

Приложение на C# для определения вероятностей излучательных переходов с отдельных компонент возбужденного уровня ${}^4F_{3/2}$ иона Nd^{3+} по температурной зависимости времени жизни

А. А. Корниенко¹, В. С. Андреев¹,
Ант. А. Корниенко², Е. Б. Дунина¹,
А. С. Соколова¹, К. О. Воронцова¹

¹Витебский государственный технологический университет,

²Витебский государственный университет имени П. М. Машерова,
Республика Беларусь

Аннотация. В данной работе получено теоретическое описание экспериментальной зависимости времени жизни возбужденного мультиплета ${}^4F_{3/2}$ иона Nd^{3+} в кристалле $LiYF_4$, предложен метод определения вероятностей переходов с отдельных шарковских компонент возбужденного уровня. Разработано приложение на C# с удобным интерфейсом для компьютерного моделирования температурной зависимости времени жизни возбужденного уровня ${}^4F_{3/2}$ иона Nd^{3+} в кристалле $LiYF_4$. На главной форме необходимо ввести энергии шарковских компонент возбужденного мультиплета и всех нижележащих, коэффициенты ветвления люминесценции, экспериментальные данные по температурной зависимости. При использовании всего лишь двух варьируемых параметров получено хорошее согласие между вычисленным и измеренным графиком времени жизни в диапазоне температур от 10 К до 300 К. Применение разработанного приложения позволило по температурной зависимости впервые определить вероятности излучательных переходов с каждой шарковской компоненты мультиплета ${}^4F_{3/2}$: с нижележащей компоненты (энергия 11393 см⁻¹) вероятность равна 1755 с⁻¹, с вышележащей (энергия 11472 см⁻¹) вероятность – 2457 с⁻¹. Предложенный алгоритм вычисления вероятности излучательного перехода с каждой шарковской компоненты возбужденного мультиплета на основе результатов компьютерного моделирования температурной зависимости времени жизни, существенно увеличивает информативность экспериментов по измерению температурной зависимости времени жизни.

Ключевые слова: неодим, $LiYF_4$, моделирование времени жизни ${}^4F_{3/2}$ шарковские компоненты, коэффициенты ветвления.

Информация о статье: поступила 30 мая 2025 года.

Статья подготовлена по материалам доклада 58-й Международной научно-технической конференции преподавателей и студентов, которая состоялась 16–17 апреля 2025 года в учреждении образования «Витебский государственный технологический университет» (Республика Беларусь).

C# application for determining the probabilities of radiative transitions from individual components of the excited level ${}^4F_{3/2}$ of the Nd^{3+} ion based on the temperature dependence of the lifetime

Alexey A. Kornienko¹, Vitali S. Andreyeu¹,
Anton A. Kornienko², Elena B. Dunina¹,
Hanna S. Sokalava¹, Kseniya O. Varantsova¹

¹Vitebsk State Technological University,

²Vitebsk State University named after P. M. Masherov,
Republic of Belarus

Abstract. In this paper, a theoretical description of the experimental dependence of the lifetime of the excited ${}^4F_{3/2}$ multiplet of the Nd^{3+} ion in the $LiYF_4$ crystal is obtained, and a method for determining the probabilities of transitions from individual Stark components of the excited level is proposed. An application in C# with a user-friendly interface has been developed for computer modeling of the temperature dependence of the lifetime of the excited level ${}^4F_{3/2}$ of the Nd^{3+} ion in the $LiYF_4$ crystal. On the main form, it is necessary to enter the energies of the Stark components of the excited multiplet and all the underlying ones, the luminescence branching coefficients, and the experimental data on the temperature dependence. Using only two variable parameters, good agreement was obtained between the calculated and measured lifetime graphs in

the temperature range from 10 K to 300 K. The use of the developed application made it possible to determine for the first time, based on the temperature dependence, the probabilities of radiative transitions from each Stark component of the ${}^4F_{3/2}$ multiplet: from the underlying component (energy 11393 cm^{-1}) the probability is 1755 s^{-1} , from the overlying component (energy 11472 cm^{-1}) the probability is 2457 s^{-1} . The proposed algorithm for calculating the probability of a radiative transition from each Stark component of the excited multiplet based on the results of computer modeling of the temperature dependence of the lifetime significantly increases the information content of experiments on measuring the temperature dependence of the lifetime.

