

利用 $1.313\ \mu\text{m}$ 激光泵浦掺铒石英光纤产生 上转换放大自发辐射*

刘东峰 胡巍 陈国夫 王贤华 侯洵

(中国科学院西安光机所 瞬态光学技术国家重点实验室, 西安 710068)

申云华 孙建军

(电子工业部 46 所, 天津)

提要 报道了利用 $1.313\ \mu\text{m}$ 波长调 Q 锁模 Nd^{3+} : YLF 激光泵浦国产掺铒石英光纤同时产生可见光 $463\ \text{nm}$ ($463\ \text{nm}$, $475\ \text{nm}$, $485\ \text{nm}$, $494\ \text{nm}$, $501\ \text{nm}$, $510\ \text{nm}$), $525\ \text{nm}$, $540\ \text{nm}$ ($525\sim 564\ \text{nm}$), 二次谐波信号 $656\ \text{nm}$ ($656\sim 675\ \text{nm}$) 和近红外 $804\ \text{nm}$ ($784\sim 820\ \text{nm}$) 等波段放大自发辐射的实验结果。在可见光 $463\ \text{nm}$ 波段, 在高泵浦功率下观察到随泵浦光功率增大, 邻近几个中心波长与 $463\ \text{nm}$ 波长信号产生类似级联共振放大增强的现象。同时发现几个中心波长辐射光谱宽度随泵浦光功率增加有加宽的关系, 这与现有实验结果报道不一致。实验中还发现 $3\ \text{m}$ 长光纤与 $4.5\ \text{m}$ 长光纤在输出可见光自发辐射光谱方面有很大的不同, $3\ \text{m}$ 光纤在相等泵浦光功率下, 出现邻近波长共振放大加强的几率比 $4.5\ \text{m}$ 光纤小得多。根据能级跃迁关系提出了共振四光子吸收将基态 ${}^4I_{15/2}$ 离子抽运到高能态 ${}^2G_{7/2}$, 然后跃迁辐射回到 ${}^4I_{15/2}$ 态的机制, 给出了实验结果的初步机理解释。

关键词 上转换, 掺稀土光纤, 可见光光纤激光器

1 引言

利用掺杂稀土元素光纤产生上转换可见光和近红外波长辐射是近几年来引起人们普遍关注的研究课题^[1~8], 利用掺杂稀土元素光纤的上转换特性, 可以产生超荧光发射, 这种技术在光纤陀螺、测量诊断技术方面具有重要的应用价值, 因此受到国际学术界的高度重视^[9, 10]。上转换机理由 Auzel 首次提出^[11], 利用红外多光子激发和光纤中稀土离子能级间的能量转移, 使得稀土离子被激发到高于泵浦源光子能量的高能级, 接着以自发辐射或者受激发射的方式产生更短波长发射。近年来, 利用红外激光泵浦, 人们对掺 Er^{3+} 光纤激光器和放大器的研究方兴未艾, 对其频率上转换特性的研究工作也越来越受到人们的重视^[12~14]。在最近的关于掺 Er^{3+} 和掺 $\text{Er}^{3+}/\text{Yb}^{3+}$ 光纤在 $1.06\ \mu\text{m}$ 和 $1.319\ \mu\text{m}$ 激光泵浦下的频率上转换实验^[3, 5]的工作中, 报道了在高泵浦功率下的 ASE 产生条件, 其机理是直接的双光子非线性共振吸收跃迁, 紧接着一个单光子激发态共振吸收, 使得稀土离子从基态到达激发辐射态, 然后, 跃迁回基态产生各

