

МЕТОД СТУПЕНЧАТОГО ВОЗБУЖДЕНИЯ ДЛЯ ИССЛЕДОВАНИЯ БЕЗЫЗЛУЧАТЕЛЬНЫХ ПЕРЕХОДОВ С НИЗКОЛЕЖАЩИХ УРОВНЕЙ ИОНОВ TR^{3+}

В. И. Жеков, А. В. Лапин, Т. М. Мурина, А. В. Попов, А. М. Прохоров

Предложен метод ступенчатого возбуждения для измерения вероятностей безызлучательных переходов с низколежащих уровней ионов TR^{3+} . Экспериментально реализовано разрешение 20 нс, что определяется длительностью зондирующих лазерных импульсов, при квантовом выходе люминесценции $10^{-5} - 10^{-6}$.

В настоящее время наиболее эффективными лазерами, работающими в среднем ИК диапазоне, являются лазеры на кристаллах, активированных ионами Er^{3+} (длина волны генерации 2,8 — 2,94 мкм, $^4I_{11/2} \rightarrow ^4I_{13/2}$) /1/. На кристалле $YLiF_4 - Dy^{3+}$ получено длинноволновое излучение $\lambda = 4,12$ мкм (переход $^6H_{11/2} \rightarrow ^6H_{13/2}$) /2/. Для осуществления эффективной генерации в длинноволновой области (3 — 4 мкм) необходимы исследования по безызлучательному внутрицентровому и ион-ионному переносу энергии возбуждения, характеристикам кристаллической матрицы (фундаментальное поглощение) и т.д. При энергетических зазорах между уровнями $\sim 2000 - 2500$ cm^{-1} квантовый выход люминесценции с возбужденных уровней редкоземельных ионов TR^{3+} составляет $10^{-3} - 10^{-6}$ /3/, поэтому исследование релаксационных процессов с таких уровней становится нетривиальной задачей /4/, особенно в инфракрасном диапазоне, когда помимо лазеров для возбуждения кристаллов для регистрации люминесценции также необходима высокочувствительная скоростная приемная аппаратура. Одним из решений этой проблемы может быть использование механизма ступенчатого поглощения нескольких ИК квантов на ионах TR^{3+} /5/. В этом случае информацию о населенности низколежащих уровней можно получать по интенсивности люминесценции с таких высоколежащих уровней, квантовый выход люминесценции с которых близок к единице, и использовать для регистрации люминесценции фотоэлектронные умножители, чувствительность которых выше по сравнению с ИК приемниками /6/. Рассмотрим ситуацию на примере иона Dy^{3+} .

Энергетическая схема уровней Dy^{3+} приведена на рис. 1. Энергетический зазор между уровнями, которые расположены не выше 12000 cm^{-1} ($^6H_{15/2}, ^6H_{13/2} \dots ^6F_{5/2}, ^6F_{3/2}$), не превышает 3000 cm^{-1} , а между уровнями $^6F_{3/2} - ^4F_{9/2}$, расположенными выше 12000 cm^{-1} , равен 7000 cm^{-1} . При небольших концентрациях Dy^{3+} квантовый выход люминесценции с уровня $^4F_{9/2}$ близок к 1. В

диапазоне длин волн $\sim 0,5$ мкм (${}^4F_{9/2} \rightarrow {}^6H_{15/2}$) люминесценцию уже можно регистрировать с помощью ФЭУ. Таким образом, если мгновенно возбудить низколежащий уровень Dy^{3+} (по терминологии Н. Бломбергена — накачивающим квантом), а затем воздействовать излучением (сигнальным квантом) с длиной волны, соответствующей резонансному переходу с возбужденного уровня на один из высоколежащих энергетических уровней Dy^{3+} (${}^4G_{11/2}$, ${}^4I_{15/2}$, ${}^4F_{9/2}$), то информацию о населенностях низколежащих уровней Dy^{3+} можно получить по интенсивности люминесценции с уровня ${}^4F_{9/2}$.

