

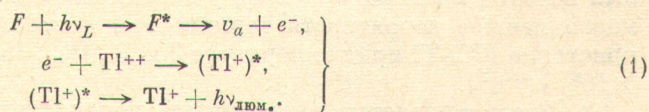
КИНЕТИКА УСИЛЕНИЯ СВЕТА НА АКТИВАТОРНЫХ ЦЕНТРАХ В ОКРАШЕННЫХ ЩЕЛОЧНО-ГАЛОИДНЫХ КРИСТАЛЛАХ

Г. И. Асеев, М. Л. Кац, Б. А. Медведев, В. К. Никольский и Т. Г. Силкина

Исследована кинетика процессов, приводящих к созданию инверсии населенности и усилению света в окрашенных щелочно-галлоидных кристаллах, активированных ртутеподобными ионами. Методом решения кинетических уравнений для концентраций электронов получено общее выражение для коэффициента усиления на длине волны максимума полосы рекомбинационной люминесценции ($\lambda \approx 4320 \text{ \AA}$) в кристаллах КJ-Tl и KBr-In. Численные оценки величины коэффициента усиления хорошо согласуются с экспериментальными данными.

Успешные работы Молленауэра и Олсона [1] по наблюдению генерации излучения на центрах окраски в щелочно-галлоидных кристаллах (ЩГК) и возможность перестройки частоты в ИК области стимулировали дальнейшее исследование ЩГК как активных сред оптических квантовых генераторов. Генерация излучения наблюдалась на F_A (II) [1], F_2 [2], F_2^+ [3, 4], F_B (II)-центрах [5] окраски.

В работе [6] наблюдалось усиление излучения активаторными центрами в окрашенном кристалле КJ-Tl. Создание инверсии населенностей на центрах свечения — ионах Tl^+ — обусловлено механизмом рекомбинационной люминесценции с захватом освобожденного из F - или M -центра электрона двухзарядным ионом Tl. В результате образуются люминесцирующие центры в возбужденном состоянии $(Tl^+)^*$ с временем жизни $\sim 10^{-4}$ с. Процесс происходит по схеме



Благодаря такому заселению активаторных возбужденных центров при накачке в области F -полосы можно создать инверсию населенностей на излучающем уровне активатора и наблюдать вынужденное излучение. Аналогичный способ создания инверсии населенностей и наблюдение усиления в ЩГК могут быть в принципе осуществлены и на других ртутеподобных ионах.

На рис. 1, а представлена энергетическая схема уровней активатора A -типа (In, Tl) и F -центра. Центр окраски и активаторный центр аппроксимированы четырьмя уровнями. Накачка производится в F -полосе (переход $1 \rightarrow 4$). Электрон с уровня 4 переходит в релаксированное возбужденное состояние 3. При комнатной температуре за счет процессов термической ионизации осуществляется переход электрона из состояния 3 в зону проводимости 5. Переход $4 \rightarrow 5$ не успевает произойти, так как его вероят-

ность намного меньше вероятности безызлучательной релаксации $4 \rightarrow 3$. Рекомбинация электрона из зоны проводимости с ионами активатора A^{++} приводит к созданию возбужденных центров $(A^+)^*$ (переход $5 \rightarrow 6$), которые являются центрами свечения. В канале $7 \rightarrow 8$ происходит спонтанное и вынужденное испускание активатора.

Процесс усиления света на активаторных центрах в ЦГК при накачке в области F - и M -полос является принципиально нестационарным, так как накачка разрушает F - и M -центры.

Ниже нами исследована кинетика процессов, приводящих к созданию инверсии населенностей и усилению в ртутеподобных активаторных центрах в ЦГК во временном интервале, сравнимом с временем жизни возбужденного состояния люминесцирующих центров. При решении уравнений были сделаны упрощения.

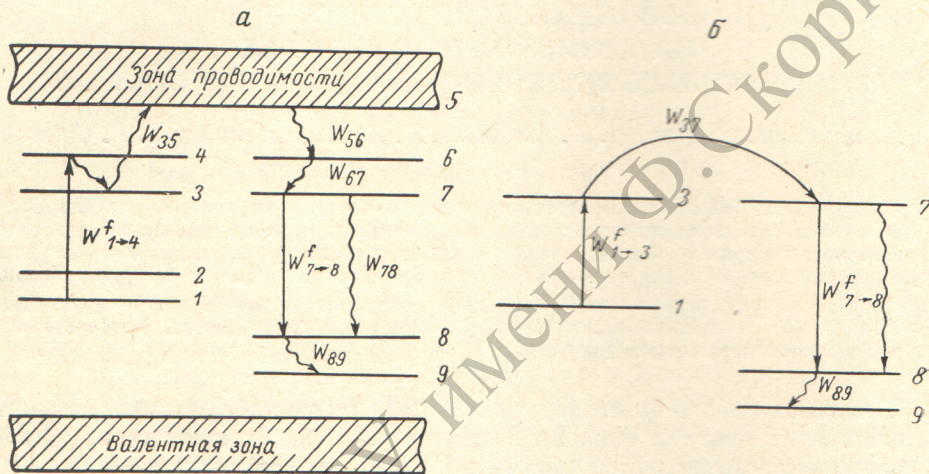


Рис. 1. Схема энергетических уровней активатора и F -центра.