* 国家自然科学基金、攀登计划和瞬态光学技术国家重点实验室室主任基金资助项目。

收稿日期: 1995年8月7日; 收到修改稿日期: 1995年10月6日

种可见光波长的放大自发辐射。

本文报道我们利用 $1.313\ \mu\text{m}$ 调 Q 、主动锁模 $\text{Nd}^{3+}:\text{YLF}$ 激光泵浦掺 Er^{3+} 石英光纤产生可见光波长及近红外上转换放大自发辐射的实验结果。我们初步认为所产生的 $463\ \text{nm}$ 波段这个上转换过程是一个分步四光子共振吸收过程, 铒离子从基态 $^4I_{15/2}$ 跃迁到激发态 $^2G_{7/2}$, 然后稀土离子跃迁回到 $^4I_{13/2}$ 辐射出可见光 $463\ \text{nm}$ 波长信号, 而倍频光信号 $656\ \text{nm}$ 和 $540\ \text{nm}$, $525\ \text{nm}$ 可见光辐射以及 $802\ \text{nm}$ 左右的近红外辐射, 则是基于文献[3, 5]中所报道的二光子及三光子共振吸收过程, 也就是说, 在我们这个高功率泵浦条件下, 二光子共振吸收、三光子共振吸收与四光子共振吸收同时发生, 从而产生多个可见光和近红外波长的跃迁辐射。实验中, 我们发现 $4.5\ \text{m}$ 长的掺 Er^{3+} 光纤比 $3\ \text{m}$ 长掺铒光纤在相等泵浦功率下上转换输出光谱特征有比较大的区别, 长光纤在相等泵浦光功率下产生级联放大增强可见光波长辐射的强度比短光纤强得多。

2 实验装置

实验采用一台 Quantronix 公司 4216D 型调 Q 与主动锁模同时操作的 $\text{Nd}^{3+}:\text{YLF}$ 激光器作为泵浦源, 其工作波长是 $1.313\ \mu\text{m}$, 激光器输出的锁模脉宽约为 $80\ \text{ps}$, 重复率为 $76\ \text{MHz}$, 而调 Q 开关的包络脉宽为 $1.6\ \mu\text{s}$, 重复率为 $1\ \text{kHz}$ 。据此估算在调 Q 包络的中间脉冲的峰值功率可达上百 kW 。光谱探测系统采用国产 WDG-500 型 $1\ \text{m}$ 光栅单色仪(其分辨率为 $0.1\ \text{nm}$), 采用国产多碱阴极光电倍增管作为探测器。

由于实验所采用的光纤长度比较短, 因此, 其光学吸收衰减非常小, 因此, 可以认为信号光在光纤中的散射和吸收也非常小。实验中采用的光纤是以石英为基底的掺 Er^{3+} 单模光纤($\text{Er}^{3+}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{GeO}_2/\text{SiO}_2$), 光纤的芯径为 $6\ \mu\text{m}$ 左右, 掺杂浓度约为 $500\ \text{ppm}$, 光纤的截止波长是 $0.975\ \mu\text{m}$ 。实验中先测量 $4.5\ \text{m}$ 掺 Er^{3+} 光纤的输出光谱特性, 然后截掉 $1.5\ \text{m}$, 利用剩下 $3\ \text{m}$ Er^{3+} 光纤再进行测量。

