

УДК 535.37 535.34 : 548.0

ФИЗИКА

Т. И. Бутаева, А. А. Каминский, А. Г. Петросян,
 Х. С. Багдасаров

Стимулированное излучение при 300°К кристаллов
 $\text{Lu}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ с ионами Ho^{3+} и Er^{3+}

(Представлено чл.-корр. АН Армянской ССР М. Л. Тер-Микаеляном 8/VII 1976)

1. Исследования, проведенные ранее (¹⁻⁵), показали, что кубические кристаллы $\text{Lu}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ (пространственная группа $O_h^{10}-Ia\bar{3}d$) с примесью редкоземельных ионов (TR^{3+}) относятся к перспективным активным средам для твердотельных лазеров (¹⁻³) и являются чрезвычайно удобными объектами для изучения природы физических процессов в активированных кристаллах (^{4,5}), непосредственно обуславливающих эффект стимулированного излучения (СИ). Дальнейшие наши исследования спектрально-генерационных свойств $\text{Lu}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}-\text{TR}^{3+}$ выявили у них ряд новых качеств, приведших нас к обнаружению у них СИ на новых каналах генерации при 300°К. В частности, было зарегистрировано СИ на волне 29460 Å ионов Ho^{3+} на дополнительном переходе $^5I_6 \rightarrow ^5I_7$. Это самое длинноволновое излучение "комнатных твердотельных (кристаллических) лазеров" (⁶). Представляет определенный практический интерес обнаруженная нами генерация ионов Er^{3+} в диапазоне $\approx 0,86$ мкм, соответствующем максимуму спектральной чувствительности ФЭУ с Ag-O-Cs фотокатодом. Краткому изложению полученных результатов и посвящено настоящее сообщение.

2. Кристалл $\text{Lu}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}-\text{Ho}^{3+}$. До настоящей работы СИ ионов Ho^{3+} в неорганических материалах с ионной структурой было получено на линиях многих каналов генерации (рис. 1). Среди них переходы: $^5S_2 \rightarrow ^5I_8$ (⁷), $^5F_5 \rightarrow ^5I_8$ (⁸), $^5I_7 \rightarrow ^5I_6$ (⁹) и $^5S_2(^5F_4) \rightarrow ^5I_{5-7}$, $^5F_5 \rightarrow ^5I_7$ (¹⁰). При этом необходимо отметить, что в несенсибилизированных кристаллах генерация ионов Ho^{3+} при 300°К была зарегистрирована и надежно идентифицирована только на одном переходе $^5S_2(^5F_4) \rightarrow ^5I_5$ (¹⁰). В наших исследованиях были найдены экспериментальные условия и зарегистрировано СИ на новом переходе $^5I_6 \rightarrow ^5I_7$ при 300°К с длиной волны генерации $\lambda_g = 29460 \pm 5$ Å. Измерения также показали, что время жизни начального рабочего состояния 5I_6 слабочувствительно к концентрации активатора (до ≈ 40 ат. %). Это указывает, что генерация этой пер-

спективной активной среды может быть получена и с большим содержанием ионов Ho^{3+} . Некоторые спектрально-генерационные характеристики $\text{Lu}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}-\text{Ho}^{3+}$ приведены в табл. 1.

