

F_2 心光致电离的研究

王廷籍 张志三

(中国科学院物理研究所)

提 要

本文对 LiF、NaF 晶体中的 F_2 心光致电离为 F_2^+ 心作了初步研究。实验表明:有 F 、 E_2 与 F_3^+ 心的 LiF 晶体用汞灯、脉冲氙灯和直流碳电弧直接照射后,均可产生 F_2^+ 心;有 F 、 E_2 与 F_3^+ 心的 NaF 晶体用脉冲氙灯和钨灯照射后,也可产生 F_2^+ 心。并对这些现象进行了讨论。

本文还讨论了两步电离的效率问题,计算结果表明:提高两步电离效率的途径是寻找频率条件和功率密度都适当的光源和陷阱杂质,并给出了两步电离效率的表达式: $\eta = k' / (k' + 1/\tau')$ 。

一、前 言

在文献[1]中,介绍了 F_2^+ 心的 γ 射线照射产生法,本文介绍 LiF 与 NaF 晶体中 F_2^+ 心的另一种产生方法,即目前国外比较关注的两步电离法。 F_2^+ 心激光器的主要关键是高密度 F_2^+ 心的获得与保存。获得高密度的 F_2^+ 心已不成问题,而要在激光运转中保存 F_2^+ 心仍是一个难题,虽然国外已做了大量的工作,至今仍然没有得到解决。L. F. Mollenauer 寻找了 F_2 心光致电离为 F_2^+ 心的一种有用技术。在激光运转过程中, F_2 心在处理光束 (processing beam) 的作用下,不断地转变为 F_2^+ 心,以此来补偿原有 F_2^+ 心密度的减少,使 F_2^+ 心密度在激光运转过程中保持动态稳定。遗憾的是,这项研究工作属于专利^[2],关键性的问题并未公开发表。

二、光照射实验

L. F. Mollenauer 曾提到闪光灯,高强度电弧均可用来处理光束^[2]。并认为这种处理光束的作用是使 F_2 心通过两步光致电离而形成 F_2^+ 心。即先把 F_2 心泵浦到某一激发态,然后再把这种受激的 F_2 心电离为 F_2^+ 心。本文探索了类似的实验。其结果见图 1、图 2 和表 1。图 1(a) 中曲线 1、2、3 分别为光照前、闪光 20 次、闪光 100 次后的吸收光谱。图 1(b) 中的曲线 1、2 分别为光照前及用钨灯照射 10 分钟后的吸收光谱。图 2 中的曲线 1、2 分别为光照前及光照后的吸收光谱。表 1 是用直流碳电弧照射 LiF 晶体后, F_2^+ 在 880 nm 处荧光强度的变化(荧光强度以检流计电流表示,单位为 10^{-9} A)。从图和表可见:在室温下 LiF 晶体用汞灯、脉冲氙灯和直流碳电弧直接照射后,产生了 F_2^+ 心; NaF 晶体用脉冲氙灯的可见光及钨灯照射后,也产生了 F_2^+ 心。

用玻璃管或玻璃片去掉或减弱上述光源中的短于 370 nm 的紫外光之后,在 LiF 晶

表 1

晶 体	荧 光 强 度 (平 均 值)	
	光 照 前	光 照 后
2#	1.0	1.8~2.0
	1.0	1.6~1.8
3#	0.9~1.0	1.5~1.6
	0.5~0.6	1.0
4#	3.0	3.5~3.6

