

Міністерство освіти і науки України
Інститут фізичної оптики імені О.Г. Влоха

Кваліфікаційна наукова
праця на правах рукопису

Адаменко Дмитро Ігорович

УДК 535.551, 539.22, 620.192.63

ДИСЕРТАЦІЯ

**Оптична активність та її вплив на акустооптичну взаємодію
в фероїчних кристалах**

01.04.05 – Оптика, лазерна фізика

Подається на здобуття наукового ступеня доктора фізико-математичних наук

Дисертація містить результати власних досліджень. Використання ідей, результатів і текстів інших авторів мають посилання на відповідне джерело

 Д.І. Адаменко

Львів – 2023

АНОТАЦІЯ

Адаменко Д.І. Оптична активність та її вплив на акустооптичну взаємодію в фероїчних кристалах. – Кваліфікаційна наукова праця на правах рукопису.

Дисертація на здобуття наукового ступеня доктора фізико-математичних наук за спеціальністю 01.04.05 "Оптика, лазерна фізика". – Інститут фізичної оптики імені О.Г. Влоха Міністерства освіти і науки України, Львів, 2023.

Дисертацію присвячено з'ясуванню механізмів та основних закономірностей виникнення та прояву ефектів оптичної активності акустооптичних середовищ в аспекті їхнього впливу на акустооптичну взаємодію в цих середовищах. З цією метою у ній було розглянуто оптичну активність та її температурну поведінку в сегнетоелектричних кристалах; досліджено магніто-індуковану оптичну активність та температурну поведінку анізотропії в лужно-боратних і халькогенідних сполуках; розглянуто різні типи акустооптичної взаємодії з врахуванням неортогональності акустичних власних хвиль та еліптичності оптичних власних хвиль; проаналізовано різні типи акустооптичної взаємодії за участю циркулярно-поляризованих оптичних власних хвиль в оптично активних кристалах.

В процесі дисертаційного дослідження було отримано наступні результати, що мають наукову новизну:

1. На прикладі кристалів $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}$ та $\alpha\text{-SiO}_2$ показано, що наявність оптичної активності суттєво підвищує коефіцієнт акустооптичної якості за рахунок ненульової еліптичності взаємодіючих оптичних власних хвиль. Встановлено, що таке підвищення відбувається за рахунок того, що еліптичність оптичних власних хвиль наближається до одиниці поблизу оптичної осі, а в співвідношення для ефективного пружнооптичного коефіцієнта можуть включатися додаткові компоненти пружнооптичного тензора.

2. На прикладі кристалів KN_2PO_4 , які не володіють природною оптичною активністю при поширенні оптичних хвиль вздовж оптичної осі, продемонстровано, що індукована зовнішнім магнітним полем фарадеївська еліптичність оптичних власних хвиль призводить до суттєвого зростання коефіцієнта акустооптичної якості, що, у свою чергу, свідчить про принципову можливість керування ефективністю акустооптичної дифракції за допомогою зовнішнього магнітного поля. При цьому робочі значення напруженості зовнішнього магнітного поля залежать від величини ефективного коефіцієнта Фарадея відповідного акустооптичного середовища для певної визначеної геометрії акустооптичної дифракції.

3. Запропоновано метод визначення параметрів розмитих сегнетоелектричних фазових переходів, який базується на поділі досліджуваного зразка на нескінченно велику кількість однорідних елементарних комірок, в кожній з яких фазовий перехід є нерозмитим та характеризується певною локальною температурою Кюрі; гауссівському розподілі локальних температур Кюрі в межах досліджуваного зразка; описі температурної поведінки термодинамічних параметрів при фазових переходах другого роду в рамках теорії Ландау. Метод передбачає інтерполяцію експериментальної температурної залежності оптичної активності, оберненої діелектричної проникності або оберненого коефіцієнта лінійного електрогіраційного ефекту середнім по ансамблю відповідних локальних температурних залежностей. Метод апробований на прикладі кристалів сімейства германату свинцю.

4. Експериментально досліджено фарадеївську оптичну активність в халькогенідних кристалах Tl_3AsS_4 , AgGaGeS_4 , $\text{AgGaGe}_3\text{Se}_8$, халькогенідних твердих розчинах $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ ($x = 0; 0,02; 0,06; 0,10; 0,15; 0,25$) та лужно-боратних стеклах LiKB_4O_7 , $\text{Li}_2\text{B}_6\text{O}_{10}$, $\text{LiCsB}_6\text{O}_{10}$.

5. Показано, що за наявності лише циркулярного двозаломлення в оптично активних кристалах акустооптична дифракція проявляється у взаємодії між власними циркулярно-поляризованими оптичними хвилями. На прикладі

оптично активних кристалів AgGaS_2 для довжини хвилі ізотропної точки 497,4 нм встановлено, що наявність циркулярного двозаломлення призводить до двох типів акустооптичної дифракції – а саме, ізотропної акустооптичної дифракції за участю циркулярно-поляризованих оптичних власних хвиль з однаковими знаками обертань їхніх векторів напруженості електричного поля та анізотропної акустооптичної дифракції, для якої ці знаки є протилежними. На основі аналізу анізотропії швидкостей акустичних хвиль та експериментальних досліджень пружнооптичних коефіцієнтів кристалів AgGaS_2 визначено кути зносу та неортогональності власних акустичних хвиль, а також кутову залежність коефіцієнта акустооптичної якості для випадку колінеарної акустооптичної взаємодії з циркулярно-поляризованими оптичними власними хвилями на довжині хвилі ізотропної точки.

6. Отримано аналітичні вирази для деформацій, спричинених акустичними хвилями, з врахуванням неортогональності їх поляризації. На основі аналізу впливу неортогональності поляризацій власних акустичних хвиль на анізотропію коефіцієнта акустооптичної якості для ізотропних акустооптичних взаємодій, що відбуваються в головних кристалографічних площинах кристалів Tl_3AsS_4 , $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ та $\alpha\text{-TeO}_2$, показано, що набір компонент пружнооптичного тензора, який визначає ефективний пружнооптичний коефіцієнт, не змінюється при врахуванні або нехтуванні неортогональністю акустичних хвиль для цих кристалів, а також кристалів, які характеризуються тензорами жорсткості та пружнооптичними тензорами з аналогічною структурою. Встановлено, що за цих умов при врахуванні або нехтуванні неортогональністю поляризацій акустичних хвиль змінюється співвідношення між компонентами пружнооптичного тензора, які формують ефективний пружнооптичний коефіцієнт.

7. Експериментально досліджено швидкості акустичних хвиль в кристалах TlInSe_2 та $\gamma_1\text{-(Ga}_{0,3}\text{In}_{0,7})_2\text{Se}_3$, що дозволило визначити всі компоненти тензорів жорсткості та пружної податливості, кути зносу та неортогональності власних акустичних хвиль, а також оцінити коефіцієнт акустооптичної якості

для випадку ізотропної акустооптичної взаємодії.

8. З використанням експериментально отриманих поляриметричних двовірних карт розподілу приростів кута орієнтації оптичної індикатриси та оптичної різниці фаз для різних температур показано, що політипна структура акустооптичних халькогенідних твердих розчинів $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ ($x = 0; 0,02; 0,06; 0,10; 0,15; 0,25$) проявляється в неоднорідному розподілі параметрів оптичної анізотропії.

При цьому практичне значення отриманих результатів полягає в наступному:

1. Продемонстровано принципову можливість керування ефективністю акустооптичної дифракції за допомогою зовнішнього магнітного поля.

2. Отримані оптимальні геометрії акустооптичних взаємодій можуть бути рекомендовані як робочі геометрії для відповідних акустооптичних пристроїв.

3. Використаний метод визначення параметрів розмитих сегнетоелектричних фазових переходів має помітні практичні переваги перед іншими методами розрахунку температури Кюрі та критичного індексу параметра порядку з огляду на його обґрунтованість, непотрібність побудови додаткових температурних залежностей, об'єктивність вихідних параметрів та можливість визначення області розмиття сегнетоелектричних фазових переходів.

4. Отримані значення ефективних коефіцієнтів Фарадея халькогенідних кристалів Tl_3AsS_4 й $\text{AgGaGe}_3\text{Se}_8$ та халькогенідних твердих розчинів $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ ($x = 0; 0,02; 0,06; 0,10; 0,15; 0,25$) дозволяють віднести їх до одних з найкращих магнітно-невпорядкованих матеріалів для магнітооптичних застосувань.

Ключові слова: оптична активність, електрогірація, ефект Фарадея, термічне розширення, акустооптична взаємодія, коефіцієнт акустооптичної якості, ефективний пружнооптичний коефіцієнт, анізотропія, неортогональність, еліптичність оптичних власних хвиль, фероїки, лужно-боратні стекла, фазові переходи, параметр порядку.

SUMMARY

Adamenko D.I. Optical activity and its influence on acousto-optic interaction in ferroic crystals. – Manuscript.

The thesis for a doctor of physical-mathematical science degree in specialty 01.04.05 “Optics, laser physics”. – O.G. Vlokh Institute of Physical Optics of the Ministry of Education and Science of Ukraine, Lviv, 2023.

The dissertation is devoted to elucidating the mechanisms and basic laws of the emergence and manifestation of the effects of optical gyrotropy of acousto-optic environments in terms of their influence on the acousto-optic interaction in these environments.

For this purpose, it considered the optical activity and its temperature behavior in ferroelectric crystals; were investigated the magnetically induced optical gyrotropy and temperature behavior of anisotropy in alkaline-borate and chalcogenide compounds; considered the various types of acousto-optic interaction, taking into account the non-orthogonality of acoustic eigenwaves and the ellipticity of optical eigenwaves; analyzed different types of acousto-optic interaction involving circularly polarized optical eigenwaves in optically active crystals.

In the process of the dissertation research, the following results, which have scientific novelty, were obtained:

1. In the example of $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}$ and $\alpha\text{-SiO}_2$ crystals, it is shown that the presence of optical activity significantly increases the acousto-optic figure of merit due to the non-zero ellipticity of the interacting optical eigenwaves. It was established that such an increase occurs due to the fact that the ellipticity of optical eigenwaves approaches unity near the optical axis, and the relationship for efficient elasto-optic coefficient may include additional components of the elasto-optic tensor.

2. Using the example of KH_2PO_4 crystals, which do not possess natural optical activity when optical waves propagate along the optical axis, it was demonstrated that

the Faraday ellipticity of optical eigenwaves induced by an external magnetic field leads to a significant increase in the acousto-optic figure of merit, which, in turn, indicates the fundamental possibility of controlling the efficiency of acousto-optic diffraction with the help of an external magnetic field. At the same time, the working values of the intensity of the external magnetic field depend on the value of the effective Faraday coefficient of the corresponding acousto-optic medium for a certain defined geometry of acousto-optic diffraction.

3. A method for determining the parameters of diffuse ferroelectric phase transitions is proposed, which is based on the division of the studied sample into an infinitely large number of homogeneous elementary cells, in each of which the phase transition is not diffused and is characterized by a certain local Curie temperature; the Gaussian distribution of local Curie temperatures within the studied sample; description of the temperature behavior of thermodynamic parameters during second order phase transitions within the Landau theory. The method involves the interpolation of the experimental temperature dependence of the optical activity, the inverse dielectric permittivity, or the inverse coefficient of the linear electrogyration effect by the average of the ensemble of the corresponding local temperature dependences. The method was tested on the example of crystals of the lead germanate family.

4. Faraday optical activity in Tl_3AsS_4 , AgGaGeS_4 , $\text{AgGaGe}_3\text{Se}_8$ chalcogenide crystals, $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ ($x = 0; 0.02; 0.06; 0.10; 0.15; 0.25$) chalcogenide solid solutions and LiKB_4O_7 , $\text{Li}_2\text{B}_6\text{O}_{10}$, $\text{LiCsB}_6\text{O}_{10}$ alkaline-borate glasses was experimentally investigated.

5. It is shown that in the presence of only circular birefringence in optically active acousto-optic crystals, diffraction manifests in the interaction between eigen circularly polarized waves. In the example of gyrotropic AgGaS_2 crystals for the wavelength of an isotropic point 497.4 nm, it was established that the presence of circular birefringence leads to two types of acousto-optic diffraction, namely, isotropic acousto-optic diffraction involving circularly polarized optical eigenwaves with the same signs of rotation of their electric field strength vectors and anisotropic

acousto-optic diffraction, for which these signs are opposite. Based on the analysis of the anisotropy of acoustic waves velocities and experimental studies of the elasto-optic coefficients of AgGaS_2 crystals, the obliquity angles and non-orthogonality of acoustic eigenwaves, as well as the angular dependence of acousto-optic figure of merit for the case of collinear acousto-optic interaction with circularly polarized optical eigenwaves at the wavelength of the isotropic point, were determined.

6. Analytical expressions for the deformations caused by acoustic waves, taking into account the non-orthogonality of their polarization, were obtained. Based on the analysis of the influence of the non-orthogonality of the polarizations of acoustic eigenwaves on the anisotropy of acousto-optic figure of merit for isotropic acousto-optic interactions occurring in the principle crystallographic planes of Tl_3AsS_4 , $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ and $\alpha\text{-TeO}_2$ crystals, it is shown that the set of components of the elasto-optic tensor, which determines the efficient elasto-optic coefficient, does not change when taking into account or neglecting the non-orthogonality for these crystals, as well as crystals characterized by elastic stiffness tensors and elasto-optic tensors with a similar structure. It was found that under these conditions, taking into account or neglecting the non-orthogonality of polarizations of the acoustic waves, the ratio between the components of the elasto-optic tensor, which form the efficient elasto-optic coefficient, changes.

7. The velocities of acoustic waves in TlInSe_2 and $\gamma_1\text{-(Ga}_{0.3}\text{In}_{0.7})_2\text{Se}_3$ crystals were experimentally investigated, which made it possible to determine all the components of the stiffness and elastic compliance tensors, the obliquity angles and non-orthogonality of acoustic eigenwaves, and also estimate the acousto-optic figure of merit for the case of isotropic acousto-optic interaction.

8. Using experimentally obtained polarimetric two-dimensional maps of the distribution of increases in the orientation angle of the optical indicatrix and the optical phase difference for different temperatures, it is shown that the polytype structure of $\text{TlIn(S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ ($x = 0; 0.02; 0.06; 0.10; 0.15; 0.25$) acousto-optical chalcogenide solid solutions is manifested in the inhomogeneous distribution of optical anisotropy parameters.

At the same time, the practical significance of the obtained results is as follows:

1. The fundamental possibility of controlling the efficiency of acousto-optic diffraction using an external magnetic field is demonstrated.
2. The obtained optimal geometries of acousto-optic interactions can be recommended as working geometries for the corresponding acousto-optic devices.
3. The used method of determining the parameters of diffuse ferroelectric phase transitions has noticeable practical advantages over other methods of calculating the Curie temperature and the critical index of the order parameter in view of its validity, the needlessness of constructing additional temperature dependencies, the objectivity of the initial parameters and the possibility of determining the diffusion area of ferroelectric phase transitions.
4. The obtained values of the effective Faraday coefficients of Tl_3AsS_4 and $\text{AgGaGe}_3\text{Se}_8$ chalcogenide crystals and $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ ($x = 0; 0.02; 0.06; 0.10; 0.15; 0.25$) chalcogenide solid solutions make it possible to classify them as one of the best magnetically disordered materials for magneto-optical applications.

Keywords: optical activity, electrogyration, Faraday effect, thermal expansion, acousto-optic interactions, acousto-optic figure of merit, effective elasto-optic coefficient, anisotropy, non-orthogonality, ellipticity of optical eigenwaves, ferroics, alkaline-borate glasses, phase transitions, order parameter.

Список публікацій здобувача за темою дисертації

Наукові праці, в яких опубліковані основні результати дисертації

1. Y. Shopa, D. Adamenko, R. Vlokh, and O. Vlokh, "Electrogyration effect in lead germanate crystal family. 1. Electrogyration in the solid solutions based on lead germanate crystals," *Ukr. J. Phys. Opt.*, vol. 8, pp. 197-208, 2007 (Особистий внесок: обробка результатів експериментальних досліджень; участь у написанні статті).
2. Y. Shopa, O. Kushnir, D. Adamenko, R. Shopa, V. Dzyubanski, R. Vlokh, and O. Vlokh, "Electrogyration effect in lead germanate crystal family. 2. The case of

crystals doped with Li, Eu, La, Nd and (Li, Bi)," *Ukr. J. Phys. Opt.*, vol. 10, pp. 71-81, 2009 (Особистий внесок: обробка результатів експериментальних досліджень; участь у написанні статті).

3. D. Adamenko, I. Klymiv, Y. Vasylykiv, and R. Vlokh, "Optical activity and critical exponent of the order parameter in lead germanate crystals. 1. The case of diffused phase transition in $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}$ doped with Cu, Ba and Si ions," *Ukr. J. Phys. Opt.*, vol. 10, pp. 182-193, 2009 (Особистий внесок: проведення поляриметричних досліджень кристалів германату свинцю, легованих Cu; розробка методики визначення параметрів розмитих фазових переходів; обробка результатів експериментальних досліджень, участь у написанні статті).

4. D. Adamenko, I. Klymiv, Y. Vasylykiv, V. Duda, A. Ermakov, and R. Vlokh, "Optical activity and critical exponent of the order parameter in lead germanate crystals. 2. Electrogyration and dielectric properties of $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}:\text{Cu}^{2+}$," *Ukr. J. Phys. Opt.*, vol. 10, pp. 194-200, 2009 (Особистий внесок: проведення поляриметричних досліджень кристалів германату свинцю, легованих Cu; обробка результатів експериментальних досліджень, написання статті).

5. D. Adamenko, "Dispersion of optical activity and absorption in $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}:\text{Cu}^{2+}$ crystals," *Ukr. J. Phys. Opt.*, vol. 11, pp. 114-118, 2010.

6. D. Adamenko and R. Vlokh, "Critical exponents of the order parameter of diffuse ferroelectric phase transitions in the solid solutions based on lead germanate: studies of optical rotation," *Condens. Matter Phys.*, vol. 25, p. 43703, 2022 (Особистий внесок: розробка методики визначення параметрів розмитих фазових переходів; обробка результатів експериментальних досліджень, написання статті).

7. I. Martynyuk-Lototska, O. Mys, A. Say, I. Trach, D. Adamenko, O. Gomonnai, I. Roman, and R. Vlokh, "Anisotropy of acoustic and thermal expansion properties of TlInSe_2 crystals," *Phase Transit.*, vol. 92, pp. 23-35, 2019 (Особистий внесок: участь у проведенні експериментальних досліджень; участь у обробці результатів експериментальних досліджень; участь у написанні статті).

8. A. Say, D. Adamenko, O. Gomonnai, I. Roman, I. Martynyuk-Lototska, and R. Vlokh, "Anisotropy of thermal expansion of TlGaSe_2 crystals," *Phase Transit.*, vol. 92, pp. 824-830, 2019 (Особистий внесок: участь у проведенні експериментальних досліджень; участь у обробці результатів експериментальних досліджень; участь у написанні статті).
9. D. Adamenko, A. Pogodin, Y. Vasylykiv, I. Martynyuk-Lototska, and R. Vlokh, "Manifestations of the polytype structure of $\beta\text{-TlInS}_2$ crystals in their optical anisotropy parameters," *Ukr. J. Phys. Opt.*, vol. 20, pp. 151-158, 2019 (Особистий внесок: проведення експериментальних досліджень; обробка результатів експериментальних досліджень; участь у написанні статті).
10. A. Say, I. Martynyuk-Lototska, D. Adamenko, A. Pogodin, O. Kokhan, and R. Vlokh, "Thermal expansion anisotropy of $\beta\text{-TlInS}_2$ crystals in the course of phase transitions," *Phase Transit.*, vol. 91, pp. 1-8, 2018 (Особистий внесок: участь у проведенні експериментальних досліджень; участь у обробці результатів експериментальних досліджень; участь у написанні статті).
11. D. Adamenko, A. Say, I. Martynyuk-Lototska, O. Mys, M. Kostyrko, O. Gommonai, and R. Vlokh, "(x,T)-phase diagram of $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ solid solutions ($x = 0, 0.02, 0.06, 0.10, 0.15$ and 0.25)," *Phase Transit.*, vol. 93, pp. 935-944, 2020 (Особистий внесок: проведення поляриметричних досліджень та обробка їх результатів; участь у проведенні дилатометричних досліджень та обробці їх результатів; участь у написанні статті).
12. A. Say, I. Martynyuk-Lototska, O. Mys, D. Adamenko, M. Kostyrko, O. Gommonai, and R. Vlokh, "Temperature dependences of optical indicatrix and thermal expansion parameters of $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ solid solutions ($x = 0, 0.02$ and 0.06)," *Ukr. J. Phys. Opt.*, vol. 21, pp. 57-64, 2020 (Особистий внесок: проведення поляриметричних досліджень та обробка їх результатів; участь у проведенні дилатометричних досліджень та обробці їх результатів; участь у написанні статті).
13. D. Adamenko, V. Adamiv, I. Klymiv, and R. Vlokh, "Kerr and Faraday effects in borate glasses," *Ukr. J. Phys. Opt.*, vol. 12, pp. 1-9, 2011 (Особистий внесок:

проведення експериментальних досліджень; обробка результатів експериментальних досліджень; написання статті).

14. D. Adamenko, M. Kushnirevych, O. Kokhan, and R. Vlokh, "Faraday effect in Tl_3AsS_4 crystals," *Ukr. J. Phys. Opt.*, vol. 16, pp. 134-137, 2015 (Особистий внесок: проведення експериментальних досліджень; обробка результатів експериментальних досліджень; написання статті).

15. D. Adamenko, O. Parasyuk, and R. Vlokh, "Faraday effect in $\text{AgGaGe}_3\text{Se}_8$ crystals," *Ukr. J. Phys. Opt.*, vol. 17, pp. 27-31, 2016 (Особистий внесок: проведення експериментальних досліджень; обробка результатів експериментальних досліджень; написання статті).

16. D. Adamenko, A. Say, O. Parasyuk, I. Martynyuk-Lototska, and R. Vlokh, "Magneto optic rotation and thermal expansion of AgGaGeS_4 crystals," *Ukr. J. Phys. Opt.*, vol. 17, pp. 105-111, 2016 (Особистий внесок: проведення поляриметричних досліджень та обробка їх результатів; участь у проведенні дилатометричних досліджень та обробці їх результатів; участь у написанні статті).

17. D. Adamenko, Y. Vasylykiv, A. Pogodin, O. Kokhan, and R. Vlokh, "Faraday effect in TlInS_2 crystals," *Ukr. J. Phys. Opt.*, vol. 18, pp. 197-200, 2017 (Особистий внесок: проведення експериментальних досліджень; обробка результатів експериментальних досліджень; написання статті).

18. D. Adamenko, O. Krupych, M. Kostyrko, Y. Vasylykiv, O. Gomonnai, A. Gomonnai, and R. Vlokh, "Faraday effect in $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ solid solutions ($x = 0, 0.02, 0.06, 0.10, 0.15$ and 0.25)," *Ukr. J. Phys. Opt.*, vol. 21, pp. 178-183, 2020 (Особистий внесок: проведення експериментальних досліджень; обробка результатів експериментальних досліджень; написання статті).

19. O. Krupych, D. Adamenko, and R. Vlokh, "Analytical relations for the strain tensor components caused by acoustic waves with arbitrary wave vector directions in crystals: acousto-optic applications," *Ukr. J. Phys. Opt.*, vol. 20, pp. 16-22, 2019 (Особистий внесок: участь у проведенні теоретичного аналізу; участь у написанні статті).

20. O. Mys, D. Adamenko, O. Krupych, and R. Vlokh, "Effect of deviation from purely transverse and longitudinal polarization states of acoustic waves on the anisotropy of acoustooptic figure of merit: the case of Tl_3AsS_4 crystals," *Appl. Opt.*, vol. 57, pp. 8320-8330, 2018 (Особистий внесок: участь у проведенні теоретичного аналізу; участь у написанні статті).
21. O. Mys, V. Savaryn, M. Kostyrko, D. Adamenko, O. Krupych, and R. Vlokh, "Anisotropy of acousto-optic figure of merit in tetragonal crystals with accounting for non-orthogonality of acoustic eigenwave polarizations. 2. The cases of $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ and TeO_2 crystals," *Ukr. J. Phys. Opt.*, vol. 20, pp. 23-36, 2019 (Особистий внесок: участь у проведенні теоретичного аналізу; участь у написанні статті).
22. I. Martynyuk-Lototska, O. Mys, D. Adamenko, M. Kostyrko, S. Bereznyuk, A. Solomon, A. Pogodin, I. Studenyak, and R. Vlokh, "Elastic quasi-isotropy and acousto-optics of $\gamma_1\text{-(Ga}_{0.3}\text{In}_{0.7})_2\text{Se}_3$ crystals," *Ukr. J. Phys. Opt.*, vol. 23, pp. 1-8, 2022 (Особистий внесок: участь у проведенні експериментальних досліджень; участь у обробці результатів експериментальних досліджень; участь у написанні статті).
23. O. Mys, I. Martynyuk-Lototska, A. Pogodin, T. Dudok, D. Adamenko, O. Krupych, I. Skab, and R. Vlokh, "Acousto-optic interaction between circularly polarized optical eigenwaves: example of AgGaS_2 crystals," *Appl. Opt.*, vol. 58, pp. 6012-6018, 2019 (Особистий внесок: участь у проведенні теоретичного аналізу; участь у проведенні експериментальних досліджень; участь у обробці результатів експериментальних досліджень; участь у написанні статті).
24. O. Mys, D. Adamenko, I. Skab, and R. Vlokh, "Anisotropy of acousto-optic figure of merit for the collinear diffraction of circularly polarized optical waves at the wavelength of isotropic point in AgGaS_2 crystals," *Ukr. J. Phys. Opt.*, vol. 20, pp. 73-80, 2019 (Особистий внесок: участь у проведенні теоретичного аналізу; участь у написанні статті).
25. O. Mys, D. Adamenko, and R. Vlokh, "Enhancement of acousto-optic diffraction efficiency in SiO_2 crystals due to the ellipticity of eigen optical waves. Isotropic acousto-optic interaction," *Ukr. J. Phys. Opt.*, vol. 24, pp. 124-133, 2023

(Особистий внесок: участь у проведенні теоретичного аналізу; участь у написанні статті).

26. O. Mys, M. Kostyrko, D. Adamenko, I. Martynyuk-Lototska, I. Skab, and R. Vlokh, "Effect of ellipticity of optical eigenwaves on the enhancement of efficiency of acousto-optic Bragg diffraction. A case of optically active $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}$ crystals," *AIP Adv.*, vol. 12, p. 055130, 2022 (Особистий внесок: участь у проведенні теоретичного аналізу; участь у проведенні експериментальних досліджень; участь у обробці результатів експериментальних досліджень; участь у написанні статті).

27. O. Mys, D. Adamenko, and R. Vlokh, "Influence of Faraday elliptical birefringence on the acousto-optic diffraction efficiency: a case of isotropic interaction with quasi-longitudinal acoustic waves in KH_2PO_4 crystals," *Ukr. J. Phys. Opt.*, vol. 24, pp. 95-103, 2023 (Особистий внесок: участь у проведенні теоретичного аналізу; участь у написанні статті).

Наукові праці, які засвідчують апробацію матеріалів дисертації

1. D. Adamenko, I. Klymiv, and R. Vlokh, "Electro- and magneto-induced optical activity in lead germanate type crystals," in *International Scientific Workshop "Oxide materials for electronic engineering – fabrication, properties and application OMEE-2009"*, Lviv Polytechnic National University, Lviv, Ukraine, June 22–26, 2009: book of abstracts and Workshop program, Lviv: Lviv Polytechnic National University, 2009. – p. 166.

2. A. Say, O. Mys, D. Adamenko, A. Grabar, Yu. Vysochanskii, and R. Vlokh, "Optical properties and phase transition in $\text{Sn}_2\text{P}_2\text{S}_6$ crystals: critical exponents, comparison of optical and dilatometric data," in *2nd Seminar "Properties of Ferroelectric and Superionic Systems"*, Uzhhorod National University, Uzhhorod, Ukraine, 19–20. X. 2009, Uzhhorod: Uzhhorod National University, 2009. – p. 12.

3. D. Adamenko, A. Pogodin, O. Gomonnai, A. Say, O. Mys, Y. Vasylykiv, I. Martynyuk-Lototska, and R. Vlokh, "Anisotropy of acoustic, thermal expansion and optical properties of $\beta\text{-TlInS}_2$, TlInSe_2 and TlGaSe_2 crystals," in *VIII International seminar "Properties of ferroelectric and superionic systems"*, Uzhhorod National

University, Uzhhorod, Ukraine, October 29–30, 2019: *Programme and abstracts*, Uzhhorod: Uzhhorod National University, 2019. – p. 24.

4. D. Adamenko, A. Say, I. Martynyuk-Lototska, O. Mys, M. Kostyrko, O. Gomonnai, A. Gomonnai, and R. Vlokh, "(x, T)-phase diagram of $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ solid solutions ($x = 0, 0.02, 0.06, 0.10, 0.15$ and 0.25)," in *IX International seminar "Properties of ferroelectric and superionic systems"*, Uzhhorod National University, Uzhhorod, Ukraine, October 27, 2020: *Programme and abstracts*, Uzhhorod: Uzhhorod National University, 2020. – pp. 33-34.

5. O. Mys, M. Kostyrko, I. Orykhivskyi, D. Adamenko, I. Skab, and R. Vlokh, "Enhancement of the efficiency of acousto-optic Bragg diffraction due to optical activity," in *X International seminar "Properties of ferroelectric and superionic systems"*, Uzhhorod National University, Uzhhorod, Ukraine, October 26–27, 2021: *Programme*, Uzhhorod: Uzhhorod National University, 2021. – pp. 44-46.

6. R. Vlokh and D. Adamenko, "Parameters of diffuse ferroelectric phase transitions in the lead germanate-based crystals: studies of optical rotation and dielectric permeability," in *XI International seminar "Properties of ferroelectric and superionic systems"*, Uzhhorod National University, Uzhhorod, Ukraine, October 28, 2022: *Programme and Abstracts*, Uzhhorod: Uzhhorod National University, 2022. – pp. 7-10.

7. O. Mys, I. Martynyuk-Lototska, D. Adamenko, I. Skab, and R. Vlokh, "Acousto-optic interaction between circularly polarized optical eigenwaves in AgGaS_2 crystals," in *XII International seminar "Properties of ferroelectric and superionic systems"*, Uzhhorod National University, Uzhhorod, Ukraine, April 20, 2023: *Programme and Abstracts*, Uzhhorod: Uzhhorod National University, 2023. – pp. 27-29.

8. O. Mys, D. Adamenko, I. Martynyuk-Lototska, and R. Vlokh, "Influence of ellipticity of eigen optical waves on the acousto-optic diffraction efficiency at the Faraday effect and electrogyration, induced by spontaneous polarization," in *XII International seminar "Properties of ferroelectric and superionic systems"*, Uzhhorod

National University, Uzhhorod, Ukraine, April 20, 2023: Programme and Abstracts, Uzhhorod: Uzhhorod National University, 2023. – pp. 30-33.

9. O. Mys, D. Adamenko, O. Krupych, and R. Vlokh, "The effect of deviation from purely transverse and longitudinal polarization states of acoustic waves on the anisotropy of acousto-optic figure of merit," in *XII International seminar "Properties of ferroelectric and superionic systems"*, Uzhhorod National University, Uzhhorod, Ukraine, April 20, 2023: *Programme and Abstracts*, Uzhhorod: Uzhhorod National University, 2023. – pp. 34-36.

ЗМІСТ

АНОТАЦІЯ	2
ЗМІСТ	17
ПЕРЕЛІК УМОВНИХ ПОЗНАЧЕНЬ	19
ВСТУП	20
РОЗДІЛ 1. ОПТИЧНА АКТИВНІСТЬ ТА ЇЇ ТЕМПЕРАТУРНА ПОВЕДІНКА В СЕГНЕТОЕЛЕКТРИЧНИХ КРИСТАЛАХ.....	28
1.1. Методика експериментальних досліджень оптичної активності.....	35
1.2. Методика визначення параметрів розмитих фазових переходів у кристалах сімейства $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}$ за температурною поведінкою оптичної активності.....	38
1.3. Аналіз оптичної активності в кристалах сімейства $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}$	47
1.3.1. Кристали $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}$, леговані Cu.....	47
1.3.2. Тверді розчини $\text{Pb}_5(\text{Ge}_{1-x}\text{Si}_x)_3\text{O}_{11}$ та $(\text{Pb}_{1-x}\text{Ba}_x)_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}$	56
1.3.3. Кристали $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}$, леговані Li, La, Eu, Nd та Bi.....	66
Висновки до Розділу 1	72
РОЗДІЛ 2. МАГНІТО-ІНДУКОВАНА ОПТИЧНА АКТИВНІСТЬ ТА ТЕМПЕРАТУРНА ПОВЕДІНКА АНІЗОТРОПІЇ В ЛУЖНО-БОРАТНИХ І ХАЛЬКОГЕНІДНИХ СПОЛУКАХ.....	76
2.1. Ефект Фарадея в лужно-боратних і халькогенідних сполуках	76
2.1.1. Стекла LiKB_4O_7 , $\text{Li}_2\text{B}_6\text{O}_{10}$ та $\text{LiCsB}_6\text{O}_{10}$	79
2.1.2. Кристали Tl_3AsS_4	84
2.1.3. Кристали $\text{AgGaGe}_3\text{Se}_8$ та AgGaGeS_4	88
2.1.4. Тверді розчини $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$	95
2.2. Аналіз анізотропії термічних, оптичних та акустичних параметрів халькогенідних сполук TlMX_2	101
2.2.1. Кристали TlInSe_2	108
2.2.2. Кристали TlGaSe_2	114
2.2.3. Тверді розчини $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$	119

Висновки до Розділу 2	140
РОЗДІЛ 3. АКУСТООПТИЧНА ВЗАЄМОДІЯ З ВРАХУВАННЯМ НЕОРТОГОНАЛЬНОСТІ АКУСТИЧНИХ ВЛАСНИХ ХВИЛЬ	143
3.1. Аналіз деформацій, викликаних акустичними хвилями, в аспекті акустооптичної взаємодії	143
3.2. Вплив неортогональності акустичних хвиль на ефективність акустооптичної дифракції.....	154
3.2.1. Кристали Ti_3AsS_4	157
3.2.2. Кристали $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ та $\alpha\text{-TeO}_2$	182
3.2.3. Кристали TlInSe_2	201
3.2.4. Кристали $\gamma_1\text{-(Ga}_{0.3}\text{In}_{0.7})_2\text{Se}_3$	208
Висновки до Розділу 3	215
РОЗДІЛ 4. АКУСТООПТИЧНА ВЗАЄМОДІЯ ЗА УЧАСТЮ ЦИРКУЛЯРНО-ПОЛЯРИЗОВАНИХ ОПТИЧНИХ ВЛАСНИХ ХВИЛЬ В ОПТИЧНО АКТИВНИХ КРИСТАЛАХ.....	218
4.1. Аналіз акустооптичної дифракції циркулярно-поляризованих оптичних хвиль в кристалах AgGaS_2	218
4.2. Вплив циркулярної поляризації оптичних хвиль на ефективність акустооптичної дифракції в кристалах AgGaS_2	232
Висновки до Розділу 4	238
РОЗДІЛ 5. АКУСТООПТИЧНА ВЗАЄМОДІЯ З ВРАХУВАННЯМ ЕЛІПТИЧНОСТІ ОПТИЧНИХ ВЛАСНИХ ХВИЛЬ	240
5.1. Кристали $\alpha\text{-SiO}_2$	241
5.2. Кристали $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}$	254
5.3. Кристали KH_2PO_4	273
Висновки до Розділу 5	282
ОСНОВНІ РЕЗУЛЬТАТИ ТА ВИСНОВКИ	284
СПИСОК ВИКОРИСТАНИХ ДЖЕРЕЛ.....	287

ПЕРЕЛІК УМОВНИХ ПОЗНАЧЕНЬ

АО – акустооптичний;

АХ – акустична хвиля;

QL АХ – квазіпоздовжня акустична хвиля;

PL АХ – чисто поздовжня акустична хвиля;

QT АХ – квазіпоперечна акустична хвиля;

PT АХ – чисто поперечна акустична хвиля;

ПО – пружнооптичний;

КАОЯ – коефіцієнт акустооптичної якості M_2 ;

ЕПОК – ефективний пружнооптичний коефіцієнт;

ФП – фазовий перехід;

ШНВ – ширина на напіввисоті.

ВСТУП

Актуальність теми дослідження. АО дифракція належить до одного з найцікавіших явищ параметричної оптики у зв'язку з різноманітністю проявів цього ефекту [1]. До її проявів можна віднести, зокрема, АО дифракцію Брегга і Рамана-Ната, тангенціальний і колінеарний типи АО дифракції, ізотропний і анізотропний типи АО дифракції тощо. Така різноманітність проявів АО дифракції дозволила успішно використовувати її в широкому колі АО приладів керування оптичним випромінюванням, таких як АО дефлектори оптичного випромінювання, АО модулятори (у тому числі, АО модулятори добротності лазерного випромінювання), АО перестроювані фільтри, інтегрально-оптичні пристрої тощо [2–5]. При цьому, змінюючи частоту АХ в таких приладах, можна забезпечити просторове сканування дифрагованим оптичним променем і зміну його частоти; в свою чергу, змінюючи амплітуду АХ, можна здійснити модуляцію інтенсивності дифрагованого порядку і фазову модуляцію нульового порядку АО дифракції.

Незважаючи на те, що явище АО дифракції було виявлене понад сто років тому [6, 7], певні прояви і характеристики цього явища до цього часу залишаються невивченими. До актуальних питань, які потребують додаткового вивчення та вирішення, належить, насамперед, необхідність збільшення ефективності АО взаємодії, яка, в свою чергу, пов'язана з необхідністю зменшення потужності АХ – а отже, й зниження енергоспоживання АО приладів, нагрівання АО комірок, ймовірності руйнування АО матеріалів тощо. Вочевидь, одночасно вирішити обидві ці проблеми можна лише шляхом оптимізації робочих геометрій АО взаємодії.

Ще до робіт, проведених у рамках цієї дисертації, були запропоновані методи пошуку оптимальних геометрій АО взаємодії, за яких КАОЯ досягає максимального значення. До них слід віднести, зокрема, методи чисельного [8, 9] та аналітичного [10–12] розрахунку КАОЯ для різних геометрій АО взаємодії. Однак, у першому випадку при комп'ютерному чисельному

моделюванні поверхонь КАОЯ неможливо встановити причини впливу того чи іншого параметру АО взаємодії з огляду на відсутність аналітичних виразів для КАОЯ у явному вигляді. В свою чергу, у другому випадку такі аналітичні вирази були отримані без врахування неортогональності власних АХ, яка може суттєво вплинути на результати розрахунків КАОЯ і визначення оптимальних геометрій АО взаємодії. Крім того, в обох цих випадках не враховувався вплив оптичної активності на ЕПОК і КАОЯ.

Слід зауважити, що питанню впливу оптичної активності на АО взаємодію вже приділялась увага дослідників. Так, зокрема, ще в 1974 році *Yano* та *Watanabe* виявили, що врахування оптичної активності в кристалі α - TeO_2 , який є одним з найефективніших АО матеріалів, призводить до збільшення КАОЯ від $(600\text{--}800) \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$, для випадку взаємодії між лінійно-поляризованими оптичними хвилями, до $1200 \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$, для випадку анізотропної АО взаємодії між циркулярно-поляризованими оптичними хвилями, коли падаюча та дифрагована оптичні хвилі поширюються в околі оптичної осі кристалу [13]. В свою чергу, в 2018 році *Kurpeychik* та *Balakshy* виявили, що АО ефективність в оптично активних двовісних кристалах α - HfO_3 також значно зростає при поширенні падаючої та дифрагової оптичних хвиль вздовж напрямків, близьких до однієї з оптичних осей [14]. При цьому *Yano* та *Watanabe* показали, що зростання КАОЯ при взаємодії циркулярно-поляризованих оптичних хвиль пов'язане з циркулярною (еліптичною) поляризацією власних хвиль в оптично активному кристалі α - TeO_2 [13]. Однак це пояснення було неповним – зокрема, залишались нез'ясованими питання, яким чином еліптичність власних оптичних хвиль впливає на ЕПОК, як впливає величина оптичної активності на КАОЯ, яким є кутовий розподіл КАОЯ, чи може індукована оптична активність впливати на КАОЯ тощо. Саме тому вивчення впливу неортогональності АХ та оптичної активності на ефективність АО дифракції є актуальною проблемою.

Мета дослідження полягає у з'ясуванні впливу оптичної активності на АО взаємодію. При цьому для досягнення поставленої мети в процесі дослідження виконувалися наступні **завдання**:

- розгляд оптичної активності та її температурної поведінки в сегнетоелектричних кристалах;
- вивчення магніто-індукованої оптичної активності та температурної поведінки анізотропії оптичних, акустичних і термічних параметрів в лужно-боратних і халькогенідних сполуках;
- аналіз АО взаємодії з врахуванням неортогональності АХ;
- розгляд АО взаємодії за участю циркулярно-поляризованих оптичних хвиль в оптично активних кристалах;
- вивчення АО взаємодії з врахуванням еліптичності оптичних власних хвиль.

Об'єктом дослідження є оптичні, акустичні та термічні властивості АО середовищ.

Предметом дослідження є основні закономірності впливу оптичної активності на АО взаємодію.

Методи дослідження. Під час виконання дисертаційного дослідження використовувались експериментальні методи поляриметрії зображення, однопроменевої поляриметрії, дилатометрії, а також метод Діксона-Коена та ехо-імпульсний метод. При цьому теоретичний аналіз здійснювався з використанням тензорного апарату, симетрійних умов та принципів кристалофізики; методів статистичної фізики; рівнянь оптичної індикатрисы, збуреної зовнішніми полями внаслідок відповідних ефектів параметричної оптики; рівнянь Крістоффеля як основних рівнянь теорії поширення АХ; співвідношень, як визначають ефективність АО взаємодії.

Наукова новизна отриманих результатів полягає у тому, що вперше:

1. На прикладі кристалів $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}$ та $\alpha\text{-SiO}_2$ показано, що наявність оптичної активності суттєво підвищує КАОЯ за рахунок ненульової еліптичності взаємодіючих оптичних власних хвиль. Встановлено, що таке

підвищення відбувається за рахунок того, що еліптичність оптичних власних хвиль наближається до одиниці поблизу оптичної осі, а в співвідношення для ЕПОК можуть включатися додаткові компоненти ПО тензора.