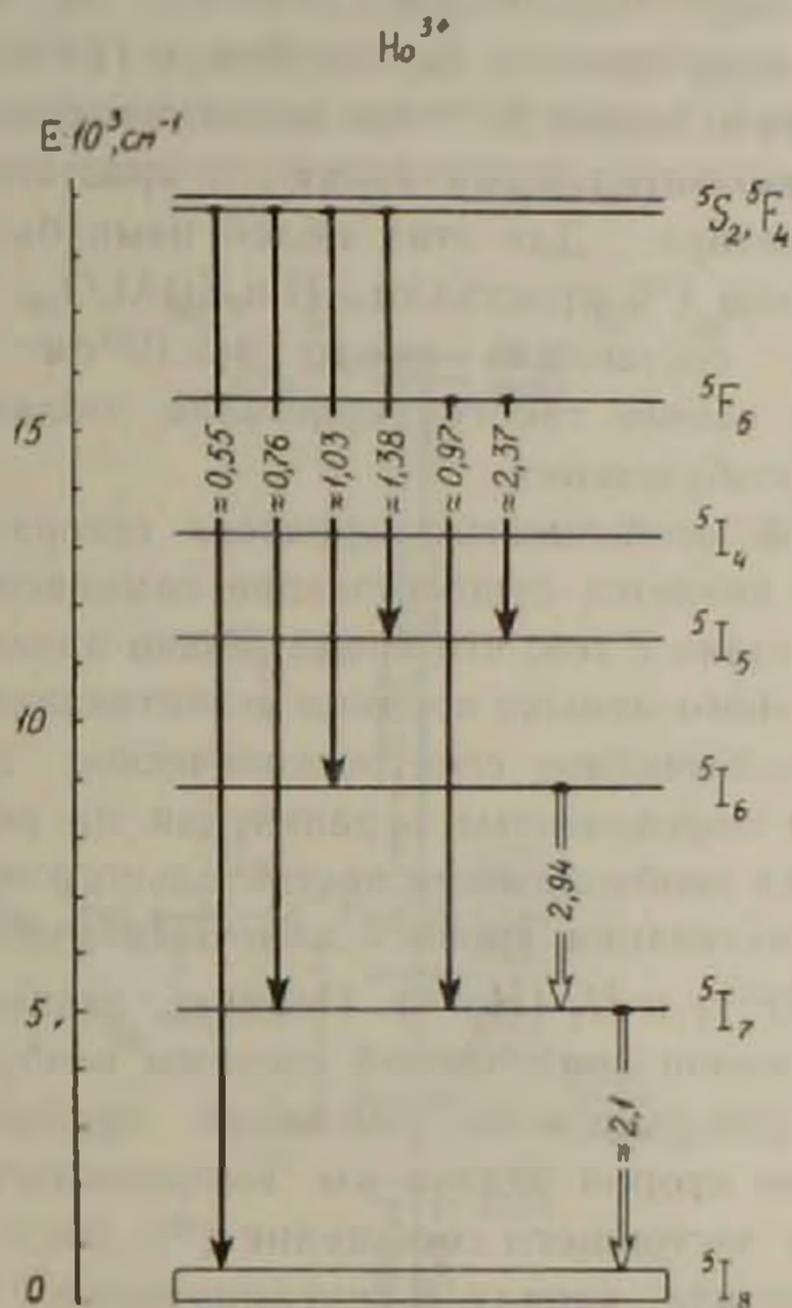


Рис. 1. Диаграмма уровней ионов Ho^{3+} с указанием генерационных каналов. Двойными стрелками показаны индуцированные переходы, обнаруженные в кристалле $\text{Lu}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}-\text{Ho}^{3+}$

