

УДК 621.373.826.038.825.2

СПЕКТРАЛЬНО-ГЕНЕРАЦИОННЫЕ И ЛЮМИНЕСЦЕНТНЫЕ
СВОЙСТВА КРИСТАЛЛОВ $YAlO_3:Er^{3+}$

С. М. АРУТЮНЯН, Р. Б. КОСТАНИЯН, Т. В. САНАМЯН

Институт физических исследований АН Армении

(Поступила в редакцию 10 мая 1991 г.)

В статье приводятся результаты экспериментальных исследований времени жизни уровней $^2H_{11/2}$, $^4S_{3/2}$, $^4F_{9/2}$, $^4I_{11/2}$ и $^4I_{13/2}$ иона эрбия в кристалле ортоалюмината иттрия. Сравнением экспериментальных и расчетных кривых затухания возбуждения с уровня $^4I_{13/2}$ определены величины вероятностей передачи энергии.

При ламповой и лазерной накачке с длиной волны излучения 1,54 мкм получены соответственно перестраиваемая в области 2,71—2,92 мкм и на длине волны 2,79 мкм генерация.

Введение

Трехмикронные лазеры находят применение в медицине, голографии, молекулярной спектроскопии, для контроля загрязнения атмосферы [1—4]. Наилучшими энергетическими параметрами на сегодняшний день обладают кристаллы $YAG:Er$ на длине волны излучения 2,94 мкм, в которых реализуется КПД до 1,5% в режиме свободной генерации [5]. За последние несколько лет трехмикронная генерация на трехвалентных ионах эрбия с удовлетворительными параметрами получена в ряде кристаллов [6—9].

Люминесцентные характеристики $YAlO_3:Er^{3+}$

В настоящей работе приводятся результаты исследований кинетических, люминесцентных и генерационных характеристик кристаллов $YAlO_3:Er^{3+}$, о трехмикронной генерации которых впервые сообщалось в [10]. Кристаллы $YAlO_3:Er^{3+}$ по теплофизическим свойствам не уступают кристаллам $YAG:Er$. Ряд специфических свойств этих кристаллов, таких как многоволновая генерация, низкие пороги генерации и сравнительно высокий КПД [11] делают лазеры на их основе привлекательными для дальнейшего приложения в науке и технике.

Для понимания работы трехмикронного лазера на переходе $^4I_{11/2} \rightarrow ^4I_{13/2}$, а также оценки предельных лазерных характеристик этих кристаллов нами были измерены времена жизни (τ) уровней $^2H_{11/2}$, $^4S_{3/2}$, $^4F_{9/2}$, $^4I_{9/2}$, $^4I_{11/2}$ и $^4I_{13/2}$ иона эрбия в $YAlO_3$, участвующих в процессе создания инверсной населенности, в широком концентрационном диапазоне, а

также средние вероятности кросс-релаксационных переходов по схеме (рис. 1):

$$[{}^4I_{13/2}, {}^4I_{13/2}] \rightarrow [{}^4I_{9/2}, {}^4I_{13/2}]. \quad (1)$$

Источником возбуждения уровней ${}^2H_{11/2}$, ${}^4S_{3/2}$, ${}^4I_{11/2}$, ${}^4I_{13/2}$ и ${}^4F_{9/2}$, ${}^4I_{9/2}$ служил лазер на YAG:Nd с удвоением частоты на длинах волн 0,53 и 0,66 мкм и с длительностями импульсов 20 и 100 нс, соответственно. Люминесценция с исследуемых уровней наблюдалась на длинах волн 0,86 мкм (${}^4S_{3/2} \rightarrow {}^4I_{13/2}$), 0,67 мкм (${}^4F_{9/2} \rightarrow {}^4I_{13/2}$), 0,78 мкм (${}^4I_{11/2} \rightarrow {}^4I_{13/2}$), 1,02 мкм (${}^4I_{11/2} \rightarrow {}^4I_{13/2}$), и 1,65 мкм (${}^4I_{13/2} \rightarrow {}^4I_{13/2}$). Регистрация проводилась с использованием монохроматора СДЛ-1 и фотоприемников ФЭУ-83 и ФД-9Э-111.

