Tm³⁺掺杂硅酸镓镧(La₃Ga₅SiO₁₄) 晶体的结构与光学性能研究*

牛 艺¹) 王增梅¹ⁱ 刘英才¹) 尹衍升¹) 袁多荣²) 1ℓ中国海洋大学材料科学与工程研究院 清岛 266100) 2ℓ 山东大学晶体材料国家重点实验室 济南 250100)

(2006年9月27日收到2006年10月26日收到修改稿)

利用 X 射线粉末衍射确定了 Tm³⁺ 掺杂硅酸镓镧 La₃ Ga₅ SiO₁₄, LGS)晶体的晶体结构 运用 DICVOI91 程序计算 了该晶体不同部位的晶胞参数 ;测定了 Tm :LCS 晶体的室温吸收谱和 470 nm 光激发下的发射光谱 ;根据 Judd-Ofelt 理论 拟 合 了 Tm³⁺ 的 三 个 晶 场 调 节 参 数 Ω_{ι} (t = 2, 4, 6),分别为 2.694 × 10⁻²⁰ cm²,1.842 × 10⁻²⁰ cm², 0.030 × 10⁻²⁰ cm² ;计算了各个能级跃迁的谱线强度、振子强度、吸收截面等 ,进而计算了³ H₄ 和³ F₄ 态的自发跃迁概 率、辐射寿命、荧光分支比和积分发射截面 ,并对结果进行了分析.

关键词:Tm:LGS 晶体,吸收谱,Judd-Ofelt 理论,光谱参数 PACC:7855C,4255R,7840E,6110M

1.引 言

上世纪 60 年代激光器的出现,开创了光学领域 的崭新局面 促进了光电技术的进程和发展 激光技 术是光电子技术的核心组成部分,而激光晶体是激 光器的工作物质.目前 90% 左右的激光晶体是掺入 稀土作为激活离子.近年来,掺杂稀土离子铥离子 (Tm³⁺)的激光晶体越来越多的受到人们的关注.作 为激活离子 .Tm³⁺ 可以在紫外到红外多个波段产生 不同能级之间的跃迁¹¹.在 450 nm 附近,Tm³⁺可以 产生 J_{1} D, 到³F₄的上转换,使它成为产生蓝光和蓝 色激光的重要选择[2-4].由于离子之间存在交叉弛 豫效应 ,Tm³⁺ 可以在近红外波段产生有效的激光输 出^[56].对应于³H₄→³H₆跃迁,它发射波长为1.9 µm 左右的荧光 可以适用于红外雷达和远距离红外传 感器 同时在激光医疗上也有着重要的应用[7].特别 引人关注的是 Tm³⁺ 在 800 nm 附近的对应³H₆→³F₄ 的跃迁适用于商用激光二极管的抽运^[8-11].

LGS 晶体是一种性能优良的新型压电晶体,同时具有良好的物理性能,例如良好的热稳定性,高的

透过率 小的膨胀系数 ,大的比热等^[12,13] ,是制作高 稳定、高频、大带宽、低插损、小体积 SAW 滤波器的 理想材料.同时 ,也是制作高稳定、大带宽、低插损 SAW 中长延迟线的理想材料.在 BAW 领域 ,采用 LGS 晶体可以做成高稳定、大带宽、低插损、小体积 滤波器 ,在 VCXO 及 TCXO 的应用上也具有很大应 用潜力^[12,13].因此 ,Tm³⁺ 掺杂 LGS 有可能成为一种 性能优良的激光晶体 ,实现红光及红外光的输出.

Young 等^[14]用 Czochralski 提拉技术对 Tm:LGS 晶体进行了生长,得到了长达 149.22 mm 的晶体,并 对晶体进行了紫外可见红外吸收光谱的测试,以此 分析了其光学性能,但对其可能的激光性能未作进 一步研究.对掺入激光晶体的稀土离子,两个能级之 间的跃迁概率、发射截面、辐射寿命、荧光强度、荧光 分支比等等,这些标志强度的参数对于激光发射来 说都是十分重要的光谱参数,但是它们的实验测定 不太容易.目前,Judd-Ofelt 理论(J-O 理论)^{15,16]}是研 究稀土离子在固体中的光谱性质的重要理论,尤其 在激光晶体的光谱研究中被广泛使用.为了探索 Tm:LGS 晶体的激光性能,本文测量了 Tm:LGS 晶体 不同部位的 XRD 谱,运用 DICVOL91 程序计算了晶

^{*} 国家自然科学基金(批准号 50242008)和"长江学者奖励计划"资助的课题.

