УДК 535.343.1

ВЛИЯНИЕ ПЛЕНЕНИЯ ИЗЛУЧЕНИЯ НА ХАРАКТЕРИСТИКИ ИК ЛЮМИНЕСЦЕНЦИИ КРИСТАЛЛА YAG:Er³⁺

В.Г. БАБАДЖАНЯН, Р.Б. КОСТАНЯН, П.Г. МУЖИКЯН^{*}

Институт физических исследований НАН Армении, Аштарак, Армения

*e-mail: pmuzhikyan@gmail.com

(Поступила в редакцию 23 июля 2014 г.)

Приведены результаты спектральных и кинетических исследований параметров люминесценции в области длин волн вблизи 1500 нм в кристалле YAG:Er³⁺ при лазерном возбуждении на длине волны 970 нм. Выявлено существенное влияние эффекта пленения излучения на кинетику затухания люминесценции на переходе ${}^{4}I_{13/2} \rightarrow {}^{4}I_{15/2}$ ионов Er³⁺. С применением техники диафрагм с отверстиями малых диаметров, устанавливаемых непосредственно перед образцами, исследованы зависимости времени затухания регистрируемой люминесценции от доли плененного излучения. В качестве времени жизни первого возбужденного уровня ${}^{4}I_{13/2}$ ионов Er³⁺ в данном кристалле принято значение времени распада люминесценции с него при регистрации диафрагмой с диаметром отверстия 100 мкм. При тех же условиях зарегистрирован спектр люминесценции исследуемого материала, представляющий интерес для получения генерации в области длин волн вблизи 1500 нм, широко востребованной в системах оптической связи.

1. Введение

Эффект пленения излучения обусловлен безызлучательными и радиационными процессами переноса энергии возбуждения. Безызлучательные процессы переноса энергии возбуждения носят локальный характер и эффективны при малых расстояниях между взаимодействующими примесными ионами в кристаллах (порядка нескольких нанометров), т.е. имеют место при довольно высоких концентрациях активирующих примесей и зависят от плотности мощности оптического возбуждения. Процессы радиационного пленения излучения (РПИ) обусловлены многократными актами поглощения и последующего переизлучения атомами или ионами среды фотонов с одной и той же частотой [1-4]. В различных средах РПИ исследуется на протяжении длительного времени ввиду его существенного (а, в определенных случаях, и доминирующего) влияния на измеряемые величины таких спектроскопических характеристик материалов, как времена жизни энергетических уровней, вероятности спонтанных и вынужденных переходов, коэффициенты ветвлений люминесценции, квантовые выходы излучения и т.п. [1-13]. Эффект РПИ может привести к увеличению длительности люминесценции соответствующего перехода относительно времени жизни возбужденного уровня и к спектральному перераспределению интенсивности люминесценции.

Определяющим фактором проявления РПИ при регистрации люминесценции исследуемого образца является отношение вкладов в регистрируемые сигналы от областей, непосредственно возбуждаемых излучением накачки и возбуждаемых посредством радиационного переноса излучения. Таким образом, одной из основных характеристик РПИ служит среднее число актов поглощения–переизлучения фотона $\gamma(L)$ в ходе его миграции внутри исследуемой среды на расстояние L, пропорционально которому и увеличивается эффективная длительность люминесценции на соответствующем переходе. В литературе имеется много работ, посвященных исследованиям процессов увеличения времени распада люминесценции в различных активированных материалах, а также по моделированию и разработке методов подавления вклада РПИ в кинетику люминесцентных сигналов. Известно, что эффект РПИ особенно существенен при исследовании переходов в активированных материалах, для которых имеет место существенное перекрытие спектров излучения и поглощения. Такая ситуация часто имеет место при определении параметров излучения примесных трехвалентных редкоземельных ионов (РЗ³⁺) в различных матрицах, где соответствующие переходы происходят между возбужденным и основным энергетическими состояниями примеси в данном кристалле. Поэтому в литературе особенно много работ, посвященных исследованиям эффекта РПИ для различных твердых тел, активированных ионами Er³⁺ и Yb³⁺, для определения параметров и условий их работы в качестве активной среды лазеров, работающих по трехуровневой или квазитрехуровневой схеме генерации [4-14].

