

# Nd<sup>3+</sup> 在 YAP 晶体中的光谱参数

张 弘 罗遵度 郑 安 吴承美 李敢生

(中国科学院福建物质结构研究所, 福建, 福州)

**摘要**——根据 Judd-Ofelt 理论, 计算了 Nd:YAP 晶体的实验和理论谱线强度、强度参数  $\Omega_\lambda$  ( $\lambda=2, 4, 6$ )、辐射跃迁几率、辐射寿命和荧光分支比。

**关键词**——Judd-Ofelt 理论, Nd:YAP 晶体。

## 1. 引 言

近几年来, 我所在 YAP 晶体生长方面取得突破性进展, 已生长出高质量、大尺寸的 YAP 晶体, 同时制成了具有世界先进水平的大功率、高稳定连续 Nd:YAP 激光器, 尤其在  $1.34 \mu\text{m}$  波段, 激光输出功率和稳定度均超过 Nd:YAG 连续激光器。因此, YAP 晶体再次引起人们的重视。1971 年 M. J. Weber 等人计算了 Nd:YAP 晶体  $^4F_{3/2}$  态的辐射寿命是  $157 \mu\text{s}$ <sup>[6]</sup>, 而 Nd:YAP 晶体  $^4F_{3/2}$  态的荧光寿命是  $180 \mu\text{s}$ <sup>[7]</sup>,  $^4F_{3/2}$  态的辐射寿命小于其荧光寿命显然是不合理的。有必要用 Judd-Ofelt 理论<sup>[2, 8]</sup>重新计算 Nd:YAP 晶体的强度参数、电偶极辐射跃迁几率、辐射寿命和荧光分支比。

## 2. 实 验

我们用一块长度为  $0.521 \text{ cm}$  的 Nd:YAP 晶体, 用 Varin Cary 2390 分光光度计记录其入射光平行于  $b$  轴的室温吸收谱。分光光度计提供了一组光谱吸收度  $A(\lambda)$ , 由比尔定律给出光谱吸收度和吸收系数的关系是

$$I(\lambda)/I_0 = \exp[-K(\lambda)l] = 10^{-0.4343K(\lambda)l} = 10^{-A(\lambda)[1]},$$

即

$$K(\lambda) = A(\lambda)/0.434l,$$

其中  $l$  为晶体长度。积分吸收系数  $\int K(\lambda)d\lambda$  用求积仪测量, 当两个带重叠超过 5% 时, 做为一个积分吸收强度, 即在拟合计算中做为一个实验点来处理。

### 3. 理论和计算

#### 3.1 理论

根据 Judd-Ofelt 理论<sup>[2,3]</sup>, 受迫电偶极跃迁的积分吸收系数可表示成

$$\int K(\lambda)d\lambda = P \cdot \frac{8\pi^3 e^2 \bar{\lambda}}{ch(2J+1)} \cdot \frac{(n^2+2)^2}{9n} \cdot S \quad (1)$$

式(1)中  $\bar{\lambda}$  代表平均波长,  $c$  为光速,  $n$  为折射率,  $h$  为普朗克常数,  $\rho$  为离子浓度,  $J$  为基态总角动量量子数,  $S$  为在初态  $J$  簇  $|4f^n[SL]J\rangle$  和终态  $J'$  簇  $|4f^n[S'L']J'\rangle$  之间电偶极辐射跃迁的谱线强度, 可表示成

$$S = \sum_{\lambda=2,4,6} \Omega_{\lambda} |\langle 4f^n[SL]J || V^{(\lambda)} || 4f^n[S'L']J' \rangle|^2 \quad (2)$$

式(2)中  $\Omega_{\lambda}$  为强度参数,  $|\langle 4f^n[SL]J || V^{(\lambda)} || 4f^n[S'L']J' \rangle|^2$  为约化矩阵元。初态为基态的  $\text{Pr}^{3+}$ 、 $\text{Nd}^{3+}$ 、 $\text{Pm}^{3+}$ 、 $\text{Sm}^{3+}$ 、 $\text{D}^{3+}$ 、 $\text{H}^{3+}$ 、 $\text{Er}^{3+}$  和  $\text{Tm}^{3+}$  离子的约化矩阵元值已由参考文献[4]给出。与此类似, 在激发态  $|4f^n[SL]J\rangle$  和较低态  $|4f^n[S'L']J'\rangle$  之间的电偶极辐射跃迁几率可表示成

表1 Nd:YAP 晶体中  $\text{Nd}^{3+}$  的谱线强度  $S$

Table 1 Line strength  $S$  of  $\text{Nd}^{3+}$  in crystal Nd:YAP.