3 结果与讨论

图 1 是一个简化了的掺 Er^{3+} 石英光纤 Er^{3+} 离子的电子能级结构图。箭头向上代表泵浦激发, 箭头向下代表可能的能级跃迁辐射。

图 2 是记录仪记录的长 $4.5\ \text{m}$ 掺铒石英光纤输出从可见光到近红外光辐射在不同平均泵浦功率下的功率谱。从图中可以看出光纤输出的信号最强的上转换可见光波长在 $463\ \text{nm}$ 波段($463\ \text{nm}$, $475\ \text{nm}$, $485\ \text{nm}$, $494\ \text{nm}$, $502\ \text{nm}$, $510\ \text{nm}$), 此外在二次谐波 $656\ \text{nm}$ 处($656\ \text{nm}$, $665\ \text{nm}$, $668\ \text{nm}$, $675\ \text{nm}$)和近红外谱区($784\ \text{nm}$, $804\ \text{nm}$ 和 $812\ \text{nm}$, $820\ \text{nm}$)也都有放大自发辐射产生。从图中可以清楚地看出, 在高功率泵浦条件下, 比 $463\ \text{nm}$ 稍长波长附近出现了 $475\ \text{nm}$, $485\ \text{nm}$, $495\ \text{nm}$, $505\ \text{nm}$, $515\ \text{nm}$ 等几条很强的辐射信号, 随泵浦光功率增大, 呈现出强烈的级联共振放大加强现象。据作者了解, 迄今尚未见文献报道这种现象^[5]。从图 1 我们认为 $463\ \text{nm}$ 这条跃迁谱线可以归结为从 $^4G_{7/2}$ 到 $^4I_{13/2}$ 跃迁, 文献[3]曾报道了 $468\ \text{nm}$ 从 $^4G_{11/2}$ 到 $^4I_{13/2}$ 跃迁产生放大自发辐射的实验结果, 但没有报道这个波长附近的其它几个辐射波长。初步认为这是由于我们采用的泵浦条件不同造成的。文献[3]中采用 $1.064\ \mu\text{m}$ 连续波 $\text{Nd}^{3+}:\text{YAG}$ 激光泵浦, 其过程为一个分步共振三光子吸收使铒离子从 $^4I_{15/2}$ 跃迁到 $^4G_{9/2}$ 激发

态, 然后, 再从 ${}^4G_{9/2}$ 态跃迁回到 ${}^4I_{13/2}$ 态, 辐射 468 nm 光。初步提出如下机理解释我们所观察到的 463 nm 谱带跃迁机制: Er^{3+} 离子吸收四个 1.313 μm 泵浦光子从基态 ${}^4I_{15/2}$ 到 ${}^2G_{7/2}$ 激发态, 然后再跃迁回 ${}^4I_{13/2}$, 辐射出 463 nm 波长, 是一个共振四光子吸收效应。其详细过程如下: 从图 1 可看出, 第一步是铒离子共振吸收二个泵浦 1.313 μm 光子从 ${}^4I_{15/2}$ 基态跃迁到 ${}^4F_{9/2}$ 态, 紧接着是一个快速无辐射弛豫稍低的铒激发态 ${}^4I_{9/2}$, 接着铒离子在这个激发态上又共振吸收二个 1.313 μm 泵浦光子跃迁到 ${}^2G_{7/2}$ 态, 紧接着跃迁到 ${}^4I_{13/2}$ 亚稳态辐射出 463 nm 的光子, 同时, 处于高能级激发态 ${}^2G_{7/2}$ 的稀土离子通过无辐射弛豫转移到稍低能态的 ${}^4G_{9/2}$, ${}^4G_{11/2}$, ${}^4H_{9/2}$ 等能级, 然后再发射出 475 nm, 485 nm, 495 nm 等辐射。但在通常的低泵浦功率条件下, 上面最后这个过程发生的几率很小, 大部分 ${}^2G_{7/2}$ 态离子通过跃迁直接到 ${}^4I_{13/2}$ 亚稳态。因此, 文献[3]采用平均功率比较低的连续泵浦, 比 468 nm 更长辐射波长的跃迁发生的几率极其微小。而在我们这种高峰值功率 QS-ML 泵浦情况下, 铒离子的 ${}^2G_{7/2}$ 态在短时间内聚集的粒子数很多。这样, 一方面直接跃迁到 ${}^4I_{13/2}$ 发生 463 nm 放大自发辐射, 另一方面通过弛豫转移到稍低能态如 ${}^2K_{15/2}$, ${}^4G_{9/2}$, ${}^4G_{11/2}$ 等的几率大为增加, 然后跃迁回到 ${}^4I_{13/2}$ 亚稳态发射出其它稍长波长的自发辐射。

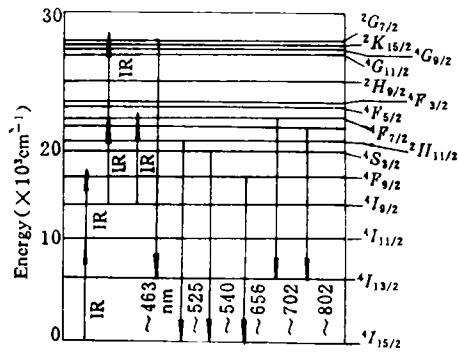


Fig. 1 Simplified energy diagram of Er^{3+} ions in a host material. The upward- arrows indicate the pumping mechanism, while the thin, downward arrows show upconversion emission

