

КРОСС-РЕЛАКСАЦИОННАЯ РАЗГРУЗКА ОСНОВНОГО СОСТОЯНИЯ РЕДКОЗЕМЕЛЬНЫХ ИОНОВ В КРИСТАЛЛАХ

*М.А.Ногинов, А.М.Прохоров, Г.К.Саркисян,
В.А.Смирнов, И.А.Щербаков*

Показана возможность эффективной дезактивации основного состояния ионов редкоземельных элементов при накачке из возбужденного состояния этих ионов. Необходимым условием реализации данного метода является кросс-релаксационное "размножение" возбуждений в системе взаимодействующих частиц.

Разветвленная схема энергетических уровней трехвалентных редкоземельных ионов (TR^{3+}) позволяет в ряде случаев эффективно дезактивировать их основное состояние, не оказывая при этом на него непосредственного внешнего воздействия, а осуществляя оптическую накачку из возбужденных состояний TR^{3+} . Необходимым условием реализации подобного способа возбуждения TR^{3+} является кросс-релаксационное "размножение" возбуждений в системе взаимодействующих частиц. Предлагаемые новые нетрадиционные схемы накачки могут, в принципе, быть организованы на основе целого ряда TR^{3+} ионов, в том числе Tm^{3+} и Er^{3+} .

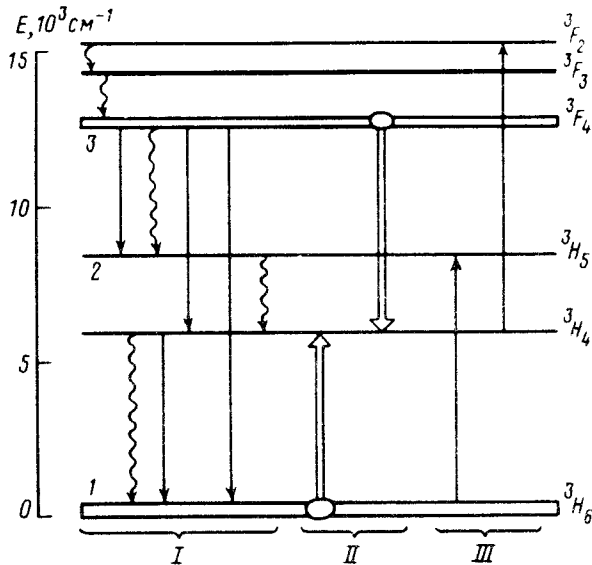


Рис.1. Схема энергетических уровней иона Tm^{3+} : I – внутрицентровый распад, II – кроссрелаксация, III – накачка

Рассмотрим для примера одну из возможных реализаций предлагаемого способа. Процессы заселения и релаксации возбужденных состояний ионов Tm^{3+} в кристалле иттрий-скандий-галлиевого граната (ИСГГ) описываются следующей системой уравнений:

$$\begin{cases} \frac{dn_3}{dt} = k_2 n_2 - \beta n_1 n_3 - (w_{31} + w_{32}) n_3, \\ \frac{dn_2}{dt} = -k_2 n_2 + 2\beta n_1 n_3 + w_{32} n_3 - w_{21} n_2 + k_1 n_1, \\ n_1 + n_2 + n_3 = 1, \end{cases} \quad (1)$$

где индексы 1, 2, 3 относятся, соответственно, к состояниям 3H_6 , 3H_4 , 3F_4 Tm^{3+} (рис. 1); w_{ij} – вероятность внутрицентровой релаксации $i \rightarrow j$; $\beta n_1 n_3$ – скорость кросс-релаксации

онного расщепления состояния ${}^3F_4 \text{Tm}^{3+}$. Система (1) учитывает возбуждение ионов Tm^{3+} на переходах как из основного (3H_6), так и из возбужденного (3H_4) состояний, при этом $k_1 n_1$ и $k_2 n_2$, соответственно, скорости возбуждения на переходах ${}^3H_6 \rightarrow {}^3H_4$, ${}^3H_4 \rightarrow {}^3F_4$.