[†] E-mail : zmwang@ouc.edu.cn

体的晶胞参数,测量了 Tm :LGS 晶体紫外—可见— 红外吸收光谱和 470 nm 光激发下的荧光光谱,根据 J-O 理论计算了晶体的光谱参数,并对结果作了分 析,从而预测了 Tm :LGS 晶体的激光性能.

2.实验

实验中我们采用的 Tm :LGS 晶体由山东大学晶体材料国家重点实验室提供,该晶体采用提拉法生长^[12]均匀透明,无宏观缺陷,Tm³⁺离子掺杂的原子百分比浓度为 1%.将晶体垂直于 *c* 轴切割,厚度为10.72 mm,然后进行光学抛光.

我们用 X 射线粉末衍射对 Tm :LGS 晶体结构进 行了鉴定.沿着晶体生长的方向(从晶体尖部开始), 依次从长度百分比为 30% .63.3% .86.2%和 100% 的不同部位取样 ,分别编号为 1[#] 2[#] 3[#]和 4[#] ,进行 X 射线粉末衍射测试.X 射线粉末衍射数据是用德 国 Bruck 公司生产的 D8-Advanced 型号衍射仪收集 , 该衍射仪使用镍滤波的铜靶和石墨电极(28 kV),衍 射峰的强度在 10°—70°(2 θ)之间收集 ,扫描速度为 8°/min.

光谱测试在常温下进行,采用 UV/Vis/NIR Hitachi U-3500 分光光度计,缝宽4 nm,扫描速度为 120 nm/min,扫描间隔1 nm,入射光沿晶体的 *c* 方向, 测量了晶体的紫外—可见—近红外 σ-偏振吸收光 谱 波长范围从 200 nm 到 3200 nm.采用 HORIBA JOBIN YVON 公司生产的 Fluorolog 3-P 型号的荧光光 谱仪,以 470 nm 波长的光激发,测定了 Tm :LGS 晶体 600 nm—900 nm 波段的荧光光谱以及 786 nm 荧光峰 的荧光寿命.

3. 结果与讨论

3.1. X 射线衍射谱及晶体晶胞参数计算

图 1 为不同部位的晶体 X 射线粉末衍射谱.根 据粉末衍射图中的 2θ 值,利用 DICVOL91 程序计算 六方晶胞参数,对其峰值进行了指标化,各样品的晶 胞参数 a,c 值如表 1.

为了探讨在晶体生长方向的结构变化情况,对 四种样品的晶格参数进行作图比较(图2),可以看 出晶格参数 *a* 值与 *c* 值都变化较小,这表明沿着晶 体生长的方向,晶体结构没有改变,生长的晶体结构 均匀.这说明 LGS 晶体对 Tm³⁺的接纳性较好.作为 激光晶体,必须具有较高的完整性,良好的光学性 质,而结构的均匀对于晶体具有这些性能是十分重 要的.



图 1 不同长度百分比部分 Tm :LGS 晶体 XRD 谱

表 1 Tm :LGS 晶体晶胞参数



图 2 Tm LGS 晶体晶胞参数 *a*,*c* 值随长度百分比位置不同的 变化

3.2. 吸收光谱以及光谱参数的计算

图 3 是 Tm :LGS 晶体室温下的吸收光谱,图中 还标注了相对应的能级跃迁.图 3 表明,Tm 离子在 Tm :LGS 晶体中有 5 个主要吸收谱带,分别对应 Tm 离子中的 4f 壳层电子吸收能量后从基态³H₆ 态向不 同激发态的跃迁.其中 461 nm 对应于³H₆→¹G₄ 的跃 迁 682 nm 对应于³H₆→³F₃ 的跃迁,790 nm 对应于 ³H₆→³F₄ 的跃迁,1211 nm 对应于³H₆→³H₅ 的跃迁,



图 3 Tm :LGS 晶体室温下吸收光谱

1873 nm 对应于³ H₆→³ H₄ 的跃迁.由于是在室温下 记录,各峰的精细结构不易分辨,因此取各吸收峰的 重心波长标示为相应能级的位置.激光晶体的吸收 过程也就是激光晶体被抽运的过程.³ H₆→³ F₄ 之间 的跃迁是值得我们注意的,因为该吸收峰位置与 808 nm 接近,这个波长同已经商业化的 LD 激光的 输出波长相匹配,有利于对激光晶体进行抽运.