Keywords: hneodymium, LiYF_4 , ${}^4F_{3/2}$ lifetime modeling, stark components, branching factors.

Article info: received May 30, 2024.

The article summarizes the research materials presented at the 58th International Scientific and Technical Conference of Teachers and Students, held on April 16–17, 2025 at Vitebsk State Technological University (Republic of Belarus).

Введение

В связи с попытками создания лазеров, работающих при криогенных температурах, была измерена зависимость от температуры времени жизни возбужденных мультиплетов ионов Tm^{3+} [Armagan, Buoncristiani & Dibartolo, 1992; Cornacchia, Parisi & Tonelli, 2008; Demirbas et al., 2022], Nd^{3+} [Lang et al., 2024] и Yb^{3+} [Püschel et al., 2021]. Хотя первые экспериментальные измерения температурной зависимости выполнены относительно давно, в 1992 году, долгое время экспериментальные результаты не были объяснены. Только в 2013 году на основе сложных квантовомеханических расчетов волновых функций и энергий шарковских компонент некоторых мультиплетов иона Er^{3+} в LaCl_3 [Nehlen, Brik, & Krämer, 2013] было показано, что сила линий переходов с основного мультиплета ${}^4I_{15/2}$ на возбужденные может зависеть от температуры. Однако переходы, рассмотренные в [Nehlen, Brik, & Krämer, 2013] относятся к процессам поглощения фотонов, а не излучения и не затрагивают проблему температурной зависимости времени жизни возбужденных мультиплетов.

Одним из направлений исследования изменения времени жизни возбужденных мультиплетов с температурой является определение функциональной зависимости экспериментального графика [см., например, (Ćirić & Damićanin, 2022)]. При этом функциональная зависимость определяется на основе экспериментальных данных графика без учета энергетического спектра расщепления мультиплетов, включенных в переход. Учет влияния кристаллического расщепления возбужденного мультиплета 3F_4 иона Tm^{3+} в кристалле LiYF_4 и термального заселения отдельных шарковских компонент был выполнен в работе [Püschel et al., 2021]. При использовании всего лишь трех варьируемых параметров в [Püschel

et al., 2021] получено хорошее согласие между теоретическими и экспериментальными графиками в диапазоне температур от 50 K до 300 K. Однако, в [Püschel et al., 2021] не предложен метод и формулы, взаимосвязывающие экспериментальные данные по интенсивностным характеристикам процессов поглощения и излучения. Более последовательная модель температурной зависимости времени жизни возбужденных мультиплетов была предложена в работе [Kornienko et al., 2024], где учтена термальная заселенность как основного, так и возбужденных мультиплетов, получено описание экспериментальной зависимости времени жизни мультиплета $3F_4$ иона Tm^{3+} в кристалле $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$, объяснено известное противоречие между экспериментальными результатами по интенсивностям полос поглощения и излучения.

В данной работе впервые получено теоретическое описание экспериментальной зависимости времени жизни возбужденного мультиплета ${}^4F_{3/2}$ иона Nd^{3+} в кристалле LiYF_4 , предложен метод определения вероятностей переходов с отдельных шарковских компонент возбужденного уровня и разработан удобный интерфейс для выполнения расчетов.

Основные формулы

Время жизни возбужденного мультиплета и его зависимость от температуры являются важными параметрами для определения диапазона длин волн и стабильности генерации лазера. Излучательное время жизни мультиплета J можно вычислить через вероятности спонтанного излучения $A_{JJ'}$

$$\tau_J = \frac{1}{\sum_{J'} A_{JJ'}}.$$

Вероятности часто записывают через силы осцилляторов переходов $f_{JJ'}$

$$A_{JJ'} = \frac{8\pi^2 e^2 n^2 \sigma_{JJ'}}{mc} f_{JJ'} \quad (1)$$

Здесь e – заряд электрона, n – показатель преломления среды, $\sigma_{JJ'}$ – среднее волновое число в см^{-1} , m – масса электрона, c – скорость света. Для вычисления вероятностей межмультиплетных переходов с учетом температурной заселенности исходного мультиплета J в работе [Kornienko et al., 2024] предложена формула:

$$A_{JJ'} = \frac{8\pi^2 e^2 n^2}{mc} \frac{f_{JJ'}^{J \rightarrow 0}}{\sigma_{JJ'} \cdot (2J+1)} \sum_i \frac{Kc(\Gamma_i) SR(\Gamma_i, \Gamma_i) \sigma_{\Gamma_i \Gamma_i}^2 g(\Gamma_i) g(\Gamma_i) \cdot \exp\left(-\frac{\Delta E_{\Gamma_i}}{kT}\right)}{Z} \quad (2)$$

В качестве силы $f_{JJ'}^{J \rightarrow 0}$ можно использовать силы осцилляторов, определенные по теории Джадда-Офелта [Judd, 1962; Ofelt, 1962], либо экспериментальные значения $f_{JJ'}^{Exp}$.

В [2] с помощью корректирующих коэффициентов Kc можно учитывать различие в вероятностях переходов с разных штарковских компонент, $SR(\Gamma_i, \Gamma_i)$ – матрица правил отбора излучательных переходов, $\sigma_{\Gamma_i \Gamma_i}$ – волновое число перехода из компоненты с неприводимым представлением Γ_i мультиплета J на компоненту с неприводимым представлением Γ_i мультиплета J , $\Delta E_{\Gamma_i} = E_{\Gamma_i} - E_{\Gamma_i}$ – энергия компоненты с неприводимым представлением Γ_i мультиплета J относительно компоненты с наименьшей энергией этого мультиплета, k – постоянная Больцмана, через Z обозначена статистическая сумма:

$$Z = \sum_i g_i \cdot \exp\left(-\frac{\Delta E_i}{kT}\right),$$

где g_i – степень вырождения уровня E_i .

Моделирование температурной зависимости времени жизни мультиплета ${}^4F_{3/2}$ иона Nd^{3+}

Применим для моделирования экспериментально измеренной в [Demirbas et al., 2022] температурной зависимости времени жизни возбужденного мультиплета ${}^4F_{3/2}$ иона Nd^{3+} в кристалле LiYF_4 (YLF) формулу [2]. Измеренное время жизни для системы $\text{Nd}^{3+}:\text{YLF}$ приведено в

таблице 1.

Для моделирования необходимы энергии штарковских компонент мультиплетов $4I9/2$, $4I11/2$, $4F3/2$, их можно найти в литературе, например, в [Stevens et al., 1991] (таблица 2).

Оптические центры, образованные ионами Nd^{3+} , в кристаллах LiYF_4 и $\text{NaLa}(\text{MoO}_4)_2$ имеют одинаковую локальную симметрию S_4 и близкие значения энергии штарковских компонент.

Применительно к иону неодима теория была модифицирована. Трудность моделирования состояла в том, что с возбужденного мультиплета ${}^4F_{3/2}$ возможны переходы на нижележащие мультиплеты ${}^4I_{15/2}$, ${}^4I_{13/2}$, ${}^4I_{11/2}$, ${}^4I_{9/2}$. Формула [2] содержит параметр $f_{JJ'}^{Exp}$, который соответствует только одному абсорбционному переходу ${}^4I_{9/2} \rightarrow {}^4F_{3/2}$. Поэтому при выполнении суммирования по состояниям нижележащих мультиплетов мы предполагали, что вероятность каждого перехода с ${}^4F_{3/2}$ на нижележащие мультиплеты ${}^4I_{15/2}$, ${}^4I_{13/2}$, ${}^4I_{11/2}$, ${}^4I_{9/2}$ пропорциональна вероятности соответствующего перехода, которая, в свою очередь, пропорциональна соответствующему коэффициенту ветвления (таблица 3).

Согласно таблице 3 для упрощения расчетов коэффициенты ветвления переходов на мультиплеты ${}^4I_{13/2}$, ${}^4I_{15/2}$ полагались равными нулю.

