

С. М. КОСТРИЦКИЙ

(Кемерово)

**ФОТОИНДУЦИРОВАННОЕ КОМБИНАЦИОННОЕ
РАССЕЯНИЕ СВЕТА
В γ -ОБЛУЧЕННЫХ КРИСТАЛЛАХ ЙОДАТА ЛИТИЯ**

В работе методом спектроскопии комбинационного рассеяния света (КРС) исследованы облученные кристаллы йодата лития гексагональной модификации α — LiIO_3 . Кристаллы облучались при комнатной температуре и температуре жидкого азота ($T = 77 \text{ K}$) от источника Co^{60} . Доза γ -облучения составляла 1—20 Мрад. Экспериментальные измерения спектров КРС проведены на спектрометрах ДФС-12 и ДФС-24. В качестве возбуждающего использовалось излучение $\text{He}-\text{Cd}$ ($\lambda_0 = 441,6 \text{ нм}$)-лазеров ЛПМ-11 ($P = 20 \text{ мВт}$) и ЛГ-61 ($P = 50 \text{ мВт}$) и $\text{He}-\text{Ne}$ ($\lambda_0 = 632,8 \text{ нм}$)-лазера ЛГ-38 ($P = 30 \text{ мВт}$). Для фокусировки лазерного излучения применялись линзы с фокусным расстоянием 40, 60 и 120 мм. Измерения спектров КРС велись при 90°-й схеме рассеяния [1—3]. Кристаллы α — LiIO_3 получены методом изотермического испарения пересыщенных водных растворов с рН 3—5. Образцы были вырезаны в виде правильных параллелепипедов вдоль кристаллографических осей.

Гамма-облучение кристаллов вызывает появление оптической неоднородности, приводящей к значительному рассеянию лазерного излучения. В результате этого лазерный луч при прохождении через кристалл расходится по всем направлениям, образуя конус с углом β в вершине. Наблюдение такого рассеяния показывает, что индуцированные γ -облучением неоднородности показателя преломления имеют масштаб порядка длины световой волны. Сравнение этих данных с результатами работы [4] указывает на аналогию с явлением рентгенорефракции. Измерения спектров КРС при $\lambda_0 = 632,8 \text{ нм}$ показывают, что γ -облучение приводит к деполяризации линий полярных оптических фононов A и E_1 симметрии. Это, очевидно, связано с нарушением поляризационных геометрий рассеяния за счет отклонения части светового потока от направления падения лазерного излучения на кристалл. Так, измерения в поляризационной геометрии $x(yx)y$ показывают, что γ -облучение приводит к появлению запрещенных в этой геометрии линий $A(TO)$ -, $E_1(TO)$ - и $E_1(LO)$ -фононов. Для обозначения поляризационных геометрий используются обозначения Порто: символы до и после скобок указывают направление распространения падающего и направление наблюдения рассеянного света, символы в скобках — поляризацию падающего и рассеянного света. Однако интенсивности запрещенных линий много меньше интенсивности разрешенного рассеяния на неполярных E_2 -фононах. Отношение их интенсивностей составляет 0,06—0,1 для кристаллов, облученных при $T = 293 \text{ K}$ дозой 20 Мрад. Согласно [1, 2] интенсивность запрещенного КРС в геометрии $x(yx)y$ определяется значением угла отклонения направления светового потока внутри кристалла от направления падающего на кристалл света β . Применяя подход, развитый в [1], и учитывая форму тензора КРС для точечной группы симметрии C_6 , получим, что интенсивности линий $E_1(TO)$ - и $E_1(LO)$ -фононов будут определяться выражением

$$R_{t, L} = N_{t, L} [(c_{t, L} \pm d_{t, L}) \cos^2 \beta \sin \Theta + b_{t, L} \sin \beta \cos \beta \cos \Theta]^2, \quad (1)$$

где b , c , d — компоненты тензора КРС; Θ — угол между волновым вектором фонана и оптической осью кристалла [1]:

$$\Theta = \arccos [0,5 - \cos^2(\pi/4 + \beta/4)]^{1/2}. \quad (2)$$

Подставляя в (1), (2) экспериментальные значения параметров, получим $\beta \approx 2,0 - 2,5^\circ$. Это значение характеризует среднее эффективное

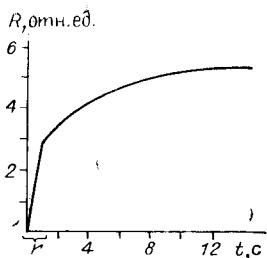


Рис. 1. Зависимость интенсивности линии $E_1(LO)$ фона на от времени воздействия лазерного излучения:

частота фона 844 см⁻¹, $\lambda_0 = 441,6$ нм, $I = 10^4$ Вт/см²; t — постоянная времени системы регистрации спектрометра ДФС-12