Одной из наиболее широко используемых активных сред лазеров для систем волоконно-оптической связи в ближней ИК области длин волн является иттрий-алюминиевый гранат с примесью ионов Er^{3+} (YAG: Er^{3+}), исследованиям которого посвящено много публикаций [15-19]. Однако, насколько нам известно, данные по изучению РПИ в монокристалле YAG: Er^{3+} отсутствуют, за исключением работы [7]. Полученные в настоящей работе результаты представляются особенно ценными при определении лазерных возможностей кристаллов YAG: Er^{3+} и выявлении оптимальных условий их работы.

Целью настоящей работы является выяснение степени влияния эффекта РПИ на длительность люминесцемции с возбужденного уровня ${}^{4}I_{13/2}$ иона Er^{3+} в кристалле YAG: Er^{3+} , на спектральную форму полосы люминесценции, соответствующей переходу между первым возбужденным и основным мультиплетами (переход ${}^{4}I_{13/2} \rightarrow {}^{4}I_{15/2}$) ионов Er^{3+} , и определение значения времени жизни уровня ${}^{4}I_{13/2}$ с учетом процессов РПИ. Спектральные и кинетические характеристики люминесценции исследовались в области длин волн вблизи 1500 нм (переход ${}^{4}I_{13/2} \rightarrow {}^{4}I_{15/2}$) при возбуждении непрерывным и импульсным излучениями лазера на длине волны 970 нм.

В работе применялась известная техника малых диафрагм, устанавливаемых перед исследуемыми образцами. Как свидетельствуют результаты многочисленных исследований, применение этого подхода позволяет в регистрируемых сигналах выделять вклады люминесценции из непосредственно возбужденных объемов образцов, существенно подавляя вклады от областей, возбуждаемых посредством радиационного переноса излучения из-за многократных актов перепоглощения и переизлучения фотонов той же частоты [4,5,8,11-14].

Так как в наших исследованиях из однородной апертуры возбуждающего пучка (диаметром ~3 мм) диафрагмами различных диаметров вырезаются малые части лазерного пучка, то плотность мощности возбуждения в кристалле остается неизменной, поэтому влиянием безызлучательных процессов переноса на изменения люминесцентных параметров кристалла в зависимости от диаметра диафрагмы можно пренебречь.

2. Экспериментальная техника

Исследования проводились на полированных плоскопараллельных пластинах кристалла YAG:Er³⁺ с размерами 10х8х2 мм³. Содержание ионов Er³⁺ в исследуемых образцах, определенное с помощью микроанализатора INCA Energy 300, составляло около 5 ат%.

Спектры поглощения кристалла в ИК области длин волн от 900 до 1700 нм регистрировались на спектрофотометрах Specord M-40 и СФ-256 при комнатной температуре. Люминесцентные исследования проводились на экспериментальной установке, схема которой приведена на рис.1. Для оптического возбуждения образцов использовались непрерывное или импульсное излучения GaAs диодного лазера (3). Блоки питания (1) и (2), соответствующие непрерывному и импульсному излучениям лазерного диода, обеспечивали следующие выходные параметры лазера: длина волны генерации 970 нм, длительность импульсов от ~500 мкс до ~2000 мкс с частотой повторения 9 Гц (управлялась с помощью генератора импульсов (16) марки Г5-63), выходная мощность в непрерывном режиме до 1 Вт. Возбуждающее излучение посредством фокусирующей линзы (4) направлялось на исследуемые образцы (7). Тонкая стеклянная делительная пластина (5) отводила часть возбуждения на приемник (6), который при спектральных измерениях служил для контроля интенсивности накачки, а при кинетических исследованиях выдавал запускающий импульс на вход четырехканального запоминающего цифрового осциллографа RIGOL DS1204B (14). Возбуждение фокусировалось на переднюю грань исследуемого образца, с которой излучение люминесценции через соответствующее отверстие диафрагмы (8) посредством коллимирующей линзы (9) собиралось на входную щель дифракционного монохроматора МДР-3 (11). Диафрагма представляла собой тонкую (~200 мкм) зачерненную алюминиевую пластину, на которой посредством лазерного сверления создан последовательный ряд круглых отверстий с диаметрами 10, 20, 50, 100, 200, 350, 500, 800 и 1000 мкм.