На рис. 2 представлена схема экспериментальной установки.

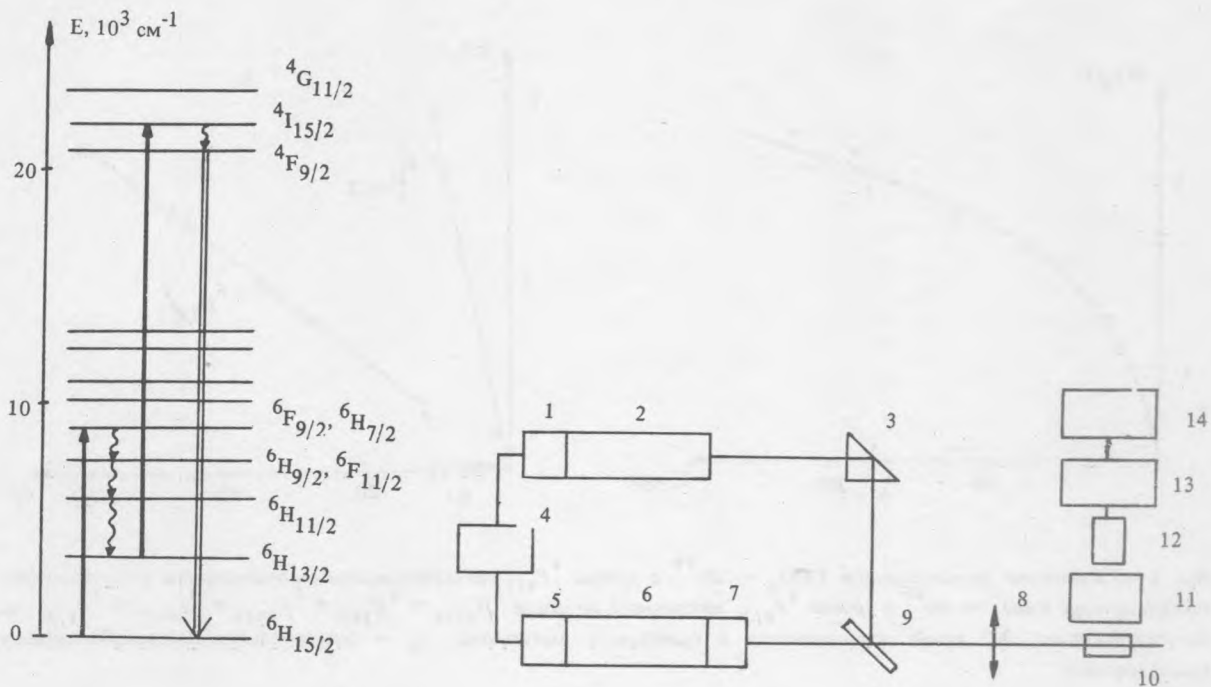


Рис. 1. Схема энергетических уровней Dy^{3+} в кристаллах $YAlO_3$.

Рис. 2. Схема экспериментальной установки: 1, 5 — оптический затвор; 2, 6 — накачивающий и сигнальный лазеры, соответственно; 3 — поворотная призма; 4 — генератор; 7 — преобразователь второй гармоники; 8 — линза; 9 — отражающая пластина; 10 — исследуемый образец; 11 — монохроматор; 12 — ФЭУ; 13 — осциллограф; 14 — ЭВМ.

Сфокусированное линзой (8) излучение от двух лазеров (накачивающего (2) и сигнального (6)), длительностью 10 нс, проходило через исследуемый образец (10). Люминесценция ионов Dy^{3+} регистрировалась с помощью ФЭУ (12) и осциллографа (13) и обрабатывалась на ЭВМ (14).