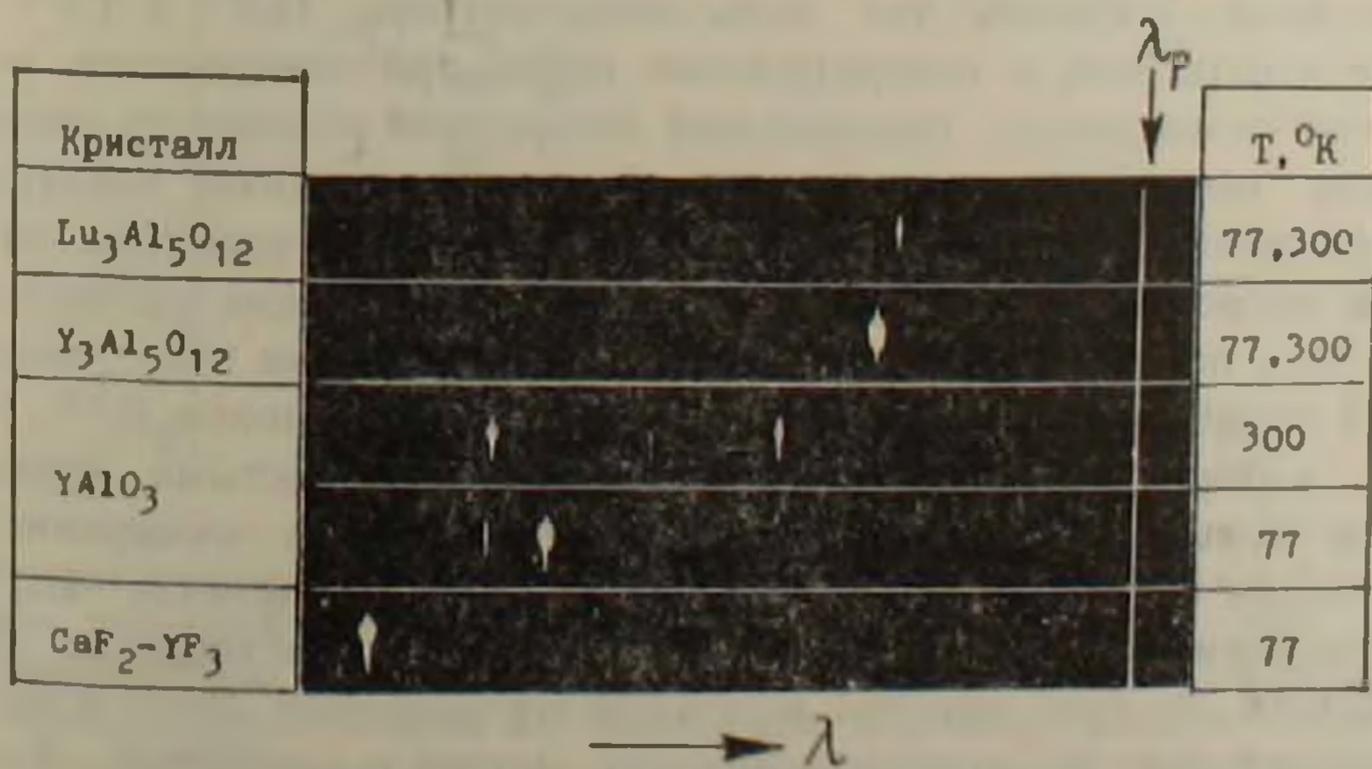


Рис. 2. Спектры стимулированного излучения ионов Er^{3+} (переход $^4\text{S}_{3/2} \rightarrow ^4\text{I}_{13/2}$) в кристаллах. Стрелкой указана реперная линия с $\lambda_p = 8716,7 \text{ \AA}$

3. Кристалл $\text{Lu}_2\text{Al}_5\text{O}_{12}-\text{Er}^{3+}$. При 77 и 300°К в наших опытах СИ было обнаружено на трех переходах: $^4\text{S}_{3/2} \rightarrow ^4\text{I}_{13/2}$ с $\lambda_r = 8632,5 \pm 0,5 \text{ \AA}$ (см. рис. 2, где так же для сравнения приведены спектры генерации других кристаллов); $^4\text{S}_{3/2} \rightarrow ^4\text{I}_{9/2}$ с $\lambda_r = 17762 \pm 5 \text{ \AA}$ и $^4\text{I}_{11/2} \rightarrow ^4\text{I}_{13/2}$ с $\lambda_r = 29408 \pm 15 \text{ \AA}$. Также как и в случае ионов Ho^{3+} для возбуждения СИ (на $\lambda_r \approx 2,94 \text{ мкм}$) ионов Er^{3+} на дополнительном переходе $^4\text{I}_{11/2} \rightarrow ^4\text{I}_{13/2}$ более предпочтительными являются кристаллы с высокой концентрацией активатора. Для этих целей нами были синтезированы расплавленным методом ⁽¹¹⁾ кристаллы $(\text{Lu}_2\text{Er})\text{Al}_5\text{O}_{12}$, в которых содержание ионов Er^{3+} составляло около $4,5 \cdot 10^{21} \text{ см}^{-3}$. Как следует из табл. 1, лазер на основе такого кристалла обладает сравнительно низким порогом возбуждения.

