УДК 535.372

КИНЕТИКА КРОССРЕЛАКСАЦИОННОГО УСИЛЕНИЯ ОПТИЧЕСКОГО ИЗЛУЧЕНИЯ

Ю. П. Тимофеев, Б. П. Кирсанов, А. В. Кравченко

Унифицированным методом фазовых траекторий и методом компьютерного эксперимента проанализирована кинетика кроссрелаксационного усиления коротких импульсов инфракрасного излучения. Показано, что наличие межионных взаимодействий может существенно повысить эффективность квантовых счетчиков инфракрасного излучения, работающих по схеме Бломбергена.

Взаимодействие редкоземельных ионов в конденсированных средах в настоящее время все чаще используется для практических целей, как в люминофорах различного назначения, так и в лазерных средах [1 – 3]. При этом особый интерес представляют кроссрелаксационные и нелинейные взаимодействия этих ионов, в результате которых может существенно изменяться не только кинетика люминесцентных и лазерных процессов, но и возникает принципиальная возможность безынверсионного усиления слабых потоков ИК излучения, в том числе его преобразования в видимый свет. В наших предыдущих работах были получены и частично проанализированы приближенные аналитические решения нелинейных кинетических уравнений, описывающих взаимодействие трехуровневых центров люминесценции как в процесах послесвечения, так и при наличии стационарного воздействия опорного и сигнального потоков ИК излучений. Основная цель данной работы – дальнейшее развитие этих исследований с использованием как приближенных аналитических методов, так и путем компьютерного эксперимента с использованием опытных данных для ионов Er^{3+}, в том числе для системы $Y_{2-x}Er_xO_2S$, представляющей интерес для кроссрелаксационного усиления оптического излучения. При этом особое внимание уделяется кинетике нового люминесцентного механизма усиления оптического излучения, не требующего инверсной заселенности рабочих уровней и процессов индуцированного излучения.

Для исследуемой трехуровневой модели излучающих ионов исходная система нелинейных кинетических уравнений при наличии опорных и сигнального потоков оптического излучений имеет вид

$$n_1' = \sigma_1(c - n_1 - n_2)I_1 - \sigma_2 I_2 n_1 - n_1/\tau_1 + n_2/\tau_2 - 2Pn_1^2 + 2\alpha Q n_2(c - n_1 - n_2), \quad (1)$$

$$n_2' = \sigma_2 I_2 n_1 - (1/\tau_1 + 1/\tau_2)n_2 + P\beta n_1^2 - Qn_2(c - n_1 - n_2). \quad (2)$$

Здесь и далее введены следующие обозначения: $n_{1,2}$ – заселенности нижнего (1) и верхнего (2) возбужденных состояний, c ($см^{-3}$) – полная концентрация рабочих ионов, $1/\tau_1, 1/\tau_2$ (c^{-1}) – концентрация внутрицентровых оптических переходов, $1/\tau_{21}$ (c^{-1}) – вероятность внутрицентровых (как оптических, так и многофононных) переходов между возбужденными уровнями, I_1 и I_2 ($квант \cdot см^{-2}c^{-1}$) – плотности потоков оптического излучения в соответствующих каналах переходов, P и Q ($см^3c^{-1}$) – соответственно коэффициенты суммирования и кроссрелаксационного размножения электронных возбуждений в результате межионных взаимодействий.

В этих уравнениях использованы также дополнительные безразмерные коэффициенты α и β, которые формально учитывают более сложную систему энергетических уровней реальных редкоземельных ионов и могут быть определены из экспериментов. Для ионов Er^{3+}, наиболее перспективных для процесса усиления в твердотельных матрицах, эти параметры имеют значения $c = 10^{22}\,см^{-3}$, $\tau_{1,2,3} = 10^{-2} - 10^{-3}\,c$, $P = 10^{-17} - 10^{-15}\,см^3c^{-1}$, $Q = 10^{-17}\,см^3c^{-1}$, а $\alpha = \beta \approx 1$. Для дальнейшего рассмотрения систему уравнений (1), (2) удобно записать в безразмерной форме

$$x_1' = k_1 - (k_1 + k_2 + \gamma_1)x_1 + (2 + \gamma_{21} - k_1)x_2 - 2x_1x_2 - 2x_2^2 - 2px_1^2, \quad (3)$$

$$x_2' = k_2x_1 - (1 + \gamma_2 + \gamma_{21})x_2 + x_1x_2 + x_2^2 + px_1^2, \quad (4)$$

где дифференцирование производится по безразмерному времени $\tau = tQc$, введены безразмерные населенности уровней $x_k = n_k/c$ и интенсивности $k_j = \gamma_j I_\sigma/Qc$. Соответствующие безразмерные вероятности будут $\gamma_{1,2} = 1/\tau_{1,2}Qc$ и $\gamma_{2,1} = 1/\tau_{2,1}Qc$, а коэффициент суммирования примет вид $p = P/Q$.

