

Nd³⁺ 掺杂 GdTaO₄ 的吸收光谱分析和晶场计算

高进云 张庆礼 王小飞 刘文鹏 孙贵华 孙敦陆 殷绍唐

Absorption spectrum analysis and crystal-field calculation of Nd³⁺ doped in GdTaO₄ crystal

Gao Jin-Yun Zhang Qing-Li Wang Xiao-Fei Liu Wen-Peng Sun Gui-Hua Sun Dun-Lu Yin Shao-Tang

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 64, 124209 (2015) DOI: 10.7498/aps.64.124209

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.124209>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2015/V64/I12>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

基于神光 III 原型的整形激光直接驱动准等熵压缩实验研究

Quasi-isentropic experiment based on Shen Guang-III prototype laser facility with laser direct drive illumination

物理学报.2015, 64(8): 085202 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.085202>

玻璃微球内氘结晶行为研究

Crystallization behaviors of deuterium in glass microsphere

物理学报.2015, 64(1): 015202 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.015202>

基于焦斑空间频率全域优化的偏振匀滑设计

Polarization smoothing design for improving the whole spatial frequency at focal spot

物理学报.2014, 63(21): 215202 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.215202>

基于神光 III 原型装置的激光加载条件下准等熵压缩实验研究进展

Experimental progress of quasi-isentropic compression under drive condition of Shen Guang-III prototype laser facility

物理学报.2014, 63(18): 185202 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.185202>

小收缩比内爆实验初步研究

Experimental studies of low-convergence-ratio implosions

物理学报.2014, 63(12): 125211 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.125211>

Nd³⁺ 掺杂 GdTaO₄ 的吸收光谱分析和晶场计算*高进云 张庆礼[†] 王小飞 刘文鹏 孙贵华 孙敦陆 殷绍唐

(中国科学院安徽光学精密机械研究所, 合肥 230031)

(2014年10月24日收到; 2014年12月1日收到修改稿)

采用提拉法生长出了钕掺杂钽酸钷重闪烁单斜激光晶体 (Nd³⁺:GdTaO₄). 分别测试了该晶体 *a* 向、*b* 向和 *c* 向的吸收光谱 (波段为 260—2000 nm), 对其中 Nd³⁺ 的实验能级进行了分析指认. 确定了 Nd³⁺:GdTaO₄ 的 102 个实验 Stark 能级, 拟合了其自由离子参数和晶体场参数, 均方根误差 (拟合精度) σ 为 12.66 cm⁻¹. 并将拟合得到的 Nd³⁺:GdTaO₄ 实验结果与文献中已报道的 Nd³⁺:Gd_{*x*}Lu_{1-*x*}TaO₄ (*x* = 0.85) 的自由离子参数和晶体场参数进行了比较. 结果表明, 参数化 Stark 能级的拟合结果与实验光谱符合得较好.

关键词: Nd³⁺:GdTaO₄ 晶体, 吸收光谱, 晶体场模型, 能级拟合

PACS: 42.70.-a, 81.10.-h, 71.70.Ch, 75.10.Dg

DOI: 10.7498/aps.64.124209

1 引言

高密度闪烁体对于高能物理探测、核医学成像等领域的发展具有重要意义. 虽然已有一些重闪烁体如 PbWO₄, BGO, Ce³⁺:LSO, Ce³⁺:LuAP 等已进入实用阶段^[1-5], 但仍有很多性能还不能完全满足应用要求, 在密度、光产额、发光衰减等性能方面仍希望有进一步的提高. 因此, 探索新型高密度闪烁体材料及其制备方法, 研究基质本身及不同掺杂离子在其中的发光性能具有重要意义.

稀土离子掺杂的无机化合物是一类重要的荧光材料, 广泛应用于发光、显示、信息等领域. 稀土离子的发光受配位环境、掺杂浓度、稀土离子在基质晶格中的分布及基质与稀土离子之间的能量传递等因素的影响, 同一稀土离子在不同的基质中发光性质会有所改变. 稀土离子与基质之间相互作用影响稀土离子的动力学性质, 从而限制了稀土掺杂荧光材料的发光效率.