Таблица 1

τ \ C (ат%)	1	10	15	25	100
${}^4S_{3/2}$	45 мкс	5 мкс	1.2 мкс	0.4 мкс	<0.1 мкс
${}^4F_{9/2}$	~8 мкс	~8 мкс	~8 мкс	~8 мкс	—
${}^4I_{11/2}$	1.6 мс	1.5 мс	1.3 мс	0.9 мс	—
${}^4I_{13/2}$	9.5 мс	8 мс	5 мс	1.8 мс	0.4 мс

Время жизни (τ) уровней ${}^4S_{3/2}$, ${}^4F_{9/2}$, ${}^4I_{11/2}$ и ${}^4I_{13/2}$ от концентрации ионов эрбия.

В таблице 1. приведены значения τ уровней ${}^4S_{3/2}$, ${}^4F_{9/2}$, ${}^4I_{11/2}$ и ${}^4I_{13/2}$ при концентрациях (C) ионов эрбия 1, 10, 15, 25 и 100 ат% при T=300 К. Как видно из указанных уровней ${}^4S_{3/2}$ подвержен наиболее сильному концентрационному тушению, что связано, как и в других эрбий-содержащих кристаллах, с увеличением с концентрацией вероятности кросс-релаксационных переходов по схеме:

$$[{}^2H_{11/2}, {}^4I_{13/2}] \rightarrow [{}^4I_{9/2}, {}^4I_{13/2}] \text{ и } [{}^2H_{11/2}, {}^4I_{13/2}] \rightarrow [{}^4I_{13/2}, {}^4I_{9/2}]. \quad (2)$$

Времена жизни уровней ${}^2H_{11/2}$ и ${}^4I_{9/2}$ определялись по методике, описанной в [12], их значения были меньше постоянной времени регистрации используемой аппаратуры и были меньше 0,1 и 1 мкс, соответственно. Для исследования кросс-релаксации по схеме (1) наблюдалась люминесценция на переходе (${}^4I_{13/2} \rightarrow {}^4I_{13/2}$) с длиной волны излучения $\lambda=1,65$ мкм, в оптически тонких образцах кристаллов YAlO₃:Er при различных значениях плотности возбужденных ионов. Изменение плотности возбужденных ионов эрбия осуществлялось варьированием диаметра лазерного пучка при помощи линзы или использованием набора светофильтров. Энергия лазерного излучения измерялась калориметром

ИМО-2Н. Диаметр сфокусированного на образец пучка измерялся фотографическим методом [13].

На рис. 2 приведены осциллограммы люминесценции кристаллов $YAlO_3:Er^{3+}$ (25 ат.%) с уровня ${}^4I_{11/2}$ при двух значениях концентрации возбужденных ионов эрбия (10^{19} см $^{-3}$ и $5 \cdot 10^{19}$ см $^{-3}$). О наличии эффективной передачи между ионами Ег свидетельствует разная скорость затухания люминесценции на приведенных осциллограммах, что особенно ясно видно на начальном участке кривой затухания. Об этом свидетельствует также наблюдаемое в эксперименте увеличение эффективного времени жизни уровня ${}^4I_{11/2}$.

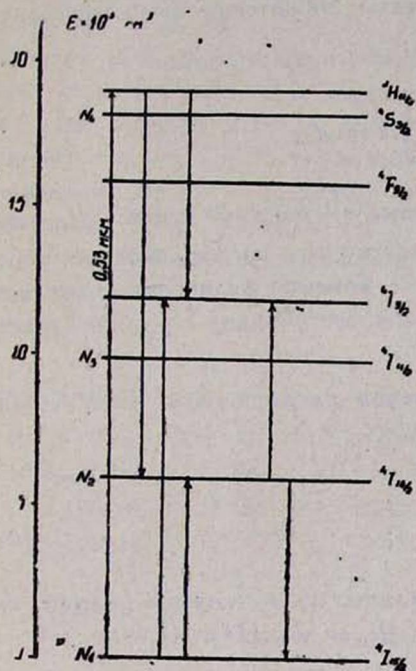


Рис. 1.

