

ПРОЯВЛЕНИЕ ЭЛЕКТРОН-ФОНОННОГО ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ ПРИ ГЕНЕРАЦИИ В СИСТЕМЕ КРИСТАЛЛ + Nd³⁺

Д.Н.Вылегжанин, А.А.Каминский

1. Обнаружено явление увеличения энергии генерации (E_{Γ}) при повышении температуры (T) в ОКГ на основе ряда кристаллов, активированных ионами Nd³⁺, при энергиях возбуждения ($E_{\text{воз}}$), значительно превышающих пороговую ($E_{\text{п}}$). Этот эффект объясняется активизацией процессов электрон-фононного взаимодействия, проявляющейся в ускорении распада конечного для индуцированного излучения (ИИ) состояния $^4I_{11/2}$. Ниже приводятся краткое описание эффекта и его интерпретация на примере исследования $Y_3Al_5O_{12} - Nd^{3+}$.

2. Обычно при теоретическом рассмотрении функциональных характеристик ОКГ на основе сред с ионами Nd³⁺ с помощью кинетических уравнений для упрощения анализа предполагается, что вероятности безызлучательных переходов $^4F_{5/2}, ^2H_{9/2} \rightarrow ^4F_{3/2}$ и $^4I_{11/2} \rightarrow ^4I_{9/2}$ значительно превосходят $\sigma_e^p l$ (здесь σ_e^p – пиковое значение поперечного сечения перехода, l – плотность излучения на длине волны генерации λ_{Γ}). Это является условием поддержания необходимой инверсии рабочих уровней. Как показывают исследования параметров ИИ, проведенные в интервале 77 – 1000°K, такие допущения при любых практически достижимых $E_{\text{воз}}$ для неодимовых ОКГ справедливы лишь в области T , лежащей обычно выше 300°K. Для меньших T при $E_{\text{воз}}$, значительно превышающих $E_{\text{п}}$, а так же при некоторых особых режимах генерации интенсивность ИИ может возрасти настолько, что скорость дезактивации состояния $^4F_{3/2}$, определяемая, в основном, величиной $\sigma_e^p l$, станет соразмерной с вероятностью w_{21} безызлучательного перехода $^4I_{11/2} \rightarrow ^4I_{9/2}$, и E_{Γ} будет ограничиваться узостью релаксационного канала $^4I_{11/2} \rightarrow ^4I_{9/2}$.

3. Опыты проводились с кристаллами $Y_3Al_5O_{12} - Nd^{3+}$ (~0,3 вес.%, $l=30$ мм диаметр 5,5 мм) с использованием обычной экспериментальной техники. Основной изучаемой характеристикой являлся параметр E_{Γ} и его зависимость от $n = E_{\text{воз}}/E_{\text{п}}$ при различных T (см. рис. 1 и 2). В эксперименте учитывались: точный ход зависимости $E_{\text{п}}(T)$, влияние эффекта "УФ-выключения ИИ" [1], режим возбуждения и ряд других условий. Наиболее интересными фактами, вы-

текающими из приведенных результатов, являются возрастание E_{Γ} с повышением T при неизменном n , а также отклонение зависимостей $E_{\Gamma}(n)$ при $n \gtrsim 30$ от линейного закона и их тенденцию к насыщению при больших $n (> 100)$.

E_{Γ} , атм. ед.

