

SrFCl:Sm²⁺ 中的 Sm³⁺ 在光谱 烧孔中的行为*

张家骅 黄世华 秦伟平 高殿昆 虞家琪

(中国科学院长春物理研究所, 吉林, 长春, 130021)

本文研究了 77K 时 SrFCl:Sm²⁺ 在光谱烧孔过程中 Sm²⁺ 和 Sm³⁺ 的再分布, 得出烧孔的最大总面积受材料中 Sm³⁺ 数量的限制, 孔的最大总面积与 Sm²⁺ 非均匀线型内积分面积比等于材料中 Sm³⁺ 与 Sm²⁺ 含量比。

关键词: 光学烧孔, 非均匀线型, 氟氯锶(SrFCl)。

1 引 言

光存储和光计算机的研究开拓了光谱烧孔这一新领域, 具有永久性光谱烧孔特性的材料受到极大重视, 例如 CaF₂:Sm²⁺、SrF₂:Sm²⁺、BaFCl:Sm²⁺ 和 BaFCl_{0.8}Br_{0.2}:Sm²⁺ 等系列无机材料^[1~4]。对这类掺 Sm²⁺ 的无机材料, 至今未见到有关 Sm²⁺ 非均匀线型内烧孔的总面积是否受限制的报道。本文研究了 77K 时 SrFCl:Sm²⁺ 中的 Sm³⁺ 在光谱烧孔中的行为, 把孔的总面积随着烧孔时间延长或孔数目增多趋于极大(即达到饱和)的结果归结为孔的最大总面积受材料中 Sm³⁺ 数量的限制, 并得出孔的最大总面积与 Sm²⁺ 发光的非均匀线型内积分面积之比等于材料中 Sm³⁺ 与 Sm²⁺ 的数量比。

2 实 验

SrFCl:Sm²⁺ 样品是将 SrF₂、SrCl₂ 和 Sm₂O₃ 试剂用常规烧粉法在管式炉内 850°C 和 H₂ 气氛下烘烤 2h 制成的, 每 mol 基质掺 0.02 mol Sm。测量样品的光致荧光光谱时, 采用 N₂ 激光器的 337.1nm 线作为激发光源, 用致冷 RCA-C31034 光电倍增管接收荧光, 用 Spex 1403 高分辨光谱仪分光, 再经光子计数器或 Boxcar 积分平均, 输入微机处理。光谱烧孔光源为 Nd:YAG 激光泵浦的 R6G 染料激光器, 其输出波长为 550~570 nm。样品浸在液氮杜瓦瓶中进行以上实验。

3 实验结果和讨论

3.1 光致荧光光谱

本文 1990 年 6 月 21 日收到。

* 国家科委高技术项目和中国科学院长春物理所激发态物理开放实验室资助课题。

图 1 为 $\text{SrFCl}:\text{Sm}^{2+}$ 的光致荧光光谱, 从中可观察到 Sm^{2+} 的特征发射线 ${}^5\text{D}_2-{}^7\text{F}_0$ (17748 cm^{-1}) 和 ${}^5\text{D}_1-{}^7\text{F}_0$ (15816 cm^{-1}), 同时还存在 Sm^{3+} 的 ${}^4\text{G}_{5/2}-{}^6\text{H}_{5/2}$ (17728 cm^{-1}) 和 ${}^4\text{G}_{5/2}-{}^6\text{H}_{7/2}$ (16510 cm^{-1}) 的发射, 这说明材料中 Sm^{2+} 和 Sm^{3+} 共存.