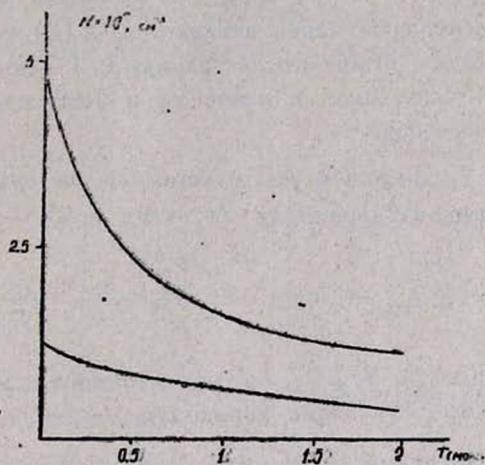


Рис. 2.

Рис. 1. Диаграмма энергетических уровней ионов Er^{3+} в $YAlO_3$.

Рис. 2. Осциллограмма люминесценции с уровня ${}^4I_{11/2}$ ионов Er^{3+} при значениях числа возбужденных ионов, равных $5 \cdot 10^{19}$ и 10^{19} см $^{-3}$.

Кинетические уравнения, описывающие изменения населенностей лазерных уровней ${}^4I_{11/2}$ и ${}^4I_{13/2}$, при условиях $\tau({}^2H_{11/2})$, $\tau({}^4I_{13/2})$ и $\tau_B \ll \tau({}^4I_{11/2})$ и $\tau({}^4I_{13/2})$, где τ_B — длительность импульса возбуждения, можно записать в виде:

$$\begin{aligned} \dot{N}_3 &= W \cdot N_2^2 - N_3 \cdot A_{31} - N_3 \cdot W_3, \\ \dot{N}_2 &= W_3 \cdot N_3 + N_3 \cdot A_{32} - 2 \cdot W \cdot N_2^2 - N_2 / \tau_{22}. \end{aligned} \quad (3)$$

С начальным условием $N_3(0) = N_2(0) = N_n$, где $N_3(0)$ и $N_2(0)$ — число возбужденных ионов эрбия на уровнях $^4I_{11/2}$ и $^4I_{13/2}$ к моменту завершения импульса накачки, N_n — число поглощенных кристаллом квантов излучения. Величины $N_3(0)$ и $N_2(0)$ определялись по известным значениям коэффициента поглощения кристаллов $YAlO_3:Er^{+3}$ на $\lambda = 0,53 \text{ мкм}$ (k), энергии лазерного излучения и площади сфокусированного на кристалле лазерного луча — S по выражению для оптически тонких образцов

$$N_{30} - N_{20} = \frac{N_n \cdot k}{S},$$

N_n — число квантов накачки. Коэффициенты Эйнштейна были определены экспериментально по формуле Кравца:

$$A_{31} = \frac{8\pi n_\lambda c (2 \cdot J' + 1)}{N_0 \cdot \lambda^4 (2 \cdot J + 1)} \int k(\lambda) d\lambda,$$

где n_λ — коэффициент преломления среды, c — скорость света, N_0 — концентрация ионов активатора, $k(\lambda)$ — коэффициент поглощения для перехода с основного состояния, J, J' — полные моменты количества движения $4f$ -электронов в основном и возбужденном состояниях, λ — длина волны перехода.

Значение A_{32} измерялось из сравнения интенсивности люминесценции на переходах $^4I_{11/2} \rightarrow ^4I_{13/2}$ и $^4I_{11/2} \rightarrow ^4I_{15/2}$,

$$A_{32} = A_{31} \cdot \frac{J_2}{J_1} \cdot \frac{\lambda_2}{\lambda_1},$$

где J_1, J_2 и λ_1, λ_2 — интенсивности и длины волн люминесценции, соответствующие переходам $^4I_{11/2} \rightarrow ^4I_{13/2}$ и $^4I_{11/2} \rightarrow ^4I_{15/2}$ [14].

