

О ВЫСОКОТЕМПЕРАТУРНЫХ ЭФФЕКТАХ, НАБЛЮДЕННЫХ В РЕЖИМЕ ИНДУЦИРОВАННОГО ИЗЛУЧЕНИЯ НА КРИСТАЛЛАХ CaF_2 И LaF_3 , АКТИВИРОВАННЫХ Nd^{3+}

А.А.Каминский

При проведении высокотемпературных спектроскопических исследований индуцированного излучения ОКГ, основанных на кристаллах $\text{CaF}_2 - \text{Nd}^{3+}$ (тип 1) и $\text{LaF}_3 - \text{Nd}^{3+}$ было обнаружено несколько новых эффектов. Это — резонансный эффект температурной сенсibilизации и связанный с ним эффект возгорания линий генерации и эффект температурного вырождения индуцированных переходов. Цель проведенных экспериментов состояла в получении информации о процессах, происходящих в возбужденном состоянии при высоких температурах, а также выявления высокотемпературной границы работы ОКГ.

Спектроскопические и генерационные характеристики кристаллов $\text{CaF}_2 - \text{Nd}^{3+}$ и $\text{LaF}_3 - \text{Nd}^{3+}$ при низких температурах и 300°K изучены достаточно подробно. Основные результаты этих исследований опубликованы в работах [1–7].

Наши опыты проводились с ОКГ, состоящим из высокотемпературной осветительной камеры эллиптического сечения с лампой ИФП-800 и внешних сферических зеркал с многослойными диэлектрическими покрытиями, имеющими пропускание на $\lambda = 1,06 \text{ мк}$ около 0,7%. Спектры индуцированного излучения регистрировались на фотопленку И-1070 при помощи дифракционного спектрографа ДФС-8 ($\sim 5,9 \text{ \AA/мм}$). Реперным спектром служило излучение лампы с железным полым катодом в третьем порядке. Пороги генерации измерялись обычным образом. При исследовании $E_{\text{порог}}(T)$ для отдельных линий ФЭУ устанавливался в выходной фокальной плоскости прибора ДФС-8.

На рис. 1 приведены полученные зависимости $E_{\text{порог}}(T)$ для кристаллов $\text{CaF}_2 - \text{Nd}^{3+}$ и $\text{LaF}_3 - \text{Nd}^{3+}$. Ранее [1] в спектре генерации ОКГ на основе $\text{CaF}_2 - \text{Nd}^{3+}$ при 300°K была наблюдена только одна линия генерации (линия А) с длиной волны 10461 Å (9559 см^{-1}). Как видно из рисунка, ее зависимость $E_{\text{порог}}(T)$ монотонно возрастает, и при температуре $\sim 550^\circ\text{K}$ она практически становится не возбудимой. При 300°K, одновременно с линией А, в спектре генерации присутствует вторая линия — линия Б с $\lambda = 10630 \text{ \AA}$ (9407 см^{-1}), которая ранее не была обнару-

жена из-за высокого порога возбуждения. Ее зависимость $E_{\text{порог}}(T)$ характеризуется необычным видом. Видно, что при $T \approx 440^\circ\text{K}$ она имеет минимальную энергию возбуждения, которая более чем в три раза ниже $E_{\text{порог}}$ для 300°K . Высокотемпературные спектры индуцированного излучения кристаллов $\text{CaF}_2 - \text{Nd}^{3+}$ (0,5 вес.%) показаны на рис.2,а(см.вкл.).

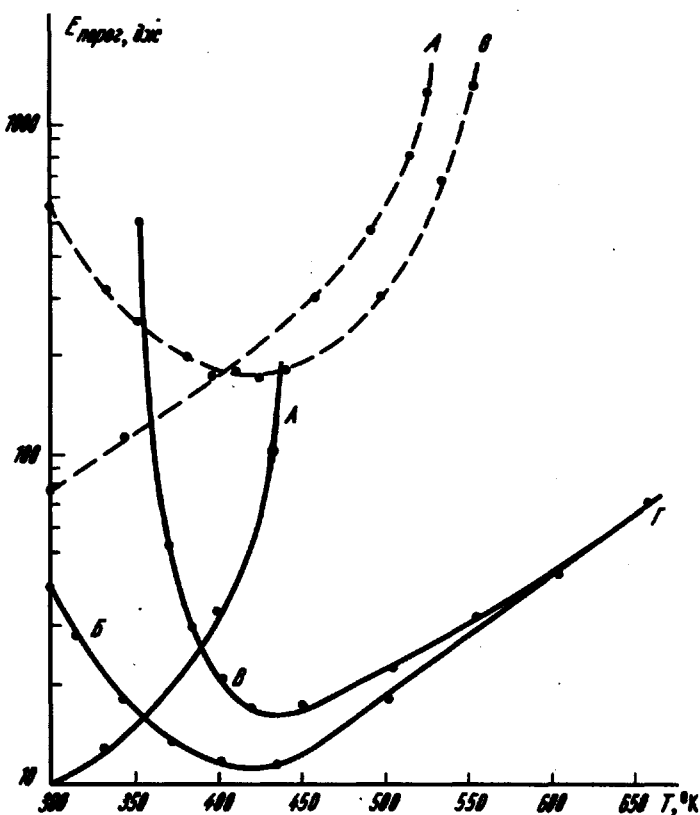


Рис.1. Зависимости $E_{\text{порог}}(T)$ кристаллов $\text{CaF}_2\text{Nd}^{3+}$ (пунктирные линии) и $\text{LaF}_3 - \text{Nd}^{3+}$