К облучаемой стороне образца плотно прилегала диафрагма, через соот-



Рис.1. Схема экспериментальной установки.

ветствующее отверстие которой осуществлялись как лазерное возбуждение, так и регистрация излучения, т.е. люминесцентный сигнал брался через отверстие диафрагмы с передней стороны возбуждаемого образца. Перед входной щелью монохроматора устанавливался широкополосный фильтр из тонкой (~200 мкм) кремниевой пластины (10). Этот фильтр позволял отсекать мощное излучение возбуждающего лазера на входе монохроматора, а также подавлять всевозможные наложения на регистрируемые сигналы от высших порядков дифракций видимой люминесценции исследуемых кристаллов.

Изучение кинетики люминесценции проводилось на длине волны 1530 нм, соответствующей пику полосы люминесценции на переходе ${}^{4}I_{13/2} \rightarrow {}^{4}I_{15/2}$ ионов Er^{3+} в кристаллах YAG: Er^{3+} . Высокоскоростной InGaAs фотодиод (12), установленный у выходной щели монохроматора, служил для регистрации кинетики люминесценции. Электрический сигнал с него подавался на второй вход осциллографа (14) и после оцифровки передавался на персональный компьютер (17) для последующей математической обработки соответствующими программными пакетами Origin-8 и Mathematica-8.

Для регистрации спектра люминесценции использовалась специальная карта сбора данных марки NI DAQ 6229 (15). Управление всем комплексом осуществлялось посредством специального программного продукта, составленного нами на языке виртуальных приборов LabView-8. Персональный компьютер (17) через аналоговые и цифровые входы–выходы DAQ карты проводил контроль этих процессов, а также запись спектров люминесценции в нужном диапазоне длин волн, задавая посредством шагового двигателя (13) необходимые параметры сканирования (шаг, скорость, число повторных измерений в данной точке и т.п.). Все измерения проводились при комнатной температуре.

3. Результаты и обсуждение

На рис.2 приведены нормированные спектры поглощения (пунктирная линия) и люминесценции (сплошная линия) кристалла на переходе ${}^{4}I_{13/2} \leftrightarrow {}^{4}I_{15/2}$ ионов Er³⁺ при возбуждении непрерывным лазером с длиной волны 970 нм. Видно, что в спектральной области от 1450 до 1550 нм имеет место существенное перекрытие этих спектров, что должно сопровождаться наличием эффекта РПИ в этой области длин волн. Приведенный на рис.2 спектр люминесценции соответствует регистрации с помощью диафрагмы с диаметром отверстия 100 мкм.



Рис.2. Нормированные спектры поглощения (пунктирная кривая) и люминесценции (сплошная кривая) исследуемого кристалла при комнатной температуре на переходе ${}^{4}I_{13/2} \leftrightarrow {}^{4}I_{15/2}$ иона Er³⁺.

Из теоретических моделей, описывающих эффект РПИ в примесных кристаллах, следует [4,5,8-14], что увеличение времени распада излучения с возбужденного уровня примесного иона зависит от соотношения доли люминесценции из областей исследуемого образца, возбуждаемых непосредственно лазерным излучением (область В, рис.3) и возбуждаемых посредством радиационного переноса излучения (область С, рис.3).

Часть излучения *f*, которая подвергается пленению внутри образца, можно определить с помощью формулы [14]

$$f = \frac{1}{\eta} \left(1 - \frac{\tau}{\tau^*} \right), \tag{1}$$

где τ и τ^{*} – время жизни уровня и измеренная длительность люминесценции перехода, соответственно, η – квантовый выход излучения с этого уровня.

Результаты кинетических измерений затухания люминесценции исследуемого образца вблизи длины волны 1530 нм при возбуждении 500 мкс импульсами на длине волны 970 нм, а также рассчитанные с помощью формулы (1) значения части РПИ в образце в зависимости от диаметра отверстия диа-



Рис.3. Упрощенная схема возбуждения и регистрации исследуемого образца. А – область образца, непосредственно возбуждаемая лазером; В – регистрируемая область, непосредственно облучаемая лазером; С – регистрируемая область, возбуждаемая посредством радиационного переноса возбуждения лазера.