Величина W_3 определялась из выражения $\tau(^4I_{11/2}) = \frac{1}{W_3 + A_{31} + A_{32}}$ по известным $\tau(^4I_{11/2})$, A_{31} и A_{32} .

Уравнения (3) решались численным методом Рунге-Кутты при помощи ЭВМ. Значения W определялись сравнением экспериментальных кривых затухания люминесценции с расчетной зависимостью числа возбужденных ионов эрбия от времени на уровне $^4I_{11/2}$ с учетом соотношения $I_2(t) = k \cdot n_2(t)$, где $I_2(t)$ — интенсивность люминесценции, k — коэффициент пропорциональности. Наилучшее совпадение было получено для значения W , равных $0,75 \times$, $2,5 \times$ и $5 \times 10^{-17} \text{ см}^3 \text{ сек}^{-1}$ для концентрации ионов Er — 10, 15 и 25 ат%.

Для характерного числа возбужденных ионов Er при работе эрбиевого лазера в режиме свободной генерации в кристаллах $YAlO_3:Er$ (25 ат%) $5 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-3}$ вероятность переходов (W_n) благодаря кросс-релаксации (1) становится равным $W_n = W \cdot N_2 \sim 2,5 \cdot 10^3 \text{ сек}^{-1}$, величина которого

на порядок превосходит значение вероятности спонтанных переходов с уровня $^4I_{13/2}$, равное $2,5 \cdot 10^2 \text{ сек}^{-1}$.

Величина квантового выхода люминесценции с верхнего лазерного уровня $^4I_{13/2}$ $\eta = \frac{A_{31} + A_{32}}{A_{31} + A_{32} + W_3}$ оказалась равной 0,21, которая в 14 раз превосходит η для YAG:Er кристаллов.

Спектрально-генерационные характеристики кристаллов $\text{YAlO}_3:\text{Er}^{3+}$

Для спектрально-генерационных исследований были выращены кристаллы $\text{YAlO}_3:\text{Er}^{3+}$ вдоль кристаллической оси [114] с концентрациями ионов эрбия 10, 15 и 25 ат% размерами $\varnothing 5 \times 80 \text{ мм}$. Спектр генерации изучался при помощи монохроматора СДЛ-1, энергия измерялась калориметром ИМО-2Н. Для перестройки длины волны генерации в пределах длин волн от 2,7—2,9 мкм в оптический резонатор вводилась сапфировая призма с брестеровскими торцами. Спектральное разрешение в указанной области составляло величину ~ 400 . Выделялись спектральные линии 2,71, 2,73, 2,76, 2,79, 2,82, 2,84, 2,86 и 2,92 мкм.

Основные параметры перестраиваемого трехмикронного лазера приведены в таблице 2.

Таблица 2

λ_r (мкм)	2.71	2.73	2.76	2.79	2.82	2.84	2.86	2.92
$E_{\text{пор}}$ (Дж)	27	31	36	46	52	84	112	114
$E_{\text{ген}}$ (Дж)	0.15	0.15	0.4	0.25	0.25	0.2	0.15	0.05
$(E_n = 400 \text{ Дж})$								

Спектрально-генерационные характеристик кристаллов

Линия 2,92 мкм, отсутствующая в спектре свободной генерации, наблюдалась только при подавлении остальных спектральных компонент.

Тенденции к насыщению выходной энергии генерации при энергиях накачки до 500 Дж не наблюдалось.

Эффективная «кросс-релаксация» по схеме (2) позволила наблюдать трехмикронную генерацию при возбуждении ее с нижнего лазерного уровня $^4I_{13/2}$, который накачивался излучением лазера на эрбиевом стекле с длиной волны излучения $\lambda = 1,54 \text{ мкм}$. При поперечной накачке с энергией до 20 Дж/см² с использованием цилиндрической линзы с фокусным расстоянием 15 см, генерация наблюдалась только на кристаллах с 25-процентным содержанием ионов эрбия. В кристаллах $\text{YAlO}_3:\text{Er}^{3+}$ (25 ат%) порог генерации равнялся 10 Дж/см², генерация наблюдалась на длине волны 2,79 мкм.

