

四能级动态雪崩上转换过程的计算分析*

郝昭 陈晓波 张光寅 李美仙 毛育红

(南开大学物理系, 天津, 300071)

冯志萍[†]

(天津大学物理系, 天津, 300072)

0432.12

A 摘要 通过建立四能级雪崩上转换系统的速率方程, 分析和讨论了雪崩上转换的动态过程及其特点.

关键词 雪崩上转换, 动态过程.

激光激发机制

⑤

引言

雪崩吸收上转换是一种特殊的非线性激发机制, 在掺 Pr^[1]、Nd^[2]、Tm^[3] 稀土离子的材料中都已观察到以雪崩吸收过程泵浦的上转换激光作用. 在这种激发过程中, 泵浦光与激发态之间的跃迁相共振而不与基态吸收共振, 粒子通过交叉弛豫和能量转换而在激发态上集聚. 对稳态雪崩过程的计算分析^[4]及实验数据都表明雪崩吸收上转换存在一个泵浦光强度的阈值, 在泵浦光强度超过阈值时, 雪崩过程的建立时间随之变短, 而平衡吸收增强. 本文通过建立四能级雪崩上转换系统的速率方程, 进一步分析讨论了雪崩上转换的动态过程及其特点.

1 理论分析

考虑如图 1 所示的四能级雪崩上转换能级系统, 图中能级 1 为基态, 能级 2、3、4 为激发态. 泵浦光与激发态能级 2、4 之间的跃迁发生共振而不与基态跃迁共振. 当接通泵浦光时, 由于粒子基本都处于基态, 泵浦吸收很小. 如果由于高阶激发过程的作用, 极少数粒子被激发至能级 2, 由于泵浦光的作用, 它们会被迅速抽运到能级 4, 在能级 4 上经过快速无辐射跃迁而退激发至能级 3. 而能级 3 上的粒子在退激发过程中, 有可能通过交叉弛豫作用而将一部分能量传递给周围处于基态的粒子, 使之激发至能级 2. 能级 3 上的粒子因此也退激发至能级 2. 如果交叉弛豫的作用与其它不增加能级 2 上布居数的退激发通道相比有足够的强度, 能级 2 上的布居数就会迅速增加, 形成一种雪崩式的吸收过程.

对于这一过程可以建立如下速率方程:

$$\frac{dN_1}{dt} = Q_{31} \cdot N_3 + Q_2 \cdot N_2 - R_1 \cdot N_1 - P \cdot N_1 \cdot N_3, \quad (1a)$$

$$\frac{dN_2}{dt} = Q_{32} \cdot N_3 - Q_2 \cdot N_2 + R_1 \cdot N_1 - R \cdot N_2 + 2 \cdot P \cdot N_1 \cdot N_3, \quad (1b)$$

* 国家自然科学基金资助项目

† 本文 1995 年 10 月 16 日收到, 最后修改稿 1996 年 3 月 11 日收到

$$\frac{dN_3}{dt} = -Q_3 \cdot N_3 + R \cdot N_2 - P \cdot N_1 \cdot N_3, \tag{1c}$$

$$N_1 + N_2 + N_3 = 1, \tag{1d}$$

其中, N_i 为能级 i 上的布居数, Q_{ij} 表示能级 i 至能级 j 的辐射跃迁速率和无辐射跃迁速率之和, Q_i 表示能级 i 向下能级跃迁速率之和, P 为交叉弛豫跃迁速率, R_1 和 R 为泵浦激发速率. 这里 R_1 是一个非常小的量, 故此在稳态计算中忽略其影响. 显然, $N_1=1, N_2=N_3=0$ 为方程组(1)的常数解. 这对应于在 $t=0$ 时刻还未发生雪崩吸收的初始状态.

2 稳态过程计算分析

从方程组(1), 我们首先可以分析其发生雪崩吸收之后达到稳态时速率方程的解. 令 $dN_i/dt=0$, 可得到下述稳态解:

$$\begin{cases} N_1 = \frac{Q_3 \cdot Q_2 + Q_{31} \cdot R}{P \cdot (R + Q_3 + Q_{31} - Q_2)} \\ N_2 = \frac{P \cdot R - P \cdot Q_2 - Q_3 \cdot Q_2 - R \cdot Q_{31}}{P \cdot (R + Q_3 + Q_{31} - Q_2)} \cdot \frac{Q_3 + Q_{31}}{R - Q_2} \\ N_3 = \frac{P \cdot R - P \cdot Q_2 - Q_3 \cdot Q_2 - R \cdot Q_{31}}{P \cdot (R + Q_3 + Q_{31} - Q_2)} \end{cases} \tag{2}$$

