

УДК 535.34.535.37

В. Г. Бябалжанин, Г. Г. Демирханян, Э. П. Коканян, Р. Б. Костанян

Спектроскопические характеристики кристаллов  $\text{LiNbO}_3:\text{Er}^{3+}$

(Представлено академиком АН Армении М. Л. Тер-Микаеляном 15/VII 1991)

Возможность подавления при комнатных температурах светоиндуцированного «оптического повреждения» в  $\text{MgO}:\text{LiNbO}_3$  (<sup>1</sup>) вызвала повышенный интерес к кристаллам ниобата лития, легированным различными ионами. Заманчивой является идея создания миниатюрных многофункциональных активных сред путем комбинирования их высоких лазерных параметров с электро- и нелинейно-оптическими свойствами. В работах (<sup>2,3</sup>) описаны установки на одном элементе  $\text{Nd}:\text{MgO}:\text{LiNbO}_3$  и осуществлены режимы импульсной и непрерывной генерации, самоудвоение частоты и активная внутренняя модуляция добротности резонатора лазера.

В настоящей работе приводятся результаты спектральных и кинетических исследований нового лазерного материала  $\text{LiNbO}_3:\text{Er}^{3+}$ , проведенных при комнатных температурах. На основе анализа спектров поглощения в области длин волн от 0,33 до 3,5 мкм и люминесценции с энергетических уровней  $^4\text{S}_{3/2}$ ,  $^4\text{F}_{9/2}$ ,  $^4\text{I}_{11/2}$  и  $^4\text{I}_{13/2}$  ионов  $\text{Er}^{3+}$  в  $\text{LiNbO}_3$  при возбуждении излучением с  $\lambda=0,532$  мкм (<sup>4</sup>), в рамках теории кристаллического поля лигандов, определены феноменологические параметры интенсивности Джадда—Офельта  $\Omega_2$ ,  $\Omega_4$  и  $\Omega_6$  и с их помощью вычислены основные спектроскопические характеристики исследуемого кристалла, а также оценены эффективные поперечные сечения вынужденных переходов  $^3\text{I}_{11/2} \rightarrow ^4\text{I}_{13/2}$  ( $\sim 3$  мкм) и  $^4\text{I}_{13/2} \rightarrow ^4\text{I}_{15/2}$  ( $\sim 1,6$  мкм).

Исследования проводили на ориентированных образцах из монокристаллов  $\text{LiNbO}_3:\text{Er}^{3+}$ , выращенных методом Чокральского. Концентрация примеси  $\text{Er}_2\text{O}_3$  в исходной шихте  $\sim 1\%$  вес.

Известно, что все излучательные внутрицентровые характеристики примесных редкоземельных (РЗ) ионов в кристаллах (интенсивности бесфононных линий, вероятности спонтанных переходов, коэффициенты поглощений и т. п.) выражаются посредством силы линий соответствующих переходов (<sup>5</sup>). Для РЗ<sup>3+</sup> ионов правилом Лапорта запрещены

прямые, электро-дипольные переходы и для объяснения интенсивностей спектральных линий помимо электрических квадрупольных и магнитно-дипольных необходимо учесть в первом порядке теории возмущений также и косвенные электро-дипольные переходы (вкладами мульти-полей более высокого порядка ввиду их малости можно пренебречь). Силу линия перехода  $i \rightarrow f$  можно записать в виде

$$S_{if} = |\langle I_i | \bar{Q} | I_f \rangle|^2 + |\langle I_i | \bar{M} | I_f \rangle|^2 + S_{if}^{ed}, \quad (1)$$

где  $I_i$  — полный угловой момент состояния  $i$ ;  $\bar{Q}$ ,  $\bar{M}$  — операторы электрического квадрупольного и магнитно-дипольного моментов, соответственно. Точный расчет вклада косвенных дипольных переходов слишком сложен, но, как показано Джаддом и Офельтом (<sup>6-8</sup>), он может быть выражен через три феноменологических параметра  $\Omega_2$ ,  $\Omega_4$  и  $\Omega_6$  (параметры интенсивности Джадда—Офельта)

$$S_{if}^{ed} = \sum_{l=2,4,6} \Omega_l \times |\langle I_i | U_l | I_f \rangle|^2, \quad (2)$$

где  $U_l$  — единичные неприводимые тензорные операторы, матричные элементы которых для всех  $RZ^{3+}$  ионов приведены в (<sup>9</sup>).