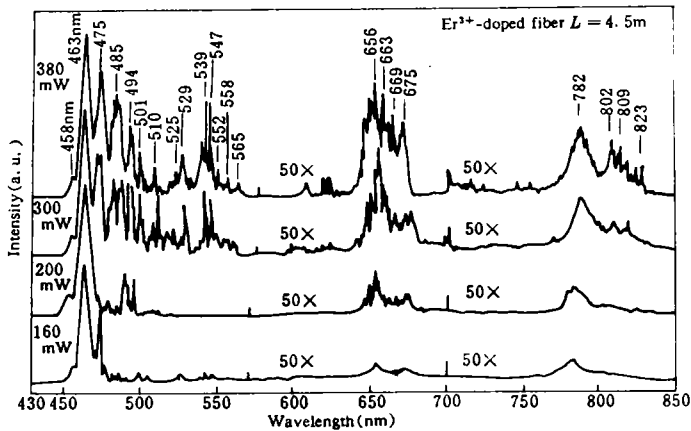


Fig. 2 Emission spectra (at 430~850 nm) from a fiber as function of the average incident optical pump power (P_m). The wavelength of prominent emission lines are labeled. The fiber length is 4.5 m

在高功率泵浦下, 在上述分步共振四光子吸收发生的同时也发生三光子共振吸收过程。处在基态 ${}^4I_{15/2}$ 离子通过吸收两个 1.313 μm 光子共振跃迁到高能态 ${}^4F_{9/2}$, 然后通过一个快速无辐射弛豫过程跃迁到稍低能级 ${}^4I_{9/2}$ 激发态, 然后 Er^{3+} 离子再吸收一个泵浦 1.313 μm 光子到

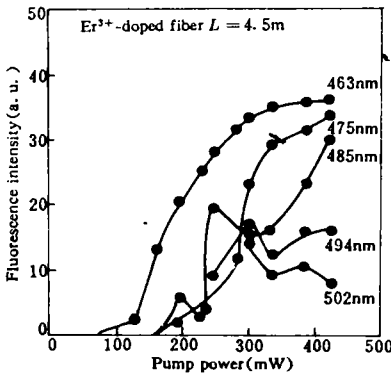


Fig. 3 Emission fluorescence intensity from the fiber as a function of the average incident optical pump power (P_{in})

产生 475 nm, 485 nm 辐射信号的阈值泵浦功率约 150 mW, 从图中可以看出随泵浦光功率增加, 463 nm 强度增加很快, 但当泵浦光功率达到 280 mW 后, 信号输出强度趋于饱和, 与此同时 475 nm 和 485 nm 波长信号强度则开始增加很快, 这预示着上转换产生的 463 nm 输出光强对邻近 475 nm 和 485 nm 等波长辐射存在着强烈的级联非线性放大增强作用。494 nm 和 502 nm 波长信号强度与泵浦光功率的关系则呈现比较复杂的趋势, 这预示着这些波长的光发射在光纤中复杂的非线性相互作用。所有这些关系还有待于进一步详细研究。

图 4 是在 4.5 m 长光纤中测量的 463 nm, 475 nm, 485 nm 三个主要辐射信号的谱宽与平均泵浦光功率的关系。从图中可看出, 随泵浦光功率的增大, 这三个波长信号的谱宽有加宽趋势, 当泵浦功率大于 300 mW 以后, 谱宽加宽趋于饱和。这与已有报道的关于掺杂稀土元素石英光纤中可见光上转换放大自发辐射的线宽随泵浦光功率增大而减小的已有结论不一致。这预示着在高泵浦激发功率下光纤的各种非线性过程将变得极为复杂, 其中一种理解方式是在强泵浦条件下, 抽运到上能级的激发态离子数很多, 而由于稀土离子在光纤中能级的展宽, 上能级受激离子可以分布在很宽的能带范围内, 因此, 跃迁辐射信号带宽加宽, 而在低泵浦光功率下受激态离子则主要分布在一个比较小的能带范围, 所以辐射线宽窄一些。