4. Характерной особенностью процесса генерации перечисленных выше кристаллов является существование самонасыщения на рабочих переходах. Это связано с тем, что время жизни начальных метастабильных состояний намного меньше времени дезактивации конечных рабочих уровней. Такое необычайное спектроскопическое свойство лазерных сред накладывает определенные ограничения на режим их возбуждения и указывает на необходимость настоящего поиска путей ускорения процесса дезактивации уровней конечных мультиплетов, особенно состояний $^4\text{I}_{13/2}$ (Er^{3+}) и $^5\text{I}_7$ (Ho^{3+}). Первую задачу мы решили применением эффективной оптической системы возбуждения на основе Хе лампы ИСП-250 ($\tau_{\text{ноль}} = 40-100 \text{ мксек}$, предельная энергия $\approx 180 \text{ Дж}$). Для решения второй задачи мы выбрали путь, предложенный одним из авторов настоящего сообщения ⁽¹²⁾. Этот метод заключается в введении в кристалл, наряду с генерирующими ионами, специальных ионов-дезактиваторов, которые посредством механизмов безызлучательной передачи энергии возбуждения "принимают на себя" остаточную энергию (или ее часть) после акта СИ. Известно, что ионы Ho^{3+} и Tm^{3+} являются "тушителями" люминесценции ионов Er^{3+} в алюминиевых гранатах, связанной с переходом $^4\text{I}_{13/2} \rightarrow ^4\text{I}_{15/2}$ ⁽⁶⁾. К этому важно добавить, что ионы-дезактиваторы Ho^{3+} и Tm^{3+} могут также играть роль и генерирующих ионов при обеспечении условий (рабочая температура, специальный оптический резонатор) каскадного режима генерации с промежуточным актом передачи электронного возбуждения ^(6,12). Поэтому в наших первых экспериментах по выявлению возможностей ускорения процесса дезактивации уровней состояния $^4\text{I}_{13/2}$ ионов Er^{3+} мы остановились именно на этих ионах. На рис. 3 приведена упрощенная схема уровней ионов Er^{3+} , Ho^{3+} и Tm^{3+} , которая поясняет связь (показана волнистыми стрелками) между мультиплетами этих ионов, приводящую к ускоренной дезактивации состояния $^4\text{I}_{13/2}$ ионов Er^{3+} . Если в кристалле $\text{Lu}_2\text{Al}_5\text{O}_{12}$ содержащем только ионы Er^{3+} , генерация происходит на линии с $\lambda_r = 29403 \text{ \AA}$, то при наличии ионов-дезактиваторов Ho^{3+} и Tm^{3+} СИ переключается на коротковолновую линию с $\lambda_r = 26990 \text{ \AA}$. В первом

случае из-за отсутствия быстрого стока остаточное возбуждение "распределяется" по всем иттарковским компонентам состояния $^4I_{13/2}$, что приводит к лучшим условиям для возбуждения СИ на длинноволновом переходе. В наших кристаллах, согласно спектроскопическим измерениям, в небольших количествах присутствовали и ионы Nd^{3+} (как неконтролируемая примесь). Из схемы рис. 3 следует, что эти ионы также могут служить дезактиваторами состояния