ОКГ на основе кристаллов $\text{LaF}_3 - \text{Nd}^{3+}$ при 300°K также излучает на двух длинах волн-линия А с $\lambda = 10407 \text{ \AA}$ (9609 см^{-1}) и линия В с $\lambda = 10633 \text{ \AA}$ (9405 см^{-1}) [7]. $E_{\text{порог}}(T)$ для этих линий на рис.1 обозначены сплошными линиями. Как видно, линия А в спектре генерации присутствует только до $T \approx 440^\circ\text{K}$, выше которой излучение на этой линии становится невозможным. Поведение $E_{\text{порог}}(T)$ линии В очень схоже с аналогичной зависимостью длинноволновой компоненты спектра генерации кристалла $\text{CaF}_2 - \text{Nd}^{3+}$ с небольшой лишь разницей, заключающейся в том, что ОКГ на основе $\text{LaF}_3 - \text{Nd}^{3+}$ продолжает излучать при более высоких температурах. Второй "уникальной" особенностью этой системы является то обстоятельство, что при $T \approx 360^\circ\text{K}$

в спектре излучения возгорается новая линия генерации с $\lambda = 10594 \text{ \AA}$ (9439 см^{-1}), которую невозможно возбудить при 300°K . "Уникальность" этого положения состоит в том, что это первый известный случай, когда генерация возможна только при высоких температурах.

Спектральное положение линии генерации *B* и зависимость $E_{\text{порог}}(T)$ асимптотически приближается к аналогичным параметрам линии *A*. Высокотемпературные спектры генерации ОКГ на основе $\text{LaF}_3 - \text{Nd}^{3+}$ (1 вес.%) демонстрируются на рис.2, б. Описанные выше процессы ста

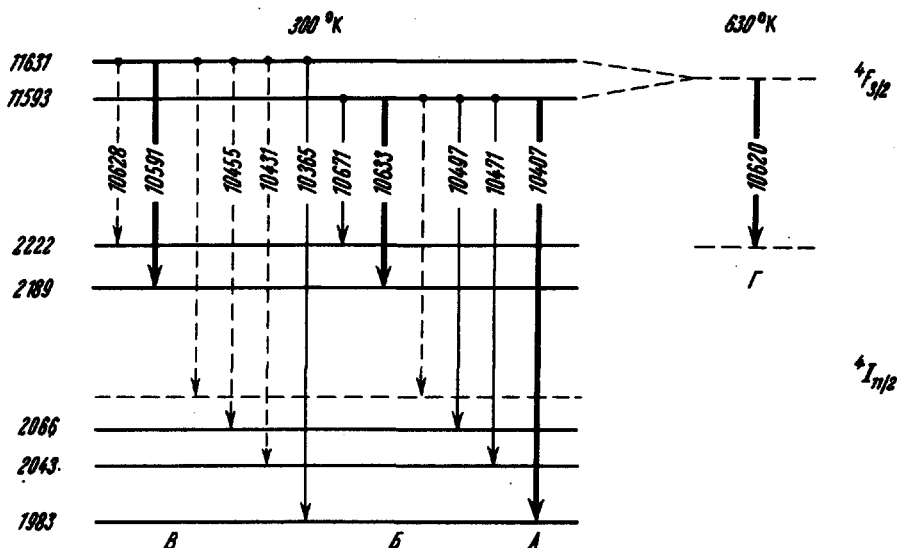


Рис.3. Схема кристаллического расщепления термов $4F_{3/2}$ и $4I_{11/2}$ кристалла $\text{LaF}_3 - \text{Nd}^{3+}$

