

УДК 535.361

© 1990

ОСОБЕННОСТИ РАССЕЯНИЯ СВЕТА ВТОРОЙ ГАРМОНИКИ В ПОЛИДОМЕННЫХ КРИСТАЛЛАХ $Pb_5Ge_3O_{11} : Nd^{3+}$

В. Н. Моисеенко, И. И. Петерс, В. Г. Линник, В. В. Клименко

Проведены исследования особенностей рассеяния света второй оптической гармоники (ВГ) в полидоменных кристаллах $Pb_5Ge_3O_{11} : Nd^{3+}$ при возбуждении YAG : Nd^{3+} лазером вдоль и перпендикулярно сегнетоэлектрической оси. Установлен различный характер рассеяния в зависимости от направления распространения и поляризации возбуждающего излучения. При распространении излучения основной частоты перпендикулярно сегнетоэлектрической оси вклад в рассеяние дают реальная доменная структура и полосы роста. В последнем случае наблюдается нелинейная дифракция на доменах и полосах роста с периодом ~ 1 мкм. Исследован поляризационный состав рассеянного света.

Нелинейные свойства сегнетоэлектрика германата свинца ($Pb_5Ge_3O_{11}$) исследовались в ряде работ [1, 2], в которых установлена линейная связь между векторной частью коэффициентов Миллера δ_i и спонтанной поляризацией P_s , а также получены температурные зависимости компонент тензора нелинейной диэлектрической восприимчивости в окрестности точки сегнетоэлектрического перехода.

Интерес к нелинейным свойствам германата свинца обусловлен перспективами его использования в качестве кристаллических матриц для твердотельных лазеров с самоумножением частоты. Особый интерес в этом плане представляют кристаллы $Pb_5Ge_3O_{11} : Nd^{3+}$ [3]. Наряду с благоприятными предпосылками применения указанных кристаллов существует ряд трудностей, среди которых следует выделить естественную доменную структуру и ростовые дефекты [3, 4].

Целью настоящей работы было исследование рассеяния света второй гармоники (ВГ) в полидоменных кристаллах $Pb_5Ge_3O_{11} : Nd^{3+}$ при возбуждении YAG : Nd^{3+} лазером.

Легированные кристаллы германата свинца оптического качества были выращены методом Чохральского в направлении [001]. Концентрация неодима составляла 0,2 ат. % в исходной шихте. Образцы для исследования представляли собой прямоугольные призмы размером $2 \times 4 \times 6$ мм вдоль кристаллографических осей X, Y и Z соответственно.

Измерение угловых зависимостей рассеяния ВГ осуществлялось с использованием гониометра ГС-5, на алидаду которого вместо зрительной трубы крепился фотоэлектронный умножитель ФЭУ-79. Для предотвращения попадания ИК излучения на фотокатод перед умножителем помещался светофильтр с пропусканием $T(\lambda_1 = 1064 \text{ нм}) < 0,3$ и $T(\lambda_2 = 532 \text{ нм}) > 0,9$. Регистрация полезного сигнала осуществлялась по методу счета фотонов. Возбуждающее излучение с λ_1 распространялось перпендикулярно сегнетоэлектрической оси Z вдоль осей X или Y.

Распределение интенсивности рассеянного света ВГ с λ_2 в плоскости экрана, расположенного перпендикулярно направлению распространения неполяризованного излучения с λ_1 , представлено на рис. 1. Следует отметить две характерные особенности наблюдаемой картины: наличие сплошной полосы рассеянного света в направлении, перпендикулярном оси Z, и шесть дискретных максимумов интенсивности рассеяния ВГ

в направлении оси Z , расположенных по три симметрично относительно направления распространения излучения с λ_1 . Уменьшение размера образца вдоль оси X или Y (в направлении распространения излучения с λ_1) до 10 мкм путем шлифовки с последующей полировкой граней приводило к исчезновению дискретных максимумов. Приложение электрического поля ~ 5 кВ/см вдоль оси Z к объемному образцу приводило к монодоменизации образца, что сопровождалось исчезновением полосы рассеянного света в направлении, перпендикулярном Z , и дискретных максимумов интенсивности в плоскости ZOY . При увеличении угла падения на кристалл θ (рис. 1) картина становилась асимметричной относительно направления распространения излучения с λ_1 : максимумы смещались вдоль оси Z , в плоскости ZOY происходило перераспределение интенсивности между правой и левой группами.