2. На прикладі кристалів KN_2PO_4 , які не володіють природною оптичною активністю при поширенні оптичних хвиль вздовж оптичної осі, продемонстровано, що індукована зовнішнім магнітним полем фарадеївська еліптичність оптичних власних хвиль призводить до суттєвого зростання КАОЯ, що, у свою чергу, свідчить про принципову можливість керування ефективністю АО дифракції за допомогою зовнішнього магнітного поля. При цьому робочі значення напруженості зовнішнього магнітного поля залежать від величини ефективного коефіцієнта Фарадея відповідного АО середовища для певної визначеної геометрії АО дифракції.

3. Запропоновано метод визначення параметрів розмитих сегнетоелектричних ФП, який базується на поділі досліджуваного зразка на нескінченно велику кількість однорідних елементарних комірок, в кожній з яких ФП є нерозмитим та характеризується певною локальною температурою Кюрі; гауссівському розподілі локальних температур Кюрі в межах досліджуваного зразка; описі температурної поведінки термодинамічних параметрів при ФП другого роду в рамках теорії Ландау. Метод передбачає інтерполяцію експериментальної температурної залежності оптичної активності, оберненої діелектричної проникності або оберненого коефіцієнта лінійного електрогіраційного ефекту середнім по ансамблю відповідних локальних температурних залежностей. Метод апробований на прикладі кристалів сімейства германату свинцю.

4. Експериментально досліджено фарадеївську оптичну активність в халькогенідних кристалах Tl_3AsS_4 , AgGaGeS_4 , $\text{AgGaGe}_3\text{Se}_8$, халькогенідних твердих розчинах $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ ($x = 0; 0,02; 0,06; 0,10; 0,15; 0,25$) та лужно-боратних стеклах LiKB_4O_7 , $\text{Li}_2\text{B}_6\text{O}_{10}$, $\text{LiCsB}_6\text{O}_{10}$.

5. Показано, що за наявності лише циркулярного двозаломлення в оптично активних кристалах АО дифракція проявляється у взаємодії між

власними циркулярно-поляризованими оптичними хвилями. На прикладі оптично активних кристалів AgGaS_2 для довжини хвилі ізотропної точки 497,4 нм встановлено, що наявність циркулярного двозаломлення призводить до двох типів АО дифракції – а саме, ізотропної АО дифракції за участю циркулярно-поляризованих оптичних власних хвиль з однаковими знаками обертань їхніх векторів напруженості електричного поля та анізотропної АО дифракції, для якої ці знаки є протилежними. На основі аналізу анізотропії швидкостей АХ та експериментальних досліджень ПО коефіцієнтів кристалів AgGaS_2 визначено кути зносу та неортогональності власних АХ, а також кутову залежність КАОЯ для випадку колінеарної АО взаємодії з циркулярно-поляризованими оптичними власними хвилями на довжині хвилі ізотропної точки.

6. Отримано аналітичні вирази для деформацій, спричинених АХ, з врахуванням неортогональності їх поляризації. На основі аналізу впливу неортогональності поляризацій власних АХ на анізотропію КАОЯ для ізотропних АО взаємодій, що відбуваються в головних кристалографічних площинах кристалів Ti_3AsS_4 , $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ та $\alpha\text{-TeO}_2$, показано, що набір компонент ПО тензора, який визначає ЕПОК, не змінюється при врахуванні або нехтуванні неортогональністю АХ для цих кристалів, а також кристалів, які характеризуються тензорами жорсткості та ПО тензорами з аналогічною структурою. Встановлено, що за цих умов при врахуванні або нехтуванні неортогональністю поляризацій АХ змінюється співвідношення між компонентами ПО тензора, які формують ЕПОК.

7. Експериментально досліджено швидкості АХ в кристалах TlInSe_2 та $\gamma_1\text{-(Ga}_{0,3}\text{In}_{0,7})_2\text{Se}_3$, що дозволило визначити всі компоненти тензорів жорсткості та пружної податливості, кути зносу та неортогональності власних АХ, а також оцінити КАОЯ для випадку ізотропної АО взаємодії.

8. З використанням експериментально отриманих поляриметричних двомірних карт розподілу приростів кута орієнтації оптичної індикатрисы та оптичної різниці фаз для різних температур показано, що політипна структура

АО халькогенідних твердих розчинів $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ ($x = 0; 0,02; 0,06; 0,10; 0,15; 0,25$) проявляється в неоднорідному розподілі параметрів оптичної анізотропії.

Практичне значення отриманих результатів полягає у тому, що:

1. Продемонстровано принципову можливість керування ефективністю АО дифракції за допомогою зовнішнього магнітного поля.

2. Отримані оптимальні геометрії АО взаємодій можуть бути рекомендовані як робочі геометрії для відповідних АО пристроїв.

3. Використаний метод визначення параметрів розмитих сегнетоелектричних ФП має помітні практичні переваги перед іншими методами розрахунку температури Кюрі та критичного індексу параметра порядку з огляду на його обґрунтованість, непотрібність побудови додаткових температурних залежностей, об'єктивність вихідних параметрів та можливість визначення області розмиття сегнетоелектричних ФП.

4. Отримані значення ефективних коефіцієнтів Фарадея халькогенідних кристалів Tl_3AsS_4 й $\text{AgGaGe}_3\text{Se}_8$ та халькогенідних твердих розчинів $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ ($x = 0; 0,02; 0,06; 0,10; 0,15; 0,25$) дозволяють віднести їх до одних з найкращих магнітно-невпорядкованих матеріалів для магнітооптичних застосувань.

Особистий внесок здобувача. Автор запропонував методику визначення параметрів розмитих сегнетоелектричних ФП та процедуру розрахунку ефективних магнітооптичних параметрів у двовісних кристалах; склав, від'юстував та відлагодив експериментальну установку однопроменевої поляриметриї для дослідження температурних залежностей електрогірації й ефекту Фарадея (особисто) та експериментальну установку поляриметриї зображення для дослідження температурних залежностей двовісних розподілів параметрів оптичної анізотропії (спільно з д.ф.-м.н., с.н.с. Ю.В. Васильківим). Дисертант приймав безпосередню участь в проведенні всіх експериментальних досліджень. Поляриметричні експерименти проводилися автором особисто, дилатометричні експерименти – спільно з н.с. А.С. Саєм та к.ф.-м.н, доцентом кафедри оптики Ужгородського національного університету О.О. Гомоннаєм.

Експериментальні дослідження АО дифракції проводились разом з д.ф.-м.н., зав. сектором І.Ю. Мартинюк-Лотоцькою. Обговорення (χ, T) -фазової діаграми відбувалось за участі к.ф.-м.н, доцента кафедри оптики Ужгородського національного університету О.О. Гомонная. Розрахунки за результатами поляриметричних експериментів виконані автором особисто, розрахунки за результатами АО експериментів – спільно з д.ф.-м.н., с.н.с. О.Г. Мись. Теоретичний аналіз деформацій в кристалах, викликаних АХ, в аспекті АО взаємодії проводився автором спільно з д.ф.-м.н., зав. сектором О.М. Крупичем. Формулювання напрямків досліджень та обговорення отриманих результатів здійснювалося разом з д.ф.-м.н., проф. Р.О. Влохом.

Апробація матеріалів дисертації. Матеріали дисертаційної роботи доповідались та обговорювались на наукових семінарах Інституту фізичної оптики імені О.Г. Влоха МОН України, а також на таких конференціях та семінарах:

- International Scientific Workshop "Oxide Materials for Electronic Engineering – fabrication, properties and application OMEE-2009", Lviv Polytechnic National University, Lviv, Ukraine, June 22–26, 2009;
- 2nd Seminar on Properties of Ferroelectric and Superionic Systems, Uzhhorod National University, Uzhhorod, Ukraine, October 19–20, 2009;
- VIII International seminar "Properties of ferroelectric and superionic systems", Uzhhorod National University, Uzhhorod, Ukraine, October 29–30, 2019;
- IX International seminar "Properties of ferroelectric and superionic systems", Uzhhorod National University, Uzhhorod, Ukraine, October 27, 2020;
- X International seminar "Properties of ferroelectric and superionic systems", Uzhhorod National University, Uzhhorod, Ukraine, October 26–27, 2021;
- XI International seminar "Properties of ferroelectric and superionic systems", Uzhhorod National University, Uzhhorod, Ukraine, October 28, 2022;
- XII International seminar "Properties of ferroelectric and superionic systems", Uzhhorod National University, Uzhhorod, Ukraine, April 20, 2023.

Зв'язок роботи з науковими програмами, планами, темами.

Дисертаційна робота виконувалась в Інституті фізичної оптики імені О.Г. Влоха МОН України в рамках наступних науково-дослідних робіт за проектами Міністерства освіти і науки України, зареєстрованих в УкрІНТЕІ: 0109U001063 "Боромісткі матеріали для оптоелектроніки і лазерної техніки. Технологія отримання і властивості" (2009 – 2011 рр.); 0111U001627 "Матеріали для лазерної техніки на основі склоподібних і кристалічних боратних сполук, легованих перехідними та рідкісноземельними елементами" (2011 – 2012 рр.); 0111U010235 "Ефекти параметричної, сингулярної оптики в градієнтних полях з врахуванням просторової дисперсії" (2012 – 2014 рр.); 0117U006454 "Нові ефективні політипічні акустооптичні матеріали на основі халькогенідних кристалів групи TIInS_2 . Оптимізація геометрії акустооптичної взаємодії" (2017 – 2020 рр.) та 0123U101781 "Підвищення ефективності акустооптичної взаємодії для акустооптичного методу керування сучасними високоточними засобами ураження" (2023 – 2025 рр.).

Публікації. Матеріали дисертаційної роботи опубліковано у 36 наукових працях – а саме, в 27 статтях, опублікованих в міжнародних і вітчизняних фахових журналах, які включені до міжнародних наукометричних баз, та в 9 тезах доповідей на наукових конференціях і семінарах.

Структура та обсяг дисертації. Дисертаційна робота складається зі вступу, п'яти розділів з викладом оригінальних результатів, висновків та списку використаних джерел, який нараховує 256 бібліографічних посилань. Обсяг основного тексту дисертаційної роботи становить 11 авторських аркушів, вона містить 30 таблиць та 143 рисунки.

РОЗДІЛ 1. ОПТИЧНА АКТИВНІСТЬ ТА ЇЇ ТЕМПЕРАТУРНА ПОВЕДІНКА В СЕГНЕТОЕЛЕКТРИЧНИХ КРИСТАЛАХ

Сегнетоелектричні кристали сімейства германату свинцю $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}$ (PGO) є АО матеріалами, придатними для використання у відносно низькочастотному ($\sim 10^7$ – 10^8 Гц) акустичному діапазоні. Так, *Ohmachi* та *Uchida*, досліджуючи АО властивості кристалів чистого PGO у сегнетоелектричній фазі, виявили, що згасання поздовжніх АХ з частотою $\Phi < 5 \times 10^7$ Гц стає меншим за 50 дБ/м. При цьому ними було експериментально встановлено, що максимальне значення КАОЯ, $22,2 \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$, досягається у випадку АО взаємодії в площині XY ($Z \parallel c$, $X \parallel a$) падаючої звичайної оптичної хвилі з довжиною $\lambda = 632,8$ нм, яка поширюється в напрямку осі Y, з поздовжньою АХ, яка поширюється в напрямку осі X зі швидкістю $v = 3010$ м/с [15]. Слід зауважити, що автори роботи [15] обмежилися дослідженнями кристалів чистого PGO у полідоменному стані, тоді як саме у монодоменному стані кристали сімейства PGO у сегнетоелектричній фазі є оптично активними. З огляду на вищевикладене у Розділі 1 буде здійснено розгляд оптичної активності в сегнетоелектричних кристалах сімейства PGO, результати якого в подальшому будуть використовуватися в Розділі 5 для аналізу впливу оптичної активності, зумовленої просторовою дисперсією, на ефективність АО дифракції в кристалах чистого PGO.

Сутність просторової дисперсії в загальному випадку полягає в тому, що у всіх конденсованих середовищах (зокрема, у кристалах) вектор електричної поляризації $\mathbf{P}(\mathbf{r})$ визначається значеннями вектора напруженості електричного поля $\mathbf{E}(\mathbf{r})$ не лише у тій самій точці $\mathbf{r}(x_1, x_2, x_3)$, але й в околі цієї точки. Якщо електричне поле є однорідним, значення його напруженості в околі точки $\mathbf{r}$ є такими ж самими, як й в самій точці $\mathbf{r}$ – тобто, просторова дисперсія в такому випадку не проявляється. З огляду на це просторову дисперсію можна трактувати як залежність вектора електричної поляризації $\mathbf{P}$ не тільки від самого вектора напруженості електричного поля $\mathbf{E}$, але й від його просторових

похідних [16]. Обмежуючись першими членами відповідного розкладу Тейлора, отримуємо, що

$$P_i = \alpha_{ij} E_j + \beta_{ijk} \frac{\partial E_j}{\partial x_k}. \quad (1.1)$$

В кристалах, де тензор β_{ijk} відмінний від нуля, проявляється просторова дисперсія першого порядку – такі кристали називаються оптично активними (гіротропними).

Слід зауважити, що у кристалооптиці замість співвідношення (1.1) зазвичай розглядається залежність вектора напруженості електричного поля $\mathbf{E}(\mathbf{r})$ від вектора електричної індукції $\mathbf{D}(\mathbf{r})$ [16]:

$$E_i = \eta_{ij} D_j + \mu_{ijk} \frac{\partial D_j}{\partial x_k}. \quad (1.2)$$

Оскільки для монохроматичної оптичної хвилі з хвильовим вектором $\mathbf{k}$ має місце співвідношення $\partial \mathbf{D} / \partial \mathbf{r} = i \mathbf{D} \mathbf{k}$, формула (1.2) може бути записана у вигляді ($\varepsilon_0 = 8,854 \times 10^{-12}$ Ф/м – електрична стала)

$$E_j = (\eta_{jl} + i \mu_{jlm} k_m) D_l = \varepsilon_0^{-1} B_{jl} D_l = \varepsilon_0^{-1} (B_{jl}^0 + \Delta B_{jl}) D_l, \quad (1.3)$$

де $B_{jl}^0 = \varepsilon_0 \eta_{jl}$ – компоненти тензора діелектричної непроникувості (оптичних поляризаційних констант) $\mathbf{B}$ за відсутності просторової дисперсії [16]. Як можна бачити, внесок $\Delta B_{jl} = i \varepsilon_0 \mu_{jlm} k_m$ до компонент цього тензора, зумовлений просторовою дисперсією першого порядку, є чисто уявним.

В області оптичної прозорості певного визначеного кристалу тензор $\boldsymbol{\eta}$ є ермітовим: дійсна частина цього тензора є симетричною, уявна частина – антисиметричною [16]. З огляду на це тензор $\boldsymbol{\mu}$ є антисиметричним по перших двох індексах – тобто, володіє внутрішньою симетрією $\{V^2\}V$. Враховуючи

співвідношення дуальності $\{V^2\}V \sim \varepsilon V^2$, оптична активність в кристалах може бути описана за допомогою тензора гірації $\mathbf{g}$, що є аксіальним тензором другого рангу з внутрішньою симетрією εV^2 та пов'язаний з тензором μ як

$$\frac{2\pi}{\lambda} \mu_{ijm} = \delta_{ijl} g_{lm}, \quad (1.4)$$

де δ – одиничний антисиметричний тензор Леві-Чівіта; λ – довжина оптичної хвилі в середовищі. Таким чином, рівняння (1.3) може бути записано у вигляді

$$E_j = \varepsilon_0^{-1} (B_{jn}^0 + i \delta_{jnl} g_{lk} m_k) D_n, \quad (1.5)$$

де $\mathbf{m}$ – одиничний вектор хвильової нормалі.

У матеріальному середовищі, яке характеризується рівнянням (1.5), напрямку, в якому нормальна складова тензора гірації відмінна від нуля, можуть поширюватися дві оптичні хвилі, які в загальному випадку є еліптично поляризованими. При цьому їхні еліпси поляризації мають однакові еліптичності (тобто, відношення малих осей до великих осей), але повернені один щодо іншого на 90° та обходяться у протилежних напрямках [16]. В загальному випадку ці еліптичності χ визначаються співвідношенням [17]

$$\chi = \frac{n_{02}^2 - n_{01}^2 - ((n_{02}^2 - n_{01}^2)^2 + 4G^2)^{1/2}}{2G} \approx \frac{G}{n_{02}^2 - n_{01}^2}, \quad (1.6)$$

де n_{01} , n_{02} – показники заломлення оптичних хвиль у напрямку одиничного вектора хвильової нормалі $\mathbf{m}$ за умови відсутності просторової дисперсії ($n_{02} \geq n_{01}$); G – скалярний параметр гірації, який визначається співвідношенням

$$G = \mathbf{m} \mathbf{g} \mathbf{m}. \quad (1.7)$$

Слід зауважити, що, оскільки скалярний параметр гірації повністю визначається симетричною частиною тензора гірації, при розгляді поляризації оптичних хвиль в кристалах тензор гірації можна вважати симетричним [16].

Вздовж оптичних осей оптично активних кристалів поширюються циркулярно-поляризовані оптичні хвилі, еліптичність яких дорівнює одиниці. В свою чергу, якщо лінійне двозаломлення оптично активного кристалу є достатньо великим, еліптичність оптичних хвиль швидко зменшується з відхиленням хвильової нормалі від оптичної осі цього кристалу.

Таким чином, еліптично-поляризовані оптичні хвилі, які поширюються в двозаломлюючих оптично активних кристалах, у переважній більшості напрямків поширення є близькими до лінійно-поляризованих оптичних хвиль. З іншого боку, в оптично активних кристалах кубічної сингонії та ізотропних тілах всі оптичні хвилі є циркулярно-поляризованими [16].

При нормальному падінні лінійно-поляризованої оптичної хвилі з довжиною λ на прозору плоскопаралельну пластинку з товщиною d , вирізану з одновісного оптично активного кристалу зі звичайним показником заломлення n_0 перпендикулярно до його оптичної осі, відбувається її розщеплення на дві циркулярно-поляризовані оптичні хвилі рівної інтенсивності. Пройшовши цю кристалічну пластинку, зазначені циркулярно-поляризовані оптичні хвилі в результаті інтерференції знову зіллються в одну лінійно-поляризовану оптичну хвилю, азимут площини поляризації якої утворює деякий кут φ з азимутом площини поляризації лінійно-поляризованої оптичної хвилі до її падіння на кристал [16]. При цьому оптична активність такого кристалу характеризується параметром

$$\rho = \frac{\varphi}{d} = \frac{\pi n_0^3 g_{33}}{\lambda}. \quad (1.8)$$

Необхідно відзначити, що оптична активність може бути не лише природною, але й індукованою. При цьому індукована оптична активність

являє собою появу або зміну оптичної активності під дією тих чи інших зовнішніх впливів.

Так, зокрема, лінійний електрогіраційний ефект полягає у такому впливі зовнішнього електричного поля з напруженістю $\mathbf{E}$ на оптичну активність кристалу, за якого внесок до тензора гірації цього кристалу визначається співвідношенням

$$\Delta g_{ij} = \gamma_{ijk} E_k, \quad (1.9)$$

де γ_{ijk} – компоненти тензора лінійного електрогіраційного ефекту γ , який є аксіальним тензором третього рангу з внутрішньою симетрією $\epsilon[V^2]V$ [16].

З огляду на симетрійні властивості тензора $\mathbf{g}$, природну оптичну активність можуть виявляти лише кристали нецентросиметричних класів; натомість симетрійні властивості тензора γ зумовлюють неможливість лінійного електрогіраційного ефекту в ізотропних тілах. При цьому, вочевидь, для дослідження оптичної активності, зумовленої лінійною електрогірацією, найбільш доцільно обирати такі кристали, в яких природна оптична активність є забороненою.

Крім того, слід зауважити, що при сегнетоелектричних ФП електрогіраційний ефект може індукуватися спонтанною електричною поляризацією $\mathbf{P}_S$ [18]. В такому випадку відповідний внесок до тензора гірації сегнетоелектричного кристалу визначається співвідношенням

$$\Delta g_{ij} = \tilde{\gamma}_{ijk} (P_S)_k, \quad (1.10)$$

де $\tilde{\gamma}_{ijk}$ – компоненти тензора спонтанної електрогірації (аксіального тензора третього рангу) $\tilde{\gamma}$.

Різноманітність причин виникнення оптичної активності у кристалічних середовищах, розглянута вище, є, поряд з АО властивостями таких кристалічних середовищ, одним з визначальних чинників використання в цій

дисертаційній роботі тих чи інших кристалів для дослідження оптичної активності з метою подальшого з'ясування її впливу на АО взаємодію. До таких кристалів належать, зокрема, кристали германату свинцю $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}$ (PGO), які є власними сегнетоелектриками, що демонструють ФП при температурі $T_C \approx 450 \text{ K}$ [19]. Ці кристали належать до гексагональної точкової групи симетрії $\bar{6}$ вище температури Кюрі; в свою чергу, нижче цієї температури інверсійна вісь симетрії зникає та симетрія цих кристалів понижується до точкової групи симетрії 3.

Сегнетоелектричні властивості кристалів PGO були виявлені більше 50 років тому. Однак, незважаючи на багаторічну історію їхніх досліджень, кристали PGO все ще привертають значну увагу науковців [20–24]. Це зумовлено тим, що, хоча кількість відомих полярних діелектриків перевищує мільйон [21], кристали PGO залишаються, мабуть, унікальними матеріалами, де при ФП відбувається зміна симетрії $\bar{6} \leftrightarrow 3$, що є дуже зручним з точки зору дослідження оптичної активності. Й дійсно, кут повороту площини поляризації світла можна безпосередньо виміряти для світла, що поширюється вздовж оптичної осі, без супутнього лінійного оптичного двозаломлення. В свою чергу, прикладання зовнішнього електричного поля вздовж оптичної осі також не викликає лінійного двозаломлення в цьому напрямку.

Нижче точки Кюрі кристал PGO стає оптично активним внаслідок ефекту, який має назву "спонтанна електрогірація" [25]. Температурна поведінка оптичної активності у власних сегнетоелектриках повинна відображати поведінку параметра порядку – а саме, поведінку спонтанної електричної поляризації [26]. Тому спонтанна електрогірація демонструє таку ж саму температурну поведінку, що й спонтанна електрична поляризація. Крім того, у випадку кристалів PGO спонтанна електрична поляризація як параметр порядку ФП лінійно пов'язана з оптичною активністю, що виникає нижче температури T_C [19]. При цьому основний внесок у спонтанну електричну поляризацію вносить зміщення іонів Pb^{2+} вздовж осі c , тоді як зміна знаку оптичної активності, викликаної спонтанною електрогірацією, при

переполаризації доменів зумовлена обертанням тетраедрів $(\text{GeO}_4)^{4-}$. Іншими словами, коли іони Pb^{2+} відходять від тетраедрної призми, іони кисню також зазнають зсуву, що викликає скручування тетраедрів $(\text{GeO}_4)^{4-}$ [27].

Таким чином, в кристалах PGO дослідження температурної залежності оптичної активності, викликаної спонтанною електрогірацією, дозволяють отримати значну кількість характеристик ФП. В свою чергу, ефект індукованої електрогірації, який полягає у зміні оптичної активності кристалів під дією зовнішнього електричного поля, також зручно досліджувати, використовуючи кристали PGO, оскільки в них індуковану електрогірацію, як вже зазначалося вище, можна вивчати без впливу будь-якого супутнього лінійного двозаломлення.

Кристали PGO є основою для великого сімейства твердих розчинів та інших структурно-модифікованих сполук [25]. Причому заміна хімічних елементів в кристалах PGO або їхнє легування є достатньо простим процесом з технологічної точки зору. З огляду на це кристали сімейства PGO можуть слугувати модельними об'єктами при аналізі механізмів та основних закономірностей виникнення та прояву ефектів оптичної активності – зокрема, в аспекті їхнього впливу на АО взаємодію.

Крім того, пошук твердих розчинів або легованих кристалів з високими значеннями електрогіраційного ефекту все ще є цікавим з точки зору застосування нових електрогіраційних матеріалів для керування оптичним випромінюванням. При цьому визначальним аспектом, який зумовлює інтерес до вивчення кристалів сімейства PGO, є прийнятні електрогіраційні характеристики кристалів чистого PGO як основної сполуки, що свідчить про принципову можливість практичного застосування кристалів сімейства PGO в електрично-керованих оптичних та оптоелектронних пристроях [28, 29]. У цьому відношенні можна сподіватися, що легування кристалів чистого PGO тими чи іншими хімічними елементами може призвести до ще кращих електрогіраційних параметрів й, таким чином, до ще нижчої робочої напруги. Крім того, таке легування може спричинити зниження температури ФП, що

буде корисним, зокрема, при застосуванні кристалів сімейства PGO в блоках сегнетоелектричної оперативної пам'яті (FeRAM).

1.1. Методика експериментальних досліджень оптичної активності

Дослідження електрогірації в кристалах сімейства PGO полягає у вивченні таких оптичних властивостей, як оптична активність, викликана в сегнетоелектричній фазі спонтанною електричною поляризацією $\mathbf{P}_s$ за відсутності зовнішнього електричного поля (спонтанна електрогірація), та зміна оптичної активності, індукована зовнішнім електричним полем з напруженістю $\mathbf{E}$ як у сегнетоелектричній, так в парелектричній фазах (індукована електрогірація). Для цього використовується однопроменевий поляриметр (Рисунок 1.1), в якому випромінювання He-Ne лазера (1) з довжиною хвилі $\lambda = 632,8$ нм проходить через вхідний лінійний поляризатор (2) та скеровується на досліджуваній зразок, розміщений між прозорими електродами (4) у термостаті (3), в напрямку, паралельному оптичній осі досліджуваного зразка та напрямку прикладання зовнішнього електричного поля з напруженістю $\mathbf{E}$ (тобто, $\mathbf{k} \parallel \mathbf{E}$) [30]. При цьому відповідна орієнтація досліджуваного зразка в термостаті здійснюється шляхом суміщення центру інтерференційної (коноскопичної) картини зі світловим променем.

Після проходження через досліджуваній зразок світловий промінь потрапляє на магнітооптичний модулятор (комірку Фарадея) (8), за допомогою якого в даній установці здійснюється поляризаційна модуляція світла, а після неї проходить через вихідний лінійний поляризатор (аналізатор) (9). Промодульований таким чином світловий промінь на виході з аналізатора (9) перетворюється фотоелектронним помножувачем (10) на змінну напругу, яка подається на осцилограф (11). Вимірювання величин спонтанної та індукованої електрогірації досліджуваного зразка полягає у визначенні значення кута повороту аналізатора, який характеризує орієнтацію площини поляризації вихідного світлового променя, за відсутності й наявності досліджуваного зразка

(спонтанна електрогірація) та за відсутності зовнішнього електричного поля і при різних значеннях й протилежних напрямках вектора напруженості зовнішнього електричного поля E (індукована електрогірація).

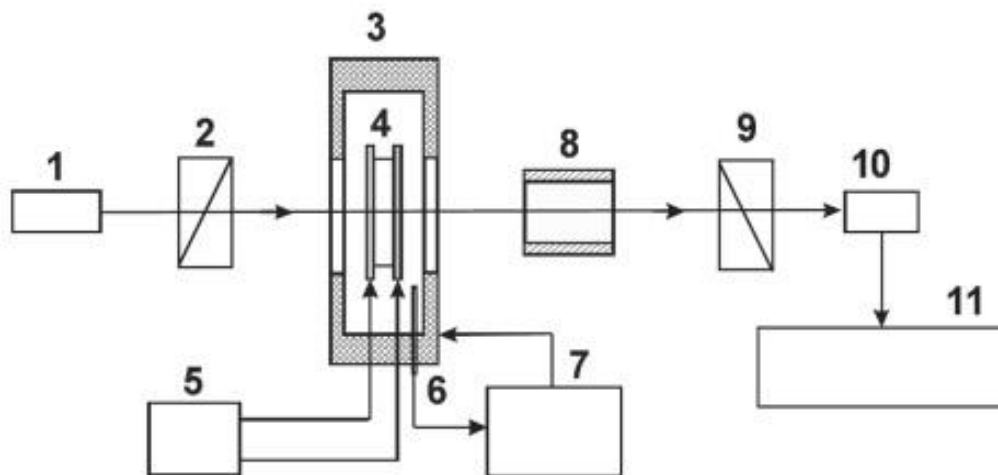


Рисунок 1.1. Схема однопроменевого поляриметра: 1 – He-Ne лазер; 2, 9 – лінійні поляризатори з поворотними пристроями; 3 – термостат; 4 – досліджуваний зразок, розміщений між прозорими електродами; 5 – джерело високої напруги; 6 – датчик температури; 7 – пристрій стабілізації та контролю температури; 8 – магнітооптичний модулятор (комірка Фарадея); 10 – фотоелектронний помножувач; 11 – осцилограф [30].

Зовнішні статичні електричні поля з напруженістю до 10^6 В/м генерувалися джерелом високої напруги (5) та прикладалися до досліджуваних зразків за допомогою скляних пластин, вкритих провідним шаром оксиду олова (прозорих електродів). При цьому для уникнення появи електричного струму між досліджуваним зразком та прозорими електродами між ними вводилися тонкі скляні пластини товщиною $0,15 \times 10^{-3}$ м. Таким чином, електрична напруга між гранями досліджуваного зразка була на 5% нижчою в порівнянні з електричною напругою, поданою на прозорі електроди, що належним чином враховувалося при подальших розрахунках.

Термостат (3), датчик температури (6) й пристрій стабілізації та контролю температури (7) забезпечували керування температурою досліджуваного зразка

та можливість її встановлення на фіксованому рівні з точністю $\pm 0,01$ K.

Досліджувані зразки мали форму пластин товщиною $(5-6) \times 10^{-3}$ м з гранями, перпендикулярними до оптичної осі. Слід зауважити, що внесення домішок в кристали PGO проявляється у різкому збільшенні в них коерцитивного електричного поля, що заважає експериментальному спостереженню петель гістерезису для оптичної активності при кімнатній температурі та ускладнює досягнення кристалами сімейства PGO повністю монодоменого стану. Тому для досягнення насиченого стану спонтанної електричної поляризації досліджувані зразки перед вимірюваннями монодоменолізувалися – а саме, нагрівалися до температур, суттєво вищих за температуру Кюрі T_C , а потім повільно охолоджувалися до кімнатної температури при прикладанні зовнішнього статичного електричного поля вздовж оптичної осі.

Хоча чутливість поляриметричної установки для вимірювання кута повороту площини поляризації світла становила близько $30''$, сумарні похибки були вищими. При цьому похибка визначення величини питомого кута повороту площини поляризації світла (оптичної активності) ρ під час вимірювань температурних залежностей оптичної активності, викликані спонтанною електрогірацією, зумовлювалася насамперед незначною уніполярністю досліджуваних зразків, а також допустимими відхиленнями рівня термостабілізації та термооптичного коефіцієнта. Натомість похибка визначення зміни оптичної активності $\Delta\rho$ під час вимірювань температурних залежностей індукованої електрогірації була більшою з огляду на додатковий внесок допустимих відхилень рівня стабілізації високої напруги. В свою чергу, зазначена похибка зростала при збільшенні температури, оскільки при спільній дії високої температури та високої напруги в цю похибку починали робити внесок певні неоднорідності струмопровідного шару прозорих електродів. З огляду на вищевикладене кінцева точність вимірювання оптичної активності становила близько $50^\circ/\text{м}$.

1.2. Методика визначення параметрів розмитих фазових переходів у кристалах сімейства $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}$ за температурною поведінкою оптичної активності

Спонтанна електрогірація, яка індукується спонтанною електричною поляризацією та завдяки якій кристали PGO стають оптично активними нижче температури Кюрі, описується співвідношенням [25]:

$$g_{33} = \tilde{\gamma}_{333}(P_S)_3, \quad (1.11)$$

де g_{33} – компонента тензора гірації $\mathbf{g}$, $\tilde{\gamma}_{333}$ – компонента тензора спонтанної електрогірації $\tilde{\gamma}$. При цьому спонтанна електрична поляризація $(P_S)_3 \equiv P_S$ являє собою параметр порядку ФП та лінійно пов'язана з оптичною активністю ρ (1.8) [19–26].

Незважаючи на різноманітні знання про фізичні властивості кристалів сімейства PGO, деякі аспекти їхньої критичної поведінки все ще неясні. Насамперед це стосується визначення критичного індексу параметра порядку β , який можна знайти з експериментально отриманої температурної залежності спонтанної електричної поляризації або лінійно пов'язаної з нею оптичної активності:

$$P_S \propto \rho \propto (T_C - T)^\beta. \quad (1.12)$$

Слід зауважити, що у рамках теорії середнього поля Ландау для власних сегнетоелектричних ФП другого роду β має дорівнювати 0,5.

У 1972 році *Iwasaki* та ін. [19] проаналізували експериментальну залежність $P_S = P_S(T)$ для кристалів чистого PGO та виявили, що її поведінка відповідає класичній теорії Ландау (тобто, $P_S \propto (T_C - T)^{0,5}$) лише в діапазоні $T_C - T < 30$ К нижче точки $T_C = 450$ К. Пізніше *Konak* та ін. [31] зазначили, що температурна залежність оптичної активності ρ в кристалах чистого PGO

описується "емпіричним" співвідношенням $\rho \propto (T_C - T)^{0,35}$ в області $T_C - T > 3$ К (при $T_C = 450$ К). Іншими словами, в роботі [31] було показано, що хоча оптична активність ρ й являє собою вторинний параметр порядку ФП, її поведінка суттєво відрізняється від поведінки, передбаченої теорією Ландау. У 1999 році *Trubitsyn* та ін. [32] показали, що параметр розщеплення ΔB однієї зі спектральних ліній ЕПР зондуючих іонів Gd^{3+} в кристалах чистого PGO поводить як "локальний" параметр порядку ФП відповідно до теорії Ландау ($\Delta B \propto (T_C - T)^{0,5}$) у досить широкому діапазоні температур ($T_C - T < 150$ К) нижче температури Кюрі $T_C = 451,4$ К).

У 2005 році *Shaldin* та ін. [33] досліджували температурну поведінку спонтанної електричної поляризації для кристалів чистого PGO в діапазоні температур 4,2–300 К. Їхні експериментальні результати та наявні на той час літературні дані дозволили їм виявити зміни в критичній поведінці кристалів PGO від дипольного типу ($\beta = 0,5$) до псевдоквадрупольного типу ($\beta = 0,25$) при зростанні температури від 290 до $T_C = 450$ К. Це проявлялося у зміні поведінки параметра $(P_S)^{1/\beta}$ як функції $(T_C - T)$ при $(T_C - T) = 50$ К.

У 2006 році *Miga* та ін. [34] отримали значення критичного індексу $\beta = 0,51 \pm 0,03$ та температури Кюрі $T_C = 452,58 \pm 0,03$ К для кристалів чистого PGO, використовуючи експериментальну температурну залежність залишкової електричної поляризації P_R , зняту після витримування досліджуваного зразка в електричному полі з напруженістю 10^6 В/м, та інтерполяцію цієї залежності за формулою $P_R \propto (T_C - T)^\beta$ в температурній області $T_C - T < 12$ К.

Й, нарешті, у 2008 році *Кушнір* та ін. [35] здійснили оптичні дослідження флуктуацій параметра порядку для твердих розчинів $Pb_5(Ge_{1-x}Si_x)_3O_{11}$ (PGSO) і $(Pb_{1-x}Ba_x)_5Ge_3O_{11}$ (PBaGO). При цьому в роботі [35] було продемонстровано, що для знаходження валідних значень критичних індексів β необхідно виключати з аналізу області сильних флуктуацій поблизу ФП. В свою чергу, температурна область, де доцільно виконувати розрахунки β , оцінювалася в роботі [35] як $G \leq (T_C - T) \leq G^{1/3}$, де G – число Гінзбурга. Так, наприклад, враховуючи, що для кристалів чистого PGO $G = 0,01$ та $T_C = 447$ К, можна отримати, що для цих

кристалів зазначена область становить $4,5 \text{ K} \leq (T_C - T) \leq 96,3 \text{ K}$. В свою чергу, значення β , яке можна визначити як нахил лінійної частини залежності

$$\ln \rho \propto \beta \ln(T_C - T), \quad (1.13)$$

дорівнює 0,44. Натомість значення β для твердих розчинів PGSO та PBaGO ще більш суттєво відхиляються від класичного значення $\beta = 0,5$.

При розгляді методів, доступних для визначення критичних індексів параметрів порядку ФП, доцільно обмежитися підходами, які використовують залежності, подібні до рівняння (1.13), для обчислення критичних індексів β . Це пояснюється тим, що інші підходи насправді визначають лише температурну область, де спонтанна електрична поляризація або той чи інший вторинний параметр порядку ФП пропорційні $(T_C - T)^{0,5}$. Як можна бачити з рівняння (1.13), для таких методів суттєво важливим є точне визначення температури Кюрі T_C .

У рамках оптичних досліджень температуру Кюрі зазвичай обирають як точку, де оптична активність ρ повністю зникає в процесі збільшення температури досліджуваного зразка (надалі такий підхід буде позначатися як метод I). З іншого боку, у роботі [35] параметр T_C визначається як точка мінімуму температурної залежності похідної $d\rho^2/dT$ (надалі такий підхід буде позначатися як метод II).

В загальному випадку розмитий сегнетоелектричний ФП може бути визначений як сегнетоелектричний ФП, що відбувається у певному, більш-менш вираженому, температурному діапазоні – області розмиття [36]. Коли сегнетоелектричний ФП є розмитим, температуру Кюрі не можна визначити однозначно. Це може призвести до значних помилок у визначенні критичного індексу β , навіть якщо з розрахунків, описаних рівнянням (1.13), виключити температурну область поблизу ФП.

Неоднозначність у виборі температури Кюрі можна проілюструвати на прикладі розмитого сегнетоелектричного ФП в кристалах PGO, легованих

0,14 ваг. % іонів Cu^{2+} (PGO:Cu_140), який вивчався в роботі [37]. Як можна бачити (Рисунок 1.2), температурні залежності оптичної активності ρ в легованих кристалах PGO:Cu_140 мають достатньо довгий "хвіст", що вказує на наявність розмитого сегнетоелектричного ФП.

При використанні методу I отримуємо значення температури Кюрі $T_C(I) = 460,8 \text{ K}$ (Рисунок 1.3, незаповнені кола). Тоді величина критичного індексу $\beta(I)$, визначена за допомогою рівняння (1.13), дорівнює 0,47 (Рисунок 1.4, незаповнені кола та штрих-пунктирна пряма). З іншого боку, метод II дає значення температури Кюрі $T_C(II) = 432,0 \text{ K}$ (Рисунок 1.3, заповнені кола) та критичного індексу $\beta(II) = 0,34$ (Рисунок 1.4, заповнені кола та пунктирна пряма). Вочевидь, вищевказані розрахунки здійснюються в температурних діапазонах, де залежність $\ln \rho$ від $\ln(T_C - T)$ є лінійною. Таким чином, значення критичних індексів β , отримані після вибору температури Кюрі T_C за допомогою методів I та II, суттєво відрізняються між собою.

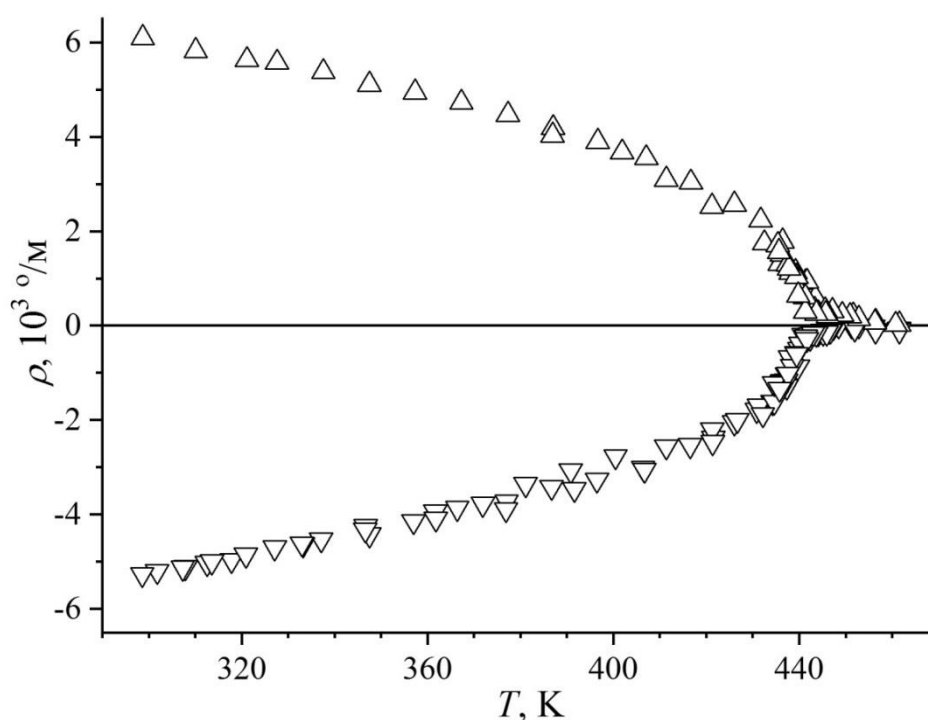


Рисунок 1.2. Температурні залежності оптичної активності ρ для енантіоморфних доменів легованих кристалів PGO:Cu_140 [37].