Рассмотрим наиболее важные частные случаи решений системы (3), (4). При отсутствии внешних оптических излучений ($k_1 = k_2 = 0$) наше предыдущее приближенное аналитическое решение было подтверждено с высокой точностью численными расчетами на компьютере. Основной результат этих расчетов заключается в наличии двух

существенно различающихся этапов кинетики послесвечения после выключения внешнего возбуждения:

а) первоначальная быстрая стадия послесвечения, при которой сохраняется практически постоянной величина $x = x_1 + 2x_2$ и происходит лишь перераспределение населенностей возбужденных уровней, зависящих от начальных данных заполнения;

б) медленная, квазиравновесная стадия, при которой происходит уменьшение населенностей обоих уровней, и в значительной мере стирается зависимость от начального распределения возбуждений.

Такое разбиение на две стадии послесвечения наглядно наблюдается на фазовой плоскости $\{x_1, x_2\}$. При этом первоначальный этап отображается прямой линией $x =$ const, т.е.

$$x_2 = x_0(t = 0) - 0,5x_1, \tag{5}$$

а второй квазиравновесный этап соответствует движению по дуге эллипса, асимптотически приближающейся к положению равновесия $x_2 = x_1 = 0$ [4, 5]:

$$x_2 - x_1x_2 - x_2^2 - px_1^2 = 0. \tag{6}$$

Метод фазовой плоскости оказывается полезным для анализа поведения систем и в более сложных случаях, когда $I_1, I_2 \neq 0$. В этом случае некоторые вышеизложенные особенности в той или иной мере сохраняются по крайней мере для не слишком сильных полей ($k_j \ll 1$). Так, при мгновенном возбуждении с $k_1 = k_0\sigma(t - t_0)$, $k_2 =$ const быстрый этап выходит почти по прежней прямой линии на квазиравновесный эллипс, слабо отклоняющийся от эллипса при $l_1 = l_2 = 0$. Однако характер движения по квазиравновесной кривой существенно зависит от величины k_2. При k_2 меньше порогового значения k_2^* получаем

$$k_2^* = \gamma_1(1 + \gamma_2 + \gamma_{12})/(1 - \gamma_2). \tag{7}$$

Как и при $k_1 = k_2 = 0$, движение по эллипсу идет к положению устойчивого равновесия $x_1 = x_2 = 0$. При $k_2 > k_2^*$ движение происходит по близкой кривой, но в сторону другого положения устойчивого равновесия с $x_1^* \neq 0$, $x_2^* \neq 0$; при этом в зависимости от начальной величины x движение может происходить как вверх, так и вниз по эллипсу. Особый случай получается, когда k_2 точно совпадает с k_2^*. В этой ситуации система остановится на неопределеное время в точке пересечения $x =$ const с квазиравновесной кривой. Соответствующие 3 типа поведения фазовых траекторий приведены на рис. 1.

