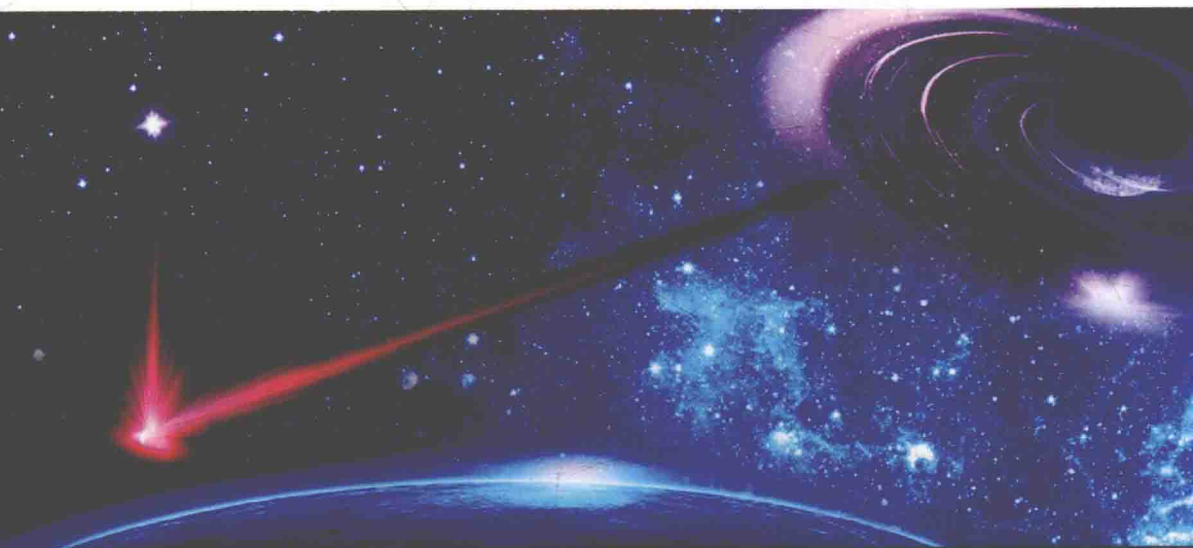


光学与光子学丛书

单频光纤激光器

杨中民 徐善辉 著



科学出版社

光学与光子学丛书

单频光纤激光器

杨中民 徐善辉 著



科学出版社

北京

内 容 简 介

单频光纤激光是近年来国内外激光技术领域研究的热点之一,得到了快速发展与广泛应用。本书内容新颖、特色鲜明,从稀土离子发光机理、单频激光器件到激光系统与应用等不同层次进行了介绍与论述,可读性强。主要内容包括:发光离子能级与光谱谱线对单频激光输出特性的影响;单频光纤激光的基本特性与测量,及其产生、放大过程中的特性分析;单频光纤激光噪声机理与抑制、线宽控制与稳频及其典型应用等。

本书可供从事光纤激光技术领域理论与应用研究的工程技术人员、科研工作者参考,也可作为高等院校相关专业的本科生和研究生教学用书。

图书在版编目(CIP)数据

单频光纤激光器/杨中民,徐善辉著. —北京:科学出版社,2017.12
(光学与光子学丛书)

ISBN 978-7-03-055762-9

I. ①单… II. ①杨… ②徐… III. ①光纤器件-单模激光器 IV. ①TN248

中国版本图书馆 CIP 数据核字(2017)第 298552 号

责任编辑:刘凤娟/责任校对:邹慧卿

责任印制:肖兴/封面设计:耕者

科学出版社 出版

北京东黄城根北街16号

邮政编码:100717

<http://www.sciencep.com>

中国科学院印刷厂 印刷

科学出版社发行 各地新华书店经销

*

2017年12月第一版 开本:720×1000 1/16

2017年12月第一次印刷 印张:12 1/2 插页:3

字数:237 000

定价:99.00元

(如有印装质量问题,我社负责调换)

前 言

单频光纤激光是光纤激光技术领域正在快速发展的特色鲜明的一个重要分支。单频光纤激光因其超窄光谱线宽、超长相干长度等特征，在光纤传感、相干激光雷达、大功率相干合成、相干光通信、光原子钟、引力波探测等领域有重要的应用前景。近年来，国内外不少研究机构，相继开展了针对单频光纤激光产生所必需的核心材料——高增益光纤的拉制、谐振腔设计以及其性能提升（如线宽压窄、噪声抑制、频率稳定及波长调谐等方面）的技术研究，相关研究是目前的研究热点，同时也为进一步拓展其应用领域提供了重要技术支撑。

目前光纤激光技术与应用领域的著作不少，但未见专门针对单频光纤激光器的著作出版。本书对单频光纤激光的产生机理、增益光纤研制、噪声产生机理及其抑制机制、线宽控制与频率稳定机制、功率放大等方面的最新技术发展及其应用，作了一些系统而深入的介绍与论述，希望给从事单频光纤激光研究与应用的科研人员提供部分参考，以期促进我国单频光纤激光技术与应用的快速发展。

