

室温脉冲可调谐 $\text{NaCl} : (\text{F}_2^+)_\text{H}$ 色心激光器

张贵芬

(中国科学院上海光机所, 上海 201800)

提要 报道了室温下掺硫及掺氧 NaCl 晶体中 $(\text{F}_2^+)_\text{H}$ 心的热光稳定性和激光性能。讨论了引起色心退色的原因和改进方法。

关键词 $(\text{F}_2^+)_\text{H}$ 心, 色心激光器

1 引言

1985年 J. F. Pinto 等^[1]发现,在 NaCl 晶体中掺氧形成 $(\text{F}_2^+)_\text{H}$ 心,使色心的稳定性得到根本改善,在 77 K 连续工作数百小时未发现色心退色现象。激光输出功率达到数瓦水平,附加腔锁模脉冲宽度已压缩到 75 fs。这大大促进了色心激光的发展和应用。之后作者又进行了室温脉冲实验,激光工作脉冲数超过百万次^[2]。掺氧的成功又启发人们利用掺杂同族其它元素(S, Se 和 Te)进一步稳定色心。Y. Suzuki 等人^[3]研究了掺硫 NaCl 晶体中的 $(\text{F}_2^+)_\text{H}$ 心的光谱性质,指出有可能实现室温条件下工作,这更激起人们的研究兴趣。本文介绍了室温下掺硫及掺氧 NaCl 晶体中 $(\text{F}_2^+)_\text{H}$ 心的热光稳定性和激光性能的对比实验结果。为清楚起见,将掺硫和掺氧的 $(\text{F}_2^+)_\text{H}$ 心分别写成 $\text{F}_2^+ : \text{O}^{--}$ 心和 $\text{F}_2^+ : \text{S}^{--}$ 心。

2 $(\text{F}_2^+)_\text{H}$ 心的形成及热光稳定性

2.1 $(\text{F}_2^+)_\text{H}$ 心的形成

晶体生长采用提拉法。掺氧采用高纯度 NaCl 和 NaOH 粉末混匀混合,掺硫则用 NaCl 和 Na_2S 粉末混合在一起。掺杂浓度为 50~100 ppm。晶体在氩气氛中生长。选取优质晶体切割成 $(10 \times 8 \times 8) \text{ mm}^3$,放进钠蒸气热管炉中附加着色。着色条件是温度为 700 °C,钠蒸气压为 6.65 kPa,时间 3 h。具体条件和晶体块大小有关。着色后的晶体在降温过程中生成大量胶质粒子和高聚集心,晶体呈蓝色。为消除这些胶质粒子并使聚集心分解成 F 心,须进行淬火处理。方法是将晶体加热到 650 °C,保温 5 min 左右,突然降到室温。这样反复处理直到晶体四周变白,中部呈黄色为止。此时晶体中主要色心是 F 心和 F_3 心。淬火后的吸收谱如图 1(a) 所示。其中 240 nm 和 298 nm 吸收峰是 $\text{S}^{--} - \square$ 的吸收(其中 \square 代表阴离子空位)。460 nm 和 620 nm 处吸收带相应于 F 心和 F_3 心的吸收。

淬火后的晶体经研磨抛光后,室温下用汞灯照射,时间大约 15 min。汞灯的紫外光使 F_3 心分解成 F 和 F_2 心。同时紫外光又使 F 心离化成空位和电子。空位在晶体中运动,和 $\text{S}^{--} - \square$

复合体相遇,再俘获一个电子形成 $(F_2^+)_H$ 心。汞灯照射后晶体吸收谱如图 1 (b) 所示。光照后 F_3 心幅度减小, F_2 心和 $(F_2^+)_H$ 心出现,吸收峰分别处在 720 nm 和 1.0 μm 处。含有大量 $(F_2^+)_H$ 心的晶体呈橄榄绿色。1.0 μm 处吸收系数可达到 3 cm^{-1} 。汞灯照射时间对形成 $(F_2^+)_H$ 心有重大影响,时间过长会使 $(F_2^+)_H$ 心再分解,并产生胶质粒子。淬火使泵浦光(1.06 μm)和色心激光(1.55 μm)波长处的无用吸收减小,有利于提高色心激光效率。