图 5 是倍频光信号 656 nm 和 784 nm 信号光的线宽与平均泵浦光功率的关系, 从图中同样可看出随泵浦光功率的增加, 输出 656 nm 光的光谱宽度有加宽趋势, 然后在高泵浦光功率下饱和, 而 784 nm 输出光的线宽则变化缓慢, 在高泵浦光功率下谱宽略有增大, 这与文献[5]中报道的结果不一致, 有关这个问题有待进一步研究。

达 ${}^4F_{7/2}$ 激发态, 紧接着经历一个快速无辐射弛豫跃迁到达 ${}^2H_{11/2}$ 和 ${}^4S_{3/2}$ 能级, 从这两个能级跃迁回到基态 ${}^4I_{15/2}$ 发射出 525 nm 和 540 nm 的自发辐射信号。同时, 基于双光子共振吸收跃迁到 ${}^4F_{9/2}$ 态的铒离子, 跃迁回 ${}^4I_{15/2}$ 产生倍频 656 nm 的放大自发辐射光子。处在能级稍低的另两个能级 ${}^4F_{7/2}$ 态和 ${}^4S_{3/2}$ 态的铒离子分别跃迁回到 ${}^4I_{13/2}$ 态产生 702 nm 和 804 nm 的辐射信号。在实验中我们都观察到这些波长的自发辐射信号。此外还观察到很多其它辐射波长, 这些波长的出现能归于高阶受激非线性混频过程。

图 3 是在 4.5 m 长掺 Er^{3+} 石英光纤中所产生的 463 nm 附近几个波长信号的相对强度与平均泵浦光功率的关系。从 463 nm 起依次更长的几个发射波长信号强度都存在一个阈值泵浦光功率, 463 nm 波长的阈值泵浦光功率约 53 mW,

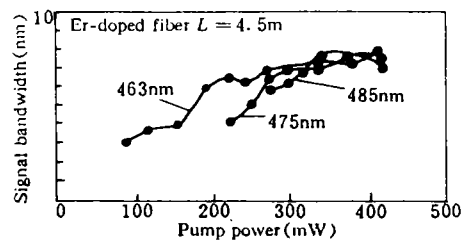


Fig. 4 Signal bandwidth around 463 nm, 475 nm, and 485 nm as a function of pump power

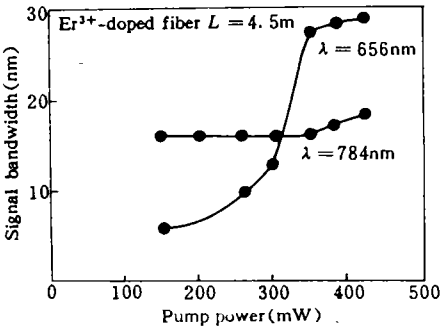


Fig. 5 Signal bandwidth around 656 nm and 782 nm as a function of pump power. The fiber length is 4.5 m

4.5 m 长光纤实验完成后我们将其截下 1.5 m,剩下的 3 m 光纤做了同样的 1.313 μm 泵浦激发实验。发现 3 m 长光纤的光谱输出特征与 4.5 m 长光纤不完全一样。图 6 是 3 m 长掺 Er³⁺ 光纤的上转换辐射在不同平均泵浦光功率下的光谱。我们在实验中发现在相等泵浦光功率下,3 m 长光纤在相等泵浦光功率下 463 nm 邻近的几个波长(475 nm, 485 nm 等)输出很小,远达不到在高泵浦光功率下 4.5 m 长光纤输出的 463 nm 光强与 475 nm, 485 nm, 494 nm 光强的比例关系。这个实验结果差别的原因还不清楚,可能暗示着随光纤长度的增加,463 nm 辐射对邻近波长信号光的非线性相互作用诸如受激拉曼放大及混频等效应作用的增强,其作用长度应大于 3 m,这个问题