本书第1章简要介绍了玻璃与光纤中的激活离子的发光机理、能量传递机制、光谱的谱线展宽等，通过优化基质组分和发光离子掺杂浓度，以实现在光纤中获得性能优异的单频激光输出。第2章介绍了单频光纤激光的基本性能参数与测试方法，重点介绍单频激光线宽与噪声这两大特征参数的评测方法。第3章介绍了单频光纤激光分类，重点介绍短线型 DBR 腔单频光纤激光器的高增益光纤制备、异质光纤熔接技术、连续或脉冲单频激光腔设计等内容。第4章介绍并分析了单频光纤激光器噪声产生的机理，并重点介绍了单频光纤激光的噪声抑制技术与方法。第5章介绍了单频光纤激光的线宽控制（线宽压窄与线宽展宽）及其频率稳定技术。第6章介绍了单频光纤激光的放大技术，并详细介绍连续及脉冲单频激光放大研究的发展现状与趋势。第7章介绍了单频光纤激光在非线性频率转换、相干光通信、光学测量和光纤传感等领域的应用。

作者所在研究团队的同事与研究生们，在单频光纤激光技术方面的研究做了大量工作，为本书撰写提供了实验素材；本书在编写过程中，李灿、赵齐来、谭天奔等博士生参与了初稿的写作与讨论工作，并提出了一些很好的建议，在此一并表示感谢！

由于作者水平所限，书中如存在错漏或不当之处，敬请广大读者批评指正！

杨中民

2017年9月12日

目 录

前言	
第 1 章 绪论	1
1.1 引言	1
1.2 发光离子的能级跃迁	2
1.2.1 发光离子的能级	2
1.2.2 发光离子的能级跃迁	6
1.3 谱线展宽	10
1.3.1 均匀展宽和非均匀展宽	10
1.3.2 介质中发光粒子的光谱	14
1.3.3 谱线展宽与激光	17
参考文献	23
第 2 章 单频光纤激光的基本特性及测量方法	26
2.1 单频光纤激光的基本参数	26
2.1.1 功率、波长以及光谱特性	26
2.1.2 单纵模特性	28
2.1.3 模式质量	29
2.1.4 偏振态	30
2.2 单频光纤激光线宽特性及测试方法	32
2.3 单频光纤激光噪声特性	35
2.3.1 强度噪声的定义及测试方法	35
2.3.2 频率噪声的定义及测试方法	37
参考文献	39
第 3 章 单频光纤激光的产生	40
3.1 单频光纤激光器的分类	40
3.1.1 分布布拉格反射 (DBR) 型单频光纤激光器	40
3.1.2 分布反馈 (DFB) 型单频光纤激光器	42
3.1.3 环形腔单频光纤激光器	42
3.2 短线型 DBR 腔单频光纤激光器	43
3.2.1 高增益光纤材料的制备	44
3.2.2 异质光纤熔接技术	47

3.2.3	连续单频光纤激光腔的设计与制作	48
3.2.4	脉冲单频光纤激光器	52
3.2.5	频率调制单频光纤激光器	55
	参考文献	57
第4章	单频光纤激光噪声产生机理及其抑制技术	59
4.1	噪声产生机理分析	59
4.1.1	强度噪声机理	59
4.1.2	频率噪声机理	63
4.2	噪声抑制技术	67
4.2.1	强度噪声抑制	67
4.2.2	频率噪声抑制	76
	参考文献	82
第5章	单频光纤激光线宽控制与稳频技术	85
5.1	单频光纤激光的线宽控制	85
5.1.1	线宽压窄技术	86
5.1.2	线宽展宽技术	92
5.2	单频光纤激光器的稳频技术	95
5.2.1	单频光纤激光器频率稳定方法	95
5.2.2	DBR 短腔单频光纤激光器稳频实例	99
	参考文献	102
第6章	单频光纤激光的放大	104
6.1	单频光纤激光放大技术	104
6.1.1	MOPA 光纤激光器基本原理	104
6.1.2	MOPA 光纤激光器结构	105
6.1.3	大功率 MOPA 单频激光系统的限制因素	107
6.2	连续单频光纤激光的放大	109
6.2.1	1.0 μm 波段连续单频光纤激光的放大	109
6.2.2	1.5 μm 波段连续单频光纤激光的放大	122
6.2.3	2.0 μm 波段连续单频光纤激光的放大	132
6.3	脉冲单频光纤激光的放大	136
6.3.1	1.0 μm 波段脉冲单频光纤激光的放大	136
6.3.2	1.5 μm 波段脉冲单频光纤激光的放大	143
6.3.3	2.0 μm 波段脉冲单频光纤激光的放大	147
	参考文献	150
第7章	单频光纤激光的应用	160
7.1	单频光纤激光在非线性领域的应用	160
7.1.1	激光在非线性频率转换中的应用	160

7.1.2	单频光纤激光在倍频中的理论与应用	161
7.2	单频光纤激光在相干光通信领域的应用	163
7.2.1	相干光通信基本原理	163
7.2.2	相干光发射模块中的单频窄线宽光源	165
7.2.3	高速相干光通信的单频窄线宽光源发展应用情况	167
7.3	单频光纤激光在光学测量领域的应用	169
7.3.1	谐振式光纤陀螺	169
7.3.2	光纤水听器	173
7.3.3	激光雷达	176
7.4	单频光纤激光在分布式光纤传感领域的应用	178
7.4.1	分布式光纤传感技术的基本原理	178
7.4.2	基于瑞利散射的分布式光纤振动传感技术	179
7.4.3	基于布里渊效应的分布式光纤温度应变传感技术	182
7.4.4	基于拉曼效应的分布式光纤温度传感技术	185
	参考文献	186

