

HoP₅O₁₄ 非晶中 Ho³⁺ 离子 ⁵F₄ 能级的 双光子吸收

陈晓波* 陈金铠** 张光寅*

(* 南开大学物理系, 天津 300071; ** 福建师范大学实验中心, 福州 350007)

Two-photon absorption of ⁵F₄ level of Ho³⁺ ion in HoP₅O₁₄ noncrystalline

Chen Xiaobo*, Chen Jinkai**, Zhang Guangyin*

(* Physics Department, Nankai University, Tianjing 300071;

** Experimental Center, Fujian Normal University, Fuzhou 350007)

Abstract Two-photon absorption phenomenon of Ho³⁺ ion in HoP₅O₁₄ noncrystalline induced by 1.06 μm of Nd:YAG pulsed laser is reported. We found it is a direct, not step by step, two-photon process starting from ⁵I₈ state and can be ascribed to the third order perturbation resulted from spin-orbit interaction.

Key words HoP₅O₁₄ noncrystalline, two-photon absorption

本文报道所观察到的 HoP₅O₁₄ 非晶中 Ho³⁺ 离子对调 Q 脉冲 YAG 基频 1.06 μm 激光的双光子吸收现象,说明了由 Judd 和 Pooler 提出的自旋轨道三级微扰作用项^[1]可以解释该双光子吸收过程^[1]。

1 实验结果

首先,用 UV-365 型分光光度计测量了 HoP₅O₁₄ 非晶的吸收谱(见图 1),感兴趣的能级谱线重心值列于表 1。图 1 中 ⁵I₄ 能级吸收很小^[2],在吸收谱上基本无法辨认。测量双光子吸收的实验装置如图 2 所示,所用光源是调 Q 脉冲 YAG 基频 1.06 μm 激光,脉宽约 8 ns。

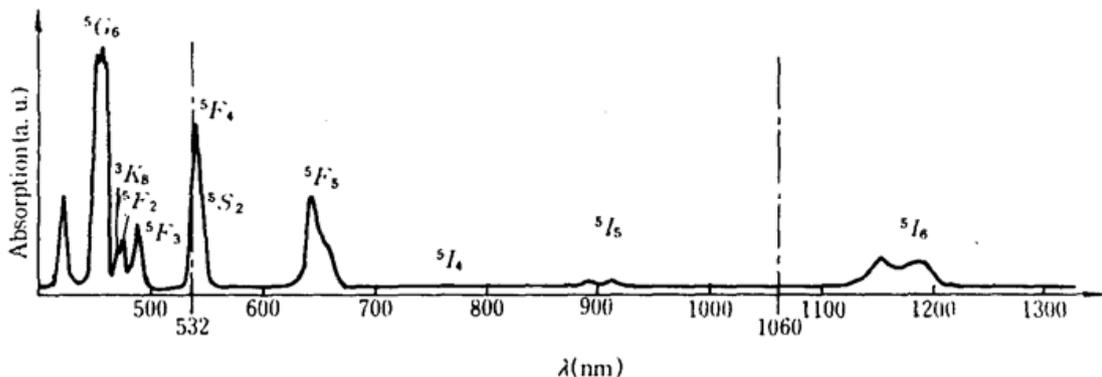


Fig. 1 Absorption spectrum of HoP₅O₁₄ noncrystalline

Table 1 The barycenters of main levels of HoP₅O₁₄ noncrystalline

Levels	⁵ I ₇	⁵ I ₆	⁵ I ₅	⁵ I ₄	⁵ F ₅	⁵ S ₂	⁵ F ₄	⁴ F ₃
$\bar{\nu}_p$ (cm ⁻¹)	5066	8540	11111	13219	15456	18382	18587	20534

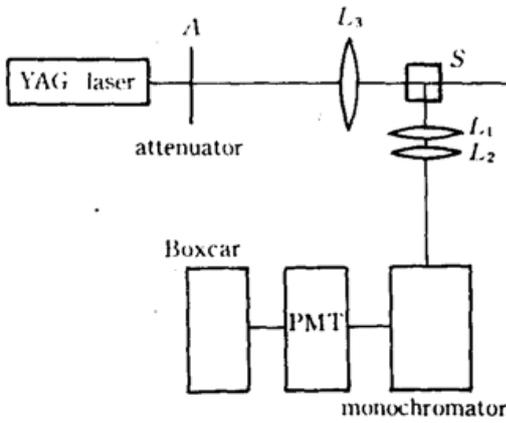


Fig. 2 Experimental set-up

HoP₅O₁₄ 非晶对 YAG 基频 1.06 μm 激光的双光子吸收信号和对 532 nm 倍频激光的单光子吸收信号的测量结果如图 3 所示,对于双光子吸收和单光子吸收产生的 ⁵S₂ → ⁵I₈ 跃迁的 548 nm 荧光随时间衰减曲线的测量结果表明二者也是一致的。由测量的 HoP₅O₁₄ 非晶双光子吸收所致的 ⁵S₂ → ⁵I₈ 和 ⁵F₅ → ⁵I₈ 两组跃迁的荧光信号强度 *F* 随 1.06 μm 激光能量 *P*₀ 的变化(如图 4 所示),可知 lg *F*- lg *P*₀ 的斜率为 $\gamma(548 \text{ nm}) = 2.09 \pm 0.10$, $\gamma(656 \text{ nm}) = 2.06 \pm 0.10$,这说明所发生的确是 Ho³⁺ 离子的双光子吸收现象。

