

Радиолюминесценция твердотельных лазерных материалов, активированных неодимом, при возбуждении α -частицами и осколками деления

Е.А.Серёгина, А.А.Серёгин

Представлены результаты исследования характеристик радиолюминесценции кристалла $Y_3Al_5O_{12}:Nd^{3+}$ и лазерных стекол при возбуждении α -частицами плутония-239 (^{239}Pu) и α -частицами и осколками спонтанного деления ядра калифорния-252 (^{252}Cf). Для кристалла $Y_3Al_5O_{12}:Nd^{3+}$ измерены коэффициенты ветвления β_{ij} радиолюминесценции для переходов с уровня $^2F_{5/2}$ на уровни $^{2S+1}L_J$. Обнаружена радиолюминесценция с уровня $^2P_{3/2}$ на низколежащие уровни. Теоретически рассчитаны коэффициенты β_{ij} для переходов с высоколежащих уровней $^2F_{5/2}$, $^4D_{3/2}$ и $^2P_{3/2}$. Измерены времена жизни метастабильных уровней Nd^{3+} при возбуждении осколками деления ^{252}Cf . Получены данные об эффективности преобразования энергии α -частиц и осколков деления в энергию оптического излучения для кристалла $Y_3Al_5O_{12}:Nd^{3+}$ и лазерных стекол.

Ключевые слова: неодимовые лазерные материалы, радиолюминесценция, коэффициенты ветвления, времена жизни метастабильных состояний.

1. Введение

В современной квантовой электронике наибольшее применение получили лазерные материалы, активированные ионами неодима. Однако в этих материалах используется только небольшая часть возбужденных состояний иона неодима, поскольку лазерное излучение на них получают только в ИК области. В связи с этим было бы очень выгодно использовать эти материалы и для создания лазеров, генерирующих в УФ или в видимой области спектра, т. к. технологии изготовления лазерных материалов, активированных неодимом, хорошо отработаны. Работа в этом направлении была начата с изучения свойств высоколежащих возбужденных состояний иона неодима при облучении электронами, УФ, рентгеновским и другими видами излучения [1–8]. Так, при возбуждении кристалла $Y_3Al_5O_{12}:Nd^{3+}$ электронами наблюдалось стимулированное излучение с длиной волны 400.1 нм [2]. Исследования кинетики дезактивации уровня $^4G_{7/2}$ иона Nd^{3+} позволили сделать вывод о возможности получения генерации в видимой области спектра при наносекундной оптической накачке [5]. Были проведены эксперименты по ап-конверсионному возбуждению генерации в видимой области спектра на переходах с высоколежащих мультиплетов $^4D_{3/2}$ (~ 28200 см $^{-1}$) и $^2P_{3/2}$ (~ 26100 см $^{-1}$) в двух анизотропных кристаллах – LaF_3 и $LiYF_4$ [6, 7]. В работе [8] изучались люминесцентные свойства кристалла $Y_3Al_5O_{12}:Nd^{3+}$ при возбуждении α -частицами и осколками деления. Кроме экспериментальных, были выполнены и теоретические работы [9, 10], в которых раскрывались потенциальные возможности кристаллов, активирован-

ных ионами Nd^{3+} , и делался вывод о перспективности некоторых межмультиплетных переходов с уровней высоколежащих метастабильных состояний ионов Nd^{3+} для возбуждения УФ и видимой генерации во фторидных и оксидных кристаллах.

В настоящей работе экспериментально и теоретически исследуется влияние высокоэнергетического возбуждения тяжелыми заряженными частицами на спектральные свойства неодима в твердотельных лазерных материалах. На основе новых экспериментальных данных проведен полный анализ спектров радиолюминесценции кристалла $Y_3Al_5O_{12}:Nd^{3+}$ и получена новая информация о радиолюминесцентных свойствах Nd^{3+} в лазерных фосфатных стеклах.

2. Методики эксперимента

Образцы кристалла или стекла в виде прямоугольных пластин толщиной 2 мм облучали α -частицами ^{239}Pu и α -частицами и осколками спонтанного деления ядра ^{252}Cf . Радиоактивные слои располагались поочередно в непосредственной близости от поверхности исследуемого образца. Измерения распределений интенсивности радиолюминесценции образцов по длинам волн $P(\lambda)$ и по времени испускания фотонов $Q(t)$ были выполнены в двух независимых экспериментах статистическим методом счета одиночных фотонов. Активность использованных слоев была равна $(1.5 \pm 0.1) \times 10^5$ α -распадов в секунду для ^{239}Pu , $(4.7 \pm 0.9) \times 10^4$ делений в секунду для ^{252}Cf на металлической подложке и $(1.2 \pm 0.1) \times 10^3$ делений в секунду для ^{252}Cf на пленке из окиси алюминия.

Распределения $P(\lambda)$ измерялись с помощью монохроматора МДР-23, работающего в режиме сканирования. Сборка (радиоактивный слой + образец) помещалась непосредственно перед входной щелью монохроматора, а за выходной щелью монохроматора располагался одноэлектронный фотоумножитель ФЭУ-100 (при работе в УФ и видимом диапазонах) или ФЭУ-62 (при работе в ИК об-

Е.А.Серёгина, А.А.Серёгин. ГНЦ РФ – Физико-энергетический институт имени А.И.Лейпунского, Россия, Калужская обл., 249033 Обнинск, пл. Бондаренко, 1; e-mail: seregina@ippe.ru

Поступила в редакцию 16 ноября 2011 г., после доработки – 11 декабря 2012 г.

ласти спектра). Фотокатоды фотоумножителей охлаждались парами жидкого азота, что позволяло резко снижать уровень темнового тока и существенно повышать отношение сигнал/шум. Сигналы с фотоумножителя поступали на усилитель-формирователь и далее на пересчетное устройство, выполненное в стандарте КАМАК и работающее в режиме on-line с персональным компьютером (ПК). Для определения величины абсолютного выхода фотонов радиолюминесценции образцов на один акт возбуждения среды заряженной частицей была измерена спектральная эффективность регистрации данной экспериментальной установки с использованием калиброванной температурной лампы ТРШ-2050 по методике [11].