第 1 章 绪 论

1.1 引 言

激光在 20 世纪 60 年代首次出现后,引起了广泛关注,取得了不断发展。与普通光源相比,激光具有高定向性、高相干性和高亮度等特点,可以广泛应用于工业、农业、医学、通信和国防等领域。

激光器的核心工作介质——发光材料,一般由发光基质和激活离子组成,也可能含有起到能量传递作用的敏化离子,其中发光基质可以是液体、气体、晶体或玻璃等^[1]。激活离子的电子跃迁引起发光,玻璃与光纤中的发光主要源于掺杂的稀土离子、过渡金属和主族金属离子(原子)以及量子点。

稀土元素通常指 15 种镧系元素和第 III 族副族元素钇(Y)^[2]。稀土离子具有独特的 $4f^n$ 电子结构,4f 电子受外层 $5s^2$ 和 $5p^6$ 满电子壳层的屏蔽作用,因此受外界的电场、磁场和配位场的影响较小,使稀土离子具有除镧系以外极复杂的类线形的光谱,且在玻璃中仍然能保持与自由离子(原子)相同的类线形光谱,因而广泛应用于新型光功能玻璃与有源光纤^[1,3]。另一方面,由于稀土离子这种发光本质特征,很难获得覆盖整个光通信波段的大增益带宽的光纤放大器。

近些年来,过渡金属和主族金属离子在玻璃和微晶玻璃中表现出的近红外超宽带发光性能引起了研究人员的关注。 $3d^n$ 电子构型的过渡金属元素主要有:钛(Ti),钒(V),铬(Cr),锰(Mn),铁(Fe),钴(Co),镍(Ni),铜(Cu)^[4]。过渡金属离子在玻璃中所处的配位场环境不固定,其非晶态的环境也使非辐射跃迁的概率变大,因此过渡金属离子掺杂的玻璃不适合用于光放大增益介质^[5]。而过渡金属离子掺杂的微晶玻璃,其过渡金属离子在晶体中处于特定的配位场环境,表现出良好的红外波段宽带发光,结合玻璃易加工成玻纤的优势,拉制成的过渡金属离子掺杂的微晶玻璃光纤,有望得到实际应用。自 1960 年首次实现激光输出以来,激光材料中的发光离子主要局限于过渡金属和稀土元素。直到 2001 年, Fujimoto 等首次在主族金属铋(Bi)掺杂的硅酸盐玻璃中发现了近红外波段的超宽带发光^[6]; 2005 年, Dianov 等在 Bi 掺杂的铝硅酸盐玻璃光纤中首次实现了波长 1150~1300 nm 的激光输出^[7],这两项工作被认为是主族金属离子掺杂玻璃与光纤材料发展的里程碑。随后,其他主族金属离子铊(Tl),铅(Pb),铟(In),锡(Sn),锑(Sb),碲(Te)

等的宽带发光特性逐渐被研究发现。主族金属离子的 s、p 价电子处于最外层电子层,受配位场影响大,易形成类似过渡金属离子的宽带发光,在覆盖整个光通信波段的宽带光纤放大器上应用前景较大^[8]。

量子点是一种准零维的、半径小于或者接近激子玻尔(Bohr)半径的半导体纳米晶,由于其量子限域效应而具有丰富的电学、磁学和光学性能,可应用于激光、可饱和吸收体、生物标记、LED 等许多领域^[9]。量子点主要由 II-VI 族元素(CdS, CdSe, CdTe, ZnS, ZnSe, ZnTe, HgTe 等), III-V 族元素(GaAs, InP, InAs 等)或 IV-VI 族元素(PbS, PbSe, PbTe 等)组成。量子点的发光机理:当半导体量子点吸收有效的泵浦光后,价带上的电子被激发到导带,导带上的电子可以重新跃迁回到价带,被空穴捕获而产生荧光;也可以落入半导体中的电子陷阱,其中大部分以非辐射的形式猝灭,极少部分的电子可跃迁回价带,同时,发射光子或以非辐射的形式回到导带^[10,11]。量子点的发光主要包括电子与空穴直接复合后产生基态发光、杂质能级复合发光以及量子点表面缺陷态间的复合发光^[12]。将半导体量子点引入到玻璃与光纤中,通过调控量子点的尺寸,从而调节其带隙宽度、激子束缚能的大小等电子状态,可实现发光中心波长可调的红外宽带发光,有望应用于光通信波段的光纤放大器。此外,还有一些新型的量子点红外宽带发光材料的报道,如,贵金属量子点的尺寸小到一定程度时,初步研究认为是由于 sp 带内跃迁产生了红外宽带发光;当碳纳米管具有半导体属性时,由于单重态激子的自旋允许跃迁在红外波段,也具有宽带发光^[5,13,14]。这些新型的红外宽带发光材料,有望得到更多的关注,也可考虑将其引入到玻璃与光纤中来进行研究。