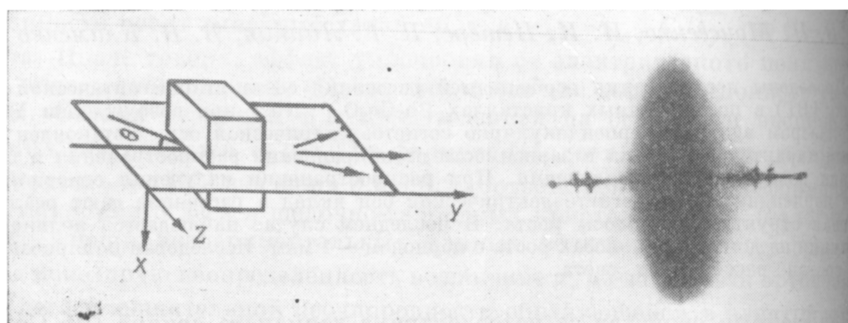


Рис. 1. Распределение интенсивности рассеяния света ВГ в плоскости экрана при возбуждении образца $Pb_5Ge_3O_{11}:Nd^{3+}$ неполяризованным излучением $YAG:Nd^{3+}$ лазера.

Угловое распределение интенсивности ВГ в плоскости ZOY в различных поляризационных геометриях при распространении излучения с λ_1 вдоль оси Y представлено на рис. 2. Измерения позволили установить, что рассеянный свет имеет различную поляризацию.

На образцах, выращенных в направлении $[100]$, дискретные максимумы интенсивности ВГ не наблюдались.

Полученные результаты можно объяснить следующим образом. С одной стороны, известно, что германат свинца обладает 180° доменной структурой [5]. В легированных ионами Nd^{3+} кристаллах она может стать менее регулярной вследствие закрепления отдельных доменов на ионах примеси. Рассеяние света на нерегулярной 180° доменной структуре ($P_e \parallel Z$) и приведет к появлению полосы рассеянного света в направлении, перпендикулярном оси Z . Отсутствие указанного рассеяния в монодоменных образцах подтверждает его связь с реальной доменной структурой кристалла.

С другой стороны, известно, что одним из видов ростовых дефектов, имеющих место в кристаллах, выращенных методом Чохральского, являются так называемые ростовые полосы. Полосы роста связаны с изменением состава кристалла вследствие колебаний параметров, определяющих скорость роста на фронте кристаллизации [6]. При этом форма полос роста определяется формой фронта кристаллизации, а пространственный период может составлять от 1 до 100 мкм. Наличие полос роста в кристаллах германата свинца подтверждается данными поляризационно-микроскопических исследований [7]. Возникновение полос роста приводит к пространственной модуляции показателя преломления $n(r)$ и компонент тензора нелинейной диэлектрической восприимчивости $\chi_{ijk}(r)$ за счет периодического изменения основного состава и концентрации ионов Nd^{3+} вдоль оси роста [6]. В кристалле возникают слои, обогащенные Nd^{3+} и расположенные перпендикулярно оси роста (ось Z в нашем случае). При неизовалентном замещении ионов Pb^{2+} ионами Nd^{3+} слои роста могут обладать

избыточным положительным зарядом, что приведет к взаимодействию доменных стенок со слоями роста и образованию пространственных слоев доменов с противоположной ориентацией P_s . В направлении оси роста доменная структура частично упорядочивается. Компоненты тензора величинной восприимчивости χ_{ijk}^{Nl} испытывают периодическое изменение знака на границе слоев, в то время как линейная восприимчивость не испытывает разрыва. В слоях роста может происходить избирательное резонансное поглощение излучения неодимового лазера, о чем свидетельствуют спектры люминесценции [3], вследствие чего условия генерации и рассеяния ВГ в полосах роста и в промежутках между ними оказываются различными. Возникает нелинейная дифракция на объемной дифракционной решетке, образованной упорядоченными слоями доменов, напоминающая дифракцию света на звуке в диэлектриках [8]. При этом по углу дифракции можно оценить значение периода решетки a , образованной слоями доменов, используя соотношение

$$K_2 - 2K_1 = lq, \quad l = 1, 2, 3, \dots \quad (1)$$

где $|K_2| = n_2/\lambda_2 = 2n_2/\lambda_1$, $|K_1| = n_1/\lambda_1$, $|q| = 1/a$, $n_2 = 2.15$ для λ_2 . Для нелинейной дифракции