Интегральный коэффициент поглощения с основного уровня  $\bar{K}_{if}$ , выраженный через силу линии перехода  $S_{if}$ , имеет вид

$$K_{if} = N_0 \times \frac{8\pi^3 e^2}{3ch} \times \bar{\nu}_{if} \times \frac{1}{2I_i + 1} \times \frac{(\mu^2 + 2)^2}{9\mu} \times S_{if}. \quad (3)$$

Здесь  $N_0$  — число примесных ионов в  $1 \text{ см}^3$ ;  $e$  — заряд электрона;  $c$  — скорость света,  $h$  — постоянная Планка;  $\bar{\nu}_{if}$  — средняя длина волны перехода  $i - f$ ;  $\mu$  — показатель преломления кристалла на длине волны  $\bar{\nu}_{if}$ . Подставляя в левую часть выражения (3) экспериментальные значения интегральных коэффициентов поглощения  $K$ , получим систему уравнений относительно параметров  $\Omega_l$ , из решения которой и определяются искомые величины. Используя измеренные значения интегральных коэффициентов поглощения для первых семи возбужденных энергетических уровней ионов  $Er^{3+}$  в  $LiNbO_3$ , из вышеуказанной системы уравнений методом наименьших квадратов были определены величины параметров интенсивности:  $\Omega_2 = 2,05 \cdot 10^{-20} \text{ см}^2$ ,  $\Omega_4 = 0,33 \cdot 10^{-20} \text{ см}^2$  и  $\Omega_6 = 0,19 \cdot 10^{-20} \text{ см}^2$ . В этих расчетах величина  $N_0$  бралась равной  $3 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-3}$  (оцененная со значением коэффициента вхождения  $Er^{3+}$  в кристалле  $LiNbO_3 \sim 0,1 - 0,2$ ), а значения  $\mu(\bar{\nu}_{if})$  взяты из (<sup>10</sup>).

С помощью найденных величин параметров  $\Omega_l$  могут быть вычислены вероятности спонтанных переходов, индуцированных косвенными электро-дипольными переходами

$$A_{II}^{ed} = \frac{64\pi^4 e^2}{3h} \times \frac{1}{\lambda_{II}^3} \times \frac{1}{2I_J + 1} \times \frac{n(n^2 + 2)^2}{9} \times S_{II}^{ed}. \quad (4)$$

Вероятность магнитно-дипольных переходов рассчитывалась по формуле (5)

$$A_{II}^{md} = \frac{64\pi^4}{3h} \times \frac{1}{\lambda_{II}^3} \times \frac{n^3}{2I_J + 1} \times |\langle I_J, M | \vec{M} | I_J, M \rangle|^2. \quad (5)$$

Вклад электрических квадрупольных переходов в силы линий рассматриваемых переходов иона  $\text{Er}^{3+}$  оказался пренебрежимо малым.

В таблице приведены экспериментальные и рассчитанные по формулам (3)–(5) значения интегральных коэффициентов поглощения  $K$ , полные вероятности излучательных переходов  $A_J = \sum_I A_{II}^{ed} + A_{II}^{md}$ , вероятности безызлучательных переходов  $W$  (11), а также измеренные (4) и расчетные величины времен жизни  $\tau$  рассматриваемых энергетических уровней ионов  $\text{Er}^{3+}$  в  $\text{LiNbO}_3$ .