本章将重点阐述玻璃与光纤中的激活离子的发光机理、能量传递机制、光谱的谱线展宽等,通过优化基质组分和发光离子掺杂浓度,在光纤中获得性能优异的单频激光输出。

1.2 发光离子的能级跃迁

1.2.1 发光离子的能级

1. 稀土离子的能级

稀土离子可作为发光材料的激活和敏化离子,其光谱项与能级有对应关系。除钇(Y)以外的 15 种稀土元素的电子构型非常相似,都有 4f 电子层,各个元素间的主要差别在于 4f 电子的数目不同,其二价和三价离子都具有未充满的电子壳层 $4f^p$ ($p=1\sim 13$)^[15]。电子可以在 7 个 4f 电子轨道上分布,拥有丰富的电子能级。在特定的稀土离子的电子组态体系中,能量是简并的。当体系在电子之间的静电斥力

相互作用下, 能级发生劈裂, 因此对应多个不同能量的光谱项。考虑自旋-轨道之间的耦合作用的微扰时, 每个能级会进一步分裂成能量不同的能级, 即一个光谱项对应的光谱支项。而当稀土离子在外部势场(电场或磁场)作用下时, 每个光谱支项还会再分裂为不同的能级^[1]。电子在不同能级间的跃迁即可产生紫外-可见-红外光谱范围内的跃迁吸收和辐射。在稀土离子 $4f^n$ 组态中, 将基态能级的数值定为零, 其他能级的数值表示该能级和基态能级的能级差, 单位是波数 (cm^{-1}), 将它们统一排布在数轴图上就构成了稀土离子 $4f^n$ 组态的能级图。如图 1.2.1 所示。在三价稀土离子的 $4f$ 组态中, 能级之间可能跃迁高达 20 万个^[16]。此外, 电子也分布在 $5d$ 、 $6s$ 和 $6p$ 各轨道之间, 产生各种能级。由于能级跃迁要受光谱选律的限制, 有些高能级的能级超出紫外区, 因此, 在近紫外到近红外区域, 实际观察到的谱线所对应的能级数是有限的。

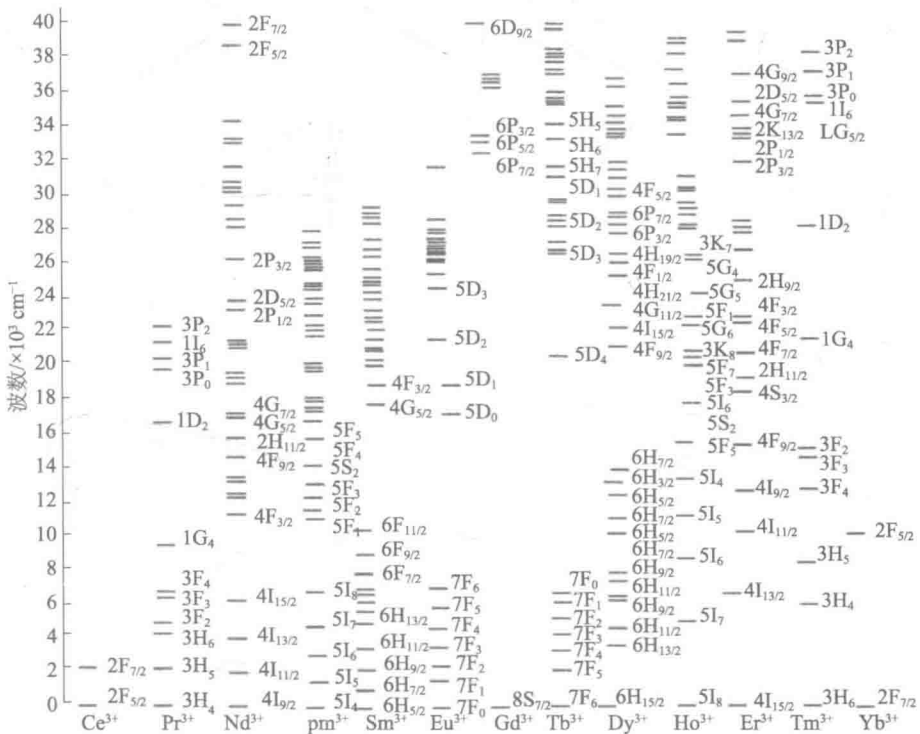


图 1.2.1 三价稀土离子 $4f^n$ 组态的能级图

2. 过渡金属离子的能级

过渡金属离子和主族金属离子的发光也是源于能级之间的跃迁, 与稀土离子不同的是, 过渡金属离子的 $d-d$ 跃迁发生在外层 $3d^n$ 壳层, 其晶格离子的作用能和电

子的库仑作用能在同一数量级上 ($\sim 10^4 \text{ cm}^{-1}$), 远大于其自旋轨道的作用能 (大约 10^2 cm^{-1}), 与稀土离子的 $4f^n$ 层不一样, 其外层没有闭壳层的屏蔽作用。因此, 这些晶格离子的能级极易受到晶格场和晶格振动的影响, 其能级结构在不同的基质中会有明显的不同。