探索新的发光材料, 基质的选择非常重要. ABO₄ (*A* = Sc, Y, Gd, Lu; *B* = P, V, Nb, Ta) 型结构是一类非常好的荧光基质材料, 稀土掺杂

的 YVO₄, YPO₄, LuVO₄ 等材料的发光性质已被广泛研究. 稀土钨钼酸盐是一类很稳定的化合物, 其中稀土正钨钼酸盐 (即 ABO₄) 具有单斜结构 (*M* 型和 *M'* 型), 可以看作是畸变的白钨矿型结构. 由于其性质稳定、耐腐蚀性强, 可以作为荧光基质材料^[6,7].

晶体中掺杂的三价激活离子的能级结构对于光学材料的研究非常重要. 近几十年来, 研究人员一直用参数化晶体场模型来分析它们的能级, 本文运用参数化模型来分析拟合 Nd³⁺ 掺杂单斜晶系 GdTaO₄ 的晶体场能级.

2 计算模型

本文所用的晶体场拟合方法是 Reid 开发的在 Linux 系统中运行的 f-shell 拟合程序. 钕离子掺杂在晶体中的复杂能级机理是由一系列相互作用来描述的, 这种模型称为参数化模型^[8,9]. 参数化模型中的哈密顿量可以写为

$$\hat{H} = \hat{H}_A + \hat{H}_{CF}, \quad (1)$$

* 国家自然科学基金 (批准号: 51172236, 91122021, 51272254, 61205173, 50932005) 资助的课题.

[†] 通信作者. E-mail: zql@aiofm.ac.cn

此处 \hat{H}_A 表示为原子哈密顿量, \hat{H}_{CF} 表示为晶体场相互作用哈密顿量. \hat{H}_A 可以具体表示为

$$\begin{aligned} \hat{H}_A = & E_{\text{avg}} + \sum_{k=2,4,6} F^k \hat{f}_k + \xi \hat{A}_{SO} + \alpha \hat{L} (\hat{L} + 1) \\ & + \beta \hat{G}(G_2) + \gamma \hat{G}(R_7) + \sum_{i=2,3,4,6,7,8} T^i \hat{t}_i \\ & + \sum_{j=0,2,4} M^j \hat{m}_j + \sum_{k=2,4,6} P^k \hat{p}_k, \end{aligned} \quad (2)$$

式中, E_{avg} 为中心势场的单电子部分; 库仑相互作用 $F^k f_k$ ($k = 2, 4$ 和 6) 是用 Slater 积分来描述的, 其中 F^k 和 f_k 分别为其径向部分和角向部分; ξ 和 A_{SO} 分别为自旋轨道相互作用的径向部分和角向部分; α, β 和 γ 为两体相互作用参数, $G(G_2)$ 和 $G(R_7)$ 分别为群 G_2 和 R_7 的 Casimir 算符; $T^i t_i$ ($i = 2, 3, 4, 6, 7$ 和 8) 描述的是三体组态相互作用, 其中 T^i 和 t_i 分别为参数和算符; 高阶的磁自旋自旋和自旋其他轨道相互作用分别用 M^j ($j = 0, 2$ 和 4) 和 P^k ($k = 2, 4$ 和 6) 来表示, 其对应的算符分别用 m_j 和 p_k 来表示, 其中这些参数满足 $M^2 = 0.56M^0$, $M^4 = 0.38M^0$ 和 $P^4 = 0.75P^2$, $P^6 = 0.5P^2$.