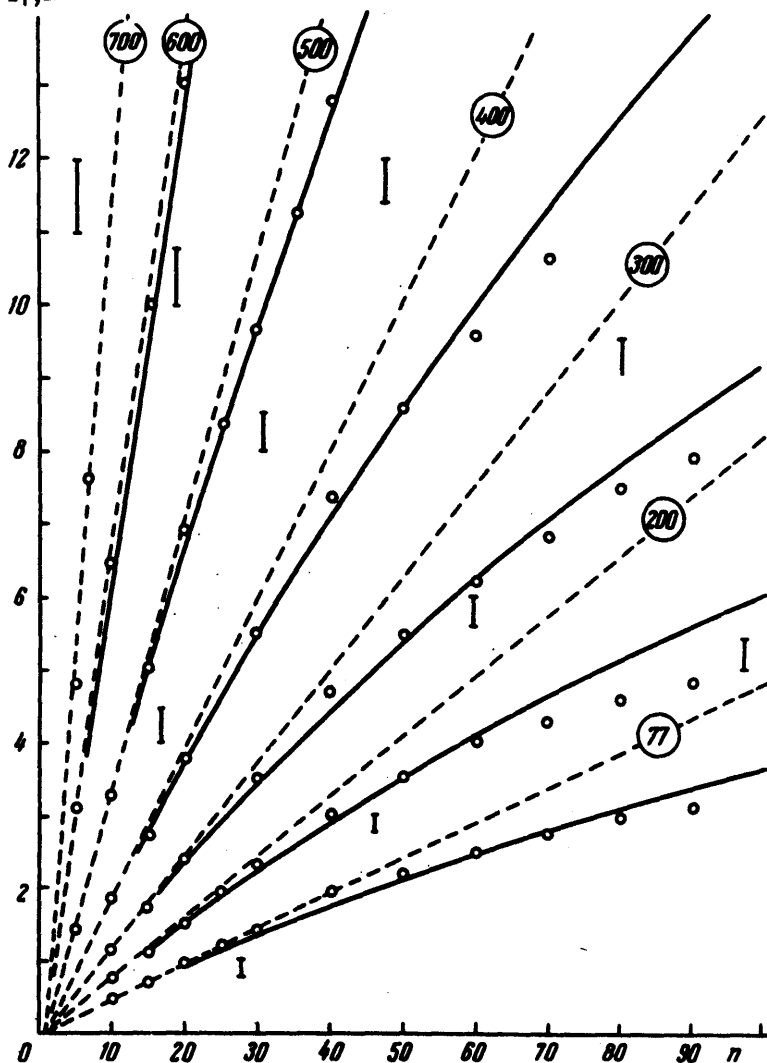


Рис. 1. Зависимости $E_{\Gamma}(n)$, в кружках указана температура в град К

4. Найденные закономерности позволили нам предположить, что эффект насыщения связан с узостью канала бузылучательной релаксации $4I_{11/2} \rightarrow 4I_{9/2}$ и что температурное возрастание энергии генерации объясняется увеличением w_{21} . В этом случае анализ экспериментальных данных дает возможность оценить ход зависимости $w_{21}(T)$. Из решения кинетических уравнений в стационарном приближении получается, что w_{21} и предельное значение E_{Γ} при насыщении ($E_{\Gamma}^{\text{нас}}$) связаны между собой соотношением

$$w_{21} = \frac{E_{\Gamma}^{\text{нас}}}{Nh \nu_r \kappa t_{\Gamma}} \left(1 + \frac{b_4}{b_2} \right) + \frac{1}{r_{\text{люм}}} \frac{b_4}{b_2} ,$$

где N — число ионов Nd^{3+} , κ — отношение выходных потерь к суммарным, $b_i = \sum_j (N_{ij} / N_{1j})$, N_{ij} — населенность i -ой штарковской компоненты, i — номер мультиплета ($i = 2$ для ${}^4I_{11/2}$ и $i = 4$ для ${}^4F_{3/2}$), $\tau_{\text{люм}}$ — время жизни относительно излучательных переходов ${}^4F_{3/2} \rightarrow {}^4I_{11/2} - 15/2$, t_{Γ} — длительность ИИ, $h\nu_{\Gamma}$ — энергия фотона на λ_{Γ} . Величина $E_{\Gamma}^{\text{нас}}$ определялась следующим путем. Можно показать, что

$$E_{\Gamma}(n, T) = \text{tg } \beta_0 \cdot \frac{n-1}{1+na}, \quad (1)$$

где $\text{tg } \beta_0 = E_{\Gamma}(n=n') / (n'-1)$ при $n'a \ll 1$, a — параметр насыщения, который можно определить, рассмотрев при различных T ход функции

$$\frac{E_{\Gamma}(n)}{E_{\Gamma}(n')} = \frac{E_{\Gamma}}{E'_{\Gamma}} = \frac{n-1}{n'-1} \frac{1}{1+(n-n')a}$$