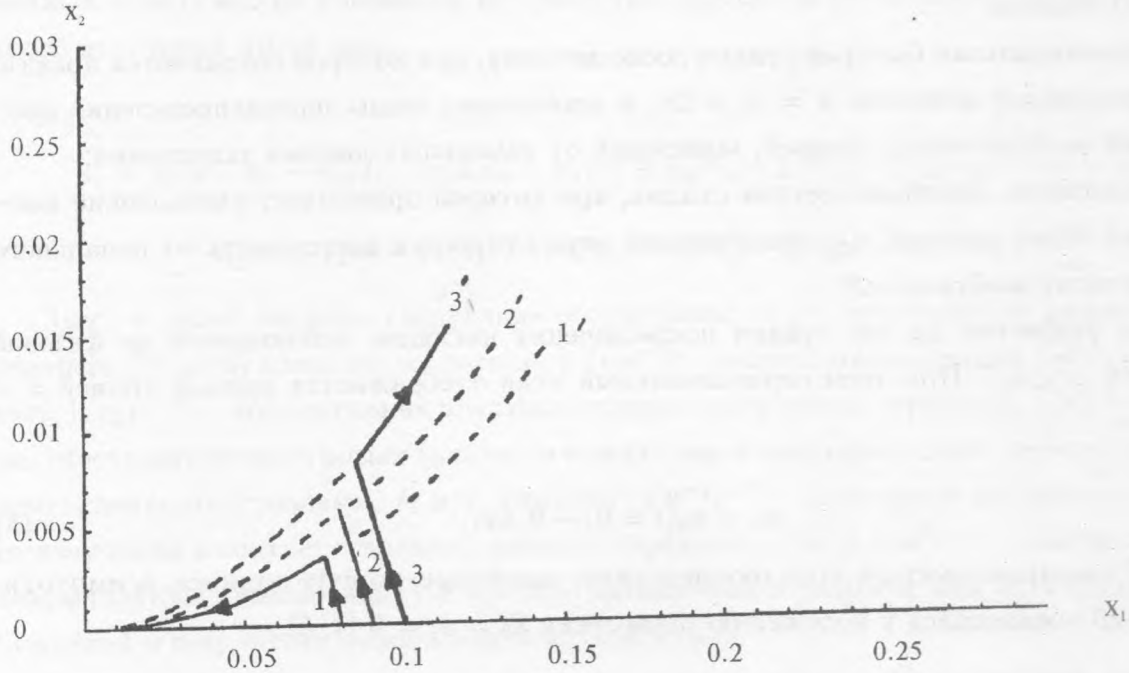

Рис. 1. *Фазовые траектории системы при различных значениях* $\Delta k = k_2 - k_2^*$: $\Delta k < 0$, *траектория* $1 - 1^*$, $\Delta k = 0$, *траектория* $2 - 2^*$, $\Delta k > 0$, *траектория* $3 - 3^*$.

Существенно различается и ход кривых послесвечения, т.е. заселенностей x_1 и x_2 в зависимости от времени для $\Delta k < 0$ и $\Delta k > 0$ (рис. 2а и 2б). Если $x_{20}(t = 0) = 0$ и $x_{10}(t = 0) \neq 0$, а $\Delta K < 0$, то первоначально происходит увеличение x_2 при слабом уменьшении x_1, а затем обе кривые более медленно релаксируют к $x_2 = x_1 = 0$ (рис. 2а). Если же $\Delta k > 0$, то при тех же начальных условиях наряду с аналогичным поведением населенностей $x_{1,2}$ в течение первоначальной быстрой стадии последующие этапы сопровождаются ростом населенностей обоих уровней.

Важно отметить, что при малых начальных значениях $x_{10}, x_{20} \ll 1$ и небольшом превышении порога $\Delta k = k_2 - k_1 \ll 1$ в уравнениях (3), (4) можно произвести линеаризацию, т.е. пренебречь членами $x_1 x_2$, x_1^2, x_2^2. Тогда, используя обычные методы решения системы двух линейных дифференциальных уравнений [6], получаем

$$x_1 = x_1(0)\{(1 - k_2 - \gamma_1 - \Delta k)e^{\Delta k \tau} + (\Delta k + k_2 + \gamma_1)e^{-\tau}\}, \tag{8}$$

$$x_2 = x_1(0)\{(1/2)(\Delta k + k_2 + \gamma_1)(e^{\Delta k \tau} - e^{-\tau}\}. \tag{9}$$