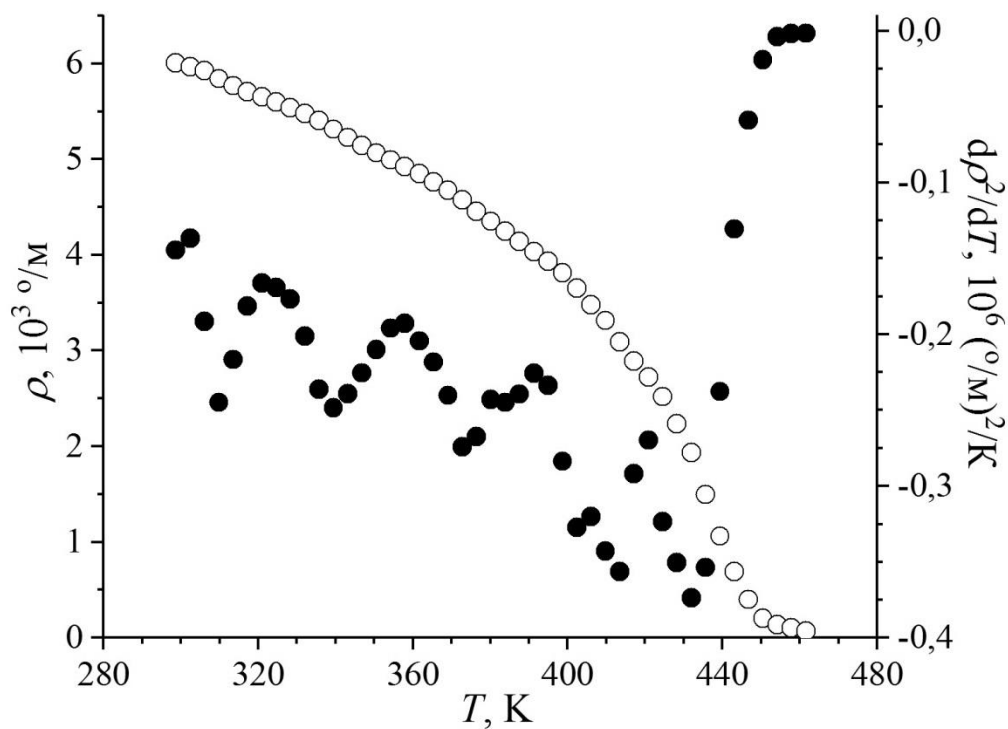


Рисунок 1.3. Згладжені температурні залежності оптичної активності ρ (незаповнені кола) та похідної $d\rho^2/dT$ (заповнені кола) для легованих кристалів PGO:Cu_140 [38].

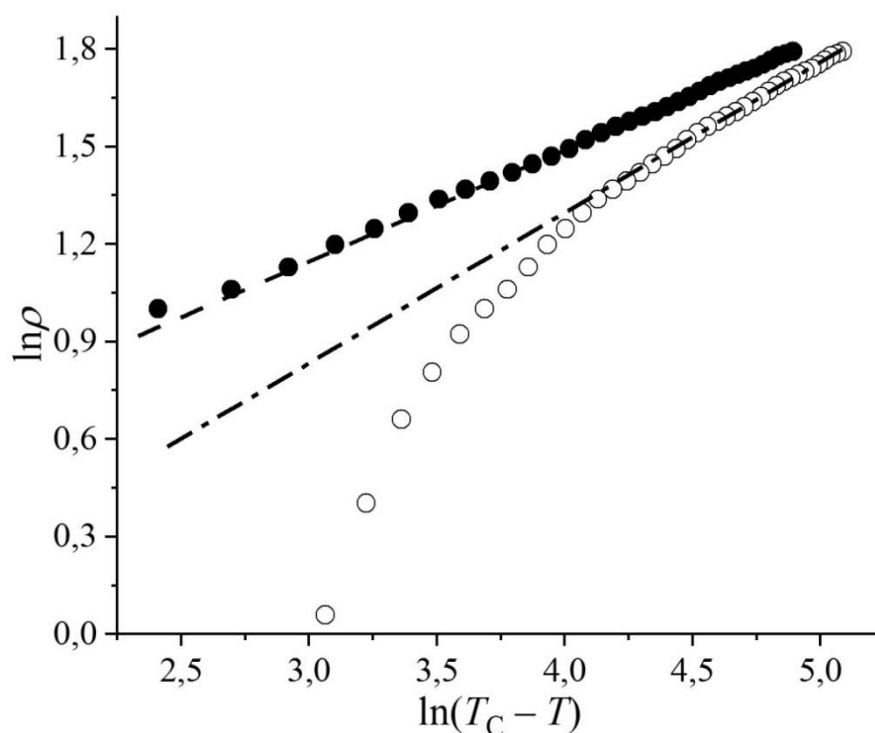


Рисунок 1.4. Залежності $\ln \rho$ від $\ln(T_C - T)$ для різних методів вибору точки T_C в легованих кристалах PGO:Cu_140: метод I – незаповнені кола, штрих-пунктирна пряма; метод II – заповнені кола, пунктирна пряма [38].

Методика визначення параметрів розмитих сегнетоелектричних ФП, використана нижче, базується на [38]:

- узагальненій моделі розмитих ФП, згідно з якою досліджуваний зразок можна розділити на нескінченно велику кількість однорідних елементарних комірок так, щоб ФП у кожній з цих комірок був нерозмитим та характеризувався певною локальною температурою Кюрі [36];
- гауссівському розподілі локальних температур Кюрі в межах досліджуваного зразка (використання такого розподілу є валідним з огляду на центральну граничну теорему), де роль математичного очікування відіграє так звана середня температура Кюрі Θ , яка приймається за точку ФП та характеризує стан, коли половина досліджуваного зразка зазнає ФП [39];
- загальному співвідношенні для параметра порядку власного сегнетоелектричного ФП другого роду (1.12), яке записується для кожної з однорідних елементарних комірок.

При цьому припускається, що розмиття ФП спричинене деякою скалярною неоднорідністю – наприклад, скалярними дефектами, які не змінюють симетрію кристалічної матриці та впливають лише на розподіл температури Кюрі в досліджуваному зразку.

Нехай область розмиття ФП ΔT містить $N \in \{2, 3, 4, \dots\}$ локальних температур Кюрі T_{Ci} ($i = 1, \dots, N$), які визначаються наступним чином:

$$\begin{aligned} \Delta T = T_{CN} - T_{C1}; \quad \Theta &= \frac{T_{C1} + T_{CN}}{2} = T_{C1} + \frac{\Delta T}{2} = T_{CN} - \frac{\Delta T}{2}; \\ T_{Ci} &= T_{CN} - \frac{N-i}{N-1} \Delta T = \Theta + \frac{2i-N-1}{N} \Delta T. \end{aligned} \quad (1.14)$$

Вочевидь, точність цієї математичної моделі зростає зі збільшенням параметра N .

Гауссівський розподіл локальних температур Кюрі $\varphi(T_{Ci})$ в межах досліджуваного зразка повинен задовольняти граничним умовам

$$\lim_{T_{Ci} \rightarrow T_{C1} + 0} \varphi(T_{Ci}) = \lim_{T_{Ci} \rightarrow T_{CN} - 0} \varphi(T_{Ci}) = 0 \quad (1.15)$$

та умовам нормування

$$\sum_{i=1}^N \varphi(T_{Ci}) = 1. \quad (1.16)$$

Враховуючи формули (1.15) та (1.16), співвідношення для $\varphi(T_{Ci})$ можна записати як

$$\varphi(T_{Ci}) = \frac{1}{\omega_N} \left(\exp \left(-\frac{1}{2\eta_N} \left(\frac{1}{2} - \frac{N-i}{N-1} \right)^2 \right) - \exp \left(-\frac{1}{8\eta_N} \right) \right), \quad (1.17)$$

де величини

$$\begin{aligned} \eta_N &= \frac{1}{N-1} \sum_{i=1}^N \left(\frac{1}{2} - \frac{N-i}{N-1} \right)^2, \\ \omega_N &= \sum_{i=1}^N \exp \left(-\frac{1}{2\eta_N} \left(\frac{1}{2} - \frac{N-i}{N-1} \right)^2 \right) - N \exp \left(-\frac{1}{8\eta_N} \right) \end{aligned} \quad (1.18)$$

є константами для певного визначеного значення N .

Враховуючи співвідношення (1.12) та (1.14), можна знайти температурну залежність оптичної активності ρ_i для певної визначеної однорідної елементарної комірки з локальною температурою Кюрі T_{Ci}

$$\rho_i = A \begin{cases} \left(T_{CN} - \frac{N-i}{N-1} \Delta T - T \right)^\beta; & T < T_{Ci}, \\ 0; & T \geq T_{Ci} \end{cases} \quad (1.19)$$

де коефіцієнт пропорційності A є однаковим для всіх однорідних елементарних

комірок досліджуваного зразка. Надалі, використовуючи рівняння (1.17) та (1.19), можна отримати температурну залежність оптичної активності ρ для всього досліджуваного зразка як середнє по ансамблю локальних значень ρ_i :

$$\rho = \sum_{i=1}^N \rho_i \varphi(T_{Ci}). \quad (1.20)$$

Зі співвідношення (1.20) випливає, що при $T \geq T_{CN}$ виконується рівність $\rho = 0$. Іншими словами, параметр T_{CN} є температурою, за якої оптична активність ρ , індукована спонтанною електричною поляризацією, повністю зникає в процесі нагрівання досліджуваного зразка. При цьому параметр T_{CN} збігається з температурою Кюрі, знайденою при використанні методу I (тобто, $T_{CN} \equiv T_C(I)$). Тому температуру T_{CN} можна знайти безпосередньо з експериментальної залежності $\rho = \rho(T)$.

Отже, запропонована методика визначення параметрів розмитих сегнетоелектричних ФП полягає в інтерполяції температурної залежності оптичної активності ρ співвідношенням (1.20) для певних визначених констант T_{CN} , N , η_N та ω_N . Це дає можливість визначити параметри ΔT та β , які забезпечують найкраще узгодження інтерполяційної кривої з експериментальною температурною залежністю. При цьому ступінь інтерполяції характеризується коефіцієнтом детермінації R^2 . Вочевидь, узгодження запропонованої методики з теорією середнього поля Ландау досягається тоді, коли параметр β приймається за константу, що дорівнює 0,5.

Так, наприклад, при застосуванні цієї методики до кристалів чистого PGO отримуються параметри розмитого сегнетоелектричного ФП $\Delta T = 5,47 \pm 0,42$ К, $\beta = 0,40 \pm 0,01$ та $\Theta = 449,4$ К з коефіцієнтом детермінації $R^2 = 0,998$. Як можна бачити, отримані результати свідчать про те, що на практиці ФП у кристалах чистого PGO також є дещо розмитим. Це є визначальною причиною розбіжностей значень T_C та β для кристалів чистого PGO, отриманих різними дослідниками.

Слід зауважити, що ця методика може застосовуватися також й для визначення параметрів розмитих сегнетоелектричних ФП з експериментальних температурних залежностей діелектричних та електрогіраційних параметрів сегнетоелектричних кристалів. Для цього необхідно записати закон Кюрі-Вейса для однорідної елементарної комірки з локальною температурою Кюрі T_{Ci} як

$$\varepsilon_i^{-1}(\gamma_i^{-1}) = A \begin{cases} 2 \left(\Theta + \frac{2i - N - 1}{N} \Delta T - T \right); & T < T_{Ci} \\ \left(T - \Theta - \frac{2i - N - 1}{N} \Delta T \right); & T > T_{Ci} \end{cases}, \quad (1.21)$$

де ε_i^{-1} – обернена діелектрична проникність; γ_i^{-1} – обернений коефіцієнт лінійного електрогіраційного ефекту; $A(\varepsilon_i^{-1}) = 2\alpha$; $A(\gamma_i^{-1}) = 2\alpha / (\varepsilon_0 \tilde{\gamma})$; α – коефіцієнт термодинамічного потенціалу

$$F = F_0 + \alpha(T - T_{Ci})P_S^2 + \frac{1}{2}F_4P_S^4 + \frac{1}{3}F_6P_S^6 + \dots, \quad (1.22)$$

який не залежить від P_S та T [39]. Надалі, з використанням співвідношень (1.17) та (1.21), температурна залежність $\varepsilon^{-1}(\gamma^{-1})$ для всього досліджуваного зразка визначається як середнє по ансамблю локальних значень $\varepsilon_i^{-1}(\gamma_i^{-1})$:

$$\varepsilon^{-1}(\gamma^{-1}) = \sum_{i=1}^N \varepsilon_i^{-1}(\gamma_i^{-1}) \varphi(T_{Ci}). \quad (1.23)$$

Отже, в цьому випадку температурна залежність $\varepsilon^{-1}(\gamma^{-1})$ в сегнетоелектричній фазі інтерполюється співвідношенням (1.23) для певних визначених констант N , η_N та ω_N . В результаті такої інтерполяції визначаються параметри Θ , ΔT та α , які забезпечують найкраще узгодження інтерполяційної кривої з експериментальною температурною залежністю.

1.3. Аналіз оптичної активності в кристалах сімейства $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}$

1.3.1. Кристали $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}$, леговані Cu

Вибір кристалів PGO, легованих іонами Cu^{2+} (PGO:Cu), в якості об'єктів дослідження зумовлений не лише необхідністю комплексної перевірки запропонованої методики визначення параметрів розмитих сегнетоелектричних ФП, яка повинна передбачати оцінку ступеня узгодженості параметрів Θ та ΔT , отриманих за інтерполяційними формулами (1.20) та (1.23), але й тим особливим місцем, яке леговані кристали PGO:Cu займають серед кристалів сімейства PGO. Й дійсно, до останнього часу дослідження легованих кристалів сімейства PGO зазвичай зосереджувались лише на сполуках, у яких іон Pb^{2+} заміщувався іонами, які мають майже однаковий з ним іонний радіус. Так, наприклад, іонні радіуси R заміщень в твердих розчинах $(\text{Pb}_{1-x}\text{Bi}_x)_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}$ та $(\text{Pb}_{1-x}\text{Ba}_x)_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}$ становлять $R(\text{Bi}^{3+}) = 0,120$ нм та $R(\text{Ba}^{2+}) = 0,138$ нм відповідно, тоді як $R(\text{Pb}^{2+}) = 0,132$ нм. В такому випадку можна припустити, що іони Bi^{3+} та Ba^{2+} належним чином заміщують іони Pb^{2+} в кристалічній ґратці [18, 19, 40–42]. Натомість іони Cu^{2+} в легованих кристалах PGO:Cu, згідно з результатами їх досліджень методом електронного парамагнітного резонансу, займають три децентричні положення, зміщені в ґратці від власних місць розташування іонів Pb^{2+} . Іншими словами, іони Cu^{2+} в легованих кристалах PGO:Cu зміщені в площині, яка є нормальною до осі третього порядку, через істотну різницю між радіусами іонів Cu^{2+} та Pb^{2+} , оскільки $R(\text{Cu}^{2+}) = 0,070$ нм [43]. Вищевказані обставини зумовлюють важливість з'ясування впливу такого іонного заміщення на оптичну активність в легованих кристалах PGO:Cu, а також, з огляду на їхній зелений колір, вивчення дисперсій оптичного поглинання та оптичної активності в цих легованих кристалах.

Дослідження легованих кристалів $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}:\text{Cu}^{2+}$ (PGO:Cu) проводилися на монодомених зразках із концентраціями іонів Cu^{2+} x , які дорівнюють 0,10 (PGO:Cu_100); 0,14 (PGO:Cu_140); 0,20 (PGO:Cu_200) та 0,50 (PGO:Cu_500)

ваг. % [37, 44, 45].

В результаті інтерполяції температурної залежності оптичної активності ρ для легованих кристалів PGO:Cu_140 за формулою (1.20) отримуються параметри розмитого сегнетоелектричного ФП $\Delta T = 40,42 \pm 1,93$ К, $\beta = 0,38 \pm 0,02$ та $\Theta = 440,6$ К з коефіцієнтом детермінації $R^2 = 0,990$.

Аналізуючи залежності зміни оптичної активності $\Delta\rho$ від напруженості зовнішнього електричного поля E_3 для легованих кристалів PGO:Cu_140 при різних температурах в околі точки ФП (Рисунок 1.5), можна побачити, що ці залежності утворюють петлі гістерезису, які внаслідок зменшення коерцитивного поля при нагріванні звужуються в процесі наближення до температури ФП, тоді як нахил їхніх лінійних частин при цьому зростає [37].

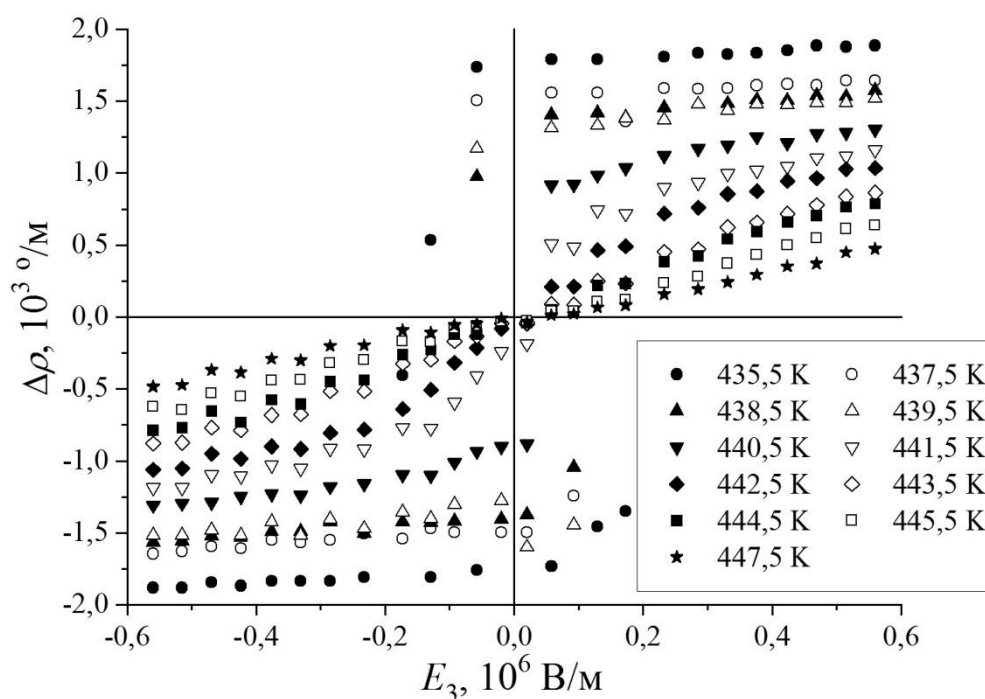


Рисунок 1.5. Залежність зміни оптичної активності $\Delta\rho$ від напруженості зовнішнього електричного поля E_3 для легованих кристалів PGO:Cu_140 в діапазоні температур 435,5–447,5 К ($\lambda = 632,8$ нм) [37].

Причому в загальному випадку величина такого нахилу $J(T)$ визначається співвідношенням

$$J(T) = \left. \frac{\partial(\Delta\rho(E_3, T))}{\partial E_3} \right|_{E_3=0}. \quad (1.24)$$

Як можна бачити, значення $\Theta = 440,6$ К, отримане в результаті інтерполяції температурної залежності оптичної активності ρ за формулою (1.20), достатньо добре узгоджується з температурою $T_E = 444,5$ К, за якої нахил лінійної частини залежності зміни оптичної активності $\Delta\rho$ від напруженості зовнішнього електричного поля E_3 (1.24) досягає максимуму (Рисунок 1.5). Натомість температури $T_C(I) = 460,8$ К та $T_C(II) = 432,0$ К (Рисунок 1.3) більш суттєво відрізняються від температури $T_E = 444,5$ К. Виходячи зі співвідношення для зміни оптичної активності

$$\Delta\rho = \frac{\pi n_0^3}{\lambda} \gamma_{333} E_3 \quad (1.25)$$

та формули (1.24), за даними експериментальних залежностей зміни оптичної активності $\Delta\rho$ від напруженості зовнішнього електричного поля E_3 , отриманих для різних температур T в околі точки ФП (Рисунок 1.5), було розраховано температурні залежності коефіцієнта індукованої електрогірації

$$\gamma_{333}(T) = \frac{\lambda}{\pi n_0^3} J(T) \quad (1.26)$$

(Рисунок 1.6) та його оберненої величини γ_{333}^{-1} (Рисунок 1.7) для легованих кристалів PGO:Cu_140. При цьому для їхнього розрахунку величину звичайного показника заломлення було обрано як $n_o = 2,12$ – тобто, таку ж саму, що й для кристалів чистого PGO [46].

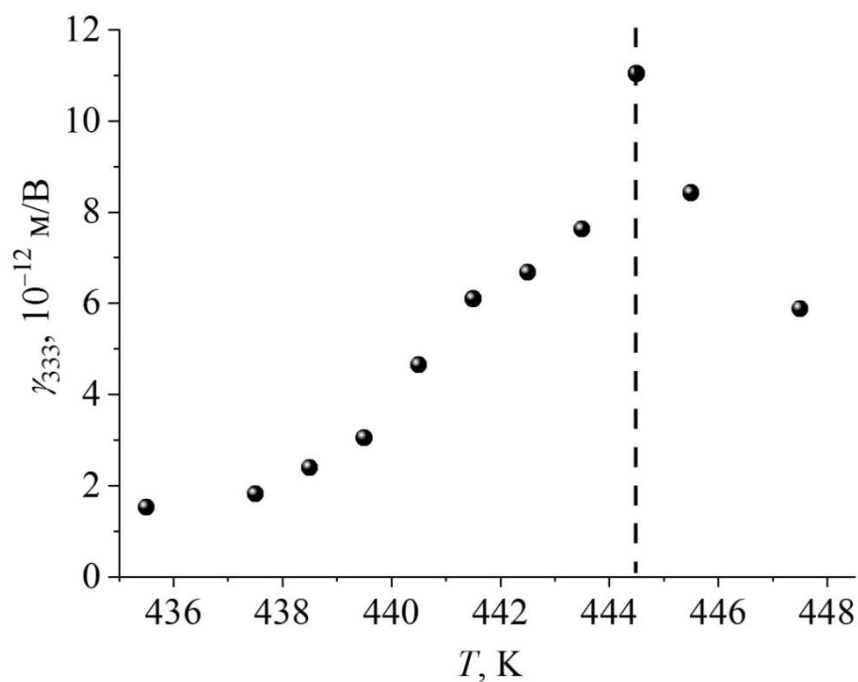


Рисунок 1.6. Температурні залежності коефіцієнта індукованої електрогірації γ_{333} для легованих кристалів PGO:Cu_140 (див. пояснення в тексті) [44].

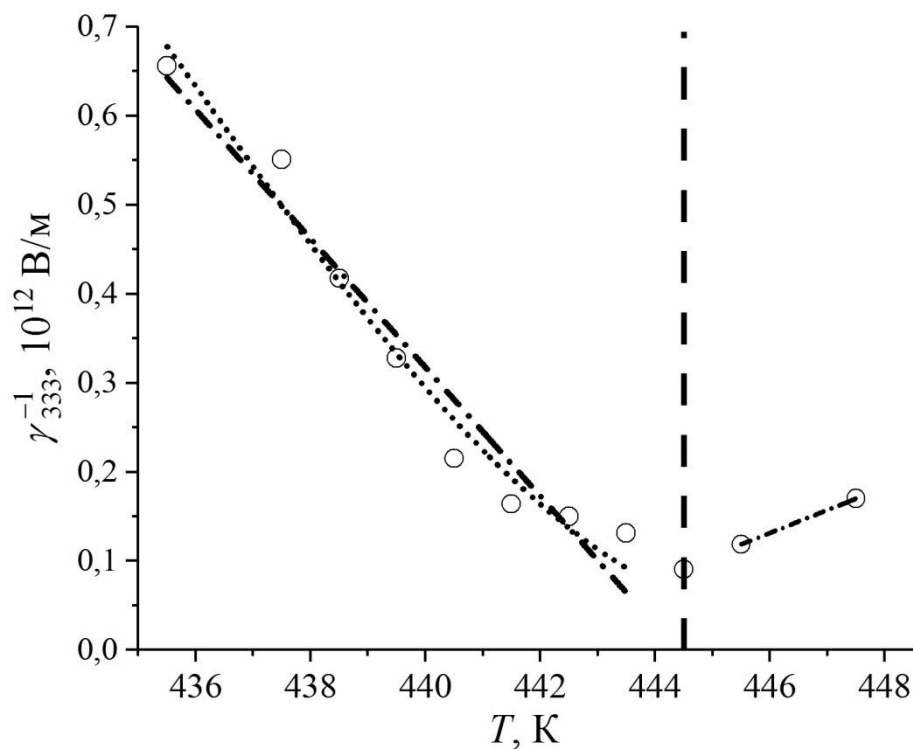


Рисунок 1.7. Температурні залежності оберненого коефіцієнта індукованої електрогірації γ_{333}^{-1} для легованих кристалів PGO:Cu_140 (див. пояснення в тексті) [44].

Слід зауважити, що описана вище процедура визначення коефіцієнта γ_{333} за формулою (1.26) застосовується й в подальшому при аналізі індукованої електрогірації в легованих кристалах та твердих розчинах сімейства PGO.

Як можна бачити, коефіцієнт γ_{333} для легованих кристалів PGO:Cu_140 (Рисунок 1.6) досягає максимуму ($11,0 \times 10^{-12}$ м/В) при температурі $T_E = 444,5$ К (штрихова пряма) [44].

Аналізуючи температурні залежності коефіцієнта діелектричної проникності ϵ_{33} для кристалів чистого PGO та легованих кристалів PGO:Cu_100, PGO:Cu_200 і PGO:Cu_500, виміряні вздовж оптичної осі (Рисунок 1.8), можна побачити, що при збільшенні концентрації іонів Cu^{2+} максимум коефіцієнта діелектричної проникності ϵ_{33} зміщується у бік нижчих температур, а величина цього максимуму зменшується [44].

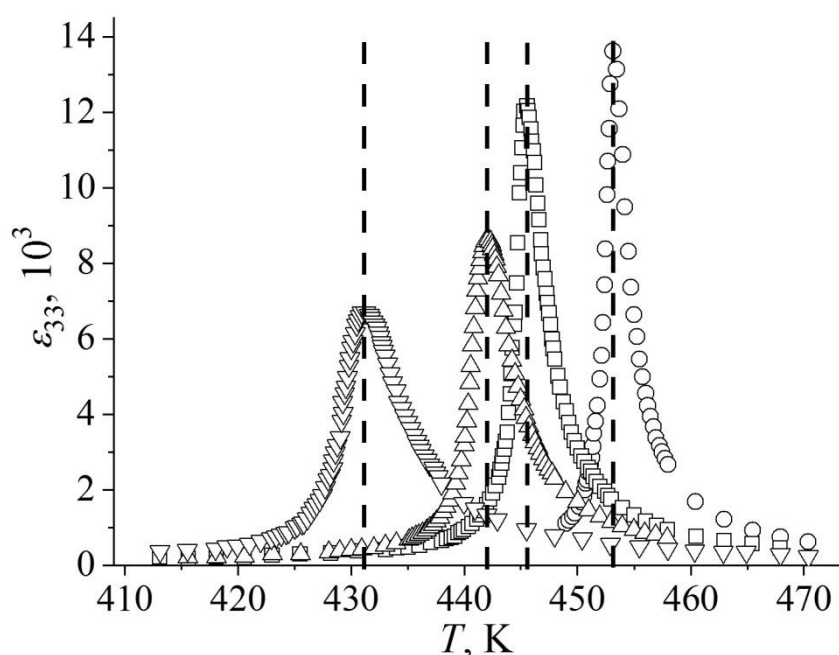


Рисунок 1.8. Температурні залежності коефіцієнта діелектричної проникності ϵ_{33} : кола – PGO; квадрати – PGO:Cu_100; трикутники вершиною вгору – PGO:Cu_200; трикутники вершиною вниз – PGO:Cu_500 (отримані з використанням методу ємнісного містка на частоті електричного поля 10^3 Гц) [44].

При цьому коефіцієнт діелектричної проникності ε_{33} досягає максимуму при температурі T_E , яка дорівнює 453,1 К для кристалів чистого PGO, 445,5 К для легованих кристалів PGO:Cu_100, 442,1 К для легованих кристалів PGO:Cu_200 та 431,1 К для легованих кристалів PGO:Cu_500 (Рисунок 1.8, штрихові прямі).

Температурні залежності обернених коефіцієнтів діелектричної проникності ε_{33}^{-1} (Рисунок 1.9) та індукованої електрогірації γ_{333}^{-1} (Рисунок 1.7) мають лінійний характер, який узгоджується із законом Кюрі-Вейса

$$\varepsilon_{33}^{-1} = 2\alpha \begin{cases} 2(T_C - T); & T < T_C \\ (T - T_C); & T > T_C \end{cases}, \quad (1.27)$$

$$\gamma_{333}^{-1} = \frac{2\alpha}{\varepsilon_0 \tilde{\gamma}_{333}} \begin{cases} 2(T_C - T); & T < T_C \\ (T - T_C); & T > T_C \end{cases}. \quad (1.28)$$

При цьому для легованих кристалів PGO:Cu_140 відношення обернених коефіцієнтів індукованої електрогірації для сегнетоелектричної та параелектричної фаз $(\gamma_{333}^{-1})_{T < T_E} / (\gamma_{333}^{-1})_{T > T_E}$ приблизно дорівнює 2,8 (Рисунок 1.7, штрих-пунктирні прямі). В свою чергу, відповідне відношення обернених коефіцієнтів діелектричної проникності $(\varepsilon_{33}^{-1})_{T < T_E} / (\varepsilon_{33}^{-1})_{T > T_E}$ приблизно дорівнює 2,8 для кристалів чистого PGO, 2,5 для легованих кристалів PGO:Cu_100, 1,92 для легованих кристалів PGO:Cu_200 та 1,8 для легованих кристалів PGO:Cu_500 (Рисунок 1.9) [44]. Певна відмінність вищевказаних величин від числа 2, яке передбачене співвідношеннями (1.27) та (1.28), ймовірно зумовлена розмиттям ФП в кристалах PGO:Cu, про що свідчать параметри інтерполяції (Таблиця 1.1), за яких досягається прийнятне узгодження інтерполуючих кривих (1.23) з експериментальними температурними залежностями ε_{33}^{-1} для легованих кристалів PGO:Cu_100, PGO:Cu_200 та PGO:Cu_500 (Рисунок 1.9, пунктирні криві).

Таблиця 1.1. Основні параметри інтерполяції температурних залежностей оберненого коефіцієнта діелектричної проникності ε_{33}^{-1} для кристалів чистого PGO та легованих кристалів PGO:Cu_100, PGO:Cu_200, PGO:Cu_500 [38].

Кристали	PGO	PGO:Cu_100	PGO:Cu_200	PGO:Cu_500
Θ , К	450,3±0,2	440,5±0,8	436,1±0,5	425,4±0,2
ΔT , К	4,70±0,52	7,58±1,74	9,10±1,29	9,45±0,58
α , 10^{-4} K^{-1}	1,270±0,040	1,308±0,075	1,342±0,058	0,997±0,019
R^2	0,997	0,985	0,995	0,998

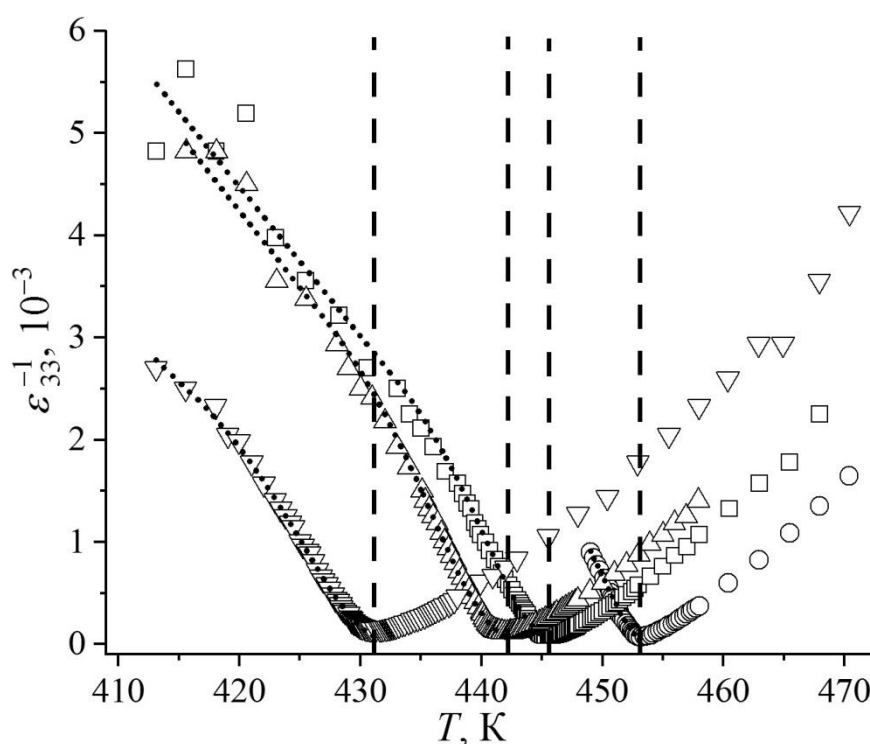


Рисунок 1.9. Температурні залежності оберненого коефіцієнта діелектричної проникності ε_{33}^{-1} : кола – PGO; квадрати – PGO:Cu_100; трикутники вершиною вгору – PGO:Cu_200; трикутники вершиною вниз – PGO:Cu_500 (див. пояснення в тексті) [44].

При цьому для кристалів чистого PGO величини параметрів Θ та ΔT , отримані в результаті інтерполяції температурної залежності оптичної активності (449,4 К та $5,47 \pm 0,42$ К) та температурної залежності оберненого

коефіцієнта діелектричної проникності ($450,3 \pm 0,2$ К та $4,70 \pm 0,52$ К) достатньо добре узгоджуються між собою.

В свою чергу, для легованих кристалів PGO:Cu₁₄₀ при інтерполяції температурної залежності оберненого коефіцієнта індукованої електрогірації γ_{333}^{-1} (Рисунок 1.7, пунктирна крива) отримуються параметри $\Theta = 435,5 \pm 16,0$ К та $\Delta T = 14,93 \pm 29,73$ К з коефіцієнтом детермінації $R^2 = 0,961$. Ці параметри достатньо добре узгоджуються з відповідними параметрами, отриманими в результаті інтерполяції температурної залежності оптичної активності – а саме, $\Theta = 440,6$ К та $\Delta T = 40,42 \pm 1,93$ К. З іншого боку, з огляду на відносно великі похибки визначення, інтерполяцію температурної залежності оберненого коефіцієнта індукованої електрогірації γ_{333}^{-1} доцільно здійснювати лише за наявності достатньо великої кількості точок такої температурної залежності. Крім того, на відміну від оптичної активності ρ та коефіцієнта діелектричної проникності ϵ_{33} , коефіцієнт індукованої електрогірації γ_{333} визначається опосередковано, за даними експериментальних залежностей $\Delta\rho = \Delta\rho(E_3)$ для різних температур T , з використанням часткової похідної (1.24) та формули (1.26), в якій, до того ж, необхідно враховувати вплив залежності $n_o = n_o(T)$.

(x, T)-фазова діаграма для системи PGO:Cu (Рисунок 1.10) демонструє, що збільшення концентрації іонів Cu^{2+} призводить до зниження температури ФП в легованих кристалах PGO:Cu.

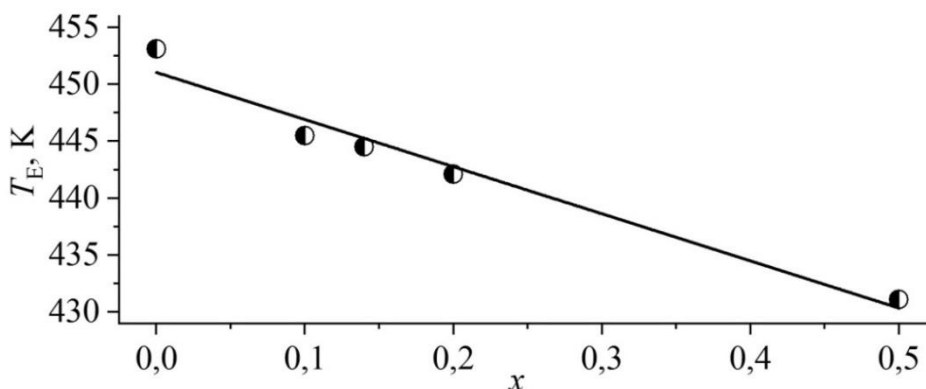


Рисунок 1.10. (x, T)-фазова діаграма для системи PGO:Cu [44].

Аналізуючи спектральні залежності коефіцієнта оптичного поглинання κ та оптичної активності ρ для легованих кристалів PGO:Cu_140 (Рисунок 1.11), можна побачити, що, на відміну від кристалів чистого PGO, для яких довжина світлової хвилі, яка відповідає краю поглинання, дорівнює 430 нм [47], край поглинання для легованих кристалів PGO:Cu_140 дещо зміщений у бік більших довжин хвиль. Подібний ефект спостерігається у кристалах PGO, легованих іонами Fe^{3+} з $R(\text{Fe}^{3+}) = 0,074$ нм [48].

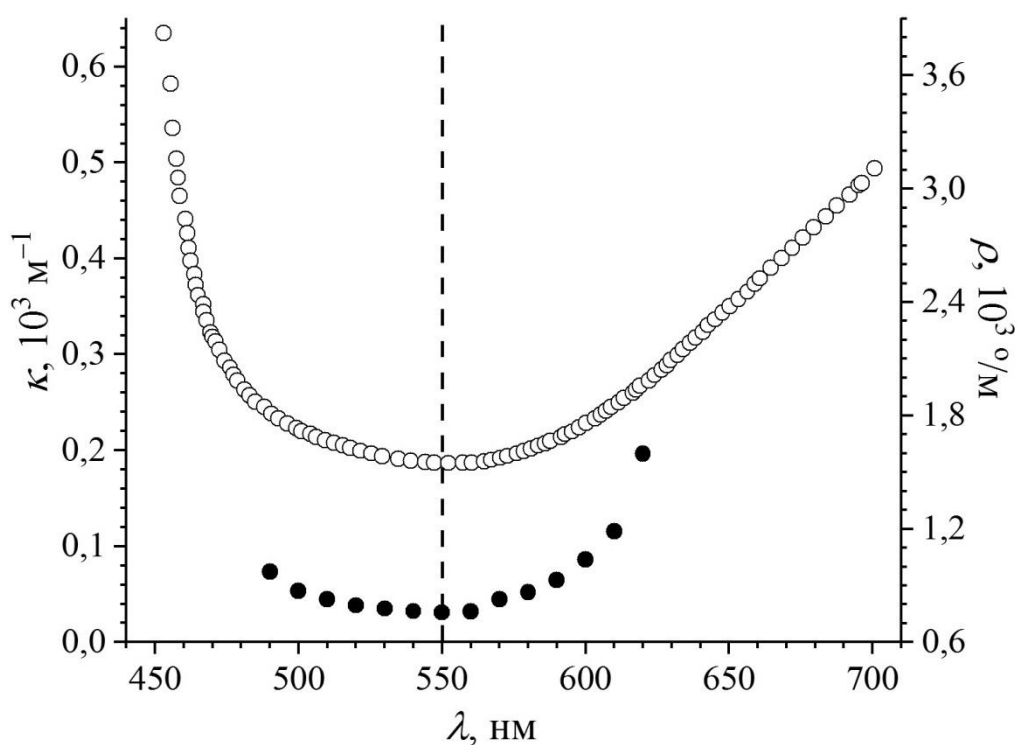


Рисунок 1.11. Дисперсія коефіцієнта оптичного поглинання κ (незаповнені кола) та оптичної активності ρ (заповнені кола) для легованих кристалів PGO:Cu_140 при $T = 300$ К [45].

Спектральна залежність коефіцієнта оптичного поглинання κ для легованих кристалів PGO:Cu_140 має мінімум в районі $\lambda = 550$ нм; при цьому виглядає цілком резонним, що з ним збігається мінімум оптичної активності ρ . При подальшому збільшенні довжини хвилі величина коефіцієнта оптичного поглинання κ різко зростає, хоча для кристалів чистого PGO коефіцієнт оптичного поглинання в тому ж самому спектральному діапазоні (550–700 нм)

майже дорівнює нулю [49]. Очевидно, що таке збільшення коефіцієнта оптичного поглинання κ зумовлене впливом іонів Cu^{2+} , які, ймовірно, створюють центри забарвлення та рівні домішок всередині забороненої зони, з огляду на свій порівняно малий іонний радіус ($R(\text{Cu}^{2+}) = 0,070$ нм).

1.3.2. Тверді розчини $\text{Pb}_5(\text{Ge}_{1-x}\text{Si}_x)_3\text{O}_{11}$ та $(\text{Pb}_{1-x}\text{Ba}_x)_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}$

Тверді розчини PGSO та PBaGO є прийнятними об'єктами для дослідження поведінки електрогірації в процесі ФП. Й дійсно, збільшення концентрації іонів Si^{4+} та Ba^{2+} при заміщенні ними іонів Ge^{4+} та Pb^{2+} в твердих розчинах PGSO та PBaGO відповідно призводить до зниження температури Кюрі $T_C(I)$ в цих твердих розчинах [18, 40, 41, 50, 51]. При цьому, враховуючи те, що електрична провідність в кристалах чистого PGO зменшується зі зниженням температури [52], до твердих розчинів PGSO та PBaGO можна прикладати зовнішні електричні поля з більшою напруженістю.

Аналізуючи температурні залежності оптичної активності ρ для твердих розчинів PGSO із концентраціями іонів Si^{4+} x , які дорівнюють 0,03 (PGSO_3), 0,05 (PGSO_5), 0,10 (PGSO_10), 0,20 (PGSO_20) та 0,40 (PGSO_40), можна побачити, що заміщення іонів Ge^{4+} на іони Si^{4+} призводить до зменшення оптичної активності (Рисунок 1.12). При цьому швидкість зниження температури Кюрі $T_C(I)$ зі збільшенням концентрації іонів Si^{4+} є лінійною.

Залежність компоненти тензора гірації g_{33} від параметра $(T_C(I) - T)^{1/2}$ для твердих розчинів PGSO є майже лінійною (Рисунок 1.13), що відповідає класичній температурній поведінці параметра порядку при ФП другого роду.

