

Н. К. БЕЛЬСКИЙ, Д. А. МУХАМЕДОВА

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЕ ОПРЕДЕЛЕНИЕ ИНВЕРСНОЙ
НАСЕЛЕННОСТИ В КРИСТАЛЛЕ $\text{CaWO}_4 : \text{Nd}^{3+}$

(Представлено академиком И. В. Обреимовым 2 XI 1970)

При термодинамическом равновесии населенность уровней определяется известной формулой Больцмана. В обычных условиях эксперимента она хорошо описывает наблюдаемые факты. Однако при импульсной оптической накачке населенность уровней может оказаться инверсной, т. е. верхний уровень населен больше, чем нижний, и возникает задача определения населенности уровней в этом случае.

В работах (1, 2) описано наблюдение отрицательной дисперсии света, которое можно использовать для определения инверсной населенности уровней.

Нами измерялась в условиях импульсной оптической накачки населенность уровней, переход между которыми дает линию 9447 см^{-1} в $\text{CaWO}_4 : \text{Nd}^{3+}$. На рис. 1 приведена схема уровней иона Nd^{3+} в этом кристалле. Верхним состоянием изучаемого перехода является один из двух уровней мультиплета ${}^4F_{3/2}$, нижним — один из уровней мультиплета ${}^4J_{1/2}$.

Отрицательная дисперсия двупреломления в области 9447 см^{-1} получена в нашей работе (2) с помощью кварцевого клина. Кристалл $\text{CaWO}_4 : \text{Nd}^{3+}$ (длина 46 мм, диаметр 6 мм) накачивался светом импульсной лампы в эллиптическом осветителе. Энергия накачки превышала приблизительно в пять раз энергию, при которой начиналась генерация индуцированного излучения на частоте максимума исследуемой линии с внешними диэлектрическими зеркалами при комнатной температуре. Изменение показателя преломления, обусловленное отрицательной дисперсией, $3 \cdot 10^{-6}$.

Исследуемая линия 9447 см^{-1} не изолированная. Около нее лежат другие линии перехода ${}^4F_{3/2} \rightarrow {}^4J_{1/2}$ как в σ -, так и в π -поляризации. Эти линии вносят вклад в дисперсию двупреломления. На рис. 2 приведена кривая отрицательной дисперсии (3) отдельно для линии 9447 см^{-1} и экспериментальные точки отрицательной дисперсии двупреломления. Сдвиг экспериментальных точек относительно теоретической кривой обусловлен влиянием соседних линий. Как видно на рис. 2, это влияние уменьшает размах кривой дисперсии двупреломления (пунктирная кривая) по сравнению с размахом кривой дисперсии исследуемой линии (примерно в 1,5 раза). Это обстоятельство учитывалось в дальнейших расчетах.

При комнатной температуре поглощение при 9447 см^{-1} в $\text{CaWO}_4 : \text{Nd}^{3+}$ не наблюдалось. Один из авторов настоящей статьи измерил поглощение при 580, 640, 740, 790 и 850° К (4). Кривая поглощения при температуре

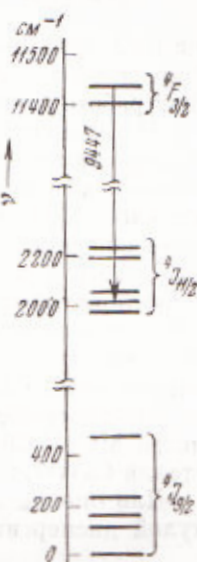


Рис. 1. Схема уровней иона Nd^{3+} в кристалле $\text{CaWO}_4 : \text{Nd}^{3+}$. Стрелкой обозначен переход между уровнями, для которых определялась населенность

580° К приведена на рис. 3. Силу осциллятора ($4,6 \cdot 10^{-3}$), подсчитанную для этой температуры, мы берем для всех расчетов, поскольку температурная зависимость силы осциллятора, если она есть, очень слабая (⁴). Наибольший вклад в силу осциллятора вносит исследуемая линия, однако, как уже отмечалось, на ее крыльях имеются спутники, перекрывающиеся с ней, соответствующие переходам между другими состояниями мультиплетов ${}^3F_{3/2}$ и ${}^4J_{1/2}$. На рис. 3 представлена попытка разделить кривую поглощения на отдельные компоненты. В этом случае площадь исследуемой кривой (рис. 3, 3) составляет примерно половину всей площади под кривой поглощения и линии 9447 см⁻¹ соответствует сила осциллятора $2,3 \cdot 10^{-5}$.

Положение линии 9447 см⁻¹ измерялось по максимуму кривой люминесцен-



Рис. 2. 1 — отрицательная дисперсия для линии 9447 см⁻¹ по (3); расчетные (2) и экспериментальные (3) значения отрицательной дисперсии двуупреомления.

