

# УКРАИНСКИЙ ФИЗИЧЕСКИЙ ЖУРНАЛ

Том 28

№ 9

КИЕВ — 1983

УДК 537.228:535.51+535.56

*О. Г. Влох, А. В. Царик, И. М. Некрасова*

## ОБ ЭЛЕКТРОГИРАЦИИ В КРИСТАЛЛАХ $\text{AgGaS}_2$ И $\text{CdGa}_2\text{S}_4$

Раньше [1—3] нами были опубликованы результаты исследования преломляющих, гиротропных, электро- и пьезооптических свойств широкозонных полупроводниковых кристаллов  $\text{AgGaS}_2$  и  $\text{CdGa}_2\text{S}_4$ . В настоящей работе экспериментально исследуются электрогирационные свойства [4, 5] тиогаллатов Ag и Cd. Прежде чем приступить к изложению результатов экспериментальных исследований, проведем фено-

менологический анализ линейной электрогирации в кристаллах с симметрией  $\bar{4}2m$  и  $\bar{4}$ , которой обладают кристаллы  $\text{AgGaS}_2$  и  $\text{CdGa}_2\text{S}_4$  соответственно.

Обычно естественная оптическая активность кристаллов описывается при помощи скалярного параметра гирации [6, 7]

$$G = g_{ij}l_i l_j, \quad (1)$$

где  $g_{ij}$  — коэффициенты матрицы гирационного тензора,  $l_i, l_j$  — направляющие косинусы волновой нормали по отношению к кристаллофизической системе координат.

Параметр  $G$  связан с удельным вращением плоскости поляризации света  $\rho$  соотношением

$$G = \rho \lambda \bar{n} / \pi, \quad (2)$$

где  $\lambda$  — длина волны света,  $\bar{n} = \sqrt{n_o n_e}$ ,  $n_o, n_e$  — обыкновенный и необыкновенный показатели преломления.

Для кристаллов с симметрией  $\bar{4}2m$  и  $\bar{4}$  с учетом электрогирации [4, 5] в общем случае соответственно имеем

$$G_{\bar{4}2m} = g_{11} \sin^2 \theta \cos 2\varphi + \gamma_{41} E \sin 2\theta \sin(\varphi - \varphi_E) + \dots, \quad (3)$$

$$G_{\bar{4}} = \sin^2 \theta (g_{11} \cos 2\varphi + g_{12} \sin 2\varphi) + \sin 2\theta (\gamma_{41} \sin \varphi + \gamma_{51} \cos \varphi) E_x + \\ + \sin 2\theta (\gamma_{51} \sin \varphi - \gamma_{41} \cos \varphi) E_y + (\gamma_{31} \sin^2 \theta + \gamma_{33} \cos^2 \theta) E_z + \dots, \quad (4)$$

где  $\gamma_{ij}$  — компоненты тензора линейной электрогирации в матричной форме,  $\theta$  — угол между кристаллофизической осью  $Z$  и направлением волновой нормали,  $\varphi$  — угол между кристаллофизической осью  $X$  и проекцией волновой нормали на плоскость  $XY$ ,  $\varphi_E$  — угол между осью  $X$  и направлением электрического поля в плоскости  $XY$ ,  $E_x, E_y, E_z$  — компоненты электрического поля  $E$ . Электрогирационные свойства кристаллов с симметрией  $\bar{4}2m$  проявляются только в том случае, если поле  $E$  направлено в плоскости  $XY$ , поэтому для сокращения записи в (3) учтено, что  $E_x = E \cos \varphi_E, E_y = E \sin \varphi_E, E_z = 0$ .

Частный случай ( $E_x = E, \varphi_E = 0$ ) описания линейной электрогирации в кристаллах с симметрией  $\bar{4}2m$  рассматривался раньше инвариантным методом в работе [8]. Однако высказанное там предположение о возможности подавления естественной оптической активности электрогирацией, очевидно, противоречит физическому смыслу самих эффектов высших порядков.