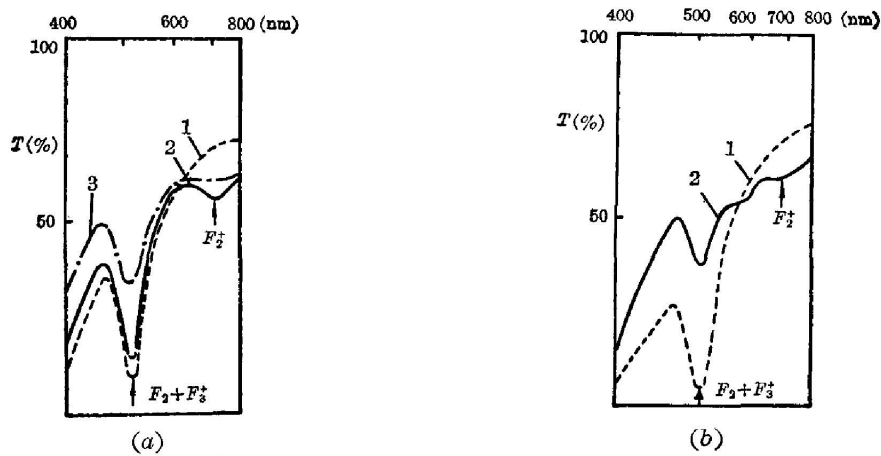


图 1 NaF 晶体的吸收光谱

(a) 用脉冲氙灯照射; (b) 用钨灯照射 10 分钟

Fig. 1 Absorption spectrum of NaF crystal

(a) by visible light of pulse Xe-lamp; (b) by W-lamp in 10 minutes

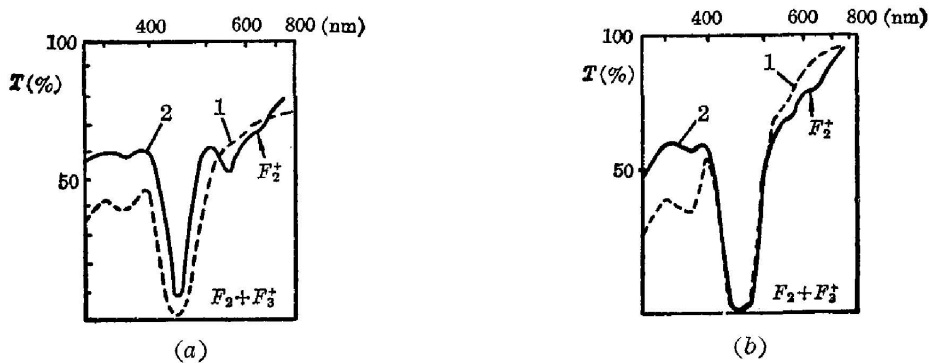


图 2 LiF 晶体的吸收光谱

(a) 用脉冲氙灯照射; (b) 用直流碳电弧照射

Fig. 2 Absorption spectrum of LiF crystal

(a) by visible light of pulse Xe-lamp; (b) by D. C. carbon arc

体中不能产生 F_2^+ 心。这表明, 对于上述的光源来说, 短于 370 nm 的紫外光在 LiF 晶体中产生 F_2^+ 心时起着重要作用。

相反, NaF 晶体用脉冲氙灯直接照射后,不能产生 F_2^+ 心,晶体很快被漂白,不仅 F_2 的吸收几乎消失,而且连 F 的吸收峰也大大减小。不论汞灯采用何种照射方式,在 NaF 晶体中都不能产生 F_2^+ 心。

实验中也观察了 LiF 晶体中 F_2^+ 心生成率同脉冲氙灯闪光次数之间的关系(如图 3 所示)。图 3 表明,光照法产生的 F_2^+ 心也存在极值密度的趋势,和 γ 射线照射法一样,也存在照射次数高(即辐照剂量大) F_2^+ 心密度下降的现象,这和吸收光谱法的测量结果相似^[2]。对于 NaF 晶体,观察到类似的现象(图 1(a))。

