

О НЕКОТОРЫХ ПАРАМЕТРАХ ЛЮМИНЕСЦЕНЦИИ РУБИНА В ЛЮМИНЕСЦЕНТНЫХ ИЗМЕРИТЕЛЯХ ЭНЕРГИИ ОКГ С МОДУЛИРОВАННОЙ ДОБРОТНОСТЬЮ

А. Я. Лейкин, К. И. Мунтян, Б. И. Рубинштейн,
В. С. Соловьев, А. М. Фишер

Харьков

Известная связь между энергией люминесценции и энергией излучения, поглощенной образцом, позволяет доступными средствами и с достаточной точностью измерять или индицировать энергию ОКГ с модулированной добротностью [1].

Путем несложных вычислений, предполагая характер затухания люминесценции экспоненциальным, можно связать энергию излучения W_n , прошедшую через образец, с длительностью процесса люминесценции t на определенном пороговом уровне энергии W_n следующим образом:

$$W_n = W_{pe} \frac{t}{\tau}, \quad (1)$$

где τ — релаксационная постоянная.

Важной характеристикой измерителя, основанного на изложенном выше принципе, является стабильность констант, входящих в выражение (1), а также их независимость от измеряемой величины. Ранее уже отмечалось [2], что при возбуждении люминесценции R -линий рубина постоянная времени τ при данной температуре зависит от размеров образца.

Некоторая зависимость τ обнаружилась также и от параметров камеры, в которой размещался исследуемый образец. Помимо этого, в силу принципиальной возможности эффекта насыщения, представляет интерес оценка величины поглощаемой энергии, при которой еще справедливо выражение (1).

Было замечено, что скорость спада люминесценции уменьшалась с увеличением объема образца и в случае размещения его в камере с отражающими стенками, а нарушения закономерности, представленной выражением (1), не наблюдалось.

Увеличение времени люминесценции τ кристалла подвергнутого действию лазерного импульса, по сравнению со временем

жизни возбужденного состояния T можно объяснить двумя причинами. Во-первых, имеет место процесс поглощения невозбужденными активными центрами фотонов, спонтанно излученных возбужденными атомами (перепоглощение). Это увеличивает длительность пребывания фотона в кристалле и, следовательно, затягивает люминесценцию. Во-вторых, если кристалл помещен в камеру с отражающими стенками, увеличение времени жизни фотона θ в системе кристалл — камера также увеличивает τ .

Оба указанных явления можно описать системой известных балансных уравнений для концентрации возбужденных активных центров в кристалле n и концентрации фотонов в нем q :

$$\frac{\partial n}{\partial t} = -\frac{n}{T} + \kappa v q; \quad (2)$$

$$\frac{\partial q}{\partial t} = \frac{n}{T} - \kappa v q - \frac{q}{\theta}. \quad (2a)$$

Здесь κ — коэффициент поглощения вещества кристалла на единицу длины;

v — скорость света в нем.

Первые слагаемые в правых частях (2) и (2a) соответствуют спонтанным переходам, вторые — вынужденным, обуславливающим процесс перепоглощения, а третье слагаемое в (2a) учитывает конечность времени жизни фотона в системе кристалл—камера. Коэффициент поглощения κ в уравнениях (2) предполагается независимым от n , q и равным коэффициенту поглощения невозбужденного кристалла. Это предположение справедливо в случае, когда n значительно меньше концентрации активных центров N в кристалле:

$$n \ll N. \quad (3)$$

Данное условие на практике обычно выполняется.

Пренебрегая диффузией возбуждения, возникающей в процессе люминесценции, т. е. считая величины n и q усредненными по объему кристалла и учитывая (3), проинтегрируем систему (2). Дифференцируя (2a) по времени и подставляя в (2), получаем уравнение для концентрации фотонов в кристалле:

$$\frac{\partial^2 q}{\partial t^2} + \left(\kappa v + \frac{1}{\theta} + \frac{1}{T} \right) \frac{\partial q}{\partial t} + \frac{q}{\theta T} = 0. \quad (4)$$

В момент времени $t = 0$ люминесценции нет, а количество возбужденных активных центров n_0 максимально (длительность процесса возбуждения считаем бесконечно малой). Тогда начальные условия к уравнению (4) с учетом (2) есть

$$q(0) = 0; \quad \frac{\partial q(0)}{\partial t} = \frac{n_0}{T},$$

а решение уравнения (4) имеет вид

$$q(t) = \frac{n_0 \theta}{T(1 + \kappa v \theta)} \left[e^{-\frac{t}{T(1 + \kappa v \theta)}} - e^{-\frac{1 + \kappa v \theta}{\theta} t} \right]. \quad (5)$$

