

# 氟化锂晶体 $F_3^+$ 色心四波混频研究

顾洪恩

(天津大学物理系, 天津, 300072)

利用简并四波混频技术观测到 LiF 晶体中  $F_3^+$  色心的非线性光学相位共轭效应, 以脉冲染料激光为泵浦光得到最大相位共轭反射率约为 0.1%, 根据 LiF 晶体  $F_3^+$  色心的能级特点从理论上阐明了  $F_3^+$  色心系统非线性饱和吸收和四波混频的物理起源.

关键词: 氟化锂 (LiF),  $F_3^+$  心, 四波混频.

## 1 引言

在 LiF 晶体中,  $F_2$ 、 $F_2^-$  和  $F_3^+$  色心的非线性光学相位共轭 (NOPC) 效应已有报道<sup>[1~3]</sup>. 我们已报道了前期工作中对 LiF 色心可调谐激光器运转和非线性饱和吸收效应的研究结果<sup>[4]</sup>. 本文报道采用简并四波混频技术在含有  $F_3^+$  色心 LiF 晶体中产生 NOPC 效应的研究结果.

## 2 $F_3^+$ 色心晶体的制备

本工作使用的 LiF 晶体取自 LiF 单晶, 将单晶解理成一定尺寸的晶体块, 并将其大表面抛光. 用两步法在 LiF 晶体中产生  $F_3^+$  色心<sup>[4]</sup>: 先在室温下用  $Co^{60}$  源  $\gamma$  射线辐照 LiF 晶体, 产生高浓度  $F_3$  和  $F_2$  色心, 然后在液氮温度下用  $N_2$  激光 (波长为 337 nm、单脉冲能量为 10 mJ、峰值功率密度  $\sim 25$  MW/cm<sup>2</sup>、重复频率为 2 Hz) 照射已着色 LiF 晶体, 室温下色心在暗处聚集和转化. 这样处理后的着色 LiF 晶体中的绝大部分  $F_3$  和  $F_2$  色心被转变成  $F_3^+$  色心.

图 1 清楚地表明着色 LiF 晶体样品在液氮温度下、经波长为 337 nm  $N_2$  激光照射 5 min 后发射谱的变化, 发射谱是用日立 650-60 型荧光分光光度计测量的. 图 1 中曲线 1 为辐照前的发射谱, 可见  $F_2$  色心荧光强度占优势. 照射 5 min 后,  $F_3^+$  色心荧光强度反转为优势, 参看曲线 2. 曲线 3 为多次照射 (每次 5 min) 后的发射谱, 由图可知, 在液氮温度下用  $N_2$  激光多次照射同一晶体样品, 会使晶体中  $F_2$  色心荧光强度显著降低. 众所周知, 经

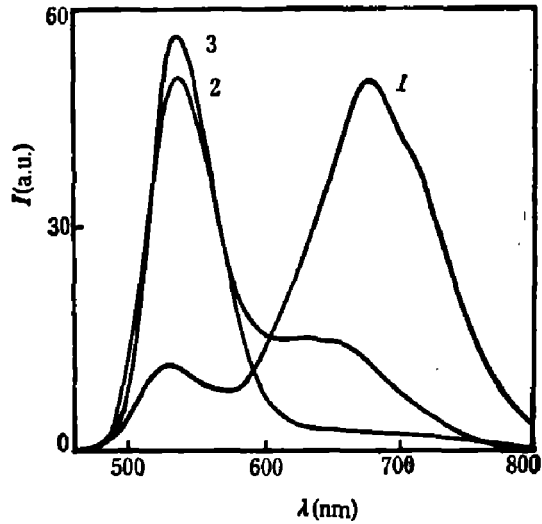


图1  $\gamma$ 射线辐照着色 LiF 晶体在液氮温度下经氮分子激光照射前后发射谱的变化(激发波长 450 nm)

Fig. 1 Emission spectra of  $\gamma$ -irradiated colored LiF crystal excited by 450 nm

$\gamma$ 射线辐照的大尺寸 LiF 晶体中  $F_2^-$  色心的分布是相当均匀的,因而,采用两步法在大尺寸 LiF 晶体中产生的  $F_2^-$  色心的均匀性也是相当高的。