Обработка распределений $P(\lambda)$ включала в себя следующие этапы: вычитание фона, который составлял менее 1 имп./с; введение поправки на спектральную чувствительность регистрирующей аппаратуры; определение энергетического выхода радиолюминесценции путем интегрирования данных в фиксированной области длин волн с учетом абсолютной эффективности регистрации; определение конверсионной эффективности образца η как отношения энергетического выхода радиолюминесценции к энерговыкладу заряженных частиц.

Время жизни уровня ${}^4F_{3/2}$ иона неодима при оптическом возбуждении измеряли на τ -метре, в состав которого входили импульсный азотный лазер ($\lambda_{\text{las}} = 337$ нм, $\tau_{\text{puls}} = 20$ нс, $f = 10\text{--}100$ Гц), фотоэлектронный умножитель ФЭУ-62 с набором светофильтров и запоминающий осциллограф TDS1012 (Tektronix).

Для измерений временных распределений $Q(t)$ фотонов радиолюминесценции использовали метод «задержанных совпадений». Этот метод успешно применяется в экспериментальной ядерной физике с начала 1950-х годов, и он аналогичен широко известному методу времени пролета [12]. Суть метода состоит в накоплении информации о распределении фотонов по времени их испускания при исследовании достаточно большого числа статистически независимых актов возбуждения среды. Следует отметить, что метод задержанных совпадений применим при условии регистрации в опыте отдельных фотонов, причем в среднем существенно меньше одного на акт возбуждения среды.

Схема эксперимента для измерения распределений $Q(t)$ этим методом показана на рис.1. Тонкая пленка 1 из окиси алюминия со слоем спонтанно делящегося изотопа ${}^{252}\text{Cf}$ располагалась между исследуемым образцом 2 и поверхностно-барьерным детектором осколков деления 3. Вся сборка помещалась перед входным окном фотоэлектронного умножителя 4 ФЭУ-62 с охлаждаемым фотокатодом. Для выделения фотонов в исследуемом диапазоне

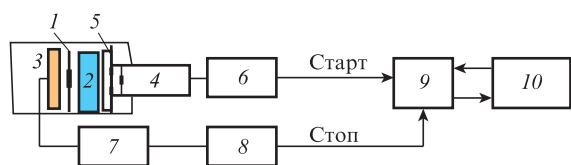


Рис.1. Схема эксперимента по измерению временных распределений фотонов радиолюминесценции $Q(\lambda)$:

1 – слой ${}^{252}\text{Cf}$ на плёнке из Al_2O_3 ; 2 – образец; 3 – поверхностно-барьерный кремниевый детектор осколков деления; 4 – ФЭУ-62; 5 – светофильтр; 6 – усилитель-формирователь сигналов ФЭУ-62; 7 – усилитель-формирователь сигналов детектора осколков деления; 8 – устройство логической задержки; 9 – анализатор временных интервалов; 10 – персональный компьютер.

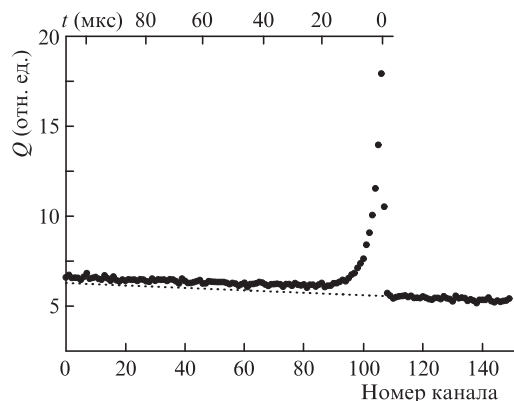


Рис.2. Аппаратурное распределение скорости счета фотонов методом задержанных совпадений с использованием светофильтра ОС11 (область пропускания 530–1500 нм); 106-й канал соответствует нулевой временной отметке, пунктиром показан уровень случайных совпадений.

длин волн перед входным окном ФЭУ помещались сменные светофильтры 5. В момент деления ядра ${}^{252}\text{Cf}$ осколки деления вылетали из радиоактивного слоя в противоположных направлениях. Один из них регистрировался полупроводниковым детектором (детектор «стоп»), который давал задержанную на 106 мкс отметку начала отсчета времени. Другой осколок тормозился в образце и возбуждал матрицу, в том числе и ионы Nd^{3+} . Фотоны радиолюминесценции регистрировались ФЭУ-62 (детектор «старт»). Сигналы с детекторов «старт» и «стоп» через соответствующие формирователи 6, 7 и устройство логической задержки 8 поступали на анализатор временных интервалов 9, в памяти которого накапливалась информация о распределении $Q(t)$. Анализатор работал в режиме непрерывной связи с персональным компьютером 10. Временные распределения интенсивности радиолюминесценции $Q(t)$ кристалла $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Nd}^{3+}$ и фосфатных стекол при их возбуждении осколками деления ${}^{252}\text{Cf}$ были измерены со светофильтрами ОС11 (область пропускания 530–1500 нм), СЗС23 (область пропускания 340–650 нм), и ИКС1 (область пропускания 850–1500 нм). На рис.2 в качестве иллюстрации показано типичное аппаратное распределение $Q(t)$ для кристалла, измеренное со светофильтром ОС11. «Нулевая» отметка времени находится в 106-м канале. Цена (длительность) канала равна 1 мкс.

Обработка данных измерения временных распределений интенсивности люминесценции $Q(t)$ состояла в инверсии шкалы времени, вычитании фона случайных совпадений и в определении постоянной времени затухания интенсивности люминесценции τ_{lum} .

3. Результаты и их обсуждение

Спектр радиолюминесценции $P(\lambda)$ кристалла $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Nd}^{3+}$ при возбуждении α -частицами ${}^{239}\text{Pu}$ представлен на рис.3 для УФ, видимого и ближнего ИК диапазонов длин волн. Здесь введена поправка на спектральную чувствительность регистрирующей аппаратуры. Спектры радиолюминесценции ионов неодима при возбуждении кристалла α -частицами и осколками спонтанного деления ${}^{252}\text{Cf}$ идентичны.