фрагмы приведены в табл.1. В этих расчетах для квантового выхода излучения η с уровня ${}^{4}I_{13/2}$ в нашем образце взято значение 0.95 [17]. Из таблицы ясно видно проявление эффекта РПИ, приводящее к увеличению времени затухания люминесценции с возбужденного мультиплета ${}^{4}I_{13/2}$ примерно на 16%.

Диаметр отверстия диафрагмы, мкм	Измеренное время жизни т [*] , мкс	Плененная часть излучения <i>f</i> , %
100	4950	~0
200	5350	~8
350	5530	~11
500	5750	~15
800	5790	~15
1000	5830	~16

Табл.1. Время затухания люминесценции кристалла YAG:Er³⁺ на длине волны 1530 нм и значения части РПИ в зависимости от диаметра отверстия диафрагмы.

Отметим, что хотя в нашем распоряжении были диафрагмы с диаметрами отверстий меньшими, чем 100 мкм (10, 20 и 50 мкм), однако регистрируемые сигналы были чрезвычайно слабыми и не поддавались последующей обработке. В литературе [12-14] в качестве времени жизни возбужденного мультиплета принято брать значение, получаемое при линейной экстраполяции зависимости времени затухания люминесценции от диаметра диафрагмы, т.е. предельное значение при нулевой диафрагме. В нашем случае такая процедура дает значение ~5120 мкс, которое с хорошей точностью (~4%) совпадает со значением, измеренным с диафрагмой 100 мкм и составляющим 4950 мкс (табл.1). Кроме того, мы полагаем, что приведенный на рис.2 спектр люминесценции, зарегистрированный с той же диафрагмой, подвержен минимальному влиянию РПИ.

4. Заключение

Определено время жизни верхнего лазерного уровня ${}^{4}I_{13/2}$ ионов Er^{3+} и оценены части излучения, подверженные эффекту РПИ при различных условиях. С той же диафрагмой, обеспечивающей измерение времени жизни уровня ${}^{4}I_{13/2}$, зарегистрирован спектр люминесценции на переходе ${}^{4}I_{13/2} \rightarrow {}^{4}I_{15/2}$ ионов Er^{3+} в монокристаллах иттрий-алюминиевого граната. Показано, что даже при таких умеренных концентрациях примесных ионов в исследуемых материалах, как в наших образцах, влияние эффекта РПИ на выходные параметры излучения весьма существенное, и игнорирование эффекта может привести к ошиб-кам при оценке перспективности исследуемого материала для различных приложений.

Авторы выражают благодарность проф. А.Г. Петросяну за предоставление кристаллов. Исследование выполнено при финансовой поддержке ГКН МОН РА в рамках научного проекта № SCS 13-1C269.

ЛИТЕРАТУРА

- 1. **Л.М. Биберман.** ЖЭТФ, **17**, 416 (1947).
- 2. T. Holstein. Phys. Rev., 72, 1212 (1947).
- 3. T. Holstein. Phys. Rev., 83, 1159 (1951).
- 4. A. Li, Z. Zheng, Q. Lu, et al. Opt. Lett., 36, 1056 (2011).
- 5. S. Guy. Phys. Rev. B, 73, 144101 (2006).
- 6. D.S. Sumida, T. Fan. Opt. Lett., 19, 1343 (1994).
- 7. M. Eichhorn. Appl. Phys. B, 96, 369 (2009).
- 8. P.R. Ehrmann, J.H. Campbell. J. Am. Ceram. Soc., 85, 1061 (2002).
- 9. G. Toci. Appl. Phys. B, 106, 63 (2012).
- 10. G. Toci, D. Alderighi, A. Pirri, M. Vannini. Appl. Phys. B, 106, 73 (2012).
- 11. D. Zhang, E.Y.B. Pun. J. Appl. Phys., 94, 1339 (2003).
- 12. H. Kühn, S.T. Fredrich-Thornton, C. Kränkel, et al. Opt. Lett., 32, 1908 (2007).
- 13. A. Stoita, S. Guy, B. Jacquier. Appl. Phys. B, 87, 445 (2007).
- 14. A. Stoita, T. Vautey, B. Jacquier, S. Guy. J. Lumin., 130, 1119 (2010).
- 15. G.W. Burdick, J.B. Gruber, K.L. Nash, et al. Spectroscopy Lett., 43, 406 (2012).
- 16. М.А. Андриасян, Н.В. Варданян, Р.Б. Костанян, Квантовая электроника, 3, 604, (1982).
- 17. **Т.И. Мурина**, Лазер на кристаллах иттрий-эрбий-алюминиевого граната. Труды ФИАН, **19**, 4 (1989).
- 18. M. Eichhorn, S.T. Fredrich-Thornton, et al. Appl. Phys. B, 91, 249 (2008).
- P.H. Muzhikyan, V.G. Babajanyan, R.B. Kostanyan, A.G. Petrosyan. Proc. SPIE. 8621, 86210A-1 (2013).