Обычно для рубина $T \gg \theta$; $T \gg \chi v$, поэтому в (5) оставлены лишь члены наимизшего порядка по $\frac{\theta}{T}$ и $\frac{\chi v}{T}$. По этой же причине к моменту времени $t \geq \theta$ вторая экспонента в (5) становится пренебрежимо малой и

$$q(t) = \frac{n_0 \theta}{T(1 + \chi v \theta)} e^{-\frac{t}{T(1 + \chi v \theta)}}; \quad t \gg \theta. \quad (6)$$

Отсюда видно, что люминесценция экспоненциально затухает с характерным временем

$$\tau = T(1 + \chi v \theta). \quad (7)$$

Из выражения (6) легко может быть получено соотношение (1), основополагающее для наших экспериментов.

Время жизни фотона θ в системе кристалл — камера зависит от геометрической конфигурации этой системы, коэффициента отражения стенок камеры, качества обработки поверхности образца и других факторов, характерных для каждой конкретной системы. Для кристалла с полированной поверхностью существенным оказывается эффект полного внутреннего отражения, за счет которого происходит возвращение фотонов в кристалл, увеличение вероятности перепоглощения, т. е. затягивание люминесценции. Аналогичным образом повторному попаданию фотона в кристалл способствует также камера с хорошо отполированными стенками.

Точный учет всех перечисленных факторов, влияющих на θ , не представляется возможным, однако вклад основных из них может быть, по-видимому, оценен при расчете модели, достаточно близкой к реальной системе кристалл — камера.

Рассмотрим подробнее условие (3), ограничивающее применимость выражений (6), (7).

Для выяснения физического смысла этого ограничения оценим максимальную концентрацию возбужденных активных центров n_0 , возникающую в кристалле при прохождении через него светового импульса длительности δt . Для упрощения рассмотрим прямоугольный импульс, для которого

$$q(t) = \begin{cases} 0, & t < 0; \\ q_0, & 0 < t < \delta t; \\ 0, & t > \delta t. \end{cases} \quad (8)$$

Величина n_0 может быть найдена из уравнения (2), в котором коэффициент поглощения χ теперь следует считать зависящим от n .

Для интересующей нас оценки, считая χ пропорциональным разности населенности между нижним и верхним уровнями $(N - n) - n$, можно положить

$$\chi = \chi_0 \left(1 - \frac{2n}{N}\right), \quad (9)$$

где χ_0 — коэффициент поглощения невозбужденного кристалла. Интегрируя уравнение (2) с учетом (8) и (9), нетрудно получить соотношение

$$\frac{2n_0}{N} = \frac{q_0 \delta t v \chi_0}{N} = \frac{W \chi_0}{h \omega_0 \sigma N}$$

Здесь W — энергия в импульсе излучения;
 σ — площадь его поперечного сечения;
 ω_0 — центральная частота полосы люминесценции.
 Неравенство (3) приобретает вид

$$\frac{W \chi_0}{h \omega_0 \sigma N} \ll 1, \quad (10)$$

а его физический смысл сводится к требованию малости числа фотонов, поглощаемых единицей объема кристалла по сравнению с концентрацией активных центров.

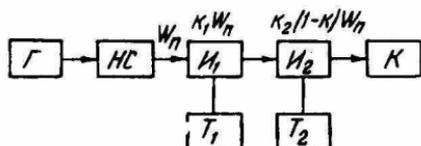


Рис. 1.

Подстановка в (10) типичных значений входящих в него величин ($\omega_0 \sim 10^{15} \text{ сек}^{-1}$, $N \sim 10^{19} \text{ см}^{-3}$, $\chi_0 \sim 0,4 \text{ см}^{-1}$, $\sigma \sim 0,5 \text{ см}^2$) показывает, что выражение (7) справедливо, если

плотность энергии в импульсе не превышает единиц джоулей.

Для экспериментальной проверки приведенных выше расчетов была собрана установка по блок-схеме, представленной на рис. 1.

Образцы равного объема и одинаковой геометрии вырезались из одного рубинового элемента и помещались в камеры проходных измерителей I_1 и I_2 , причем камеры отличались объемом, конфигурацией и коэффициентом отражения. Приборами T_1 и T_2 измерялась продолжительность люминесценции t_1 и t_2 для I_1 и I_2 на соответствующих уровнях энергии. Импульс излучения генератора Γ с длиной волны $\sim 6943 \text{ \AA}$, энергией $\sim 0,3 \text{ Дж}$ и длительностью $\sim 30 \text{ нс}$ ослаблялся в произвольных отношениях набором нейтральных светофильтров $НС$. Контроль энергии излучения осуществлялся калориметром $К$ типа ИЭК-1. На данной установке были сняты зависимости $t_1 = f(W_{пр})$ и $t_2 = f(W_{пр})$. Графиками этих функций, построенными в полулогарифмическом масштабе по результатам эксперимента, должны быть, как это следует из (1), прямые линии, наклон которых определяется величинами τ_1 и τ_2 соответственно для измерителей I_1 и I_2 . Отклонение указанных графиков от прямолинейности позволило бы найти область применимости (для разных энергий) выражения (1).