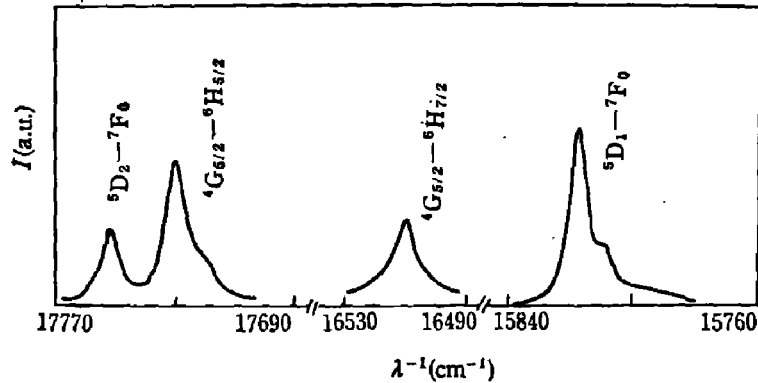


图 1 77 K 时 $\text{SrFCl}:\text{Sm}^{2+}$ 的荧光光谱

Fig. 1 Fluorescence spectrum of $\text{SrFCl}:\text{Sm}^{2+}$ at 77 K

3.2 光谱烧孔

图 2 是 $\text{SrFCl}:\text{Sm}^{2+}$ 的双光子烧孔简图. 当用一束窄激光线选择激发 Sm^{2+} 的 ${}^5\text{D}_2$ 能级时, 处于激发态 ${}^5\text{D}_2$ 能级上的部分粒子会无辐射跃迁到 ${}^5\text{D}_1$ 能级而给出 ${}^5\text{D}_1-{}^7\text{F}_0$ 发射, 因此监测 ${}^5\text{D}_1-{}^7\text{F}_0$ 发射时, 其激发谱对应于 ${}^7\text{F}_0-{}^5\text{D}_2$ 跃迁. Sm^{2+} 中心周围晶场环境的微小差别引起跃迁频率分布, 其激发光谱是非均匀展宽的. 当用一束频率为 ν_0 的强窄带激光共振激发 ${}^5\text{D}_2$ 非均匀线型内频率为 ν_0 的那部分粒子时, 如果这部分粒子重新处于另一个稳态, 那么在激发光谱的非均匀线型内的 ν_0 处会出现一个永久的孔.

Winnacker 等人^[3] 在 $\text{BaFCl}:\text{Sm}^{2+}$ 中首次观察到两个光子使 Sm^{2+} 两步离化为 Sm^{3+} 产生的光谱烧孔. 本文用两步离化在 $\text{SrFCl}:\text{Sm}^{2+}$ 中进行烧孔, 首先用烧孔光束将粒子由基态 ${}^7\text{F}_0$ 激发到亚稳态 ${}^5\text{D}_2$, 然后用选通光进一步激发到导带发生光离化并转变成稳定的

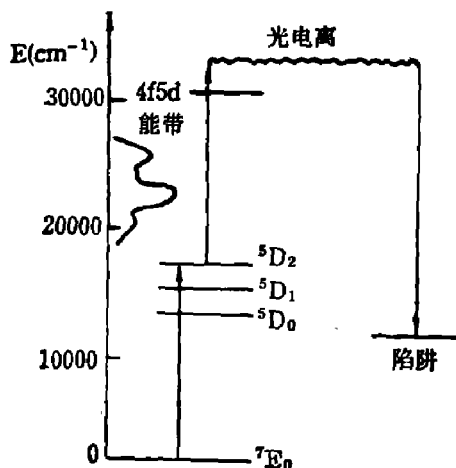


图 2 $\text{SrFCl}:\text{Sm}^{2+}$ 的两光子烧孔简图

Fig. 2 Schematic diagram at two-photon hole burning in $\text{SrFCl}:\text{Sm}^{2+}$

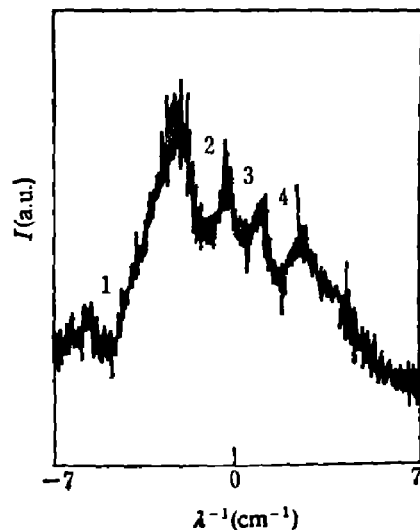


图 3 77 K 时 $\text{SrFCl}:\text{Sm}^{2+}$ 的激发光谱中的 4 个孔

Fig. 3 Four spectral holes in the excitation spectrum at 77 K in $\text{SrFCl}:\text{Sm}^{2+}$

Sm³⁺, 从而产生永久烧孔, 如图 2 所示. 本实验用同一光束作为烧孔光和选通光^[4] 在 SrFCl:Sm²⁺ 中实现光谱烧孔, 图 3 是 77 K 时 SrFCl:Sm²⁺ 激发光谱中的 4 个孔.

3.3 烧孔过程中 Sm²⁺ 和 Sm³⁺ 的再分布

光谱烧孔过程中 Sm²⁺ 和 Sm³⁺ 的转化过程可表示为^[3]



以上两式表明: 当 A 位上的 Sm_A²⁺ 被一束窄激光线选择激发离化为 Sm_A³⁺ 时, 放出的电子可能与任意位置上的 Sm³⁺ 复合形成 Sm²⁺, 因此在光谱烧孔过程中, 体系中 Sm²⁺ 和 Sm³⁺ 的总数不变, 而它们的分布将发生变化. 这一变化表现在 Sm²⁺ 的非均匀线型频率为 ν_A 处的 Sm_A²⁺ 由于离化成 Sm_A³⁺ 而导致发光明显下降, 同时由于各个位置上的 Sm³⁺ 都可能与电子复合形成 Sm²⁺, 因此整个线型的发光都略有增加, 最终保持整个线型内的积分面积 S_i 不变. 如果把 S_i 视为体系中 Sm²⁺ 的数量, 那么 ν_A 处的孔面积 S_{hole} 应视为烧该孔时 Sm_A²⁺ 离化形成的 Sm_A³⁺ 的数量. 由此推理, 如果烧孔时间足够长或烧多孔时, 可导致 Sm²⁺ 离化形成的 Sm³⁺ 的总数接近或达到体系中含有的 Sm³⁺ 的总量, 那么烧孔的总面积 S_{hole} 将不再增加而达到极大值, 即称为烧孔饱和.