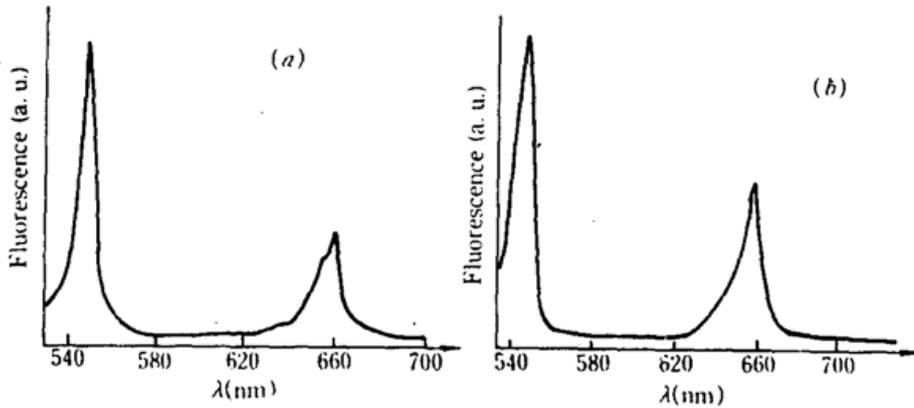


Fig. 3

(a) Spectrum of two-photon fluorescence excited by 1.06 μm laser

(b) spectrum of single-photon fluorescence excited by 532 nm laser

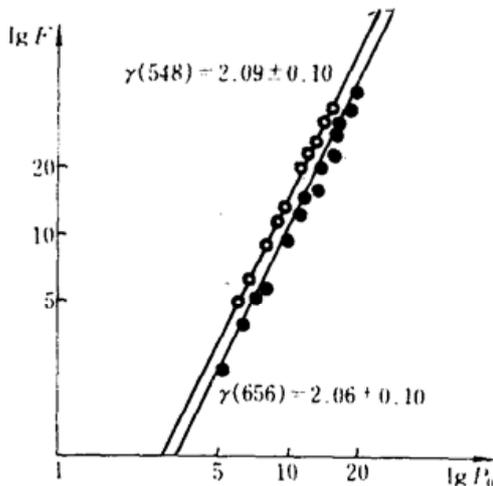


Fig. 4 Intensity of two-photon fluorescence versus energy of exciting laser beam

2 讨论

我们知道,对三阶稀土离子系统,若同时存在共振的步进双光子吸收和直接双光子吸收时,则较弱的直接双光子吸收信号一般就会被较强的步进双光子吸收信号所淹没。

从图 1 和表 1 明显看出: ⁵I₈ → ⁵F₄ 的直接双光子吸收是近共振的,而 ⁵I₈ → ⁵I₆ → ⁵S₂ 的步进双光子吸收是非共振的。图 1 表明, ⁵I₈ → ⁵I₆ 的吸收的 Stark 分裂只呈现两个相距为 32.5 nm 吸收相近的两个次峰,峰位分别为 λ₁ = 1155.5 nm 和 λ₂ = 1188.0 nm,其余细微的 Stark 分裂完全被非晶态基质区大的非均匀展宽所掩盖。由图 1 可以测得这两个次峰的半宽都约为 210 cm⁻¹,其它能级的半宽也约为 210 cm⁻¹。由高斯曲线可算出 1.06 μm 处激光线宽 0.2 cm⁻¹ 宽度内 HoP₅O₁₄ 非晶的吸收占整个 ⁵I₆ 能级吸收的比例为 η₁ = 3.5 × 10⁻¹⁹。