Положения наиболее интенсивных линий радиолюминесцентных переходов иона неодима вполне удовлетворительно согласуются с данными работ [2–4] по высоко-

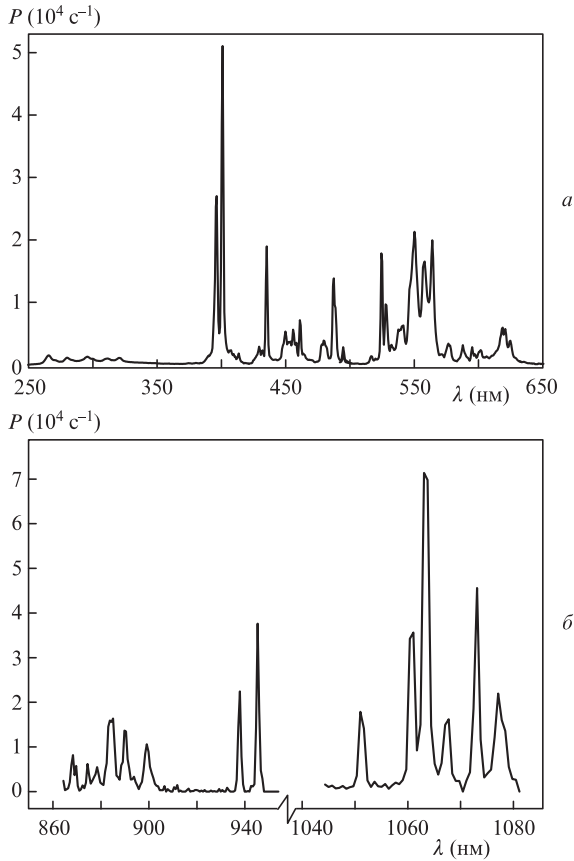


Рис.3. Спектр радиолюминесценции кристалла $Y_3Al_5O_{12}:Nd^{3+}$ при возбуждении α -частицами ^{239}Pu . Спектральная ширина $\delta\lambda$ выходной щели монохроматора составляла 1.04 нм в области длин волн 250–700 нм (а) и 2.08 нм в области 860–1100 нм (б).

энергетическому возбуждению $Y_3Al_5O_{12}:Nd^{3+}$. Идентификация люминесцентных переходов Nd^{3+} в УФ и видимом диапазонах была выполнена с использованием экспериментальных данных из работы [3]. В ИК диапазоне длин волн спектр радиолюминесценции кристалла с высокой точностью совпадает со спектром фотолюминесценции [13].

Анализ полученных спектров проводился в рамках подхода Джадда–Офелта [14, 15], согласно которому вероятности спонтанных переходов $A_{JJ'}$, являющиеся суммой вероятностей электро- и магнитодипольных межмультиплетных переходов $J \rightarrow J'$ ($A_{JJ'}^e$ и $A_{JJ'}^m$), рассчитываются по формулам

$$A_{JJ'} = A_{JJ'}^e + A_{JJ'}^m, \tag{1}$$

$$A_{JJ'}^e = \frac{64\pi^4 e^2}{3h(2J+1)\lambda^3} \frac{n(n^2+2)^2}{9} \times \sum_{t=2,4,6} \Omega_t |\langle 4f^3 \alpha [SL] J \| U_t \| 4f^3 \alpha' [S'L'] J' \rangle|^2, \tag{2}$$

$$A_{JJ'}^m = \frac{64\pi^4 e^2}{3h(2J+1)\lambda^3} n^3 |\langle 4f^3 \alpha [SL] J \| L + 2S \| 4f^3 \alpha' [S'L'] J' \rangle|^2, \tag{3}$$

где Ω_t – параметры Джадда–Офелта; U_t – единичный тензорный оператор ранга t ; $L + 2S$ – оператор полного орбитального и спинового моментов $4f^3$ оболочки иона Nd^{3+} ; α и α' – дополнительные квантовые числа, класси-

фицирующие повторяющиеся мультиплеты с одинаковыми полным спином S , полным орбитальным моментом L и полным угловым моментом J ; n – показатель преломления кристалла на средней длине волны λ перехода $J \rightarrow J'$. Зная вероятности переходов $A_{JJ'}$, можно рассчитать коэффициенты ветвления люминесценции

$$\beta_{JJ'} = A_{JJ'} / \sum_J A_{JJ'} \tag{4}$$

и излучательные времена жизни начальных состояний

$$\tau_{rad} = 1 / \sum_J A_{JJ'}. \tag{5}$$

Из приведенных выше соотношений видно, что $A_{JJ'}$ зависят от трех параметров Ω_t и матричных элементов единичных тензорных операторов ранга t ($\|U_t\|$). Матричные элементы зависят от начальных и конечных состояний переходов иона неодима, и они одни и те же для всех материалов, активированных ионами неодима. Что касается параметров Ω_t , то для разных материалов они различны. Фактически каждый материал характеризуется своим набором этих параметров, которые определяются из сравнения рассчитанных и экспериментально измеренных интенсивностей оптических переходов активатора в данной матрице.

В табл.1 приведены экспериментальные данные по коэффициентам ветвления радиолюминесценции β_{ij}^{exp} с верхнего лазерного уровня $^4F_{3/2}$ иона Nd^{3+} на штатковские компоненты нижнего лазерного уровня $^4I_{11/2}$ при возбуждении кристалла α -частицами и осколками деления. Коэффициенты β_{ij}^{exp} определяли как отношение площади под контуром спектральной линии с λ_{ij} к полному выходу люминесценции с излучательного уровня i . В табл.1 для сравнения представлены коэффициенты β_{ij} люминесценции неодима при оптическом возбуждении $Y_3Al_5O_{12}:Nd^{3+}$ из работы [13]. Из табл.1 видно, что коэффициенты ветвления, полученные в настоящей работе, вполне удовлетворительно согласуются с экспериментальными данными при оптическом возбуждении кристалла.

Табл.1. Коэффициенты ветвления люминесценции β_{ij} переходов с уровня $^4F_{3/2}$ на подуровни уровня $^4I_{11/2}$ ионов неодима в кристалле $Y_3Al_5O_{12}:Nd^{3+}$.