Электрогирация в кристаллах  $\text{AgGaS}_2$  и  $\text{CdGa}_2\text{S}_4$  исследовалась нами при распространении света в направлении  $\langle 011 \rangle$  и действии электрического поля  $E_x$ . В этом случае из выражений (3), (4) следует, что изменение скалярного параметра  $\Delta G$  в направлении  $\langle 011 \rangle$  вследствие линейной электрогирации для обоих кристаллов определяется выражением

$$\Delta G = \gamma_{41} E_x. \quad (5)$$

При указанной геометрии эксперимента для кристаллов как с симметрией  $\bar{4}2m$ , так и с симметрией  $\bar{4}$  электрогирация сопровождается линейным электрооптическим эффектом, усложняющим (как и естественное двулучепреломление) наблюдение ее в чистом виде. В некоторой степени указанные трудности можно преодолеть благодаря наличию в кристаллах  $\text{AgGaS}_2$  и  $\text{CdGa}_2\text{S}_4$  точки инверсии знака двулучепреломления  $\lambda_i$  [1—3] и особенностям электрооптического эффекта в ее окрестности. Действительно, в кристаллах с симметрией  $\bar{4}2m$  и  $\bar{4}$  при действии поля в направлении  $\langle 100 \rangle$  и распространении света вдоль  $\langle 011 \rangle$  изменяется только  $n_e$ :

$$\Delta n_e(45^\circ) = n_e^3(45^\circ) r_{41} E_x / 2, \quad (6)$$

где  $n_e(45^\circ) = n_0 n_e \sqrt{2} / \sqrt{n_0^2 + n_e^2}$  — показатель преломления необыкновенной волны в направлении  $\langle 011 \rangle$  в отсутствие поля,  $r_{41}$  — компонента тензора линейного электрооптического эффекта в матричной форме.

Тогда возникающее в точке  $\lambda_i$  двулучепреломление с учетом оптической активности можно записать в виде

$$\Delta n = V(\rho\lambda/\pi)^2 + [n_e^3(45^\circ) r_{41} E_x / 2]^2. \quad (7)$$

Учитывая, что  $(\rho\lambda/\pi)^2 \gg [n_e^3(45^\circ) r_{41} E_x / 2]^2$ , получим

$$\Delta n = \frac{\pi}{\rho\lambda} \left[ \left( \frac{\rho\lambda}{\pi} \right)^2 + \frac{1}{8} n_e^6(45^\circ) (r_{41} E_x)^2 \right]. \quad (8)$$

т. е. линейный электрооптический эффект приобретает квадратичный характер. Вследствие этого в окрестности точки  $\lambda_i$  смещение экстремумов интерференционно-поляризационного спектра не зависит от знака поля и происходит, как показывает эксперимент, в сторону длинных волн. При этом смещение интерференционных полос существенно уменьшается с приближением к точке  $\lambda_i$ , а соответствующая ей полоса остается на месте. Следовательно, в точке  $\lambda_i$  электрооптическим эффектом можно пренебречь и для описания электрогирации воспользоваться соотношением

$$\Delta\rho = \frac{\pi}{n\lambda} \gamma_{41} E_x. \quad (9)$$

Экспериментальное исследование электрогирации проводилось нами при комнатной температуре с помощью поляризационной системы с монохроматором ЗМР-3. В качестве поляризаторов применялись призмы Глана — Томсона, одна из которых закреплялась в угломерном устройстве СТ-9, позволяющем измерять углы поворота призмы-анализатора с точностью  $15''$ . Кристаллы выращивались методом Бриджмена — Стокбаргера. Размеры образцов в направлениях  $\langle 100 \rangle$  и  $\langle 011 \rangle$  составляли для  $\text{AgGaS}_2$   $d_{\langle 100 \rangle} = 9,420$  мм,  $d_{\langle 011 \rangle} = 7,595$  мм и для  $\text{CdGa}_2\text{S}_4$   $d_{\langle 100 \rangle} = 11,120$  мм,  $d_{\langle 011 \rangle} = 8,660$  мм. Постоянное электрическое поле прикладывалось с помощью медных электродов, находящихся в свободном контакте с поверхностями кристалла.