Judd 和 Ofelt 由静态晶场引起相反宇称的组态 混杂出发,推导了跃迁概率表达式,并提出了用拟合 吸收光谱获得晶体场调节参数 Ω, 的方法.目前 J-O 模型是能够在一定精度内定量计算稀土离子发光强 度的重要理论方法之一^[15,16].以下是 J-O 理论的常 用公式^[17] (采用 cm·g·s 制).

$$\int K(\lambda) d\lambda = N_o \frac{8\pi^3 e^2 \overline{\lambda}}{3hc} \frac{(n^2 + 2)^3}{9n} \times \frac{1}{(2J+1)} S_{eq}(J \rightarrow J'), \quad (1)$$

$$S_{JJ'}^{\text{ed}} = \sum_{\iota=2,4,6} \Omega_{\iota} | (S, L)J$$

$$\times || U^{(\iota)} || (S', L')J' |^{2}, \quad (2)$$

$$A_{JJ} = \frac{64\pi^4 e^2}{3h\overline{\lambda}^3} \frac{n(n+2)}{9} \frac{1}{(2J+1)} S_{JJ} , (3)$$

$$f_{\rm ed} = \frac{8\pi^2 mc}{3h\lambda(2J+1)} \cdot \frac{(n^2+2)}{9n} \cdot S_{JJ} , (4)$$

$$\int \sigma(v) dv = \frac{\pi e^2}{mc^2} f_{ed} , \qquad (5)$$

$$\sigma_{\rm abs} = \frac{D(\lambda)}{N_0 Z \lg e} , \qquad (6)$$

$$A(J'' \to J') = \frac{64\pi^4 e^2}{3h\overline{\lambda}^3} \frac{n(n+2)^3}{9} \times \frac{1}{(2J''+1)} \mathcal{G}(J'' \to J'), \quad (7)$$

$$\beta_{JJ} = \frac{A(J' \rightarrow J')}{\sum_{J} (AJ'' \rightarrow J')}, \qquad (8)$$

$$\tau_{\rm rad} = \frac{1}{\sum_{J'} A(J'' \rightarrow J')}, \qquad (9)$$

$$\sum (J'' \rightarrow J') = \frac{\lambda^2}{8\pi n^2 c} A_{J,J} , \qquad (10)$$

$$\eta = \frac{\tau_f}{\tau_{\gamma}}.$$
 (11)

式中 , N_0 为掺杂离子浓度 ;Z 为样品厚度 ; $\overline{\lambda}$ 为跃迁 谱线中心波长 ;n 为折射率 $(J \rightarrow J')$ 和 $(J' \rightarrow J')$ 分别代表从基态向较高能级的跃迁和从激发态向较 低能级的跃迁 ; $S(J \rightarrow J')$ 和 $S(J'' \rightarrow J')$ 分别为从 基态跃迁的吸收光谱和从激发态跃迁的发射光谱的 谱线强度. $D(\lambda)$ 为吸收率; τ_{m} 为辐射寿命; β_{rr} 为 荧光分支比 $\Omega(t = 2 A 6)$ 为唯象强度参数; |(*S*,*L*)*J*||*U*^(*i*)||(*S*',*L*'),*J*'|²为只和激活离子 有关的约化矩阵元; K(λ)dλ为 Tm³⁺ 在 4fⁿ 电子组 态内电偶极子跃迁有关的积分吸收系数; $\sum_{x} A(y)$ → J′)为总辐射跃迁概率; 🖌 v)dv 积分吸收截面; $\sum (J'' \rightarrow J')$ 为积分发射截面 ;e 为电子电量 ;h ,c 分别为普朗克常数和光速,利用(1)至(6)式,可以 算出 Tm :LGS 晶体各能级的主要吸收光谱参数:吸 收谱线强度实验值 $S_{exp}(J \rightarrow J')$,积分吸收截面积 | 𝔄 𝗤) d𝗤 , 其结果列于表 2. 由吸收谱线强度实验值 以及(2)式,用最小二乘法拟合得到三个晶场调节 参数 $\Omega(t = 2 A 6)$ 的值分别为