在许多激光晶体中掺杂过渡族金属离子能够产生超宽带的发光, 甚至是激光输出, 如 MgO 、 MgAl_2O_4 、 Mg_2SiO_4 、 Zn_2SiO_4 、 Y_2SiO_5 、 MgGa_2O_4 、 Ga_2O_3 、 MgF_2 、 BaLiF_3 、 KZnF_4 、 Al_2O_3 、 ZnSe 、 ZnS 等^[17-28]。但是, 晶体的制备方法和加工要求将会限制该离子的应用。而对于易于加工和制备的玻璃介质, 过渡金属离子在其非晶态配位场环境下使得非辐射跃迁的概率变大, 因此不合作光放大的增益介质。但也有少量特例, 如 Cr^{4+} 离子掺杂的 $\text{CaO-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ 玻璃系统有望用于宽带光纤放大器的增益介质^[29]。此外, 过渡金属离子掺杂的硫系玻璃, 也具有红外波段的宽带发光特性^[30]。但是, 过渡金属离子在上述玻璃基质中发光效率较低, 要实现其应用还有待进一步研究。过渡金属离子掺杂的透明微晶玻璃介质, 既结合了晶体场基质环境和玻璃加工性能中的优点, 又摒弃了它们两种介质的缺点, 有可能作为光纤放大器的增益介质。关于过渡金属离子掺杂微晶玻璃红外宽带发光的研究, 目前主要集中在 Cr 和 Ni 的离子激活的介质体系中。

3. 主族金属离子的能级

主族金属离子发光材料与器件的研究起始于 2001 年, 主要集中于 Bi ($6s^26p^3$)、 Te ($5s^25p^4$)、 Sb ($5s^25p^3$)、 Sn ($5s^25p^2$)、 In ($5s^25p^1$)、 Pb ($6s^26p^2$) 等离子掺杂的宽带发光和激光输出。这类离子的 s 、 p 价电子为电子壳层的最外层电子, 与配位场的相互作用很强, 易形成与过渡金属离子相似的宽带发光现象。图 1.2.2 表示的是 ns^2np^1 和 ns^2np^2 电子构型的金属离子(或者原子)处于晶体场的能级示意图^[1]。其中, ns^2np^1 电子构型的基态能级是 $^2P_{1/2}$, 激发态能级为 $^2P_{3/2}$ 和 $^2S_{1/2}$ 。由于受到了介质晶体场的作用, $^2P_{3/2}$ 能级分裂成两个子能级, 分别是 $^2P_{3/2}(1)$ 和能级 $^2P_{3/2}(2)$ 。基态能级 $^2P_{1/2}$ 的跃迁 $^2S_{1/2}$ 是允许的, $^2P_{1/2}$ 能级到 $^2P_{3/2}$ 能级的电子跃迁是禁戒的, 但在奇次晶体项

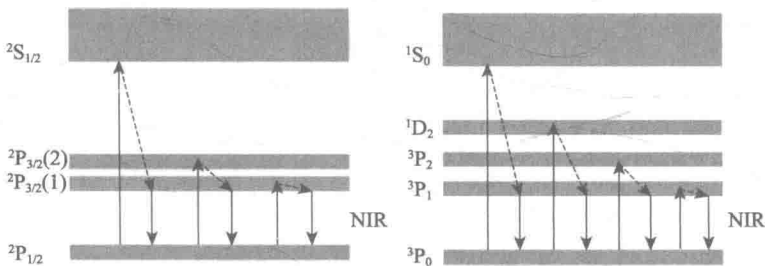


图 1.2.2 ns^2np^1 (左) 和 ns^2np^2 (右) 电子构型的金属离子的能级示意图

的作用下, 激发态与基态之间产生混合效应后, 使得该类跃迁变成部分允许^[31,32]。根据已有的研究结果, 红外的宽带发光很可能是由能级 $^2P_{3/2}(1)$ 到能级 $^2P_{3/2}(2)$ 的电子跃迁而引起的。

Bi 离子近红外宽带发光是目前主族金属离子发光研究的热点, 并且 Bi 掺杂的光纤已实现了近红外激光的输出。然而, 目前关于 Bi 离子掺杂的材料近红外宽带发光中心起源的讨论不尽相同, 主要有高价 Bi^{5+} 、低价 Bi^+ 、色心和原子簇这四种起源讨论。Fujimoto 等在 2001 年首次报道掺 Bi 玻璃近红外宽带发光现象, 当时提出五价态离子 Bi^{5+} 为发光中心, 但该报道仅对实验做了推断和讨论^[6]。孟宪赓等^[33]在 2005 年提出了掺 Bi 玻璃近红外发光中心属于低价态的离子 Bi^+ 的观点。彭明营等^[34]在 2009 年提出 Bi 离子近红外发光中心是 Bi 原子或多个 Bi 原子形成的原子团簇, 但对于 Bi 原子簇和色心的探讨尚未有确切的理论解释。2010 年, 徐军等^[35]系统地研究了 Bi 掺杂碱土硼酸盐 (BaB_2O_4) 的能级和光谱性能。通过 γ 辐照或还原退火处理, 在 α - BaB_2O_4 晶体中实现了近红外宽带发光, 根据吸收、激发和发射光谱 (如图 1.2.3 所示^[35]) 给出了近红外发光中心的能级结构 (如图 1.2.4 所示^[35])。根据辐照和退火处理过程中的物理过程, 结合能级结构图, 他们分析认为近红外发光中心最大的可能是 Bi^+ 。关于 Bi 掺杂不同介质近红外宽带发光的起源也是未来研究的重要内容。