步进双光子吸收的第二步 ⁵I₆ → ⁵S₂ 跃迁可以认为是起始于 ⁵I₆ 的第二个次峰,在激光线宽内其吸收占整个 ⁵I₆ → ⁵S₂ 能级吸收的比例为 η₂ ≈ 7.6 × 10⁻¹³。由于三价稀土 f-f 单光子跃迁的振子强度 f^s ≤ 10⁻⁶,两步的共振步进双光子跃迁振子强度也只有 ≤ 10⁻¹²,这样,在 1.06 μm 激光激发下 Ho³⁺ 离子 ⁵I₈ → ⁵I₆ → ⁵S₂ 的步进双光子吸收振子强度约为

$$f^{ss} = \prod_i \eta_i f_i^s \lesssim 2.7 \times 10^{-43} \quad (1)$$

对二级理论允许的直接双光子吸收,其振子强度约 ≤ 10⁻²⁰,由高斯线型可算得 532 nm 处激光线宽内 HoP₅O₁₄ 的吸收占整个 ⁵F₄ 能级吸收的比例为 η_d = 2.8 × 10⁻⁵,即在 1.06 μm 激光激发下, Ho³⁺ 离子 ⁵I₈ → ⁵F₄ 的直接双光子吸收振子强度约为

$$f^d \lesssim 2.8 \times 10^{-25} \quad (2)$$

比较(1),(2)两式,显然在 HoP₅O₁₄ 被 1.06 μm 激光激发的情况下, Ho³⁺ 离子 ⁵I₈ → ⁵F₄ 的直接双光子吸收将比 ⁵I₈ → ⁵I₆ → ⁵S₂ 的步进双光子吸收强得多。但由于 |⟨⁵I₈ || U⁽²⁾ || ⁵F₄⟩|² = 0,按 Axe 的二级双光子吸收理论^[3],其直接双光子吸收几率的二级理论值为

$$S^d = C \cdot \Omega_2 |\langle \sup{5}I_8 || U^{(2)} || \sup{5}F_4 \rangle|^2 = 0 \quad (3)$$

实际观察到较强的 Ho³⁺ 离子的双光子吸收现象与 Gd³⁺ 的结果一样^[4],说明对三阶稀土离子的双光子吸收常常是不能仅考虑 Axe 的二级理论,而应同时考虑 Judd 和 Pooler 提出的自旋轨道相互作用对双光子吸收的三级微扰贡献等高级微扰项才能对其双光子吸收给出合理的解释。考虑自旋轨道三级微扰贡献, Ho³⁺ 离子的直接双光子吸收跃迁几率取决于下式^[4]

$$S^d \propto | - (42)^{1/2} \xi_f E_{if}^2 \underline{E}^{(1)} \cdot \underline{E}^{(1)} W^{(11)0} + 6(3/2)^{1/2} E_{if}^2 \sum_{t=\lambda}^{0 \leq \lambda \leq 3} (-1)^{\lambda+1} (2\lambda+1)^{1/2} \\ \times \left[(7)^{1/2} \begin{Bmatrix} t & 3 & 3 \\ 3 & 1 & 3 \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} 2 & 1 & 3 \\ t & 3 & 1 \end{Bmatrix} \xi_f + (5/2)^{1/2} \begin{Bmatrix} 1 & 3 & 2 \\ 1 & 3 & 2 \\ t & \lambda & 1 \end{Bmatrix} \xi_d \right] (\underline{E}^{(1)} \cdot \underline{E}^{(1)})^t W^{(1\lambda)t} |^2 \quad (4)$$

我们简单地以 Russel-Saunders 态 ⁵I₈、⁵F₄ 来代替居间耦合态 [⁵I₈], [⁵F₄] 来考虑这个问题,则(4)式中 λ = 3 的项 W⁽¹³⁾² 是主要项,它直接联系着轨道角动量 L 值相差为 ΔL = 3 的 ⁵I₈ 与 ⁵F₄ 能级,即自旋轨道相互作用对 ⁵I₈ → ⁵F₄ 的直接双光子吸收的三级微扰贡献不为零。其双光子吸收谱线强度可表示为

$$S^d = C^{(3)} |\langle \sup{5}I_8 || W^{(13)2} || \sup{5}F_4 \rangle|^2 \quad (5)$$

W^{(ij)k} 代表对单粒子双张量算子的求和 ∑_j [W^{(ij)k}], 其中 i 落在自旋空间, j 落在轨道空间。

事实上,由 Gd³⁺ : LaF₃ 等双光子吸收结果得知^[4],自旋轨道相互作用对双光子吸收的三级微扰贡献等高级微扰项常常甚至比二级微扰项对双光子吸收的贡献还大。因此,有理由认为

HoP₅O₁₄ 非晶在 1.06 μm 激光激发下所发生的是 $^5I_8 \rightarrow ^5F_4$ 的直接双光子跃迁过程,其跃迁机理是自旋轨道相互作用对直接双光子吸收的三级微扰贡献。

谨向北京人工晶体所刘言滨、李加季等同志致以衷心的感谢。

参 考 文 献

- 1 B. R. Judd, D. R. Pooler, *J. Phys. C.*, **15**, 591(1982)
- 2 W. T. Carnall, *J. Chem. Phys.*, **49**(10), 4424(1968)
- 3 J. D. Axe, Jr., *Phys. Rev.*, **136**, A42, (1964)
- 4 M. C. Downer, A. Bivas, *Phys. Rev. B*, **28**(7), 3677(1983)

(收稿日期: 1992 年 8 月 27 日)