晶体场相互作用哈密顿量 \hat{H}_{CF} 可以展开为

$$\hat{H}_{CF} = \sum_{k,q} B_q^k C_q^{(k)}, \quad (3)$$

式中, B_q^k 为晶体场参数, $C_q^{(k)}$ 为球张量算符; k 和 q 为对称性数值, 并且它们的取值分别为 $k = 2, 4, 6$ 以及 $q = -k \leq q \leq k$ [10]. 对于 Nd^{3+} 掺杂在单斜晶体中的 C_2 对称格位, 晶体场相互作用哈密顿量可以表示为

$$\begin{aligned} \hat{H}_{CF}(C_2) = & \sum_k B_0^k C_0^k + \sum_{k,q>0} \left[\text{Re} B_q^k (C_q^k + C_{-q}^k) \right. \\ & \left. + i \text{Im} B_q^k (C_q^k - C_{-q}^k) \right]. \end{aligned} \quad (4)$$

C_2 对称格位的 9 个晶体场参数有 4 个实参数和 5 个复参数 [11].

对于稀土离子, 确定了上述的晶场哈密顿的独立参数 B_q^k , 就可以和其 20 余个自由离子参数一起作为拟合参量对实验光谱的能级进行拟合计算, 从而得到这些参量值、各能级及其本征函数. 通常需要反复进行最小二乘法拟合过程, 具体步骤如下: 1) 估计所考虑系统的晶体场参数初值; 2) 用估计的或者先前计算的晶体场参数值来构建能量矩阵; 3) 对能量矩阵对角化得到本征值, 其与能级的估计位

置相对应; 4) 建立实验和计算能级间的一一对应的关系; 5) 固定能量矩阵的特征向量, 确定参数值使得实验和计算间的能级值的最小平方差值之和最小; 6) 运用由步骤 5 得到的系列晶体参数值, 并返回至步骤 2, 继续重复步骤 2—步骤 5, 直至认为计算和实验能级符合得足够好.

拟合精度用均方根误差来表示, 它的定义为 [8]

$$\sigma = \left[\frac{\sum (E_{\text{exp}} - E_{\text{calc}})^2}{N - P} \right]^{1/2}, \quad (5)$$

其中, E_{exp} 与 E_{calc} 分别为实验与计算能级; N 和 P 分别为能级的数目和拟合参数的数目.

运用 f-shell 程序进行晶体场拟合时应注意根据实际情况调整实验能级指认, 修改指认的实验能级文件, 根据实验数据的个数调整 (扩大和缩小) 拟合参数的个数, 运行步骤 5 调整拟合参数反复拟合, 将上一次拟合得到的参数值赋到 REcf.it.dat 和 REcf.dat 文件中, 重新运行步骤 3—步骤 5 的命令, 反复拟合, 直至达到的均方根误差最小. 中国科学院安徽光学精密机械研究所张庆礼等 [12] 在 2010 年报道了一种通过能量表达式对所求参数求导的方法, 依据实验能级拟合得到所求的哈密顿参数.

在运用 f-shell 对三价稀土离子能级拟合时, 如果实验数据非常有限, 却有多个理论拟合参数, 这时就需要有效精炼参数和限制拟合参数的个数. 如只允许 F^k 和 ζ 随着晶体场参数自由的变化, 保持其他的自由离子参数值固定. 如果实验数据点比较多, α, β, γ 也可以进行拟合使其自由变化, 当保持 M^2, M^4 对 M^0 及 P^4, P^6 对 P^2 为固定比例时, M^0 和 P^2 可以自由的变化.

3 结果与讨论

3.1 $\text{Nd}^{3+}:\text{GdTaO}_4$ 吸收光谱分析

带有 3 个 4f 电子的 Nd^{3+} 离子, 其完全能级分裂为 364 个 Stark 能级, 这些能级是两两简并的, 即 182 个 Kramers 简并能级. 所有这些 Stark 能级的跃迁都是电偶极和磁偶极跃迁产生的 [13].

我们把生长的 $\text{Nd}^{3+}:\text{GdTaO}_4$ 晶体分别沿 $\langle 100 \rangle \langle 010 \rangle \langle 001 \rangle$ 三个方向切割出薄片, 双面抛光成为厚度为 2.0 mm 的样品用于光谱测试, 然后分别测三块 $\text{Nd}^{3+}:\text{GdTaO}_4$ 晶体的吸收光谱. 测光谱所用的仪器是 Perkin-Elmer Lambda-950 UV/VIS/NIR 型分光光度计, 波长间隔为

0.5 nm, 测量范围在260—2000 nm. 测得的吸收光谱如图1(波段260—500 nm)、图2(波段500—700 nm)、图3(波段700—900 nm)和图4(波段900—2000 nm)所示.