«ՀԱՌԱԳԱՅԹՄԱՆ ԳԵՐՄԱՆ ԵՐԵՎՈՒՅԹԻ ԱՉԴԵՑՈՒԹՅՈՒՆԸ YAG:Er³⁺ ԲՅՈՒՐԵՂԻ ԻՆՖՐԱԿԱՐՄԻՐ ԼՅՈՒՄԻՆԵՍՑԵՆՑԻԱՅԻ ԲՆՈՒԹԱԳՐԵՐԻ ՎՐԱ

Վ.Գ. ԲԱԲԱՋԱՆՅԱՆ, Ռ.Բ. ԿՈՍՏԱՆՅԱՆ, Պ.Հ. ՄՈՒԺԻԿՅԱՆ

են 1500 նմ այիքի երկարության տիրույթի Ներկայազված մոտակայքում լյումինեսցենտային Հառագայթման պարամետրերի սպեկտրալ և կինետիկ հետազոտությունների արդյունքները YAG:Er^{3,} բյուրեղում 970 նմ այիքի երկարությամբ գրգռման դեպքում։ Բացահայտված է Ճառագայթման գերման երևույթի էական ազդեցությունը E^{3+} իոնների ${}^{4}I_{13/2} \rightarrow {}^{4}I_{15/2}$ անցմանը համապատասխանող լյումինեսցենտային ազդանշանի մարման կինետիկայի վրա։ Հետազոտվող նմուշների առջև անմիջականորեն տեղադրվող փոքր տրամագծի անցքերով դիաֆրագմաների կիրառմամբ հետազոտվել են գրանզված լյումինեսզենտային ազդանշանների մարման ժամանակների կախումները գերված Ճառագայթման մասնաբաժնից։ Տվյալ մատրիզում որպես Er^{3+} իոնի առաջին գրգռված մակարդակի ${}^{4}I_{13/2}$ կլանքի տևողություն ընդունվել է այդ մակարդակից լյումինեսցենցիայի մարման ժամանակի արժեքը ամենափոքը՝ 100 մկմ անցքով, դիաֆրազմալով գրանցման դեպքում։ Միևնույն պայմաններում գրանցվել է հետազոտվող նյութի յլումինեսզենզիայի սպեկտրը, որը հետաքրքրություն է ներկայազնում օպտիկական կապի համակարգերում լայնորեն պահանջված 1500 նմ գեներազիայի ստազման տեսանկյունից։

INFLUENCE OF RADIATION TRAPPING ON THE CHARACTERISTICS OF IR LUMINESCENCE OF YAG: Er^{3+} CRYSTAL

V.G. BABAJANYAN, R.B. KOSTANYAN, P.H. MUZHIKYAN

The results of spectral and kinetic studies of luminescent radiation parameters at wavelengths near 1500 nm in a YAG: Er^{3+} crystal under laser excitation at 970 nm are presented. A significant influence of radiation trapping effect on the decay kinetics of luminescent signal on the ${}^{4}I_{13/2} \rightarrow {}^{4}I_{15/2}$ transition of Er^{3+} ions is revealed. With use of the method of diaphragms with small diameter holes mounted directly in front of the samples, dependences of decay times of recorded luminescent signals on the portion of the trapped radiation were studied. As a lifetime of the first excited level ${}^{4}I_{13/2}$ of Er^{3+} ions in this crystal, the time of luminescence decay from the same level was taken registered with a minimum diaphragm of 100 µm. Under the same conditions the luminescence spectrum of the material under study is recorded which is of interest for 1500 nm generation widely used in optical communications systems.