 *Phys. Rev. Lett.* **73** 1103
- [4] Hehlen M P, Güdel H U, Shu Q, Rand S C 1996 *J. Chem. Phys.* **104** 1232
- [5] Hehlen M P, Kuditcher A, Rand S C, Lüthi S R 1999 *Phys. Rev. Lett.* **82** 3050
- [6] Gamelin D R, Lüthi S R, Güdel H U 2000 *J. Phys. Chem. B* **104** 11045
- [7] Kuditcher A, Hehlen M P, Florea C M, Winick K W, Rand S C 2000 *Phys. Rev. Lett.* **84** 1898
- [8] Noginov M A, Vondrova M, Lucas B D 2001 *Phys. Rev. B* **65** 035112
- [9] Noginov M A, Vondrova M, Casimir D 2003 *Phys. Rev. B* **68** 195119
- [10] Li L, Zhang X L, Chen L X 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 278 (in Chinese) [李 立、张新陆、陈历学 2008 物理学报 **57** 278]
- [11] Zhang X L, Wang Y Z, Li L, Ju Y L 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 1699 (in Chinese) [张新陆、王月珠、李 立、鞠有伦 2008 物理学报 **57** 1699]
- [12] Redmond S M, Rand S C 2003 *Opt. Lett.* **28** 173
- [13] Ródenas A, Jaque D, García Solé J, Speghini A, Bettinelli M, Cavalli E 2006 *Phys. Rev. B* **74** 035106
- [14] Martín I R, Goutaudier C, Guy S, Guyot Y, Boulon G, Cohen A M T, Joubert M F 1999 *Phys. Rev. B* **60** 7252
- [15] Bell M J V, Sousa D F, Oliveira S L, Lebullenger R, Hernandes A C, Nunes L A O 2002 *J. Phys. : Condens. Matter.* **14** 5651
- [16] Niu Y, Wang Z M, Liu Y C, Yin Y S, Yuan D R 2007 *Acta Phys. Sin.* **56** 2968 (in Chinese) [牛 艺、王增梅、刘英才、尹衍升、袁多容 2007 物理学报 **56** 2968]
- [17] Han L, Song F, Zou C G, Su J, Yan L H, Tian J G, Zhang G Y 2007 *Acta Phys. Sin.* **56** 4187 (in Chinese) [韩 琳、宋 峰、邹 昌光、苏 静、闫立华、田建国、张光寅 2007 物理学报 **56** 4187]
- [18] Joubert M F, Guy S, Jacquier B 1993 *Phys. Rev. B* **48** 10031
- [19] Joubert M F 1999 *Opt. Mater.* **11** 181
- [20] Babu P, Seo H J, Jang K H, Balakrishnaiah R, Jayasankar C K, Joshi A S 2005 *J. Phys. : Condens. Matter.* **17** 4859
- [21] Martín I R, Rodriguez V D, Guyot Y, Guy S, Boulon G, Joubert M F 2000 *J. Phys. : Condens. Matter.* **12** 1507

Chromatic bistability and luminescence switching of visible-infrared emission in Tm-doped laser crystal^{*}

Li Li^{1,2)†} Zhang Xin-Lu²⁾ Chen Li-Xue¹⁾ Wang Ran²⁾

¹⁾ *Department of Physics, Harbin Institute of Technology, Harbin 150001, China*

²⁾ *College of Science, Harbin Engineering University, Harbin 150001, China*

(Received 3 September 2007; revised manuscript received 27 February 2008)

Abstract

Optical bistability and luminescence switching of visible-infrared emission in Tm-doped laser crystal pumped at 648 nm avalanche wavelength is predicted theoretically and studied numerically. The analytical formula of luminescence switching threshold is deduced using the theory of nonlinear rate equations. The evolutions of populations of Tm³⁺ energy levels, emission spectrum and fluorescence intensity versus pump power are investigated numerically. The numerical results predict that the luminescence switching between 452/469 nm blue and 1716 nm infrared spectra can be experimentally realized under 648 nm laser pumping. Moreover, the bistability of emission spectra, chromatic fluorescence and luminescence intensity in Tm-doped crystal can be observed in the vicinity of photon avalanche threshold. The characteristics of chromatic bistability and luminescence switching in Tm-doped crystal allow for the tailoring of pump-controlled all-solid luminescent switcher and bistable wavelength switch operating in visible-infrared spectral range.

Keywords : optical bistability, chromatic switching, Tm-doped crystal, photon avalanche

PACC : 4265P, 3280B, 3280K

^{*} Project supported by the Specialized Research Fund for the Doctoral Program of Higher Education of China (Grant No. 20070217014).

[†] E-mail : lylee_heu@yahoo.com