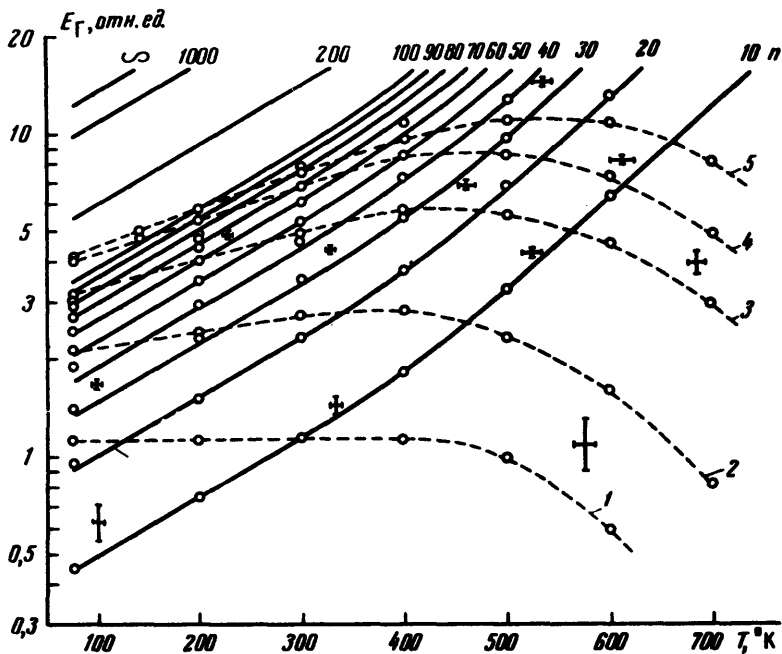


Рис. 2. Зависимости $E_{\Gamma}(T)$ при различных n (сплошные линии) и при мощностях возбуждения (штриховые линии): 1 — 35; 2 — 75; 3 — 150, 4 — 220, 5 — 300 квт

В нашем случае для величины a получена следующая приблизительная зависимость: $a = (3,5 \pm 1,0) \cdot 10^{-4} \sqrt{T}$. Из (1) получаем соотношение $E_{\Gamma}^{\text{нас}} = E'_{\Gamma} / a(n'-1)$, позволяющее определять $E_{\Gamma}^{\text{нас}}$ по значению E_{Γ} при малых n , вполне достижимых в опыте даже при сравнительно высоких T (в нашем случае до $\sim 700^{\circ}\text{K}$).

5. Зависимость $w_{21}(T)$, полученная на основании приведенных экспериментальных результатов, показана на рис. 3. Эта зависимость удовлетворительно аппроксимируется выражением [2]

$$w_{21}(T) = 7 \cdot 10^4 \left(\frac{\exp[(400 \text{ см}^{-1})hc/kT]}{\exp[(400 \text{ см}^{-1})hc/kT] - 1} \right)^3 \left(\frac{1 + \exp[-(23 \text{ см}^{-1})hc/kT]}{b_2} \right),$$

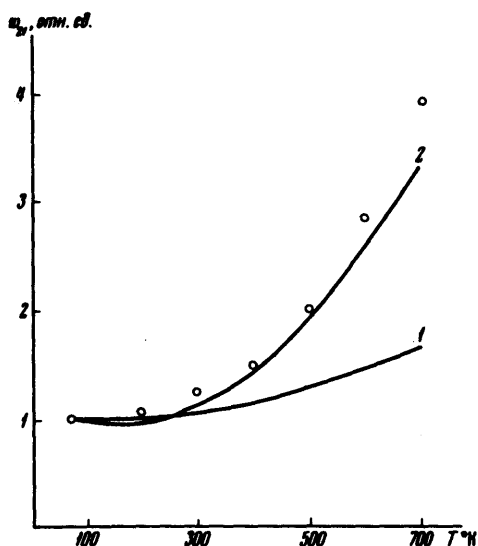


Рис. 3. Зависимости $w_{21}(T)$: 1 и 2 – теоретические кривые соответственно для двух- и трехфононных процессов релаксации