λ (нм)	β_{ij}^{exp}	β_{ij} [13]
1052	0.041	0.046
1061	0.083	0.091
1063	0.160	0.125
1064	–	0.041
1068	0.038	0.040
1073.5	0.066	0.062
1078	0.054	0.043

Результаты работ [9, 10], в которых был проведен теоретический анализ новых возможностей лазерных кристаллов с ионами неодима для генерации в УФ и видимом диапазонах длин волн, делают особенно актуальным получение экспериментальных данных о спектрах радиолюминесценции с высоколежащих уровней $^2F_{5/2}$, $^4D_{3/2}$ и $^2P_{3/2}$. В табл.2 приведены экспериментальные и расчетные значения β_{ij} для наиболее интенсивных переходов с высоколежащего излучательного уровня $^2F_{5/2}$. Экспериментальные значения β_{ij} получены из анализа спектров радиолюминесценции, представленных на рис.3. Теоретические расчеты коэффициентов ветвления люми-

Табл.2. Коэффициенты ветвления люминесценции β_{ij} для переходов ${}^2F_{5/2} \rightarrow {}^{2S+1}L_J$ ионов неодима в кристалле $Y_3Al_5O_{12}:Nd^{3+}$.

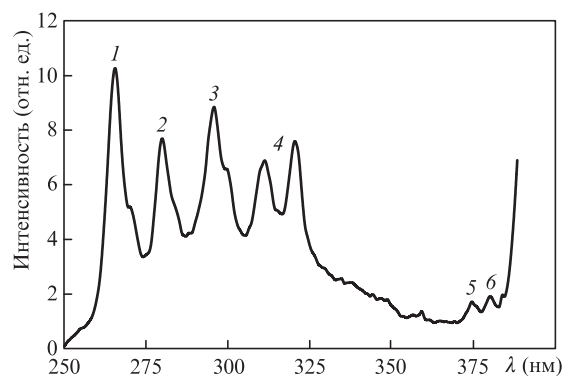
${}^{2S+1}L_J$	λ_{exp} (нм)	β_{ij}^{exp} (%)	$\beta_{ij}^{\text{theor}}$ (%)
${}^4I_{9/2}$	265.5	1.9	0.5
${}^4I_{11/2}$	280.0	0.9	0.1
${}^4I_{13/2}$	295.9	1.0	0.6
${}^4I_{15/2}$	311.8	0.8	0.3
${}^2H_{9/2}$	395.6–400.9	14.7	17.3
${}^4F_{7/2}$	409.3	1.2	0.6
${}^4F_{9/2}$	429.3–435.2	3.7	4.7
${}^2H_{11/2}$	455.7–461.0	5.0	10.7
${}^2G_{5/2}^+$	477.5	5.2	6.1
${}^2G_{17/2}$	480.1–494.7		
${}^2K_{13/2}^+$	516.4	42	39.6
${}^4G_{7/2}^+$	524.4		
	527.7–537.6		
${}^4G_{9/2}$	540.9		
	550–564		
${}^2K_{15/2}^+$	577.2	16.4	13.0
${}^2G_{19/2}$	587.8		
${}^2D_{1/2}^+$	595.1		
	601.0		
${}^4G_{11/2}$	618.9		
	620.8		
	624.8		

несценции β_{ij} для мультиплетов ${}^2F_{5/2}$, ${}^4D_{3/2}$ и ${}^2P_{3/2}$ (табл.3) выполнены с привлечением набора приведенных матричных элементов из [9, 16], а параметры Ω_i выбраны согласно данным работы [9]. Отметим еще, что переходы с уровня ${}^2F_{5/2}$ на более высоколежащие состояния, чем ${}^4G_{11/2}$, были рассчитаны, но в табл.2 не приведены, поскольку для них $\beta_{ij} < 1\%$, а полный выход люминесценции в области длин волн с $\lambda > 650$ нм был меньше 6%. Из табл.2 следует вполне удовлетворительное согласие между расчетными величинами β_{ij} и соответствующими экспериментальными коэффициентами ветвления радиоломинесценции для переходов с высоколежащего уровня ${}^2F_{5/2}$.

В табл.3 приведены результаты расчетов β_{ij} для переходов с уровней ${}^4D_{3/2}$ и ${}^2P_{3/2}$. Здесь представлены переходы с максимально большими коэффициентами ветвления люминесценции, которые можно было бы измерить экспериментально. Для повышения статистической точности был дополнительно измерен спектр радиоломинесценции кристалла $Y_3Al_5O_{12}:Nd^{3+}$ в УФ области. Полученные спектры представлены на рис.4. В диапазоне длин волн 370–385 нм обнаружены пики люминесценции, которые могли быть обусловлены как переходами ${}^2F_{5/2} \rightarrow {}^4F_{3/2}$, так и переходами ${}^4D_{3/2} \rightarrow {}^4I_{11/2}$ (~375 нм) или ${}^2P_{3/2} \rightarrow {}^4I_{9/2}$ (~380 нм). Ранее в работах [3, 4] отмечалось, что вероятность перехода ${}^2F_{5/2} \rightarrow {}^4F_{3/2}$ очень мала и в экспериментах он не наблюдается. Если предположить, что линия в области 375 нм связана с переходом ${}^4D_{3/2} \rightarrow {}^4I_{11/2}$, то в таком случае должен был бы наблюдаться переход ${}^4D_{3/2} \rightarrow {}^4I_{9/2}$ (~360 нм) с примерно таким же теоретическим коэффициентом ветвления (см. табл.3). Однако, как

Табл.3. Коэффициенты ветвления люминесценции β_{ij} с уровней мультиплетов ${}^4D_{3/2}$ и ${}^2P_{3/2}$ ионов неодима в кристалле $Y_3Al_5O_{12}:Nd^{3+}$.

