

**РАСЧЕТ ИНТЕНСИВНОСТИ АБСОРБЦИОННЫХ ПЕРЕХОДОВ ЛАЗЕРНОГО КРИСТАЛЛА  $\text{LiNbO}_3:\text{Dy}^{3+}$  В ПРИБЛИЖЕНИИ ПРОМЕЖУТОЧНОГО КОНФИГУРАЦИОННОГО ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ**

**Е.Б. Дунина, Л.А. Фомичева, А.А. Корниенко**

Кристаллы  $\text{LiNbO}_3$ , активированные редкоземельными элементами, обладают хорошими электрооптическими, акустооптическими и нелинейными свойствами и их изучению в последние годы уделяется большое внимание. Как сообщалось в [1] использование иона  $\text{Dy}^{3+}$  в качестве активатора представляет интерес при создании лазеров с генерацией в диапазоне 3, 1.3 и 0.48 мкм. В этой же работе выполнена обработка экспериментальных данных по интенсивности поглощения и люминесценции с помощью стандартной теории Джадда-Офельта [2,3]. Теория Джадда-Офельта справедлива в приближении слабого конфигурационного взаимодействия, когда энергия возбужденных конфигураций значительно больше энергии мультиплетов. Условие слабого конфигурационного взаимодействия для иона  $\text{Dy}^{3+}$  не выполняется. Вероятно поэтому вычисленное в работе [1] значение времени жизни уровня  ${}^4F_{9/2}$  плохо согласуется с экспериментальным.

В связи с этим в данной работе описание экспериментальных результатов выполнено в приближении промежуточного конфигурационного взаимодействия, в котором влияние возбужденных конфигураций учитывается более последовательно. Показано, что для иона  $\text{Dy}^{3+}$  возбужденные конфигурации оказывают существенное влияние на силы осцилляторов абсорбционных переходов и учет этого влияния позволяет значительно повысить точность описания экспериментальных результатов.

Интенсивности межмультиплетных переходов обычно характеризуют безразмерной величиной – силами осцилляторов

$$f_{JJ'} = \frac{8\pi^2 mc}{3(2J+1)h e^2 \bar{\lambda}} \left[ \frac{(n^2+2)^2}{9n} S_{JJ'}^{ED} + n S_{JJ'}^{MD} \right] \quad (1)$$

где  $m, e$  – соответственно масса и заряд электрона,  $c$  – скорость света,  $h$  – постоянная Планка,  $\bar{\lambda}$  – средняя длина волны для перехода  $J \rightarrow J'$ ,  $n$  – показатель преломления среды.

Для силы линии электрических дипольных переходов  $S_{JJ'}^{ED}$  в приближении промежуточного конфигурационного взаимодействия справедлива формула [4]

$$S_{JJ'}^{ed} = e^2 \sum_{k=2,4,6} \underbrace{\Omega_k [1 + 2R_k (E_{\chi J} + E_{\chi' J'} - 2E_J^0)]}_{\Omega_k} \langle \gamma [LS] J \| U^k \| \gamma' [L'S'] J' \rangle^2 + \quad (2)$$

+ члены нечетных рангов,

где  $\Omega_k$  – параметры интенсивности,  $R_k$  – дополнительные параметры, обусловленные межконфигурационным взаимодействием,  $E_{\chi J}$ ,  $E_{\chi' J'}$  – энергии мультиплетов, включенных в переход,  $E_J^0$  – центр тяжести энергии конфигурации  $4f^9$ ,  $\langle \gamma [LS] J \| U^k \| \gamma' [L'S'] J' \rangle$  – приведенный матричный элемент единичного тензора  $U^k$ , вычисленный на функциях в приближении свободного иона.

При  $R_2 = R_4 = R_6 = 0$  межконфигурационное взаимодействие в (2) не учитывается, что соответствует приближению слабого конфигурационного взаимодействия (приближение Джадда-Офельта).

Вычисление силы линии магнитных дипольных переходов осуществляется по классическим формулам

$$S_{JJ'}^{MD} = \frac{e^2 h^2}{16\pi^2 m^2 c^2} \left\langle \gamma J \left\| \bar{L} + 2\bar{S} \right\| \gamma' J' \right\rangle^2, \quad (3)$$

где  $\bar{L}, \bar{S}$  – операторы соответственно орбитального и спинового моментов. Магнитные дипольные переходы разрешены между мультиплетами, для которых  $\Delta J = 0, \pm 1$ . Для иона  $Dy^{3+}$  вклад магнитного дипольного момента будет существенным в случае абсорбционных переходов  ${}^6H_{15/2} \rightarrow {}^6H_{13/2}$  и  ${}^6H_{15/2} \rightarrow {}^4I_{15/2}$ . Учет магнитных дипольных вкладов для этих переходов существенно улучшает описание экспериментальных результатов.

Результаты описания абсорбционных переходов представлены в таблице 1.