脉冲氙灯和碳电弧照射 LiF 晶体而产生 F_2^+ 心的物理过程可以认为是 F_2 心经过两步光电离而转化为 F_2^+ 心^[2],如图 4 所示。这些光源的一部分辐射落在 F_2 心的吸收带内,即它们可以使 F_2 心由基态跃迁到第一激发态,实验证明,仅仅有长于 370 nm 的辐射是不可能使处于第一激发态上的 F_2 心跃迁到导带的,也即第一激发态与导带之间的距离大于 3.24 eV,另外,碳电弧在短于 370 nm 范围内最强的辐射是 360 nm,它属于 CN 带,这种波长的辐射能使 F_2 心从第一激发态跃迁到导带,说明第一激发态与导带的间距似乎不会大于 3.36 eV。由此,可得到 LiF 晶体中 F_2 心的基态能量的实验值上限为 $2.79+3.36=6.15$ eV,下限为 $2.79+3.24=6.03$ eV。也可能 CN 420 正好同 F_2 心的某一激发态重合,把 F_2 心激发到此激发态,然后 CN 360 把此受激的 F_2 心提升到导带,从这个过程得到的基态能量范围为 6.10~6.22 eV。也可能是 CN 390 把 F_2 心激发到某一激发态,然后 CN 360 再把受激的 F_2 心提升到导带,这个过程确定的基态能量范围为 6.31~6.43 eV。甚至也可能是 CN 360 把 F_2 心激发到某一激发态,然后 CN 360 再使之电离,这样确定的基态能量范围为 6.48~6.72 eV。

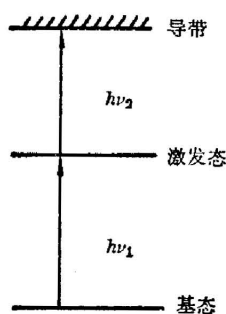


图 4 F_2 心两步电离图

Fig. 4 Two-step ionization diagram of F_2 center

总之,考虑到 CN 带的宽度, LiF 晶体的 F_2 心基态能量的实验值大约在 6.03~6.86 eV 之间。

对于 NaF 晶体进行类似的分析后,便可得到 NaF 晶体的 F_2 心基态能量的实验值大约为 4.53~6.48 eV 之间。

三、实验结果的分析

和双光子电离不同,两步电离的中间态是一个真实能级,正因为如此,两步电离的效率远远高于双光子电离,也正因为如此,就需要知道 F_2 心的能级分布,特别是应该知道它的基态能量。

对于 LiF 晶体,目前仅见到 A. Meyer 的工作^[3],其结果见表 2。表 2 中 F 心基态能量的实验值是这样得到的,实验上 F 的吸收带分布在 200~290 nm,即 F 心第一激发态与基

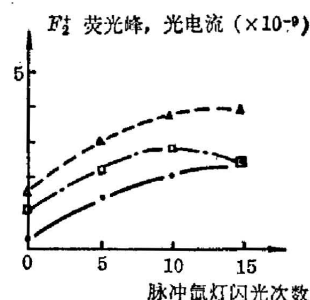


图 3 LiF 晶体中 F_2^+ 880 nm 荧光强度与脉冲氙灯闪光次数的关系

Ftg. 3 Relation between the frequency of flash of pulse Xe-lamp vs the fluorescence intensity of F_2^+ 880 nm in LiF crystal

态的间距为 4.28~6.19 eV, 当然导带与基态的间距大于 6.19 eV, 即基态能量小于 6.19 eV。

表 2 LiF 晶体中的 F 心与 F₂ 心的基态能量(eV)

Table 2 Energy of ground state of F and F₂ centers in LiF crystal

	A. Meyer ^[3]	实 验 值	理 论 值
F ₂	-11.70	-6.03~-6.86	-6.09
F	-5.75	<-6.19	-6.61

采用沉浸在均匀电介质中的氢分子模型与变分法来计算 F₂ 心的基态能量, 计算过程中所用到的模型参数—介电常数 ϵ 是通过 F 吸收带与 F₂⁺ 心的实验值的拟合得到的, 其计算结果见表 2。另外, F 心基态能量的计算也是采用沉浸在均匀电介质中的氢原子模型, 计算结果也见表 2, 从表 2 可见, 计算结果同实验值并不矛盾。计算得到 F 心基态与 F₂ 心基态几乎处于同一深度, 这是符合已有事实的。

对于 NaF 晶体, 本文提供一个简便的估算 F₂ 心基态能级的方法。因为 F 心与 F₂ 心的基态相近, 因此, 我们不去进行 F₂ 心基态能量的繁杂计算, 而去计算 F 心的基态能量, 当然这里也是采用沉浸在均匀电介质中的氢原子模型, 只需经过简单的计算, 即可得到 F 心的能级分布为