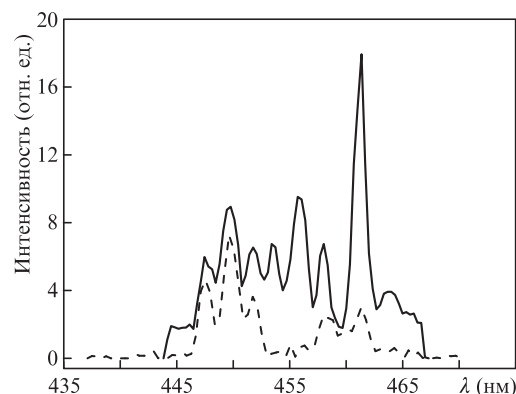
${}^4D_{3/2} \rightarrow {}^{2S+1}L_J$	λ^{theor} (нм)	$\beta_{ij}^{\text{theor}}$ (%)	${}^4P_{3/2} \rightarrow {}^{2S+1}L_J$	λ^{theor} (нм)	$\beta_{ij}^{\text{theor}}$ (%)
${}^4I_{9/2}$	365	37	${}^4I_{9/2}$	383	3
${}^4I_{11/2}$	380	40	${}^4I_{11/2}$	412	15
${}^4I_{13/2}$	411	0.6	${}^4I_{13/2}$	449	14
			${}^2H_{9/2}$	733	28

Рис.4. Спектр радиоломинесценции кристалла $Y_3Al_5O_{12}:Nd^{3+}$ в УФ области при возбуждении α -частицами ${}^{239}Pu$: переход ${}^2F_{5/2} \rightarrow {}^4I_j$ с $J = 9/2$ (1), $11/2$ (2), $13/2$ (3) и $15/2$ (4) и переход ${}^2P_{3/2} \rightarrow {}^4I_{9/2}$ (5, 6).

видно из рис.4, в области 360 нм небольшое превышение над фоном едва ли можно однозначно интерпретировать как переход ${}^4D_{3/2} \rightarrow {}^4I_{9/2}$. В этом случае наиболее вероятно, что дублет в области 375 и 380 нм обусловлен переходом с мультиплета ${}^2P_{3/2}$ на основной уровень ${}^4I_{9/2}$ и подуровень ${}^4I_{9/2}$, отстоящий от основного уровня примерно на 300 cm^{-1} .

Из теоретических расчетов следует, что интенсивности переходов с ${}^2P_{3/2}$ на ${}^4I_{11/2}$ и ${}^4I_{13/2}$ должны быть заметно выше интенсивности перехода ${}^2P_{3/2} \rightarrow {}^4I_{9/2}$ (см. табл.3). В области длин волн 410 нм интенсивность люминесценции с уровня ${}^2F_{5/2}$ оказалась слишком высокой, и на её фоне не удалось выделить линию 411 нм, относящуюся к переходу ${}^2P_{3/2} \rightarrow {}^4I_{11/2}$. Однако в области длин волн 445–452 нм были выделены линии, не относящиеся к переходу с уровня ${}^2F_{5/2}$. На рис.5 приведены спектры радиоломинесценции и фотоломинесценции ионов Nd^{3+} . Спектр фотоломинесценции регистрировался при возбуждении кристалла светом с $\lambda = 355$ нм, т.е. в полосу поглощения неодима ${}^4I_{9/2} \rightarrow {}^2P_{3/2}$. Видно, что для части спектральных линий положения максимумов совпадают. Отсюда можно заключить, что триплет в области длин волн 445–452 нм относится к переходу ${}^2P_{3/2} \rightarrow {}^4I_{13/2}$. Действительно, соотношение интенсивностей для переходов ${}^2P_{3/2} \rightarrow {}^4I_{9/2}$ и ${}^2P_{3/2} \rightarrow {}^4I_{13/2}$ равно ~ 5 , что вполне удовлетворительно согласуется с теоретическими расчетами β_{ij} для этих переходов.

В работе [2] отмечалась высокая эффективность преобразования энергии быстрых электронов в энергию лю-

Рис.5. Части спектров люминесценции кристалла $Y_3Al_5O_{12}:Nd^{3+}$ при возбуждении α -частицами ${}^{239}Pu$ (сплошная кривая) и при селективном оптическом возбуждении уровня ${}^2P_{3/2}$ (штриховая кривая).

минесценции для кристалла $Y_3Al_5O_{12}:Nd^{3+}$, а именно, конверсионная эффективность η_e кристалла составила в видимом диапазоне длин волн $6.5\% \pm 1.5\%$, в ИК области – $4\% \pm 1\%$. Большие значения η_e указывают на достаточно эффективный перенос энергии возбуждения от кристаллической матрицы к иону активатора. Полученные в настоящей работе спектры радиолуминесценции были использованы для расчета конверсионной эффективности η кристалла $Y_3Al_5O_{12}:Nd^{3+}$ при его возбуждении α -частицами и осколками деления. Энергия люминесценции W , излучаемая образцом в единицу времени, была определена интегрированием распределений $P(\lambda)$ в УФ, видимом и ИК диапазонах длин волн в соответствии с выражением

$$W = 4\pi \sum_{\lambda_0}^{\lambda_k} \frac{E(\lambda_i) P(\lambda_i) d\lambda}{S \Omega \delta\lambda}. \quad (6)$$

Здесь $P(\lambda_i) = R_{\text{exp}}(\lambda_i)/\varepsilon(\lambda_i)$ – экспериментально измеренная скорость счета фотонов с поправкой на спектральную эффективность регистрации; $E(\lambda_i) = hc/\lambda_i$ – энергия фотона; $d\lambda$ – шаг сканирования; S – площадь входной щели монохроматора; Ω – телесный угол, под которым из входной щели виден коллиматорный объектив монохроматора; $\delta\lambda$ – спектральная ширина выходной щели монохроматора.

Конверсионная эффективность η определялась как отношение энергии люминесценции W , излучаемой образцом в единицу времени в телесном угле 4π , к скорости энерговыделения $W_{\alpha,f}$ тяжелых заряженных частиц в кристалле. Величина $W_{\alpha,f}$ зависит от активности слоя, средней энергии частиц, вылетающих из слоя, и от расстояния между слоем и поверхностью кристалла. Активность использованных слоев была измерена в отдельных экспериментах с использованием поверхностно-барьерного кремниевого детектора. Расчеты скорости энерговыделения α -частиц и осколков деления в образцах с учетом геометрии опыта дали $W_{\alpha} = (9.9 \pm 0.5) \times 10^{11}$ эВ·см⁻²·с⁻¹ и $W_{\alpha,f} = (8.9 \pm 0.5) \times 10^{12}$ эВ·см⁻²·с⁻¹ для слоев ^{239}Pu и ^{252}Cf соответственно.