При інтерполяції залежностей компоненти тензора гірації g_{33} від спонтанної електричної поляризації P_S для твердих розчинів PGSO з використанням співвідношення

$$g_{33} = \tilde{\gamma}_{333}P_S + \tilde{\beta}_{3333}P_S^2 + \tilde{\delta}_{33333}P_S^3 \quad (1.29)$$

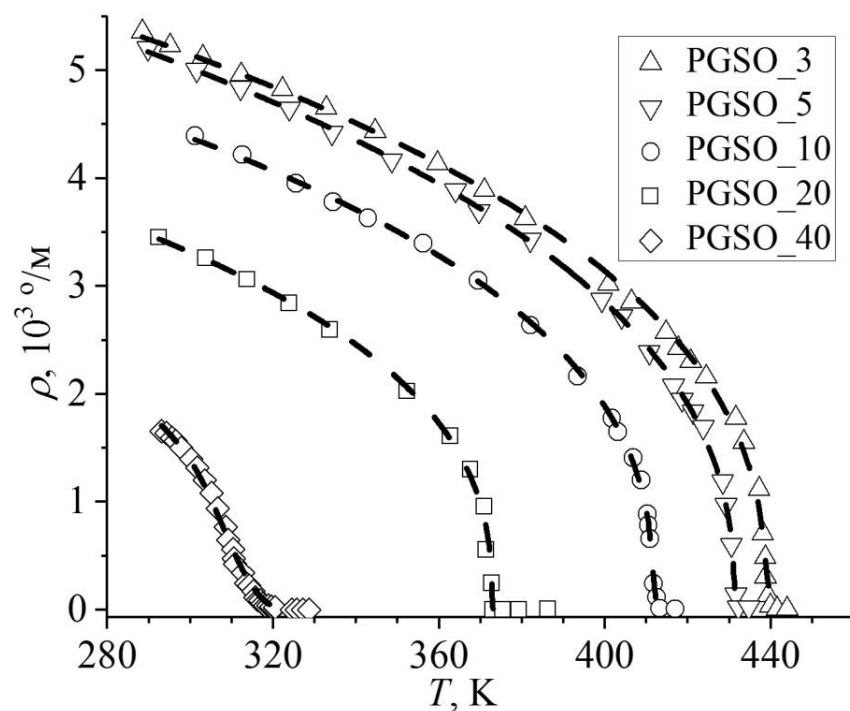


Рисунок 1.12. Температурні залежності оптичної активності ρ для твердих розчинів PGSO [18, 50]. Штрихові криві – інтерполяції відповідних залежностей за формулою (1.20) [38].

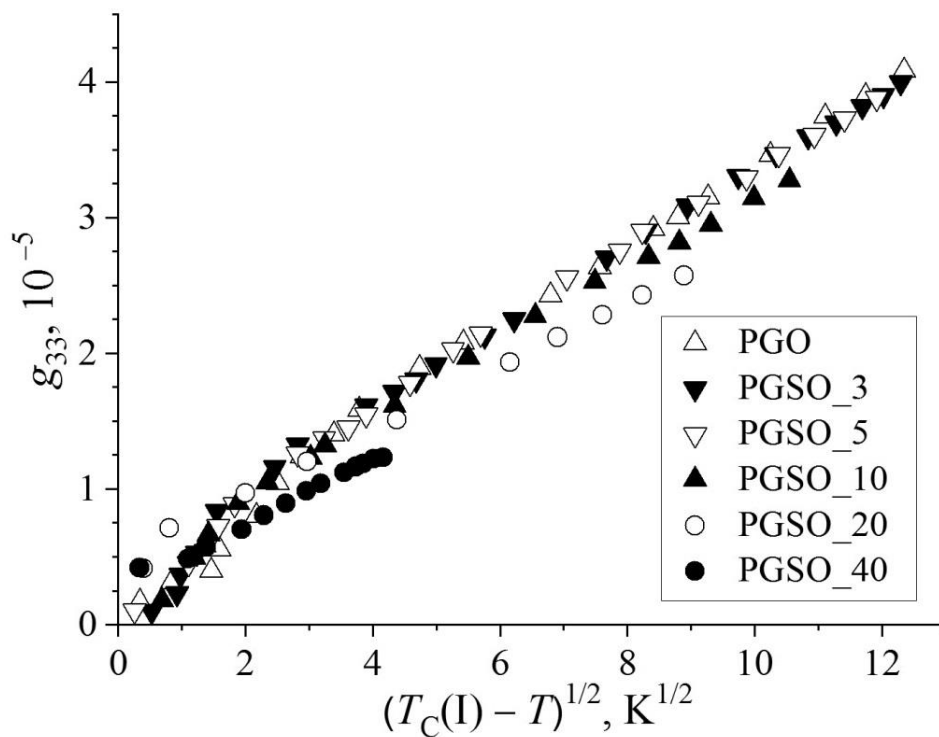


Рисунок 1.13. Залежності компоненти тензора гірації g_{33} від параметра $(T_c(I) - T)^{1/2}$ для твердих розчинів PGSO [53].

(коефіцієнт квадратичної спонтанної електрогірації $\tilde{\beta}_{3333} = 0$ згідно з умовами симетрії) отримуємо, що коефіцієнт лінійної спонтанної електрогірації $\tilde{\gamma}_{333}$ для кристалів PGO та твердих розчинів PGSO_3, PGSO_5, PGSO_10 дорівнює $(59,7 \pm 0,6) \times 10^{-5} \text{ м}^2/\text{Кл}$ (Рисунок 1.14), тоді як коефіцієнт кубічної спонтанної електрогірації $\tilde{\delta}_{33333}$ для цих сполук є рівним $(3,5 \pm 0,2) \times 10^{-2} \text{ м}^6/\text{Кл}^3$ (штрихова крива). Натомість для твердого розчину PGSO_20 коефіцієнти $\tilde{\gamma}_{333}$ та $\tilde{\delta}_{33333}$ дорівнюють $(50,2 \pm 0,5) \times 10^{-5} \text{ м}^2/\text{Кл}$ та $(2,4 \pm 0,3) \times 10^{-2} \text{ м}^6/\text{Кл}^3$ відповідно (штрихпунктирна крива). При цьому слід зауважити, що заміщення іонів Ge^{4+} на іони Si^{4+} при $x \leq 0,1$ в твердих розчинах PGSO практично не впливає на оптичну активність, викликану спонтанною електричною поляризацією P_s .

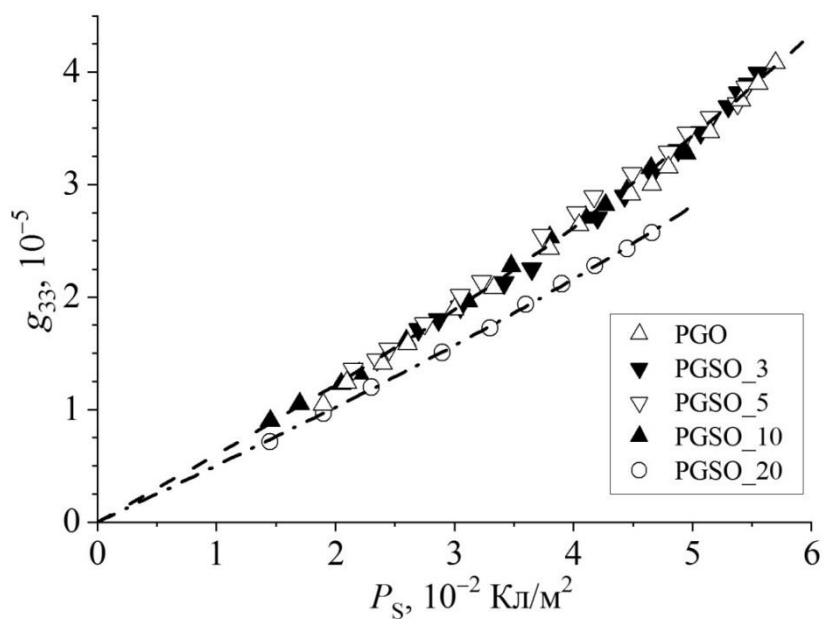


Рисунок 1.14. Залежності компоненти тензора гірації g_{33} від спонтанної електричної поляризації P_s для твердих розчинів PGSO (див. пояснення в тексті) [51, 53].

Температурні залежності коефіцієнта індукованої електрогірації γ_{333} для твердих розчинів PGSO (Рисунок 1.15) подібні до температурних залежностей коефіцієнта діелектричної проникності [51]. При цьому лінійний характер температурних залежностей оберненого коефіцієнта індукованої

електрогірації γ_{333}^{-1} (Рисунок 1.16) узгоджується із законом Кюрі-Вейса (1.28).

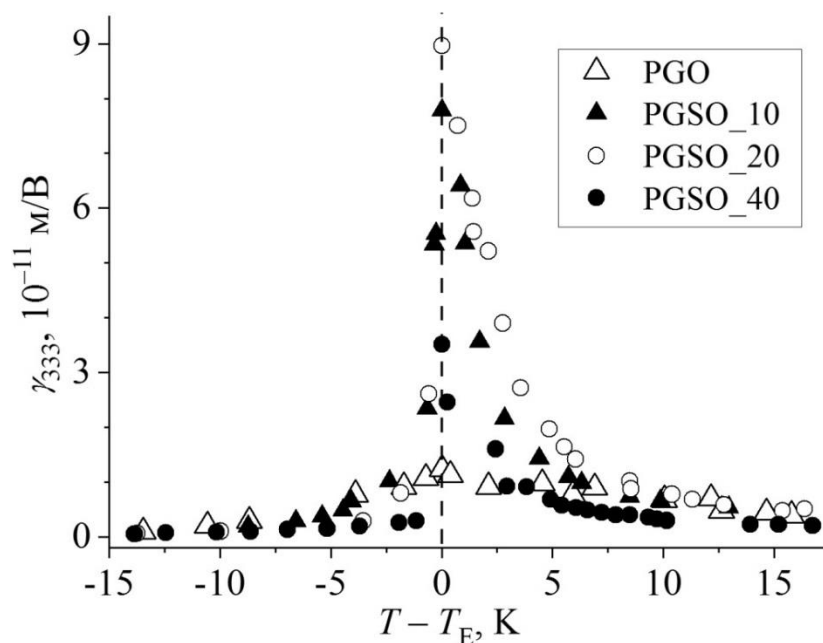


Рисунок 1.15. Залежності коефіцієнта індукованої електрогірації γ_{333} від параметра $(T - T_E)$ для твердих розчинів PGSO [18, 40, 50, 53].

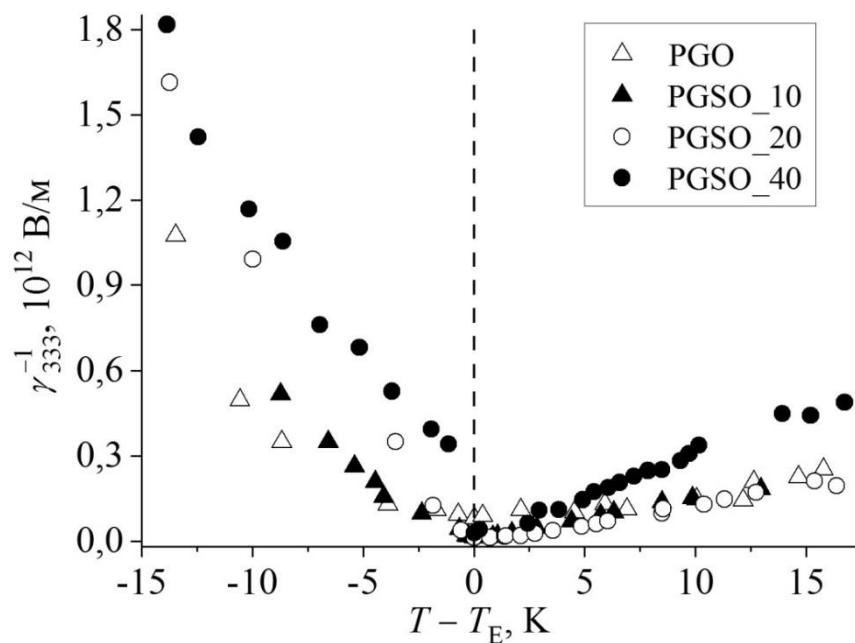


Рисунок 1.16. Залежності оберненого коефіцієнта індукованої електрогірації γ_{333}^{-1} від параметра $(T - T_E)$ для твердих розчинів PGSO [18, 40, 50, 53].

Аналізуючи температурні залежності оптичної активності ρ для кристалів чистого PGO та твердих розчинів PBaGO з концентраціями іонів Ba^{2+} x , які дорівнюють 0,02 (PBaGO_2) й 0,05 (PBaGO_5) (Рисунок 1.17) можна побачити, що заміщення іонів Pb^{2+} іонами Ba^{2+} призводить до істотного зниження температури ФП та збільшення діапазону його розмиття. При цьому, на відміну від кристалів чистого PGO, які мають ФП другого роду, температурні залежності оптичної активності ρ для твердих розчинів PBaGO_2 та PBaGO_5 відходять від класичної поведінки, звичної для ФП другого роду. Про це свідчить нелінійна поведінка залежностей компоненти тензора гірації g_{33} від параметра $(T_C(I) - T)^{1/2}$ для твердих розчинів PBaGO_2 та PBaGO_5 (Рисунок 1.18).

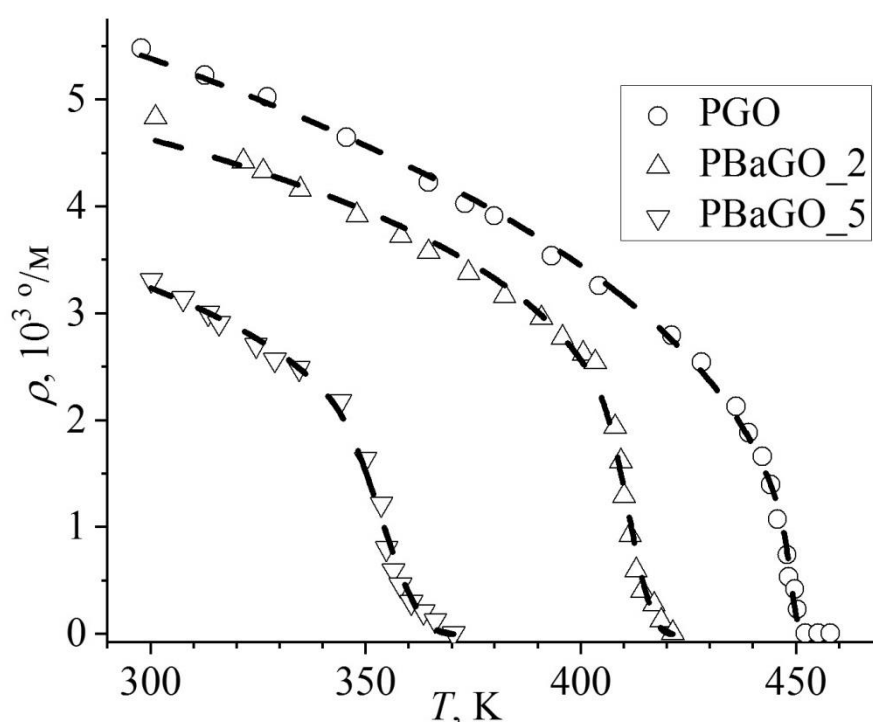


Рисунок 1.17. Температурні залежності оптичної активності ρ для кристалів чистого PGO та твердих розчинів PBaGO [18, 50]. Штрихові криві – інтерполяції відповідних залежностей за формулою (1.20) [38].

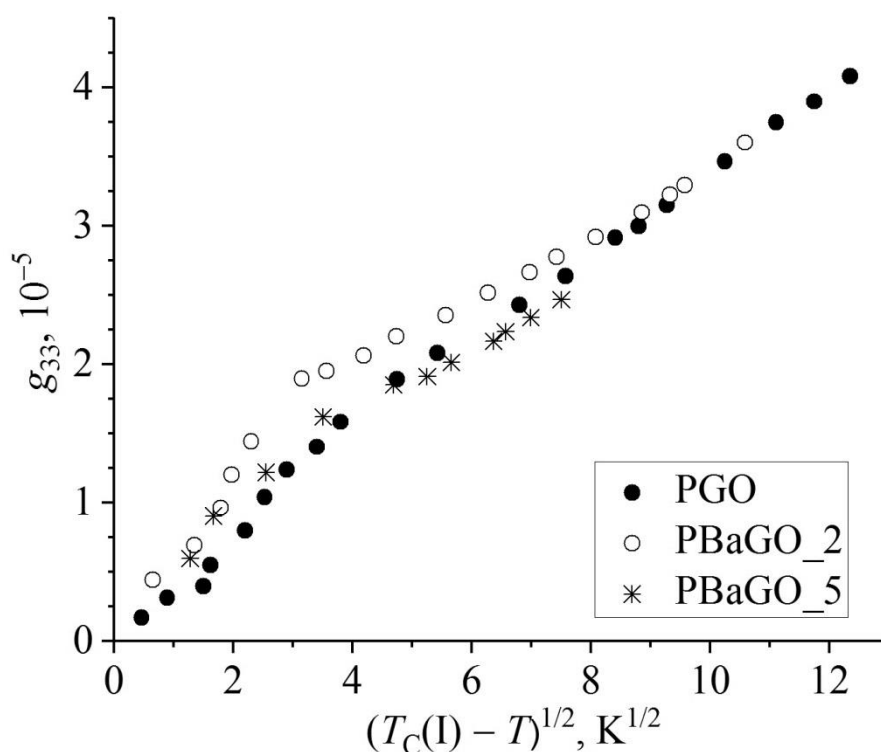


Рисунок 1.18. Залежності компоненти тензора гірації g_{33} від параметра $(T_C(I) - T)^{1/2}$ для твердих розчинів PBaGO [53].

Максимальне значення коефіцієнта індукованої електрогірації γ_{333} , досягнуте при температурі T_E в твердих розчинах PBaGO_2, є вищим у порівнянні з відповідним значенням, отриманим для кристалів чистого PGO (Рисунок 1.19). В свою чергу, максимальне значення коефіцієнта індукованої електрогірації γ_{333} , досягнуте при температурі T_E в твердих розчинах PBaGO_5, є меншим у порівнянні з відповідними значеннями, отриманими для кристалів чистого PGO та твердих розчинів PBaGO_2, що може бути викликано розмиттям ФП, яке відбулося в твердих розчинах PBaGO_5. При цьому для твердих розчинів PBaGO лінійний характер залежностей оберненого коефіцієнта індукованої електрогірації γ_{333}^{-1} від параметра $(T - T_E)$ узгоджується із законом Кюри-Вейса (1.28) (Рисунок 1.20).

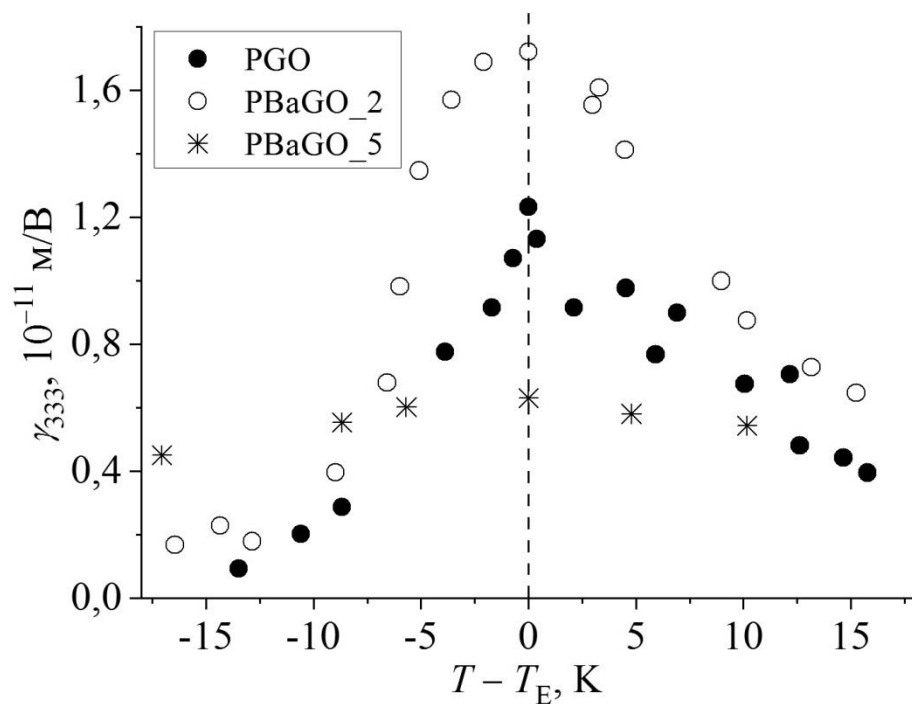


Рисунок 1.19. Залежності коефіцієнта індукованої електрогірації γ_{333} від параметра $(T - T_E)$ для твердих розчинів PBaGO [18, 40, 50, 53].

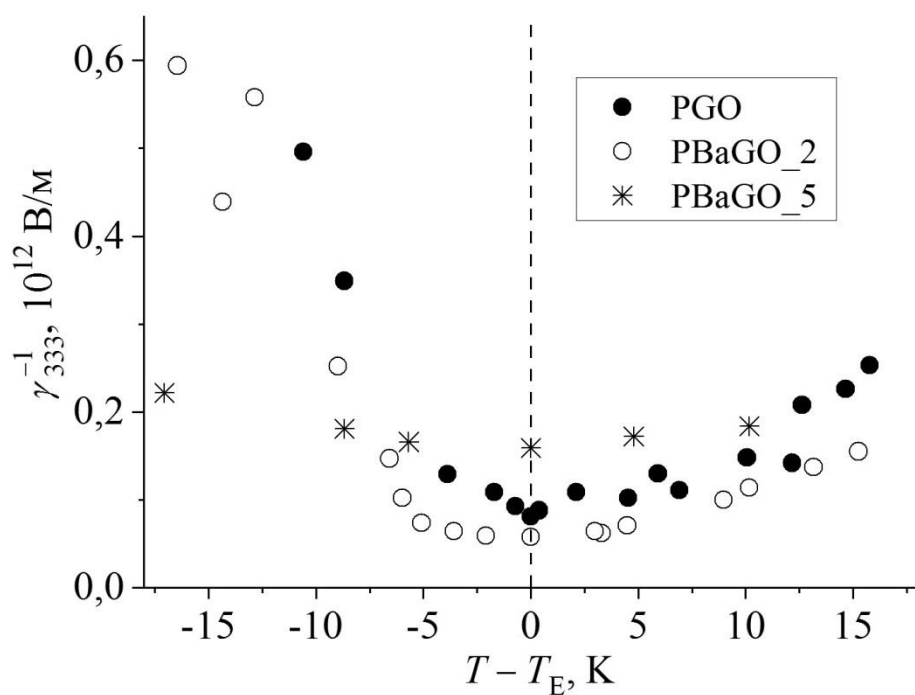


Рисунок 1.20. Залежності оберненого коефіцієнта індукованої електрогірації γ_{333}^{-1} від параметра $(T - T_E)$ для твердих розчинів PBaGO [18, 40, 50, 53].

Аналізуючи (x, T) -фазові діаграми для твердих розчинів PGSO та PBaGO (Рисунок 1.21), можна побачити, що як заміщення іонів Pb^{2+} іонами Ba^{2+} в твердих розчинах PBaGO, так й заміщення іонів Ge^{4+} іонами Si^{4+} в твердих розчинах PGSO призводить до зменшення температури ФП, хоча заміщення іонів Pb^{2+} іонами Ba^{2+} й викликає більш істотні зміни цієї температури. Такий результат корелює з даними роботи [27], згідно з якими основний внесок у спонтанну електричну поляризацію вносить зсув іонів Pb^{2+} .

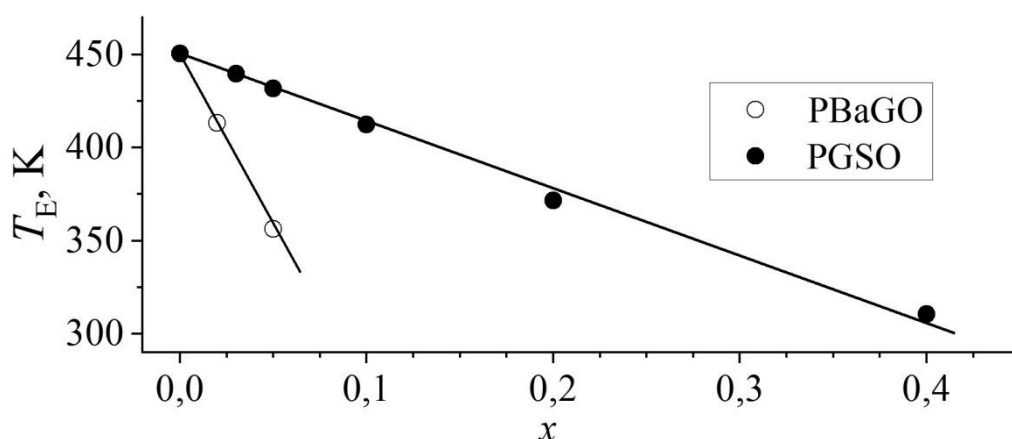


Рисунок 1.21. (x, T) -фазові діаграми для твердих розчинів PGSO та PBaGO [53].

Як можна бачити (Таблиця 1.2), коефіцієнти термодинамічного потенціалу (1.22) α та F_4 для твердих розчинів PGSO та PBaGO зменшуються зі зростанням концентрації іонів заміщення x (температурні залежності коефіцієнта діелектричної проникності та спонтанної електричної поляризації, необхідні для розрахунків, взяті з робіт [50] та [51]). При цьому значення коефіцієнта α , отримане за даними оптичних вимірювань, добре узгоджується з відповідним значенням, отриманим за допомогою діелектричних вимірювань [19, 30, 41]. З іншого боку, концентраційна поведінка коефіцієнта F_4 для твердих розчинів PBaGO, розрахована на основі оптичних вимірювань, є більш вираженою, ніж отримана в роботі [41] на основі діелектричних вимірювань. Цей факт може бути пов'язаний з певною різницею між температурними залежностями оптичної активності та спонтанної електричної поляризації для

досліджуваних твердих розчинів PGSO та PBaGO.

Таблиця 1.2. Коефіцієнти термодинамічного потенціалу α та F_4 для твердих розчинів PGSO та PBaGO [53].

Кристали	$\alpha, 10^{-4} \text{ K}^{-1}$	$F_4, \text{ м}^4/\text{Кл}^2$	$(\gamma_{333}^{-1})_{T < T_E} / (\gamma_{333}^{-1})_{T > T_E}$
PGO	0,5; 0,48 [19] 0,38 [41]	7,5; 16,55 [19] 25,2 [41]	2,9; 3,0 [19] 2,0 [41]
PGSO_10	0,45	5,6	3,3
PGSO_40	0,36	0,9	4,0
PBaGO_2	0,16; 0,33 [41]	0,45; 22,5 [41]	4,8; 1,7 [41]
PBaGO_5	0,08; 0,29 [41]	0,1; 18,9 [41]	1,5; 1,6 [41]

Оскільки перерахований коефіцієнт індукованої електрогірації $\tilde{\gamma}_{333} \approx \gamma_{333} / (\epsilon_0 \epsilon_{33})$, виражений через електричну поляризацію, для твердих розчинів PGSO (Рисунок 1.22) та PBaGO (Рисунок 1.23) не залежить ані від температури, ані від концентрації іонів заміщення x , можна стверджувати, що різниця у величині ефекту електрогірації, яка спостерігається для твердих розчинів PGSO та PBaGO, зумовлена виключно критичною поведінкою коефіцієнта діелектричної проникності в околі температури ФП.

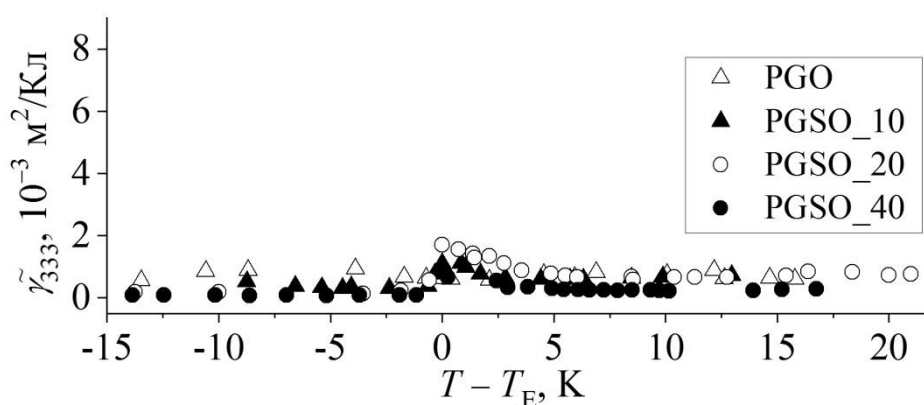


Рисунок 1.22. Залежності коефіцієнта електрогірації $\tilde{\gamma}_{333}$ від параметра $(T - T_E)$ для твердих розчинів PGSO [53].

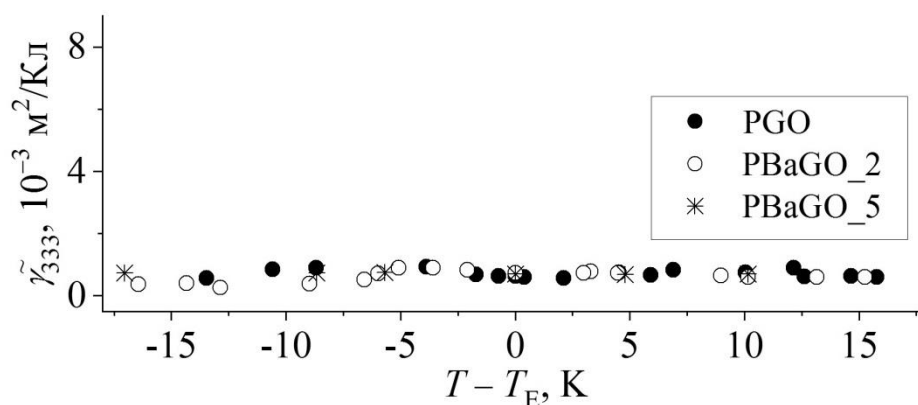


Рисунок 1.23. Залежності коефіцієнта електрогірації $\tilde{\gamma}_{333}$ від параметра $(T - T_E)$ для твердих розчинів PBaGO [53].

Оскільки тверді розчини PGSO та PBaGO мають розмиті ФП, вони можуть бути модельними об'єктами для перевірки вищевказаної методики визначення параметрів розмитих сегнетоелектричних ФП. Як можна бачити, інтерполюючі криві (1.20) для твердих розчинів PGSO (Рисунок 1.12; Таблиця 1.3) та PBaGO (Рисунок 1.17; Таблиця 1.4) достатньо добре узгоджуються з експериментальними залежностями.

Таблиця 1.3. Основні параметри інтерполяції температурних залежностей оптичної активності ρ для твердих розчинів PGSO [38].

Кристали	PGSO_3	PGSO_5	PGSO_10	PGSO_20	PGSO_40
Θ , К	439,1	431,3	411,8	372,8	311,6
$T_C(I)$, К	441,5	432,2	413,3	373,1	324,5
$T_C(II)$, К [35]	438,7	429,4	410,5	371,0	310,3
ΔT , К	$4,72 \pm 0,27$	$1,82 \pm 0,17$	$2,95 \pm 0,14$	$0,62 \pm 0,15$	$25,80 \pm 3,98$
ΔT_C , К	2,8	2,8	2,8	2,1	14,2
β	$0,39 \pm 0,01$	$0,39 \pm 0,01$	$0,37 \pm 0,01$	$0,37 \pm 0,01$	$0,40 \pm 0,01$
$\beta(I)$	0,42	0,41	0,40	0,39	—*
$\beta(II)$	0,40	0,38	0,36	0,37	—*
R^2	0,998	0,999	0,999	0,996	0,994
* Провести коректні обчислення за наявних експериментальних даних не видається можливим.					

Таблиця 1.4. Основні параметри інтерполяції температурних залежностей оптичної активності ρ для кристалів чистого PGO та твердих розчинів PBaGO [38].

Кристали	PGO	PBaGO_2	PBaGO_5
Θ , К	449,4	412,6	356,1
$T_C(I)$, К	452,1	421,3	370,4
$T_C(II)$, К [35]	447,0	403,0	341,0
ΔT , К	5,47 $\pm$ 0,42	17,46 $\pm$ 0,86	28,62 $\pm$ 2,08
ΔT_C , К	5,1	18,3	29,4
β	0,40 $\pm$ 0,01	0,27 $\pm$ 0,02	0,27 $\pm$ 0,04
$\beta(I)$	0,45	0,39	0,48
$\beta(II)$	0,42	0,30	0,26
R^2	0,998	0,994	0,994

При цьому для порівняння у вищевказаних таблицях вказані значення T_C і β , визначені з використанням методів I ($T_C(I)$ і $\beta(I)$) та II ($T_C(II)$ і $\beta(II)$), а також різниці $\Delta T_C = T_C(I) - T_C(II)$.

1.3.3. Кристали $Pb_5Ge_3O_{11}$, леговані Li, La, Eu, Nd та Bi

Окрім легованих кристалів PGO:Cu, розглянутих в параграфі 1.3.1, в дослідженнях температурної поведінки оптичної активності ρ використовувалися кристали PGO, леговані іонами Li^+ (PGO:Li), La^{3+} (PGO:La), Eu^{3+} (PGO:Eu), Nd^{3+} (PGO:Nd) та комбінацією іонів Li^+ й Bi^{3+} (PGO:LiBi). При цьому концентрації відповідних іонів у легованих кристалах PGO:X дорівнювали приблизно 0,005 (PGO:Li_005), 0,010 (PGO:Li_010), 0,020 (PGO:La_020; PGO:Nd_020), 0,021 (PGO:Eu_021) та 0,152 ваг. % (PGO:LiBi_152) [54].

Аналізуючи температурні залежності оптичної активності ρ для легованих кристалів PGO:Li_005, PGO:La_020, PGO:Eu_021 та PGO:LiBi_152 (Рисунок 1.24), можна побачити, що навіть невеликі концентрації іонів Li^+ , La^{3+} , Eu^{3+} та Bi^{3+} спричиняють суттєві зміни величини оптичної активності та

знижують температуру Кюрі $T_C(I)$ порівняно з кристалами чистого PGO. Крім того, на цих залежностях спостерігається певне розмиття ФП.

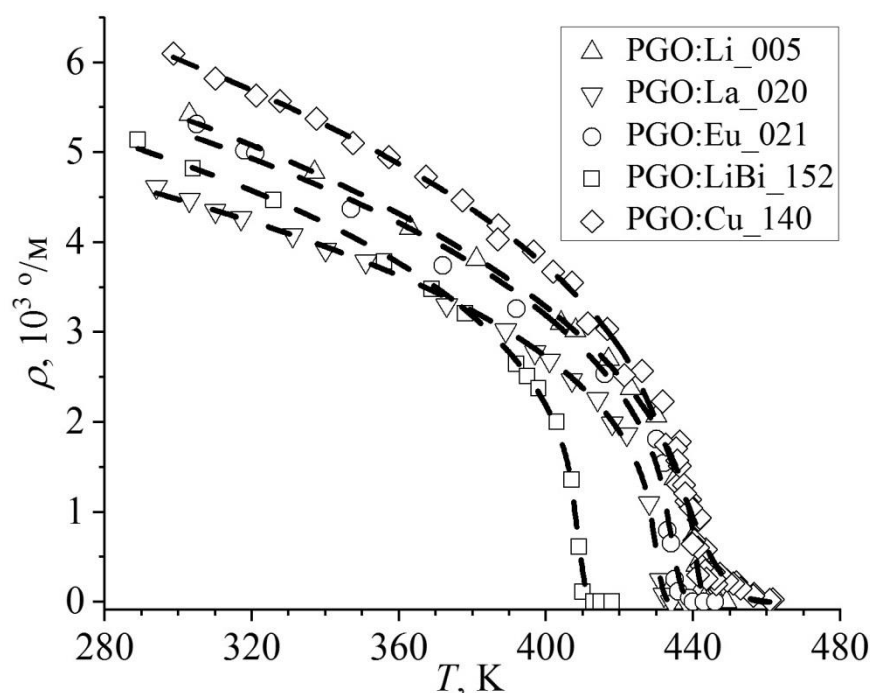


Рисунок 1.24. Температурні залежності оптичної активності ρ для легованих кристалів PGO:Li_005, PGO:La_020, PGO:Eu_021, PGO:LiBi_152 та PGO:Cu_140 [37, 54, 55]. Штрихові криві – інтерполяції відповідних залежностей за формулою (1.20) [38].

Слід зауважити, що, хоча оптична активність досліджуваних легованих кристалів порівняно з кристалами чистого PGO при кімнатній температурі є дещо нижчою, не можна однозначно стверджувати, що вищевказані домішки в цілому зменшують величину спонтанної електрогірації, оскільки стан насичення для цих кристалів при температурах 290–300 K ще не досягається.

При застосуванні описаної вище методики визначення параметрів розмитих сегнетоелектричних ФП було отримано параметри інтерполяції (Таблиця 1.5), за яких досягається найкраще узгодження інтерполуючих кривих (1.20) з експериментальними температурними залежностями оптичної активності ρ для кристалів PGO:X.

Таблиця 1.5. Основні параметри інтерполяції температурних залежностей оптичної активності ρ для легованих кристалів PGO:X [38].

Кристали	PGO:Li_005	PGO:La_020	PGO:Eu_021	PGO:LiBi_152	PGO:Cu_140
Θ , К	441,4	430,5	435,0	409,3	440,6
$T_C(I)$, К	444	434	440	413	460,8
$T_C(II)$, К	440	428	432	408	432,0
ΔT , К	5,19 $\pm$ 0,38	7,07 $\pm$ 0,35	9,95 $\pm$ 1,34	7,46 $\pm$ 0,48	40,42 $\pm$ 1,93
ΔT_C , К	4	6	8	5	28,8
β	0,41 $\pm$ 0,01	0,34 $\pm$ 0,01	0,37 $\pm$ 0,03	0,33 $\pm$ 0,01	0,38 $\pm$ 0,02
$\beta(I)$	0,42	0,37	0,48	0,42	0,47
$\beta(II)$	0,39	0,33	0,43	0,39	0,34
R^2	0,998	0,999	0,991	0,997	0,990

Слід зауважити, що всі параметри інтерполяції температурних залежностей оптичної активності, оберненого коефіцієнта діелектричної проникності та оберненого коефіцієнта лінійного електрогіраційного ефекту були отримані для випадку $N = 10^3$. Це зумовлено тим, що практичне застосування запропонованої методики визначення параметрів розмитих сегнетоелектричних ФП показало, що подальше збільшення значення N не призводить до суттєвого підвищення точності використовуваної моделі та більш кращої відповідності експерименту й теорії, натомість значно збільшуючи час, потрібний для здійснення комп'ютерних розрахунків за процедурою інтерполяції.

Як можна бачити, для досліджуваних твердих розчинів та легованих кристалів сімейства PGO виконується нерівність $T_C(II) \leq \Theta \leq T_C(I)$ (Таблиця 1.3–Таблиця 1.5). У свою чергу, різниця $\Delta T_C = T_C(I) - T_C(II)$ за своєю величиною порівнянна з параметром інтерполяції ΔT . З огляду на це методи I та II в сукупності можуть розглядатися як експрес-тест для попередньої оцінки ступеня розмиття ФП.

Враховуючи наведені вище результати, можна зробити висновок про те, що запропонована методика визначення параметрів розмитих сегнетоелектричних ФП має помітні переваги у порівнянні з іншими методами,

які використовуються для розрахунку T_C та β [38]. Так, наприклад, вибір T_C як точки, де оптична активність ρ повністю зникає під час нагрівання досліджуваного зразка (метод I), не є валідним за умови, що при ФП спостерігається "хвіст" оптичної активності (тобто, відбувається саме розмитий ФП). Натомість визначення T_C як точки мінімуму температурної залежності похідної $d\rho^2/dT$ (метод II) [35] також не є беззаперечним. Й дійсно, у випадку $\beta < 0,5$, з огляду на співвідношення (1.12), отримуємо, що величина $d\rho^2/dT \propto -2\beta/(T_C - T)^{1-2\beta}$ при $T = T_C$ має прямувати до $-\infty$, а не до певного скінченного значення (Рисунок 1.3).

Інша перевага полягає в тому, що визначення β за методами I та II вимагає аналізу додаткової залежності – а саме, логарифмічної залежності $\ln\rho$ від $\ln(T_C - T)$. Крім того, для визначення T_C за методом II необхідно також побудувати ще одну додаткову залежність – а саме, температурну залежність похідної $d\rho^2/dT$. При цьому вибір тієї частини логарифмічної залежності $\ln\rho$ від $\ln(T_C - T)$, яка має бути інтерпольована лінійною функцією, є достатньо суб'єктивним. Натомість запропонована методика визначення параметрів розмитих сегнетоелектричних ФП спирається лише на процедуру інтерполяції залежності $\rho = \rho(T)$ та об'єктивне визначення параметра T_{CN} з цієї залежності як точки, в якій оптична активність ρ повністю зникає під час нагрівання досліджуваного зразка. Й, нарешті, ця методика, на відміну від інших підходів, дозволяє визначити область розмиття ΔT для розмитого сегнетоелектричного ФП.

Залежності коефіцієнта індукованої електрогірації γ_{333} від параметра $(T - T_E)$ в околі точки ФП для легованих кристалів PGO:Li_005, PGO:Li_010, PGO:Eu_021 та PGO:LiBi_152 (Рисунок 1.25) виявляють аномалії, дуже подібні до аномалій, властивих для температурних залежностей коефіцієнта діелектричної проникності [42]. Так, зокрема, ці температурні залежності дещо розмиті поблизу точки T_E , що характерно для розмитих ФП [36].

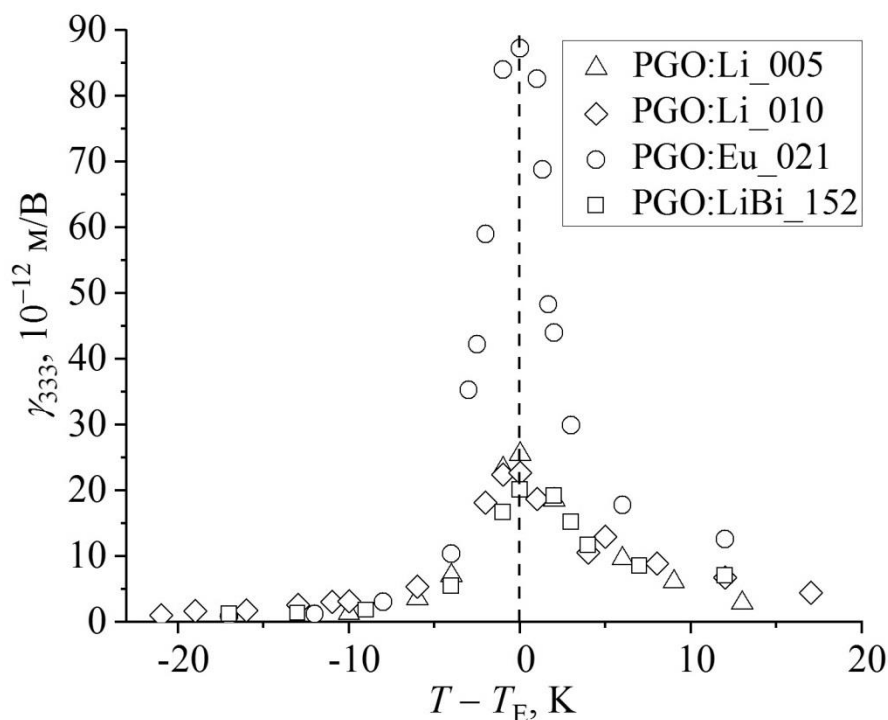


Рисунок 1.25. Залежності коефіцієнта індукованої електрогірації γ_{333} від параметра $(T - T_E)$ для легованих кристалів PGO:X [54, 55].