При концентрации ионов $\text{Tm}^{3+} 8 \cdot 10^{20} \text{ см}^{-3}$, при поглощении света на переходе ${}^3H_4 \rightarrow {}^3F_4$ (считаем, что $n_2, n_3 \ll n_1$), возбуждение смуровия 3F_4 за время ~ 30 мкс с квантовым выходом, близким к двум, кросс-релаксационно размещается на два возбуждения 3H_4 (${}^3F_4 \rightarrow {}^3H_4$, ${}^3H_6 \rightarrow {}^3H_4$)¹, что и делает возможной эффективную оптическую накачку данного кристалла на переходе из метастабильного состояния ${}^3H_4 \text{Tm}^{3+}$.

В эксперименте кристалл ИСГГ: $\text{Cr}(2,5 \cdot 10^{20} \text{ см}^{-3}) : \text{Tm}(8 \cdot 10^{20} \text{ см}^{-3})$ возбуждался излучением импульсных неодимовых лазеров, длины волн возбуждения ($\lambda_{\text{возб}}$) составляли 1,08 мкм и 1,064 мкм. Длительность возбуждающих импульсов 400 мкс, энергия в импульсе до 4 Дж.

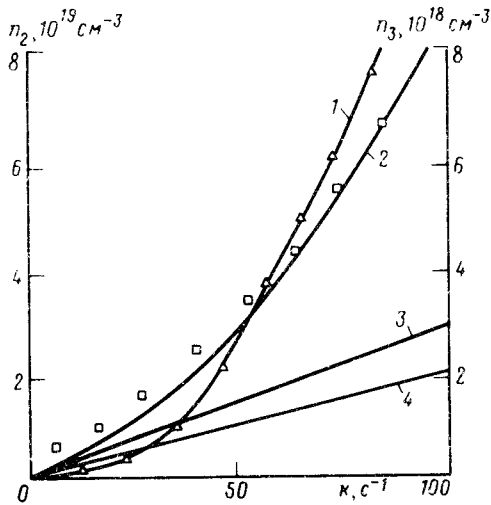


Рис. 2. Населенности уровней ${}^3F_4 \text{Tm}^{3+}$ (\blacktriangle — эксперимент, кривая 1 — расчет при $\sigma_{{}^3H_4 \rightarrow {}^3F_4} = 6,6 \cdot 10^{-22} \text{ см}^2$, $\beta = 3 \cdot 10^4 \text{ с}^{-1}$) и ${}^3H_4 \text{Tm}^{3+}$ (\blacksquare — эксперимент, кривая 2 — расчет при $\sigma_{{}^3H_4 \rightarrow {}^3F_4} = 6,6 \cdot 10^{-22} \text{ см}^2$, $\beta = 3 \cdot 10^4 \text{ с}^{-1}$, кривая 3 — расчет при $\sigma_{{}^3H_4 \rightarrow {}^3F_4} = 0 \text{ см}^2$, кривая 4 — расчет при $\sigma_{{}^3H_4 \rightarrow {}^3F_4} = 6,6 \cdot 10^{-22} \text{ см}^2$, $\beta = 0$) в зависимости от энергии накачки

На рис. 2 представлена экспериментальная зависимость населенности уровня ${}^3H_4 \text{Tm}^{3+}$ при $\lambda_{\text{возб}} = 1,064$ мкм от энергии накачки (кривая 2), которая идет существенно выше расчетной (при $w_{21} = 100 \text{ с}^{-1}$, $w_{31} = 50 \text{ с}^{-1}$, $w_{32} = 1000 \text{ с}^{-1}$), полученной в предположении, что поглощение с возбужденного состояния ${}^3H_4 \text{Tm}^{3+}$ отсутствует (кривая 3). На рис. 2 приведена, также, расчетная зависимость при отсутствии процесса кросс-релаксационного "размножения" возбуждений ($\beta = 0$) (кр. 4). Максимальная населенность уровня 3H_4 достигала 10% от общей концентрации ионов Tm^{3+} , что, как показывают оценки делает возможным получение генерации на переходе ${}^3H_4 \rightarrow {}^3H_6 \text{Tm}^{3+}$. Следует отметить также, что основной вклад в заселение уровня 3H_4 в данном эксперименте был связан с поглощением света именно из возбужденного состояния ${}^3H_4 \text{Tm}^{3+}$, при этом сечение поглощения на длине волны 1,064 мкм на переходе ${}^3H_4 \rightarrow {}^3F_4$ составляло $6,6 \cdot 10^{-22} \text{ см}^2$, что в ~ 60 раз превышало сечение поглощения на переходе из основного состояния ${}^3H_6 \text{Tm}^{3+}$ на этой длине волны.