Оказалось, что при возбуждении тяжелыми заряженными частицами конверсионная эффективность кристалла $Y_3Al_5O_{12}:Nd^{3+}$ составляет $\eta_1 = 2.9\% \pm 0.5\%$ в области 390–640 нм и $\eta_2 = 2.0\% \pm 0.4\%$ в области 860–1130 нм. Это примерно в два раза ниже, чем конверсионная эффективность η_e при накачке $Y_3Al_5O_{12}:Nd^{3+}$ электронами [2]. Если предположить, как это сделано в работе [2], что вся энергия заряженных частиц идет на создание электронно-дырочных пар (энергия образования пары в $Y_3Al_5O_{12}$ равна 20 эВ), а последующие процессы рекомбинации пар и (или) обменно-резонансное взаимодействие на ионах неодима приводят к возбуждению последних, то можно оценить квантовый выход люминесценции γ (отношение числа испущенных ионами Nd^{3+} фотонов к числу электронно-дырочных пар, созданных заряженными частицами). Такие оценки были нами сделаны. Квантовый выход люминесценции γ при возбуждении кристалла $Y_3Al_5O_{12}:Nd^{3+}$ α -частицами и осколками деления оказался также примерно в два раза ниже, чем γ_e при электронном возбуждении, и составил 0.25 ± 0.05 в видимой области спектра и 0.35 ± 0.08 в ИК диапазоне. Меньшие значения η и γ по сравнению с η_e и γ_e связаны, скорее всего, с различиями в процессах взаимодействия тяжелых заряженных частиц и электронов со средой. Значительно более высокие линейные потери энергии $-dE/dx$ тяжелых заряженных частиц сопровождаются более высокой плотностью ио-

низации вещества в треке частицы и, как следствие, ростом плотности генерации электронно-дырочных пар [17]. С ростом плотности образования пар повышается вероятность рекомбинации электронов и дырок в треке, что приводит к неэффективным потерям носителей возбуждения и в результате – к уменьшению η и γ . Высокая плотность ионизации вещества в треке частицы может отразиться и на его спектрально-люминесцентных характеристиках. Прежде всего можно ожидать уменьшения времени жизни возбужденных состояний ${}^2F_{5/2}$ и ${}^4F_{3/2}$ иона неодима, а также уширения линий люминесценции.

В связи с этим особое внимание было уделено получению экспериментальных данных о времени жизни τ_m метастабильных уровней иона неодима и о ширине линии радиолуминесценции при возбуждении кристалла $Y_3Al_5O_{12}:Nd^{3+}$ α -частицами и осколками деления.

Временные распределения интенсивности радиолуминесценции $Q(t)$ кристалла $Y_3Al_5O_{12}:Nd^{3+}$ при его возбуждении осколками деления ${}^{252}\text{Cf}$, измеренные с использованием абсорбционных светофильтров СЗС23 для регистрации распределений в видимом диапазоне 340–650 нм и ИКС1 для регистрации в традиционном ИК диапазоне 850–1500 нм, представлены на рис.6 после первичной обработки аппаратурных распределений. Радиолуминесценция в видимом диапазоне длин волн обусловлена в основном излучательными переходами с уровня ${}^2F_{5/2}$ на более низколежащие уровни, а в ИК диапазоне – переходами с уровня ${}^4F_{3/2}$. Информация о времени жизни была получена после обработки распределений $Q(t)$ методом наименьших квадратов. Установлено, что время жизни τ_1 уровня ${}^2F_{5/2}$ при возбуждении кристалла осколками деления равно 3.2 ± 0.2 мкс, а время жизни τ_2 уровня ${}^4F_{3/2}$ – 215 ± 20 мкс. Приведенные погрешности определяются разбросом результатов серий измерений. В пределах указанных погрешностей эти результаты достаточно удовлетворительно согласуются с данными измерения τ_1 и τ_2 при других видах высокоэнергетического возбуждения $Y_3Al_5O_{12}:Nd^{3+}$ [1, 4]. Время жизни уровня ${}^4F_{3/2}$ также не зависит от способа возбуждения кристалла, и в пределах погрешностей измерения наши данные, полученные при возбуждении среды осколками деления, совпали как с результатами наших измерений τ_2 при оптическом возбуждении, так и с литературными данными [2, 13].

Несомненный интерес представляло выяснение влияния способа возбуждения на форму и ширину спектральных линий люминесценции Nd^{3+} в кристалле $Y_3Al_5O_{12}:Nd^{3+}$. С этой целью при возбуждении кристалла α -час-

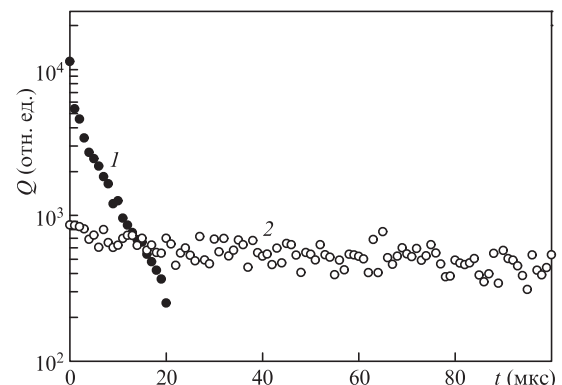


Рис.6. Временные распределения интенсивности люминесценции для переходов с уровней ${}^2F_{5/2}$ (1) и ${}^4F_{3/2}$ (2)

Табл.4. Основные спектрально-люминесцентные характеристики мультиплета ${}^4F_{3/2}$ ионов Nd^{3+} в кристалле $Y_3Al_5O_{12}:Nd^{3+}$ (образец № 1) и в лазерных фосфатных стеклах.