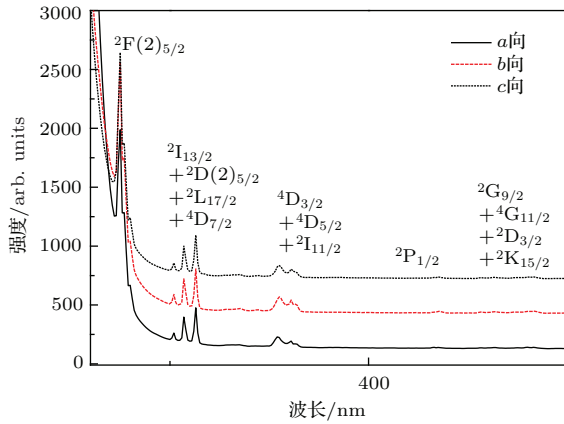


图1 Nd³⁺:GdTaO₄ 晶体 260—500 nm 波段的吸收光谱
Fig. 1. Absorption spectra of Nd³⁺:GdTaO₄ in a range of 260–500 nm.

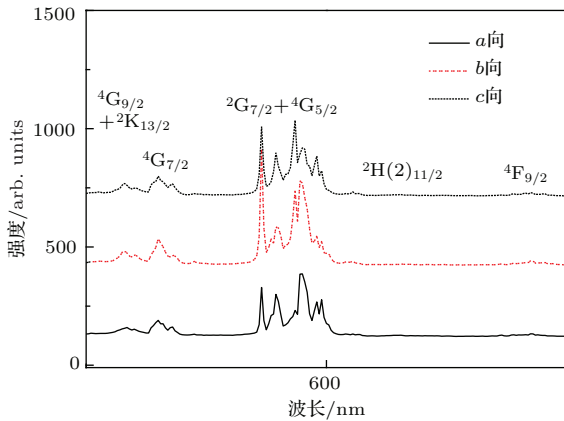


图2 Nd³⁺:GdTaO₄ 晶体 500—700 nm 波段的吸收光谱
Fig. 2. Absorption spectra of Nd³⁺:GdTaO₄ in a range of 500–700 nm.

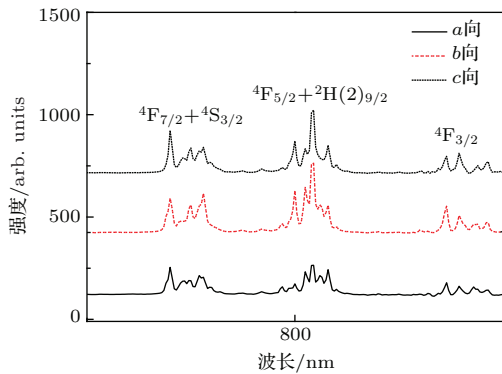


图3 Nd³⁺:GdTaO₄ 晶体 700—900 nm 波段的吸收光谱
Fig. 3. Absorption spectra of Nd³⁺:GdTaO₄ in a range of 700–900 nm.

室温下, 由于声子以及其他因素的影响, 有些光谱线会发生加宽和重叠, 吸收光谱中有些比较弱的峰不容易被指认, 因此我们在分析光谱时选择的是比较明显的吸收峰. 为了便于说明吸收峰的来源, 每个 $2S+1L_J$ 在晶场中分裂的 Stark 能级由低到高分别以 1, 2, 3, ... 来标志.