В работе [Demirbas et al., 2022] исследование абсорбционного спектра не выполнялось и информации о необходимом для моделирования $f_{JJ'}^{Exp}$ в ней нет. В связи с этим при $T = 10\text{K}$ и корректирующем коэффициенте $Kc[1] = 1$ параметр $f_{JJ'}^{Exp}$ выбирался таким, чтобы время жизни было равно значению 569,6 мкс из таблицы 1. В поле симметрии S_4 (таблица 2) мультиплет ${}^4F_{3/2}$ расщепляется на две двукратно вырожденные штарковские компоненты. Согласно формуле [2] для каждой компоненты вводится свой корректирующий множитель $Kc[1]$ и $Kc[2]$, соответственно. Значение корректирующего коэффициента $Kc[2] = 1,4$ определялось по методу наименьших квадратов для наилучшего описа-

Таблица 1 – Измеренное (Demirbas et al., 2022) время жизни мультиплета ${}^4F_{3/2}$ в системе $\text{Nd}^{3+}:\text{YLF}$ для разных температур

Table 1 – Measured in (Demirbas et al., 2022) lifetime of the ${}^4F_{3/2}$ multiplet in the $\text{Nd}^{3+}:\text{YLF}$ system for different temperatures

Температура (K)	300	150	50	30	10
Флуоресцентное время жизни (мкс)	482,3	505,3	552,7	551,8	569,6

Таблица 2 – Энергии штарковских компонент некоторых мультиплетов иона Nd^{3+} в кристалле $NaLa(MoO_4)_2$ (Stevens et al., 1991)

Table 2 – Energies of the Stark components of some multiplets of the Nd^{3+} ion in the $NaLa(MoO_4)_2$ crystal (Stevens et al., 1991)

Мультиплет	Неприводимое представление, Г	Энергия, см ⁻¹
$^4I_{9/2}$	7,8	0
	7,8	92
	5,6	160
	5,6	235
	7,8	412
$^4I_{11/2}$	7,8	1960
	5,6	1999
	7,8	2013
	5,6	2046
	5,6	2146
	7,8	2160
$^4F_{3/2}$	7,8	11393
	5,6	11472

Таблица 3 – Вычисленные коэффициенты ветвления с мультиплета $^4F_{3/2}$ иона Nd^{3+} в кристалле $LiYF_4$

Table 3 – Calculated branching coefficients from the $^4F_{3/2}$ multiplet of the Nd^{3+} ion in the $LiYF_4$ crystal

Переход с $^4F_{3/2}$	Коэффициент ветвления
$^4I_{9/2}$	0,466
$^4I_{11/2}$	0,453
$^4I_{13/2}$	0,077
$^4I_{15/2}$	0,004

ния экспериментального времени жизни в диапазоне температур от 10К до 300К. Результаты описания представлены в виде графика на рисунке 1.

Применение формулы [2] всего лишь с двумя варьируемыми параметрами f_{ji}^{Exp} и $Kc[2]$ позволяет получить хорошее описание экспериментальной зависимости времени жизни мультиплета $^4F_{3/2}$ иона Nd^{3+} в диапазоне температур от 10К до 300К, что свидетельствует об адекватности формулы [2] для описания температурной зависимости времени жизни возбужденных мультиплетов редкоземельных ионов.

Для компьютерного моделирования температурной зависимости времени жизни возбужденного мультипле-

та $^4F_{3/2}$ иона Nd^{3+} по формуле [2] был разработан на С# удобный интерфейс, форма ввода и форма вывода которого представлена на рисунках 2 и 3.

Используя данные на рисунках 2 и 3, можно вычислить вероятности излучательных переходов с отдельных компонент возбужденного мультиплета $^4F_{3/2}$ иона Nd^{3+}

$$W(\Gamma_i) = Kc(\Gamma_i) \cdot W(T = 10K), \quad [3]$$

где Γ_i – неприводимое представление штарковской компоненты возбужденного мультиплета, $Kc(\Gamma_i)$ – корректирующий коэффициент из формы ввода (рисунок 2), $W(T = 10K)$ – вероятность перехода при температуре $T = 10$ К из формы вывода результатов (рисунок 3).