要使这一组解在物理上存在, 必须满足 $1 \geq N_i \geq 0$. 从而可以得到发生雪崩吸收所需满足的两个基本条件: (1) 材料的交叉弛豫跃迁率必须有足够的强度. 在本文分析的四能级系统中, 它必须大于临界值 Q_{31} . 在交叉弛豫跃迁率小于这个值时, 不能激发出雪崩吸收上转换过程. (2) 泵浦光的强度存在一个阈值, 低于这个值雪崩过程不会发生. 在四能级系统中, 可以通过 $R_c = \frac{P+Q_3}{P-Q_{31}} \cdot Q_2$, 来确定阈值, 其中 R_c 为泵浦光强度达到阈值时的泵浦激发速率. 将其改写为 $\frac{R_c}{Q_2} = \frac{P/Q_3+1}{P/Q_3-b}$, 其中 $b = \frac{Q_{31}}{Q_3}$. 由此可以更好的看出泵浦光的阈值与 $Q_2, \frac{P}{Q_3}, b$ 值的关系.

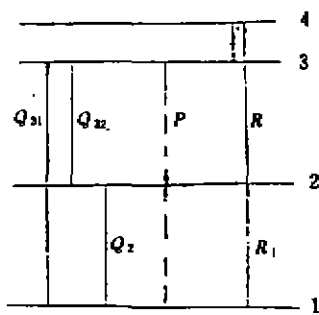


图1 四能级雪崩上转换系统
Fig.1 The four-level scheme of the avalanche upconversion

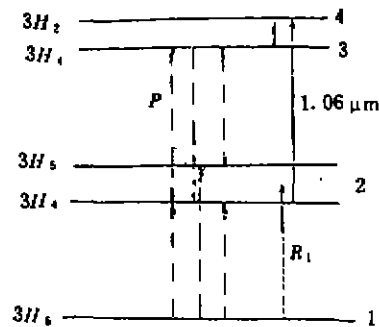


图2 Tm³⁺中四能级雪崩上转换系统
Fig.2 An example system of four-level avalanche upconversion for Tm³⁺ pumped by 1.06μm laser

3 稳态结果分析

图 3 给出了各能级布居数 N_1 、 N_2 、 N_3 随泵浦光激发速率的变化曲线. 从图可看出, 在泵浦光达到阈值时, 基态布居数随 R 增大而迅速减小至它的极限值, 基态布居数极限值与 b 值密切相关. 由稳态速率方程的解可以得到, N_1 的极限值为 $b/(P/Q_3)$. 随着 b 的减小, N_1 随 R 的增大而减小的速度也随之加快, 对应着雪崩效应的增强. 从物理上看, b 值的减小意味着能级 3 上的布居数退激发至基态的速率减小, 从而增大了粒子在能级 2 上布居的几率, 因而使雪崩效应增强. 图中还可以看出, 能级 2 上的布居数在泵浦激发速率达到阈值 R_c 时, 随 R 的进一步增大而迅速增加, 这与 N_1 的变化相对应, 而且, 值得注意的是, 能级 3 上的布居数随泵浦光强的增大而稳定增加. 当泵浦光强度足够强时, 能级 3 上的布居数就开始超过能级 2 上的布居数, 这时, 不但能有效地实现能级 2 与基态粒子布居数的反转, 也能有效地实现能级 3 与能级 1、2 之间的粒子数反转.

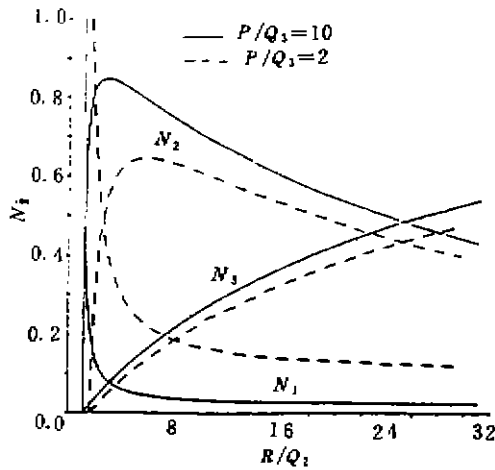


图 3 稳态下各级上布居数与
泵浦激发速率的关系
Fig. 3 The population on each energy
level versus the pump-exciting rate,
under the steady state condition

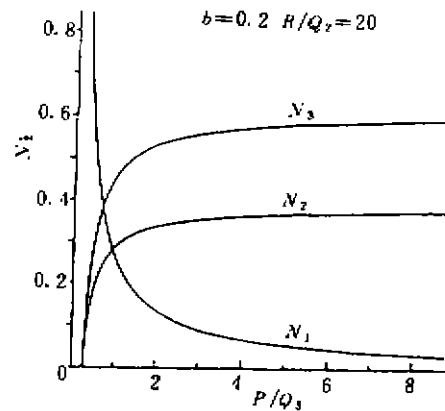


图 4 能级上布居数与
交叉弛豫跃迁速率的关系
Fig. 4 The relationship between
population and cross-relaxing
transition rate on each level