Як можна бачити, експериментальні залежності оберненого коефіцієнта індукованої електрогірації γ_{333}^{-1} від параметра $(T - T_E)$ мають лінійний характер (Рисунок 1.26), який узгоджується із законом Кюрі-Вейса (1.28), незважаючи на відносно більший розкид точок даних (якщо порівняти їх, наприклад, з аналогічними даними для твердих розчинів PGSO [53]). З іншого боку, відношення обернених коефіцієнтів індукованої електрогірації для сегнетоелектричної та параелектричної фаз $(\gamma_{333}^{-1})_{T < T_E} / (\gamma_{333}^{-1})_{T > T_E}$, яке дорівнює 3,0 для кристалів PGO:Li_005, 3,8 для кристалів PGO:Li_010, 11,9 для кристалів PGO:Eu_021 та 5,7 для кристалів PGO:LiBi_152, суттєво відрізняється від числа 2, передбаченого співвідношеннями (1.28) для ФП другого роду в рамках класичної термодинамічної теорії.

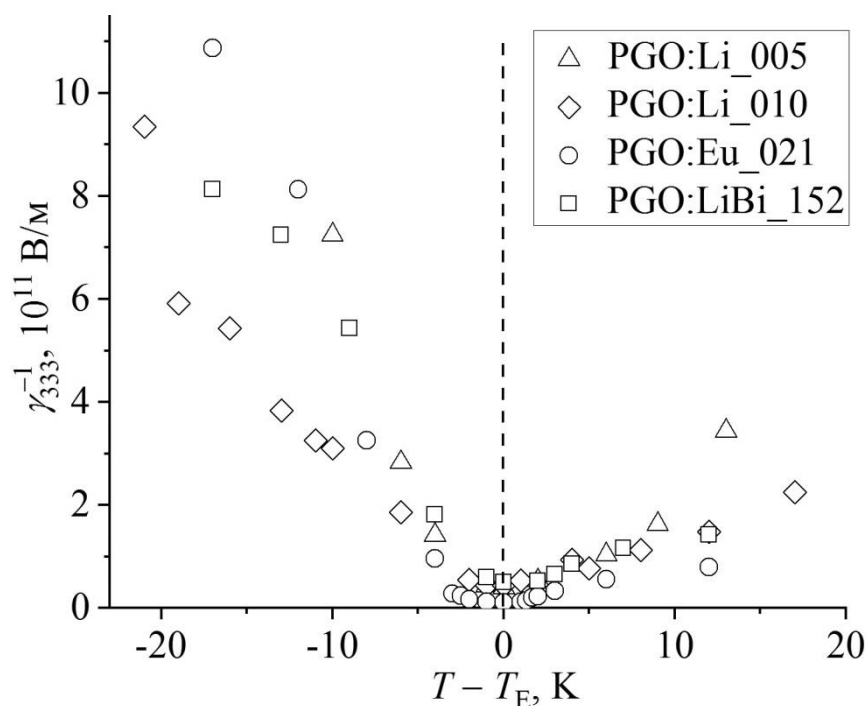


Рисунок 1.26. Залежності оберненого коефіцієнта індукованої електрогірації γ_{333}^{-1} від параметра $(T - T_E)$ для легованих кристалів PGO:X [54, 55].

Ймовірно, що подібне відхилення відношення $(\gamma_{333}^{-1})_{T < T_E} / (\gamma_{333}^{-1})_{T > T_E}$, отриманого експериментально, від теоретичної величини пов'язане з впливом структурних дефектів, подібно до розмиття ФП.

Підсумовуючи результати дослідження індукованої електрогірації в кристалах та твердих розчинах сімейства PGO, досліджені сполуки було згруповано за величиною індукованої електрогірації (Таблиця 1.6). Як можна бачити, тверді розчини PGSO_10, PGSO_20 та леговані кристали PGO:Eu_021 є перспективними матеріалами для виготовлення на їхній основі пристроїв, які використовують у своїй роботі лінійний електрогіраційний ефект.

Таблиця 1.6. Основні характеристики лінійного електрогіраційного ефекту для легованих кристалів та твердих розчинів сімейства PGO.

Кристали	T_E, K	$\gamma_{333}(T_E), 10^{-12} \text{ м/В}$	$(\gamma_{333}^{-1})_{T < T_E} / (\gamma_{333}^{-1})_{T > T_E}$
Висока індукована електрогірація ($> 50 \times 10^{-12} \text{ м/В}$)			
PGSO_20	371,6	90,9	8,9
PGO:Eu_021	436,0	87,2	11,9
PGSO_10	412,3	76,9	3,3
Середня індукована електрогірація ($(20-50) \times 10^{-12} \text{ м/В}$)			
PGSO_40	310,4	35,7	4,0
PGO:Li_005	437,0	25,5	3,0
PGO:Li_010	435,0	22,7	3,8
PGO:LiBi_152	411,0	20,1	5,7
Низька індукована електрогірація ($< 20 \times 10^{-12} \text{ м/В}$)			
PBaGO_2	413,2	17,2	4,8
PGO	450,5	12,3	2,9
PGO:Cu_140	444,5	11,0	2,8
PBaGO_5	356,4	6,3	1,5

Висновки до Розділу 1

1. Проблема точного визначення критичного індексу β спонтанної електричної поляризації як параметру порядку, що полягає в неоднозначності вибору температури Кюрі T_C у випадку розмитого сегнетоелектричного ФП, може бути вирішена з використанням методики визначення параметрів розмитих сегнетоелектричних ФП, яка базується на:

- узагальненій моделі розмитих ФП, в рамках якої досліджуваний зразок можна розділити на нескінченно велику кількість однорідних елементарних комірок таким чином, щоб ФП у кожній з цих комірок був нерозмитим та характеризувався певною локальною температурою Кюрі T_{Ci} ($i = 1, \dots, N$), де параметр $N \in \{2, 3, 4, \dots\}$ визначає точність цієї моделі;
- гауссівському розподілі локальних температур Кюрі $\varphi(T_{Ci})$ в межах досліджуваного зразка, де роль математичного очікування відіграє так звана

середня температура Кюрі Θ , яка приймається за точку ФП та характеризує стан, коли половина досліджуваного зразка зазнає ФП;

– загальному співвідношенні для параметра порядку власного сегнетоелектричного ФП другого роду, яке записується для кожної з однорідних елементарних комірок (ρ_i).

2. Інтерполяція експериментально отриманої температурної залежності оптичної активності ρ , викликаної спонтанною електрогірацією, здійснюється кривою, що являє собою середнє по ансамблю локальних температурних залежностей ρ_i . В результаті такої інтерполяції визначаються середня температура Кюрі Θ , область розмиття ФП ΔT та критичний індекс β , які забезпечують найкраще узгодження інтерполуючої кривої з експериментальною залежністю.

3. З використанням вищевказаної методики параметри розмитого сегнетоелектричного ФП Θ , ΔT та β визначено для кристалів чистого $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}$, твердих розчинів $\text{Pb}_5(\text{Ge}_{1-x}\text{Si}_x)_3\text{O}_{11}$ ($x = 0,03; 0,05; 0,10; 0,20; 0,40$) та $(\text{Pb}_{1-x}\text{Ba}_x)_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}$ ($x = 0,02; 0,05$), а також легованих кристалів $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}:\text{Cu}^{2+}$ (0,14 ваг. %), $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}:\text{Li}^+$ (0,005 ваг. %), $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}:\text{La}^{3+}$ (0,02 ваг. %), $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}:\text{Eu}^{3+}$ (0,021 ваг. %) й $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}:\text{Li}^+, \text{Bi}^{3+}$ (0,152 ваг. %). При цьому порівняння запропонованої методики з іншими підходами до визначення температури Кюрі та критичного індексу параметру порядку свідчить про такі її істотні переваги, як валідність, об'єктивність, простота та можливість визначення області розмиття ФП ΔT .

4. В результаті експериментального дослідження діелектричних та електрогіраційних властивостей легованих кристалів $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}:\text{Cu}^{2+}$ (0; 0,10; 0,14; 0,20; 0,50 ваг. %) було побудовано (x, T) -фазову діаграму для системи $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}:\text{Cu}^{2+}$, з якої випливає, що збільшення концентрації іонів Cu^{2+} призводить до зниження температури ФП. Також показано, що закон Кюрі-Вейса приблизно виконується для всіх досліджуваних легованих кристалів $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}:\text{Cu}^{2+}$. Експериментальні дослідження дисперсії оптичної активності та поглинання легованих кристалів $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}:\text{Cu}^{2+}$ (0,14 ваг. %) при $T = 300 \text{ K}$

показали, що край поглинання цих кристалів порівняно з кристалами чистого $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}$ дещо зміщений у довгохвильову область. При цьому в легованих кристалах $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}:\text{Cu}^{2+}$ (0,14 ваг. %) виявлено збільшення як коефіцієнту оптичного поглинання, так й оптичної активності в спектральному діапазоні 550–700 нм. Швидше за все, це викликано домішками іонів Cu^{2+} – внаслідок порівняно малого іонного радіусу вони утворюють центри забарвлення та домішкові рівні у забороненій зоні.

5. За допомогою вищевказаної методики, адаптованої для інтерполяції температурних залежностей експериментальних даних, що характеризують індуквану електрогірацію та діелектричну проникність в кристалах з розмитими сегнетоелектричними ФП, для легованих кристалів $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}:\text{Cu}^{2+}$ (0; 0,10; 0,14; 0,20; 0,50 ваг. %) було визначено параметри розмитого сегнетоелектричного ФП Θ та ΔT . При цьому виявлено, що для кристалів чистого $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}$ та легованих кристалів $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}:\text{Cu}^{2+}$ (0,14 ваг. %) ці параметри добре узгоджуються з відповідними параметрами, отриманими в результаті інтерполяції температурних залежностей оптичної активності, викликаной спонтанною електрогірацією.

6. В результаті аналізу температурної поведінки спонтанної та індукованої електрогірації в твердих розчинах $\text{Pb}_5(\text{Ge}_{1-x}\text{Si}_x)_3\text{O}_{11}$ ($x = 0,03; 0,05; 0,10; 0,20; 0,40$) та $(\text{Pb}_{1-x}\text{Ba}_x)_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}$ ($x = 0,02; 0,05$) в околі сегнетоелектричного ФП встановлено, що заміни іонів Pb^{2+} на іони Ba^{2+} та іонів Ge^{4+} на іони Si^{4+} не впливають на величину коефіцієнтів спонтанної електрогірації $\tilde{\gamma}_{333}$, визначених в одиницях оберненої спонтанної електричної поляризації. В свою чергу, температурна поведінка коефіцієнтів індукованої електрогірації γ_{333} , визначених в одиницях оберненої напруженості зовнішнього електричного поля, в околі температури ФП визначається критичною поведінкою коефіцієнта діелектричної проникності. Встановлено, що для твердих розчинів $\text{Pb}_5(\text{Ge}_{1-x}\text{Si}_x)_3\text{O}_{11}$ та $(\text{Pb}_{1-x}\text{Ba}_x)_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}$ приблизно виконується закон Кюрі-Вейса, а ізовалентне заміщення призводить до зниження температури ФП та зменшення коефіцієнтів термодинамічного потенціалу.

7. Результати аналізу температурної поведінки спонтанної та індукованої електрогірації в кристалах $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}$, легованих іонами Li^+ , La^{3+} , Eu^{3+} , Nd^{3+} та Bi^{3+} , свідчать про те, що введення цих легуючих домішок помітно впливає на ФП та змінює його кількісні параметри – зокрема, зміщує ФП в бік нижчих температур та розмиває його. При цьому температурні залежності оберненого коефіцієнта індукованої електрогірації для цих легованих кристалів мають лінійний характер, який узгоджується із законом Кюрі-Вейса.

8. В твердих розчинах $\text{Pb}_5(\text{Ge}_{0,9}\text{Si}_{0,1})_3\text{O}_{11}$, $\text{Pb}_5(\text{Ge}_{0,8}\text{Si}_{0,2})_3\text{O}_{11}$ та легованих кристалах $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}:\text{Eu}^{3+}$ (0,021 ваг. %) виявлено істотне збільшення величини індукованої електрогірації у порівнянні як з кристалами чистого $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}$, так й з іншими легованими кристалами та твердими розчинами цього сімейства. При цьому зниження температури Кюрі у вищевказаних сполуках забезпечує додаткові переваги в експлуатації електрогіраційних елементів на їхній основі. Таким чином, тверді розчини $\text{Pb}_5(\text{Ge}_{0,9}\text{Si}_{0,1})_3\text{O}_{11}$, $\text{Pb}_5(\text{Ge}_{0,8}\text{Si}_{0,2})_3\text{O}_{11}$ та леговані кристали $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}:\text{Eu}^{3+}$ (0,021 ваг. %) можна віднести до категорії перспективних електрогіраційних матеріалів.

РОЗДІЛ 2. МАГНІТО-ІНДУКОВАНА ОПТИЧНА АКТИВНІСТЬ ТА ТЕМПЕРАТУРНА ПОВЕДІНКА АНІЗОТРОПІЇ В ЛУЖНО-БОРАТНИХ І ХАЛЬКОГЕНІДНИХ СПОЛУКАХ

2.1. Ефект Фарадея в лужно-боратних і халькогенідних сполуках

Халькогенідні кристали Tl_3AsS_4 , AgGaGeS_4 , $\text{AgGaGe}_3\text{Se}_8$ та халькогенідні тверді розчини $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$, що були обрані в якості об'єктів дослідження фарадеївської оптичної активності в рамках цієї дисертації, в загальному випадку можуть розглядатися як матеріали, придатні для використання у галузі акустооптики. З огляду на це результати таких досліджень в подальшому будуть використовуватися в Розділі 5 при аналізі впливу фарадеївської оптичної активності на ефективність АО дифракції.

Так, широковідомі АО кристали Tl_3AsS_4 зазвичай застосовуються в АО дефлекторах оптичного випромінювання, АО модуляторах добротності лазерного випромінювання та АО перестроюваних фільтрах у відносно низькочастотному ($< 6 \times 10^8$ Гц) акустичному діапазоні та видимому й ближньому інфрачервоному оптичних діапазонах [56–60]. При цьому використовується АО дифракція Брегга падаючої оптичної хвилі, яка поляризована вздовж кристалографічної осі c та поширюється вздовж кристалографічної осі b , на поздовжній АХ, яка поширюється вздовж кристалографічної осі c [57]. Саме за вищевказаної робочої геометрії АО взаємодії в кристалах Tl_3AsS_4 досягається максимальне значення КАОЯ, яке дорівнює $792,8 \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$ для довжини оптичної хвилі $\lambda = 632,8 \text{ нм}$ та швидкості АХ $v = 2150 \text{ м/с}$ [57].

Натомість експериментальні дослідження та аналіз анізотропії швидкостей АХ в кристалах AgGaGeS_4 та $\text{AgGaGe}_3\text{Se}_8$ з врахуванням неортогональності АХ показали, що для кристалів AgGaGeS_4 у випадку АО взаємодії в головній кристалографічній площині ac з найповільнішою QT АХ ($v_{13} = 1570 \text{ м/с}$) КАОЯ може бути оцінений як $500 \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$ при $\lambda = 632,8 \text{ нм}$

[61]. В свою чергу, для кристалів $\text{AgGaGe}_3\text{Se}_8$ КАОЯ може бути оцінений як $280 \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$ при $\lambda = 632,8 \text{ нм}$ у випадку АО взаємодії в головній кристалографічній площині ac з найповільнішою QT AX ($v = 853 \text{ м/с}$), яка поширюється під кутом 49° до кристалографічної осі a та поляризована перпендикулярно до кристалографічної осі b [62].

Дослідження АО властивостей твердих розчинів $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ на сьогоднішній день обмежуються лише кристалами $\beta\text{-TlInS}_2$, які можуть розглядатися як тверді розчини $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ з концентрацією Se $x = 0$. Так, експериментальні дослідження та аналіз анізотропії швидкостей AX в кристалах $\beta\text{-TlInS}_2$ з врахуванням неортогональності AX показали, що для цих кристалів у випадку АО взаємодії з найповільнішими QT AX ($v_{13}, v_{23}, v_{32}, v_{31}, v_{63} \approx 725 \text{ м/с}$; $Z(3) \parallel c$, $Y(2) \parallel b$, $X(1) \perp (bc)$) КАОЯ може бути оцінений як $(2200-9000) \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$ при $\lambda = 632,8 \text{ нм}$, що дозволяє віднести кристали $\beta\text{-TlInS}_2$ до одного з найбільш ефективних АО матеріалів [63].

Крім того, халькогенідні кристали Tl_3AsS_4 , AgGaGeS_4 , $\text{AgGaGe}_3\text{Se}_8$ та халькогенідні тверді розчини $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ є оптично двовісними АО середовищами, чим зумовлена певна специфіка дослідження їхньої фарадеївської оптичної активності.

Фарадеївська оптична активність, на відміну від лінійного електрогіраційного ефекту, розглянутого у Розділі 1, можлива також й в ізотропних тілах [16]. Виникнення фарадеївської оптичної активності зумовлено зміною тензора діелектричної непроницності (оптичних поляризаційних констант) $\mathbf{B}$ прозорого матеріального середовища у зовнішньому магнітному полі з напруженістю $\mathbf{H}$, що описується співвідношенням

$$E_j = \varepsilon_0^{-1} (B_{jn}^0 + i\delta_{jnl} F_{lk} H_k) D_n, \quad (2.1)$$

де F_{lk} – компоненти тензора Фарадея $\mathbf{F}$, який є полярним тензором другого рангу. Як можна бачити, рівняння (2.1) за своєю структурою нагадує

матеріальне рівняння оптично активного середовища (1.5) й повністю з ним співпадає за умови ототожнення аксіальних векторів $\mathbf{F}\mathbf{H}$ та $\mathbf{g}\mathbf{m}$ [16].

В загальному випадку ефект Фарадея полягає в тому, що прозоре матеріальне середовище (ізотропне або анізотропне) стає оптично активним у зовнішньому магнітному полі – тобто, оптичні хвилі, що поширюються в цьому середовищі за таких умов, є еліптично-поляризованими або циркулярно-поляризованими [16].

Слід зауважити, що, оскільки ефект Фарадея зазвичай є значно меншим за природну оптичну активність, він, окрім оптично ізотропних середовищ, практично спостерігається лише при поширенні оптичної хвилі вздовж оптичної осі кристалу як додатковий поворот площини поляризації лінійно-поляризованого світла на деякий кут $\Delta\varphi_H$, який виникає при дії на кристал зовнішнього магнітного поля з напруженістю $\mathbf{H}$. При цьому фарадеївська оптична активність такого кристалу характеризується параметром

$$\Delta\rho_H = \frac{\Delta\varphi_H}{d} = \frac{\pi n^3}{\lambda} F_{ij} H_j, \quad (2.2)$$

де d та n – відповідно товщина та показник заломлення кристалу в напрямку оптичної осі.

Як можна бачити зі співвідношення (2.2), на відміну від оптично одновісних кристалів, де компонента тензора Фарадея F_{33} експериментально визначається при поширенні оптичної хвилі та прикладанні зовнішнього магнітного поля вздовж оптичної осі кристалу, експериментальне визначення коефіцієнтів Фарадея F_{ij} у випадку оптично двовісних кристалів являє собою нетривіальне завдання, яке буде вирішуватися у рамках цієї дисертації для халькогенідних кристалів Ti_3AsS_4 , AgGaGeS_4 , $\text{AgGaGe}_3\text{Se}_8$ та халькогенідних твердих розчинів $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ ($x = 0; 0,02; 0,06; 0,10; 0,15; 0,25$).

Для перевірки точності експериментальної установки в якості модельних об'єктів використовувалися ізотропні лужно-боратні стекла LiKB_4O_7 , $\text{Li}_2\text{B}_6\text{O}_{10}$,

$\text{LiCsB}_6\text{O}_{10}$, з огляду на відносно невеликі значення їхніх магнітооптичних параметрів.

2.1.1. Стекла LiKB_4O_7 , $\text{Li}_2\text{B}_6\text{O}_{10}$ та $\text{LiCsB}_6\text{O}_{10}$

Лужно-боратні сполуки в загальному випадку є екологічно перспективними оптичними матеріалами, які не містять іонів свинцю; при цьому вони стійкі до потужного оптичного випромінювання та мають широкий діапазон оптичної прозорості – від вакуумного ультрафіолету до інфрачервоної області спектру [64–69].

Лужно-боратні кристали можуть бути використані як АО матеріали – зокрема, для АО маніпуляцій з лазерним випромінюванням в короткохвильовому спектральному діапазоні [70–75]. Слід зауважити, що, оскільки для АО взаємодій не потрібна відсутність центру симетрії, вони принципово можливі навіть в ізотропних стеклах. З огляду на це стекла різного хімічного складу (зокрема, лужно-боратні стекла) достатньо успішно використовуються в різноманітних АО приладах [76].

Результати експериментальних досліджень та аналізу АО властивостей лужно-боратних стекол LiKB_4O_7 , $\text{Li}_2\text{B}_6\text{O}_{10}$, $\text{LiCsB}_6\text{O}_{10}$ показали, для них як оптично ізотропних середовищ [77] характерні наступні типи АО взаємодій [78, 79]:

- тип (I): АО взаємодія PL AX зі швидкістю v_{11} , що поширюється вздовж осі X, з падаючою оптичною хвилею, для якої вектор електричної індукції $\mathbf{D}$ є паралельним осі Y;
- тип (II): АО взаємодія PL AX зі швидкістю v_{11} , що поширюється вздовж осі X, з падаючою оптичною хвилею, для якої вектор електричної індукції $\mathbf{D}$ лежить у площині XZ під кутом Бреґга θ_B до осі X;
- тип (III): АО взаємодія PT AX зі швидкістю v_{13} , що поширюється вздовж осі X та поляризована вздовж осі Z, з падаючою оптичною хвилею, для якої

вектор електричної індукції $\mathbf{D}$ лежить у площині XZ під кутом Бреґга θ_B до осі X .

Причому для лужно-боратних стекел LiKB_4O_7 , $\text{Li}_2\text{B}_6\text{O}_{10}$, $\text{LiCsB}_6\text{O}_{10}$ при $\lambda = 632,8$ нм їхні максимальні значення КАОЯ $((4,343 \pm 0,367) \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$, $(2,819 \pm 0,362) \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$, $(7,443 \pm 0,529) \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$ відповідно) досягаються у випадку типу (I) АО взаємодії, де швидкість PL AX v_{11} дорівнює $(5726 \pm 80) \text{ м/с}$, $(5764 \pm 89) \text{ м/с}$, $(4606 \pm 27) \text{ м/с}$ відповідно [79].

Щодо можливих перспектив використання лужно-боратних стекел у сфері магнітооптики слід зауважити, що до об'ємних магнітооптичних матеріалів зазвичай належать магнітно-впорядковані тверді тіла, непрозорі у видимій та ультрафіолетовій областях спектру [80–83]. У зв'язку з цим важливості та актуальності набуває дослідження магнітооптичних властивостей таких магнітно-невпорядкованих середовищ, як лужно-боратні стекла, що прозорі саме в цих спектральних діапазонах.

Фарадеївська оптична активність у лужно-боратних стеклах LiKB_4O_7 , $\text{Li}_2\text{B}_6\text{O}_{10}$ та $\text{LiCsB}_6\text{O}_{10}$ досліджувалася за допомогою експериментальної установки на основі однопроменевого поляриметра (Рисунок 2.1).

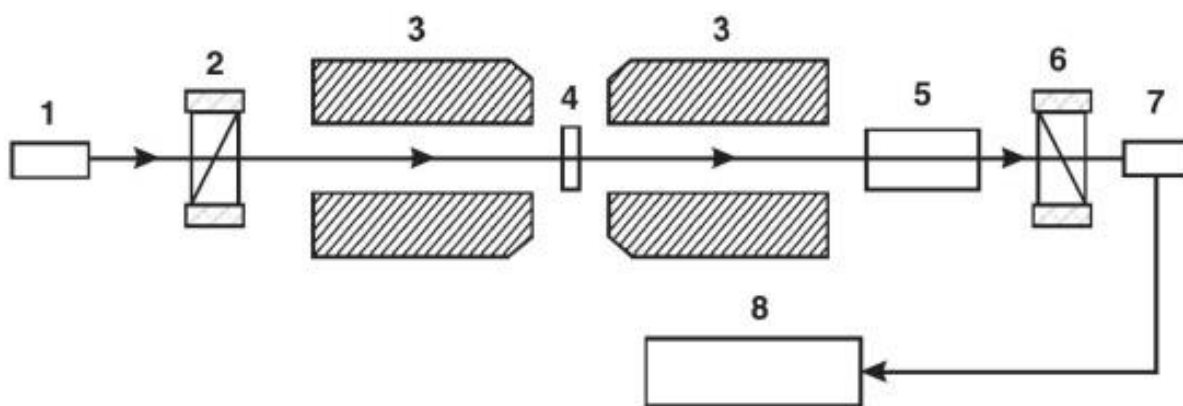


Рисунок 2.1. Схема експериментальної установки для дослідження магнітооптичного ефекту Фарадея: 1 – He-Ne лазер ($\lambda = 632,8$ нм); 2 і 6 – поляризатори Глана-Томсона; 3 – електромагніт; 4 – досліджуваний зразок; 5 – модулятор Фарадея; 7 – фотопомножувач; 8 – осцилограф [84].

Константа Верде V_F та коефіцієнт Фарадея F розраховувалися за формулами

$$V_F = \frac{1}{\mu_0} \left(\frac{\rho}{H} \right), \quad F = \frac{\lambda}{\pi n^3} \left(\frac{\rho}{H} \right), \quad (2.3)$$

де $\rho = \varphi/d$ – питомий поворот площини поляризації світла; φ – загальний кут повороту площини поляризації світла, виміряний в експерименті; H – напруженість магнітного поля вздовж напрямку поширення світла, d – товщина досліджуваного зразка вздовж напрямку поширення світла, n – показник заломлення, $\mu_0 = 4\pi \times 10^{-7}$ Гн/м – магнітна стала.

Показники заломлення для лужно-боратних стекол LiKB_4O_7 , $\text{Li}_2\text{B}_6\text{O}_{10}$ та $\text{LiCsB}_6\text{O}_{10}$ при $\lambda = 632,8$ нм дорівнюють 1,519, 1,527 та 1,516 відповідно [78]. Типові середні розміри досліджуваних зразків становили близько $0,7 \times 4 \times 5$ см³. Усі стекла були прозорі, безбарвні та достатньо високої оптичної якості. Щоб переконатися у відсутності в них залишкових напружень (й відповідного оптичного двозаломлення), фарадеївська оптична активність досліджувалася при різних азимутах площини поляризації падаючого світла [84].

Результати експериментальних досліджень фарадеївської оптичної активності для стекол LiKB_4O_7 (Рисунок 2.2), $\text{LiCsB}_6\text{O}_{10}$ (Рисунок 2.3) та $\text{Li}_2\text{B}_6\text{O}_{10}$ (Рисунок 2.4), проведених для різних азимутів площини поляризації падаючого світла, показали, що, незалежно від величини цього азимута, питомі кути повороту Фарадея є однаковими, що свідчить про ізотропність та однорідність досліджуваних лужно-боратних стекол [84].

Як можна бачити, константи Верде лужно-боратних стекол LiKB_4O_7 , $\text{LiCsB}_6\text{O}_{10}$ та $\text{Li}_2\text{B}_6\text{O}_{10}$ істотно не відрізняються (Таблиця 2.1). В свою чергу, стекла $\text{LiCsB}_6\text{O}_{10}$ та $\text{Li}_2\text{B}_6\text{O}_{10}$ мають дещо вищі магнітооптичні коефіцієнти, аніж скло LiKB_4O_7 .

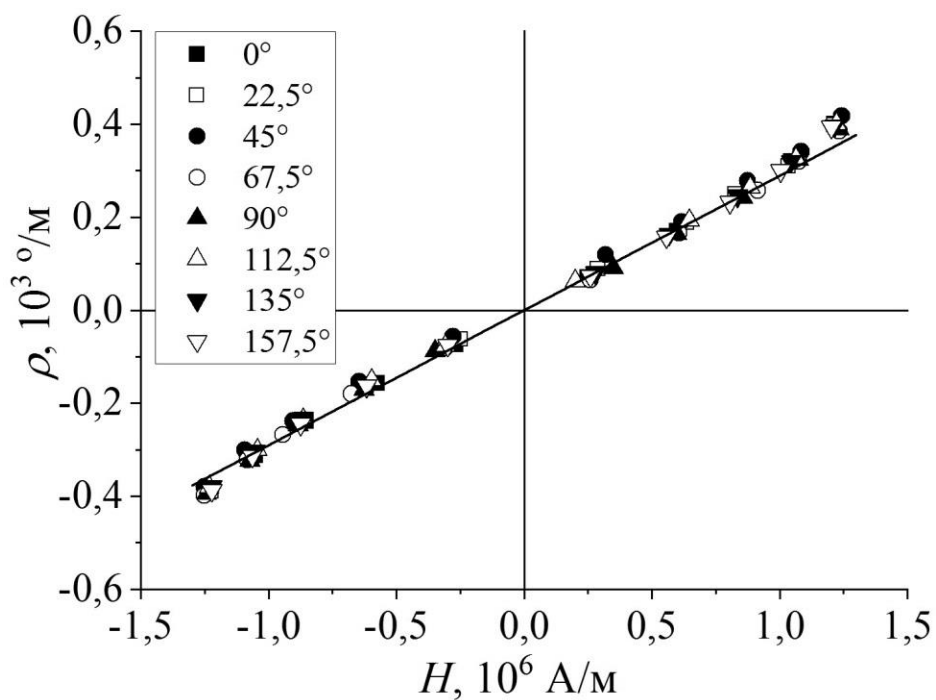


Рисунок 2.2. Залежності $\rho = \rho(H)$ для скла LiKB_4O_7 при різних азимутах площини поляризації падаючого світла: суцільна пряма – інтерполяція лінійною функцією [84].

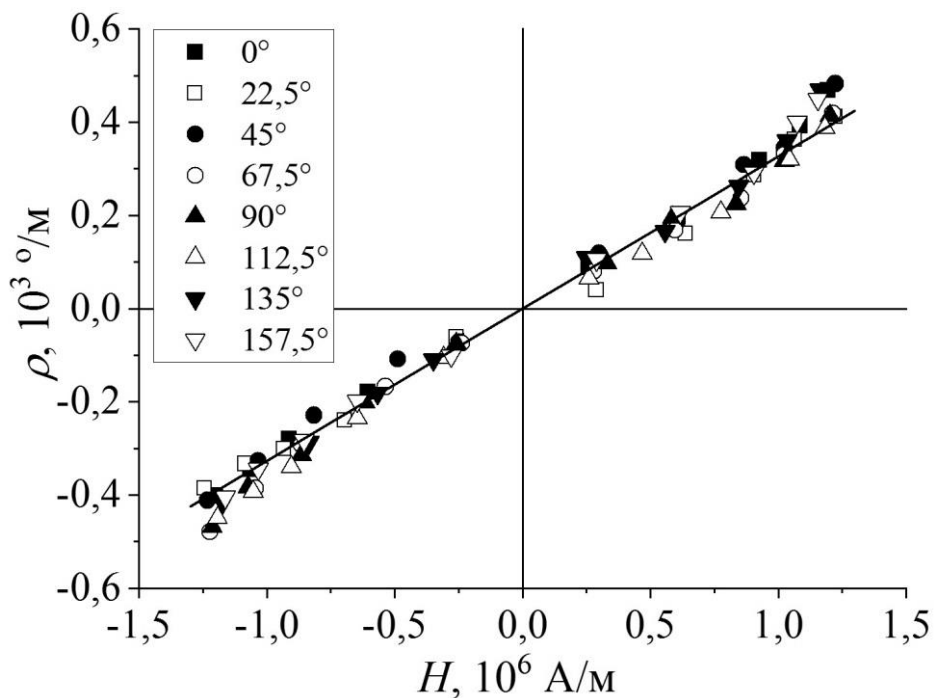


Рисунок 2.3. Залежності $\rho = \rho(H)$ для скла $\text{LiCsB}_6\text{O}_{10}$ при різних азимутах площини поляризації падаючого світла: суцільна пряма – інтерполяція лінійною функцією [84].

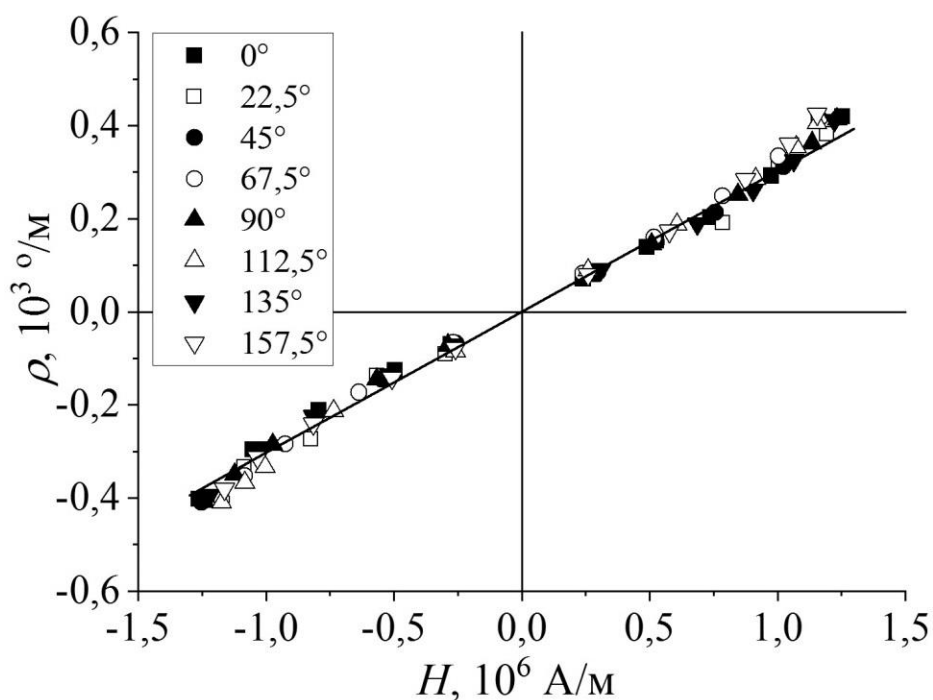


Рисунок 2.4. Залежність $\rho = \rho(H)$ для скла $\text{Li}_2\text{B}_6\text{O}_{10}$ при різних азимутах площини поляризації падаючого світла: суцільна пряма – інтерполяція лінійною функцією [84].

Таблиця 2.1. Константи Верде V_F та магнітооптичні коефіцієнти Фарадея F , експериментально отримані для стекол LiKB_4O_7 , $\text{LiCsB}_6\text{O}_{10}$ та $\text{Li}_2\text{B}_6\text{O}_{10}$ при $\lambda = 632,8$ нм [84].

Хімічний склад скла	$V_F, (\text{Тл} \times \text{м})^{-1}$	$F, 10^{-13} \text{ м/А}$
LiKB_4O_7	$4,02 \pm 0,29$	$2,91 \pm 0,21$
$\text{LiCsB}_6\text{O}_{10}$	$4,53 \pm 0,47$	$3,22 \pm 0,34$
$\text{Li}_2\text{B}_6\text{O}_{10}$	$4,21 \pm 0,34$	$3,06 \pm 0,25$

Порівняємо отримані магнітооптичні параметри досліджуваних лужно-боратних стекол з аналогічними параметрами відомих магнітооптичних матеріалів. Так, наприклад, константа Верде дорівнює $115 (\text{Тл} \times \text{м})^{-1}$ для кристалів $\text{Sn}_2\text{P}_2\text{S}_6$ [85], $187 (\text{Тл} \times \text{м})^{-1}$ для кристалів ZnTe та $147 (\text{Тл} \times \text{м})^{-1}$ для кристалів Cu_2O [80]. Один з найкращих магнітооптичних матеріалів, кристал $\text{Tb}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$, характеризується константами Верде $134 (\text{Тл} \times \text{м})^{-1}$ на довжині хвилі 632,8 нм та $36,4 (\text{Тл} \times \text{м})^{-1}$ на довжині хвилі 1053 нм [83]. Як можна бачити, наведені вище магнітооптичні параметри суттєво перевищують константи

Верде лужно-боратних стекел LiKB_4O_7 , $\text{LiCsB}_6\text{O}_{10}$ та $\text{Li}_2\text{B}_6\text{O}_{10}$. Тим не менше, вони виявляють деякі переваги в порівнянні зі згаданими вище кристалами. А саме, лужно-боратні стекла нетоксичні, прості в отриманні, прозорі в широкому спектральному діапазоні, в тому числі ультрафіолетовому, й, крім того, мають високу стійкість до потужного лазерного випромінювання.

2.1.2. Кристали Tl_3AsS_4

Кристал Tl_3AsS_4 є оптично двовісним орторомбічним кристалом, який належить до точкової групи симетрії mmm [57]. При цьому його головні показники заломлення дорівнюють $n_a^g = 2,829$, $n_b^p = 2,774$ та $n_c^m = 2,825$ при $\lambda = 632,8$ нм [57], а структура характеризується чотирма формульними одиницями на елементарну комірку [86]. Параметри елементарної комірки кристалу Tl_3AsS_4 дорівнюють $a = 8,98$ Å, $b = 10,8$ Å та $c = 8,86$ Å [57, 58] – тобто, виконується типова для неполярних орторомбічних кристалів нерівність $c < a < b$. Кристал Tl_3AsS_4 прозорий у спектральному діапазоні 0,6–12 мкм [57].

Незважаючи на наявну інформацію про низку фізичних властивостей кристалів Tl_3AsS_4 , ці кристали не були вивчені достатньо детально, й відповідні літературні дані є до сих пір недостатніми. Так, зокрема, можна припустити, що кристали Tl_3AsS_4 можуть бути ефективно використані в інших галузях оптоелектроніки, відмінних від акустооптики. В цих кристалах, які є центросиметричними, не можуть проявлятися такі оптичні ефекти, як лінійний електрооптичний ефект (ефект Покеельса) або генерація другої оптичної гармоніки. З іншого боку, симетрією кристалів Tl_3AsS_4 допускаються ефекти індукованої оптичної активності – зокрема, ефект Фарадея.

При кімнатній температурі та для довжини оптичної хвилі $\lambda = 632,8$ нм площа, що містить оптичні осі кристалу Tl_3AsS_4 , збігається з кристалографічною площиною ab , де вісь b являє собою гостру бісектрису кута $2\Theta = (28,46 \pm 0,10)^\circ$ [56] між оптичними осями. Це значення добре узгоджується зі значенням $2\Theta = 29,76^\circ$, яке було розраховане за показниками заломлення

кристалів Ti_3AsS_4 [57].

Для випадку точкової групи симетрії mmm тензор Фарадея в системі координат, пов'язаній з головними осями X , Y , Z еліпсоїда оптичної індикатриси, набуває наступного вигляду [87]:

$$\mathbf{F} = \begin{bmatrix} F_{11} & 0 & 0 \\ 0 & F_{22} & 0 \\ 0 & 0 & F_{33} \end{bmatrix}. \quad (2.4)$$

При цьому осі X , Y та Z відповідають кристалографічним осям a , b та c кристалів Ti_3AsS_4 . Запишемо тензор Фарадея $\mathbf{F}$, заданий рівнянням (2.4), в системі координат $X'Y'Z'$ з використанням матриці повороту $\mathbf{C}$ навколо осі $Z \equiv Z'$ на кут Θ , яка задається наступним співвідношенням:

$$\mathbf{C} = \begin{bmatrix} \cos \Theta & -\sin \Theta & 0 \\ \sin \Theta & \cos \Theta & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix}. \quad (2.5)$$

В такому випадку тензор $\mathbf{F}'$ буде дорівнювати:

$$\begin{aligned} \mathbf{F}' &= \mathbf{C}'\mathbf{F}\mathbf{C} = \\ &= \begin{bmatrix} \cos \Theta & \sin \Theta & 0 \\ -\sin \Theta & \cos \Theta & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} F_{11} & 0 & 0 \\ 0 & F_{22} & 0 \\ 0 & 0 & F_{33} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \cos \Theta & -\sin \Theta & 0 \\ \sin \Theta & \cos \Theta & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} = \\ &= \begin{bmatrix} \cos \Theta & \sin \Theta & 0 \\ -\sin \Theta & \cos \Theta & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} F_{11} \cos \Theta & -F_{11} \sin \Theta & 0 \\ F_{22} \sin \Theta & F_{22} \cos \Theta & 0 \\ 0 & 0 & F_{33} \end{bmatrix} = \\ &= \begin{bmatrix} F_{11} \cos^2 \Theta + F_{22} \sin^2 \Theta & (F_{22} - F_{11}) \sin \Theta \cos \Theta & 0 \\ (F_{22} - F_{11}) \sin \Theta \cos \Theta & F_{11} \sin^2 \Theta + F_{22} \cos^2 \Theta & 0 \\ F_{11} \sin \Theta \cos \Theta & -F_{11} \sin^2 \Theta & F_{33} \end{bmatrix}. \end{aligned} \quad (2.6)$$

Коли лінійно-поляризована оптична хвиля падає на кристал Ti_3AsS_4 вздовж напрямку Y' (тобто, вздовж однієї з його оптичних осей) та вздовж цього ж самого напрямку прикладено зовнішнє магнітне поле з напруженістю $H_{Y'}$, ефект Фарадея у вищевказаній геометрії експерименту проявляється виключно як поворот площини поляризації лінійно-поляризованого світла, питома величина $\Delta\rho_{Y'}$ якого, з врахуванням співвідношення (2.2), дорівнює

$$\Delta\rho_{Y'} = \frac{\pi n_c^3}{\lambda} F'_{22} H_{Y'}, \quad (2.7)$$

де F'_{22} позначає ефективний коефіцієнт Фарадея, який відповідає системі координат $X'Y'Z'$:

$$F'_{22} = F_{11} \sin^2 \Theta + F_{22} \cos^2 \Theta = 0,06 F_{11} + 0,94 F_{22} = \frac{\lambda}{\pi n_c^3} \left(\frac{\Delta\rho_{Y'}}{H_{Y'}} \right). \quad (2.8)$$

Константа Верде V_F для кристалу Ti_3AsS_4 визначається співвідношенням

$$V_F = \frac{1}{\mu_0} \left(\frac{\Delta\rho_{Y'}}{H_{Y'}} \right). \quad (2.9)$$

Отже, можна визначити ефективний коефіцієнт Фарадея F'_{22} для кристалів Ti_3AsS_4 , використовуючи просту та пряму техніку для вимірювання оптичної активності при поширенні світла вздовж однієї з оптичних осей [87].