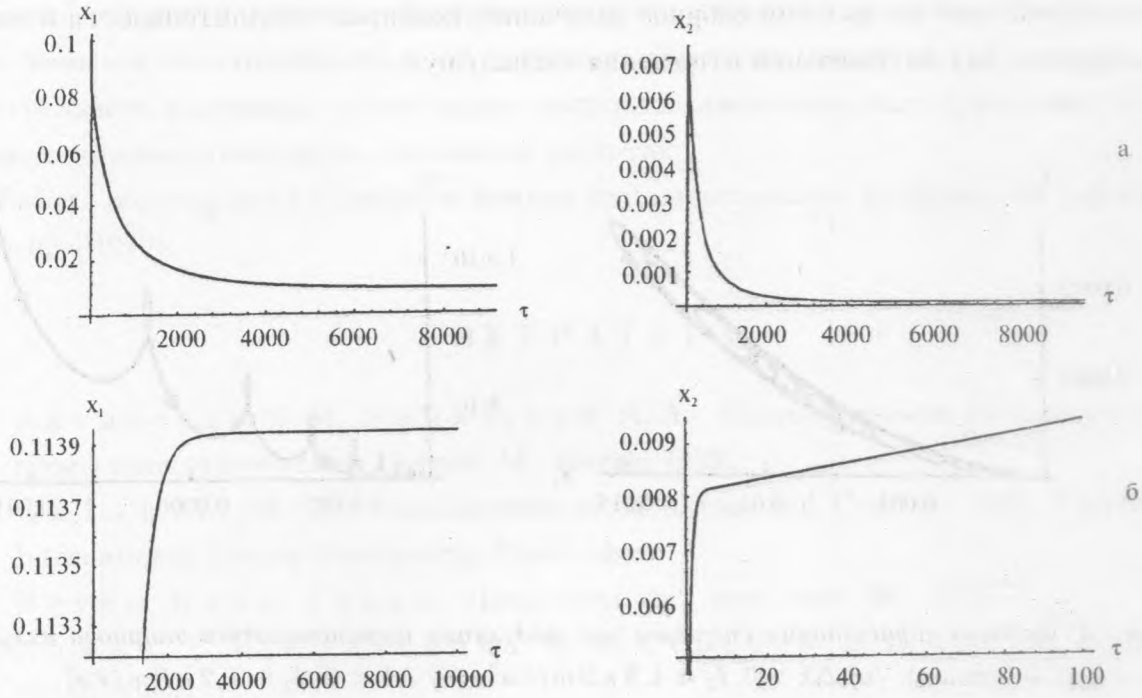

Рис. 2. *Зависимость населенностей x_1 и x_2 от времени τ: (а) $\Delta k < 0$, (б) $\Delta k > 0$. Быстрая стадия в данном масштабе проходит практически по оси ординат.*

При этом значения x_1, x_2 прямо пропорциональны величине x_{10}, т.е. первоначальной заселенности промежуточного возбужденного состояния. Это означает, что имеется возможность кроссрелаксационного усиления оптического излучения с пропорциональным счетом интенсивности сигнального излучения и его выделения на фоне шума, который всегда присутствует в реальных системах. Выражение (8) содержит быструю затухающую компоненту $e^{-\tau}$ и медленную разгорающуюся (при $\Delta k > 0$) компоненту $e^{\Delta k \tau}$. В выражении (9), которое описывает заселенность верхнего возбужденного уровня, как быстрая, так и медленная компоненты возрастают во времени. Интересно, что при $\Delta k = 0$ решения (8), (9) после быстрой стадии выходят сразу на стационарное значение. Это может послужить основой различных практических применений для создания счетчиков фотонов. Следует отметить, что линеаризованные решения (8), (9) справедливы для не слишком больших времен, для которых все еще x_1, $x_2 \ll 1$.

Отметим, что в реальных системах нерационально да и практически невозможно подавать постоянное по интенсивности опорное излучение. Значительно выгоднее пода-

вать переменное по времени опорное излучение, подбирая его длительность и частоту повторения для оптимизации отношения сигнал/шум.

