

НОВЫЙ МЕТОД ЛАЗЕРНО-СПЕКТРОСКОПИЧЕСКОГО ИССЛЕДОВАНИЯ ТВЕРДЫХ ТЕЛ С НЕОДНОРОДНО УШИРЕННЫМИ СПЕКТРАМИ

*О.К.Алимов, Т.Т.Басиев, Ю.К.Воронько,
В.С.Федоров*

В работе предлагается новый вариант метода селективного лазерного возбуждения при помощи которого вскрыта штарковская структура неоднородно уширенных полос поглощения $^4I_{9/2} \rightarrow ^2G_{7/2}; ^4G_{5/2}$ монов Nd^{3+} в силикатном стекле. Впервые построена обзорная диаграмма положения штарковских уровней состояний $^2G_{7/2}; ^4G_{5/2} (Nd^{3+})$ в стекле. Демонстрируются новые возможности изучения миграции энергии по спектрам лазерного возбуждения люминесценции Nd^{3+} с селекцией по времени и спектру.

В данной работе описывается новая методика спектральных исследований с использованием селективного лазерного возбуждения (СЛВ), позволяющая получить информацию о структуре сложных неоднородно уширенных спектров поглощения редкоземельных (РЗ) ионов в кристаллах и стеклах. Она основана на снятии спектров монохроматического возбуждения люминесценции при помощи перестраиваемого узкополосного ($\Delta\lambda_{\Gamma} < 1\text{ \AA}$) лазерного спектрометра ($\lambda_{\Gamma} - \text{vary}$) с использованием селективной регистрации излучения по времени (t_3) и по спектру ($\lambda_{\text{Л}}$) $I(t_3; \lambda_{\text{Л}}) = f(\lambda_{\text{В}})$ (установка описана в работе [1]).

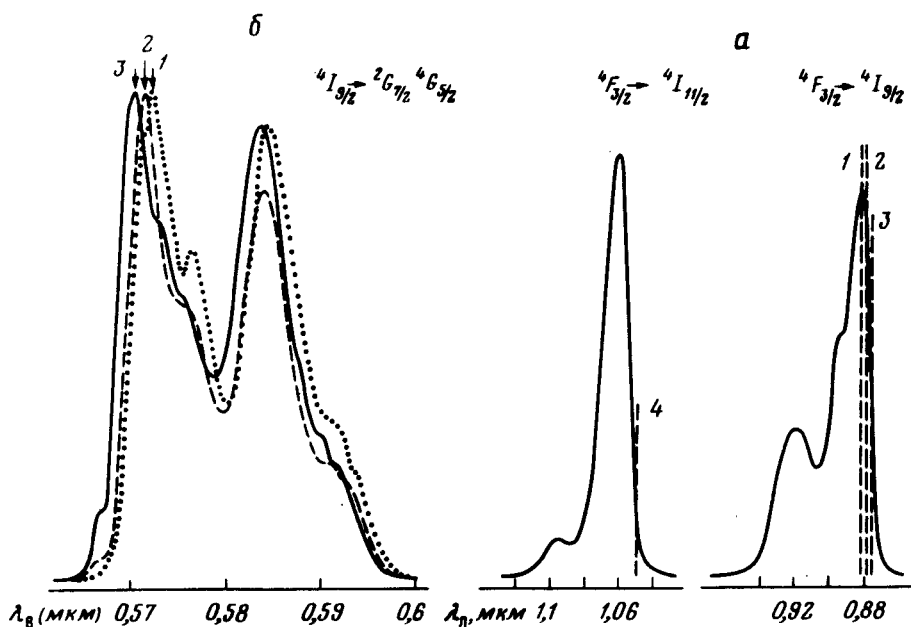


Рис. 1. *a* – Спектры люминесценции ионов Nd^{3+} в ЛГС-28, *б* – спектры монохроматического возбуждения люминесценции на переходе ${}^4I_{9/2} \rightarrow {}^2G_{7/2}; {}^4G_{5/2}$ при селективной регистрации свечения на переходе ${}^4F_{3/2} \rightarrow {}^4I_{9/2}$. Кривые 1, 2, 3 соответствуют длинам волн, помеченным пунктирами 1, 2, 3 на рис. 1, *a*

Рассмотрим новые возможности данной методики на примере исследования структуры абсорбционного перехода ${}^4I_{9/2} \rightarrow {}^2G_{7/2}; {}^4G_{5/2}$ ионов Nd^{3+} в промышленном лазерном стекле ЛГС-28, которое обладает большим неоднородным уширением спектров, обусловленным тем, что ионы Nd^{3+} находятся в структурно-неэквивалентных положениях основы. На рис. 1, *a* представлены спектры люминесценции основных переходов ${}^4F_{3/2} \rightarrow {}^4I_{9/2}$ и ${}^4F_{3/2} \rightarrow {}^4I_{11/2}$ иона Nd^{3+} , снятые при неселективном возбуждении и $T = 77\text{ K}$. При помощи монохроматора мы выделяли из этих сложных малоструктурных спектров узкие спектральные