При возбуждении кристалла ИСГГ: $\text{Cr}^{3+} : \text{Tm}^{3+}$ светом с $\lambda = 1,08$ мкм заселение возбужденных состояний Tm^{3+} происходило существенно менее эффективно (несмотря на большее, чем при $\lambda_{\text{возб}} = 1,064$ мкм, сечение поглощения из основного состояния), что объясняется малым ($\sim 5 \cdot 10^{-23} \text{ см}^2$) значением сечения поглощения на этой длине волны из метастабильного состояния 3H_4 .

Отметим интересную особенность данной системы. Из (1) следует, что в квазистационарном приближении ($dn_3/dt = 0$), которое справедливо при высоких ($\geq 8 \cdot 10^{20} \text{ см}^{-3}$) концентрациях ионов Tm^{3+} , существует (при $k_1 = 0$) некоторое критическое значение интенсивности стационарной накачки $k_2^{\text{крит}}$:

$$k_2^{\text{крит}} = w_{21} [(1 + (w_{32} + 2w_{31}) / (\beta n_1 - w_{31}))], \quad (2)$$

при переходе через которое кардинальным образом меняется вся картина заселения возбужденных состояний Tm^{3+} . При выполнении условия $\beta n_1 \gg w_{31}, w_{32}$, из (2) следует, что $k_2^{\text{крит}} \approx w_{21}$; при этом для населенности уровня 2 имеем

$$dn_2/dt \approx k_2 n_2 - w_{21} n_2, \quad (3)$$

Таким образом, при наличии постоянной накачки k_2 , при условии $w_{21} = k_2$, возбуждения, попавшие на уровень два, останутся там на неограниченное время. При $k_2 > k_2^{\text{крит}}$, заброс возбуждений на второй уровень приведет к дальнейшему росту его населенности, а при $k_2 < k_2^{\text{крит}}$ населенность этого уровня будет уменьшаться с постоянной времени, которая может быть существенно больше собственного времени жизни уровня ${}^3\text{H}_4\text{Tm}^{3+}$.

Анализ показал, что аналогичные описанным выше ситуации могут реализоваться и на кристаллах ИСГГ: Er^{3+} , при этом роль второго уровня играет состояние ${}^4I_{13/2}$, которое заселяется в результате кросс-релаксационных процессов, происходящих с участием уровня ${}^4S_{3/2}$ (${}^4S_{3/2} \rightarrow {}^4I_{13/2}$; ${}^4I_{15/2} \rightarrow {}^4I_{9/2} \rightarrow {}^4I_{11/2} \rightarrow {}^4I_{13/2}$ и другие).

Таким образом, в настоящей работе предложен новый способ возбуждения TR^{3+} ионов на переходах из возбужденных состояний. Полученные результаты открывают новый подход к поиску и оценке эффективности активных сред твердотельных лазеров, в особенности, лазеров, работающих при селективной и диодной накачке. При этом, при анализе спектров поглощения ионов-активаторов следует отказаться от традиционного представления, что поглощение излучения накачки на переходе из возбужденного состояния является безусловно вредным фактором. Напротив, целесообразным является поиск таких ситуаций, в которых возбужденное поглощение будет служить эффективному энергонакоплению в активной среде, а, следовательно, и повышению эффективности работы лазера.

Литература

1. Жариков Е.В., Калигин С.П., Лаптев В.В. и др. Квантовая электроника, 1986, **13**, 216.