Для експериментального дослідження фарадеївської оптичної активності застосовується однопроменева поляриметрична схема (Рисунок 2.1). При цьому плоскопаралельна кристалічна пластина, розміщена між полюсами електромагніту, який створює поздовжнє магнітне поле, орієнтується таким чином, щоб центр коноскопичних кілець співпадав з центром світлового променя. Товщина кристалічного зразка вздовж напрямку поширення світла

(тобто, вздовж однієї з оптичних осей) становить $d = 2,83$ мм.

Залежність зміни (приросту) оптичної активності від напруженості зовнішнього магнітного поля (2.7) для кристалів Tl_3AsS_4 (Рисунок 2.5) є фактично лінійною, як це й повинно бути у випадку фарадеївської оптичної активності. Ефективний коефіцієнт Фарадея F'_{22} , розрахований за допомогою стандартної процедури лінійної інтерполяції експериментальних даних, дорівнює $(9,23 \pm 0,21) \times 10^{-13}$ м/А, тоді як відповідна константа Верде V_F становить $(82,21 \pm 1,82) (\text{Тл} \times \text{м})^{-1}$. Вищевказані значення є достатньо високими, щоб кристали Tl_3AsS_4 можна було достовірно віднести до одних з найбільш ефективних магнітооптичних матеріалів (принаймні, серед магнітно-невпорядкованих кристалічних матеріалів). Й дійсно, константа Верде для кристалів Tl_3AsS_4 є співмірною з відповідними характеристиками таких відомих магнітооптичних матеріалів, як кристали $\text{Sn}_2\text{P}_2\text{S}_6$ [85], $\text{Tb}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$ [83], ZnTe та Cu_2O [80], а також суттєво перевищує константи Верде для лужно-боратних стекел LiKB_4O_7 , $\text{LiCsB}_6\text{O}_{10}$ та $\text{Li}_2\text{B}_6\text{O}_{10}$.

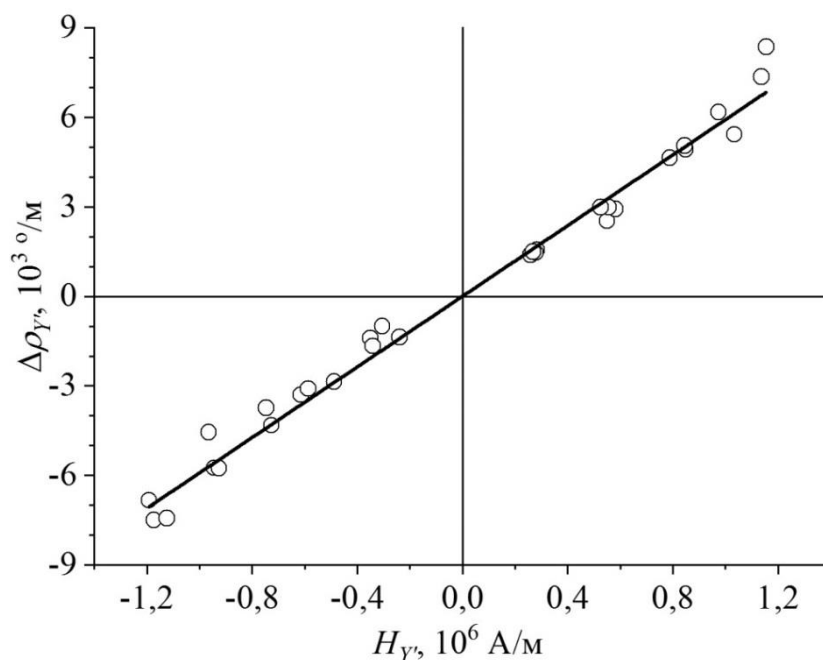


Рисунок 2.5. Залежність $\Delta\rho = \Delta\rho(H)$ для кристалів Tl_3AsS_4 при $\lambda = 632,8$ нм: суцільна пряма – інтерполяція лінійною функцією [87].

2.1.3. Кристали $\text{AgGaGe}_3\text{Se}_8$ та AgGaGeS_4

Одним з представників групи комплексних халькогенідів $\text{AgGaGe}_n\text{Se}_{2(n+1)}$ (твердих розчинів у системі $\text{AgGaSe}_2 - n\text{GeSe}_2$, де $n \in \mathbb{N}$) є кристали $\text{AgGaGe}_3\text{Se}_8$ ($n = 3$) [88].

Головні показники заломлення кристалу $\text{AgGaGe}_3\text{Se}_8$ дорівнюють $n_a = 2,769$, $n_b = 2,761$ та $n_c = 2,602$ при $\lambda = 632,8$ нм [88]. Кристалічна ґратка кристалу $\text{AgGaGe}_3\text{Se}_8$ може бути представлена у вигляді кластера, утвореного атомами Se, що оточують статистичну суміш $0,25\text{Ga}+0,75\text{Ge}$; при цьому атоми Ag розташовані в порожнечках кластерів [89]. Загалом кристали $\text{AgGaGe}_3\text{Se}_8$ є прозорими в спектральному діапазоні 600–16000 нм, хоча й мають низку піків поглинання, розташованих на довжинах хвиль 2844,1; 10020,0; 12853,5 та 13297,9 нм [90, 91].

Низка попередніх досліджень показала, що сполука $\text{AgGaGe}_3\text{Se}_8$ являє собою матеріал, який можна використовувати в різних галузях оптичної промисловості. Так, зокрема, електричні, оптичні та термоелектричні властивості кристалів $\text{AgGaGe}_3\text{Se}_8$ вказують на те, що вони можуть знайти своє практичне застосування в нелінійній оптиці та виготовленні гетеропереходів [92]. Дослідження групи комплексних халькогенідів $\text{AgGaGe}_n\text{Se}_{2(n+1)}$ показали, що кристал $\text{AgGaGe}_3\text{Se}_8$ займає в ній особливе місце та заслуговує на подальшу увагу, особливо щодо стабільності його складу в процесі росту [88]. Дослідження фотоіндукованої анізотропії в кристалах $\text{AgGaGe}_3\text{Se}_8:\text{Cu}$ для довжин хвиль 532 та 1300 нм виявили фотоіндуковані зміни, характерні для неупорядкованих матеріалів, хоча необоротний фон в цих кристалах є меншим, ніж той, що спостерігається для неупорядкованих речовин; крім того, кристали $\text{AgGaGe}_3\text{Se}_8:\text{Cu}$ є більш стійкими до лазерного опромінення [89]. Спектральна кінетика, викликана в кристалах $\text{AgGaGe}_3\text{Se}_8:\text{Cu}$ інфрачервоним лазером ($\lambda = 10600$ нм), може бути використана для керування густиною потужності CO_2 -лазерів [93]. Зворотний п'єзоелектричний ефект, фотоіндукований в кристалах $\text{AgGaGe}_3\text{Se}_8$ для $\lambda = 532$ нм, також може бути застосований у

лазерно-керованих п'єзотронних пристроях [94]. У той самий час інші оптичні (зокрема, магнітооптичні) властивості кристалів $\text{AgGaGe}_3\text{Se}_8$ вивчені набагато менш детально.

Кристали AgGaGeS_4 є єдиною четвертинною сполукою в псевдотрійній системі $\text{Ag}_2\text{S} - \text{Ga}_2\text{S}_3 - \text{GeS}_2$ [95]. Параметри елементарної комірки кристалу AgGaGeS_4 дорівнюють $a = 12,028 \text{ \AA}$, $b = 22,918 \text{ \AA}$ та $c = 6,874 \text{ \AA}$ ($Z = 12$), а її густина становить $3,80 \times 10^3 \text{ кг/м}^3$ [96]. Сполука AgGaGeS_4 є високоопірним напівпровідником з питомою провідністю $\sigma = 1,67 \times 10^{-7} (\text{Ом} \times \text{м})^{-1}$ при 300 К; при цьому вона являє собою слабо виражений матеріал p -типу [97]. Відомо також, що кристал AgGaGeS_4 є прозорим у середньому інфрачервоному спектральному діапазоні (0,5–11,5 мкм) із шириною забороненої зони $E_g = 2,78 \text{ eV}$ [98, 99]. Виявляючи досить високі оптичні сприйнятливості другого порядку ($d_{31} = 15 \times 10^{-12} \text{ м/В}$, $d_{32} = 8 \times 10^{-12} \text{ м/В}$ та $d_{33} = 8 \times 10^{-12} \text{ м/В}$ [96]), кристал AgGaGeS_4 є привабливим для генерації оптичних гармонік й, зокрема, для застосування в параметричних осциляторах [96, 100–102]. Крім того, попередні дослідження показали, що кристали AgGaGeS_4 можна використовувати в багатьох інших оптичних пристроях. Так, наприклад, застосування кристалів AgGaGeS_4 для перетворення частоти в пристроях лідарного зондування атмосфери дозволить генерувати оптичне випромінювання в діапазоні 1,5–4,0 мкм, де присутні сильні смуги поглинання низки атмосферних газів [103]. Дослідження радіаційної стійкості кристалу AgGaGeS_4 показали, що поріг його лазерного пошкодження становить $2,5 \times 10^{12} \text{ Вт/м}^2$ для імпульсів з тривалістю $3 \times 10^{-8} \text{ с}$ та довжиною хвилі 1,064 мкм [98].

Дисперсію показників заломлення для кристалів AgGaGeS_4 у видимому та середньому інфрачервоному спектральних діапазонах досліджено в роботі [104]. В результаті було виявлено, що показник заломлення n_c , відповідний полярній осі симетрії другого порядку, є меншим, ніж показники заломлення n_a та n_b , тоді як значення n_a та n_b є дуже близькими й стають рівними при 548 нм та 7565 нм. Так, наприклад, $n_c = 2,3706$, $n_b = 2,4355$ та $n_a = 2,4362$ для довжини

оптичної хвилі $\lambda = 0,6$ мкм. Обидві оптичні осі в кристалі AgGaGeS_4 лежать в площині ac в спектральній області, обмеженій довжинами хвиль 548 нм та 7565 нм. Кристал AgGaGeS_4 стає оптично одновісним саме на довжинах хвиль 548 нм та 7565 нм, а його оптичні осі лежать в площині bc нижче 548 нм та вище 7565 нм.

Наскільки відомо, оптичні дослідження кристалів AgGaGeS_4 досі обмежувалися лише дослідженнями показників заломлення, оптичного поглинання та нелінійних оптичних властивостей. Натомість магнітооптичні властивості кристалів AgGaGeS_4 до сих пір не досліджені, незважаючи на те, що ефект Фарадея може відігравати важливу роль у процесі параметричної генерації [104] – зокрема, для кристалів, які виявляють так звані "ізотропні" точки для певних довжин світлових хвиль. З іншого боку, магнітооптичні властивості можна успішно досліджувати за допомогою оптичних параметричних генераторів як керованих джерел світла [105]. До того ж, фарадеївська оптична активність має самостійне значення у сфері контролю оптичного випромінювання (й взагалі, відсутність інформації про константи Верде для багатьох оптичних матеріалів є суттєвою проблемою в оптиці).

За нормальних умов та для довжини оптичної хвилі $\lambda = 632,8$ нм кристали $\text{AgGaGe}_3\text{Se}_8$ та AgGaGeS_4 є оптично двовісними та належать до точкової групи симетрії $mm2$ [88, 96, 99]. При цьому площа, яка містить оптичні осі, збігається з кристалографічною площиною ca для кристалів $\text{AgGaGe}_3\text{Se}_8$ та кристалографічною площиною ac для кристалів AgGaGeS_4 . Вісь c являє собою гостру бісектрису кута 2Θ між оптичними осями цих кристалів. Головні показники заломлення, розраховані для $\lambda = 632,8$ нм на основі формули Зелмайєра, дорівнюють $n_a = 2,769$, $n_b = 2,761$ й $n_c = 2,602$ для кристалу $\text{AgGaGe}_3\text{Se}_8$ та $n_a = 2,421$, $n_b = 2,420$ й $n_c = 2,358$ для кристалу AgGaGeS_4 . Кут Θ між оптичними осями та віссю c був визначений як $11,6^\circ$ для кристалу $\text{AgGaGe}_3\text{Se}_8$ та $7,3^\circ$ для кристалу AgGaGeS_4 [88, 101, 103].

Для точкової групи симетрії $mm2$ тензор Фарадея в системі координат, пов'язаній з головними осями X , Y , Z еліпсоїда оптичної індикатрисы, дорівнює

$$\mathbf{F} = \begin{bmatrix} F_{11} & 0 & 0 \\ 0 & F_{22} & 0 \\ 0 & 0 & F_{33} \end{bmatrix}. \quad (2.10)$$

При цьому осі X , Y та Z відповідають кристалографічним осям c , b та a кристалів $\text{AgGaGe}_3\text{Se}_8$ [106] й кристалографічним осям a , b та c кристалів AgGaGeS_4 [107].

Запишемо тензор Фарадея $\mathbf{F}$, заданий рівнянням (2.10), в системі координат $X'Y'Z'$ з використанням матриці повороту $\mathbf{C}$ навколо осі $Y \equiv Y'$ на кут Θ , яка задається наступним співвідношенням:

$$\mathbf{C} = \begin{bmatrix} \cos \Theta & 0 & \sin \Theta \\ 0 & 1 & 0 \\ -\sin \Theta & 0 & \cos \Theta \end{bmatrix}. \quad (2.11)$$

Тоді тензор $\mathbf{F}'$ буде мати вигляд:

$$\begin{aligned} \mathbf{F}' &= \mathbf{C}'\mathbf{F}\mathbf{C} = \\ &= \begin{bmatrix} \cos \Theta & 0 & -\sin \Theta \\ 0 & 1 & 0 \\ \sin \Theta & 0 & \cos \Theta \end{bmatrix} \begin{bmatrix} F_{11} & 0 & 0 \\ 0 & F_{22} & 0 \\ 0 & 0 & F_{33} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \cos \Theta & 0 & \sin \Theta \\ 0 & 1 & 0 \\ -\sin \Theta & 0 & \cos \Theta \end{bmatrix} = \\ &= \begin{bmatrix} \cos \Theta & 0 & -\sin \Theta \\ 0 & 1 & 0 \\ \sin \Theta & 0 & \cos \Theta \end{bmatrix} \begin{bmatrix} F_{11} \cos \Theta & 0 & F_{11} \sin \Theta \\ 0 & F_{22} & 0 \\ -F_{33} \sin \Theta & 0 & F_{33} \cos \Theta \end{bmatrix} = \\ &= \begin{bmatrix} F_{11} \cos^2 \Theta + F_{33} \sin^2 \Theta & 0 & (F_{11} - F_{33}) \sin \Theta \cos \Theta \\ 0 & F_{22} & 0 \\ (F_{11} - F_{33}) \sin \Theta \cos \Theta & 0 & F_{33} \cos^2 \Theta + F_{11} \sin^2 \Theta \end{bmatrix}. \end{aligned} \quad (2.12)$$

Коли лінійно-поляризована оптична хвиля падає на кристал $\text{AgGaGe}_3\text{Se}_8$ вздовж напрямку X' (тобто, вздовж однієї з його оптичних осей) та вздовж цього ж самого напрямку прикладено зовнішнє магнітне поле з напруженістю

$H_{X'}$, ефект Фарадея у вищевказаній геометрії експерименту проявляється виключно як поворот площини поляризації лінійно-поляризованого світла, питома величина $\Delta\rho_{X'}$ якого, з врахуванням співвідношення (2.12), дорівнює

$$\Delta\rho_{X'} = \frac{\pi n_b^3}{\lambda} F'_{11} H_{X'}, \quad (2.13)$$

де F'_{11} позначає ефективний коефіцієнт Фарадея, який відповідає системі координат $X'Y'Z'$ [106]:

$$F'_{11} = F_{11} \cos^2 \Theta + F_{33} \sin^2 \Theta = 0,96F_{11} + 0,04F_{33} = \frac{\lambda}{\pi n_b^3} \left(\frac{\Delta\rho_{X'}}{H_{X'}} \right). \quad (2.14)$$

В свою чергу, константа Верде V_F для кристалу $\text{AgGaGe}_3\text{Se}_8$ визначається виразом

$$V_F = \frac{1}{\mu_0} \left(\frac{\Delta\rho_{X'}}{H_{X'}} \right). \quad (2.15)$$

З іншого боку, коли лінійно-поляризована оптична хвиля падає на кристал AgGaGeS_4 вздовж напрямку Z' (тобто, вздовж однієї з його оптичних осей) та вздовж цього ж самого напрямку прикладено зовнішнє магнітне поле з напруженістю $H_{Z'}$, ефект Фарадея у вищевказаній геометрії експерименту проявляється виключно як поворот площини поляризації лінійно-поляризованого світла, питома величина $\Delta\rho_{Z'}$ якого, з врахуванням співвідношення (2.12), дорівнює

$$\Delta\rho_{Z'} = \frac{\pi n_b^3}{\lambda} F'_{33} H_{Z'}, \quad (2.16)$$

де F'_{33} позначає ефективний коефіцієнт Фарадея, який відповідає системі координат $X'Y'Z'$ [107]:

$$F'_{33} = F_{33} \cos^2 \Theta + F_{11} \sin^2 \Theta = 0,98F_{33} + 0,02F_{11} = \frac{\lambda}{\pi n_b^3} \left(\frac{\Delta \rho_{Z'}}{H_{Z'}} \right). \quad (2.17)$$

В свою чергу, константа Верде V_F для кристалу AgGaGeS_4 визначається виразом

$$V_F = \frac{1}{\mu_0} \left(\frac{\Delta \rho_{Z'}}{H_{Z'}} \right). \quad (2.18)$$

Експериментальні процедури, що застосовуються для дослідження фарадеївської оптичної активності в кристалах $\text{AgGaGe}_3\text{Se}_8$ та AgGaGeS_4 , аналогічні тим, які були використані для випадку кристалів Tl_3AsS_4 . При цьому товщина кристалічного зразка вздовж напрямку поширення світла d складає 1,63 мм для кристалу $\text{AgGaGe}_3\text{Se}_8$ та 11,12 мм для кристалу AgGaGeS_4 .

Залежності зміни (приросту) оптичної активності від напруженості зовнішнього магнітного поля для кристалів $\text{AgGaGe}_3\text{Se}_8$ (Рисунок 2.6) та AgGaGeS_4 (Рисунок 2.7) є фактично лінійними, що відповідає випадку виключно фарадеївської оптичної активності. З цих залежностей з використанням стандартної процедури лінійної інтерполяції експериментальних даних розраховуються ефективні коефіцієнти Фарадея $F'_{11} = (8,36 \pm 0,33) \times 10^{-13}$ м/А для кристалів $\text{AgGaGe}_3\text{Se}_8$ та $F'_{33} = (1,40 \pm 0,04) \times 10^{-13}$ м/А для кристалів AgGaGeS_4 . При цьому константи Верде V_F для кристалів $\text{AgGaGe}_3\text{Se}_8$ та AgGaGeS_4 становлять $(69,54 \pm 2,78) (\text{Тл} \times \text{м})^{-1}$ та $(7,83 \pm 0,21) (\text{Тл} \times \text{м})^{-1}$ відповідно.

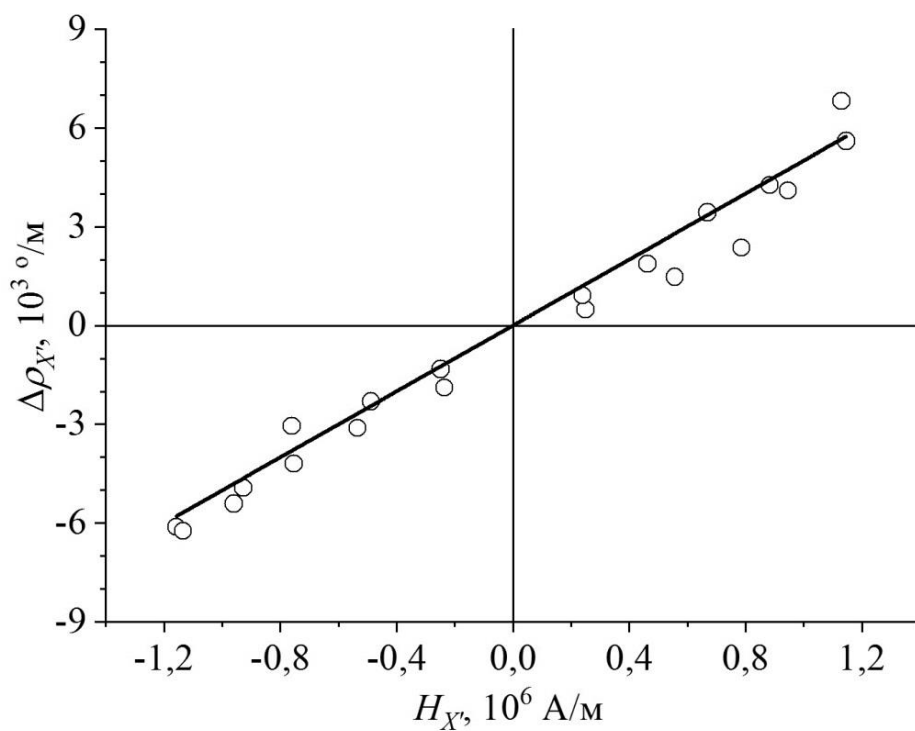


Рисунок 2.6. Залежність $\Delta\rho = \Delta\rho(H)$ для кристалів $\text{AgGaGe}_3\text{Se}_8$ при $\lambda = 632,8 \text{ нм}$: суцільна пряма – інтерполяція лінійною функцією [106].

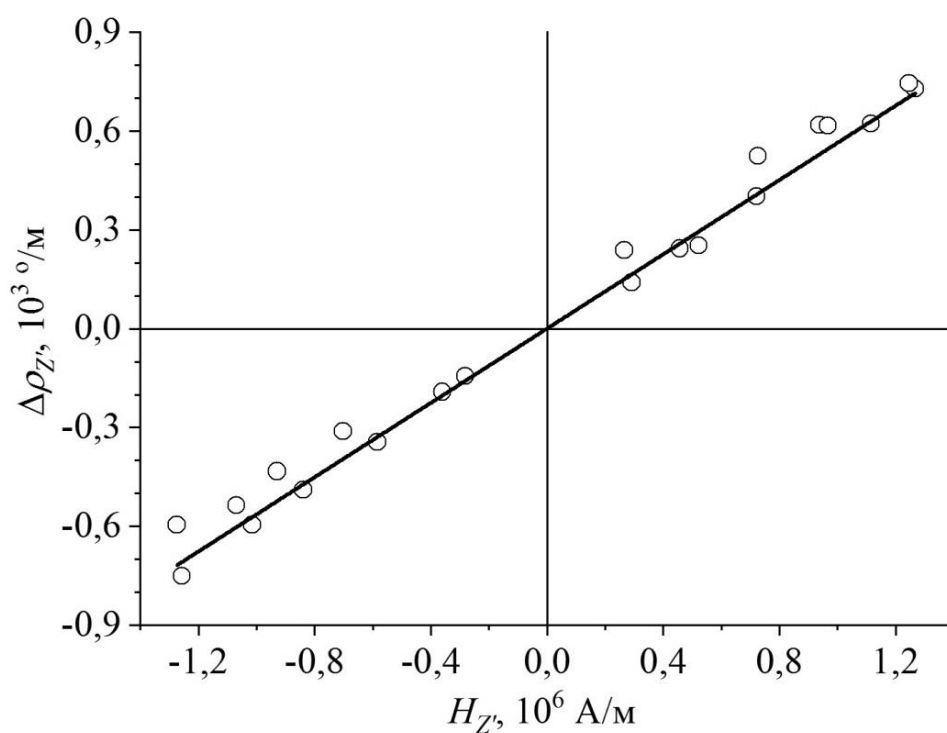


Рисунок 2.7. Залежність $\Delta\rho = \Delta\rho(H)$ для кристалів AgGaGeS_4 при $\lambda = 632,8 \text{ нм}$: суцільна пряма – інтерполяція лінійною функцією [107].

При порівнянні вищевказаних експериментальних результатів з даними, наведеними у параграфі 2.1.2 для відомих магнітооптичних матеріалів, можна зробити висновок про те, що кристали $\text{AgGaGe}_3\text{Se}_8$, на відміну від кристалів AgGaGeS_4 , слід класифікувати як ефективний магнітооптичний матеріал, принаймні серед магнітно-невпорядкованих кристалічних речовин, з огляду на те, що магнітооптичні параметри кристалів $\text{AgGaGe}_3\text{Se}_8$ близькі до відповідних параметрів кристалів Tl_3AsS_4 та $\text{Sn}_2\text{P}_2\text{S}_6$.

2.1.4. Тверді розчини $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$

Основні оптичні характеристики твердих розчинів $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ наведені в параграфі 2.2.3. Оскільки кути між оптичними осями в твердих розчинах $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ є достатньо малими [108], дослідження фарадеївської оптичної активності в цих твердих розчинах в певному наближенні можуть здійснюватися в поздовжній геометрії експерименту – тобто, в геометрії, коли вектор напруженості зовнішнього магнітного поля та хвильовий вектор оптичного випромінювання паралельні кристалографічній осі c .

За нормальних умов та для довжини оптичної хвилі $\lambda = 632,8$ нм площа оптичних осей усіх твердих розчинів $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ при $0 \leq x \leq 0,25$ збігається з кристалографічною площиною sa , де кристалографічна вісь c являє собою гостру бісектрису кута 2Θ між оптичними осями. При цьому для досліджуваних зразків твердих розчинів $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ з товщиною d вздовж напрямку поширення світла (тобто, вздовж однієї з оптичних осей) кут Θ між оптичними осями та віссю c був виміряний експериментально (Таблиця 2.2).

Таблиця 2.2. Основні параметри досліджуваних зразків твердих розчинів $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ при $\lambda = 632,8$ нм [109].

x	0	0,02	0,06	0,10	0,15	0,25
$d, 10^{-3}$ м	1,92	0,91	1,35	3,55	1,42	1,71
$\Theta, ^\circ$	1,3	1,7	1,4	1,3	1,5	0,9

Для випадку точкової групи симетрії $2/m$ тензор Фарадея в системі координат, пов'язаній з головними осями X , Y , Z еліпсоїда оптичної індикатриси, набуває наступного вигляду:

$$\mathbf{F} = \begin{bmatrix} F_{11} & F_{12} & 0 \\ F_{12} & F_{22} & 0 \\ 0 & 0 & F_{33} \end{bmatrix}. \quad (2.19)$$

При цьому осі X , Y та Z відповідають кристалографічним осям a , b та c твердих розчинів $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$.

Запишемо тензор Фарадея $\mathbf{F}$, заданий рівнянням (2.19), в системі координат $X'Y'Z'$ з використанням матриці повороту $\mathbf{C}$ навколо осі $Y \equiv Y'$ на кут Θ , яка задається наступним співвідношенням:

$$\mathbf{C} = \begin{bmatrix} \cos \Theta & 0 & \sin \Theta \\ 0 & 1 & 0 \\ -\sin \Theta & 0 & \cos \Theta \end{bmatrix}. \quad (2.20)$$

Тоді тензор $\mathbf{F}'$ буде мати вигляд:

$$\begin{aligned} \mathbf{F}' &= \mathbf{C}'\mathbf{F}\mathbf{C} = \\ &= \begin{bmatrix} \cos \Theta & 0 & -\sin \Theta \\ 0 & 1 & 0 \\ \sin \Theta & 0 & \cos \Theta \end{bmatrix} \begin{bmatrix} F_{11} & F_{12} & 0 \\ F_{12} & F_{22} & 0 \\ 0 & 0 & F_{33} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \cos \Theta & 0 & \sin \Theta \\ 0 & 1 & 0 \\ -\sin \Theta & 0 & \cos \Theta \end{bmatrix} = \\ &= \begin{bmatrix} \cos \Theta & 0 & -\sin \Theta \\ 0 & 1 & 0 \\ \sin \Theta & 0 & \cos \Theta \end{bmatrix} \begin{bmatrix} F_{11} \cos \Theta & F_{12} & F_{11} \sin \Theta \\ F_{12} \cos \Theta & F_{22} & F_{12} \sin \Theta \\ -F_{33} \sin \Theta & 0 & F_{33} \cos \Theta \end{bmatrix} = \\ &= \begin{bmatrix} F_{11} \cos^2 \Theta + F_{33} \sin^2 \Theta & F_{12} \cos \Theta & (F_{11} - F_{33}) \sin \Theta \cos \Theta \\ F_{12} \cos \Theta & F_{22} & F_{12} \sin \Theta \\ (F_{11} - F_{33}) \sin \Theta \cos \Theta & F_{12} \sin \Theta & F_{33} \cos^2 \Theta + F_{11} \sin^2 \Theta \end{bmatrix}. \end{aligned} \quad (2.21)$$

Якщо лінійно-поляризована оптична хвиля падає на кристал $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ вздовж напрямку Z' (тобто, вздовж однієї з їх оптичних осей) та вздовж цього ж самого напрямку прикладено зовнішнє магнітне поле з напруженістю $H_{Z'}$, ефект Фарадея в такій геометрії експерименту проявляється виключно як поворот площини поляризації лінійно-поляризованого світла, питома величина $\Delta\rho_{Z'}$ якого, з огляду на співвідношення (2.21), дорівнює

$$\Delta\rho_{Z'} = \frac{\pi n_b^3}{\lambda} F'_{33} H_{Z'}, \quad (2.22)$$

де F'_{33} позначає ефективний коефіцієнт Фарадея, який відповідає системі координат $X'Y'Z'$ [109]:

$$F'_{33} = F_{33} \cos^2 \Theta + F_{11} \sin^2 \Theta = \frac{\lambda}{\pi n_b^3} \left(\frac{\Delta\rho_{Z'}}{H_{Z'}} \right). \quad (2.23)$$

В свою чергу, константа Верде V_F для твердих розчинів $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ визначається виразом

$$V_F = \frac{1}{\mu_0} \left(\frac{\Delta\rho_{Z'}}{H_{Z'}} \right). \quad (2.24)$$

Експериментальні процедури, що застосовуються для дослідження фарадеївської оптичної активності в твердих розчинах $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$, аналогічні тим, які були використані для випадку кристалів Tl_3AsS_4 .

Експериментальні залежності зміни (приросту) оптичної активності $\Delta\rho_{Z'}$ на довжині хвилі $\lambda = 632,8$ нм від напруженості зовнішнього магнітного поля $H_{Z'}$, прикладеного до твердих розчинів $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ (Рисунок 2.8–Рисунок 2.10), було інтерпольовано за допомогою стандартної процедури лінійної регресії.

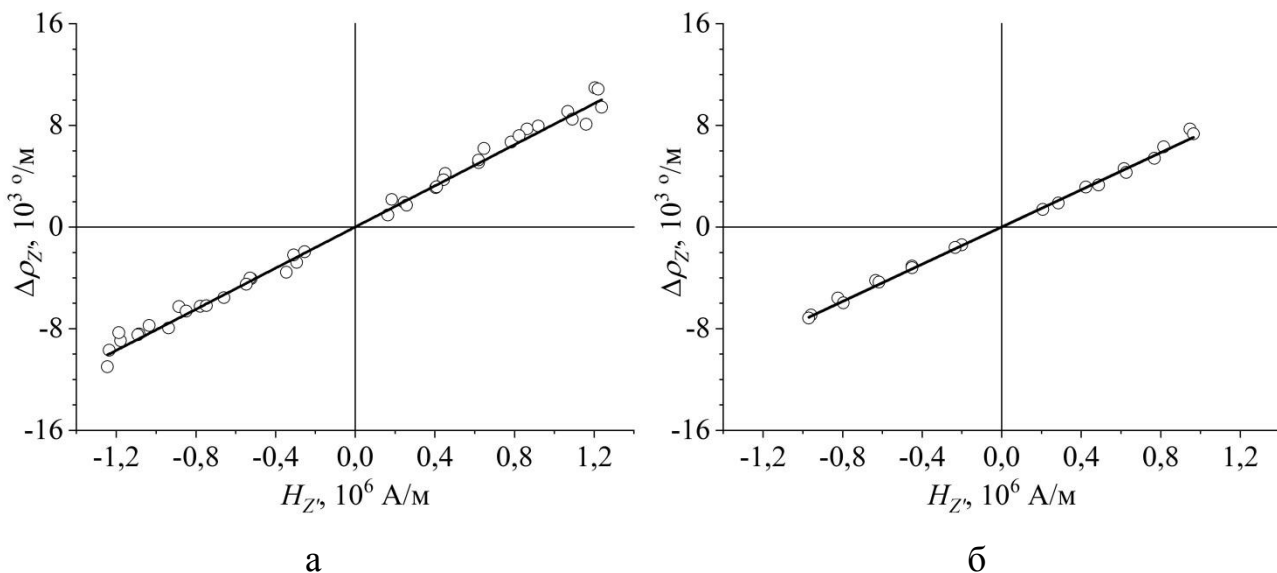


Рисунок 2.8. Залежності $\Delta\rho = \Delta\rho(H)$ для твердих розчинів $\beta\text{-TlInS}_2$ (а) та $\text{TlIn}(\text{S}_{0.98}\text{Se}_{0.02})_2$ (б) при $\lambda = 632,8$ нм: суцільні прямі – інтерполяції лінійними функціями [109, 110].

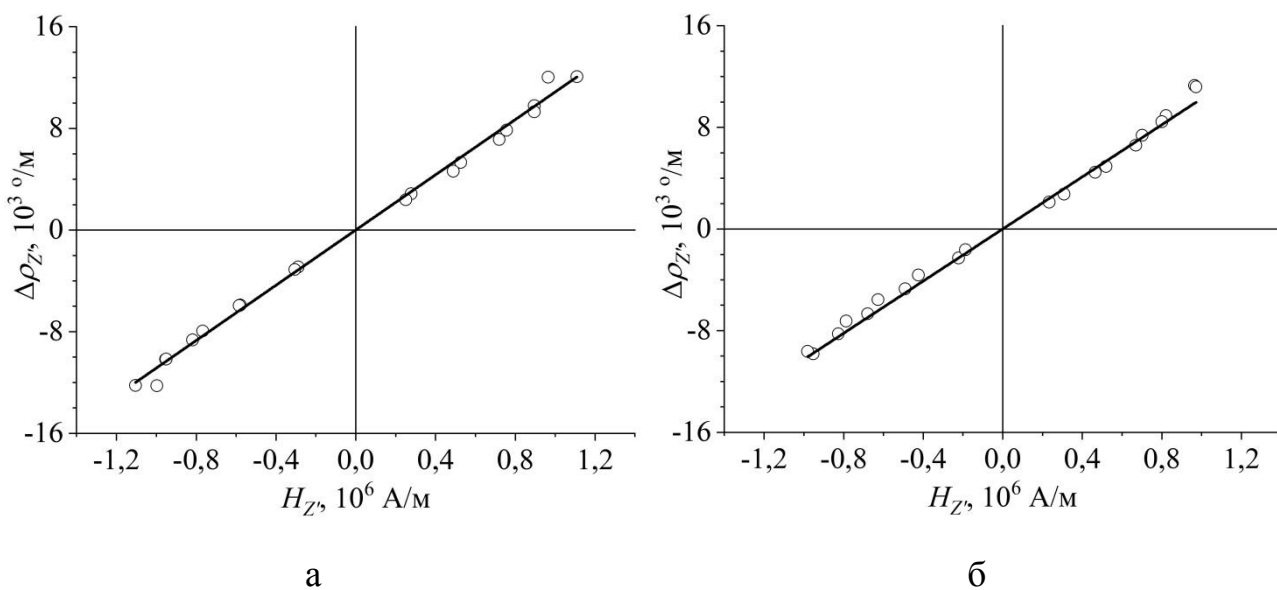


Рисунок 2.9. Залежності $\Delta\rho = \Delta\rho(H)$ для твердих розчинів $\text{TlIn}(\text{S}_{0.94}\text{Se}_{0.06})_2$ (а) та $\text{TlIn}(\text{S}_{0.90}\text{Se}_{0.10})_2$ (б) при $\lambda = 632,8$ нм: суцільні прямі – інтерполяції лінійними функціями [109].

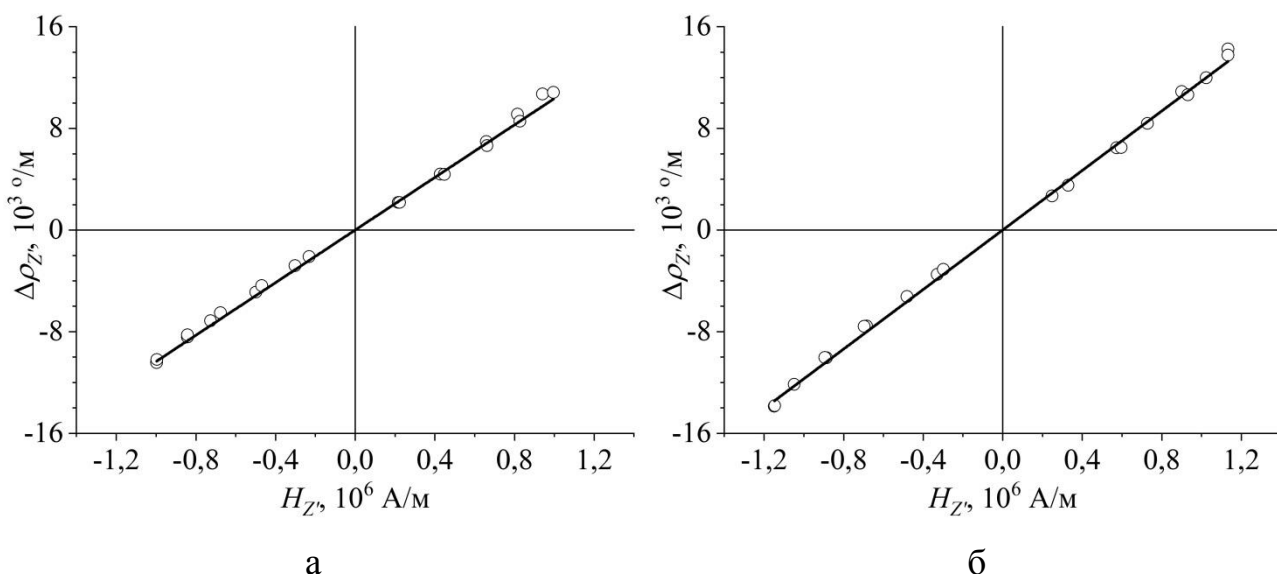


Рисунок 2.10. Залежності $\Delta\rho = \Delta\rho(H)$ для твердих розчинів $\text{TlIn}(\text{S}_{0,85}\text{Se}_{0,15})_2$ (а) та $\text{TlIn}(\text{S}_{0,75}\text{Se}_{0,25})_2$ (б) при $\lambda = 632,8$ нм: суцільні прямі – інтерполяції лінійними функціями [109].

В результаті вищевказаної інтерполяції було розраховано ефективні коефіцієнти Фарадея F'_{33} (для $n_b = 2,8$) та відповідні константи Верде V_F (Таблиця 2.3).

Таблиця 2.3. Константи Верде V_F та ефективні магнітооптичні коефіцієнти Фарадея F'_{33} , експериментально отримані для твердих розчинів $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ при $\lambda = 632,8$ нм [109].

x	$V_F, (\text{Тл}\times\text{м})^{-1}$	$F'_{33}, 10^{-13} \text{ м/А}$
0	$112,43\pm 1,54$	$12,96\pm 0,18$
0,02	$101,67\pm 1,33$	$11,72\pm 0,15$
0,06	$150,91\pm 2,41$	$17,40\pm 0,28$
0,10	$142,48\pm 2,71$	$16,43\pm 0,31$
0,15	$143,75\pm 1,78$	$16,58\pm 0,21$
0,25	$162,62\pm 1,61$	$18,75\pm 0,19$

Згідно з композиційними залежностями ширини забороненої зони E_g , визначеними у роботі [111] для твердих розчинів $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$, E_g зменшується від 2,27 до 2,16 еВ при збільшенні концентрації атомів Se x від 0 до 0,25. Це

означає, що край поглинання λ_{edge} зміщується від 548 нм (зелена область) при $x = 0$ до 575 нм (зелено-жовта область) при $x = 0,25$ – тобто, він наближається до довжини оптичної хвилі, яка використовується в цих експериментальних дослідженнях ($\lambda = 632,8$ нм). Тому збільшення константи Верде та ефективного коефіцієнта Фарадея, що відбувається зі збільшенням концентрації атомів Se (Рисунок 2.11), можна пояснити наближенням краю поглинання та нормальною дисперсією цих магнітооптичних параметрів.

Натомість, як це впливає з коноскопичних спостережень [108], тверді розчини $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ з $x = 0,02$ є дещо неоднорідними. Це може призвести до більш високих похибок обчислення константи Верде та ефективного коефіцієнта Фарадея конкретно для цієї сполуки.

На підставі даних, наведених у роботі [111], концентраційні залежності магнітооптичних параметрів для твердих розчинів $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ (Рисунок 2.11) було перераховано у залежності магнітооптичних параметрів від ширини забороненої зони E_g (Рисунок 2.12). Як можна бачити з цих залежностей, як константа Верде, так й ефективний коефіцієнт Фарадея зростають зі зменшенням забороненої зони, що є цілком очікуваним.