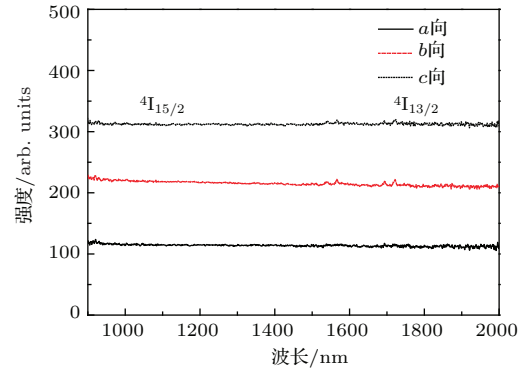


图4 Nd³⁺:GdTaO₄ 晶体 900—2000 nm 波段的吸收光谱
Fig. 4. Absorption spectra of Nd³⁺:GdTaO₄ in range of 900–2000 nm.

表1 Nd³⁺:GdTaO₄ 的吸收光谱的实验能级指认
Table 1. The experimental energy levels of absorption spectra of Nd³⁺:GdTaO₄.

$2S+1L_J$	Nd ³⁺ :GdTaO ₄ 的能级位置
$4I_{9/2}$	0, 117, 238, 367, 498
$4I_{11/2}$	—
$4I_{13/2}$	4632, 4668, 4745, 4842, 4944, 5036
$4I_{15/2}$	6872, 7013, 7084, 7148, 7239, 7324, 7470
$4F_{3/2}$	11615, 11877
$4F_{5/2}+2H(2)_{9/2}$	12731, 12862, 12898, 12935, 13014, 13171
$4F_{7/2}+4S_{3/2}$	13936, 14082, 14163
$4F_{9/2}$	15464, 15601, 15664, 15825
$2H(2)_{11/2}$	16833, 16896, 16965
$4G_{5/2}+2G_{7/2}$	17646, 17884, 17940
$4G_{7/2}$	19697, 19825
$2K_{13/2}+4G_{9/2}$	20502, 20687
$2G_{9/2}+4G_{11/2}+2D_{3/2}+2K_{15/2}$	21678, 22230, 22841
$2P_{1/2}$	23960
$2D(1)_{5/2}+\dots$	—
$4D_{3/2}+2I_{11/2}+4D_{5/2}+\dots$	27628, 29676
$2I_{13/2}+2L_{17/2}+4D_{7/2}+\dots$	31650
$2F(2)_{5/2}$	35822

在Nd³⁺:GdTaO₄的各个光谱项中, 最强的峰出现在波长807 nm处, 此峰对应的跃迁为

$^4I_{9/2}(1) \rightarrow ^4F_{5/2}(1)$. 此外在最强峰的右侧也出现了两个相对较弱的次强峰, 分别位于波长 817 和 824 nm 处. 据此我们可以判定分别来自于 $^4I_{9/2}(2) \rightarrow ^4F_{5/2}(1)$, $^4I_{9/2}(3) \rightarrow ^4F_{5/2}(1)$ 的跃迁, 因此可以定出基态的最低 3 个能级的位置分别在 0, 117 和 238 cm^{-1} . 由于在室温下基态的前 3 个能级占据了大部分的粒子, 结合 3 个方向的吸收光谱对其能级跃迁进行了一一指认^[14], 得到的 $\text{Nd}^{3+}:\text{GdTaO}_4$ 的实验能级位置的结果列于表 1.

3.2 $\text{Nd}^{3+}:\text{GdTaO}_4$ 晶体场能级拟合计算

在用参数化晶体场能级拟合时可以从文献^[15]中选取 $\text{Nd}^{3+}:\text{Gd}_x\text{Lu}_{1-x}\text{TaO}_4$ ($x = 0.85$) 的自由离子参数和晶体场参数作为 $\text{Nd}^{3+}:\text{GdTaO}_4$ 的初始参数. 另外, 在 3.1 节中我们通过吸收光谱的跃迁指认分别确定了 102 个实验能级. 然后用 f-shell 程序拟合了 Nd^{3+} 离子在 GdTaO_4 中的实验能级, 拟合结果列于表 2.

表 2 $\text{Nd}^{3+}:\text{GdTaO}_4$ 的晶体场能级拟合计算
Table 2. Crystal-field energy levels fitting of $\text{Nd}^{3+}:\text{GdTaO}_4$.