跃迁	$\lambda$ (nm)	$\int K(\lambda)d\lambda$ $\left(\frac{\text{nm}}{\text{cm}}\right)$	$S_m$ ( $10^{-20} \text{cm}^2$ )	$S_c$ ( $10^{-20} \text{cm}^2$ )
${}^4\text{F}_{3/2}$	880	20.9	0.78	1.61
${}^4\text{F}_{5/2} + {}^2\text{H}_{9/2}$	800	78.1	3.21	3.32
${}^4\text{F}_{7/2} + {}^4\text{S}_{3/2}$	760	73.7	3.18	3.67
${}^4\text{F}_{9/2}$	680	6.38	0.31	0.22
${}^2\text{H}_{11/2}$	625	1.29	0.067	0.057
${}^4\text{G}_{5/2} + {}^2\text{G}_{17/2}$	580	56.2	3.15	3.17
${}^2\text{K}_{13/2} + {}^4\text{G}_{7/2} + {}^4\text{G}_{9/2}$	525	30.4	1.86	1.44
${}^2\text{K}_{15/2} + {}^2\text{G}_{19/2} + {}^2\text{D}_{13/2}$	470	6.61	0.45	0.33
${}^2\text{P}_{1/2}$	430	1.52	0.11	0.14
${}^4\text{D}_{3/2} + {}^4\text{D}_{5/2} + {}^2\text{I}_{11/2} + {}^4\text{D}_{1/2} + {}^2\text{I}_{15/2}$	360	16.8	2.31	2.33
rms		$2.13 \times 10^{-21}$		

表2 Nd 在 YAP 晶体中  ${}^4\text{F}_{3/2}$  和  ${}^4\text{I}_J$  态之间跃迁的谱线强度  $S_c$ 、辐射跃迁几率  $A_r$ 、辐射寿命  $\tau_{rad}$  和荧光分支比  $\beta_c$ 。

Table 2 Line strength  $S_c$ , radiative transition probability  $A_r$ , radiative lifetime  $\tau_{rad}$  and fluorescent branching ratio  $\beta_c$  of transitions between  ${}^4\text{F}_{3/2}$  and  ${}^4\text{I}_J$  manifolds for  $\text{Nd}$  in crystal YAP.

${}^4\text{F}_{3/2} \rightarrow {}^4\text{I}_J$	$\lambda$ (nm)	$S_c$ ( $10^{-20} \text{cm}^2$ )	$A_r$ ( $\text{s}^{-1}$ )	$\beta_c$	$\tau_{rad}$ ( $\mu\text{s}$ )
${}^4\text{I}_{9/2}$	890	1.10	1971	0.40	205
${}^4\text{I}_{11/2}$	1070	2.38	2427	0.50	
${}^4\text{I}_{13/2}$	1370	0.97	466	0.095	
${}^4\text{I}_{15/2}$	192	0.13	22	0.005	

$$A(J, J') = \frac{64\pi^4 e^3}{8h(2J+1)\lambda^3} \cdot \frac{n(n^2+2)^2}{9} \cdot S(J, J') \quad (4)$$