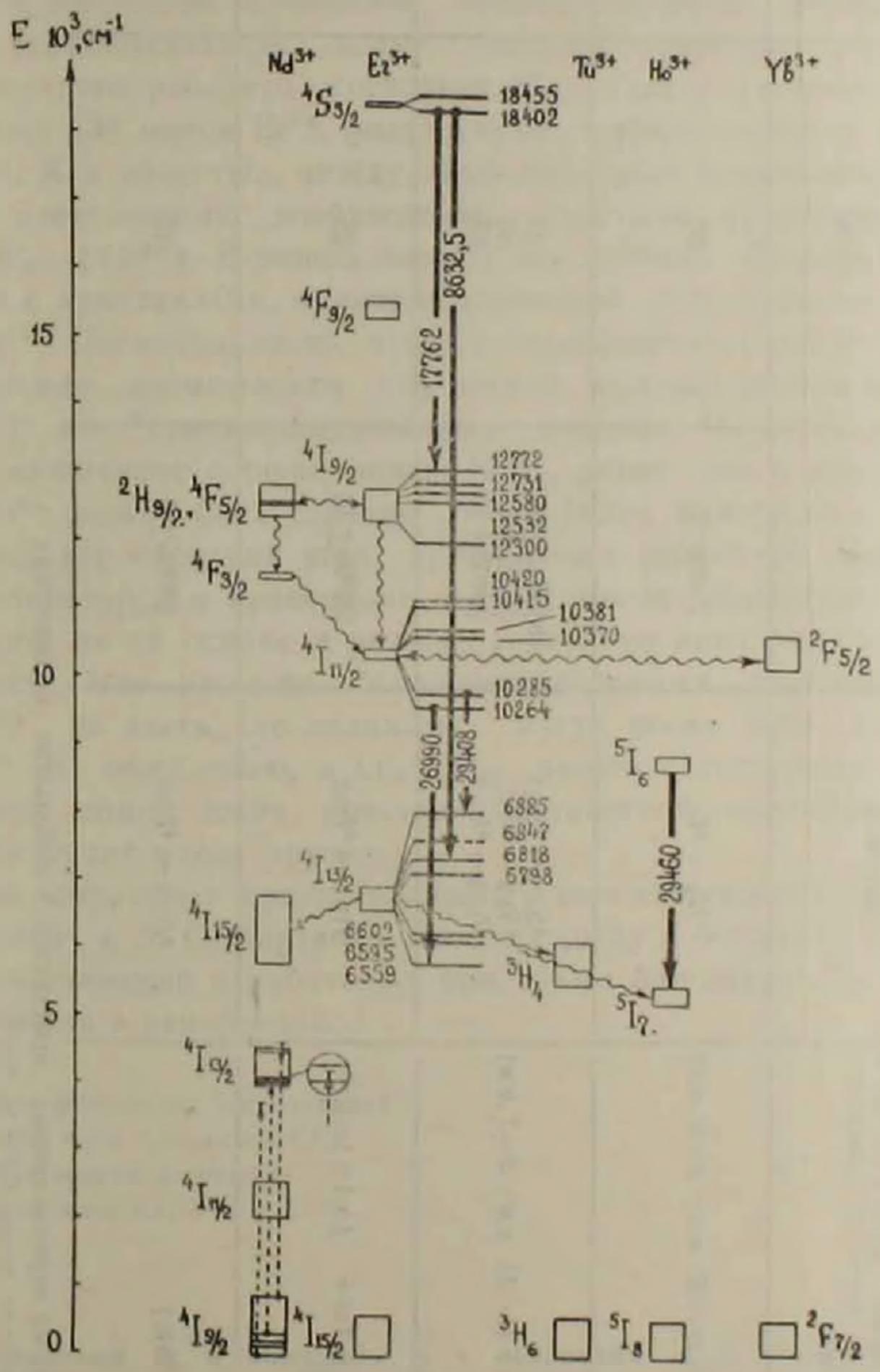


Рис. 3. Упрощенные схемы уровней TR^{3+} ионов. Для ионов Er^{3+} при 300°K энергия иттарковских компонент дана в см^{-1} , а переходы между ними указаны в Å. Здесь же показано положение некоторых мультиплетов ионов Ho^{3+} , Tm^{3+} , Nd^{3+} и Yb^{3+} . Жирными стрелками обозначены индуцированные, а штриховыми кресте релаксационные переходы (для $\lambda_r = 26990 \text{ Å}$). Волнистыми стрелками показана связь между мультиплетами различных TR^{3+} ионов при безызлучательной передаче энергии и безызлучательные переходы

Таблица 1

Спектрально-генерационные характеристики кристалла $\text{Lu}_2\text{Al}_3\text{O}_{12}$ с ионами Ho^{3+} и Er^{3+}

Кристалл (концентрация ионов дана в ат. %, в скобках приведены длина и диаметр лазерного элемента)*	Лазерный переход	λ_r А	E_n , дж	Конечный уровень, м ⁻¹
$\text{Lu}_2\text{Al}_3\text{O}_{12}-\text{Ho}^{3+}$ ($\approx 5\%$) ($l=37$ м.м; $d=6$ м.м)	$^5I_6 - ^5I_7$	29460 ± 5	60	≈ 5400
$\text{Lu}_2\text{Al}_3\text{O}_{12}-\text{Er}^{3+}$ ($\approx 1,5\%$) ($l=43$ м.м; $d=7$ м.м)	$^4S_{3/2} \rightarrow ^4I_{13/2}$ $^4S_{3/2} \rightarrow ^4I_{9/2}$ $^4I_{11/2} \rightarrow ^4I_{13/2}$	$8632,5 \pm 0,5$ 17762 ± 5 29408 ± 10	45 30 55	6918 12772 6885
$\text{Lu}_2\text{Al}_3\text{O}_{12}: \text{Ho}^{3+}$ ($\approx 3\%$), Tm^{3+} ($\approx 1\%$)— Er^{3+} (9%) ($l=29$ м.м; $d=6$ м.м)	$^4I_{11/2} - ^4I_{13/2}$	26990 ± 10	25	≈ 6560
$(\text{Lu}_2\text{Er})\text{Al}_3\text{O}_{12}-\text{Er}^{3+}$ ($\approx 35\%$) ($l=31$ м.м; $d=5$ м.м)	$^4I_{11/2} \rightarrow ^4I_{13/2}$	29395 ± 5	12	≈ 6885