$2S+1L_J$	$\text{Nd}^{3+}:\text{GdTaO}_4$ 的能级			$2S+1L_J$	$\text{Nd}^{3+}:\text{GdTaO}_4$ 的能级			
	E_{calc}	E_{exp}	$\Delta E/\text{cm}^{-1}$		E_{calc}	E_{exp}	$\Delta E/\text{cm}^{-1}$	
$^4I_{9/2}$	-4.81	0	4.81	$^2H(2)_{9/2} \ ^4S_{3/2}$	13185.56	13171	-14.56	
	122.09	117	-5.09		13926.81	13936	9.19	
	242.10	238	-4.10	$^4F_{7/2} + ^4S_{3/2}$	14094.82	14082	-12.82	
	372.17	367	-5.17		14151.69	14163	11.31	
	489.45	498	8.55		14184.81	—	—	
$^4I_{11/2}$	2319.31	—	—	$^4F_{9/2}$	15451.31	15464	12.69	
	2369.08	—	—		15623.02	15601	-22.02	
	2450.84	—	—		15675.85	15664	-11.85	
	2516.72	—	—		15740.08	—	—	
	2592.42	—	—		15814.32	15825	10.68	
$^4I_{13/2}$	2656.79	—	—	16824.27	16833	8.73		
	4619.13	4632	12.87	$^2H(2)_{11/2}$	16881.07	16896	14.93	
	4672.95	4668	-4.95		16911.49	—	—	
	4735.59	4745	9.41		16947.09	16965	17.91	
	$^4I_{15/2}$	4829.13	4842	12.87	$^4G_{5/2} + ^2G_{7/2}$	17629.64	17646	16.36
		4873.80	—	—		17898.56	17884	-14.56
4936.67		4944	7.33	17959.88		17940	-19.88	
5044.43		5036	-8.43	$^4G_{7/2}$		19681.74	19697	15.26
6874.39	6872	-2.39	19834.97		19825	-9.97		
$^4I_{15/2}$	7000.32	7013	12.68	$^2K_{13/2} + ^4G_{9/2}$	20511.95	20502	-9.95	
	7071.00	7084	13.00		20680.22	20687	6.78	
	7134.39	7148	13.61	$^2G_{9/2} + ^4G_{11/2} + ^2D_{3/2} + ^2K_{15/2}$	21672.12	21678	5.88	
	7226.49	7239	12.51		22014.24	—	—	
	7322.92	7324	1.08		22240.88	22230	-10.88	
	$^4F_{3/2}$	7462.48	7470	7.52	22847.41	22841	-6.41	
		7621.33	—	—	$^2P_{1/2}$	23973.77	23960	-13.77
11617.98		11615	-2.98	27638.97		27628	-10.97	
11878.56		11877	-1.56	$^4D_{3/2} + ^2I_{11/2} + ^4D_{5/2} + \dots$	29682.98	29676	-6.98	
12755.05	12731	-24.05	...		—	—		
$^2H(2)_{9/2} + ^4S_{3/2}$	12874.09	12862	-12.09	$^2I_{13/2} + ^2L_{17/2} + ^4D_{7/2} + \dots$	31640.01	31650	9.99	
	12907.30	12898	-9.30		...	—	—	
	12954.06	12935	-19.06	$^2F(2)_{5/2} + \dots$	35808.85	35822	13.15	
	13026.22	13014	-12.22		...	—	—	
					...	—	—	

从表 2 可见, 所有的能级都拟合得很好, 即实验能级和拟合计算能级的差值都小于 25 cm^{-1} , 即使能级差值在 20 cm^{-1} 和 25 cm^{-1} 之间的也只有两个 Stark 能级 (12731 和 15601 cm^{-1}). 因此, $\text{Nd}^{3+}:\text{GdTaO}_4$ 的能级拟合计算非常理想.