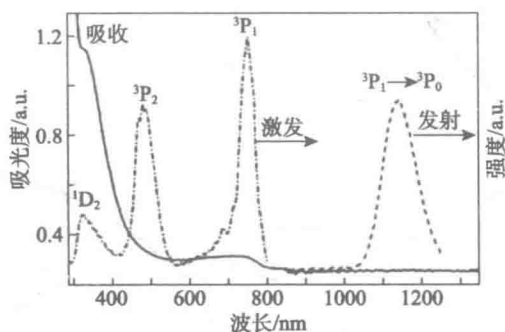


图 1.2.3 Bi:BaB₂O₄ 单晶的吸收、激发和发射光谱

4. 量子点的能级

量子点是一种准零维的、半径小于或者接近激子 Bohr 半径的半导体纳米晶, 其电子-空穴对可以看作作为激子, 类似一个类氢原子结构, 是两个粒子约束在一个势阱里的系统^[36]。其内部电子的运动在各个方向都受到限制, 量子限域效应非常明显。从而导致量子点的电子结构与体材料相比有很大的区别, 能量结构变成分立的能级形态, 表现出类似准分子状态的能级结构^[10], 如图 1.2.5 所示^[36]。

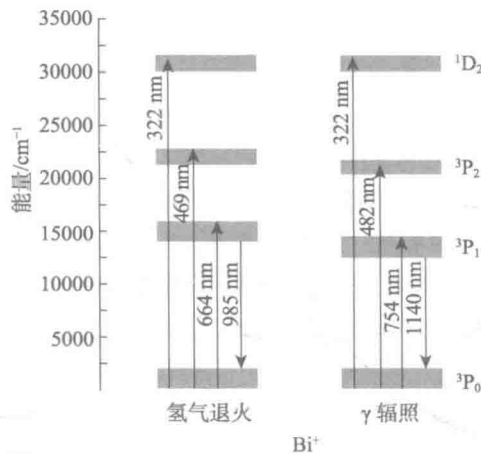


图 1.2.4 Bi:BaB₂O₄ 中的 Bi³⁺ 的典型能级结构图

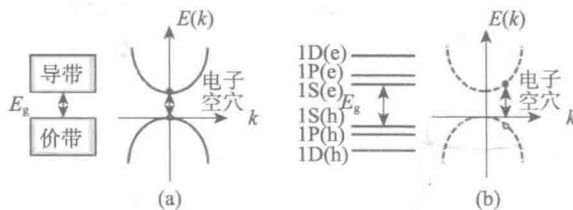


图 1.2.5 (a) 体半导体材料能级结构; (b) 量子点材料能级结构

1.2.2 发光离子的能级跃迁

当光入射带有激活离子的发光介质中时, 可能会产生两种情况: 一种是吸收光子能量, 发光离子从基态跃迁至高能态; 另一种是受激发射, 如图 1.2.6 所示。

当电子从高能级跃迁到低能级时, 有辐射和非辐射两种方式, 若发生辐射跃迁, 物质就发光。

1. 辐射跃迁

稀土离子由高能级向低能级跃迁时发出一条光谱线, 但不同能级间的跃迁是有选择性的, 只有满足多原子光谱选律的原子光谱项之间才能发生能级的跃迁^[4,37]。违反规则的跃迁是禁戒跃迁, 通常禁戒跃迁的强度很小。当然, 在配位场、晶体场等影响下轨道会发生混杂, 禁戒跃迁可能解除, 形成新的跃迁谱线。

1962 年, Judd^[38]和 Ofelt^[39]根据镧系离子在其周围电场的作用下, 4fⁿ 组态与相反宇称的组态混合而产生强制的电耦合跃迁, 提出了研究镧系离子 4f-4f 能级跃迁光谱性质的 Judd-Ofelt 理论。稀土离子的跃迁振子强度、谱线强度参数、电偶极自

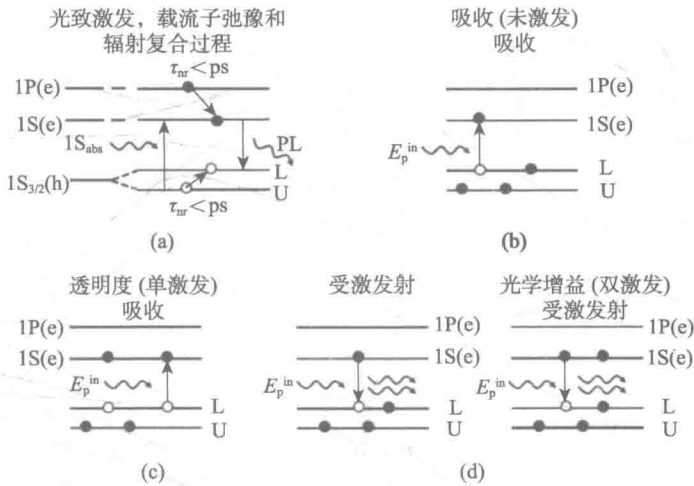


图 1.2.6 胶体量子点四能级模型

- (a) 带边吸收、载流子弛豫和带边辐射过程；(b) 吸收能量为 E_p^{in} 的光子过程；
 (c) 光透过胶体量子点的过程；(d) 带边态粒子数反转产生的光增益过程