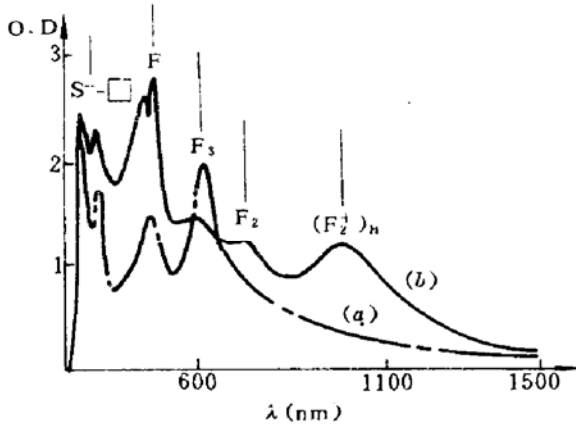


Fig. 1 Absorption spectrum of NaCl crystal with color centers at room temperature
(a) after quenching; (b) after photoaggregation

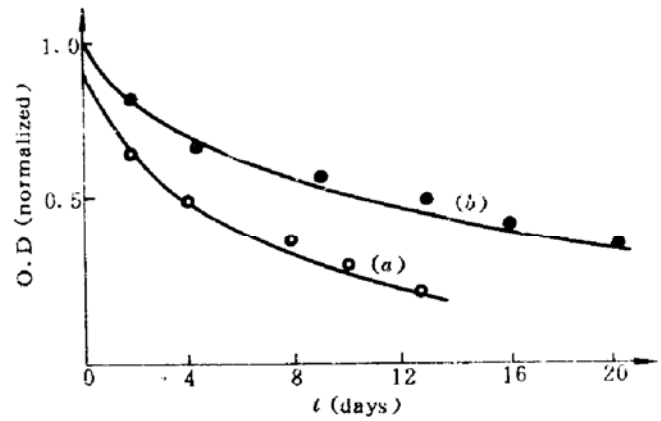


Fig. 2 Decay of $(F_2^+)_H$ centers with time (keeping in dark)
(a) $F_2^+ : O^{2-}$ centers; (b) $F_2^+ : S^{2-}$ centers

2.2 $(F_2^+)_H$ 心的热光稳定性

色心的热稳定性是在避光保存下,色心因热激励引起的退色。色心的热衰变规律为^[3]

$$N(T, t) = N_0 \exp[-t/\tau(T)] \quad (1)$$

式中 T 为温度, t 为时间, N_0 为初始色心数。 $\tau(T)$ 是衰减常数,和温度有关。

$$\tau(T) = \nu^{-1} \exp(\Delta E/KT) \quad (2)$$

式中 ν 为频度因子, ΔE 为激活能, K 为玻尔兹曼常数。对 $F_2^+ : S^{2-}$ 心, $\Delta E = (0.93 \pm 0.18) \text{ eV}$, $\nu = 8 \times 10^9 / \text{s}$ 。由此数据计算出室温下(293 K) $F_2^+ : S^{2-}$ 心的半衰期为 19 天。推算出 $F_2^+ : O^{2-}$ 心的半衰期约为 9 天。

本研究工作从实验上测量了 $F_2^+ : S^{2-}$ 心及 $F_2^+ : O^{2-}$ 心室温下的半衰期。方法是将晶体避光保存,逐天测色心晶体的吸收谱。用支架固定好待测晶体的位置,以确保测量准确度。晶体吸收谱的变化,表示了色心密度的变化。测量结果如图 2 所示。 $F_2^+ : S^{2-}$ 心半衰期约为 20 天, $F_2^+ : O^{2-}$ 心半衰期为 12 天左右,和计算结果大体一致。结果表明,掺硫比掺氧使 $(F_2^+)_H$ 心稳定性有较大改善。

用同样方法测量了室温下自然光照时色心的稳定性。所得结果是 $F_2^+ : S^{2-}$ 心的半衰期为 $\geq 50 \text{ h}$,而 $F_2^+ : O^{2-}$ 心半衰期为 30 h 左右。和纯 NaCl 中 F_2^+ 心相比, F_2^+ 半衰期只有 2~3 h。掺杂确实起到了稳定色心的作用。测量自然退色后晶体的吸收谱, $(F_2^+)_H$ 心和 F 心吸收峰幅度降低,而 F_3 心吸收峰增加,晶体变成蓝色。