### 3 实验结果

在含有  $F_2^-$  色心的 LiF 晶体中,  $F_2^-$  色心在峰值波长 450 nm 处有较宽的吸收带(参看图

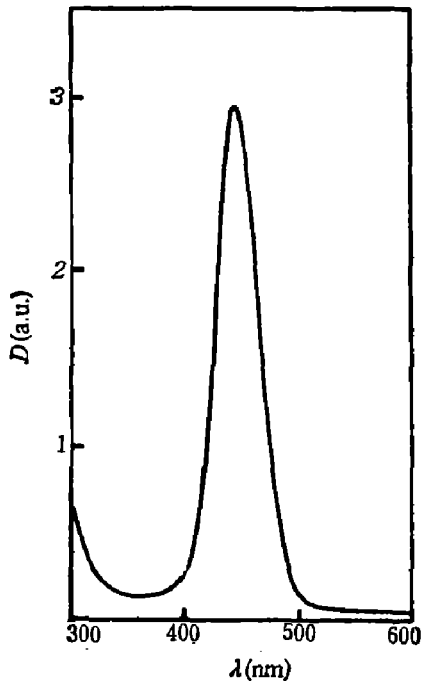


图2 用两步法在 LiF 晶体中产生的  $F_2^-$  色心吸收谱  
Fig.2 Absorption spectrum of a colored LiF crystal with  $F_2^-$  centers created by the two-step irradiation

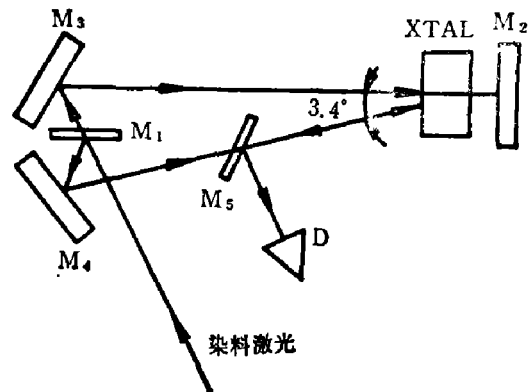


图3 用简并四波混频技术对 LiF 晶体  $F_2^-$  色心进行 NOPC 实验简图

$M_{1,5}$ —半反射镜,  $M_{2-4}$ —全反射镜, D—探测器  
Fig.3 Schematic diagram of the NOPC experiment using degenerate four-wave mixing technique with  $F_2^-$  centers in LiF crystals.  
 $M_{1,5}$ —half-mirrors,  $M_{2-4}$ —mirrors, D—detector

2), 吸收光谱用 UV-240 型分光光度计测量, 测试温度为室温. 由图 2 可见, 在  $F_2^+$  色心吸收带长波边不存在 N 色心 (峰值位置为 540 nm). 实验用一块大尺寸着色 LiF 晶体 ( $40 \times 20 \times 10 \text{ mm}^3$ ) 作为 NOPO 介质, 用  $N_2$  激光泵浦的染料激光 (香豆素 460, 波长 460 nm, 单脉冲能量为 3.5 mJ, 脉宽为 4 ns, 发散角为 6 mrad, 重复频率为 10 Hz) 进行泵浦.

NOPO 实验光路简图如图 3. 泵浦激光经  $M_1$  分成两束: 一束光射入晶体, 经  $M_2$  反射后成为第三束光; 第二束作为探测光与第一束光成  $3.4^\circ$  角度, 照射在晶体的适当位置. 如果 LiF 晶体中形成 NOPO 波 (即第四束光), 则它将按第二束光路反相回传, 用探测器、纸屏或胶片即可观测到. 由于泵浦激光是可见的, 因而可以比较方便地测量 NOPO 特性. 我们知道, 从点光源发出的光束具有一定的发散角, 在空气中传播一段距离后, 其横截面会增加. 但对于 NOPO 波, 因其在晶体中进行了相位共轭, 它的横截面会恢复成原大. 如果回传光束的横截面已恢复成原大, 可以认为它就是 NOPO 波.