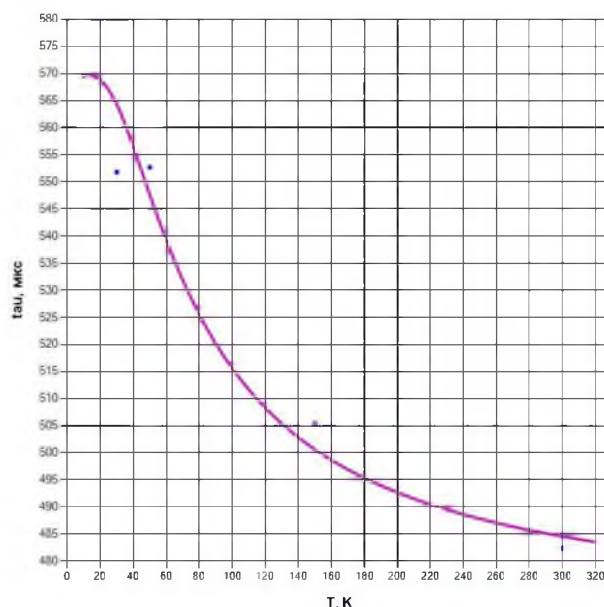


Рисунок 1 – Температурная зависимость времени жизни (τ) мультиплета ${}^4F_{3/2}$ иона неодима в кристалле LiYF_4 .

Точками обозначены экспериментальные значения из статьи (Demirbas et al., 2022)

Figure 1 – Temperature dependence of the lifetime (τ) of the ${}^4F_{3/2}$ multiplet of the neodymium ion in the LiYF_4 crystal. The dots indicate the experimental values from the article (Demirbas et al., 2022)

Рисунок 2 – Форма ввода исходных данных для компьютерного моделирования температурной зависимости времени жизни возбужденного мультиплета ${}^4F_{3/2}$ иона Nd^{3+} , которую легко можно заполнить, используя таблицы 1–3

Figure 2 – Input form for initial data for computer modeling of the temperature dependence of the lifetime of the excited multiplet ${}^4F_{3/2}$ of the Nd^{3+} ion, which can be easily filled in using tables 1–3

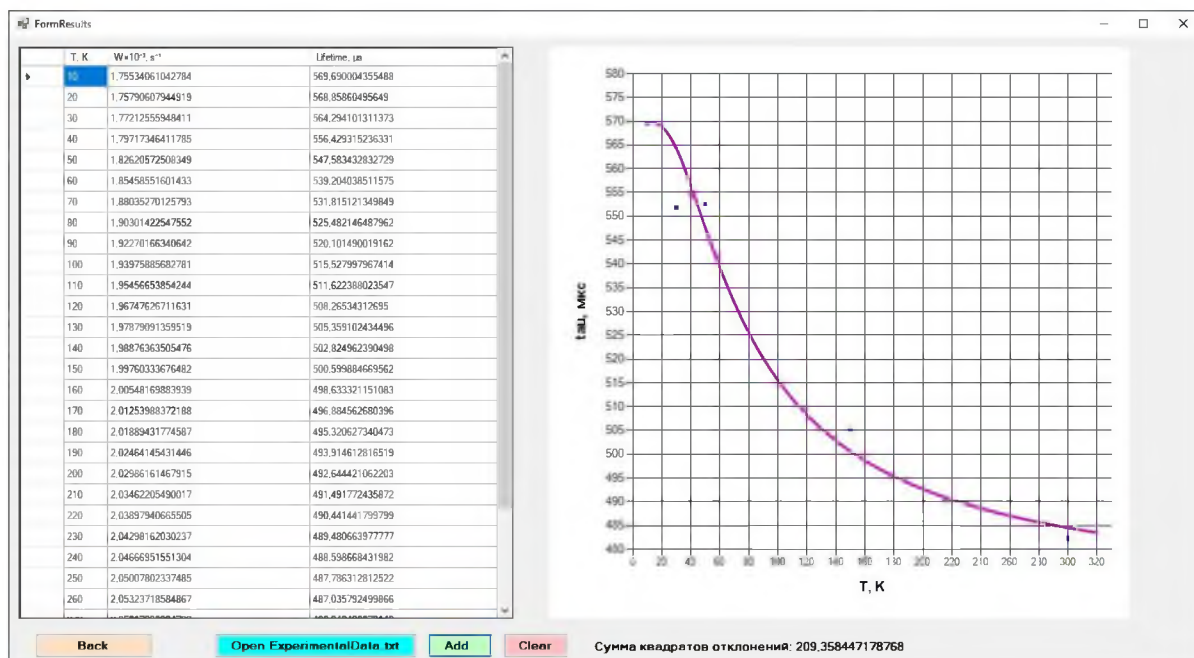


Рисунок 3 – Форма вывода результатов компьютерного моделирования температурной зависимости времени жизни возбужденного мультиплета ${}^4F_{3/2}$ иона Nd^{3+}