а — общая схема, б — упрощенная схема.

1. F -центр аппроксимируется двумя уровнями энергии — основным 1 и релаксированным возбужденным 3. Это обусловлено тем, что накачка в канале $1 \rightarrow 4$ приводит в конечном счете к заселению уровня 3, так как вероятность колебательной релаксации W_{43} намного больше вероятности термической ионизации с уровня 4 в зону проводимости W_{45} . Радиационный переход в канале $3 \rightarrow 2$ не учитывается, так как его вероятность W_{32} много меньше вероятности термической ионизации W_{35} . Например, для кристалла KCl-Tl при температуре 300 К, $W_{35} = 5.6 \cdot 10^{10} \text{ с}^{-1}$, а $W_{32} = 0.59 \times 10^6 \text{ с}^{-1}$ [7].

2. Рассматривается эффективный переход электрона из релаксированного возбужденного состояния F -центра на возбужденное состояние активатора 6. В действительности передача энергии осуществляется следующим образом: электроны переходят в зону проводимости с вероятностью $W_{35} \geq 10^{10} \text{ с}^{-1}$. Последующая рекомбинация электронов с ионами активатора происходит с вероятностью $W_{56} \sim 10^8 \text{ с}^{-1}$. Вероятность эффективного перехода $3 \rightarrow 6$ W_{36} определяется вероятностью процесса $5 \rightarrow 6$ более медленного по сравнению с переходом $3 \rightarrow 6$.

3. Активаторный центр A^+ аппроксимируется тремя уровнями 7, 8, 9. Переход $3 \rightarrow 6$ приводит фактически к заселению уровня 7, так как уровень 6 опустошается за счет процесса безызлучательной релаксации $6 \rightarrow 7$ за время $t = 10^{-12} \text{ с}$.

Эти упрощения позволяют рассматривать систему, в которой происходит рекомбинационная люминесценция, как пятиуровневую (рис. 1, б). Уравнения, описывающие изменение концентрации электронов на уров-

ных электронного и активаторного центров, имеют для этой системы следующий вид:

$$\left. \begin{aligned} \dot{N}_1 &= -W_{1 \rightarrow 3}^f N_1, \\ \dot{N}_3 &= W_{1 \rightarrow 3}^f N_1 - W_{37} N_3, \\ \dot{N}_7 &= W_{37} N_3 - W_{7 \rightarrow 8}^f N_7 - W_{78} N_7, \\ \dot{N}_8 &= W_{7 \rightarrow 8}^f N_7 + W_{78} N_7 - W_{89} N_8, \\ \dot{N}_9 &= W_{89} N_8. \end{aligned} \right\} (2)$$

Здесь N_i — концентрация электронов на i -м уровне F -центра или активатора ($i=1, 3, 7, 8, 9$). $W_{7 \rightarrow 8}^f$, $W_{1 \rightarrow 3}^f$ — вероятности вынужденных процессов в каналах $7 \rightarrow 8$ и $1 \rightarrow 3$ [8].

Из решения системы (2) при начальных условиях $\sum_i N_i(t=0) = N_1^0$, где N_1^0 — концентрация электронов в основном состоянии F -центра при $t=0$, найдено значение для разности населенностей в канале вынужденного излучения активатора $7 \rightarrow 8$.

$$\begin{aligned} \Delta_{78} = N_7 - N_8 \approx & \frac{W_{37} W_{1 \rightarrow 3}^f N_1^0 (W_{89} - W_{1 \rightarrow 3}^f - W_{78} - W_{7 \rightarrow 8}^f)}{(W_{37} - W_{1 \rightarrow 3}^f)(W_{89} - W_{1 \rightarrow 3}^f)(W_{78} + W_{7 \rightarrow 8}^f - W_{1 \rightarrow 3}^f)} e^{-W_{1 \rightarrow 3}^f t} + \\ & + \frac{W_{1 \rightarrow 3}^f W_{37} N_1^0 (W_{89} - W_{37} - W_{78} - W_{7 \rightarrow 8}^f)}{(W_{1 \rightarrow 3}^f - W_{37})(W_{7 \rightarrow 8}^f + W_{78} - W_{37})(W_{89} - W_{37})} e^{-W_{37} t} + \\ & + \frac{W_{37} W_{1 \rightarrow 3}^f N_1^0 (W_{89} - 2W_{7 \rightarrow 8}^f - 2W_{78})}{(W_{1 \rightarrow 3}^f - W_{78} - W_{7 \rightarrow 8}^f)(W_{37} - W_{7 \rightarrow 8}^f - W_{78})(W_{89} - W_{78} - W_{7 \rightarrow 8}^f)} e^{-(W_{7 \rightarrow 8}^f + W_{78}) t}. \end{aligned} (3)$$

Зависимость Δ_{78} от времени при различных значениях интенсивности накачки I_L в канале $1 \rightarrow 3$ представлена на рис. 2.