новятся понятными, если обратиться к штарковской схеме кристаллического расщепления термов $4F_{3/2}$ и $4I_{11/2}$, непосредственно связанных с индуцированными переходами (рис.3). Как видно, линии *B* и *B* обязаны переходам с уровней терма $4F_{3/2}$ (расщепление ΔE при $300^\circ\text{K} \sim 38 \text{ см}^{-1}$) на одну и ту же штарковскую компоненту терма $4I_{11/2}$, отстоящую от основного уровня при 300°K на 2189 см^{-1} . При 300°K индуцированный переход *B* начинается на нижнем уровне (11593 см^{-1}). При более высоких температурах расщепление метастабильного терма $4F_{3/2}$ становится меньшим, и заселенности его уровней уравниваются. Необходимо отметить, что при 77°K ΔE терма $4F_{3/2}$ равно 43 см^{-1} , а при 20°K $\Delta E = 44 \text{ см}^{-1}$ [8]. Полное вырождение уровней терма $4F_{3/2}$, как видно из спектра генерации и поведения зависимости $E_{\text{порог}}(T)$, наступает при $T \approx 630^\circ\text{K}$, и в спектре излучения остается только одна широкая линия *Г* с $\lambda = 10620 \text{ \AA}$. Этот процесс, по-видимому, правомочно назвать температурным вырождением индуцированных переходов.

Окончательные результаты проведенных исследований и более подробный анализ природы наблюдаемых эффектов будут опубликованы в

специальной работе, тем не менее приведенные выше экспериментальные данные уже сейчас позволяют сделать некоторые заключения о явлениях, происходящих при высоких температурах.

Возгорание линии B (LaF_3) и понижение $E_{\text{порог}}$ для линий G и B (CaF_2 и LaF_3) при $T \approx 450^\circ\text{K}$ можно связать с возрастанием вероятностей безызлучательных переходов с штарковских компонент, на которых заканчиваются индуцированные переходы. Такое поведение, изученных нами систем должно быть связано с возникновением тепловых резонансных колебаний кристаллов. Это в конечном итоге должно приводить к резкому увеличению полезной разности населенностей рабочих уровней. Это предположение хорошо подтверждается экспериментальным фактом, состоящим в том, что для линий B и B (LaF_3), которые связаны с одним и тем же (см. рис.3) конечным уровнем 2189 см^{-1} , зависимость $E_{\text{порог}}(T)$ имеет одинаковый ход. В пользу этого обстоятельства также указывают близость температур Дебая наших кристаллов и экстремумов наблюдаемых зависимостей $E_{\text{порог}}(T)$. Здесь следует упомянуть теоретическую работу Киля [9], в которой показано, что вероятности переходов в редкоземельных ионах должны очень сильно зависеть от тепловых колебаний кристалла и в частности от ω_D .

В заключение необходимо также отметить, что высокотемпературные спектроскопические исследования индуцированного излучения были проведены более чем с 15 ОКГ на основе кристаллов и стекол ($\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}-\text{Nd}^{3+}$, $\text{CaF}_2-\text{YF}_3-\text{Nd}^{3+}$, $\text{BaF}_2-\text{LaF}_3-\text{Nd}^{3+}$, $\text{CaWO}_4-\text{Nd}^{3+}$, $\alpha-\text{NaCaYF}_6-\text{Nd}^{3+}$, КГСС-7 и др.). Кроме описанных выше эффектов, было экспериментально подтверждено существование авторезонансной сенсбилизации в смешанных фторидных системах и стеклах и ее связь с тепловыми колебаниями кристаллов. На рис.2, в показаны высокотемпературные спектры генерации неодимового стекла КГСС-7. Сужение линии генерации при высоких температурах показывает, что вероятность кросс-релаксации энергии между различными оптическими центрами увеличивается. Проведенные исследования также показали, что самыми высокотемпературными ОКГ являются генераторы, основанные на фторидных кристаллах, так ОКГ на основе α -гагаринита излучает вплоть до 1000°K . Все это указывает на то, что метод высокотемпературной спектроскопии очень интересен и весьма перспективен.

Автор выражает благодарность Х.С.Багдасарову, М.В.Дмитруку, В.В.Осико и Б.П.Соболеву за предоставление кристаллов для экспериментов.

Институт кристаллографии
Академии наук СССР

Поступило в редакцию
15 мая 1967 г.
После переделки
20 июня 1967 г.

Литература

- [1] А.А.Каминский, Л.С.Корниенко, А.М.Прохоров. ЖЭТФ, 48, 476, 1965.
- [2] Ю.К.Воронько, А.А.Каминский, В.В.Осико. ЖЭТФ, 49, 420, 1965.

- [3] H.H.Caspers, H.E.Rast, R.A.Buchnan. J.Chem. Phys., 42, 3214, 1965.
- [4] C.K.Asawa, M.Robinson. Phys. Rev., 141, 251, 1966.
- [5] M.B.Schulz, C.D.Jeffries. Phys. Rev., 149, 270, 1966.
- [6] E.Wong, O.Statsudd, D.Johnston. Phys. Rev., 131, 990, 1963.
- [7] М.В.Дмитрук, А.А.Каминский. ЖЭТФ, 53, 874, 1967.
- [8] L.F.Johnson. J.Appl. Phys., 34, 897, 1963.
- [9] A.Kiel. Electron. quant. 3 Conf. Internat. Paris. Paris-N.Y., 765, 1964.