Figure 3 – Output form of the results of computer modeling of the temperature dependence of the lifetime of the excited multiplet ${}^4F_{3/2}$ of the Nd^{3+} ion

Ниже приведены вероятности вычисленные по формуле (3) для мультиплета ${}^4F_{3/2}$ иона Nd^{3+} (таблица 4).

Таким образом, применение формул (2) и (3) позволяет на основе описания экспериментальной зависимости времени жизни возбужденного мультиплета определять вероятности переходов с отдельных штарковских компонент этого мультиплета, что существенно повышает информативность экспериментов по измерению времени жизни мультиплетов.

Заключение

Для компьютерного моделирования экспериментально полученного графика зависимости времени жизни возбужденного мультиплета ${}^4F_{3/2}$ иона неодима в

кристалле $LiYF_4$ [Demirbas et al., 2022] применена формула (2), предложенная в работе [Kornienko et al., 2024]. В моделировании использовано всего лишь два варьируемых параметра $f_{J,J'}^{Exp}$ и $Kc[2]$ и получено хорошее согласие между вычисленной и экспериментальной зависимостью времени жизни мультиплета ${}^4F_{3/2}$ иона Nd^{3+} в диапазоне температур от 10 K до 300 K.

Разработано приложение на C# с удобным интерфейсом для компьютерного моделирования температурной зависимости времени жизни возбужденного мультиплета ${}^4F_{3/2}$ иона неодима.

Предложен алгоритм вычисления вероятности излучательного перехода с каждой штарковской компонен-

Таблица 4 – Вычисленные вероятности излучательных переходов

Table 4 – Calculated probabilities of radiative transitions

Неприводимое представление	Энергия, см ⁻¹	Корректирующий коэффициент, Kc	Вероятность, с ⁻¹
7,8	11393	1	1755
5,6	11472	1,4	2457

ты возбужденного мультиплета на основе результатов компьютерного моделирования температурной зависимости времени жизни, что существенно увеличивает информативность экспериментов по измерению температурной зависимости времени жизни.