Как следует из этого рисунка, большее значение инверсии населенностей достигается в более ранние моменты времени для больших значений интенсивности поля накачки (рис. 2).

В предположении $W_{89} \gg W_{1 \rightarrow 3}^f \gg W_{7 \rightarrow 8}^f$, W_{78} из решения линеаризованного уравнения Максвелла для фиксированного значения поля накачки найдено выражение для коэффициента усиления излучения в канале $7 \rightarrow 8$

$$g = \frac{4\pi\omega_{78} T_2}{hc\eta} L \frac{|\mu_{78}|^2 N_1^0}{3} \left(1 + \frac{W_{37}}{W_{1 \rightarrow 3}^f} \times \right. \\ \left. \times e^{-W_{1 \rightarrow 3}^f \left(t - \frac{z}{c}\right)} - e^{-W_{37} \left(t - \frac{z}{c}\right)} \right), \quad (4)$$

где ω_{78} — частота перехода $7 \rightarrow 8$, T_2 — время поперечной релаксации,

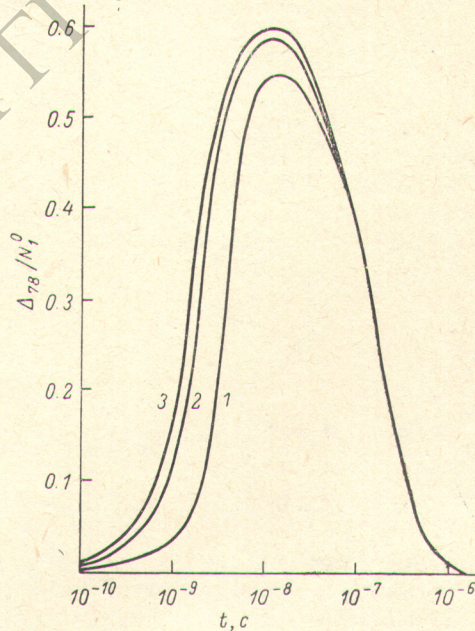


Рис. 2. Временная зависимость Δ_{78} при различных значениях вероятности $W_{1 \rightarrow 3}^f$.

$$W_{1 \rightarrow 3}^f, \text{ c}^{-1}: 1 - 10^9, 2 - 10^{10}, 3 - 10^{11}.$$

c — скорость света, η — показатель преломления среды, μ_{78} — матричный элемент дипольного момента перехода $7 \rightarrow 8$, $L = \left(\frac{\eta^2 + 2}{3} \right)^2$ — фактор Лоренца, z — длина образца.

| Кристалл | λ_{7-8} Å | Полуширина линии излучения, с ⁻¹ | $ P_{78} ^2 \cdot \text{ед. CGSE}$ 10^{-36} | η [%] | $E(\omega_{13})$, ед. CGSE | g , см ⁻¹ |
|----------|-------------------|--|--|------------|--------------------------------|------------------------|
| KJ-Tl | 4321 | $0.481 \cdot 10^{15}$ | 0.5 | 1.65 | $5 \cdot 10^2$ | 1.27 |
| KBr-In | 4324 | $0.577 \cdot 10^{15}$ | 0.396 | 1.66 | $5 \cdot 10^2$ | 0.89 |

Результаты расчета по формуле (4) приведены в таблице. $E(\omega_{13})$ — напряженность поля накачки в канале $1 \rightarrow 3$. Расчет коэффициента усиления проведен при $N_1^0 \sim 10^{17}$ см⁻³. Для кристалла KJ-Tl результаты расчета хорошо согласуются с экспериментальными данными [6].

Литература

- [1] L. F. Mollenauer, D. H. Olson. Appl. Phys. Lett., 24, 386, 1974.
- [2] Ю. Л. Гусев, С. Н. Коноплин, С. И. Маренников. Квант. электрон., 4, 2024, 1977.
- [3] Ю. Л. Гусев, С. И. Маренников, В. П. Чеботаев. Письма ЖТФ, 3, 305, 1977.
- [4] Y. L. Gusev, S. J. Marennikov, V. P. Chebootaew. Appl. Phys., 14, 121, 1977.
- [5] G. Litfin, R. Beigang, H. Welling. Appl. Phys. Lett., 31, 381, 1977.
- [6] Л. Е. Нагли, И. К. Плявинь. Опт. и спектр., 44, 138, 1978.
- [7] А. А. Воробьев. Центры окраски в щелочно-галогидных красителях. Изд. ТГУ, Томск, 1968.
- [8] Г. И. Асеев, М. Л. Кац, В. К. Никольский, Б. А. Медведев, Т. Г. Силкина. Опт. и спектр., 38, 959, 1975.

Поступило в Редакцию 13 июня 1978 г.