设材料中 Sm²⁺ 数为 N_2 , 三价钐 Sm³⁺ 数为 N_3 . Sm²⁺ 的光谱分布为 $f_2(\omega, t)$, Sm³⁺ 全部俘获电子后形成的 Sm²⁺ 的光谱分布为 $f_3(\omega)$. $f_2(\omega, t)$ 在烧孔前为 $f_2(\omega, 0)$, 烧孔饱和时为 $f_2(\omega, \infty)$. Sm²⁺ 的发光光谱的积分面积应正比于材料中对发光有贡献的 Sm²⁺ 数量, 由此给出

$$S_i = \int_{-\infty}^{\infty} f_2(\omega, t) d\omega = k \cdot N_2, \quad (3)$$

$$\int_{-\infty}^{\infty} f_3(\omega) d\omega = k N_3, \quad (4)$$

式中 k 为正常数. 烧孔过程中, 无孔位置上的 Sm³⁺ 不断俘获电子形成 Sm²⁺ 而使该处发光增强. 烧孔饱和时, 光谱分布函数 $f_2(\omega, \infty)$ 随时间增加不再变化, 这说明在无孔处的 Sm³⁺ 已全部转化为 Sm²⁺, 因此, 这时无孔位置的光谱分布满足 $f_2(\omega, 0) + f_3(\omega)$, 那么 $f_2(\omega, 0) + f_3(\omega)$ 应是 $f_2(\omega, \infty)$ 的包络函数. 孔的线型是

$$f_2(\omega, 0) + f_3(\omega) - f_2(\omega, \infty). \quad (5)$$

孔的最大总面积为

$$S_{\text{hole}} = \int_{-\infty}^{\infty} [f_2(\omega, 0) + f_3(\omega) - f_2(\omega, \infty)] d\omega = k N_3. \quad (6)$$

由式(3)得

$$\frac{S_{\text{hole}}}{S_i} = \frac{N_3}{N_2}. \quad (7)$$

式(7)说明烧孔饱和时, S_{hole}/S_i 趋于稳定. 以上分析与实验结果符合, 参见表 1.

表 1 说明: 烧孔时间较短时, 烧孔未饱和, 此时随着孔数增加孔的总面积明显增大; 烧孔时间较长时, 烧孔饱和, 随着孔数增加孔总面积趋向极大. 因此要在 SrFCl:Sm²⁺ 这类材料中实现烧孔并能烧出多个足够深的孔, 必须使这种材料含有适当数量的 Sm³⁺.

表 1 SrFCl:Sm³⁺ 中 S_{hole}/S_i 的值与烧孔时间和孔数的关系
 Table 1 Relations of the value of S_{hole}/S_i with hole-burning time
 and number of holes in SrFCl:Sm²⁺

烧 孔 未 饱 和			烧 孔 饱 和			平均值
孔 数	烧孔时间 (min)	$\frac{S_{\text{hole}}}{S_i}$	孔 数	烧孔时间 (min)	$\frac{S_{\text{hole}}}{S_i}$	
1	10	3.6%	1	30	22.4%	25.5%
2	10	14.5%	2	10	22.1%	
			3	10	29.5%	
			4	10	27.9%	

由式 (7) 可知, 饱和时孔的总面积与 Sm²⁺ 非均匀线型内积分面积之比应等于材料中 Sm³⁺ 与 Sm²⁺ 的数量比, 这将为确定这类材料中的 Sm²⁺ 和 Sm³⁺ 的含量提供新的方法。

参 考 文 献

- 1 Macfarlane R M, Shelby R M. *Opt. Lett.*, 1984; **9**: 533
- 2 Macfarlane R M, Meltzer R S. *Opt. Commun.*, 1985; **52**: 320
- 3 Winnacker A, Shelby R M, Macfarlane R M. *Opt. Lett.*, 1985; **10**: 350
- 4 Wei Changjing, Huang Shihua, Yu Jiaqi. *J. Lumin.*, 1989; **43**: 161~166

BEHAVIOR OF Sm³⁺ IN SrFCl:Sm²⁺ IN THE PROCESS OF SPECTRAL HOLE-BURNING

ZHANG JIAHUA, HUANG SHIHUA, QIN WEIPING,
 GAO DIANKUN, YU JIAQI

(Changchun Institute of Physics, Academia Sinica, Changchun, Jiling 130021, China)

The spectral hole-burning in SrFCl:Sm²⁺ at 77 K is studied. It has been obtained that the total area of holes in the inhomogeneous line shape is limited by the number of Sm³⁺ in the material and the maximum of total area (S_{hole}) of holes is proportional to the number of Sm³⁺. The integrated area (S_i) in the inhomogeneous line shape is proportional to the number of Sm²⁺ in the material. The value of S_{hole}/S_i is equal to the ratio of the trivalent to the divalent samarium contents in the material.

Key words: optical hole-burning, inhomogeneous line shape, strontium chlorine fluoride (SrFCl).