$$\Omega_2 = 2.694 \times 10^{-20} \text{ cm}^2 ,$$

$$\Omega_4 = 1.842 \times 10^{-20} \text{ cm}^2 ,$$

$$\Omega_6 = 0.030 \times 10^{-20} \text{ cm}^2 ,$$

其均方根误差为 4.43×10^{-23} cm²,误差较小,线性回 归系数 R 为 0.997,与 1 十分接近.这说明我们的拟 合是相当精确的,以下对各个光谱参数的计算值有 效.由晶场调节参数可以计算出吸收谱线强度的理 论值 $S_{cal}(J \rightarrow J')$ 见表 2).由于磁偶极子跃迁对谱 线强度贡献不大,与电场相比较要弱近一个数量级, 所以我们在计算时将其忽略不计.由计算结果可以 看出,Tm :LCS 晶体在 790 nm 处的积分吸收截面为 98.053 × 10⁻¹⁸ cm,有可能实现商用激光二极管的 抽运.

$4f^{n}\Psi J'$	$\overline{\lambda}$ /nm	n	$S_{\rm exp}(J \rightarrow J')/10^{-20} {\rm cm}^2$	$S_{\rm cal} (J \rightarrow J') / 10^{-20} {\rm cm}^2$	$\int \sigma (v) dv / 10^{-18} \text{ cm}$
${}^{1}G_{4}$	461	1.927	0.128	0.268	52.553
${}^{3}F_{3}$	682	1.896	0.597	0.608	80.505
$^{3}\mathrm{F}_{4}$	790	1.890	0.835	0.858	98.053
3 H ₅	1221	1.878	0.656	0.735	54.784
3 H ₄	1873	1.869	2.772	2.793	134.644

表 2 Tm :LGS 晶体的吸收光谱参数

表 3 由³H₄, ³F₄→³H₁ 跃迁的发光参数

能级跃迁	发射波长/nm	$S_{\text{cal}}(J \rightarrow J') 10^{-20} \text{ cm}^2$	A($J'' \rightarrow J'$)/s ⁻¹	$ au_{ m rad}/ m ms$	$\beta_{J'J'}$ /%	$\sum (J'' \rightarrow J')/10^{18} \text{ cm}$
$^{3}H_{4} \rightarrow ^{3}H_{6}$	1721	2.749	272.2	3.674	100	3.059
${}^{3}F_{4} \rightarrow {}^{3}H_{5}$	2314	0.914	36.66		3.290	0.751
${}^{3}F_{4} \rightarrow {}^{3}H_{4}$	1447	0.599	100.45	0.897	9.014	0.795
${}^{3}F_{4} \rightarrow {}^{3}H_{6}$	786	0.906	977.3		87.696	2.244

得到了晶场调节参数 ,根据(7)→(11)式可以求 出我们感兴趣的发射光谱参数 :发射谱线强度理论 值 $S_{cal}(J' \rightarrow J')$,跃迁概率 $A(J' \rightarrow J')$,辐射寿命 τ_{rad} ,荧光分支比 β_{ff} ,积分发射截面 $\sum (J'' \rightarrow J')$. 计算中同样忽略了磁偶极子跃迁 ,结果见表 3.由表 3 可以看出 ,786 nm 与 1721 nm 处的积分发射截面分 别为 3.059 × 10⁻¹⁸ cm 和 2.244 × 10⁻¹⁸ cm ,都大于 10⁻¹⁸ cm ,荧光分支比很高 ,有望实现红光和红外光 的输出^[18].我们把其他几种目前已经发展较为成熟 的和研究较多的 Tm³⁺ 掺杂的晶体(玻璃)材料在³H₄ →³H₆ 跃迁中的积分发射截面^[19-22]与本文的计算结 果进行了对比(表 4) ,发现我们的 Tm :LGS 晶体样品 在³H₄→³H₆ 状态跃迁中积分发射截面与其他数据 比较接近 ,有可能成为一种性能优良的激光材料.