При построении такого графика по экспериментальным точкам обнаружилось, что отличие между τ_1 и τ_2 находится в пределах погрешности эксперимента, вследствие чего влияние каче-

ства камеры на величину τ указанным способом оценить не удалось. Однако в таком случае можно определить отношение $\frac{\tau_1}{\tau_2}$; для этого был построен экспериментальный график $t_1 = f(t_2)$ в диапазоне энергий $10^{-3} - 3 \cdot 10^{-1}$ дж. Целесообразность такого построения объясняется следующим.

Пусть на вход измерителя I_1 попадает излучение W_n (см. рис. 1). Тогда (если квантовый выход равен единице) I_1 преобразует в люминесценцию энергию излучения

$$W_{n1} = W_n k_1,$$

где k_1 — коэффициент поглощения измерителя I_1 , а I_2 соответственно

$$W_{n2} = W_n (1 - k_1) k_2,$$

где k_2 — коэффициент поглощения измерителя I_2 . Выразим W_{n1} и W_{n2} через постоянные параметры измерителей I_1 и I_2 . Согласно (1), получим

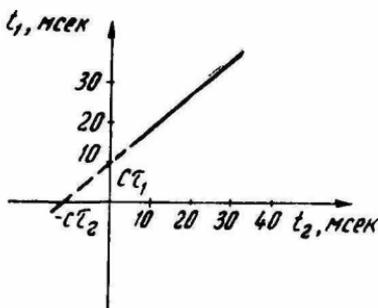


Рис. 2.

$$W_{n1} = W_{n1} e^{\frac{t_1}{\tau_1}} = W_n k_1;$$

$$W_{n2} = W_{n2} e^{\frac{t_2}{\tau_2}} = W_n (1 - k_1) k_2$$

где W_{n1} , W_{n2} — соответственно уровни энергии, на которых регистрируется длительность люминесценции t_1 и t_2 . Исключим из предыдущих выражений W_n , тогда

$$\frac{t_1}{\tau_1} - \frac{t_2}{\tau_2} = \frac{k_1 W_{n12}}{(1 - k_1) k_2 W_{n2}}.$$

Если для данной системы измерителей k_1 , k_2 и W_{n1} , W_{n2} есть константы, то для любых значений энергии график $t_1 = f(t_2)$ окажется прямой:

$$\frac{t_1}{\tau_1} - \frac{t_2}{\tau_2} = C$$

и

$$t_1 = \frac{\tau_1}{\tau_2} t_2 + C \tau_1. \quad (11)$$

На рис. 2 представлен экспериментальный график зависимости (11) в диапазоне энергий $10^{-3} - 3 \cdot 10^{-1}$ дж. Экспериментальные точки достаточно точно укладывались на прямую (11), что свидетельствует о линейности преобразования в этом диапазоне энергий. Что касается τ , то для одинаковых образцов и различных камер как оказалось, $\frac{\tau_1}{\tau_2} \neq 1$.

В частности, в нашем случае $\frac{\tau_1}{\tau_2} = 0,92$ и τ больше тогда, когда камера измерителя обработана более качественно. Последнее подтверждается выражением (7).

ВЫВОДЫ

1. При возбуждении рубина коротким оптическим импульсом с энергией до единиц джоуля в пределах полосы поглощения R_1 возбуждается люминесценция, затухающая экспоненциально с характерным временем $\tau = (1 \mp kv\theta) T$.
2. Постоянная времени τ всегда больше времени жизни возбужденного состояния T и зависит не только от размеров образца, но и от некоторых характеристик камеры, собирающей люминесценцию.
3. Величина τ для одинаковых по геометрическим размерам образцов больше для камер, обладающих свойством большую часть энергии люминесценции возвращать в возбуждаемый образец.

ЛИТЕРАТУРА

1. К. И. Мунтян, В. И. Рубинштейн. Способ измерения энергии излучения ОКГ с модулированной добротностью. Материалы межведомственной научно-технической конференции «Состояние и пути совершенствования методов и приборов для измерения мощности на СВЧ», 4—6 октября 1971 г. Изд-во ХГУ, Харьков, 1972.
2. Н. А. Толстой, А. М. Ткачук. «Оптика и спектроскопия», т. VI, вып. 5, 1959.