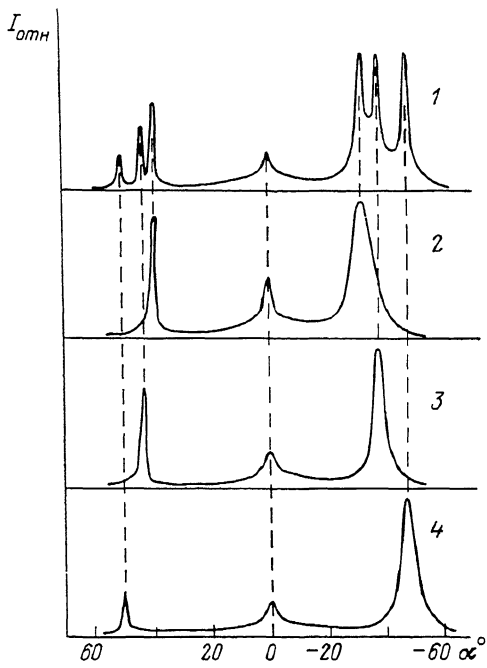


Рис. 2. Угловое распределение интенсивности нелинейной дифракции света ВГ в различных поляризационных геометриях.

α_p, α_a (град): 1 — 45, 45; 2 — 45, 90; 3 — 0, 0; 4 — 90.0. α_p, α_a — углы, определяющие ориентацию поляризатора и анализатора по отношению к оси Z кристалла.

на такой решетке с учетом преломления на границе раздела получим

$$a = \lambda_1/2 \sin \alpha, \quad (2)$$

где α — наблюдаемый угол дифракции. Оценки величины a для трех углов дифракции дают: $a_1 = 0.92$, $a_2 = 0.83$, $a_3 = 0.71$ мкм. Характер дифракции определяется параметром

$$Q = \lambda_2 d / \bar{a}^2 n_2 \approx 10^3, \quad (3)$$

где d — глубина дифракционной решетки (размер кристалла вдоль направления распространения излучения), \bar{a} — среднее значение периода. Величина $Q \gg 1$; следовательно, реализуется режим дифракции типа Брэгга. Поляризационный состав рассеянного излучения находится в соответствии с возбуждаемыми компонентами тензора χ_{ijk} .

Таким образом, полученные данные свидетельствуют о существенном влиянии естественных неоднородностей на характер генерации и рассеяния света ВГ в кристаллах $Pb_5Ge_3O_{11} : Nd^{3+}$.

С п и с о к л и т е р а т у р ы

[1] Nordland W. A. // *Ferroelectrics*. 1973. V. 5. N 3—4. P. 287—289.
 [2] Miller R. C., Nordland W. A., Ballman A. A. // *Ferroelectrics*. 1974. V. N 1—4. P. 109—110.
 [3] Каминский А. А., Кюрстен Г. Д., Шульце Д. // *ДАН СССР*. 1983. Т. 270. № 6. С. 1373—1376.

- 4] Ballman A. A., Kurtz S. K., Brown H. J. // Cryst. Growth. 1971. V. 10. N 2. P. 185—189.
- [5] Cross L. E., Cline T. W. // Ferroelectrics. 1976. V. 11. N 1—4. P. 333—336.
- [6] Кузьминов Ю. С. Сегнетоэлектрические кристаллы для управления лазерным излучением. М.: Наука, 1982. 400 с.
- [7] Панченко Т. В., Волнянский М. Д., Мона В. Г., Дуда В. М. // ФТТ. 1977. Т. 19. № 8. С. 1238—1244.
- [8] Гуляев Ю. В., Проклов В. В., Шкердин Г. Н. // УФН. 1978. Т. 124. № 1. С. 61—111.

Днепропетровский государственный университет

Поступило в Редакцию
13 апреля 1989 г.
В окончательной редакции
6 марта 1990 г.