表 3 Nd^{3+} 掺杂在 GdTaO_4 和 $\text{Gd}_x\text{Lu}_{1-x}\text{TaO}_4$ ($x = 0.85$) 中参数的对比

Table 3. Comparison of the parameters of Nd^{3+} in GdTaO_4 and $\text{Gd}_x\text{Lu}_{1-x}\text{TaO}_4$ ($x = 0.85$).

参数	$\text{Nd}^{3+}:\text{GdTaO}_4/\text{cm}^{-1}$	$\text{Nd}^{3+}:\text{Gd}_x\text{Lu}_{1-x}\text{TaO}_4$ ($x = 0.85$)/ cm^{-1}
E_{avg}	25167	25167
F^2	73018	73018
F^4	52789	52789
F^6	35757	35757
ξ	1034	917
α	21.34	21
β	-593	-593
γ	1445	1445
T^2	[298]	[298]
T^3	[35]	[35]
T^4	[59]	[59]
T^6	[-285]	[-285]
T^7	[332]	[332]
T^8	[305]	[305]
M	2.11	2.11
P	192	192
B_0^2	-1560	-1551
B_2^2	-415	-476
B_0^4	626	-475
B_2^4	422+315i	1305+46i
B_4^4	244+18i	-307+451i
B_0^6	-613	-581
B_2^6	-301+807i	235-136i
B_4^6	-100 - 103i	808+28i
B_6^6	-279 - 107i	-99+158i
σ	12.66	14.92
N_v	2959	3284

在拟合过程中, 20 个自由离子参数中的 10 个参数可以独立变化, 这 10 个自由离子参数为 E_{avg} , F^2 , F^4 , F^6 , ξ , α , β , γ , M^0 和 P^2 . 另外 6 个三体相互作用参数 $T^2, T^3, T^4, T^6, T^7, T^8$ 设定不变. 通过

晶体场能级拟合, 我们确定了 102 个 Stark 能级, 其中包括 7 个 LS 耦合得到的 15 个 J 的多重态. 我们将拟合得到的 $\text{Nd}^{3+}:\text{GdTaO}_4$ 以及文献 [15] 报道的 $\text{Nd}^{3+}:\text{Gd}_x\text{Lu}_{1-x}\text{TaO}_4$ ($x = 0.85$) 的自由离子参数和晶体场参数值列于表 3.

从表 3 可见, $\text{Nd}^{3+}:\text{GdTaO}_4$ 参与拟合的 102 个实验能级其均方根误差为 12.66 cm^{-1} , 而文献 [15] 报道的 $\text{Nd}^{3+}:\text{Gd}_x\text{Lu}_{1-x}\text{TaO}_4$ ($x = 0.85$) 参与拟合的 96 个实验能级其均方根误差为 14.92 cm^{-1} . 可见, 与文献 [15] 相比, 不论从能级数量还是拟合精度, 本文拟合得到的 Nd^{3+} 掺杂钽酸盐晶体的结果都是非常理想的.

4 结 论

采用提拉法生长出钽掺杂钽酸钷重闪烁单斜激光晶体 ($\text{Nd}^{3+}:\text{GdTaO}_4$). 为了获得更精细的谱峰位置, 分别测试了该晶体 a 向、 b 向和 c 向的吸收光谱 (波段为 $260-2000 \text{ nm}$), 并对 Nd^{3+} 的实验能级进行了分析指认. 确定了 $\text{Nd}^{3+}:\text{GdTaO}_4$ 的 102 个实验 Stark 能级, 拟合了其自由离子参数和晶体场参数, 均方根误差 (拟合精度) σ 为 12.66 cm^{-1} . 参数化 Stark 能级的拟合结果与实验光谱符合得较好. 最后将拟合得到的 $\text{Nd}^{3+}:\text{GdTaO}_4$ 实验结果与文献中已报道的 $\text{Nd}^{3+}:\text{Gd}_x\text{Lu}_{1-x}\text{TaO}_4$ ($x = 0.85$) 的自由离子参数和晶体场参数进行了比较. 结果表明, 不论从能级数量还是拟合精度, 本文拟合得到 Nd^{3+} 掺杂钽酸盐晶体的结果都是非常理想的.