области регистрации свечения $\left(\lambda_{\text{л}} \pm \frac{\Delta\lambda_{\text{л}}}{2}\right)$ (помеченные пунктирными

линиями 1, 2, 3 на рис.1, а) и записывали спектр возбуждения этой люминесценции сканированием частоты перестраиваемого лазера по полосе, соответствующей изучаемому переходу. Эти измерения проводились при малой концентрации Nd_2O_3 — 0,3% вес. и малом времени задержки момента регистрации люминесценции относительно момента ее возбуждения. На рис.1, б кривыми 1, 2, 3 приведены три спектра возбуждения в полосе перехода ${}^4I_{9/2} \rightarrow {}^2G_{7/2}$; ${}^4G_{5/2}$ для трех различных длин волн регистрации люминесценции. Видно, что спектры возбуждения обладают хорошо выраженной структурой и вид их существенно зависит от длины волны регистрации ($\lambda_{\text{л}}$). Число спектральных компонент (6 + 7) существенно превосходит обычно наблюдаемое в спектре поглощения (4) и приближается к максимально возможному числу штарковских уровней $3({}^4G_{5/2}) + 4({}^2G_{7/2})$.

Анализ энергетического положения штарковских компонент уровней ${}^2G_{7/2}$; ${}^4G_{5/2}$ в зависимости от длины волны регистрации $\lambda_{\text{л}}$ позволил нам впервые построить обзорную диаграмму энергетических уровней для непрерывного набора оптических центров Nd^{3+} в стекле рис.2. По оси абсцисс отложена энергия люминесцирующего перехода ${}^4F_{3/2} \rightarrow {}^4I_{9/2}$, а по оси ординат — энергии штарковских компонент уровней ${}^2G_{7/2}$; ${}^4G_{5/2}$. В нижней части диаграммы представлен фрагмент спектра люминесценции перехода ${}^4F_{3/2} \rightarrow {}^4I_{9/2}$, где заштрихованными частями по-

казаны области спектра $\lambda_{\text{л}} \pm \frac{\Delta\lambda_{\text{л}}}{2}$, последовательно выделяемые монохроматором.

Запись спектров монохроматического возбуждения при регистрации слабого свечения с возбужденной штарковской компонентой метастабильного уровня ${}^4F_{3/2}$, которая слабо заселена при $T = 77\text{ К}$, позволила впервые определить ее энергетическое положение и вариации штарковских расщеплений уровня ${}^4F_{3/2}$ от центра к центру Nd^{3+} в стекле $\Delta E({}^4F_{3/2})$. Оказалось, что ΔE плавно растет при переходе от низкоэнергетических центров $\Delta E = 85\text{ см}^{-1}$ к высокоэнергетическим $\Delta E = 160\text{ см}^{-1}$.

Таким образом, предлагаемый нами метод спектроскопии монохроматического возбуждения с селекцией люминесценции по времени и спектру впервые дал возможность выявить тонкую структуру неоднородно уширенных коллективных спектров поглощения ${}^4I_{9/2} \rightarrow {}^4G_{5/2}$; ${}^2G_{7/2}$ ионов Nd^{3+} в стекле. Это позволило получить новую информацию о положении штарковских компонент высоколежащих энергетических уровней ${}^4G_{5/2}$; ${}^2G_{7/2}$; ${}^4F_{3/2}$ и об изменении величин штарковских расщеплений от центра к центру Nd^{3+} , которая не могла быть получена традиционными спектроскопическими методами.

Кроме того, данная методика дает новые возможности для экспериментального наблюдения эффекта миграции энергии по метастабильным уровням спектрально неэквивалентных оптических центров.

На рис.3 приведены спектры монохроматического возбуждения ионов Nd^{3+} (переход ${}^4I_{9/2} \rightarrow {}^2G_{7/2}$; ${}^4G_{5/2}$) при селективной регистрации люминесценции на длине волны $\lambda_{\text{л}} = 1,05\text{ мкм}$ (пунктир 4 на рис.1, а) и при различных задержках t_3 момента регистрации люминесценции от

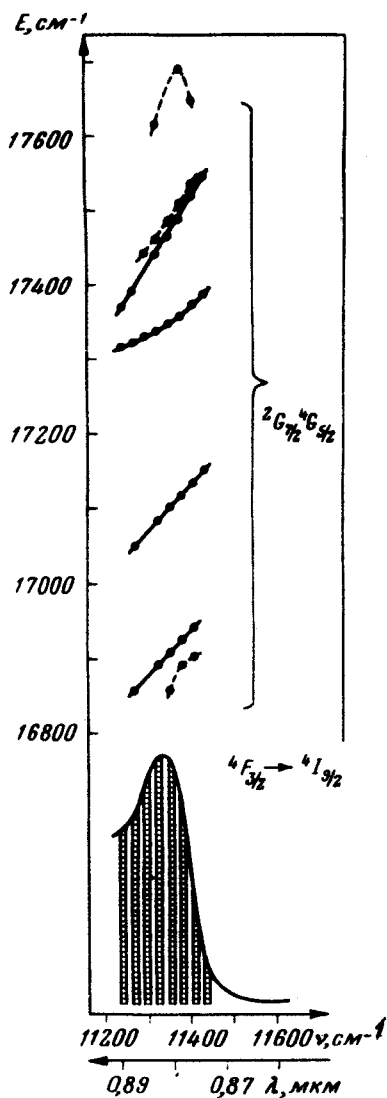


Рис.2. Обзорная диаграмма положения штарковских компонент уровней ${}^2G_{7/2}$ $G_{5/2}$ для различных оптических центров Nd^{3+} в стекле