文献[3]指出,室温下 1.06 μm 光照不引起 $F_2^+ : S^{2-}$ 心退色。但这是在弱光照射下的结果。在线偏振高功率密度 1.06 μm 泵浦光的照射下(约 10^7 W/cm^2),双光子吸收导致色心轴再定向。没有辅助光,光泵几十个脉冲后,色心激光就停止振荡。打开辅助光,激光又恢复振荡,这说明光泵引起色心轴再定向。为了使色心轴再转回到吸收泵浦光的方向上来,光泵同时须用

辅助光照射晶体。在泵浦光和辅助光的作用下,色心轴发生多次再定向使 F_2^+ 心在晶体中迁移。当碰到其它缺陷时与之复合,使 F_2^+ 心消失。这表明室温下 S^{2-} 和 O^{2-} 离子束缚不住 F_2^+ 心。光泵后测量晶体吸收谱, $(\text{F}_2^+)_\text{H}$ 心和 F 心减少,而 F_3 心增加。这和自然光照下退色结果一致。一种可能的退色途径是, $\text{F}_2^+ + \text{F} \rightarrow \text{F}_3^+$, $\text{F} \xrightarrow{\text{F 光照}} \square + e$, 而 $\text{F}_3^+ + e \rightarrow \text{F}_3$ 。

3 $(\text{F}_2^+)_\text{H}$ 心的激光性能

激光实验装置如图 3 所示。采用横向泵浦方案。泵浦源为电光调 Q 的 Nd : YAG 激光器。脉冲宽度为 15 ns, 泵浦光脉冲能量为 100 mJ。辅助光为 Ar^+ 离子激光, 工作波长为 450 nm, 功率为 300 mW。泵浦光经柱面透镜会聚成 $3.5 \times 8 \text{ mm}^2$ 的光斑照射在晶体上。光泵功率密度为 $3.7 \times 10^7 \text{ W/cm}^2$ 。光泵重复频率为 1 Hz。高重复率很易将晶体炸裂, 原因是多次淬火在晶体中残留很大应力。

实验取得 $(\text{F}_2^+)_\text{H}$ 心激光参数如下: 对 $\text{F}_2^+ : \text{O}^{2-}$ 心, 激光输出波长为 $1.55 \mu\text{m}$, 棱镜调谐范围 $1.45 \sim 1.76 \mu\text{m}$ 。对 $10 \times 8 \times 8 \text{ mm}^3$ 晶体, 最大输出能量为 12.5 mJ。有用吸收能量为 35 mJ, 光转换效率达到 35%。激光输出能量随光泵脉冲数逐渐下降。激光工作脉冲数和初始色心密度及输出镜透过率有关。对透过率为 20% 的输出镜, 光泵 3000 次后激光能量降到初始值的 20%。对透过率 50% 的输出镜, 色心激光只能工作 1500 个脉冲。对于 $\text{F}_2^+ : \text{S}^{2-}$ 心, 激光波长为 $1.55 \mu\text{m}$ 。用 $10 \times 8 \times 6 \text{ mm}^3$ 晶体, 最大输出能量为 7 mJ, 光转换效率为 31%。光泵脉冲数和 $\text{F}_2^+ : \text{O}^{2-}$ 心无明显差别。图 4 为归一化的色心密度和激光能量随光泵脉冲数的变化。退色的晶体可以经过淬火光照后再可使用。但每次处理后得到的 $(\text{F}_2^+)_\text{H}$ 心逐步减少。

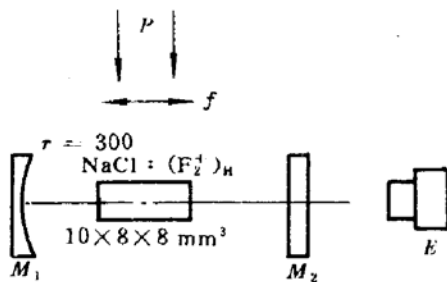


Fig. 3 The experimental setup

M_1, M_2 — resonator mirrors; P — $1.06 \mu\text{m}$ pumping optical beam and Ar^+ (450 nm) auxiliary beam; f — cylindrical lens; E — energymeter