Для апробации метода проводились измерения на кристаллах $\text{YLiF}_4 - \text{Dy}^{3+}$ (5%). Исследуемый образец имел форму цилиндра. Торцы и боковая поверхность образца обрабатывались по 14 классу чистоты. Для возбуждения ионов Dy^{3+} использовались твердотельные лазеры на кристаллах $\text{YAlO}_3 - \text{Nd}^{3+}$ ($\lambda = 1,08$ мкм) и $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12} - \text{Nd}^{3+}$ ($\lambda = 0,53$ мкм). Лазеры работали в одномодовом режиме с частотой повторения 1 Гц. Измерялась интенсивность люминесценции ионов Dy^{3+} с уровней ${}^4\text{F}_{9/2}$ (${}^4\text{F}_{9/2} \rightarrow {}^6\text{H}_{15/2}$) в зависимости от времени прохождения через образец сигнального лазерного импульса с $\lambda = 0,53$ мкм относительно накачивающего с $\lambda = 1,08$ мкм. Задержка сигнального импульса осуществлялась с помощью генератора Г5-54. Пример кинетики приведен на рис. 3.

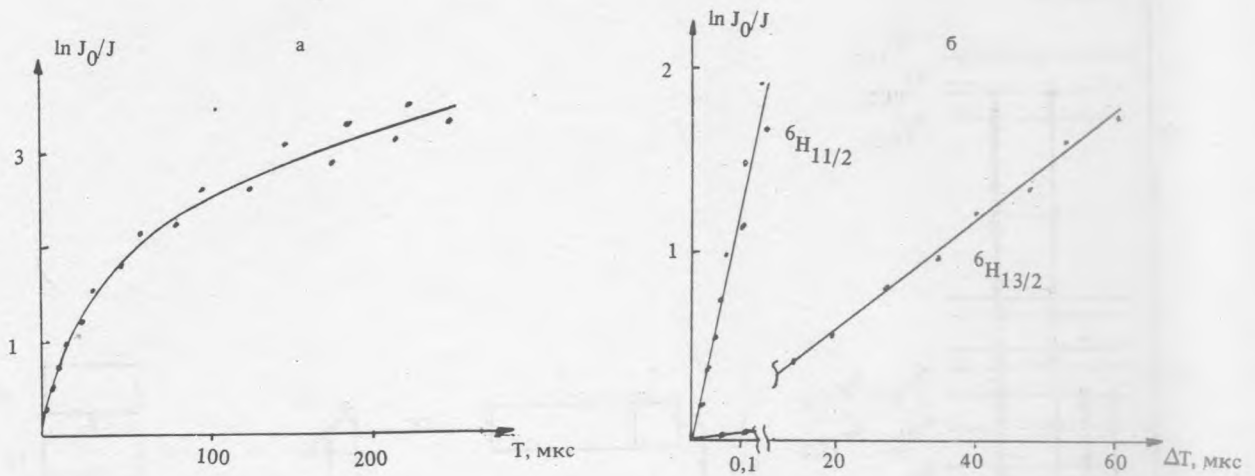


Рис. 3. а) Кинетика люминесценции $\text{YAlO}_3 - \text{Dy}^{3+}$ с уровня ${}^4\text{F}_{9/2}$; б) Зависимость интенсивности антистоксовой люминесценции $\text{YAlO}_3 - \text{Dy}^{3+}$ с уровня ${}^4\text{F}_{9/2}$, заселяемого по схеме ${}^6\text{H}_{15/2} \rightarrow {}^6\text{H}_{7/2} \rightarrow {}^6\text{H}_{13/2} \rightarrow {}^4\text{I}_{15/2} \rightarrow {}^4\text{F}_{9/2}$, от времени задержки ΔT между накачивающим и сигнальным импульсами; J_0 — максимальная амплитуда сигнала люминесценции.