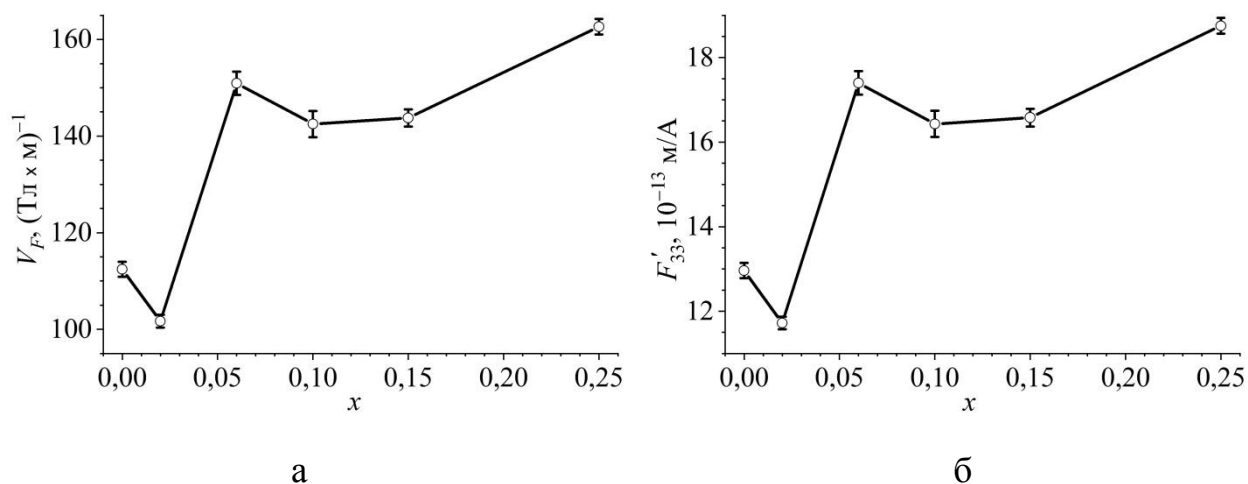


Рисунок 2.11. Залежності константи Верде V_F (а) та ефективного коефіцієнта Фарадея F'_{33} (б) від концентрації атомів Se x для твердих розчинів $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ ($\lambda = 632,8$ нм) [109].

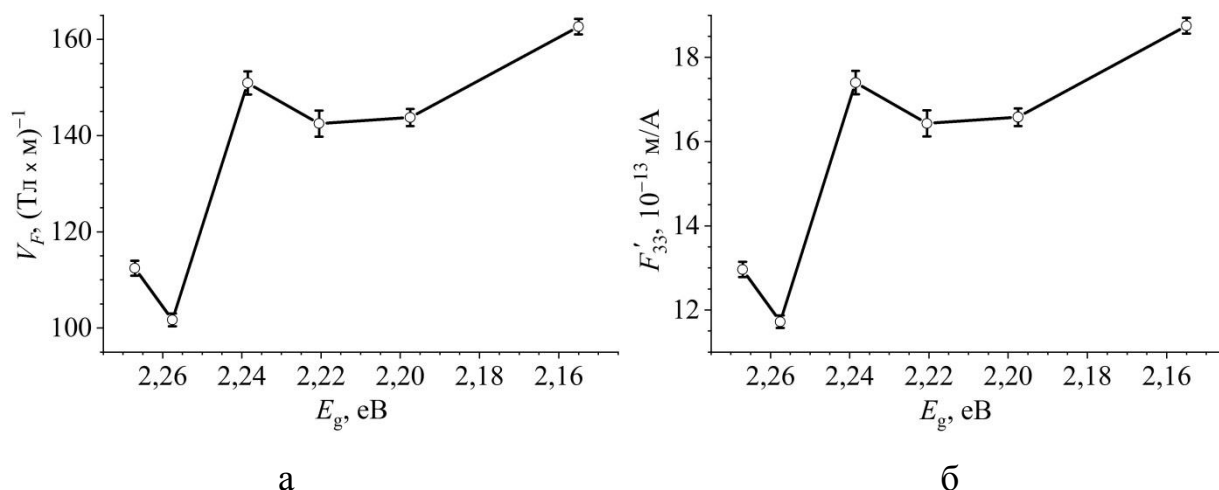


Рисунок 2.12. Залежності константи Верде V_F (а) та ефективного коефіцієнта Фарадея F'_{33} (б) від ширини забороненої зони E_g для твердих розчинів $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ ($\lambda = 632,8 \text{ нм}$) [109].

2.2. Аналіз анізотропії термічних, оптичних та акустичних параметрів халькогенідних сполук TiMX_2

Збільшення температурного діапазону експлуатації АО конструкційних елементів, характерне для сучасного АО приладобудування, що призводить до ускладнення умов їхньої експлуатації, зумовлює те, що на сьогоднішній день дослідження температурної поведінки тих чи інших параметрів АО матеріалів відбувається у якомога більш широких температурних діапазонах з метою більш впевненого прогнозування поведінки відповідних АО елементів в екстремальних температурних умовах. При цьому зазвичай такі температурні діапазони включають в себе області ФП, існуючі в цих АО матеріалах, для здійснення однозначного аналізу анізотропії досліджуваних параметрів. Так, наприклад, для власних сегнетоеластиків це зумовлено тим, що саме через низькі швидкості АХ, спричинені аномальною поведінкою пружних властивостей в околі ФП, вони є перспективними АО матеріалами для використання в АО приладах [112]. Як характерний приклад можна навести дослідження термічних та оптичних властивостей кристалів K_2SO_4 , які широко використовуються для АО модуляції ультрафіолетового випромінювання та в

яких за температури 860 К відбувається ФП, в діапазоні від кімнатної температури до 950 К [113].

Слід зауважити, що, оскільки вирішення проблем експлуатації АО елементів вимагає модифікації тих чи інших фізичних властивостей відповідних АО матеріалів, найбільш доцільним є проведення вищевказаних досліджень не для окремих АО середовищ, а для цілих сімейств певних визначених сполук, які передбачають можливість достатньо простої зміни їхніх фізичних властивостей – зокрема, шляхом ізоморфного заміщення. Цим умовам відповідає, зокрема, сімейство халькогенідних кристалів із загальною формулою TlMX_2 ($\text{M} = \text{Ga}, \text{In}$; $\text{X} = \text{Se}, \text{S}, \text{Te}$), для яких характерні шаруваті або ланцюгоподібні низькорозмірні структури [114]. Так, зокрема, моноклінні кристали TlGaS_2 , TlInS_2 та TlGaSe_2 володіють шаруватою структурою ([115]–[117]), тоді як тетрагональні кристали TlGaTe_2 , TlInTe_2 та TlInSe_2 мають ланцюгоподібну структуру [118]. Причому обидві ці групи кристалів належать до одного сімейства напівпровідників $\text{A}^{\text{III}}\text{B}^{\text{III}}\text{C}_2^{\text{IV}}$.

З огляду на результати попередніх досліджень, халькогенідні сполуки TlInSe_2 , TlGaSe_2 , $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$, що були обрані в якості об'єктів аналізу анізотропії термічних, оптичних та акустичних параметрів в рамках цієї дисертації, в принципі можуть розглядатися як матеріали, придатні для використання у галузі акустооптики.

Так, згідно з результатами роботи [119], КАОЯ для кристалів TlInSe_2 дорівнює $156,0 \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$ у випадку АО взаємодії оптичної хвилі з довжиною $\lambda = 1,15 \text{ мкм}$ з поздовжньою АХ зі швидкістю $v_{22} = 2480 \text{ м/с}$. Натомість КАОЯ для кристалів TlGaSe_2 дорівнює $405,6 \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$ у випадку АО взаємодії оптичної хвилі з довжиною $\lambda = 632,8 \text{ мкм}$ з поздовжньою АХ зі швидкістю $v_{33} = 2670 \text{ м/с}$ [119]. Й, нарешті, як вже відзначалося, експериментальні дослідження та аналіз анізотропії швидкостей АХ в кристалах $\beta\text{-TlInS}_2$ (вони можуть розглядатися як тверді розчини $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ з концентрацією $\text{Se } x = 0$) з врахуванням неортогональності АХ показали, що КАОЯ для цих кристалів у випадку АО взаємодії з найповільнішими QT АХ ($v_{13}, v_{23}, v_{32}, v_{31}, v_{63} \approx 725 \text{ м/с}$;

$Z(3)\parallel c$, $Y(2)\parallel b$, $X(1)\perp(bc)$) може бути оцінений як $(2200-9000)\times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$ при $\lambda = 632,8 \text{ нм}$, що дозволяє віднести кристали $\beta\text{-TlInS}_2$ до одного з найбільш ефективних АО матеріалів [63].

Більшість шаруватих халькогенідних кристалів сімейства TlMX_2 є власними сегнетоелектриками з неспівмірною фазою (а саме, фазою, в якій розвинулася та "заморозилася" просторова модуляція з періодом, відношення якого до відповідного періоду кристалічної ґратки є ірраціональним числом) між більш симетричною (нормальною) параелектричною фазою та менш симетричною (полярною, впорядкованою) сегнетоелектричною фазою. Тобто, вони зазнають ФП зі зміною симетрії " $2/m \leftrightarrow$ неспівмірна фаза $\leftrightarrow 2$ " [114].

Так, наприклад, при охолодженні в кристалах $\beta\text{-TlInS}_2$ відбувається ФП через неспівмірну фазу (T_i дорівнює 214 К [115] або 216 К [120, 121]) у сегнетоелектричну фазу (T_C дорівнює 197 К [115], 204 К [120] або 195–202 К [121]). При цьому основною особливістю ФП у кристалах $\beta\text{-TlInS}_2$ є те, що в їхній кристалічній матриці можуть співіснувати різні політипи [122, 123]. Вони характеризуються різними значеннями параметра c , який може дорівнювати c_0 , $2c_0$, $4c_0$, $8c_0$ та $16c_0$ ($c_0 = 15,18 \text{ \AA}$). Відпал зразків кристалів $\beta\text{-TlInS}_2$ у вакуумі або в атмосфері сірки дозволяє отримати майже однорідні зразки з єдиним політипом [123]. Й навпаки, старіння зразків кристалів $\beta\text{-TlInS}_2$ протягом деякого часу, їх термоцикування або опромінення видимим світлом чи рентгенівськими променями переводять такі зразки у змішаний стан. Необхідно зазначити, що кожен з чистих політипів кристалів $\beta\text{-TlInS}_2$ характеризується власною послідовністю ФП. Так, наприклад, $T_C \approx 203\text{--}205 \text{ К}$ для політипу з $c = c_0$; $T_C \approx 217\text{--}220 \text{ К}$ для політипу з $c = 4c_0$; $T_C \approx 209\text{--}212 \text{ К}$ для політипу з $c = 8c_0$ та $T_C \approx 238\text{--}240 \text{ К}$ для політипу з $c = 16c_0$ [123]. Внаслідок співіснування різних політипів в кристалах $\beta\text{-TlInS}_2$ спостерігається низка аномалій, які відповідають ФП у цих політипах [122–125]. Так, зокрема, було встановлено, що неспівмірна фаза виникає лише в політипі з $c = c_0$, але не проявляється в політипі з $c = 2c_0$ [124]. Крім того, в роботі [123] було виявлено, що політип з $c = c_0$ є найбільш нестабільним.

У роботі [126] було показано, що в кристалах β -TlInS₂ ФП у неспівмірну фазу відбувається при $T_i = 216$ К. В області температур 200,8–204,0 К спостерігаються подвійні петлі діелектричного гістерезису, що свідчить про те, що в цій області має місце антисегнетоелектричне впорядкування. Натомість в області температур 175–200 К в кристалах β -TlInS₂ спостерігаються "змішані" ("потрійні") петлі діелектричного гістерезису, що свідчить про існування в цих кристалах гетерофазної структури, де співіснують сегнетоелектрична та антисегнетоелектрична фази. Ці петлі набувають канонічної форми лише нижче 175 К, що характерно для сегнетоелектричних ФП.

Після з'ясування вищевказаних фактів щодо політипної структури, виникнення якої зумовлене слабкістю сил Ван-дер-Ваальса між шарами та укладанням різної кількості шарів в елементарну комірку, могло б здатися, що проблема визначення послідовності ФП в кристалах β -TlInS₂ нарешті вирішена. Тим не менше, нещодавнє виявлення сегнетоеластичної доменної структури та різких змін у послідовності ФП під високим тиском [127] зробило аналіз структурних ФП у цих кристалах ще більш складним. Так, зокрема, виявилось, що поведінка діелектричної проникності в кристалах β -TlInS₂ під час ФП, яка спостерігається при збільшенні параметра c від c_0 до $16c_0$, подібна до її поведінки при високих гідростатичних тисках [123, 127]. Таким чином, цілком можливо, що зміна модифікації політипу кристалів β -TlInS₂ (викликана, наприклад, відпалом досліджуваного зразка) призводить до тих самих наслідків, що й підвищення гідростатичного тиску – тобто, до зміни характеру ФП та появи сегнетоеластичної фази. Однак є очевидним, що таке припущення потребує детальної експериментальної перевірки. Це означає, що природа ФП у кристалах β -TlInS₂ ще й досі до кінця не з'ясована. Тому суперечки щодо послідовності ФП в кристалах β -TlInS₂ тривають до сих пір. Однією з причин цього є те, що деякі фізичні аномалії в цих кристалах досить часто тлумачаться науковцями як ознаки певних ФП [128].

Інтерферометричні експерименти виявили, що глибина інтерференційних смуг також чутлива до політипної структури кристалів β -TlInS₂ [123]. Це

означає, що розміри просторових областей однорідного політипного складу близькі або більші за довжину хвилі оптичного випромінювання. У зв'язку з цим постає питання щодо можливості виявлення політипної структури шляхом поляриметричного картування кристалів β - TlInS_2 .

На фазовій діаграмі твердих розчинів $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ існує морфотропна межа фаз при $x \approx 0,25$ – $0,30$ [111, 129], яка розділяє моноклінну та тетрагональну фази. Згідно з роботою [130], де досліджувалися температурні залежності теплоємності, температури ФП у твердому розчині $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ з $x = 0,10$ дорівнюють $T_C = 190$ К та $T_i = 213$ К. Роботи [131] та [132] присвячені впливу ізоморфного заміщення в кристалах $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ на параметри їхньої кристалічної ґратки, а також на дійсну та уявну частини тензора діелектричної проникності $\epsilon(\omega, \mathbf{k})$. В роботі [133] було отримано (x, T) -фазову діаграму для полікристалічних твердих розчинів $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ з $0 \leq x \leq 0,15$, де при збільшенні концентрації атомів Se x спостерігалось розширення температурного діапазону неспівмірної фази. Однак полікристалічна структура досліджуваних зразків повинна була розмити особливості, викликані політипною структурою монокристалів. В роботі [134] було досліджено монокристали $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ з $x = 0,01; 0,02; 0,04; 0,05; 0,10; 0,20$ з використанням температурних залежностей діелектричної проникності; однак, на жаль, (x, T) -фазова діаграма при цьому отримана не була. Таким чином, невирішеним залишається питання щодо існування політипної структури у твердих розчинах $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ з $x \leq 0,25$.

При дослідженні поведінки шаруватих кристалів TlGaSe_2 під час структурних ФП основна увага приділялася вивченню змін, що відбуваються у властивостях термічного розширення [135], у структурних [136, 137] та діелектричних [138] властивостях, а також у спектрах комбінаційного розсіяння світла [139]. При цьому, зокрема, було виявлено, що кристали TlGaSe_2 зазнають двох ФП з початкової параелектричної фази в проміжну неспівмірну фазу, а потім у сегнетоелектричну фазу, яка характеризується точковою групою симетрії 2, де вісь симетрії другого порядку паралельна кристалографічній осі

с. Вищевказані ФП відбуваються при температурах $T_i \approx 120$ К та $T_C \approx 110$ К. Причому ФП у сегнетоелектричну фазу є ФП першого роду та супроводжується чотирикратною мультиплікацією елементарної комірки вздовж напрямку с, тоді як ФП у неспівмірну фазу є ФП другого роду з хвильовим вектором надструктурної модуляції $\mathbf{k}_{\text{нсм}} = (\delta; \delta; 0,25)$, де $\delta = 0,02$ [140].

Через загальновизнану псевдотетрагональність елементарної комірки кристалів TlGaSe_2 їхні коефіцієнти термічного розширення досліджувалися лише в площині спайності та вздовж напрямку, перпендикулярного цій площині [137, 138] – тобто, анізотропія в площині спайності вважалася мізерно малою. Таке наближення навряд чи є валідним у достатньо широкому діапазоні температур, включаючи низькотемпературні фази. Крім того, на підставі характеристик термічного розширення та параметрів елементарної комірки в роботі [137] було висунуто припущення, що послідовність ФП в кристалах TlGaSe_2 є більш складною, ніж та, що розглянута вище, оскільки при температурах 110, 217 та 240 К спостерігаються додаткові аномалії. Крім того, оскільки кристали TlGaSe_2 являють собою матеріал шаруватого типу, вони мають тенденцію демонструвати політипну структуру, зумовлену слабкими силами Ван-дер-Ваальса, що призводить до накопичення шарів у елементарній комірниці – а отже, й до різних параметрів с. В результаті параметр с в кристалах TlGaSe_2 може дорівнювати $c_0, 2c_0, 3c_0, 4c_0, \dots$; причому для політипів з $c = 2c_0, 8c_0, 10c_0$ змін трансляційної симетрії вздовж осі с в діапазоні температур 90–300 К не виявлено [140]. При цьому ФП другого роду в кристалах TlGaSe_2 для політипу з $c = 2c_0$ відбувається поблизу температурної точки $T'_C \approx 124$ К [140].

Характер ФП є ще більш складним у ланцюгоподібних халькогенідних кристалах сімейства TlMX_2 . Так, зокрема, в результаті досліджень теплоємності, параметрів кристалічної ґратки та інтенсивностей рентгенівського відбивання Брегга, ФП другого роду при 98,5 К було виявлено в кристалах TlGaTe_2 , але не в інших кристалах цієї групи – TlInTe_2 та TlInSe_2 [141]. При цьому кристали TlGaTe_2 було досліджено до температури 5 К без виявлення додаткових ФП. В роботі [141] було висунуто припущення, що при

температурах вище 98,5 К (температурний діапазон 110–290 К) в кристалах TlGaTe_2 існує модульована структура неспівмірної фази – а саме, низка температурних інтервалів з незалежним від температури параметром a . Слід зауважити, що існування несегнетоелектричного ФП при 98,5 К в кристалах TlGaTe_2 було підтверджено також й в роботах [142] та [143]. З іншого боку, вищевказаними дослідженнями не було встановлено, якою є природа фази нижче 98,5 К, чи існує неспівмірна фаза вище 98,5 К чи в області температур 98,5–290 К співіснують різні фази, та якою є температура ФП "параелектрична фаза $\leftrightarrow$ неспівмірна фаза", якщо неспівмірна фаза дійсно існує.

Експериментальні дані щодо ФП в кристалах TlInSe_2 є ще більш суперечливими. Так, зокрема, в роботі [128] в цих кристалах не було виявлено аномалій теплоємності в області 170–215 К. З іншого боку, в роботі [144] повідомлялося про наявність в кристалах TlInSe_2 аномалій діелектричної проникності та провідності при 210, 200 та 196,8 К. В свою чергу, в роботі [145] з температурної залежності параметра a в кристалах TlInSe_2 при 135 та 185 К були виявлені інші ФП. В роботі [146] було повідомлено про аномалії при 135 та 185 К на температурних залежностях фотопровідності, параметра a та теплоємності кристалів TlInSe_2 ; при цьому було висунуто припущення, що інтервал між цими точками відповідає температурному діапазону неспівмірної фази. Однак аномалія теплоємності при 185 К є більш вираженою, ніж невеликий розмитий максимум, який спостерігається при 135 К. Це не узгоджується з тим фактом, що, зазвичай, ФП "параелектрична фаза $\leftrightarrow$ неспівмірна фаза" є ФП другого роду, тоді як ФП "неспівмірна фаза $\leftrightarrow$ сегнетоелектрична фаза" є ФП першого роду.

Незважаючи на те, що рентгенівські дослідження кристалів TlInSe_2 проводилися в кількох роботах, так звані супутникові відбиття, що відповідають надструктурі, не були знайдені в роботах [147] та [148]. При цьому в роботі [148] було запропоновано власну концепцію неспівмірної фази в кристалах TlInSe_2 – згідно з нею, положення атомів Тl суттєво коливаються відносно каркасу ланцюга InSe_4 у неспівмірній фазі, яка існує вище 135 К, хоча

у фазі нижче 135 К ці атоми розташовані на чітко визначених відстанях (приблизно 0,34 нм). Це свідчить про те, що фаза нижче 135 К є ідеально впорядкованою. Згідно з роботою [149], атоми Тl утворюють періодичні одномірні масиви відносно шарів In та Se₂ в параелектричній фазі, тоді як в неспівмірній фазі така періодичність порушується. З іншого боку, у роботі [148] не було виявлено ФП при 185 К, хоча в роботі [149] вважають, що в кристалах TlInSe₂ має існувати структурний ФП з високотемпературної нормальної фази в неспівмірну фазу приблизно при 410–460 К, що збігається з областю виникнення гігантського термоелектричного ефекту [150].

Проблема суттєвої недостатності інформації про послідовність ФП у халькогенідних кристалах сімейства TlMX₂, наявна на сучасному етапі, потребує невідкладного вирішення, з огляду на те місце, яке ці кристали займають або можуть зайняти у оптичному приладобудуванні. Так, наприклад, окрім АО застосувань, кристали TlGaSe₂ є перспективним матеріалом для детектування рентгенівського та γ -випромінювання [151], а також мають достатньо високий фотоакустичний відгук [152]. В свою чергу, кристали β -TlInS₂ можуть бути цікавими як низькорозмірні напівпровідники з огляду на результати досліджень їхньої електронної структури [114], провідності [153], [154] та оптичних властивостей [153, 155].

2.2.1. Кристали TlInSe₂

Ланцюгоподібні кристали TlInSe₂ за нормальних умов належать до просторової групи симетрії I4/mcm (точкова група симетрії 4/mmm). Параметри їхньої елементарної комірки становлять $a = 8,075 \text{ \AA}$ та $c = 6,847 \text{ \AA}$ ($Z = 4$) [118]. Кристали TlInSe₂ демонструють гігантський ефект Пельтьє-Зеєбека при температурі нижче 410 К, що, скоріше за все, пов'язано зі структурою неспівмірної фази цих кристалів; причому коефіцієнт Зеєбека в цих кристалах досягає 10^{-1} –10 В/К при кімнатній температурі [149]. Кристали TlInSe₂ є

прозорими в інфрачервоному діапазоні спектру на довжинах хвиль більше ~ 1 мкм (ширина забороненої зони $E_g = 1,18$ еВ при 300 К) [156].

Показники заломлення кристалів TlInSe_2 досліджувалися еліпсометричним методом [157]. В свою чергу, використовуючи результати з роботи [157] та стандартне наближення Зелмайєра, було розраховано показники заломлення кристалів TlInSe_2 при $\lambda = 1,15$ мкм: $n_o = 2,99$ та $n_e = 3,26$ [158].

Слід зауважити, що дилатометричні дослідження кристалів TlInSe_2 вже проводилися в роботі [159], однак дані про геометрію експерименту в ній не були наведені, тому порівняння даних, отриманих в роботі [159], з результатами досліджень, наведених нижче, було б нерелевантним.

В загальному випадку відносні лінійні термічні видовження A_{ij} та відносне об'ємне термічне розширення A_V визначаються, відповідно, співвідношеннями

$$A_{ij} = \frac{\Delta L_i}{(L_0)_j} = \frac{L_i - (L_0)_i}{(L_0)_j}, \quad A_V = \frac{\Delta V}{V_0} = \frac{V - V_0}{V_0}, \quad (2.25)$$

де $(L_0)_i$, $(L_0)_j$ та L_i є відповідно початковими розмірами досліджуваного зразка вздовж напрямків i , j та термічно-індукованим розміром досліджуваного зразка вздовж напрямку i ; V_0 та V є відповідно початковим та термічно-індукованим об'ємами досліджуваного зразка.

Величини A_{ij} визначалися за допомогою ємнісного дилатометра, чутливим елементом якого є повітряний конденсатор (Рисунок 2.13), що складається з нерухомої пластини (1) та рухомої пластини (2), яка пов'язана з досліджуваним зразком (3) за допомогою штоку (4) [160]. При зміні температури розмір досліджуваного зразка змінюється, що призводить до переміщення рухомої пластини (2) – а отже, до зміни ємності конденсатора. Цей конденсатор увімкнений в коло генератора гармонічних коливань, в результаті чого термічно-індукована зміна розміру досліджуваного зразка ΔL буде пропорційною до зміни частоти коливного контуру Δf .

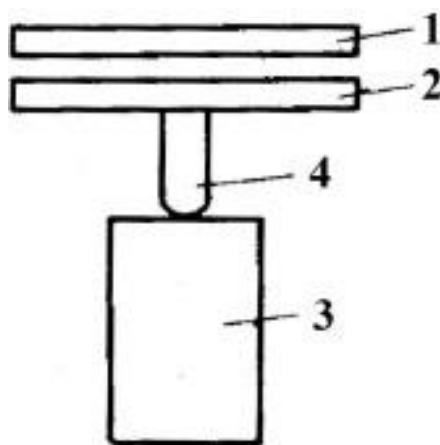


Рисунок 2.13. Принципова схема дилатометричної комірки ємнісного дилатометра: 1 – нерухома пластина; 2 – рухома пластина; 3 – досліджуваний зразок; 4 – шток [160].

Середня чутливість ємнісного дилатометра становила близько 10 нм в температурному діапазоні 105–300 К при тестуванні. Вимірювання проводилися в режимі охолодження зі швидкістю сканування температури близько 3×10^{-4} К/с. Точність вимірювання температури була не гіршою за 0,01 К.

Тензор лінійного термічного розширення α з компонентами α_{ij} для тетрагональних кристалів TlInSe_2 , записаний у кристалографічній системі координат, має вигляд

$$\alpha = \begin{bmatrix} \alpha_{aa} & 0 & 0 \\ 0 & \alpha_{bb} & 0 \\ 0 & 0 & \alpha_{cc} \end{bmatrix}, \quad (2.26)$$

де $\alpha_{aa} = \alpha_{bb}$. При цьому коефіцієнти лінійного термічного розширення α_{ij} розраховувалися за формулою

$$\alpha_{ij} = \frac{\partial L_{ij}}{\partial T} \quad (2.27)$$

із середньою квадратичною похибкою, яка не перевищувала $7 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$. В свою чергу, коефіцієнт об'ємного термічного розширення α_V визначався як $\alpha_{aa} + \alpha_{bb} + \alpha_{cc}$.

Для дилатометричних досліджень використовувався зразок кристалів TlInSe_2 майже кубічної форми ($\sim 5 \times 5 \times 5 \text{ мм}^3$) з гранями, перпендикулярними до осей a , b та c .

Як можна бачити, поведінка температурних залежностей Λ_{aa} , Λ_{bb} , Λ_{cc} та Λ_V в кристалах TlInSe_2 помітно змінюється при охолодженні нижче $T_1 \approx 245 \text{ K}$ (Рисунок 2.14).

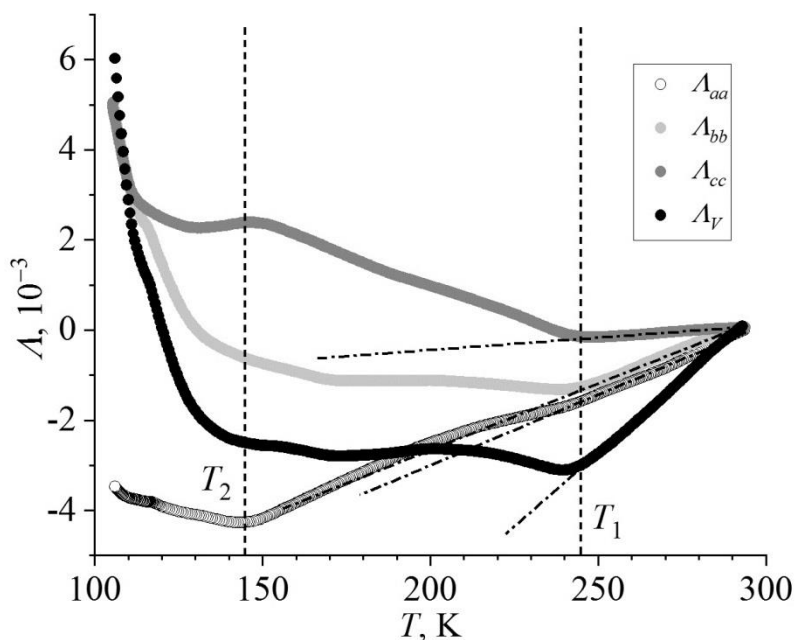


Рисунок 2.14. Температурні залежності Λ_{aa} , Λ_{bb} , Λ_{cc} та Λ_V для кристалів TlInSe_2 . Штрих-пунктирні прямі: лінійні екстраполяції з температурного діапазону $T > 245 \text{ K}$ [158].

Ця температура далека від точки 185 K , яка, з огляду на попередні літературні дані, може бути пов'язана з ФП. Тим не менше, з температурної залежності параметра елементарної комірки a [146] випливає, що зі зниженням температури цей параметр в околі точки T_1 починає відхилятися від лінійного тренду, незважаючи на те, що теплоємність, виміряна в роботі [146], демонструє аномалію при 185 K . Температурні криві Λ_{aa} та Λ_{bb} починають

розходитися в точці T_1 , вказуючи на те, що симетрія кристалу TlInSe_2 стає нижчою за $4/mmm$ та відповідає одній з орторомбічних точкових груп симетрії.

Однак порівняння температурних залежностей α_{aa} , α_{bb} , α_{cc} та α_V демонструє, що зниження температури нижче точки T_1 призводить до видовження кристалу TlInSe_2 вздовж усіх трьох головних осей, що проявляється у відмінностях між лінійними екстраполяціями та експериментальними точками, що відповідають спонтанним деформаціям. Цей факт є незвичним для фероїчних кристалів, де ФП супроводжуються деформаціями кристалічної ґратки, оскільки для уникнення змін об'єму елементарної комірки слід тензора спонтанних деформацій повинен дорівнювати нулю [161]. Насправді спостерігалася зміна об'ємного термічного розширення в точці T_1 , яка визначається різницею лінійної екстраполяції та даних, представлених експериментальними точками (Рисунок 2.14).

Слід також зауважити, що α_V майже не залежить від температури між точками T_1 та $T_2 \approx 145$ К (тобто, $\alpha_V = 0$), хоча досліджуваний зразок кристалу TlInSe_2 починає різко розширюватися нижче точки T_2 (Рисунок 2.15).

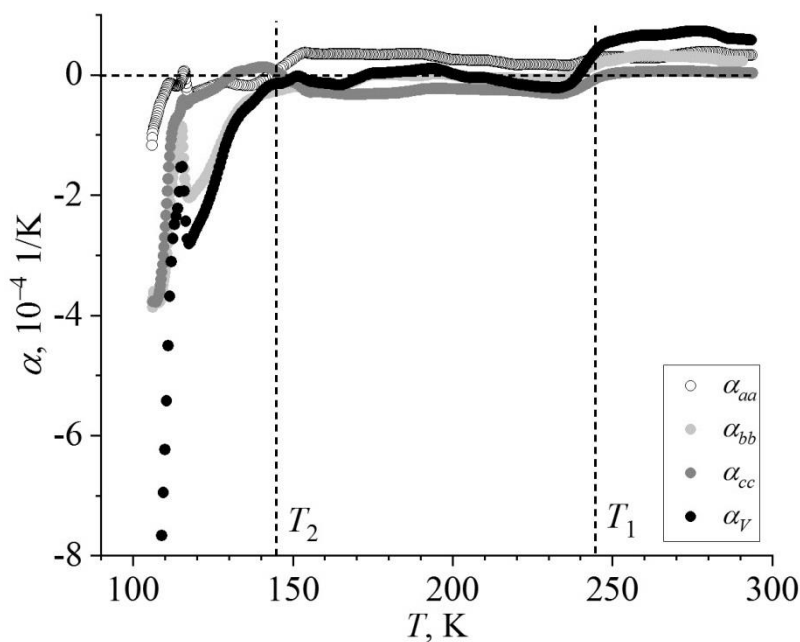


Рисунок 2.15. Температурні залежності α_{aa} , α_{bb} , α_{cc} та α_V для кристалів TlInSe_2 [158].

Коефіцієнти лінійного термічного розширення α_{ij} для кристалів TlInSe_2 при $T = 290 \text{ K}$ дорівнюють $\alpha_{aa} = (3,3 \pm 0,7) \times 10^{-5} \text{ K}^{-1}$, $\alpha_{bb} = (2,3 \pm 0,7) \times 10^{-5} \text{ K}^{-1}$ та $\alpha_{cc} = (0,4 \pm 0,7) \times 10^{-5} \text{ K}^{-1}$. Враховуючи похибки експерименту, можна зробити висновок, що коефіцієнти α_{aa} та α_{bb} рівні між собою як за нормальних умов, так й вище температури T_1 . Однак температурні залежності коефіцієнтів α_{aa} та α_{bb} розходяться нижче температури T_1 . Натомість нижче температури T_2 коефіцієнти α_a , α_{bb} , α_{cc} та α_V стають від'ємними та збільшуються за модулем майже на два порядки. Така різка зміна цих параметрів свідчить про певні структурні зміни, які відбуваються в кристалах TlInSe_2 нижче температури T_2 , а також про пониження їхньої симетрії нижче температури T_1 (Рисунок 2.15).

Аналізуючи температурні залежності швидкостей AX v_{11} , v_{22} , v_{33} (i – напрямок поширення AX , j – напрямок поляризації AX) (Рисунок 2.16) та коефіцієнтів жорсткості C_{11} , C_{22} , C_{33} (Рисунок 2.17) для кристалів TlInSe_2 , можна побачити, що при температурах, нижчих за 270 K , ці залежності розщеплюються, й невеликий злам вказаних залежностей спостерігається при температурі T_1 , що узгоджується з результатами дилатометричних досліджень.

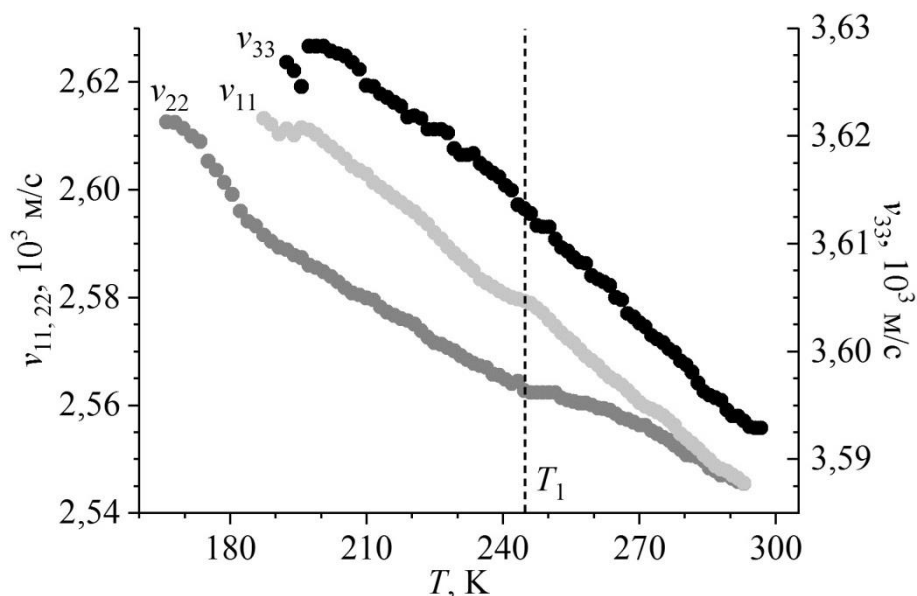


Рисунок 2.16. Температурні залежності v_{11} , v_{22} , v_{33} для кристалів TlInSe_2 [158].

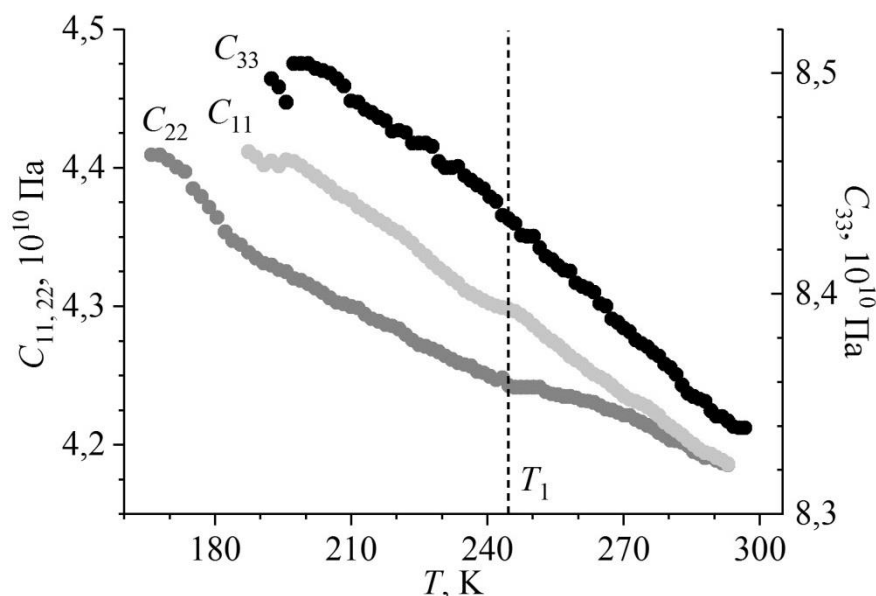


Рисунок 2.17. Температурні залежності C_{11} , C_{22} , C_{33} для кристалів TlInSe_2 [158].

В цьому аспекті необхідно зазначити, що для кристалів, які належать до тетрагональної точкової групи симетрії $4/\text{mmm}$, $C_{11} = C_{22}$, однак ця рівність не виконується для кристалів з нижчою симетрією – наприклад, для орторомбічних кристалів.

Слід зауважити, що вимірювання швидкостей АХ в температурному діапазоні нижче 166–185 К ускладнювалося через розсіювання АХ та зникнення відбитого сигналу, що може бути викликано розмиттям ФП в околі точки T_2 , з появою області співіснування фаз та зародження доменної структури. Причому відбитий сигнал не був чітко виявлений аж до найнижчої температури вимірювань (близько 120 К).

2.2.2. Кристали TlGaSe_2

Шаруваті кристали TlGaSe_2 за нормальних умов належать до точкової групи симетрії $2/m$ [114] та мають параметри елементарної комірки, які дорівнюють $a = 10,772 \text{ \AA}$, $b = 10,771 \text{ \AA}$, $c_0 = 15,636 \text{ \AA}$, $\beta = 100,6^\circ$, $Z = 16$ [162]. Оскільки $a \approx b$, структура кристалічної ґратки кристалів TlGaSe_2 є

псевдотетрагональною. Кристали TlGaSe_2 є прозорими в інфрачервоному спектральному діапазоні 0,61–20 мкм [163].

Відносні лінійні термічні видовження Δ_{ij} в кристалах TlGaSe_2 , які визначаються співвідношеннями (2.25), вимірювалися ємнісним дилатометром (Рисунок 2.13) в діапазоні температур 100–273 К в режимі нагрівання. При цьому похибка їхнього визначення не перевищувала 2×10^{-5} .

Тензор лінійного термічного розширення α з компонентами α_{ij} для моноклінних кристалів TlGaSe_2 містить чотири незалежні компоненти:

$$\alpha = \begin{bmatrix} \alpha_{XX} & \alpha_{XY} & 0 \\ \alpha_{XY} & \alpha_{YY} & 0 \\ 0 & 0 & \alpha_{ZZ} \end{bmatrix}. \quad (2.28)$$

У власній системі координат $X'Y'Z'$ тензор (2.28) можна записати в діагональному вигляді

$$\alpha' = \begin{bmatrix} \alpha'_{11} & 0 & 0 \\ 0 & \alpha'_{22} & 0 \\ 0 & 0 & \alpha'_{33} \end{bmatrix}, \quad (2.29)$$

використовуючи систему рівнянь

$$\begin{aligned} \alpha_{XX} &= \alpha'_{11} \cos^2 \Theta + \alpha'_{22} \sin^2 \Theta; \\ \alpha_{YY} &= \alpha'_{11} \sin^2 \Theta + \alpha'_{22} \cos^2 \Theta; \quad \alpha_{ZZ} = \alpha'_{33}; \\ \alpha_{XY} &= \alpha'_{11} \sin^2 (\Theta + 45^\circ) + \alpha'_{22} \cos^2 (\Theta + 45^\circ); \end{aligned} \quad (2.30)$$

де α_{XY} – коефіцієнт лінійного термічного розширення, визначений для бісектриси осей X та Y ; Θ – кут в площині ab між осями X та X' . При цьому коефіцієнти лінійного термічного розширення α_{ij} розраховувалися за формулою (2.27) із середньою квадратичною похибкою, яка не перевищувала $5 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$. В

свою чергу, коефіцієнт об'ємного термічного розширення α_V визначався як $\alpha'_{11} + \alpha'_{22} + \alpha'_{33}$.

Для дилатометричних досліджень використовувалися два зразки кристалів TlGaSe_2 у формі паралелепіпедів наступної орієнтації [164]:

- зразок (1): грані перпендикулярні осям X , Y та Z (відповідні розміри 7,03; 6,87 та 2,11 мм);
- зразок (2): грані перпендикулярні осі Z та напрямкам $[110]$ (відповідний розмір 5,0 мм) й $[1\bar{1}0]$.

Аналізуючи температурні залежності Λ_{ij} для кристалів TlGaSe_2 (Рисунок 2.18), можна побачити, що вони мають майже монотонну поведінку в досліджуваному діапазоні температур. Невеликі аномалії температурної залежності Λ_{ZZ} спостерігаються при температурах $T_C \approx 106$ К та $T_i \approx 113$ К. Крім того, в температурній області $T'_C = (124 \text{ К}; 140 \text{ К})$ наявний мінімум температурної залежності Λ_{ZZ} , що узгоджується з температурою ФП другого роду, який був виявлений для політипу з $c = 2c_0$ в роботі [140].