参考文献

- [1] Wber M J 2002 *J. Lumin.* **100** 35
- [2] Melcher C L, Schmand M, Eriksson M 2000 *IEEE Trans. Nucl. Sci.* **47** 965
- [3] Petrosyan A G, Shifinyan G O, Ovanesyan K L 1999 *J. Cryst. Growth* **198/199** 492
- [4] Lempicki A, Glodo J 1998 *Nucl. Instrum. Meth. A* **416** 333
- [5] Petrosyan A, Ovanesyan K, Shirinyan G, Butaeva T, Derdzyan M, Pedrini C, Dujardin C, Garnier N, Kamenskikh I 2005 *Nucl. Instrum. Meth. A* **537** 168
- [6] Forbes T Z, Nyman M, Rodriguez M A, Navrotsky A 2010 *J. Solid State Chem.* **183** 2516
- [7] Liu W P, Zhang Q L, Ding L H, Sun D L, Luo J Q, Yin S T 2009 *J. Alloys Compd.* **474** 226
- [8] Christiane G W, Koen B (Gschneidner K A, Eyring L Editors) 1996 *Handbook on the Physics and Chemistry*

- of *Rare Earths* (Amsterdam, New York, Oxford: North-holland Publishing Company) **23** 143–152
- [9] Karbowiak M, Edelstein N M, Drozdzyński J, Kossowski K 2002 *Chem. Phys.* **277** 361
- [10] Xia S D 1994 *Group Theory and Spectroscopy* (Beijing: Science Press) pp262–283
- [11] Newman D J, Ng Betty 2000 *Crystal Field Handbook* (Cambridge: Cambridge University Press) pp43–46
- [12] Zhang Q L, Ning K J, Xiao J, Ding L H, Zhou W L, Liu W P, Yin S T, Jiang H H 2010 *Chin. Phys. B* **19** 087501
- [13] Antic-Fidancev E, Hölsä J, Lastusaari M 2003 *J. Phys.: Condens. Matter.* **15** 863
- [14] Gao J Y, Zhang Q L, Sun D L, Luo J Q, Liu W P, Yin S T 2012 *Opt. Commun.* **285** 4420
- [15] Gao J Y, Zhang Q L, Yang H J, Zhou P Y, Sun D L, Yin S T, He Y 2012 *Chin. Phys. B* **21** 106103

Absorption spectrum analysis and crystal-field calculation of Nd³⁺ doped in GdTaO₄ crystal*

Gao Jin-Yun Zhang Qing-Li[†] Wang Xiao-Fei Liu Wen-Peng Sun Gui-Hua
Sun Dun-Lu Yin Shao-Tang

(Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Hefei 230031, China)

(Received 24 October 2014; revised manuscript received 1 December 2014)

Abstract

In this paper, Nd³⁺-doped GdTaO₄ laser crystal for scintillator with high density is successfully grown by the Czochralski method, and the absorption spectra are measured along the *a*, *b* and *c* directions in a wide wavelength range of 260–2000 nm. The experimental energy levels for Nd³⁺ are analyzed and identified. The free-ions and crystal-field parameters are fitted by the experimental energy levels with the root mean square deviation of 12.66 cm⁻¹, and 102 Stark energy levels for Nd³⁺ in GdTaO₄ host crystal are assigned. The fitting results of free-ions and crystal-field parameters are compared with those already reported for Nd³⁺:Gd_{*x*}Lu_{1-*x*}TaO₄ (*x* = 0.85) crystal. It indicates that the fitting results of Stark energy levels agree well with the experimental spectra.

Keywords: Nd³⁺:GdTaO₄ crystal, absorption spectrum, crystal-field calculation, energy levels fitting

PACS: 42.70.-a, 81.10.-h, 71.70.Ch, 75.10.Dg

DOI: 10.7498/aps.64.124209

* Project supported by the National Nature Science Foundation of China (Grant Nos. 51172236, 91122021, 51272254, 61205173, 50932005).

† Corresponding author. E-mail: zql@aiofm.ac.cn