有待进一步研究。实验中没有观察到 3 倍频信号^[7]。

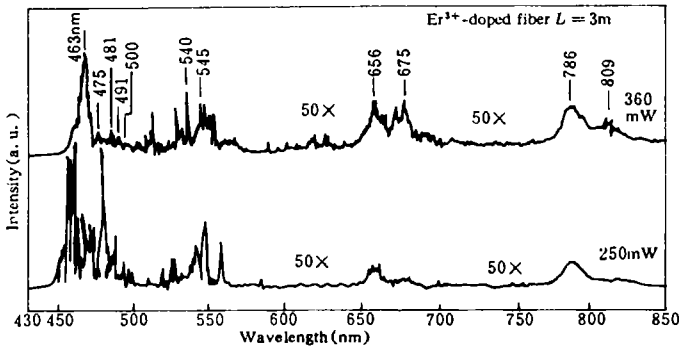


Fig. 6 Emission spectra (at 430~850 nm) from a fiber as a function of the average incident optical pump power (P_m), the wavelengths of the prominent emission lines are labeled. The fiber length is 3 m

5 结 论

本文报道了利用 1.313 μm QS-ML Nd³⁺ : YLF 脉冲激光多光子(二光子、三光子与四光子)泵浦国产掺铒石英单模光纤产生的上转换可见光 463 nm 和 656 nm 光谱区和近红外 782 nm 光谱区放大自发辐射的实验结果,测量了其从可见光到近红外区的功率谱。报道了我们发现的随泵浦光功率的增大,在 463 nm 邻近波长区产生类似级联共振放大增强效应。实验中还发现随泵浦光功率增大,输出各上转换波长处光谱宽度也加宽,这与已有的实验结果报道不一致。关于产生可见光 463 nm 谱区的机制,我们初步提出通过分步共振四光子吸收过程将铒离子从 ⁴I_{15/2} 基态泵浦到 ⁴G_{7/2} 态,然后跃迁辐射出可见光 463 nm 自发辐射光回到 ⁴I_{13/2} 亚稳态。从 ²G_{7/2} 弛豫到稍低能级 ²K_{15/2}, ⁴G_{9/2}, ⁴G_{11/2} 等的铒离子跃迁回到 ⁴I_{13/2} 亚稳态输出 475 nm, 485 nm, 494 nm 等可见光。656 nm 和 782 nm 光谱区上转换产生机制与已有的报道机制应一致^[5]。