Фторидные кристаллы характеризуются большим квантовым выходом с мультиплетов ионов TR^{3+} по сравнению с оксидными кристаллами. Это позволяет измерять наблюдаемые времена жизни с уровней ${}^6\text{H}_{11/2}$ и ${}^6\text{H}_{13/2}$ иона Dy^{3+} в кристаллах YLiF_4 как с помощью разработанного нами метода, так и по кинетике люминесценции непосредственно с этих уровней. Люминесценция с уровней ${}^6\text{H}_{11/2}$ и ${}^6\text{H}_{13/2}$ регистрировалась германиевым фотодиодом и фотосопротивлением PbS при возбуждении кристаллов $\text{YAlO}_3 - \text{Nd}^{3+}$ лазером. Кинетика люминесценции в обоих случаях имеет экспоненциальный характер и времена жизни уровней ${}^6\text{H}_{11/2}$ и ${}^6\text{H}_{13/2}$ иона Dy^{3+} в кристалле YLiF_4 равны соответственно $3 \pm 0,1$ и 480 ± 20 мкс.

Методом ступенчатого возбуждения также были исследованы кристаллы $Y_3Al_5O_{12} - Dy^{3+}$ (5%) и $YAlO_3 - Dy^{3+}$ (5%). Оксидные кристаллы обладают большей протяженностью фононного спектра и, следовательно, малым квантовым выходом люминесценции, когда $E < 3000 \text{ см}^{-1}$. Результаты измерений приведены в табл. 1. Там же приведены расчетные значения вероятностей многофононных внутрицентровых переходов /3, 7/, которые, как видно, существенно ниже экспериментально измеренных.

Т а б л и ц а 1

Релаксационные параметры иона Dy^{3+} в кристаллах $YLiF_4$, $YAlO_3$, $Y_3Al_5O_{12}$ при температуре 300 К

Кристалл	Уровень	Энергетический зазор E , см^{-1}	Наблюдаемое время жизни, мкс	Вероятность многофононных переходов с^{-1**}
$YLiF_4$	${}^6H_{11/2}$	2093	3	$3,3 \cdot 10^5$
	${}^6H_{13/2}$	3132	480	$2,1 \cdot 10^3$
	${}^6H_{15/2}$			
$YAlO_3$	${}^6H_{11/2}$	~ 2100	0,08	$1,25 \cdot 10^7$
	${}^6H_{13/2}$	~ 3000	35	$2,9 \cdot 10^4$ $1,3 \cdot 10^3 / 7 / **$
	${}^6H_{15/2}$			
$Y_3Al_5O_{12}$	${}^6H_{11/2}$	~ 2100	$\sim 0,02$	$5,0 \cdot 10^7$
	${}^6H_{13/2}$	~ 3000	6	$1,7 \cdot 10^5$ $1,2 \cdot 10^4 / 3 / **$
	${}^6H_{15/2}$			

* По оценкам вероятности излучательных переходов с этих уровней не превышают $100 \text{ с}^{-1} / 3 /$.

** Результаты получены при $T = 0 \text{ К}$.

В настоящее время активно ведется поиск и разработка твердотельных лазеров, работающих в среднем и дальнем ИК диапазоне. Получение генерации на ионах TR^{3+} в области 3—4 мкм предпочтительнее на переходах низколежащих энергетических уровней, так как работа лазера на переходах высоколежащих энергетических уровней связана с большими стоксовыми потерями. Предлагаемая методика расширяет возможности исследования новых активных сред.

Авторы выражают благодарность за предоставленные кристаллы К. Петросян, Х. С. Багдасарову, С. А. Смирновой.

ЛИТЕРАТУРА

1. Багдасаров Х. С. и др. XIII Международная конф. по когерент. и нелинейн. оптике, Минск, 1988. Тез. докл., ч. 2, с. 248.
2. Barnes N. P., Allen R. E. IEEE Journal of Quantum Electronics, **27**, 277 (1991).
3. Каминский А. А., Антипенко В. М. Многоуровневые функциональные схемы кристаллических лазеров., М., 1989.
4. Басиев Т. Т. и др. Квантовая электроника, **14**, 2021.(1987).
5. Blombergen N. Phys. Rev. Lett., **2**, 84 (1959).
6. Шоль Ж. и др. Приемники инфракрасного излучения. М., Мир, 1969.
7. Перлин Ю. Е. и др. ФТТ, **24**, 685 (1982).

Институт общей физики РАН

Поступила в редакцию 24 июля 1992 г.