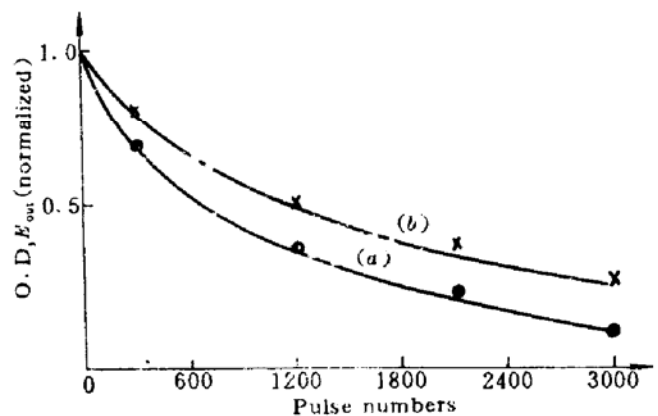


Fig. 4 Decrease of $(\text{F}_2^+)_\text{H}$ centers and output energy with pumping pulses

(a) $(\text{F}_2^+)_\text{H}$ centers; (b) output energy of CCL

为了确定在什么温度下 $(\text{F}_2^+)_\text{H}$ 心能长期稳定工作, 做了降低晶体温度的实验。在不同的温度下, 检验 $(\text{F}_2^+)_\text{H}$ 心的光泵稳定性。所取得的初步实验结果是在 130 K, $(\text{F}_2^+)_\text{H}$ 心能稳定工作。对 $\text{F}_2^+ : \text{S}^{2-}$ 心需要辅助光, 而 $\text{F}_2^+ : \text{O}^{2-}$ 心不需要辅助光。

致谢 本工作是在法国岗大学原子光谱实验室做的。作者对 J. Margerie 教授和 J. L. Doualan 博士给予的支持和帮助表示感谢。

参 考 文 献

- 1 J. F. Pinto *et al.*. *Opt. Lett.*, 1985, **10**: 384
- 2 C. F. Cupepper *et al.*. *Opt. Lett.*, 1987, **12**(10): 882
- 3 Y. Suzuki *et al.*. *Jpn. J. Appl. Phys.*, 1992, **31**: 809

Room Temperature Operation of NaCl : (F₂⁺)_H Tunable Color Center Pulsed Lasers

Zhang Guifen

(Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Academia Sinica, Shanghai 201800)

Abstract At room temperature, thermal and optical stability of (F₂⁺)_H centers in NaCl crystal doped with oxygen and sulfur ions and laser characteristics have been investigated in this paper. The fading causes of (F₂⁺)_H centers and improving method, were discussed.

Key words (F₂⁺)_H color centers, color center lasers

新颖铜激光——Cu-Ne-HBr 激光器研制成功

较之通常的铜蒸气激光器或溴化亚铜激光器,混合型的 Cu-Ne-HBr 激光体系具有重复率高、启动出光快、体功率密度和能量转换效率高等优点。继英国 St Andrews 大学的 A. Maitland 和 C. E. Little 等人^[1]之后,我们于 1993 年下半年研制成功结构简单、平均输出功率为 5~10 W 的 Cu-Ne-HBr 激光器,它的放电管为双层石英管,内径 20 mm,两端为布儒斯特石英窗口。电极间距 550 mm,管内均匀放置铜料。工作时,按比例预先混合好的 Ne 和 HBr 气体(气压约为 50 kPa)连续流过放电管。冷启动 3~4 分钟之内,激光可达到稳定的高功率输出。能量转换效率与脉冲重复频率、Ne 与 HBr 的混合比、总气压及流速等参数有密切的关系。在我们的工作条件下,重复率在 20 kHz 较为合适。以平-凹镜作为稳定谐振腔时,当输入电压为 2.0 kV、电流为 0.66 A 时,激光输出功率为~6.3 W,双波长(510.6 nm 和 578.2 nm)。最高输出功率可达~10 W,可连续工作 40 分钟以上,激光脉冲宽度为~15 ns。

目前,该器件是供实验用的原型,下阶段准备改进器件结构、优化工作参数,进一步提高其运转稳定性和可靠性,使之成为实用化的激光器投入应用。

本工作得到 1993 年度中国科学院上海光学精密机械研究所所长基金的支持。

参 考 文 献

- 1 D. R. Jones, N. V. Sabotinov, A. Maitland, C. E. Little. *Opt. Commun.*, 1992, **94**(4): 289~299

(中国科学院上海光机所, 上海 201800)

沈琪敏 季 鹰 梁培辉 张桂燕 宋秀冬 林福成)