图 4 和 5 给出了在不同泵浦速率下布居数随交叉弛豫跃迁几率 P 的变化曲线, 可以看到, 在泵浦光强度一定的情况下, 只要材料交叉弛豫跃迁速率达到临界值, 各能级的布居数就会迅速随 P 的进一步增加而趋向于它们各自的极限值. 对图 4 的情况, 能级 2 与能级 3 的布居数未发生反转, 而在图 5 的情况, 能级 2 和能级 3 的布居数已发生了反转. 由稳态速率方程的解, 可以得到 N_2 、 N_3 的布居数反转的条件是

$$\frac{R}{Q_2} \geq 1 + \frac{(1+b) \cdot Q_3}{Q_2}$$

这个条件与交叉弛豫跃迁几率无关.

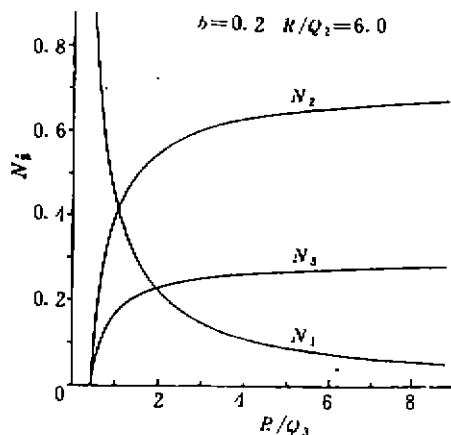


图5 能级上布居数与交叉弛豫跃迁速率的关系
Fig. 5 The relationship between population and cross-relaxing transition rate on each level

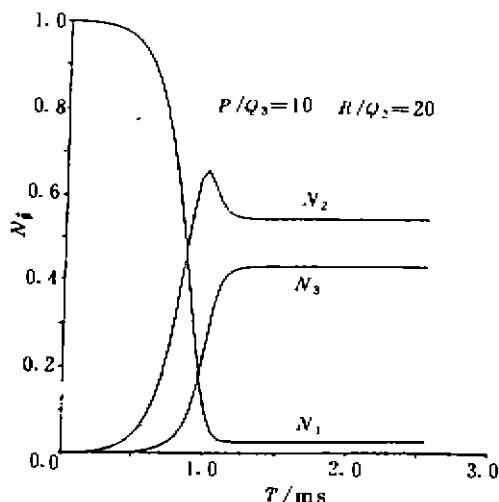


图6 雪崩过程各能级上布居数的时间变化曲线
Fig. 6 The variation with time of the population on each level, for the avalanche upconversion

从稳态过程的分析计算可以看出,要使雪崩吸收上转换过程发生,材料的交叉弛豫跃迁速率必须大于一个临界值.这个临界值与外部泵浦光强度无关而只与材料的自身特性有关.另外,雪崩过程还要求泵浦光强达到有关阈值,从而使泵浦激发速率大于阈值激发速率 R_c .阈值激发速率 R_c 将随交叉弛豫要求几率 P 的增加而迅速降至它的最小值. b 值的减小,可使材料的雪崩效应增强,对掺杂浓度不同的材料,交叉弛豫要求速率也不同.但是对四能级雪崩系统,它们都在泵浦光强达到某一相同值时出现激发态间的粒子数反转.

4 动态计算、讨论与分析

考虑 Tm^{3+} 离子的四能级雪崩系统(如图2所示),具体分析雪崩吸收的动态过程.

由于 $3H_5$ 到 $3F_4$ 的快速无辐射跃迁,它们可以一起构成能级2.通过计算可以得到能级间的跃迁几率值 Q_i ,如下: $Q_2=5 \times 10^2 (s^{-1})$, $Q_{31}=2 \times 10^3 (s^{-1})$, $Q_{32}=8 \times 10^3 (s^{-1})$.

图6是在 $P/Q_3=10$, $R/Q_2=20$ 的情况下,各能级布居数随时间的变化曲线,从图中可以看到,各能级上的布居数先有一段过渡时间,布居数基本不改变;随之由于雪崩过程加速,各能级上的布居数迅速变化到它们的平衡值.值得注意的另一个特点是能级2上的布居数在达到平衡值前有一个上冲,而在能级1和3上则不发生这种情况.由于泵浦光吸收发生在与能级2上的粒子共振吸收处, N_2 的这种变化就会造成泵浦光的吸收曲线也发生一个相应上冲,从文献[5]的实验曲线来看,这个预测是符合实验结果的.