Экспериментальные и расчетные значения интегральных коэффициентов поглощения  $K$  с основного состояния, вероятности излучательных  $A$  и безызлучательных  $W$  переходов, времена жизни  $\tau$  некоторых энергетических уровней иона  $\text{Er}^{3+}$  в кристаллах  $\text{LiNbO}_3$

Мультиплет	$\lambda$ , мкм	$K$ , $10^{-7}$		$A$ , $\text{с}^{-1}$	$W$ , $\text{с}^{-1}$	$\tau$ , мкс	
		расчетное	экспериментальное			расчетное	экспериментальное
$^4I_{13/2}$	0,155	6,87	7,2	160	$\sim 0$	6300	7300
$^4I_{11/2}$	0,98	0,54	0,63	122,7	$4 \cdot 10^3$	243	220
$^4I_{9/2}$	0,806	0,17	0,16	1,4,8	$2 \cdot 10^6$	0,5	—
$^4F_{9/2}$	0,664	0,80	0,50	952,4	$3 \cdot 10^3$	3,3	2
$^4S_{3/2}$	0,550	0,11	0,12	865,9	$3 \cdot 10^4$	32,4	28,5
$^2H_{11/2}$	0,525	3,77	4,3	11,4	$\sim 10^{12}$	$\sim 0$	—
$^4F_{7/2}$	0,490	0,38	0,42	1818	$\sim 10^7$	$\sim 0,1$	—

Измеренные методом графического интегрирования из спектров люминесценции на переходах  $^4I_{11/2} \rightarrow ^4I_{13/2}$  и  $^4I_{11/2} \rightarrow ^4I_{15/2}$  с учетом спектральных и энергетических чувствительностей примененной аппаратуры значения коэффициентов ветвления излучения с уровня  $^4I_{11/2}$  ионов  $\text{Er}^{3+}$  равны:  $\beta(^4I_{15/2}) = 0,83$  и  $\beta(^4I_{13/2}) = 0,17$ . Полученные экспериментальные значения  $\beta$  неплохо согласуются с расчетными величинами 0,77 и 0,23, соответственно.

Знание полных вероятностей излучательных переходов  $A(^4I_{11/2} \rightarrow ^4I_{13/2}) = 28,3 \text{ с}^{-1}$  и  $A(^4I_{11/2} \rightarrow ^4I_{15/2}) = 164 \text{ с}^{-1}$  позволяет оценить эффективные сечения вынужденных переходов в этих каналах (11)

$$\sigma_J = \frac{A_J \times \lambda_{II}^2}{4\pi^2 c n^2 \Delta\nu_J^2}. \quad (6)$$

Здесь  $\Delta\nu_j^\Phi$  — эффективная ширина полосы люминесценции, равная отношению интегральной интенсивности люминесценции к ее пиковому значению на длине волны  $\lambda_j$ ;  $j = 1, 2$  для переходов  ${}^4I_{13/2} \rightarrow {}^4I_{15/2}$  и  ${}^4I_{11/2} \rightarrow {}^4I_{13/2}$ , соответственно. Подставляя в (6) измеренные значения  $\Delta\nu_1^\Phi \simeq 7 \text{ см}^{-1}$  и  $\Delta\nu_2^\Phi \simeq 23 \text{ см}^{-1}$ , для эффективных сечений вынужденных переходов получим:  $\sigma_1 \simeq 1,0 \cdot 10^{-19} \text{ см}^2$ ;  $\sigma_2 \simeq 1,8 \cdot 10^{-20} \text{ см}^2$ .

Таким образом, приведенные результаты свидетельствуют о перспективности дальнейших исследований кристаллов  $\text{LiNbO}_3:\text{Er}^{3+}$  с целью разработки новой среды для лазеров средней ИК-области длин волн с возможностью использования электро- и нелинейно-оптических свойств матрицы.