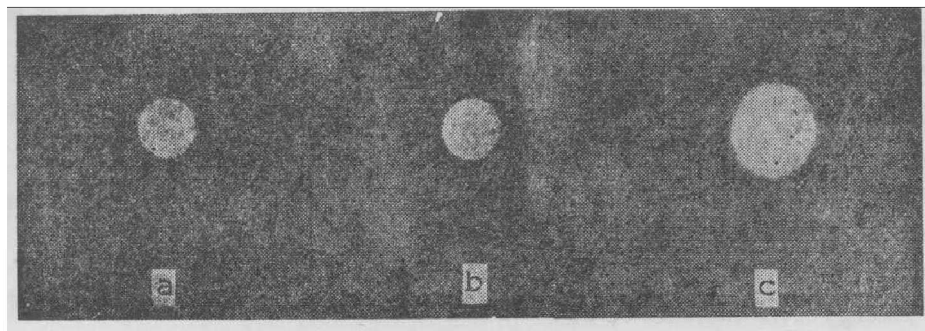


图 4 探测光点和回传光点照片

a—探测光, b—与探测光位置对应的回传光, c—不同位置的回传光

Fig. 4 Probe and backward light spots recorded by black-and-white films.

a—probe light, b—backward light at relevant position to the probe light,  
c—backward light at a different position

在我们的实验中, 从纸屏上可清楚地看到回传光点, 先用黑白胶片拍下这些光点, 然后用 Photomation-1700 型数字图象处理仪测量其黑度值. 测量结果表明: 在与探测光束相对应的位置上, 回传光束的横截面与探测光束的横截面相等, 平均相对误差为 2.5%; 如果在不同位置测量, 两横截面则相差很大. 图 4 是这些光点的照片. 此外, 我们还发现: 当遮住第一或第二束光时, 回传光随即消失. 实验结果表明回传光是由另外三束光共同产生的, 并且其横截面已得到恢复, 这表明回传光的相位得到补偿. 根据 NOPO 理论<sup>[5]</sup>, 我们认为回传波就是由  $F_2^+$  色心产生的 NOPO 波.

另外, 我们用 Rj-7200 型激光能量计测量了相位共轭反射率 (NOPO 波能量与探测光能量之比), 得到反射率曲线如图 5 所示. 由图 5 可知反射率与探测光能量成函数关系, 当探测

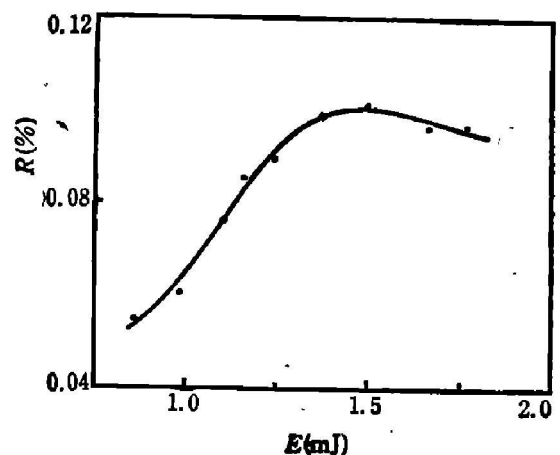


图 5 相位共轭反射率随探测光能量的变化关系

Fig. 5 Phase conjugate reflectivity vs the probe laser energy

光强度低于  $0.75 \text{ MW/cm}^2$  时, 反射率为增函数, 当探测光强高于  $0.75 \text{ MW/cm}^2$  时, 则为减函数, 其最大反射率为  $0.1\%$ . 若加大晶体厚度并提高  $F_2^+$  色心浓度, 有可能进一步提高四波混频效率.