图7给出了不同交叉弛豫跃迁速率 P 的材料在同一泵浦激发速度 $R/Q_2=20$ 的情况下, N_2 随时间的变化曲线.从图可知,交叉弛豫作用 P 值的提高,能使雪崩过程的建立时间有效地缩短.另一方面, N_2 的上冲幅度也随 P 值的增大而增大.在 P 值较小时,对应图中曲

线 A 的情况, N_2 值则基本不发生上冲。

图 8 给出了同一材料 ($P/Q_3=10$) 在不同光强下的 N_2 值的变化曲线, 图中用实线和虚线同时给出了基态吸收 R_1 分别为 $0.1\%R$ 和 $1\%R$ 两种情况下的变化曲线。可以看出, 泵浦光强的提高, 同样会使 N_2 值上冲幅度增大, 同时有效地减短雪崩过程的建立时间。对比实线和虚线, 可以看到在存在弱基态吸收的情况下, 可以有效地缩短雪崩过程的建立时间而不改变雪崩吸收上转换的其它特性。

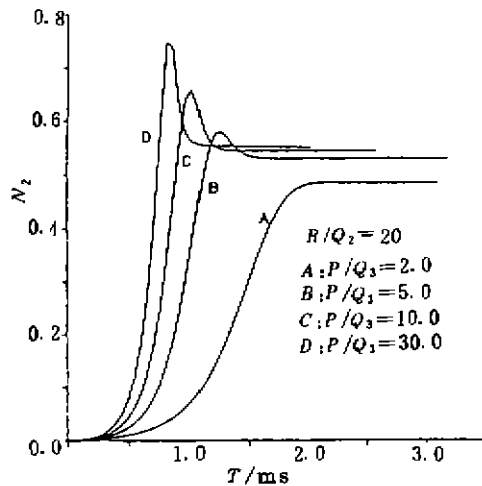


图 7 不同交叉弛豫跃迁速率的材料在同一泵浦激发速率下泵浦能级布居数的时间变化曲线

Fig. 7 The variation with time of population on the pumping level with the same pump-exciting rate and different crossrelaxing transition rate

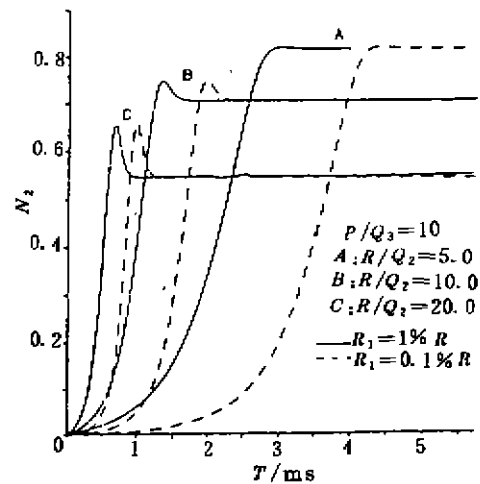


图 8 不同泵浦激发速率及不同基态吸收强度下泵浦能级布居数的时间变化曲线

Fig. 8 The variation with time of population on the pumping level with different pump-exciting rate and different absorptivity

5 动态结论

由以上的讨论分析可以看到, 交叉弛豫跃迁速率的提高, 泵浦光强度的增强, 以及一定量的弱基态吸收, 都能有效地缩短雪崩上转换构成的建立时间。在交叉弛豫作用和泵浦光强度值达到一定程度时, 雪崩过程中还会发生泵浦光吸收曲线的一个上冲。

参考文献

- 1 Kuenv A W, Case W E, Koch M E. *Opt. soc. Am. (B)*, 1989, 6(4): 639
- 2 Lenth W, Macfarlane R M. *J. of Luminescence*, 1990, 45: 346
- 3 Ni H, Rand S C. *Opt. Lett.*, 1991, 16(18): 1424
- 4 毛育红, 陈晓波, 张光寅. *发光学报*, 1995, 17: (17): 1222
- 5 Ni H, Rand S C. *Opt. Lett.*, 1992, 17(17): 1222

THE DYNAMIC MECHANISM CALCULATION AND ANALYSIS OF FOUR-LEVEL AVALANCHE UPCONVERSION SYSTEM*

Hao Zhao Chen Xiaobo Zhang Guangyin Li Meixian Mao Yuhong

(Department of Physics, Nankai University, Tianjin 300071, China)

Feng Zhiping

(Department of Physics, Tianjin University, Tianjin 300071, China)

Abstract Properties of the dynamic mechanism of a four-level avalanche upconversion system were investigated by using rate equations.

Key words avalanche upconversion, dynamic mechanism.

* The project supported by the National Natural Science Foundation of China