表 4 不同基质中 Tm 离子³H₄→³H₆ 跃迁的积分发射截面比较

晶体(玻璃)	荧光波长/nm	积分发射截面/10 ⁻¹⁸ cm	参考文献	
Tm LGS	1721	3.059	本文	
Tm :YAG	-	1.44	[19]	
Tm :YAlO3	-	2.43	[19]	
Tm ZBLA	-	2.96	[19]	
Tm :YVO4	1764	5.03	[19]	
Na ₅ Tm(WO ₄) ₄	1709	3.22	[20]	
Tm Na2 O-K2 O-B2 O3 玻璃	1691	3.23	[21]	
Tm :Li ₂ O-CdO-Al ₂ O ₃ -SiO ₂ 玻璃	-	2.94	[22]	

3.3. 发射光谱的计算分析

图 4 和图 5 分别为 Tm :LGS 晶体用 470 nm 光激 发下 600 nm—900 nm 波段的发射光谱(图 4)以及 786 nm 荧光峰的荧光寿命(图 5).

图 4 可以看出 ,用波长为 470 nm 的光激发 Tm : LGS 晶体 ,在 600—900 nm 波段得到两个波长分别为 650 nm ,786 nm 的较强的荧光峰 ,分别对应的是¹G₄ →³ F₄, 3 F₄→³ H₆ 跃迁.此外 ,我们对 Tm :LGS 晶体在 波长 786 nm 处的荧光寿命测量结果进行拟合(如图 5),得到荧光寿命为 0.348 ms. 从而计算出对应 786 nm 处的 ${}^{3}F_{4} \rightarrow {}^{3}H_{6}$ 跃迁的辐射量子效率为 38.782% 这对于实现786 nm的红光输出是有利的.

4.结 论

本文通过对 Tm :LGS 晶体的结构和光学性质进行测试和计算,得出了以下结论:



图 4 Tm :LGS 晶体在 600 nm 到 900 nm 波段的荧光谱(激发波 长 470 nm)

1. 测量了 Tm :LGS 晶体不同长度百分比位置的 XRD 谱,运用 DICVOL91 程序计算 Tm :LGS 晶体不同 位置的晶胞参数,证明了该晶体结构均匀.

2. 测量了 Tm :LGS 晶体的室温吸收谱 ,应用 J-O 理论拟合了三个晶场调节参数 $\Omega_{t}(t=2~A~6)$,计算 了晶体一些重要的光谱参数 ,发现 Tm :LGS 晶体在 800 nm 附近存在较大的吸收 ,有利于已经商业化的 LD 激光对其进行抽运 ; ${}^{3}F_{4} \rightarrow {}^{3}H_{6}$ 的荧光分支比为

- [1] Garnier N, Moncorgé R, Manaa H, Descroix E, Laporte P, Guyot Y 1996 J. Appl. Phys. 79 4323
- [2] Chen X B, Zhang G Y, Feng Y, Liu Y B, Li J J, Song Z F 1996 Acta Phys. Sin. 45 698 (in Chinese)[陈晓波、张光寅、冯 衍、 刘言滨、李加季、宋增福 1996 物理学报 45 698]
- [3] Hao Z, Chen X B, Hou Y B, Song F, Wang H, Zhang G Y 1997
 Acta Phys. Sin. 46 1206 (in Chinese) [郝 昭、陈晓波、侯延 冰、宋 峰、王 虹、张光寅 1997 物理学报 46 1206]
- [4] Chen X Y , Luo Z D 1998 Acta Phys. Sin. (Overseas Edition) 7 773
- [5] Ohta K, Saito H, Obara M 1993 J. Appl. Phys. 73 3149
- [6] Feng Y, Chen X B, Hao Z, Zhang G Y, Song F, Li M X 1997 Acta Phys. Sin. 46 2454 (in Chinese)[冯 衍、陈晓波、郝 昭、张光寅、宋 峰、李美仙 1997 物理学报 46 2454]
- [7] Qi C H, Hu H F 1998 Acta Opt. Sin. 18 818 (in Chinese)[祁长 鸿、胡和方 1998 光学学报 18 818]
- [8] Ermeneux F S, Goutaudier C, Moncorge R, Cohen-Adad M T, Bettinelli M, Cavalli E 1997 Opt Mater 8 83
- [9] Chen X B Zhang G Y, Sawanobori N, Feng Y, Li M X, Bi S Z, Nie Y X, Sun Y G 1999 Acta Phys. Sin. 48 948 (in Chinese)[陈 晓波、张光寅、Sawanobori N、冯 衍、李美仙、毕诗章、聂玉昕、 孙寅官 1999 物理学报 48 948]



图 5 Tm :LGS 晶体在 786 nm 处的荧光寿命

87.696% 积分发射截面较大,有望实现786 nm的红 色激光输出;³H₄→³H₆积分发射截面也较大,有望 实现 1721 nm 的红外激光输出.