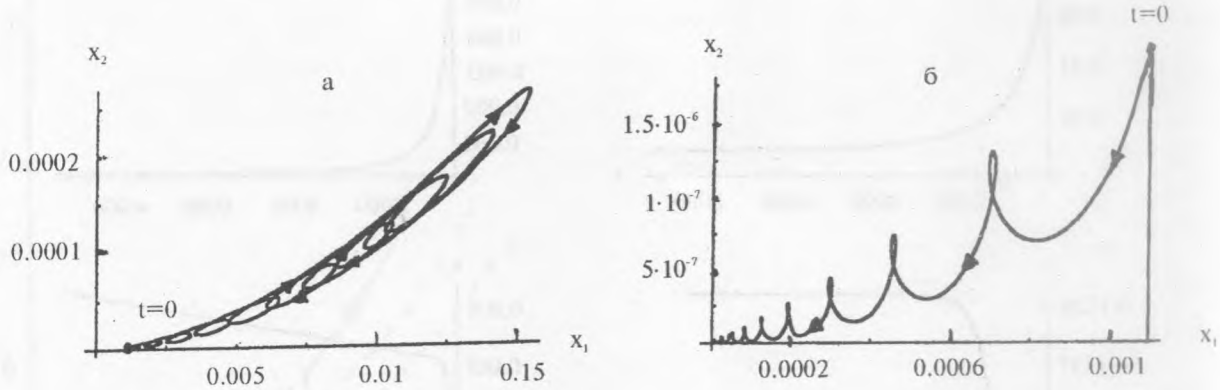

Рис. 3. *Фазовые траектории системы при модуляции интенсивности опорного излучения.* $k_2 = k_0(1 + \delta \cos \omega\tau)$, *(а)* $\Delta k > 0, I_2 \approx 4,8\,кВт/см^2$, *(б)* $\Delta k < 0$, $I_2 \approx 1,2\,кВт/см^2$.

Так, например, если опорное излучение подается в виде

$$k_2 = k_0(1 + \delta \cos \omega t),\ |\delta| \ll 1, \tag{10}$$

то в результате компьютерного эксперимента получается количественное подтверждение всех вышеуказанных качественных представлений о временной эволюции значений x_1, x_2 в зависимости от величины $\Delta k\tau$. При этом фазовые траектории имеют несколько более сложный вид. Первоначальная быстрая фаза движения не изменяется, а перемещение по квазиравновесной кривой к положению равновесия может сопровождаться возвратным петлеобразным движением. Последнее объясняется тем, что в некоторый момент времени Δk становится отрицательным. Соответствующее поведение населенности $x_2(t)$ изображено на рис. 3.

Таким образом, наличие межионных взаимодействий может существенно повысить эффективность квантовых счетчиков ИК фотонов, предложенных Бломбергеном [12]. Однако такие взаимодействия в ряде случаев приводят к возникновению лавинных процессов [10, 11], при которых наличие даже небольших шумов с течением времени приведет к значительному заселению возбужденных состояний и тем самым осложнит выделение полезного сигнала. Поэтому для нормальной работы таких кроссрелаксационных усилителей оптического излучения важен правильный выбор как максимальных

значений мощности опорного излучения, так и его временной эволюции. Наиболее перспективным в этом отношении может служить модуляция мощности как опорного, так и сигнального излучения, в том числе с использованием известных принципов гетеродинного приема сигналов на смешанных частотах.

Работа поддержана Российским фондом фундаментальных исследований (проект N 95–02–04970).

ЛИТЕРАТУРА

[1] Антипенко Б. М., Каминский А. А. Многоуровневые функциональные схемы кристаллических лазеров. М., Наука, 1989.

[2] Galanin M. D. Luminescence of Molecules and Crystals. 1996, Cambridge International Science Publisching, Cambridge.

[3] Нгуен Конг Тхань. Дисс. канд. физ.-мат. наук, М., 1990.

[4] Кожан Т. М., Кузнецова В. В., Сергеев И. И. и др. ЖПС, **61**, N 12, 89 (1994).

[5] Кирсанов Б. П., Тимофеев Ю. П. Краткие сообщения по физике ФИАН, N 11–12, 53 (1991).

[6] Кирсанов Б. П., Тимофеев Ю. П., Холодная Т. С. Краткие сообщения по физике ФИАН, N 5–6, 53 (1992).

[7] Кирсанов Б. П., Нгуен Конг Тхань, Тимофеев Ю. П. Краткие сообщения по физике ФИАН, N 11–12, 73 (1995).

[8] Тимофеев Ю. П., Кирсанов Б. П., Нгуен Конг Тхань, Дацкевич Е. И. ЖПС, **63**, N 3, 452 (1996).

[9] Андронов А. А., Витт А. А., Хайкин С. Э. Теория колебаний, М., 1981.

[10] Koch M. E., Kueng A. W., and Case W. E. Appl. Phys. Lett., **56**, 1083 (1990).

[11] Ногинов М. А., Прохоров А. М., Саркисян Г. К. и др. Письма в ЖЭТФ, **52**, 940 (1990).

[12] Абрамов А. П., Разумова И. К. Сб. Спектроскопия кристаллов. Л., Наука, 1978, с. 175.

Поступила в редакцию 15 января 1997 г.