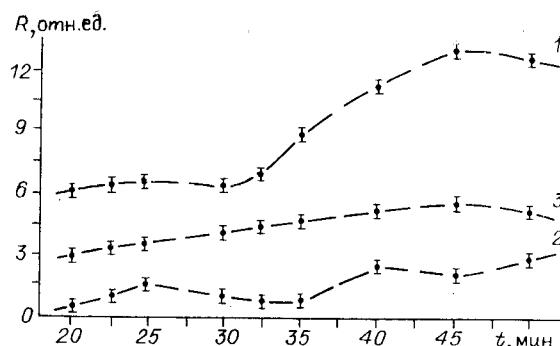


Рис. 2. Временная динамика интенсивностей линий КРС:

1 — $E_1(TO)$ фона на с частотой 769 см⁻¹; 2 — $E_1(LO)$ фона на с частотой 844 см⁻¹; 3 — $A(TO)$ фона на с частотой 795 см⁻¹. Поляризационная геометрия $x(zx)y$, $\lambda_0 = 441,6$ нм, $I = 10^4$ Вт/см²

для КРС отклонение светового потока, которое будет по величине меньше угла в вершине светового конуса на выходе из кристалла [2]. Значение угла β связано с величиной наведенной оптической неоднородности [2, 5]:

$$\beta = \arctg(\overline{\Delta n}l/d), \quad (3)$$

где l — длина пути света в кристалле, в нашем случае $l \leq 1$ см; $\overline{\Delta n}$ — среднее значение изменения показателя преломления, индуцированного γ -облучением; d — среднее значение линейных размеров наведенных микродефектов, определяемое микроморфологией кристалла, связанный с исходной ростовой дефектностью [6].

Используя полученное значение угла β , с помощью (3) оценим величину оптической неоднородности: $\overline{\Delta n} \approx 2 \cdot 10^{-5}$.

Применение в качестве возбуждающего лазерного излучения с $\lambda_0 = 441,6$ нм приводит к появлению дополнительных особенностей в характере взаимодействия света с γ -облученным иодатом лития. Так, при прохождении сфокусированного луча через кристалл наблюдается его более значительное по сравнению со случаем $\lambda_0 = 632,8$ нм пространственное расхождение, сильно изменяющееся со временем в начальный период засветки. Кроме того, в течение первых 6–10 с после начала облучения лучом лазера в ранее незасвеченной области происходит резкое увеличение интенсивностей линий $E_1(TO)$ - и $E_1(LO)$ -фона на в геометриях $x(zx)y$ и усиление запрещенного КРС в геометрии $x(yx)y$ (рис. 1). Такое поведение интенсивностей линий полярных фонопов является характерным проявлением фоторефрактивного эффекта в спектрах КРС [1, 2].

Появление фотоиндукционного КРС указывает на возникновение под действием γ -облучения фотоактивных центров, обладающих иными свойствами, чем центры, образованные при росте. Это подтверждает исследование спектров поглощения. Установлено, что γ -облучение приводит к появлению широкой полосы поглощения в области 300–500 нм, за счет чего у кристалла, облученного при $T = 293$ К, появляется характерная желтая окраска. Исследование показало, что одновременно с пространственным расхождением лазерного излучения имеет место самопросветление кристалла в освещенной области. Из этих данных следует, что фотоиндукционное КРС в данном случае связано с локальным оптическим отжигом радиационных центров окраски. Отметим, что при переходе к кристаллам, γ -облученным при $T = 77$ К, фотоиндукционные изменения становятся более ярко выраженным. Это связано с появлением дополнительных по сравнению со случаем $T = 293$ К коротко-

живущих радиационных центров, за счет чего кристаллы приобретают темно-синюю окраску (максимум дополнительной полосы поглощения 620 нм).

Для решения вопроса о механизмах фотоиндуцированных явлений детально исследовались изменения в спектрах КРС при больших временах воздействия лазерного излучения. Проведенное исследование показало принципиальное различие временной динамики интенсивностей ЦРБной области. Общее для всех линий спектра увеличение интенсивностей со временем засветки, очевидно, обусловлено обесцвечиванием кристалла в освещенной области, а наблюдаемое различие в динамике для линий $E_1(TO)$ - и $A(TO)$ -фононов связано с изменением пространственного расхождения света в кристалле и определяется различием правил отбора в спектрах КРС для фононов разной симметрии.

Исследование показало, что фоторефрактивный эффект и процесс оптического обесцвечивания сложным образом зависят от плотности светового потока I . При малых I случае несфокусированного лазерного излучения ($I = 0,5 \text{ Вт}/\text{см}^2$) не наблюдается изменений этих параметров кристалла. При больших I (порядка $10^4 \text{ Вт}/\text{см}^2$) возникает неравномерное распределение коэффициента поглощения вдоль лазерного луча. Это связано с тем, что области, расположенные ближе к грани кристалла, на которую падает лазерное излучение, быстрее обесцвечиваются. Для коэффициента поглощения в первом приближении будет справедливо выражение

$$K_1(t, l) = K_0 + \Delta K_1(0) \{1 - \exp[-(K_0 + \Delta K_1)l]\} (1 - \exp[-S(I)t]), \quad (4)$$

где K_0 — значение коэффициента поглощения до γ -облучения; $\Delta K_1(0)$ — приращение, вызванное облучением; t — время воздействия лазерного излучения на кристалл; l — длина пути лазерного излучения в кристалле; $S(I)$ — величина, характеризующая скорость обесцвечивания и зависящая от плотности светового потока.