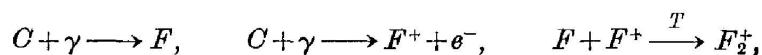
$$E_n = -\frac{me^4}{2\hbar^2 n^2 \epsilon^2} = -\frac{13.55}{n^2 \epsilon^2} \text{ eV}.$$

由此计算得 F 心的基本吸收带相当的能量为 10.16/ ϵ^2 eV。而 NaF 晶体的 F 心吸收带的实验值为 341 nm, 相当的能量值为 3.54 eV。把 F 心吸收带的计算值与实验值进行比较, 则可求出介电常数 $\epsilon^2 = 2.87^*$ 。然后把此值代入 E_n 的表达式中, 得到 NaF 晶体 F 心的基态能量为 $E_1 = -4.72$ eV, 这就是 NaF 晶体中 F₂ 心基态能量的估计值, 这个估计值同实验结果也不矛盾。

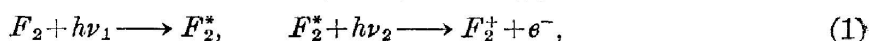
正是由于 NaF 晶体的 F 心与 F₂ 基态比较高, 其稳定性就差些, 因此, 在脉冲氙灯的直接照射下, 短波紫外光的能量不仅能够使它们电离, 而且还会使它们破裂, 使晶体漂白。

至于汞灯不引起 NaF 晶体 F₂ 心两步电离的原因是因为汞灯辐射的波长与 F₂ 心的能级跃迁不重合; 另外, 汞灯辐射的功率密度也不足以引起双光子电离, 所以, 观察不到 NaF 晶体的 F₂ 心在汞灯辐射下发生的电离现象。

从外表看, F₂⁺ 心密度与氙灯闪光次数的关系曲线(见图 3), 十分类似于 F₂⁺ 心密度与 γ 辐照时间的曲线^[1], 但它们的本质是不同的。 γ 辐照产生 F₂⁺ 心的物理过程可以写成



式中符号 C 代表晶体。光照射法产生 F₂⁺ 心的物理过程可以写成



F₂⁺ 心会衰变为其它稳定的色心, 但为了简单起见, 我们仅考虑它衰变为 F₂ 心这一逆过程

* ϵ 在这里并不是真实的介电常数, 而是一个模型参数, 它既考虑了介质的极化效应, 也包含了对模型的某些修正, 因此不能同平常的介电常数相比较。

$$F_2^+ + e^- \xrightarrow{T} F_2, \quad (2)$$

而忽略其它逆过程,这确实是一个粗糙的假设,但是对于定性地研究问题已足够。

令 n 代表脉冲氙灯的闪光次数,第 n 次闪光时 F_2^+ 心与 F_2 心的密度分别记为 $M^+(n)$ 与 $M(n)$, 于是 $M(n) + M^+(n) = M(0) = M_0$ 。粗略考虑,单次闪光下 F_2^+ 心密度的增加应正比于 F_2 心密度,同时, F_2^+ 心衰减的半衰期记为 τ' , 于是在单次闪光下, F_2^+ 心密度的净增加为

$$\frac{dM^+}{dn} = k'M - \frac{1}{\tau'} M^+. \quad (3)$$

在定性分析的条件下,可认为 k' 与 τ' 是常数。从方程(3)即可求得:第 n 次闪光时 F_2^+ 心密度为

$$M^+(n) = \frac{k'}{k' + 1/\tau'} M_0 [1 - e^{-(k' + 1/\tau')n}], \quad (4)$$

(4)式指明: F_2^+ 心密度随着闪光次数 n 的增加而逐渐增加,并且,当闪光次数 n 增加到一定程度时, F_2^+ 心密度即趋于饱和密度

$$M^+(\infty) = \frac{k'}{k' + 1/\tau'} M_0. \quad (5)$$

这样即可定性说明本文所得的实验结果(图3)。至于图3中高闪光次数时 F_2^+ 心密度的下降,可能是由于没有考虑其它逆过程的缘故。

应该指出, F_2 心光致电离为 F_2^+ 心,也存在一个饱和密度,此饱和密度正比于 F_2 心的初始密度 M_0 与电离效率 η

$$\eta = \frac{k'}{k' + 1/\tau'}. \quad (6)$$

由(6)式可见,两步电离的效率 η 取决于正过程(1)式发生的几率 k' 与逆过程(2)式发生的几率 $1/\tau'$ 。提高两步电离的效率 η 的途径是增大正过程的几率 k' , 同时减小逆过程进行的几率 $1/\tau'$ 。正过程(1)发生的几率 k' 主要决定于泵浦光束的频率与 F_2 心真实能级吻合的程度与泵浦光束的功率密度,即