3. 对 Tm :LGS 晶体进行了 600 nm 到 900 nm 波段荧光谱的测试,观察到 650 nm 和786 nm处强的荧光峰,对786 nm处进行了荧光寿命测试,得到该晶体在³F₄→³H₆态的荧光寿命为 0.348 ms,量子效率为 38.782%,有利于红光输出.

- [10] Liu F S , Liu Q L , Liang J K , Luo J , Su J , Zhang Y , Sun B J , Rao G H 2006 Chinese Physics 15 2445
- [11] Zhang L , Zhang J J , Hu H F , Lin F Y 2001 Chinese Physics 10 58
- [12] Wang Z M 2004 Doctoral Dissertation (Shandong University 1—18 (in Chinese)[王增梅 2004 博士学位论文(山东大学)1—18]
- [13] Li Z F, Zhang P L, Zhao M L, Wang C L, Zhong W L, Wang Z M, Yuan D R 2003 Acta Phys. Sin. 52 726 (in Chinese)[李正法、张沛霖、赵明磊、王春雷、钟维烈、王增梅、袁多荣 2003 物理学报 52 726]
- [14] Young S K , Keun H A 2002 Materials Letters 57 28
- [15] Judd B R 1962 Physical Review 127 750
- [16] Ofelt G S 1962 The Journal of Chemical Physics 37 511
- [17] Xia H R , Zheng W Q , Zhang S J ,Cheng Z X , Cheng X F , Yang Z H 2002 J. Appl. Phys. 92 5060
- [18] Caird J A 1975 IEEE J. Quantum. Electron. 11 874-18
- [19] Chen X B, He C J, Chen L, Zhuang J, Song Z F 2001 Acta Phys. Sin. 50 1371 (in Chinese)[陈晓波、何琛娟、陈 鸾、庄 建、 宋增福 2001 物理学报 50 1371]
- [20] Yao L Z, Zhang H F 1997 Journal of the Chinese Rare Earth Society 15 6(in Chinese)[姚连增、张海峰 1997 中国稀土学报 15 6]
- [21] Ratnakaram Y C , Thirupathi Naidua D , Vijaya Kumar A , Rao J L 2003 Journal of Physics and Chemistry of Solids 64 2487

[22] Yuan J H, Zeng X Y, Zhang Z H 2006 Journal of Optoelectronics · laser 17 591 (in Chinese)[袁剑辉、曾晓英、张振华 2006 光电 子·激光 17 591]

Structure and spectroscopic properties of Tm^{3+} doped langasite ($La_3Ga_5SiO_{14}$) crystal *

Niu Yi¹) Wang Zeng-Mei¹[†] Liu Ying-Cai¹) Yin Yan-Sheng¹) Yuan Duo-Rong²)

1) Institute of Material Science and Engineering, Ocean University of China, Qingdao 266100, China)

2 X State Key Lab. of Crystal Materials , Shandong University , Jinan 250100 , China)

(Received 27 September 2006; revised manuscript received 26 October 2006)

Abstract

The structure of Tm^{3+} -doped langasit (La₃Ga₅SiO₁₄, abbreviated as LGS) crystal has been measured by XRD. The crystal lattice parameters were calculated with DICVOL91 program. The absorption spectra and emission spectra (excitated under 470 nm) of Tm :LGS single crystal was measured at room temperature. And the optical parameters , such as transition-line intensity , oscillator strength and absorption section were calculated by using Judd-Ofelt theory. The three intensity parameters Ω_t ($t = 2 \ A \ 6$) were fitted to be $2.694 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$, $1.842 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$, $0.030 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$, respectively. The lifetime , branching ratio and integrated stimulated-emission cross section were obtained and the results were discussed.

Keywords : Tm :LGS crystal , absorption spectra , Judd-Ofelt theory , spectral parameters PACC : 7855C , 4255R , 7840E , 6110M

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 50242008) and the Cheung Kong Scholars Programme of China.

[†] E-mail : zmwang@ouc.edu.cn