在  $|4f^n[SL]J\rangle$  态和  $|4f^n[S'L']J'\rangle$  态之间的荧光分支比可表示成

$$\beta = \frac{A(J, J')}{\sum_{J'} A(J, J')} \quad (5)$$

激发态  $|4f^n[SL]J\rangle$  的辐射寿命可表示成

$$\tau_{rad} = \frac{1}{\sum_{J'} A(J, J')} \quad (6)$$

### 3.2 计算

首先,由式(1)把积分吸收系数转换成实验谱线强度  $S_w$ ,由式(2)利用最小二乘法计算唯象强度参数  $\Omega_\lambda$ 。求得  $\Omega_\lambda$  后,再代入式(2),得到谱线强度的计算值  $S_c$ ,由均方根公式

$$r_m S - \Delta S = \{\Sigma(\Delta S)^2 / [\text{跃迁数} - \text{参数数}]\}^{1/2} \quad (7)$$

得到谱线强度的偏差值,所得数据列于表1。所拟合的唯象强度参数为:

$$\Omega_2 = 0.69 \times 10^{-20} \text{ cm}^2, \Omega_4 = 3.69 \times 10^{-20} \text{ cm}^2, \Omega_6 = 4.56 \times 10^{-20} \text{ cm}^2。$$

再按式(3)~(5)和参考文献[5]提供的约化矩阵元值,来计算 Nd:YAP 晶体的 J 多重态  ${}^4F_{3/2}$  和  ${}^4I_J$  之间电偶极辐射跃迁的谱线强度、自发辐射跃迁几率、辐射寿命和荧光分支比,所得到的数据列于表2。

## 4. 讨 论

荧光分支比的计算值和实验值的差异与强度参数  $\Omega_\lambda$  的绝对值无关,这些差异是同共振跃迁有关的误差造成的。在表1中我们可以看到  ${}^4I_{9/2} \rightarrow {}^4F_{3/2}$  跃迁谱线强度计算值比实验值大30%,误差是组态均方根误差的3倍。目前,尚不能用受迫电偶极理论解释这一现象。如果在计算荧光分支比时,使用共振跃迁的谱线强度测量值,而保留其余3个荧光跃迁的计算值,那么,所预言的荧光分支比变成0.323、0.563、0.108和0.005,分别对应于  $J' = 9/2$ 、11/2、13/2和15/2。同参考文献[6]的实验值符合得很好。

由于在式(1)中对谱线强度值影响最大的参数是掺杂离子浓度  $\rho$ ,因此,  $\rho$  的测定就很重要。本文采用 ICP 法测量晶体中的 Nd 浓度,误差大约是3%,通过强度参数  $\Omega_\lambda$  计算的辐射寿命与参考文献[7]的报道值符合得很好,同时也证实了本文报道的强度参数  $\Omega_\lambda$  值的准确性。

### 参 考 文 献

- [1] Krupke W. F., *IEEE Jour. Quant. Electron*, **QE7**(1971), 153.
- [2] Judd B. R., *Phys. Rev.*, **127**(1962); 750.
- [3] Ofelt G. S., *J. Chem. Phys.*, **37**(1962); 511.
- [4] Carnall W. T. et al., *J. Chem. Phys.*, **45**(1968); 4424.
- [5] Krupke W. F. *IEEE Jour. Quant. Electron*, **QE10**(1974); 450.
- [6] Kaminskii A. A. et al., *Phys. Stat. Sol. (a)*, **51**(1979); 509.
- [7] Aminov L. K. et al., *Phys. Stat. Sol. (b)*, **130**(1985); 757.
- [8] Weber M. J., Varitimos T. E., *J. Appl. Phys.*, **42**(1971); 4996.

# SPECTRAL PARAMETERS OF $\text{Nd}^{3+}$ IN CRYSTAL YAP

ZHANG HONG, LUO ZUNDU, ZHENG AN, WU CHENGMEI, LI GANSHENG

*(Fujian Institute of Research on the Structure of Matter, Academia Sinical, Fuzhou, Fujian, P. R. C.)*

## ABSTRACT

According to Judd-Ofelt theory, the experimental and theoretical line strengths, intensity parameters  $\Omega_\lambda$  ( $\lambda=2, 4, 6,$ ), radiative transition probability, radiative lifetime and fluorescent branching ratios of  $\text{Nd}^{3+}$  in crystal YAP are calculated.