Примечание.* Некоторые из перечисленных кристаллов в небольших количествах (неконтролируемое) содержали ионы Nd^{3+} и Yb^{3+} .

$^4I_{11/2}$ ионов Er^{3+} . Некоторая опасность здесь может возникнуть из-за нежелательной кросс-релаксационной связи между этими ионами, которая может "потушить" люминесценцию с уровня $^4I_{11/2}$. Но как следует из рис. 3, эта связь (см. штриховые стрелки, соответствующие $\lambda_r = 26990 \text{ \AA}$) не может быть сильной. Говоря об ионах Nd^{3+} , необходимо отметить, что они также могут оказать ионам Er^{3+} вторую помощь при генерации последних на переходе $^4I_{11/2} \rightarrow ^4I_{13/2}$. Ионы Nd^{3+} , благодаря возможной безызлучательной передачи возбуждения (сенсбилизация), могут несколько улучшить условия заселения верхнего рабочего состояния $^4I_{11/2}$. Для улучшения условия возбуждения СИ ионов Er^{3+} могут также оказать полезное действие ионы Yb^{3+} . Как известно, между ними возможен резонансный обмен энергией электронного возбуждения с участием мультиплетов $^4I_{11/2}$ (Er^{3+}) и $^2F_{5/2}$ (Yb^{3+}). В наших опытах мы провели предварительные измерения с кристаллами, коактивированными одновременно ионами Er^{3+} и Yb^{3+} . Несмотря на то, что все перечисленные выше эксперименты выявили возможности улучшения условий возбуждения СИ ионов Er^{3+} на "самонасыщающемся" переходе $^4I_{11/2} \rightarrow ^4I_{13/2}$, окончательное заключение о роли ионов Nd^{3+} , равно как и ионов Ho^{3+} , Tm^{3+} и Yb^{3+} может быть сделано после более тщательных спектроскопических исследований этих кристаллов с различной концентрацией коактиваторов и проведении энергетических измерений параметров лазеров на их основе в режиме генерации импульсов различной длительности. Что касается "самонасыщающегося" перехода $^5I_6 \rightarrow ^5I_7$ ионов Ho^{3+} , то здесь, по-видимому, могут также быть полезными ионы Nd^{3+} . К сожалению, в $\text{Lu}_2\text{Al}_2\text{O}_{12}$ ввести в достаточном количестве этих ионов из-за кристалло-химической специфики этого соединения будет очень трудно.

Авторы выражают признательность член-корреспонденту М. Л. Тер-Микаеляну и Э. С. Вартапяну за поддержку и большой творческий интерес, проявленный к работе. Авторы также благодарят В. А. Федорова за участие в измерениях.

Институт физических исследований
Академии наук Армянской ССР
Институт кристаллографии
Академии наук СССР

Տ. Ի. ՌՈՒՏԱԿՆԻ, Ա. Ա. ԿԱՄԻՆՈՒԲ, Ա. Գ. ՊԵՏՐՈՍՅԱՆ, Կ. Ս. ԲԱԿԿԱՍԻՐՈՎ

300°K ջերմաստիճանում Ho^{3+} և Er^{3+} իոններով
 $\text{Lu}_2\text{Al}_2\text{O}_{12}$ բյուրեղների ստիպողական նառազայրումը

Տվյալ աշխատանքում բերված են TR^{3+} իոններով $\text{Lu}_2\text{Al}_2\text{O}_{12}$ հալույթից սինթեզված մոնոբյուրեղների նոր հատկությունները:

Առաջին անգամ նկատված է սախարոզական ճառագայթում $300 \text{ Կ} = 300 \text{ աս.}$ Ho^{3+} իոնների գեներացիայի լրացուցիչ նրբում ($^3I_4 \rightarrow ^3I_2$), $\lambda = 29460 \text{ \AA}$ ալիքի երկարությամբ: Իսկ պինդ մարմինների վրա աշխատող բնականապես լազերների ամենակարգավոր ճառագայթումն է:

Որոշակի ճեղքայրայրություն է ներկայացնում Er^{3+} իոնների ճառագայթումը $\sim 0,805$ մկմ տիրույթում ($^4S_{3/2} \rightarrow ^4I_{13/2}$ անցումը): ճեղքայրայրություն է դարձվում նաև $\text{Lu}_2\text{ErAl}_2\text{O}_7$ բյուրեղին: ճեղքայրայրությունները ցույց տվեցին, որ այդ բյուրեղի հիման վրա աշխատող լազերն ստեղծված է զրգոման համեմատաբար ցածր շեմով (12 Զ) $\lambda = 29395 \text{ \AA}$ ալիքի երկարության համար:

Աշխատանքում բերված են նաև արիչ անցումների սպեկտրայի և ճառագայթային բնութագրերը, TR^{3+} իոնների էներգետիկ մակարդակների սխեման և քննարկվում են ակտիվացված բյուրեղներում որոշ ֆիզիկական երևույթներին վերաբերող հարցեր: Մասնավորապես քննարկվում են սենսիբիլիզացիայի, վերջնական աշխատանքային մակարդակների զեդակտիվացիայի, ինքնահազնվման հարցերը: Ստացված տվյալների նախնական վերլուծությունը ցույց է տալիս, որ Er^{3+} իոնների համար լավ զեդակտիվատորներ կարող են լինել Ho^{3+} , Tm^{3+} և Nd^{3+} իոնները: Բացի դրանից Nd^{3+} իոնները կարող են լավացնել $^4I_{11/2}$ վերին աշխատանքային վիճակի բնակեցման պարմանները: Հնարավոր զրգոման առանց ճառագայթման փոխանցման պատճառով Yb^{3+} իոնները նույնպես կարող են դրանից զեր խաղալ, քանի որ Er^{3+} և Yb^{3+} իոնների միջև հնարավոր է էլեկտրոնային զրգոման էներգիայի ուղղահանույթին փոխանակում:

ЛИТЕРАТУРА — ԳՐԱԿԱՆՈՒԹՅՈՒՆ

- ¹ A. A. Kaminskii, Kh. S. Bagdasarov, A. G. Petrosyan, S. E. Sarkisov Phys. Stat. Solidi (a), 18, K31 (1973)
- ² A. A. Каминский, П. В. Клецов, X. C. Багдасаров, А. А. Мауер, А. А. Павлюк, А. Г. Петросян, М. В. Провоторов Письма в ЖЭТФ, 16, 548 (1972).
- ³ A. A. Kaminskii, S. E. Sarkisov, P. V. Kleitsov, Kh. S. Bagdasarov, A. A. Pavlyuk, A. G. Petrosyan Phys. Stat. Solidi (a), 17, K75 (1973).
- ⁴ A. A. Kaminskii, D. N. Vylegzhanin IEEE J. Quantum Electronics, QE-7, 329 (1971).
- ⁵ Г. А. Богомолова, Д. Н. Выегжанин, А. А. Каминский, ЖЭТФ, 69, 860 (1975).
- ⁶ А. А. Каминский Лазерные кристаллы, изд. Наука, М., 1975.
- ⁷ Ю. К. Воронько, А. А. Каминский, В. В. Оико, А. М. Прохорова, Письма в ЖЭТФ, 1, 5 (1965)
- ⁸ L. F. Johnson, H. G. Guggenheim, IEEE J. Quantum Electronics, QE-10, 442 (1974).
- ⁹ L. F. Johnson, G. D. Boyd, K. Nassau Proc. IRE, 50, 87 (1962).
- ¹⁰ Н. Г. Подколызина, А. М. Ткачук, В. А. Федоров, П. П. Феофилов, Оптика и спектроскопия, 40 196 (1976).
- ¹¹ X. C. Багдасаров, А. Г. Петросян, ДАН Арм. ССР, т. 58, №3 (1974).
- ¹² А. А. Каминский, Известия АН СССР, сер. Неорган. материалы, 7, 904 (1971).