发跃迁概率、荧光分支比、量子效率等是评估稀土离子发光强度的重要参数，这些参数很难通过实验测定。然而，通过实验测量稀土掺杂发光材料的吸收光谱和发射光谱、折射率、样品厚度等参数，应用 J-O 理论即可计算出以上参数，再利用比尔-朗伯方程和 McCumber 理论即可计算出发光材料某一波段的吸收截面和受激发射截面^[40,41]，并对稀土离子在不同基质材料中的光谱特性进行比较，可选择出较好的激光材料。

2. 非辐射跃迁

原子（或者离子）在高级能级向低能级跃迁时，如果不是以光辐射的形式释放能量，而是把能量释放给晶格系统，就是无辐射跃迁。一些离子之间的能量传递过程（如非辐射共振能量转移、声子辅助能量转移、交叉弛豫）也属于无辐射跃迁过程，有些学者称之为狭义的无辐射跃迁。非辐射跃迁过程使发光能级的能量释放给所处基质的热振动，从而降低了发光离子的发光效率。发光效率可以表示为^[4]

$$\eta = \frac{P_r}{P_r + P_{nr}} \quad (1.2.1)$$

式中， P_r 是辐射跃迁概率； P_{nr} 是非辐射跃迁概率，除了与基质有关外，还与离子间的能量转移、传递的非辐射跃迁有关。

非辐射跃迁概率大，发光离子的发光效率就大大降低，甚至不发光。但是在激光材料中，无辐射跃迁除了有降低激光上能级发光效率的消极作用外，也是有积极

作用的：①从吸收带到激光上能级需要它；②有利于激光输出，发光离子从激光下能级到基态要转移得足够快，否则会产生“瓶颈效应”，导致激光强度饱和，这种情况下无辐射能量跃迁又扮演着积极的角色。正是因为无辐射跃迁对激光的产生有着各个方面的影响，有很多学者对其进行了大量深入的研究。在这里讨论的非辐射跃迁主要是弱电子-声子耦合系统，即介质中稀土离子的非辐射跃迁，非辐射跃迁过程中电子能级的能量差由晶格振动的能量来补偿。影响无辐射跃迁的因素很多，如发光基质材料、温度、库仑作用，其中，温度升高会导致晶格振动加剧，电子-声子间作用增强，电子更容易将能量释放给晶格，非辐射跃迁的概率随着温度升高而增大；此外，发光基质材料则会影响到发光离子周围的配位环境，激活离子与邻近配位的阴离子的距离越小，发光离子自身的半径越大，非辐射跃迁概率越大；发光离子与配位离子之间共价键成分越大，非辐射跃迁概率越大；库仑作用对非辐射跃迁的影响正比于发光离子邻近阴离子的数目和有效电荷，而且与发光离子本身的半径有很大的关系，非辐射跃迁概率随发光离子与配位阴离子距离增大而减小。

3. 发光离子间的能量转移

能量转移是发光材料中非常重要的物理过程，它涉及发光的浓度猝灭、发光离子的敏化、激发态吸收损耗、下转换和上转换发光等。能量转移一般包括相同种类发光离子间的能量迁移和不同种类发光离子间的能量传递。

固体发光材料中，活性离子间在能级间距匹配的情况下能量转移有很多形式，可分为辐射共振能量转移、无辐射共振转移、声子辅助能量转移、光电导、激子迁移等^[4]。图 1.2.7 所表示的是两种离子间基本的能量转移方式^[42]，其中，S 表示的是敏化离子，吸收泵浦光而处于激发态；A 表示的是受主离子，在接受到敏化离子传递的能量前处于基态。

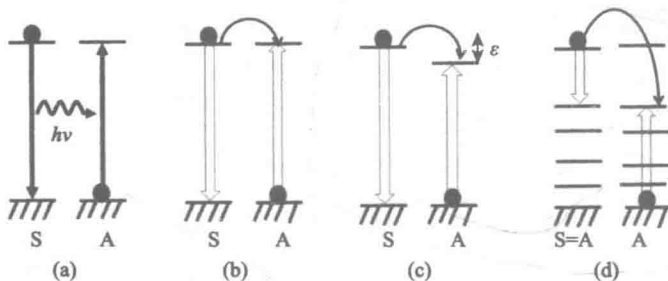


图 1.2.7 两种离子间基本的能量转移方式

(a) 辐射共振能量转移；(b) 无辐射共振能量转移；(c) 声子辅助能量转移；(d) 交叉弛豫

1) 辐射共振能量转移

如图 1.2.7 (a) 所示，在敏化离子 S 和受主激活离子 A 有相同位置和能级匹配

的前提下,处于激发态的敏化离子在跃迁到基态时发出光子,在光子传输距离内,受主激活离子吸收该光子跃迁到激发态。该能量传递过程具备以下特征:①受样品形状的影响;②根据敏化离子发光光谱与受主离子吸收光谱的重叠程度,敏化离子的发光光谱随受主离子浓度变化;③敏化离子的荧光寿命与受主离子的浓度无关,这是区别辐射与无辐射共振能量转移的一个重要依据。这种辐射共振能量转移往往会引起荧光捕获效应,将明显地增强荧光寿命,对受激发射截面、荧光光谱等光谱参数的测量和计算也会产生较大误差。因此,测试通常在薄样品、低浓度中进行,或研磨成粉。