Номер образца	[Nd] (см ⁻³)	λ (нм)	$\Delta\lambda$ (нм)	τ_m (мкс)	β_{ij} (%) (${}^4I_{9/2}$, ${}^4I_{11/2}$, ${}^4I_{13/2}$)	η (%)
1	6×10^{19}	1063	5	215	38, 50, 12	2.0 ± 0.4
1ст	8.4×10^{20}	1054	21	110	42, 46, 12	0.11 ± 0.02
2ст	2.2×10^{20}	1054	21	300	45, 45, 10	0.15 ± 0.02
3ст	2.9×10^{20}	1054	21	280	46, 43, 11	0.18 ± 0.02

тицами и осколками деления ${}^{252}Cf$ для одной из одиночных линий радиоломинесценции иона неодима с $\lambda = 1051.2$ нм был измерен спектр с высоким разрешением ($\delta\lambda = 0.15$ нм) и обработан с учетом влияния аппаратной функции монохроматора на ширину и форму истинного контура линии люминесценции. Известно, что аппаратное распределение $P_{exp}(\lambda_i)$ описывается уравнением [18]

$$P_{exp}(\lambda') = \int \varphi(\lambda) F(\lambda, \lambda') d\lambda, \quad (7)$$

где $\varphi(\lambda)$ – истинное распределение интенсивности линии люминесценции; $F(\lambda, \lambda')$ – аппаратная функция. Аппаратная функция была измерена экспериментально с использованием ртутной лампы. Уравнение (7) решалось методом наименьшего направленного расхождения [19]. Форма линии люминесценции $\varphi(\lambda)$ описывалась лоренцевым либо гауссовым распределением. Наилучшее описание распределения $P_{exp}(\lambda_i)$ было достигнуто при использовании лоренцевой формы линии истинного распределения интенсивности $\varphi(\lambda)$. Данное обстоятельство указывает на сохранение преимущественно однородного уширения линий радиоломинесценции Nd^{3+} при возбуждении кристалла α -частицами и осколками деления ${}^{252}Cf$. Ширина этой линии радиоломинесценции на полувысоте оказалась равной 0.70 ± 0.10 нм, что несколько больше ширины линии фотоломинесценции 0.55 ± 0.05 нм.

Описанная выше методика была использована для исследования радиоломинесценции ряда лазерных фосфатных стекол, активированных неодимом. Наиболее детально изучено неодимовое стекло (образец № 1ст) с концентрацией неодима 8.4×10^{20} см⁻³ следующего состава: $10Li_2O \cdot 4(0.35Nd_2O_3 + 0.65La_2O_3) \cdot 25P_2O_5 + 7$ вес. % SiO_2 . Это стекло имело в своем составе литий, обогащенный изотопом 6Li , и по своим параметрам было близко к высококонцентрированным лазерным стеклам, разработанным в ИОФАНе [20, 21]. Оказалось, что в отличие от кристалла $Y_3Al_5O_{12}:Nd^{3+}$ неодимовое стекло под действием тяжелых заряженных частиц, таких как α -частицы и осколки деления, люминесцирует только в традиционной ИК области спектра. Время жизни уровня ${}^4F_{3/2}$, измеренное методом задержанных совпадений при возбуждении неодимового стекла осколками деления, с высокой точностью совпало с временем жизни этого уровня, измеренным при оптическом возбуждении, и составило 110 мкс. Люминесцентное время жизни уровня ${}^4F_{3/2}$ иона неодима в образцах № 2ст (стекло типа ГЛС22 [22]) и № 3ст (стекло типа ЛГС40 [22]) было измерено только при оптическом возбуждении стекол и составило 300 и 280 мкс соответственно. Спектры радиоломинесценции неодима при облучении α -частицами ${}^{239}Pu$ были измерены в диапазоне длин волн 850–1200 нм как для образца № 1ст, так и для образцов № 2ст и 3ст. Положения и ширины линий радиоломинесценции, соответствующих переходам ${}^4F_{3/2} \rightarrow {}^4I_{11/2}$ и ${}^4F_{3/2} \rightarrow {}^4I_{9/2}$, с высокой точностью совпали с соот-

ветствующими характеристиками этого перехода при оптическом возбуждении образцов. Спектры радиоломинесценции неодимовых стекол были использованы для расчета конверсионной эффективности образцов. Результаты измерений радиоломинесцентных характеристик лазерного перехода ${}^4F_{3/2} \rightarrow {}^4I_{11/2}$ иона Nd^{3+} в кристалле $Y_3Al_5O_{12}:Nd^{3+}$ и в фосфатных стеклах приведены в табл.4. В настоящей работе коэффициенты ветвления β_{ij} для переходов ${}^4F_{3/2} \rightarrow {}^4I_{11/2}$ и ${}^4F_{3/2} \rightarrow {}^4I_{9/2}$ получены экспериментально в предположении, что для перехода ${}^4F_{3/2} \rightarrow {}^4I_{13/2}$ значения β_{ij} для кристалла соответствуют данным работы [13], а для стекол – работы [22]. Из табл.4 видно, что, несмотря на очень высокую концентрацию неодима, конверсионная эффективность этих стекол невысока и составляет 0.1%–0.2%, что на порядок ниже, чем η для кристалла $Y_3Al_5O_{12}:Nd^{3+}$ в области 850–1200 нм.

Если предположить, что механизм возбуждения ионов неодима в стеклах такой же, как и в кристаллах, т. е. что вся энергия заряженных частиц идет на создание электронно-дырочных пар, а последующие процессы рекомбинации пар и обменно-резонансное взаимодействие на ионах неодима приводят к возбуждению последних, то становится ясно, что низкая подвижность электронно-дырочных пар и присутствие в стеклах большого количества центров рекомбинации резко снижают эффективность этого механизма переноса энергии возбуждения и, следовательно, конверсионную эффективность неодимового стекла. В то же время следует отметить, что величина η для стекол зависит от состава матрицы и, возможно, подбирая состав стекла, можно будет увеличить эффективность преобразования энергии заряженных частиц в оптическое излучение.

4. Заключение

Подводя итоги данной работы, нужно отметить полученные результаты. Нами разработаны методы измерения временных распределения и распределений по длинам волн фотонов радиоломинесценции при возбуждении твердотельных лазерных материалов α -частицами и осколками деления. Применение этих методов позволило получить новые экспериментальные данные, из анализа которых можно сделать следующие выводы.

1. Положения и ширины линий люминесценции иона Nd^{3+} в изученных матрицах слабо зависят от вида возбуждающего излучения.