Очевидно, что за счет поглощения сфокусированного лазерного излучения будет иметь место локальный разогрев отдельных участков освещенной области кристалла. Из (3), (4) следует, что положение этих участков в освещенной области будет непрерывно изменяться в процессе оптического обесцвечивания. В то же время известно, что под действием нагрева, связанного с мощным лазерным облучением, возникает оптическое искажение монокристаллов иодата лития, обусловленное появлением и накоплением микродефектов размерами менее 2 мкм [7]. Эти данные согласуются с термохимической моделью старения α — LiIO_3 .

При более длительных временах воздействия света на кристалл ($t \geq 1 \text{ ч}$) наблюдается уменьшение запрещенного КРС в геометрии $x(yx)y$. Одновременно с этим происходит заметное уменьшение пространственного расхождения лазерного излучения. Все это указывает на уменьшение величины фотоиндуцированных оптических неоднородностей Δn . Однако исследование показывает существование остаточных неоднородностей Δn в освещенной области, сохраняющихся в течение длительного времени ($t \sim 1 \text{ мес}, T = 293 \text{ K}$).

Из вышеизложенного следует, что (1) — (3) будут справедливы при описании влияния фоторефракции на интенсивность КРС только для линий $E_1(TO)$ -фононов. Однако при расчетах необходимо учесть влияние обесцвечивания кристалла на интенсивность КРС. Так как изменение K_1 (4) одинаковым образом должно влиять на интенсивность всех линий спектра КРС, то в качестве количественной характеристики влия-

ния фоторефракции необходимо брать изменение интенсивностей линий $E_1(TO)$ -фононов относительно интенсивностей линий неполярных E_2 -фононов.

Автор выражает благодарность И. Ф. Канаеву за интерес к работе и полезные замечания, К. И. Авдиенко за предоставление кристаллов.

ЛИТЕРАТУРА

1. Кострицкий С. М., Семенов А. Е., Филиппов И. В. Учет угловой дисперсии фононов при изучении фоторефракции в LiNbO_3 методом спектроскопии КРС // Оптика и спектроскопия.—1984.—Т. 57, вып. 4.
2. Канаев И. Ф., Малиновский В. К. Динамика оптического повреждения в кристаллах LiNbO_3 // Автометрия.—1980.—№ 1.
3. Иодат лития. Выращивание кристаллов, их свойства и применение/Под ред. С. В. Богданова.—Новосибирск: Наука, 1980.
4. Беляева Н. И., Бредихин В. Н. Морфология лазерного старения кристаллов $\alpha-\text{LiIO}_3$ // Квантовая электроника.—1985.—Т. 12, № 4.

Поступила в редакцию 16 декабря 1987 г.

УДК 535.37 : 535.377

В. А. ГУСЕВ, С. А. ПЕТРОВ
(Красноярск — Новосибирск)

ФОТОЛЮМИНЕСЦЕНЦИЯ МОНОКРИСТАЛЛОВ $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$

Ортогерманат висмута $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ (BGO) используется в качестве сцинтиллятора жесткого γ -излучения, хотя обладает сравнительно невысоким квантовым выходом. Материал характеризуется негигроскопичностью, имеет высокую плотность и малое время послесвечения [1—3]. Благодаря небольшому значению коэффициента затухания ультразвуковых колебаний возможно применение BGO в устройствах акустоэлектроники [4]. Сообщается о возможности использования монокристаллов BGO, легированных Mn и ионами редкоземельных элементов для оптических квантовых генераторов, в устройствах оптической обработки информации [5, 6]. Однако, несмотря на повышенный интерес в практическом использовании BGO, его оптические свойства изучены недостаточно полно. В настоящей работе подробно исследуются излучательные процессы при воздействии света в $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$.

Монокристаллы BGO выращивались методом Чохральского из расплавов окислов Bi_2O_3 и GeO_2 . Кристаллы были прозрачными и видимых дефектов (включения, пустоты и др.) не имели. Из выращенных буль вырезались образцы размерами $8 \times 8 \times 1$ мм, плоскости которых полированы. Источником света при исследовании спектров возбуждения люминесценции (СВЛ) и фотолюминесценции (ФЛ) служила ксеноновая лампа ДКСШ-500. Линия, возбуждающая ФЛ, выделялась из спектра возбуждения лампы с помощью монохроматора МДР-2 и стеклянных светофильтров. Регистрация ФЛ производилась фотоэлектронным умножителем ФЭУ-79 под прямым углом к направлению падения возбуждающего света в режиме постоянного тока. Полоса 400—700 нм, в которой регистрировалась ФЛ при исследовании температурной зависимости