1. Прохоров А. М. Физика—медицине, Вестник АН СССР. 1981, в. 7, с. 121—130.
2. Гнатюк Л. Н., Гурари М. П. и др. Квантовая электроника. 5, 164 (1978).
3. Лазерная спектроскопия атомов и молекул. Под ред. Вальтера Г. Мир. М., 1979, 432 с.
4. Лазерный контроль атмосферы. Под ред. Финкли Э. Д. Мир. М., 1979, 416 с.
5. Жеков В. И. и др. Квантовая электроника. 10, 1871 (1983).
6. Каминский А. А. ДАН СССР, 290, 1103, (1986).
7. Воронько Ю. К., Гессен С. Б., и др. Квантовая электроника. 16, 1785 (1989).
8. Александров В. И., Вишняков М. А. и др. Квантовая электроника, 16, 2421 (1989).
9. Еськов Н. А., Кулевский Л. А. и др. Квантовая электроника. 17, 865 (1990).
10. Каминский А. А., Бутаева Т. И. и др. Письма в ЖТФ. 2, 787 (1976).
11. Арутюнян С. М., Костанян Р. Б. и др. Квантовая электроника. 14, 1592 (1987).
12. Костанян Р. Б., Саманян Т. В. ДАН АрмССР. 81, 128 (1985).
13. Хирд Г. Измерение лазерных параметров, Мир. М., 1970, 540 с.
14. Багдасаров Х. С., Жеков В. И. и др. Изв. АН СССР, 48, 1496 (1982).

**YAlO₃:Er³⁺ բնութեւննրի սպեկտրալ, ԼԱԶԵՐԱՅԻՆ եւ
ԼՅՈՒՄԻՆԵՍԿԵՆՏԱՅԻՆ ՀԱՏՎՈՒԹՅՈՒՆՆԵՐԸ**

Ս. Մ. ՀԱՐՈՒԹՅՈՒՆՅԱՆ, Ռ. Բ., ԿՈՍՏԱՆՅԱՆ, Տ. Վ. ՍԱՆԱՄՅԱՆ

Աշխատանքում բերված են խորիմի օրթոալումինատում էրբիումի իոնների ${}^2H_{11/2}$, ${}^4S_{3/2}$, ${}^4F_{9/2}$, ${}^4I_{11/2}$ և ${}^4I_{13/2}$ մակարդակների կյանքի տեվողության փորձական հետազոտության արդյունքները: Գրված ${}^4I_{13/2}$ մակարդակի ռելաքսացիայի փորձական և հաշվարկային կորերի համեմատությունից գտնված են էներգիայի փոխանցման հավանականության արժեքները: Լամպային և 1,54 մկմ լազերային մղման աղբյուրների օգտագործմամբ համապատասխանաբար ստացված են 2,71—2,92 մկմ տիրույթում վերալարվող և 2, 79 մկմ ալիքի երկարության լազերային ճառագայթում:

**SPECTRAL, LUMINESCENCE AND LASER PROPERTIES
OF YAlO₃:Er³⁺ CRYSTALS**

S. M. HARUTYUNYAN, R. B. KOSTANYAN, T. V. SANAMYAN

Results of experimental investigations of the lifetime of ${}^2H_{11/2}$, ${}^4S_{3/2}$, ${}^4F_{9/2}$, ${}^4I_{11/2}$, and ${}^4I_{13/2}$ erbium ion levels in yttrium orthoaluminates are given. From the comparison of experimental and calculated curves of excited ${}^4I_{13/2}$ level relaxation, the values of energy transfer probabilities have been defined.

Using a lamp and 1.54 μm pump sources we have respectively obtained an emission tunable in 2.71—2.92 μm range and 2.79 μm .