$$k' \propto A_{if} \propto \left| \sum_k \left[\frac{(M_{ik} \cdot i)(M_{kf} \cdot j)}{\omega_{ik} - \omega_1 + \mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{v}} + \frac{(M_{ik} \cdot j)(M_{kf} \cdot i)}{\omega_{kf} - \omega_2 + \mathbf{k}_2 \cdot \mathbf{v}} \right] \right|^2 I_1 I_2.$$

而逆过程发生的几率 $1/\tau'$ 取决于晶体本身的质量。所以只有找到满足频率条件 $\omega_1 = \omega_{ik}$, $\omega_2 = \omega_{kf}$ 的适当功率密度的光源和具有电子陷阱(防止逆过程(2)发生)的晶体,才可能有效地提高两步电离的效率。

作者对于许政一教授的有益讨论,人工晶体所王金荣、蒋崇义工程师提供的晶体,表示谢意。

参 考 文 献

- [1] 王廷籍,张志三;《光学学报》,1982,2, No. 5 (Sep), 445.
- [2] L. F. Mollenauer; *U. S. Patent*, 1980, 4, 183, 795.
- [3] A. Meyer, R. F. Wood; *Phys. Rev.*, 1966, 133A, No. 5 (Mar), 1436.

A study for F₂ center ionized by light

WANG TINGJI AND ZHANG ZHISAN
(Institute of Physics, Academia Sinica)

(Received 6 November 1981)

Abstract

The ionization of F₂ center in LiF and NaF crystals are explored in this paper. Experiments show that F₂⁺ centers are created in LiF crystals with F₂ center when they are irradiated by Hg-lamp, pulse Xe-lamp and D. C. carbon arc. And F₂⁺ centers are created in NaF crystals with F₂ center when they are irradiated by pulse Xe-lamp and W-lamp.

The problems about the efficiency of two-step ionization are discussed in the paper. The analysis shows that the way of increasing the efficiency is: it is necessary to find lamp with adequate luminosity and adequate trap impurity for frequency condition and power density. In the paper an expression of efficiency of two-step ionization is given by $\eta = k' / (k' + 1/\tau')$.

(上接第 534 页)

- R. C. Alferness; "An overview of titanium diffused lithium niobate integrated optics devices"
- E. Wolf; "Facts and myths regarding the usefulness of the technique of phase conjugation"
- R. A. Sprague; "The total internal reflection spatial light modulator"
- B. Saleh; "Image design"
- H. Caulfield; "Optical systolic array processors and their close relatives"
- W. Rhodes; "Acousto-optic devices in numerical algebraic processing"
- J. R. Fienup; "Iterative phase retrieval"
- Yo Shiki Ichioka; "Optical logic array processor for an optical digital computer"
- P. N. Tamura; "A spatial integration method for ambiguity function processing"
- A. R. Tanguay Jr.; "Recent progress in spatial light modulators for coherent optical processing application"
- L. J. Hornbeck; "Deformable mirror displays"
- W. E. Ross; "Z-D magneto-optic spatial light modulator"
- Seiji Yonezawa; "Laser diode for the optical disk"
- C. M. Verher; "Integrated optical approaches to numerical processing"
- A. Korpel; "Phase conjugation in optics and electronics"
- U. Efron; "Advances in the CCD-liquid crystal light valve"
- H. H. Barrett; "Optical processing in radon space"
- S. K. Case; "Partitioned holographic optical elements"

会议选举 J. C. Wyant 为下届本专题讨论会的主席, 通过民主协商确定下届会议在西部加州举行。

(下转第 567 页)