момента ее возбуждения. Спектры снимались при температуре 77 K на образцах стекол с концентрацией Nd_2O_3 2 вес.%, при которой обычно начинают проявляться межионные взаимодействия $Nd^{3+} \rightleftharpoons Nd^{3+}$. Кривая 1 на рис.3 представляет собой спектр возбуждения, снятый при малом времени задержки $t_3 = 50$ мксек. Тонкая структура этого спектра отражает положение абсорбционных переходов только для той группы ионов Nd^{3+} , люминесценция которых непосредственно регистрируется ($\lambda_{\text{л}} = 1,05$ мкм). С увеличением времени задержки $t_3 = 400$ мксек (кривая 2 на рис.3) в спектре возбуждения начинают появляться дополнительные линии большого числа различных центров, которые к моменту времени $t_3 = 400$ мксек успевают передать энергию возбуждения со своего метастабильного уровня ${}^4F_{3/2}$ на уровень ${}^4F_{3/2}$ центра, выделенного селективной регистрацией $\lambda_{\text{л}} = 1,05$ мкм. Результатом такого переноса энергии является нивелирование тонкой структуры и уширение

линий в спектре возбуждения, который с ростом t_3 приближается по виду к коллективному спектру поглощения ионов Nd^{3+} в стекле. Особенностью предлагаемой схемы исследования спектрально-пространственной миграции энергии является направленность этого процесса, а именно, перенос энергии от большого числа спектрально неэквивалентных центров к одному выделенному центру, что и отличает ее от известной ранее схемы наблюдения миграции [2].

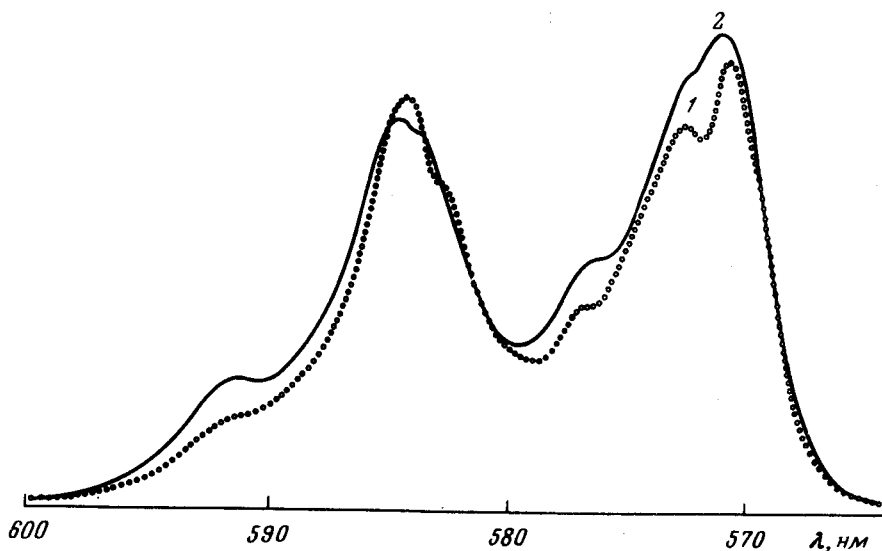


Рис.3. Временная эволюция спектров монохроматического возбуждения при селективной регистрации люминесценции $\lambda_{\text{л}} = 1.05 \mu\text{м}$ (пунктир 4 на рис.1, а). Кривая 1 — $t_3 = 50 \mu\text{сек}$, кривая 2 — $t_3 = 400 \mu\text{сек}$. $C = 2 \text{ вес.}\%$. $T = 77 \text{ К}$

Изучение подобного механизма миграции энергии может оказаться важным с практической точки зрения для лазеров, генерирующих узкие спектральные линии на активных средах с большим неоднородным уширением спектров. В таких лазерах миграция энергии может способствовать дополнительной монохроматизации световой энергии до ее вынужденного когерентного испускания.

Физический институт
им. П.Н.Лебедева
Академии наук СССР

Поступила в редакцию
5 декабря 1978 г.

Литература

- [1] О.К.Алимов, Т.Т.Басиев, Ю.К.Воронько, Ю.В.Грибков, А.Я.Карасик, В.В.Осико, А.М.Прохоров, И.А.Щербаков. ЖЭТФ, 74, 57, 1978.
[2] О.К.Алимов, Т.Т.Басиев, Ю.К.Воронько. Л.С.Гайгерова, А.В.Дмитрюк. ЖЭТФ, 72, 1313, 1977.