致谢 感谢赵尚弘博士、关义春博士与作者的讨论;感谢硕士生王屹山同志的帮助。同时感谢中国科学院西安光机所鬲滨、余建军同志在文中插图绘制方面提供的帮助。

参 考 文 献

- 1 T. F. Carruthers, I. N. Duling, II, C. M. Shaw *et al.*. Visible wavelength amplified spontaneous emission in a neodymium-doped optical fiber pumped at 1064 nm. *Appl. Phys. Lett.*, 1989, **54**(10): 875
- 2 A. S. Gomes, G. B. de Araujo. Amplified spontaneous emission in Tm^{3+} -doped monomode optical fibers in the visible region. *Appl. Phys. Lett.*, 1990, **57**(21): 2169.
- 3 YI-Min Hua, Qu Li, Ying-Li Chen *et al.*. Frequency upconversion in Er^{3+} -and $\text{Yb}^{3+}/\text{Er}^{3+}$ -doped silica fibers. *Opt. Commun.*, 1992, **88**: 441~445
- 4 J. Miguel Hickmann, E. A. Gouveia, A. S. Gouveia-Neto *et al.*. Two-photon-resonant photoinduced second harmonic generation in Er^{3+} -doped germano-aluminosilicate optical fibers pumped at 1.319 μm . *Opt. Lett.*, 1994, **19**(21): 1726
- 5 D. L. Nicacio, E. A. Gouveia, A. M. Reis *et al.*. Generation of Intense green light through amplified spontaneous emission in Er^{3+} -doped germanosilicate single-mode optical fiber pumped at 1.319 μm . *IEEE J. Quant. Electr.*, 1994, **QE-30**(11): 2634
- 6 J. Thogersen, N. Bjerre, J. Mark *et al.*. Mutiphoton absorption and cooperative upconversion excitation in Er^{3+} -doped fiber. *Opt. Lett.*, 1993, **18**(3): 197
- 7 D. L. Nicacio, E. A. Gouveia, N. M. Borges *et al.*. Third harmonic generatin in GeO_2 -doped silica single mode optical filers. *Appl. Phys. Lett.*, 1993, **62**(18): 2179-2181
- 8 R. Urquhart. Rare earth doped fiber laser and Amplifiers. *Proc IEEE*, 1988, **J135**: 385~407
- 9 I. N. Duling, II, R. P. Moeller, William *et al.*. Output Characteristics of diode pumped fiber ASE sources. *IEEE. J. Quant. Electr.*, 1991, **27**(4): 995
- 10 M. J. Digonet. Theory of superfluorescent fiber lasers. *J. of Lightwave Technology*, 1986, **LT-4**(11): 1631
- 11 F. E. Auzel. Materials and devices using double pumped phosphors with energy transfers. *Proc. IEEE*, 1973, **61**(6): 758
- 12 华一敏, 李 劼, 陈英礼 等. 掺 Er^{3+} 石英光纤频率上转换的实验研究. *光学学报*, 1992, **12**(3): 261
- 13 Eric Maurice, Gerard Monom, Bernard Dussardier *et al.*. Thermalization effects between upper levels of green fluorescence in Er^{3+} -doped silical fibers. *Opt. Lett.*, 1994, **19**(13): 990
- 14 Franck Duclos, Paul Urquhart. Thulium-doped ZBLAN blue upconversion fiber laser; Theory. *J. Opt. Soc. Am. B*, 1995, **12**(4): 709

Amplified Spontaneous Emission Generation of Wavelength Upconversion in a Er^{3+} -doped Silicate Single-mode Optical Fiber Pumped at 1.313 μm

Liu Dongfeng Hu Wei Chen Guofu Wang Xianhua Hou Xun

(Xi'an Institute of Optics and Fine Mechanics, Academia Sinica, Xi'an 710068)

Sun Yunhua Sun Jianjing

(46th Institute, Electricity Industry Department, Tianjin)

Abstract We report the observation of amplified spontaneous emission (ASE) in the visible light range in silica-based single-mode optical fibers doped with Er^{3+} ($\text{Er}^{3+}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{GeO}_2/\text{SiO}_2$). Frequency-upconverted emissions were observed simultaneously in a number of visible wavelengths around 463 nm (463 nm, 475 nm, 485 nm, 494 nm, 501 nm and

510 nm), 525 nm and 540 nm (525 nm, 540 nm, 547 nm, 552 nm and 565 nm), around the second harmonic signal wavelength 656 nm (656 nm, 663 nm, 669 nm and 675 nm) and near-infrared lines (782 nm, 802 nm, 809 nm and 823 nm) when the fibers were pumped by a mode-locked, Q -switched $\text{Nd}^{3+} : \text{YLF}$ laser operating at 1.313 μm . We have observed an interesting phenomenon that the emission spectrum around 463 nm band likely has a cascade amplification enhancement characteristic when the fiber is pumped with more than 100 mW average power. To our knowledge, this phenomenon is reported for the first time. The nonpolarization-preserving Er^{3+} -doped single mode fiber used in our experiment had a 6 μm diameter core and a 0.979 μm cutoff wavelength. The NA is 0.235. The Er^{3+} doping level is about 500×10^{-6} . The fiber lengths used were 4.5 m and 3 m separately. The laser power coupled into the fiber is about several hundred milliwatts. The pump mechanism for around 463 nm is that in the first step resonant two photon absorption process the ions are excited to the $^4F_{9/2}$ level from the $^4I_{15/2}$ ground state, and a second resonant two photon transition connects ions', $^4I_{9/2}$ state to the $^2G_{7/2}$ excited state, giving rise to amplified spontaneous emissions from $^2G_{9/2 \sim 11/2}$ to $^4I_{13/2}$.

Key words upconversion, rare-earth doped fiber, visible fiber laser