Исследуемые образцы устанавливались между скрещенными поляризационными призмами в положение погасания при широко открытой спектральной щели. По существу, эксперимент состоял в измерении углов поворота анализатора в положения последовательной компенсации просветления оптико-поляризационной системы, возникающего вследствие естественной оптической активности и электрогирации при  $\lambda_i$ . Естественное удельное вращение плоскости поляризации света в направлении  $\langle 011 \rangle$  для  $\text{AgGaS}_2$  составляло  $261,2$  град/мм, а для  $\text{CdGa}_2\text{S}_4$  —  $4,7$  град/мм, т. е. вдвое меньше, чем в направлении  $\langle 100 \rangle$ . Согласно [1, 2] для  $\text{AgGaS}_2$  при  $\lambda_i = 498$  нм  $n = 2,685$ ,  $g_{11} = 3,88 \cdot 10^{-3}$ , а для  $\text{CdGa}_2\text{S}_4$  при  $\lambda_i = 489$  нм  $n = 2,510$ ,  $g_{11} = 6,35 \cdot 10^{-5}$ .

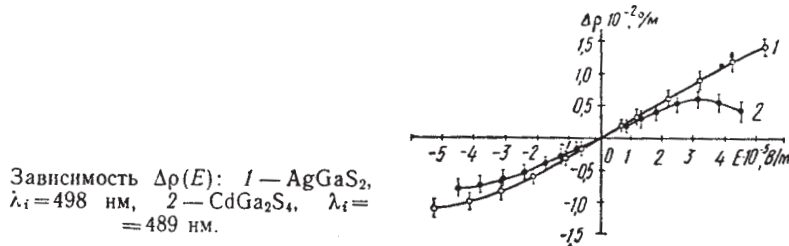
Результаты экспериментального исследования электрогирации в кристаллах  $\text{AgGaS}_2$  и  $\text{CdGa}_2\text{S}_4$  приведены на рисунке. Видно, что при  $|E| \leq 2,5 \cdot 10^5$  В/м изменение удельного вращения  $\Delta\rho$  пропорционально полю и при переполаризации изменяет знак. Отметим, что при линейном электрооптическом эффекте изменение азимута поляризации света имело бы квадратичный характер. При увеличении поля линейный характер зависимостей  $\Delta\rho(E)$  для обоих кристаллов нарушается, что характерно для полупроводниковых кристаллов и наблюдалось нами раньше для кристаллов  $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$  [9]. Определенные по формуле (9) коэффициенты электрогирации  $\gamma_{41}$  для  $\text{AgGaS}_2$  и  $\text{CdGa}_2\text{S}_4$  равны соответственно  $2,03 \cdot 10^{-12}$  и  $1,52 \cdot 10^{-12}$  м/В.

В заключение проведем теоретическую оценку соотношения между электрогирационными коэффициентами для кристаллов  $\text{AgGaS}_2$  и

$\text{CdGa}_2\text{S}_4$ . Автор [10] показал, что нелинейную гирационную восприимчивость  $\chi_g^{NL} = \gamma_{ij}/4\pi$  (которая формально определяется как обычная нелинейная оптическая восприимчивость  $\chi^{NL} = r_{ij}/4\pi$ ) можно выразить через высокочастотную  $\chi(\omega) = (n^2 - 1)/4\pi$  и низкочастотную  $\chi(0) = (\epsilon - 1)/4\pi$  линейные восприимчивости с помощью соотношения

$$\chi_g^{NL} = \Delta_g(\omega) [\chi(\omega)]^2 \chi(0), \quad (10)$$

где  $\Delta_g(\omega)$  — коэффициент, который остается почти постоянным для многих материалов. Это соотношение формально совпадает с тем, которое



обычно используется для оценки нелинейной оптической восприимчивости (правило Миллера):

$$\chi^{NL} = \Delta(\omega) [\chi(\omega)]^2 \chi(0), \quad (11)$$

$\Delta(\omega)$  — коэффициент (постоянная Миллера), который также постоянный для широкого класса веществ и имеет порядок примерно  $10^{-12}$  м/В. В [10] показано, что отношение  $\Delta_g(\omega)/\Delta(\omega)$  приблизительно равно отношению  $G/(n^2 - 1)$ .