Институт физических исследований  
Академии наук Армении

Վ. Գ. ՐԱԲՈՋԱՆՅԱՆ, Գ. Գ. ԳԵՄԻՐԵԱՆՅԱՆ, Է. Գ. ԿՈԿԱՆՅԱՆ, Ռ. Բ. ԿՈՍՏԱՆՅԱՆ

### $\text{LiNbO}_3:\text{Er}^{3+}$ բյուրեղների սպեկտրասկոպիկ բնութագրեր

Աշխատանքում բերված են նոր լազերային նյութի՝  $\text{LiNbO}_3:\text{Er}^{3+}$  բյուրեղների սենյակային շերտաստիճաններում սպեկտրալ և կինետիկ հետազոտությունների արդյունքները: Օգտագործելով  $\text{Er}^{3+}$  իոնի առաջին յոթ պրոպրված էներգետիկ մակարդակների ինտեգրալ կլանման գործակիցների փորձարարական արժեքները, լիզանդների բյուրեղական դաշտի տեսության սահմաններում որոշվել են Ջադ—Օֆելտի ինտենսիվության պարամետրերը՝  $\Omega_1 = 2,05 \cdot 10^{-20}$ ,  $\Omega_2 = 0,33 \cdot 10^{-20}$  և  $\Omega_0 = 0,19 \cdot 10^{-20} \text{ սմ}^2$ , որոնց սգնությունը հաշվարկվել են հետազոտվող բյուրեղի սպեկտրասկոպիկ բնութագրերը: Փնտհատվել են նաև ստիպողական անցումների էֆեկտիվ կտրվածքների արժեքները՝  $\sigma_1 ({}^4I_{13/2} \rightarrow {}^4I_{15/2}) \simeq 1,8 \cdot 10^{-10} \text{ սմ}^2$  և  $\sigma_2 ({}^4I_{13/2} \rightarrow {}^4I_{11/2}) \simeq 1,0 \cdot 10^{-10} \text{ սմ}^2$ :

### ЛИТЕРАТУРА — ԿՐԱԿԱՆՈՒԹՅՈՒՆ

- <sup>1</sup> C. Zhong, J. Han, Z. Wu, Proc. 11-th Int. Quant. Electron. Conf., 1980, IEEE Cat. no 89 CH 1561—0, 631, 1980.
- <sup>2</sup> T. Y. Fan, A. Cordova-Plaza, M. Y. F. Digonnet e. a., J. Opt. Soc. Am., B/v. 3, № 1, p. 140—147 (1986).
- <sup>3</sup> A. Cordova-Plaza, T. Y. Fan, M. Y. F. Digonnet e. a., Opt. Lett., v. 13, № 3, p. 209—211 (1988).
- <sup>4</sup> В. Г. Бабаджанян, С. Джорджевску, К. Ионеску и др., Изв. АН Армении. Физика, т. 25, вып. 6, с 356—359 (1991).
- <sup>5</sup> Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, Квантовая механика, т. 3, Наука, М., 1963.
- <sup>6</sup> В. R. Judd, Phys. Rev., v. 127, № 3, p. 750—761 (1962).
- <sup>7</sup> G. S. Ofeit, J. Chem. Phys., v. 37, № 3, p. 511—520 (1962).
- <sup>8</sup> M. J. Weber, Phys. Rev., v. 157, № 2, p. 262—272 (1967).
- <sup>9</sup> C. W. Nielson, G. F. Koster, Spectroscopic coefficients for  $p^n$ ,  $d^n$  and  $f^n$  configurations. The M. J. T. Press, Cambridge, 1963.
- <sup>10</sup> Ю. С. Кузьминов, Ниобат и тавталат лигия. Материалы для нелинейной оптики, Наука, М., 1975.
- <sup>11</sup> Ф. П. Сафарян, С. А. Агабалян, Н. А. Григорян, ФГТ, т. 30, № 2, с. 557—560 (1988).
- <sup>12</sup> А. Л. Микаэлян, М. Л. Тер-Микаслян, Ю. С. Гурков, Оптические квантовые генераторы на твердом теле. Советское радио, М., 1967.