2. Теоретические расчеты коэффициентов ветвления β_{ij} люминесценции с высоколежащего состояния ${}^2F_{5/2}$ при возбуждении лазерного кристалла $Y_3Al_5O_{12}:Nd^{3+}$ α -частицами ${}^{239}Pu$ удовлетворительно согласуются с экспериментальными значениями коэффициентов ветвления β_{ij} радиоломинесценции.

3. Обнаружены и идентифицированы излучательные переходы с высоколежащего уровня мультиплета ${}^2P_{3/2}$.

4. Из анализа полученных значений коэффициентов ветвления следует, что возбуждение уровней ${}^4D_{3/2}$ и ${}^2P_{3/2}$ высокоэнергетическими частицами малоэффективно и наибольший интерес для накачки тяжёлыми заряженными частицами представляют высоколежащий мультиплет ${}^2F_{25/2}$ и традиционный лазерный уровень ${}^4F_{3/2}$ иона неодима.

5. Контур одиночной спектральной линии радиолюминесценции Nd^{3+} в кристалле $Y_3Al_5O_{12}:Nd^{3+}$ описывается лоренцевым распределением, что указывает на преимущественно однородное уширение спектральной линии; ширина этой линии ($\lambda = 1052$ нм) составляет 0.70 ± 0.10 нм, что примерно на 20% больше ширины линии при оптическом возбуждении неодима в $Y_3Al_5O_{12}:Nd^{3+}$.

6. Люминесцентное время жизни τ_{lum} высоколежащего уровня ${}^2F_{25/2}$ иона Nd^{3+} в кристалле $Y_3Al_5O_{12}:Nd^{3+}$ слабо зависит от вида высокоэнергетического возбуждающего излучения и составляет 3.2 ± 0.2 мкс.

7. Люминесцентное время жизни τ_{lum} верхнего лазерного уровня ${}^4F_{3/2}$ иона Nd^{3+} как в кристалле $Y_3Al_5O_{12}:Nd^{3+}$, так и в неодимовых стеклах также слабо зависит от вида возбуждающего излучения; при возбуждении этих сред осколками деления ${}^{252}Cf$ значения τ_{lum} в пределах экспериментальных ошибок измерений совпало с данными для τ_m , полученными при оптической накачке.

8. Эффективность преобразования η энергии α -частиц и осколков деления в оптическое излучение для кристалла $Y_3Al_5O_{12}:Nd^{3+}$ составляет $2.9\% \pm 0.5\%$ в видимом диапазоне и $2.0\% \pm 0.4\%$ в ИК области спектра.

9. Для изученных фосфатных неодимовых стекол излучение в видимом диапазоне спектра не обнаружено; в ИК области спектра эффективность преобразования η энергии α -частиц и осколков деления в оптическое излучение составляет не более 0.2%.

10. Полученные результаты представляют интерес для создания уникального стабильного источника спонтанного излучения фотонов в широкой области длин волн

(от УФ до ближнего и среднего ИК диапазонов) на основе кристалла $Y_3Al_5O_{12}:Nd^{3+}$ и источника α -частиц ${}^{239}Pu$.

1. Воронько Ю.К., Денкер Б.И., Осико В.В., Прохоров А.М., Тимошечкин М.И. *ДАН СССР*, **188**, 1258 (1969).
2. Воронько Ю.К., Ноле Э.Л., Осико В.В., Тимошечкин М.И. *Письма в ЖЭТФ*, **13**, 125 (1971).
3. Niklas A., Jelenski W. *Phys. Stat. Sol. (a)*, **77**, 393 (1983).
4. Коломыйцев А.И., Мейльман М.Л., Володина И.С., Чукичев М.В., Смагин А.Г., Багдасаров Л.С. *Оптика и спектроскопия*, **56**, 365 (1984).
5. Баснев Т.Т., Дергачев А.Ю., Кирпиченкова Е.О., Орловский Ю.В., Осико В.В. *Квантовая электроника*, **14**, 2021 (1987).
6. Macfarlane R.M., Tong F., Silversmith A.J., Lenth W. *Appl. Phys. Lett.*, **82**, 1300 (1988).
7. Lenth W., Macfarlane R.M. *Luminescence*, **45**, 346 (1990).
8. Серёгина Е.А., Дьяченко П.П., Калинин В.В., Шевчук О.Д. *ЖПС*, **54**, 788 (1991).
9. Каминский А.А., Миронов В.С., Багаев С.Н., Шау Л., Джонсон В.Б. *Докл. РАН*, **339**, 182 (1994).
10. Каминский А.А., Миронов В.С., Багаев С.Н. *Квантовая электроника*, **21**, 711 (1994).
11. Seregina E.A., D'yachenko P.P., Kalinin V.V. *Nucl. Instr. Meth. B*, **89**, 412 (1994).
12. Нейлер Дж., Гуд В. *Техника спектрометрии быстрых нейтронов*. В сб. *Физика быстрых нейтронов*. Под ред. Дж. Марнона и Дж. Фаулера. (М.: Госатомиздат. 1963, т. 1).
13. Каминский А.А. *Лазерные кристаллы* (М.: Наука, 1975).
14. Judd B.R. *Phys. Rev.*, **127**, 750 (1962).
15. Ofelt G.S. *J. Chem. Phys.*, **37**, 511 (1962).
16. Kaminskii A.A., Boulon G., Buoncristiani M., Bartolo B.Di, Kornienko A., Mironov V. *Phys. Stat. Sol. (a)*, **141**, 471 (1994).
17. Шварц К.К., Экманис Ю.А. *Радиационная физика*, **5**, 259 (1967).
18. Малышев В.И. *Введение в экспериментальную спектроскопию* (М.: Наука. 1979).
19. Тараско М.З. *Препринт ФЭИ № 1446* (Обнинск, 1983).
20. Батыгов С.Х., Воронько Ю.К., Денкер Б.И., Зленко А.А., Карасик А.Я., и др. *Квантовая электроника*, **3**, 2243 (1976).
21. Денкер Б.И., Осико В.В., Пашинин П.П., Прохоров А.М. *Квантовая электроника*, **8**, 459 (1981).
22. Алексеев Н.Е., Гапонцев В.П., Жаботинский М.Е., Кравченко В.Б., Рудницкий Ю.П. *Лазерные фосфатные стекла* (М.: Наука, 1980).