## 4 讨 论

在 LiF 晶体中,  $F_2^+$  色心是由三个沿 (111) 面邻近的卤离子空位并自陷两个电子组成, 呈  $O_{3v}$  对称性. 它的能级结构可用沉浸在连续电介质中的  $H_2^+$  分子离子模型来描述, 最低的

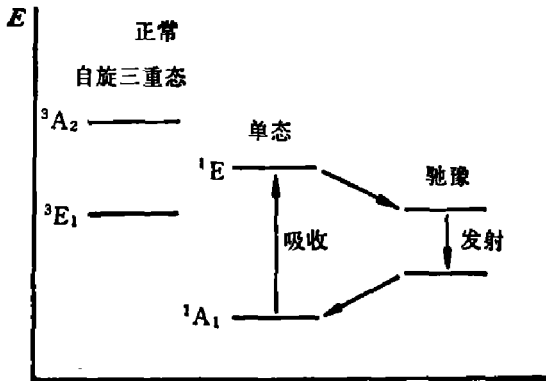


图 6 LiF 晶体  $F_2^+$  色心能级简图

Fig. 6 Energy level diagram of  $F_2^+$  center in LiF crystal

几个能态简图如图 6 所示. 它的  $460 \text{ nm}$  的基本吸收带归因于基态  $^1A_1$  与第一激发态  $^1E$  间的跃迁, 其  $530 \text{ nm}$  发射带为弛豫基态与弛豫第一激发态间的跃迁.  $F_2^+$  色心具有良好的局域性, 它的荧光有  $0.36 \text{ eV}$  的斯托克斯位移. 室温下  $F_2^+$  色心的荧光衰减寿命  $\tau \approx 18 \text{ ns}$ , 发射截面  $\sigma \approx 2.5 \times 10^{-17} \text{ cm}^2$ .  $F_2^+$  色心在室温下具有相当长的贮存寿命和相当高的光-热稳定性.

根据  $F_2^+$  色心能级结构特点, 可以比较直观地解释  $F_2^+$  色心非线性饱和吸收和四波混频效应. 这两种效应都直接与  $F_2^+$  色心在晶体中

上下能级的布居数之差有关, 当入射光强度较高时, 较长的(与入射光脉宽相比)荧光衰减寿命和较长寿命的自旋三重态的存在正好为产生较大布居数差创造了条件, 这时, 自旋三重态起电子陷作用. 若下能级布居数很低时,  $F_2^+$  色心系统对入射泵浦光的吸收作用大大减弱, 呈饱和吸收状态. 利用公式  $I_s = h\nu/\sigma\tau$  可估算  $F_2^+$  色心饱和功率密度  $I_s$ , 这里  $h$  为普朗克常数,  $\nu$  为入射光频率. 通过这种方法求得的饱和功率密度  $I_s \approx 0.83 \text{ MW/cm}^2$ , 与实验测量结果一致<sup>[4]</sup>.

## 5 结 论

利用简并四波混频技术在 LiF 晶体中观测到  $F_2^+$  色心的非线性光学相位共轭效应, 其最大相位共轭反射率为  $1\%$ , 并进行了理论分析.

## 参 考 文 献

- 1 Basiev T T et al. *Sov. Tech. Phys. Lett.*, 1982; **8**(12): 658
- 2 Zhang T et al. *Chin. Phys. Lett.*, 1985; **2** (8): 369
- 3 Rand S G. *J. Phys. Collog. (Paris)*, 1985; **46**(10): C507
- 4 Gu Hongen et al. *Opt. Commun.*, 1989; **70**(2): 141
- 5 Martin G et al. *Appl. Phys. Lett.*, 1979; **34** (6): 371
- 6 Zheng LX et al. *Opt. Commun.*, 1985; **55**(4): 277

## STUDY ON FOUR-WAVE MIXING OF $F_3^+$ CENTERS IN LITHIUM FLUORIDE CRYSTALS

GU HONG'EN

*(Department of Physics, Tianjin University, Tianjin 300072, China)*

The nonlinear optical phase conjugation effect of  $F_3^+$  centers in LiF crystals is observed using degenerate four-wave mixing technique. Using a pulsed dye laser as pump light, a maximum phase conjugate reflectivity of about 0.1% is obtained. The physical origin of the nonlinear saturation absorption and the four-wave mixing in  $F_3^+$  center system is pointed out in theory according to the energy level property of the  $F_3^+$  center in LiF crystals.

**Key words:** lithium fluoride (LiF),  $F_3^+$ -centers, four wave mixing.