Таблица 1 - Экспериментальные и вычисленные в приближении слабого (СКВ) и промежуточного (ПКВ) межконфигурационного взаимодействия силы осцилляторов абсорбционных переходов

Переход ${}^6H_{15/2} \rightarrow {}^{2S+1}L_J$	$\frac{1}{\lambda}, \text{ см}^{-1}$	$f_{\text{exp}} \times 10^6$	$f_{\text{calc}} \times 10^6$	
			СКВ	ПКВ
${}^6H_{13/2}$	3490	3,94	4,29	3,96
${}^6H_{11/2}$	5920	2,25	1,96	1,82
${}^6F_{11/2} + {}^6H_{9/2}$	7750	13,06	13,06	12,77
${}^6F_{9/2} + {}^6H_{7/2}$	9090	2,49	4,37	3,79
${}^6F_{7/2}$	10990	3,28	3,16	2,99
${}^6F_{5/2}$	12410	1,56	1,43	1,43
${}^6F_{3/2}$	13210	0,29	0,27	0,28
${}^4F_{9/2}$	21050	0,24	0,23	0,26
${}^4I_{15/2}$	22070	0,83	1,13	1,27
${}^4G_{11/2}$	23360	0,42	0,13	0,13
${}^4M_{21/2} + {}^4K_{17/2} + {}^4I_{13/2} + {}^4F_{7/2}$	25640	3,96	3,51	4,13
${}^4M_{19/2} + {}^6P_{3/2} + {}^6P_{5/2}$	26880	3,70	2,43	3,01
${}^4I_{11/2} + {}^6P_{7/2}$	27930	6,71	6,15	6,47
<b>RMS Dev.</b>			<b>0,78</b>	<b>0,57</b>
$\Omega_2 \times 10^{20}, \text{ см}^2$			9,43	23,28
$\Omega_4 \times 10^{20}, \text{ см}^2$			3,01	5,40
$\Omega_6 \times 10^{20}, \text{ см}^2$			2,39	5,23
$R_2 = R_4 = R_6, 10^4 \text{ см}$			0	0,039

Учет влияния возбужденных конфигураций в приближении ПКВ позволил уменьшить среднеквадратичное отклонение вычисленных сил осцилляторов от экспериментальных (RMS Dev.) на 27% по сравнению с приближением СКВ. Кроме

того, в приближении ПКВ вычисленное время жизни мультиплета  ${}^4F_{9/2}$  идеально совпадает с измеренным (см. табл. 2).

Таблица 2 - Экспериментальное и вычисленное время жизни  $\tau$  мультиплета  ${}^4F_{9/2}$  и коэффициенты ветвления люминесценции  $\beta$

Переход ${}^4F_{9/2} \rightarrow {}^{2S+1}L_J$	$\beta_{\text{exp}}, \%$	$\beta_{\text{calc}}, \%$	
		СКВ	ПКВ
${}^6H_{15/2}$	20	14	12
${}^6H_{13/2}$	46	58	62
${}^6H_{11/2}$	17	7	7
${}^6H_{9/2} + {}^6F_{11/2}$	9	15	13
${}^6H_{7/2} + {}^6F_{9/2}$	8	4	3
${}^6H_{5/2} + {}^6F_{7/2}$	0	2	2
${}^6F_{5/2}$	0	0	1
${}^6F_{3/2}$	0	0	0
$\tau, \text{мкс}$	<b>245</b>	<b>306</b>	<b>248</b>

Однако вычисленные коэффициенты ветвления люминесценции и в приближении СКВ и в приближении ПКВ согласуются с экспериментальными значениями лишь качественно.

Повышение точности описания абсорбционных переходов в приближении ПКВ можно объяснить тем, что согласно (2) в этом приближении параметры интенсивности  $\tilde{\Omega}_k$  зависят от энергии мультиплетов, включенных в переход. Поэтому набор параметров  $\tilde{\Omega}_k$  для переходов, значительно отличающихся по энергии, будет разным, в то время как в приближении СКВ набор параметров интенсивности  $\Omega_k$  единый для всех переходов. С точки зрения микроскопической модели, чем меньше значение  $E_f^0$ , тем интенсивнее межконфигурационное взаимодействие. В наших расчетах наилучшее согласие с экспериментом достигалось при  $E_f^0 = 40000 \text{ см}^{-1}$ .

#### Список использованных источников

1. M.Malinowski, P.Myziak, R.Piramidowicz, I.Pracka, T.Lukasiewicz, B.Surma, S.Kaczmarek, K.Kopczynski, Z.Mierczyk. Acta Phys. Polonica A. Spectroscopic and laser properties of  $\text{LiNbO}_3:\text{Dy}^{3+}$  crystals // 1996, V. 90, N1, P.181-189.
2. Judd B.R. Optical Absorption Intensities of Rare-Earth Ions // Phys.Rev. 1962. V.127, N3. P. 750-761.
3. Ofelt G.S. Intensities of crystal spectra of rare-earth ions // J.Chem.Phys. 1962. V.37, N3. P. 511-520.
4. A.A. Kornienko, A.A. Kaminskii, E.B. Dunina. Dependence of the Line Strength of f-f Transitions on the Manifold Energy. II. Analysis of  $\text{Pr}^{3+}$  in  $\text{KPrP}_4\text{O}_{12}$  // Phys. Stat. Sol.(b). 1990. V.157, N1. P.267-273.

#### SUMMARY

The results of calculation of oscillators strengths for absorption transitions, a radiative lifetime of multiplets and coefficients for branching ratio for ion  $\text{Dy}^{3+}$  in the approximation of intermediate-force configuration interaction are given and analysed.