Известно [6] также, что естественная оптическая активность возникает в результате изменения фазы поля излучения на расстоянии порядка размеров структурной единицы  $a$  материала (атомные или молекулярные размеры). Поэтому параметр  $G$ , рассчитываемый в различных моделях, всегда меньше  $n^2 - 1$  примерно во столько раз, во сколько раз  $a$  меньше  $\lambda$ . Таким образом, можно записать следующие соотношения:

$$\frac{a}{\lambda} \approx \frac{\gamma_{ij}}{r_{ij}} \approx \frac{\Delta_g(\omega)}{\Delta(\omega)} \approx \frac{G}{n^2 - 1}. \quad (12)$$

Показатели преломления кристаллов  $\text{AgGaS}_2$  и  $\text{CdGa}_2\text{S}_4$  примерно одинаковые, однако параметр  $G$  в кристаллах  $\text{AgGaS}_2$  на два порядка больше. Следовательно, и  $\gamma_{41}$  в кристаллах  $\text{AgGaS}_2$  должно бы быть, в крайнем случае, на порядок больше, чем  $\gamma_{41}$  в  $\text{CdGa}_2\text{S}_4$ . Проведенные нами экспериментальные исследования показывают, что электрогирационные коэффициенты в кристаллах титгаллатов  $\text{Ag}$  и  $\text{Cd}$  примерно одинаковы; при этом наблюдается значительное отклонение (почти на четыре порядка) от предсказанного в [10] (примерно  $10^{-16}$  м/В) значения электрогирационного коэффициента.

**SUMMARY.** Electrogyration coefficients  $\gamma_{41}$  are determined for  $\text{AgGaS}_2$  and  $\text{CdGa}_2\text{S}_4$  crystals at wavelengths of 498 and 489 nm, which correspond to inversion points of the birefringence sign:  $\gamma_{41} = 2.03 \cdot 10^{-12}$  m/V and  $\gamma_{41} = 1.52 \cdot 10^{-12}$  m/V.

1. Влох О. Г., Царик А. В. Оптическая активность титгаллата кадмия.— УФЖ, 1981, 26, 7, 1087—1090.
2. Влох О. Г., Царик А. В. Оптические свойства нелинейных кристаллов  $\text{AgGaS}_2$  и  $\text{CdGa}_2\text{S}_4$ .— Вестн. Львов. ун-та. Сер. физ., 1982, 16, 13—34.
3. Влох О. Г., Головей М. И., Царик А. В. Особенности дисперсии электро- и пьезооптических коэффициентов кристаллов титгаллата серебра.— УФЖ, 1982, 27, 4, 595—598.
4. Желудев И. С. Аксиальные тензоры третьего ранга и описываемые ими физические явления.— Кристаллография, 1964, 9, 4, 501—505.

5. Влох О. Г. Параметрические явления в кристаллооптике (электрооптика и электрогирация): Автореф. дис. ... д-ра физ.-мат. наук. М., 1978. 46.
6. Борн М. Оптика. Киев: Гостехиздат, 1937. 795.
7. Най Дж. Физические свойства кристаллов и их описание при помощи тензоров и матриц. М.: Мир, 1967. 385.
8. Бокунь Б. В., Сотский Б. А. Об одной возможности управления углом поворота плоскости поляризации излучения.— ЖПС, 1973, 19, 5, 926—928.
9. Влох О. Г., Царик А. В. Влияние электрического поля на поляризацию света в кристаллах  $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$ ,  $\text{Bi}_{12}\text{GeO}_{20}$ ,  $\text{NaVgO}_3$ .— УФЖ, 1977, 22, 6, 1027—1030.
10. Miller A. Magnitude of electrogyratory effects.— Phys. Rev. B, 1973, 8, 12, 5902—5908.

Львов. гос. ун-т им. Ив. Франко

Получено 03.01.83