2) 无辐射共振能量转移

如图 1.2.7 (b) 所示,敏化离子 S 吸收激发能量后处于激发态,还没来得及发射光子时,在电偶极子、电四偶极子、磁偶极子或交换作用下将激发能传递给了受主激活离子 A,无辐射共振能量转移源于离子之间的相互作用,该相互作用属于范德瓦尔斯力-库仑力相互作用。

3) 声子辅助能量转移

晶格振动所形成弹性波,其能量可以视为量子化,每一种模式视为一个粒子具有不同的能量,这种由振动方式所产生的粒子称为声子。如图 1.2.7 (c) 所示,敏化离子 S 和激活离子 A 能量转移的相关能级对的能量不十分匹配,这种情况下,能级间的能量转移需要声子作为中介,通过吸收或者放出一个声子、两个声子或多个声子来实现能级能量匹配,完成能量转移。一般多声子辅助的概率很小,因此,声子辅助能量转移概率与敏化离子发光光谱和受主离子吸收光谱重叠程度有关。

4) 交叉弛豫

交叉弛豫可以发生在相同或不同类型的离子之间。图 1.2.7 (d) 所表示的是同种离子之间的交叉弛豫,即同种离子既是敏化离子又是受主离子。交叉弛豫通常被认为是发生在敏化离子的相关的能级结构满足成对匹配条件或不匹配时的自我猝灭过程。第一种情况通常不会有能量损失,位于激发态的一个离子将能量传递给另外一个离子使其跃迁至更高能级,而本身则无辐射弛豫至更低的能级。第二种情况通常会有能量损失或者发射的光子数减少。荧光自我猝灭效应与激活离子的原子浓度以及晶场强度大小相关。一个典型的例子就是 Nd^{3+} : ${}^4\text{F}_{3/2}$ 能级的自我猝灭效应,在浓度猝灭效应弱的晶体中(如 $\text{La}_{1-x}\text{Nd}_x\text{P}_5\text{O}_{14}$),由于其晶场强度较小, Nd^{3+} 的自我猝灭效应与离子浓度成线性关系;而在 YAG 和 YAP 这类晶场强度大的激光晶体中,其浓度猝灭效应的强度与激活离子浓度的平方成正比的^[43,44]。其浓度猝灭除了交叉弛豫 ${}^4\text{F}_{3/2} + {}^4\text{I}_{9/2} \rightarrow {}^4\text{I}_{15/2} + {}^4\text{I}_{15/2}$ 外,还可能不同离子之间 ${}^4\text{F}_{3/2}$ 能级能量迁移落入可能存在的稀土杂质离子或晶体缺陷构成的“陷阱”。

1.3 谱线展宽

原子由于电子的能级跃迁,会产生吸收和发射光谱,吸收和发射光子的频率取决于产生跃迁的能级。以吸收或发射光的频率 ν 为横坐标,光的强度 $I(\nu)$ 为纵坐标作图,即可得到光谱线。对于能级跃迁 $E_1 \rightarrow E_2$ ($h\nu_0 = E_1 - E_2$),实验检测到的光谱线并不是单色的直线,而是强度在中心处最大,同时向两边逐渐减弱的曲线(如图1.3.1所示^[45])。定义中心频率 ν_0 对应谱线强度最高值 I_0 ,谱线强度往两端减弱至最大强度的一半时分别对应频率 ν_1 和 ν_2 ,其半高宽 $\Delta\nu = |\Delta\nu_1 - \Delta\nu_2|$ 称为谱线宽度。

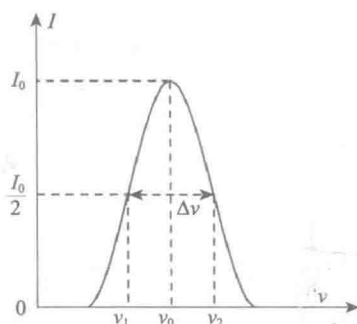


图 1.3.1 谱线轮廓

影响谱线线宽的因素有很多,从谱线宽度变化的结果来看,可分为均匀展宽和非均匀展宽,不同介质中发光粒子的谱线都是两种展宽机制的共同结果。本节将从两种谱线展宽机制出发,对不同介质中发光粒子的谱线简要描述。

1.3.1 均匀展宽和非均匀展宽

1. 均匀展宽

对于一个发光粒子系统,如果某种物理因素对每一发光粒子的作用均等同,则由该因素引起的谱线展宽称为均匀展宽。在这种展宽机制下,任一发光粒子都会对光谱线内的任一频率做出贡献。均匀展宽主要包括自然线宽、碰撞展宽等,在固体介质中还存在晶格振动展宽(见1.3.2节)。下面我们将简要介绍自然线宽和碰撞展宽。

1) 自然线宽

众所周知,原子存在自发辐射现象,其发射谱线的宽度称为自然线宽。假设电子由能级 E_1 跃迁至 E_2 ,通常有两种理论可以解释其谱线线形:经典阻尼谐振子理论和量子理论。