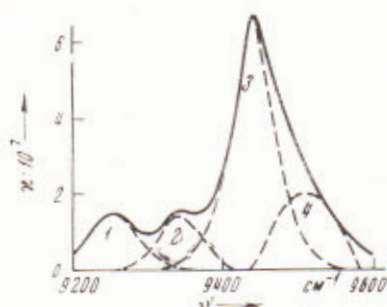


Рис. 3. Поглощение кристалла CaWO₄:Nd³⁺ в π-поляризации при T = 580° К. Пунктиром изображены аппроксимирующие кривые

ции в π-поляризации, который совпадает с длиной волны генерации индуцированного излучения в этом кристалле. Волновые числа переходов в нашей работе даются приведенными к вакууму. Половинная ширина 32 см⁻¹.

Населенность нижнего уровня (N_j) перехода, соответствующего исследуемой линии (см. рис. 1), подсчитывалась по формуле Больцмана. Статистические веса верхнего (g_k) и нижнего (g_j) состояний в нашем случае одинаковы. Неизвестная концентрация неодима в кристалле CaWO₄:Nd³⁺ измерена методом эмиссионной спектроскопии. Часть исследуемого кристалла была растерта в агатовой ступке в порошок, который помещался в кратер угольного электрода. Образец испарился в дуге переменного тока 10а. Эталонами служили смеси кристаллических порошков вольфрамата кальция и вольфрамата неодима. В качестве внутреннего стандарта использовался лантан. Спектры образцов и эталонов фотографировались на спектрографе ДФС-13, пластинки фотометрировались на микрофотометре МФ-4. Содержание неодима оказалось $1,3 \cdot 10^{20}$ атомов в 1 см³ кристалла CaWO₄:Nd³⁺, N_j составляет $3,5 \cdot 10^{15}$ в 1 см³ при 300° К.

Для оценки населенности верхнего уровня (N_k) мы пользовались формулой дисперсии

$$\mu = \frac{2\pi e^2 f_{jk}}{m\mu_0 \omega_{jk}} N_j \left(1 - \frac{N_k}{N_j} \frac{g_j}{g_k} \right) \frac{\omega_{jk} - \omega}{(\omega_{jk} - \omega)^2 + 1/4\gamma^2}.$$

Здесь μ — изменение показателя преломления, обусловленное исследуемой линией поглощения; f_{jk} и ω_{jk} — сила осциллятора и частота перехода; μ_0 — среднее значение показателя преломления вещества в области линии поглощения; γ — половинная ширина; e и m — заряд и масса электрона. Подставляя в эту формулу величину отрицательной дисперсии для линии 9447 см⁻¹, получаем, что в условиях накачки $N_k = 2,8 \cdot 10^{18}$ атомов в 1 см³.

Таким образом, населенность верхнего уровня на три порядка больше населенности нижнего. Неточности такого определения населенности состоят в следующем. Во-первых, применяемая теория дисперсии выведена для случая изолированной линии в газе. Во-вторых, положение соседних

линий, о которых говорилось выше, снижает точность определения силы осциллятора и величины дисперсии для линии 9447 см^{-1} и позволяет оценить населенность верхнего уровня только по порядку величины. Использование изолированной резко поляризованной линии может существенно увеличить точность метода.

Для сравнения с отрицательной дисперсией нами была сделана попытка получить аномальную дисперсию на той же линии без оптической накачки. Оптическая схема эксперимента та же, что и при измерении отрицательной дисперсии, кроме схемы оптической накачки. При комнатной температуре аномальная дисперсия не наблюдалась. Расчет показывает, что при комнатной температуре недостаточна населенность нижнего уровня, однако при повышении температуры кристалла до нескольких сот градусов по Кельвину населенность нижнего уровня должна возрасти настолько, что дисперсия может наблюдаться. Кристалл $\text{CaWO}_4 : \text{Nd}^{3+}$ был нагрет во время опыта в трубчатой электрической печи. Аномальную дисперсию удалось наблюдать при температуре 850° К . При этой температуре населенность нижнего уровня $N_1 = 1,2 \cdot 10^{18}$ в 1 см^3 , т. е. близка к величине, полученной нами из измерения отрицательной дисперсии для населенности верхнего уровня в условиях оптической накачки. Таким образом, опыт по аномальной дисперсии подтверждает правильность оценки инверсной населенности.

Авторы выражают благодарность акад. И. В. Обреновцу за руководство работой.

Институт общей и неорганической химии
им. Н. С. Курнакова
Академии наук СССР
Москва

Поступило
23 IV 1970

ЦИТИРОВАННАЯ ЛИТЕРАТУРА

- ¹ Н. К. Бельский, А. М. Леонтович, ЖЭТФ, 48, № 2, 752 (1965). ² Н. К. Бельский, Д. А. Мухамедова, ДАН, 185, № 3, 545 (1968). ³ Э. И. Рашба, Диссертация, Киев, 1955. ⁴ Д. А. Мухамедова, ДАН, 188, № 5, 1028 (1969).