которое соответствует безызлучательному распаду состояния $4I_{11/2}$, происходящему путем излучения 3-х фононов с энергией около 400 см^{-1} при переходах с его нижних двух уровней (2002 и 2025 см^{-1}) на верхнюю компоненту ($\sim 850 \text{ см}^{-1}$) мультиплета $4I_{9/2}$. Описанный способ оценки абсолютного значения w_{21} является весьма косвенным и поэтому не может претендовать на высокую точность. В частности, возможную величину $w_{21}(0)$, по нашему мнению, следует ограничить интервалом $7 \cdot 10^{(4 \pm 1)} \text{ сек}^{-1}$. Относительное изменение $w_{21}(T)$ определяется зависимостью $E_{\Gamma}(n')$ от температуры и измеряется с большей точностью. Малая величина w_{21} свидетельствует о слабости электрон-фононного взаимодействия для ионов Nd^{3+} в $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ и согласуется с такими известными фактами, как сравнительно небольшое температурное уширение линий и слабое проявление электронно-колебательной структуры в оптических спектрах Nd^{3+} . Отметим, что по данным работы [3] фононный спектр $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ простирается до $\sim 860 \text{ см}^{-1}$. Анализ мод решеточных колебаний, проведенный в [3], показал, что часть этого спектра, лежащая выше $\sim 620 \text{ см}^{-1}$, принадлежит комплексу $(\text{AlO}_4)^{5-}$, в то время как частоты колебаний, в которых принимает участие ион Y^{3+} , лежат до $\sim 580 \text{ см}^{-1}$. Имея это в виду, малую величину "эффективного" дебаевского фонона, вытекающую из нашего анализа, можно объяснить тем, что ионы Nd^{3+} , которые замещают Y^{3+} , слабо взаимодействуют с колебаниями комплекса $(\text{AlO}_4)^{5-}$. Полученная нами величина "эффективного" фонона хорошо согласуется с данными работы [4], в которой T_D , определенная по температурному смещению линий Nd^{3+} в $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$, оказалась равной $\sim 600^\circ\text{K}$.

6. В прикладном аспекте обнаруженное явление также представляется нам весьма важным, так как температурное возрастание ω_{21} позволяет увеличить E_T при заданной мощности возбуждения ($P_{\text{воз}}$) путем подбора оптимальной $T(T_{\text{оп}})$. Так для $P_{\text{воз}} \approx 300 \text{ кВт}$ $T_{\text{оп}} \approx 550^\circ\text{K}$. Как видно из рис. 2 (кривая 5), в этом случае высокотемпературный режим дает повышение эффективности ОКГ по сравнению с $T = 300^\circ\text{K}$ на $\sim 30\%$. При других условиях ИИ, особенно в режиме модулированной добротности, подбором $T_{\text{оп}}$ можно достичь еще большего повышения КПД. Данные проведенных исследований показывают, что существование узкого фононного канала может являться одной из причин малой эффективности "низкотемпературных" ОКГ на основе сред с ионами Nd^{3+} .

Поступила в редакцию
17 апреля 1970 г.

После переработки
15 мая 1970 г.

Институт кристаллографии
Академии наук СССР

Литература

- [1] A.A.Kaminskii. Phys. Stat. Sol. (a), 1, 573, 1970.
 - [2] L.A.Riseberg, H.W.Moos. Phys. Rev., 174, 429, 1968.
 - [3] G.A.Slaek, D.W.Oliver, R.M.Chrenko, S.Roberts. Phys. Rev., 177, 1308, 1969.
 - [4] T.Kushida. Phys. Rev., 185, 500, 1969.
-