СПИСОК ИСПОЛЬЗОВАННЫХ ИСТОЧНИКОВ

- Armagan, G., Buoncristiani, A.M. and Dibartolo, B. [1992]. Excited state dynamics of thulium ions in yttrium aluminum garnets, *Optical Materials*, Vol. 1, No. 1, pp. 11–20. DOI: 10.1016/0925-3467(92)90012-c.
- Cornacchia, F., Parisi, D. and Tonelli, M. (2008). Spectroscopy and Diode-Pumped Laser Experiments of $\text{LiLuF}_4:\text{Tm}^{3+}$ Crystals, *IEEE Journal of Quantum Electronics*, Vol. 44, No. 11, pp. 1076–1082. DOI:10.1364/OE.26.005368.
- Demirbas, U., Thesinga, J., Kellert, M., Kärtner, F. X. and Pergament, M. (2022). Temperature dependence of the fluorescence lifetime and emission cross section of $\text{Tm}:\text{YLF}$ in the 78–300 K range, *Optical Materials Express*, Vol. 12, No. 12, pp. 4712–4730. DOI:10.1364/OME.475971.
- Lang, B.-T., Song, Y.-J., Zong, N., Zhong-Zheng, Bo, Y. and Peng, Q.-J. (2024). Anisotropic thermal and polarized spectroscopic characterization of $\text{Nd}:\text{YLF}$ crystal from 10 K to 300 K for excellent performance laser, *Journal of Luminescence*, No. 276, p. 120838. DOI:10.1016/j.infrared.2025.105798.
- Püschel, S., Kalusniak, S., Kränkel, C. and Tanaka, H. (2021). Temperature-dependent radiative lifetime of $\text{Yb}:\text{YLF}$: refined cross sections and potential for laser cooling, *Optics Express*, Vol. 29, No. 7, pp. 11106–11120. DOI:10.1364/OE.422535.
- Hehlen, M.P., Brik, M.G. and Krämer, K.W. (2013). 50th anniversary of the Judd–Ofelt theory: An experimentalist's view of the formalism and its application, *Journal of Luminescence*, No. 136, pp. 221–239. DOI:10.1016/j.jlumin.2012.10.035.
- Ćirić, A. and Dramićanin, M.D. (2022). LumTHools-Software for fitting the temperature dependence of luminescence emission intensity, lifetime, bandshift, and bandwidth and luminescence thermometry and review of the theoretical models, *Journal of Luminescence*, No. 252, p. 119413. DOI:10.1016/j.jlumin.2022.119413.
- Kornienko, Ant., Loiko, P., Dunina, E., Fomicheva, L. and Kornienko, A. (2024). On the temperature dependence of transition intensities of rare-earth ions: A modified Judd–Ofelt theory, *Optical Materials*, No. 148, p. 114808. DOI:10.1016/j.optmat.2023.114808.
- Judd, B.R. (1962). Optical absorption intensities of rare-earth ions, *Physical Review*, Vol. 127, No. 3, pp. 750–761. DOI:10.1103/PhysRev.127.750.
- Ofelt, G.S. (1962). Intensities of crystal spectra of rare-earth ions, *The Journal of Chemical Physics*, Vol. 37, No. 3, pp. 511–520. DOI:10.1063/1.1701366.
- Stevens, S.B., Morrison, C.A., Allik, T.H., Rhengold, A.L. and Haggerty, B.S. (1991). $\text{NaLa}(\text{MoO}_4)_2$ as a laser host material, *Physical Review B*, Vol. 45, No. 10, pp. 7386–7394. DOI:10.1103/PhysRevB.43.7386.

Информация об авторах

Information about the authors

Корниенко Алексей Александрович

Доктор физико-математических наук, профессор кафедры «Информационные системы и технологии», Витебский государственный технологический университет, Республика Беларусь.

E-mail: a_a_kornienko@mail.ru

Андреев Виталий Сергеевич

Студент, Витебский государственный технологический университет, Республика Беларусь.

E-mail: andreev.vstu@gmail.com

Корниенко Антон Алексеевич

Студент, Витебский государственный университет имени П. М. Машерова, Республика Беларусь.

E-mail: anton.kornienko74@gmail.com

Дунина Елена Брониславовна

Кандидат физико-математических наук, доцент кафедры «Информационные системы и технологии», Витебский государственный технологический университет, Республика Беларусь.

E-mail: L.dun@mail.ru

Соколова Анна Сергеевна

Магистр технических наук, старший преподаватель кафедры «Информационные системы и технологии», Витебский государственный технологический университет, Республика Беларусь.

E-mail: sokolova203509@gmail.com

Воронцова Ксения Олеговна

Студент, Витебский государственный технологический университет, Республика Беларусь.

E-mail: masalova145@gmail.com

Alexey A. Kornienko

Doctor of Science (in Physics and Mathematics), Professor of the Department "Information Systems and Technologies", Vitebsk State Technological University, Republic of Belarus.

E-mail: a_a_kornienko@mail.ru

Vitali S. Andreyeu

Student, Vitebsk State Technological University, Republic of Belarus.

E-mail: andreev.vstu@gmail.com

Anton A. Kornienko

Student, Vitebsk State University named after P.M. Masherov, Republic of Belarus.

E-mail: anton.kornienko74@gmail.com

Elena B. Dunina

Candidate of Science (in Physics and Mathematics), Associate Professor of the Department "Information Systems and Technologies", Vitebsk State Technological University, Republic of Belarus.

E-mail: L.dun@mail.ru

Hanna S. Sokalava

Master of Technical Sciences, Senior Lecturer of the Department "Information Systems and Technologies", Vitebsk State Technological University, Republic of Belarus.

E-mail: sokolova203509@gmail.com

Kseniya O. Varantsova

Student, Vitebsk State Technological University, Republic of Belarus.

E-mail: masalova145@gmail.com