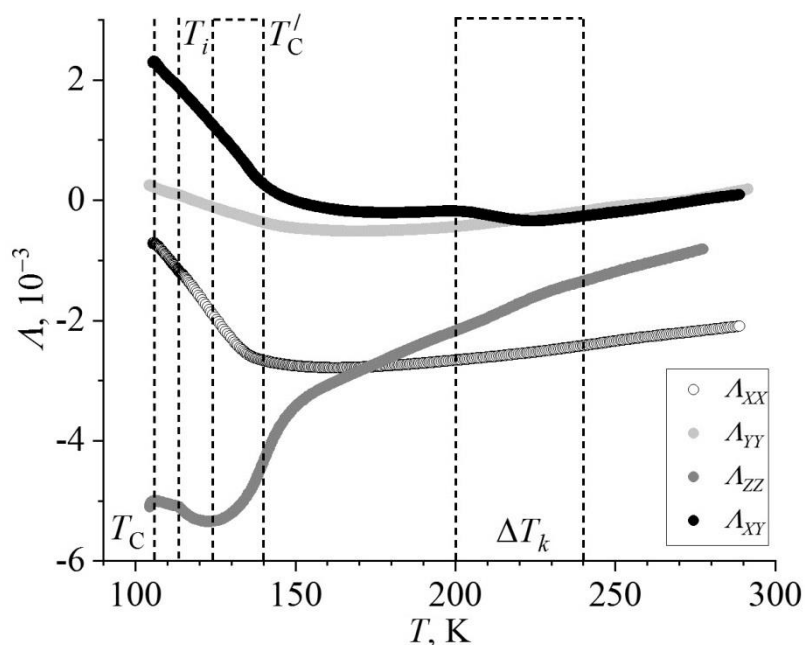


Рисунок 2.18. Температурні залежності Λ_{XX} , Λ_{YY} , Λ_{ZZ} та Λ_{XY} для кристалів TlGaSe_2 [164].

Необхідно відзначити, що як відносні лінійні термічні видовження Λ_{ZZ} та Λ_{XY} (Рисунок 2.18), так й коефіцієнти лінійного термічного розширення α_{ZZ} та α_{XY} (Рисунок 2.19) в області температур $\Delta T_k = (200 \text{ K}; 240 \text{ K})$ демонструють поведінку, подібну до переламу.

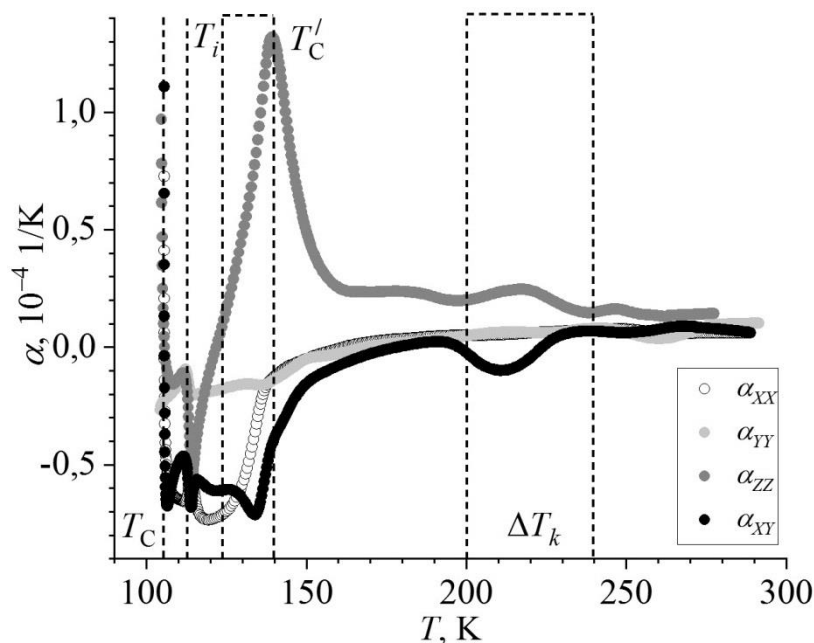


Рисунок 2.19. Температурні залежності α_{xx} , α_{yy} , α_{zz} та α_{xy} для кристалів TlGaSe_2 [164].

Для кристалів TlGaSe_2 аномальна поведінка параметрів кристалічної ґратки та оцінених на їхній основі коефіцієнтів термічного розширення у температурному діапазоні ΔT_k була виявлена в роботі [137]. Скоріше за все, вона викликана деякими структурними змінами в цих кристалах, які пов'язані з більш високими значеннями параметра c .

З урахуванням похибок експерименту коефіцієнти лінійного термічного розширення α_{xx} та α_{yy} залишаються незмінними в області температур вище 137 K. Ці коефіцієнти дуже малі (їхнє абсолютне значення становить $(0,8 \pm 0,5) \times 10^{-5} \text{ K}^{-1}$) та змінюють знак при температурі нижче $\sim 161 \text{ K}$, стаючи від'ємними. При цьому вони розділяються нижче точки T'_C , що вказує на збільшення анізотропії в кристалографічній площині ab . Коефіцієнти α_{zz} та α_{xy} , як й коефіцієнти α_{xx} та α_{yy} , демонструють аномальну поведінку при

температурах T_C , T_i та T'_C ; крім того, коефіцієнти α_{zz} та α_{xy} поведуться аномально також й в області температур ΔT_k (Рисунок 2.19).

Усі вищевказані аномалії добре помітні на температурних залежностях компонент α'_{ij} діагонального тензора лінійного термічного розширення $\mathbf{a}'$ – як можна бачити, анізотропія термічного розширення в площині ab існує у всьому досліджуваному діапазоні температур (Рисунок 2.20). При цьому найбільш яскраво ця анізотропія виражена нижче 175 К, а також в області температур ΔT_k . Так, зокрема, коефіцієнти α'_{11} та α'_{22} при цих температурах помітно відрізняються. Наприклад, поблизу кімнатної температури коефіцієнт α'_{22} майже дорівнює нулю, тоді як коефіцієнти $\alpha'_{11} \approx \alpha'_{33} = (1,6 \pm 0,5) \times 10^{-5} \text{ K}^{-1}$, в результаті чого вказівна поверхня тензора $\mathbf{a}'$ за такої температури має тороїдальну форму. Натомість поблизу температури T'_C коефіцієнт α'_{22} стає від'ємним. Коли ж температура наближається до точок T_i та T_C , від'ємним стає також й коефіцієнт α'_{33} (Рисунок 2.21).

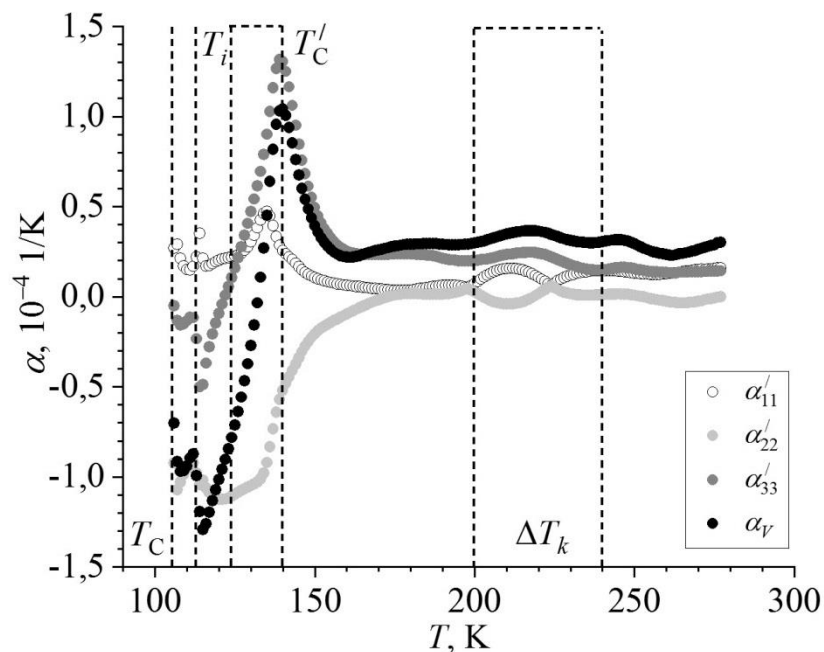


Рисунок 2.20. Температурні залежності α'_{11} , α'_{22} , α'_{33} та α_V для кристалів TlGaSe_2 [164].

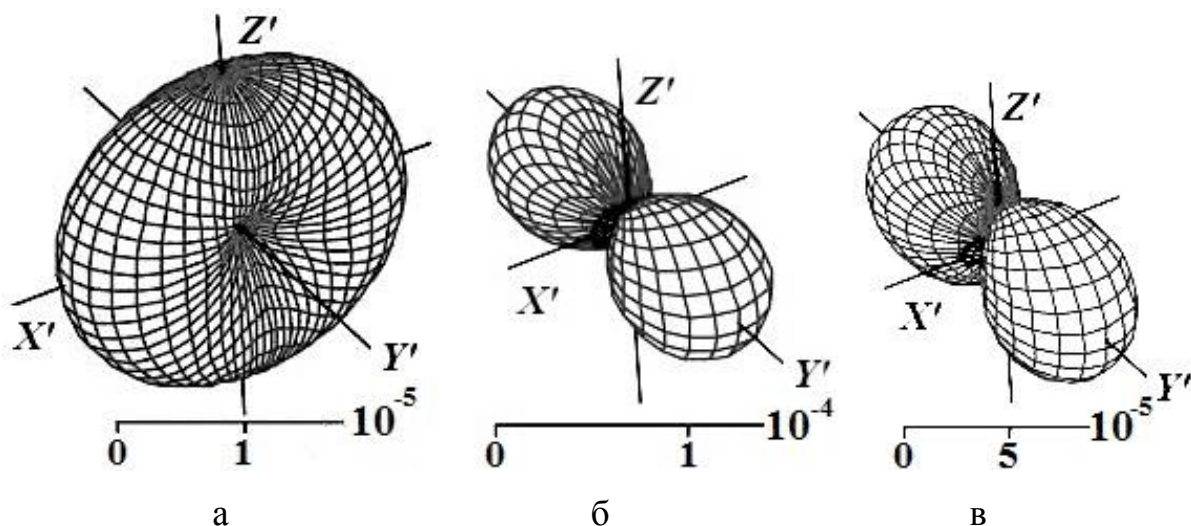


Рисунок 2.21. Вказівні поверхні тензора α' кристалів TlGaSe_2 для температур 273 К (а), 124 К (б) та 113 К (в) [164].

Коефіцієнт α_V кристалів TlGaSe_2 поводиться аномально в точках T_C , T_i та T'_C , а також змінює свій знак нижче температури T'_C .

2.2.3. Тверді розчини $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$

Кристали $\beta\text{-TlInS}_2$, які можуть розглядатися як тверді розчини $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ з концентрацією Se $x = 0$, за нормальних умов належать до точкової групи симетрії $2/m$ (просторова група симетрії $C2/c$ та $Z = 16$); причому вісь симетрії другого порядку паралельна кристалографічній осі c [115]. Кристали $\beta\text{-TlInS}_2$ є широкозонними напівпровідниковими сегнетоелектриками із шириною забороненої зони $E_g = 2,33$ еВ [153, 165, 166]. Параметри елементарної комірки кристалів $\beta\text{-TlInS}_2$, отримані в результаті рентгенівських дифракційних досліджень, дорівнюють $a = 10,90$ Å, $b = 10,94$ Å, $c_0 = 15,18$ Å та $\beta = 90,17^\circ$ (у стандартній установці [167]) або $\beta = 100,21^\circ$ (у ромбічній установці [115]). Площина спайності в кристалах $\beta\text{-TlInS}_2$ паралельна площині дзеркальної симетрії та перпендикулярна до кристалографічної осі c . Слід зауважити, що незначна різниця між параметрами a та b призводить до псевдотетрагональності елементарної комірки кристалів $\beta\text{-TlInS}_2$ [115].

Кристали $\beta\text{-TlInS}_2$ мають коричнево-жовтий колір та є прозорими в спектральному діапазоні 0,5–12,5 мкм [163].

Відносні лінійні термічні видовження A_{ij} в кристалах $\beta\text{-TlInS}_2$, які визначаються співвідношенням (2.25), вимірювалися ємнісним дилатометром (Рисунок 2.13), середня чутливість якого становила близько 10 нм у досліджуваному діапазоні температур (155–290 К). Вимірювання проводилися в режимі охолодження зі швидкістю сканування температури 5×10^{-3} К/с. Оскільки відхилення від ортогональності осей a та b є дуже малими, у подальшому аналізі ці відхилення не враховувалися.

По аналогії з шаруватими кристалами TlGaSe_2 , розглянутими у параграфі 2.2.2, у кристалографічній системі координат тензор лінійного термічного розширення α з компонентами α_{ij} для моноклінних кристалів $\beta\text{-TlInS}_2$ визначається співвідношенням (2.28), а діагональний тензор лінійного термічного розширення α' у власній системі координат – співвідношенням (2.29) з використанням системи рівнянь (2.30). При цьому коефіцієнти лінійного термічного розширення α_{ij} розраховуються за формулою (2.27) із середньою квадратичною похибкою, яка не перевищує 3×10^{-6} К⁻¹. Коефіцієнт об'ємного термічного розширення α_V визначається як $\alpha'_{11} + \alpha'_{22} + \alpha'_{33}$.

Для дилатометричних досліджень кристалів $\beta\text{-TlInS}_2$ використовувалися два зразки з формою паралелепіпеда [168]:

- зразок (1): грані перпендикулярні осям a , b та c (відповідні розміри 6,0; 8,1 та 5,8 мм);
- зразок (2): грані перпендикулярні осі c та напрямкам $[110]$ й $[1\bar{1}0]$ (відповідні розміри 4,75; 7,7 та 7,2 мм).

Слід зауважити, що усі ці кристалічні зразки зберігалися протягом одного року після завершення процедури вирощування.

Аналізуючи температурні залежності відносних лінійних термічних видовжень для різних кристалографічних напрямків в кристалах $\beta\text{-TlInS}_2$ (Рисунок 2.22), можна побачити, що в цих залежностях спостерігаються згладжені злами біля температурних точок $T_C \approx 206$ К та $T_i \approx 214$ К.

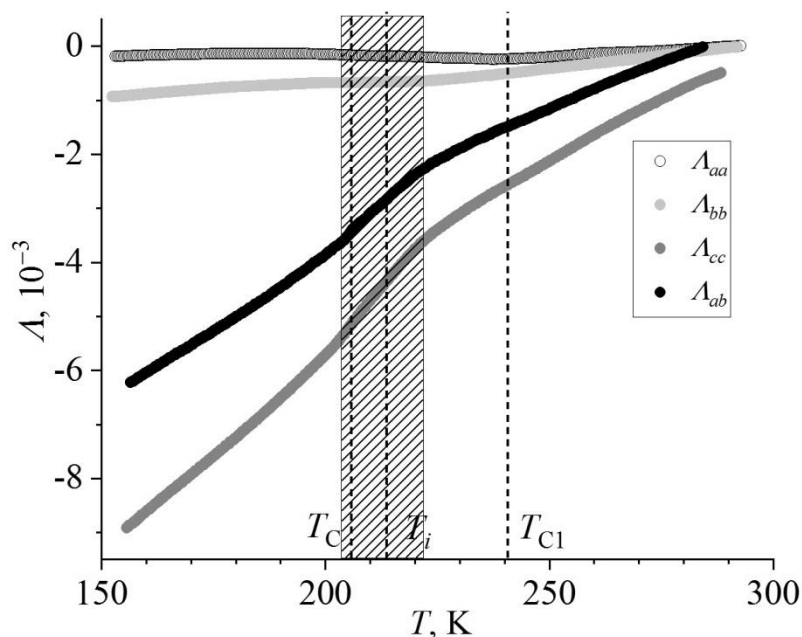


Рисунок 2.22. Температурні залежності A_{aa} , A_{bb} , A_{cc} та A_{ab} для кристалів β - TlInS_2 . Заштрихована ділянка: температурний діапазон неспівмірної фази для політипу з $c = c_0$ [168].

Крім того, додатковий розмитий злам спостерігається біля $T_{C1} \approx 241$ K у температурній залежності A_{aa} . Це вказує на співіснування різних політипів у досліджуваних зразках кристалів β - TlInS_2 .

Природно припустити, що аномалії, які спостерігаються в коефіцієнтах лінійного термічного розширення α_{cc} та α_{ab} при $T_C \approx 206$ K та $T_i \approx 214$ K (Рисунок 2.23, Рисунок 2.24), відповідають ФП відповідно в сегнетоелектричну фазу та неспівмірну фазу, які властиві для кристалів β - TlInS_2 , що належать до політипу з $c = c_0$.

Додаткова аномалія, яка спостерігається при $T_{C1} \approx 241$ K, може відповідати ФП в кристалах β - TlInS_2 , що належать до політипу з $c = 16c_0$. Коефіцієнт α_{aa} дуже слабо залежить від температури в околах ФП, тоді як коефіцієнт α_{bb} практично не залежить від температури. Натомість значення коефіцієнта α_{cc} є досить високим й помітно відрізняється від коефіцієнтів α_{aa} та α_{bb} . Це може бути викликано шаруватою структурою кристалів β - TlInS_2 . В свою чергу, високий коефіцієнт α_{ab} вказує на істотну анізотропію кристалів β - TlInS_2 в кристалографічній площині ab . Крім того, це означає, що кристалографічна

система координат не є власною системою координат для тензора лінійного термічного розширення α кристалів β -TlInS₂.

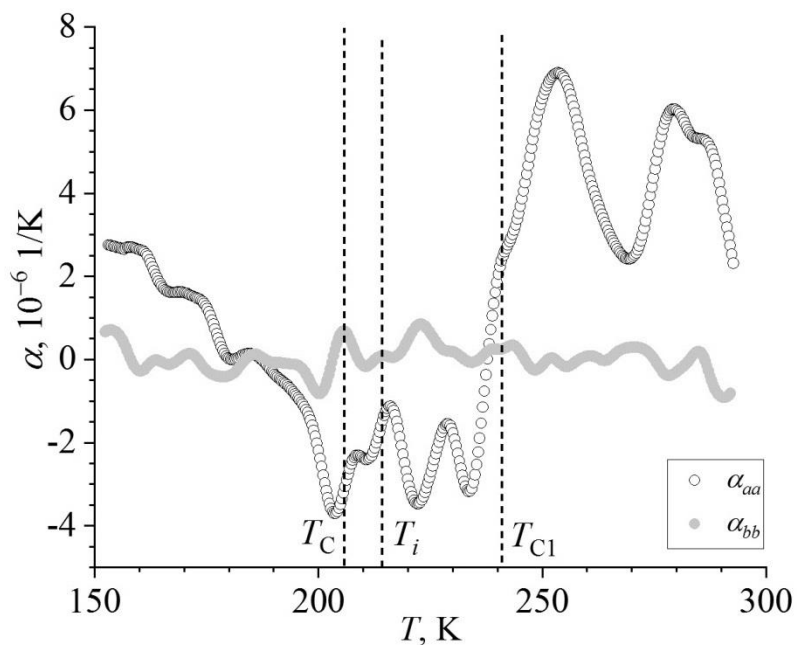


Рисунок 2.23. Температурні залежності α_{aa} та α_{bb} для кристалів β -TlInS₂ [168].

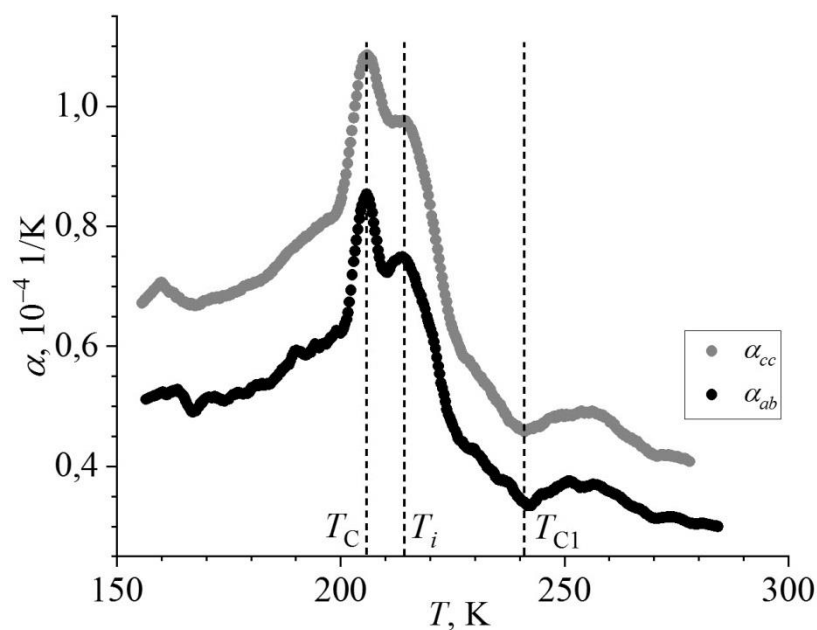


Рисунок 2.24. Температурні залежності α_{cc} та α_{ab} для кристалів β -TlInS₂ [168].

Натомість коефіцієнти α'_{11} та α'_{22} (Рисунок 2.25) діагонального тензора лінійного термічного розширення α' , відрізняючись своїми знаками, мають той самий порядок величин, що й коефіцієнт $\alpha'_{33} = \alpha_{cc}$. При цьому відповідна власна система координат повернута на кут $\sim 45^\circ$ навколо кристалографічної осі c відносно осей a та b .

В межах похибки для кута Θ (2.30) аномалії його температурної залежності не спостерігаються; причому максимальне відхилення від середнього значення дорівнює $1,43^\circ$ (Рисунок 2.26). Тому анізотропія коефіцієнтів лінійного термічного розширення існує не тільки вздовж осі c відносно площини спайності ab , але й у самій площині ab . З іншого боку, будь-який кількісний аналіз критичної поведінки температурної залежності коефіцієнта об'ємного термічного розширення (зокрема, визначення відповідного критичного показника) був би недоцільним, оскільки в досліджуваних кристалах можуть співіснувати різні політипи.

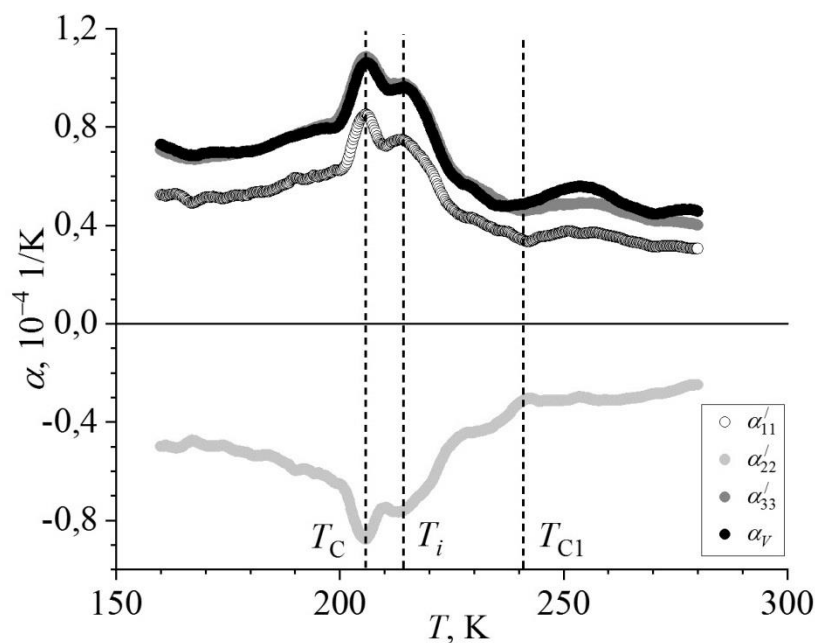


Рисунок 2.25. Температурні залежності α'_{11} , α'_{22} , α'_{33} та α_V для кристалів β -TlInS₂ [168].

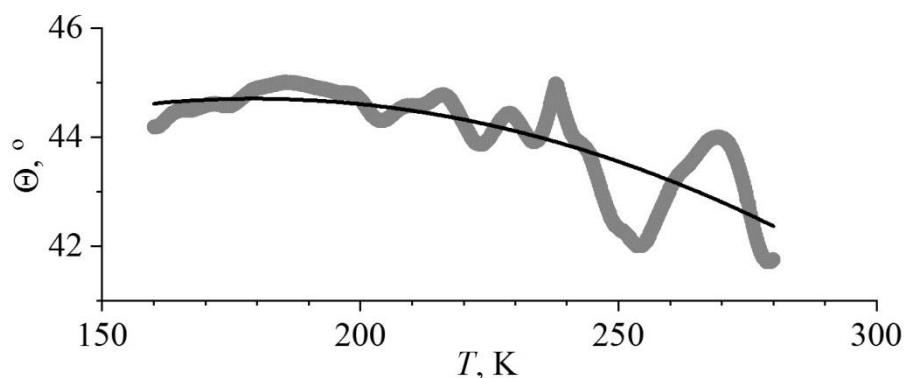


Рисунок 2.26. Температурна залежність кута Θ (2.30) для кристалів β - TlInS_2 : суцільна крива – інтерполяція поліномом другого порядку [168].

Аналізуючи вказівну поверхню діагонального тензора лінійного термічного розширення α' кристалів β - TlInS_2 та її поперечні перерізи головними площинами системи координат XYZ (Рисунок 2.27), можна побачити, що коефіцієнт лінійного термічного розширення дорівнює нулю для деяких напрямків у площині XY ; натомість площина XZ не містить таких напрямків. При $T = 273 \text{ K}$ ці напрямки утворюють кути 43° та 133° з віссю X (або, що те ж саме, кути 2° та 92° з кристалографічною віссю a). Розмір кристалів β - TlInS_2 не залежить від температури в цих напрямках. Крім того, ці напрямки не обертаються в площині ab в досліджуваному діапазоні температур. Те ж саме стосується площини YZ ; причому напрямки нульового коефіцієнта лінійного термічного розширення нахилені на 50° та 130° відносно осі Z .

В тримірному просторі всі напрямки нульового коефіцієнта лінійного термічного розширення є твірними лініями еліптичного конуса, головна вісь якого паралельна осі Y .

Шарувата структура кристалів $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$, яка призводить до відколу кристалічних пластин вздовж напрямку, перпендикулярного до кристалографічної осі c , перешкоджає виготовленню зразків довільної геометрії для проведення оптичних досліджень. Тому для подальших комплексних досліджень анізотропії термічних та оптичних параметрів твердих розчинів $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ використовувалися монокристалічні зразки з поверхнями, перпендикулярними до осі c . Розміри цих зразків по осі c становили 4,21 мм для

$x = 0$; 1,52 мм для $x = 0,02$; 1,36 мм для $x = 0,06$; 4,54 мм для $x = 0,10$; 2,86 мм для $x = 0,15$ та 1,4 мм для $x = 0,25$ [108]. Усі ці кристалічні зразки зберігалися протягом двох років після завершення процедури вирощування.

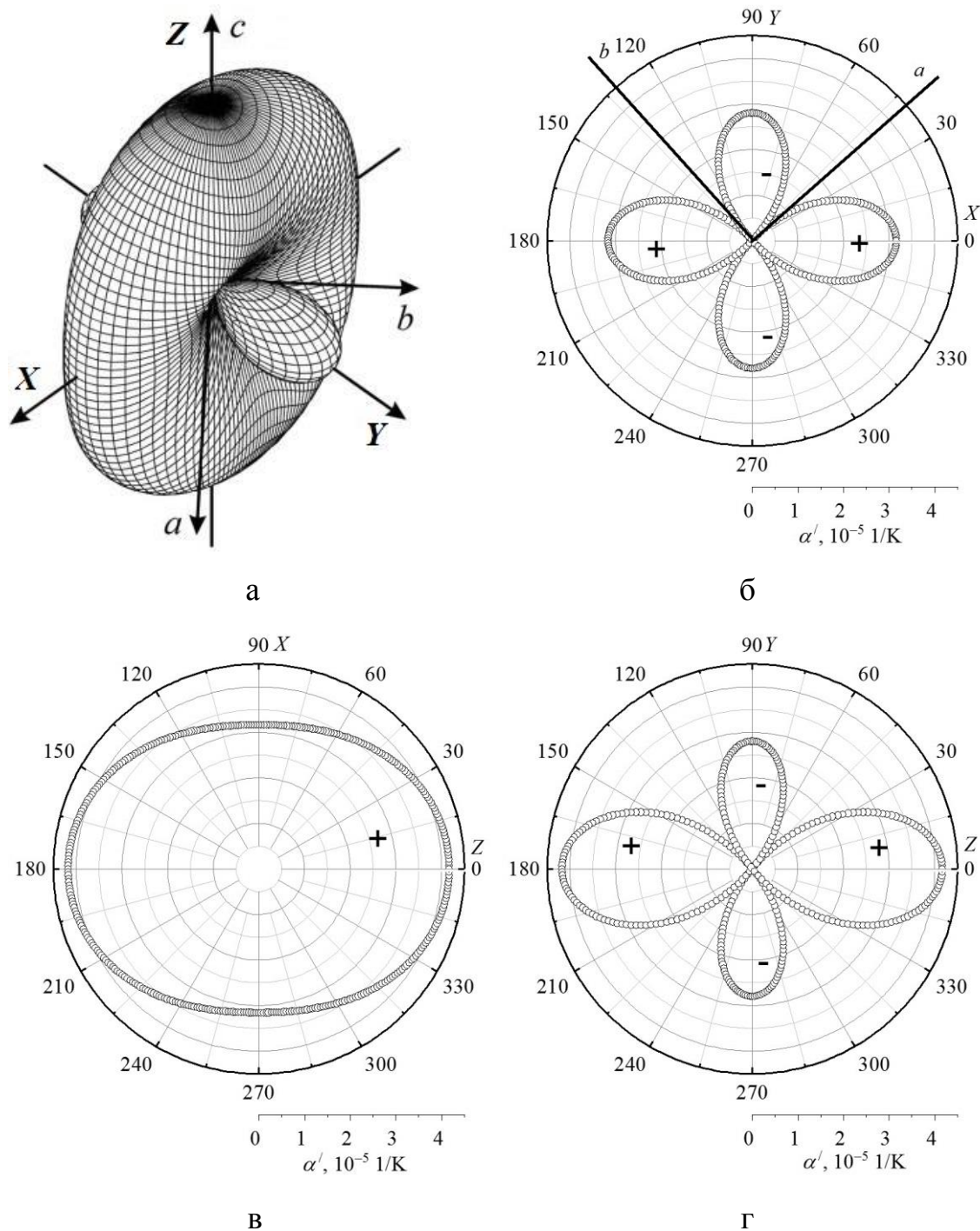


Рисунок 2.27. Вказівна поверхня тензора α' кристалів $\beta\text{-TlInS}_2$ для температури 273 К (а) та її перерізи площинами XY (б), XZ (в), YZ (г) [168].

На відміну від дилатометричних досліджень, дослідження температурних залежностей оптичного двозаломлення та орієнтації оптичної індикатриси для твердих розчинів $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ не є тривіальним завданням. Насамперед, будь-які оптичні вимірювання в цих кристалах можуть бути успішно проведені лише тоді, коли світло поширюється точно вздовж напрямку c . З іншого боку, кристали $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ при $x \leq 0,25$ мають псевдотетрагональну елементарну комірку, що повинно призводити до невеликого двозаломлення вздовж осі c . Так, згідно з роботою [120], двозаломлення в кристалах $\beta\text{-TlInS}_2$ за нормальних умов має порядок 10^{-4} .

Наступна проблема, яка виникає при дослідженнях двозаломлення в твердих розчинах $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$, пов'язана з можливістю обертання оптичної індикатриси навколо осі c зі зміною температури. Температурна залежність відповідного кута повороту апріорі невідома. Це означає, що неможливо використовувати стандартні методи вимірювання приросту двозаломлення, які базуються на компенсації різниці фаз. Так, наприклад, незважаючи на надзвичайно високу точність вимірювання двозаломлення методом Сенармона, в цьому випадку його не можна використовувати, оскільки швидка та повільна осі чвертьхвильового компенсатора не можуть відслідковувати орієнтацію осей оптичної індикатриси під час зміни температури. Те ж саме стосується орієнтації падаючого лінійно-поляризованого світла. З тих самих причин не можна використовувати також й стандартний метод півхвильової різниці ходу. Щоб уникнути вищевказаних проблем, потрібно зробити падаюче світло нечутливим до орієнтації осей оптичної індикатриси – тобто, воно має бути циркулярно-поляризованим.

З огляду на вищевикладене для дослідження оптичної різниці фаз й орієнтації оптичної індикатриси та отримання поляриметричних двовірних карт їхнього розподілу використовується поляриметр зображення (Рисунок 2.28). Щоб виміряти різницю фаз та орієнтацію оптичної індикатриси, зондуєний лазерний промінь розширюється й поляризується циркулярно. Чвертьхвильова пластина (9) орієнтована в так званому діагональному

положенні; при цьому кут між її головними осями та напрямком пропускання поляризатора (8) дорівнює 45° .

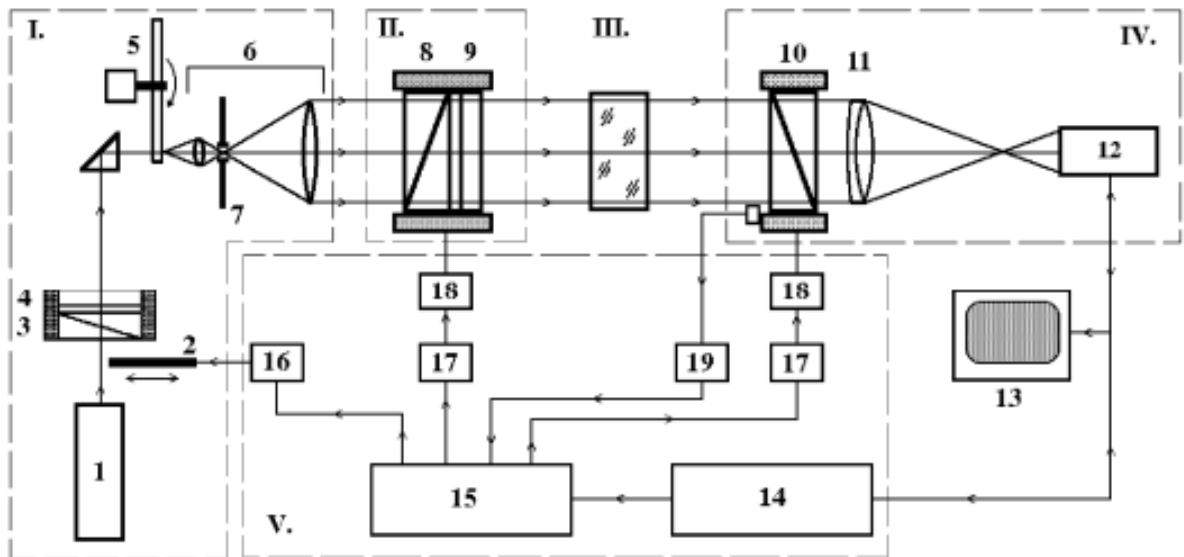


Рисунок 2.28. Схема поляриметра зображення (I – секція джерела світла; II – генератор поляризації, III – секція зразка, IV – аналізатор поляризації, V – блок управління): 1 – He–Ne лазер; 2 – променевий затвор; 3, 8 – поляризатори; 4, 9 – чвертьхвильові пластини; 5 – змішувач когерентності; 6 – розширювач пучка; 7 – просторовий фільтр; 10 – аналізатор; 11 – об’єктив; 12 – ПЗС-камера; 13 – монітор; 14 – фрейм-граббер (плата захвату зображення); 15 – ПК; 16 – контроллер затвора; 17 – контроллери крокових двигунів; 18 – крокові двигуни; 19 – контроллер опорного положення [169].

Тоді досліджуваний зразок можна розглядати як лінійний фазосповільнювач, для якого залежність вихідної інтенсивності світла I від азимута аналізатора ψ можна записати як [169]

$$I = \frac{I_0}{2} (1 + \sin \Delta \Gamma \sin(2(\psi - \varphi))) = C_1 + C_2 \sin(2(\psi - C_3)), \quad (2.31)$$

де φ – кут орієнтації оптичної індикатрис; $\Delta\Gamma = 2\pi(\Delta n)d/\lambda$ – оптична різниця фаз; Δn – лінійне двозаломлення; d – товщина зразка; λ – довжина хвилі оптичного випромінювання.

Після запису та фільтрації оптичного зображення азимутальні залежності вихідної інтенсивності світла I інтерполюються синусоїдальною функцією (2.31) для кількох центральних пікселів перерізу пучка (або для всіх пікселів, якщо записуються поляриметричні карти) з наступними коефіцієнтами інтерполяції:

$$C_1 = \frac{I_0}{2}, C_2 = \frac{I_0}{2} \sin \Delta\Gamma, C_3 = \varphi. \quad (2.32)$$

В такому випадку оптична різниця фаз $\Delta\Gamma$ визначається коефіцієнтами C_1 та C_2 у співвідношенні

$$\sin \Delta\Gamma = \frac{C_2}{C_1}, \quad (2.33)$$

тоді як кутова орієнтація мінімуму інтенсивності визначається орієнтацією головної осі оптичної індикатрис φ та коефіцієнтом C_3 . Таким чином, інтерполяція залежностей вихідної інтенсивності світла I від азимута аналізатора ψ для кожного пікселя зображення досліджуваного зразка дозволяє побудувати двомірні карти розподілу параметрів оптичної анізотропії – оптичної різниці фаз та кута орієнтації оптичної індикатрис.

Аналізуючи коноскопичні картини, отримані для твердих розчинів $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ з різними значеннями концентрації атомів Se x (Рисунок 2.29), можна побачити, що двозаломлення для твердих розчинів з $x = 0,25$ є достатньо малим, а ізохромні є майже колами – тобто, такі тверді розчини є "майже оптично одновісними". З іншого боку, ізохромні для твердих розчинів з $x = 0; 0,06; 0,10$ набувають еліптичної форми, що свідчить про те, що двозаломлення в цих твердих розчинах вздовж осі c є вищим, ніж у випадку

$x = 0,25$. Найбільше двозаломлення має спостерігатися для твердих розчинів з $x = 0,02$; $0,15$. Й, дійсно, коноскопичні картини, що спостерігаються для цих твердих розчинів, характерні для оптично двовісних кристалів з малим кутом між оптичними осями. Однак коноскопичні картини для твердих розчинів з $x = 0,02$ деформуються, що свідчить про нерівномірні напруження всередині них [134]. Це є причиною того, що вимірювання температурних залежностей приросту двозаломлення та кута повороту оптичної індикатриси для твердих розчинів з $x = 0,02$ здійснити не вдалося.

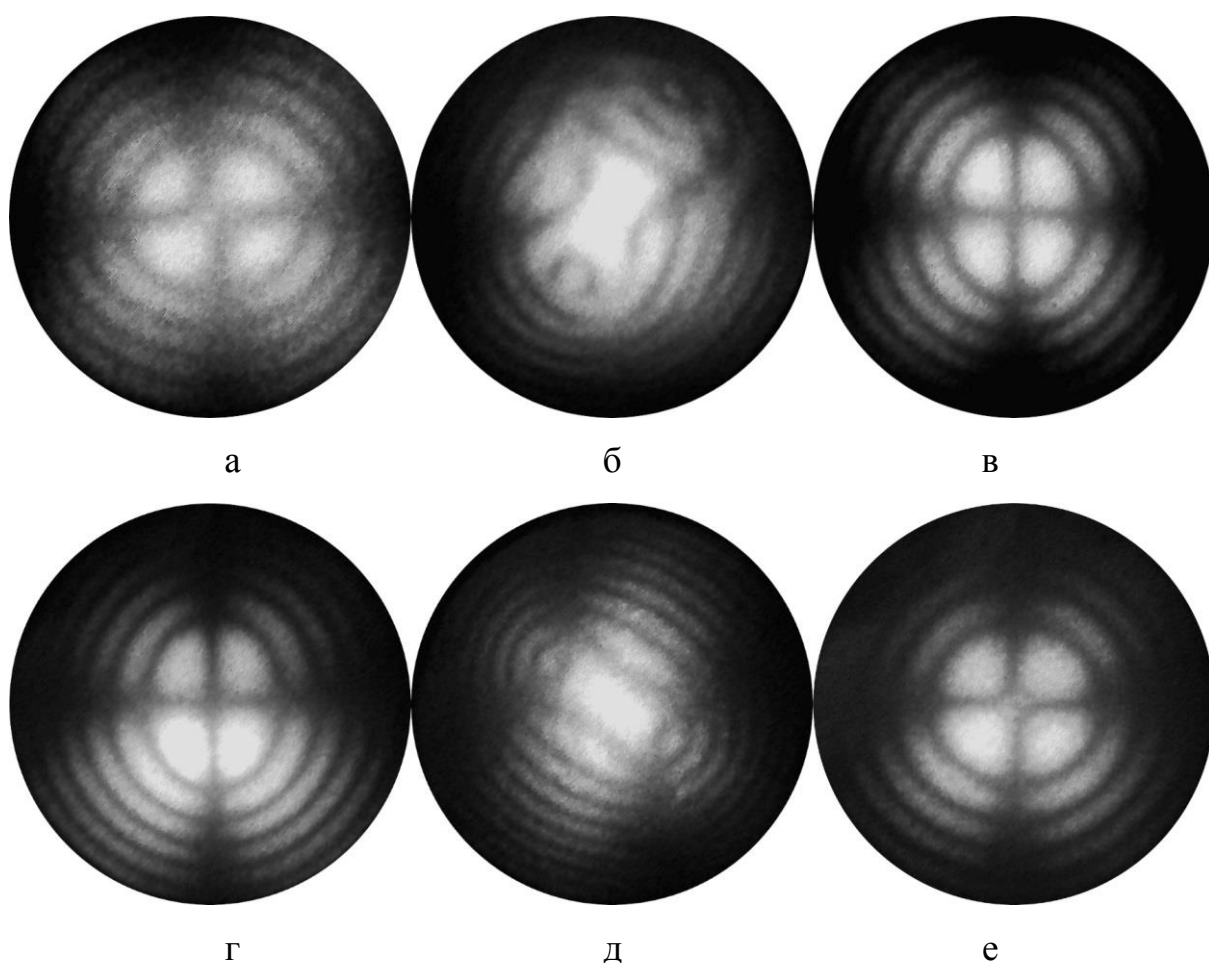


Рисунок 2.29. Коноскопичні картини для твердих розчинів $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$: $x = 0$ (а), $x = 0,02$ (б), $x = 0,06$ (в), $x = 0,10$ (г), $x = 0,15$ (д), $x = 0,25$ (е). Світло з довжиною хвилі $\lambda = 632,8$ нм поширюється вздовж осі c [108].

Аналізуючи температурні залежності приросту кута повороту оптичної індикатриси $\Phi = \Delta\varphi$, приросту оптичного двозаломлення $H = \delta\Delta(n)$, їхніх

похідних від температури Φ' та H' , а також відносного лінійного видовження A_{cc} та коефіцієнта лінійного термічного розширення α_{cc} для кристалів β -TlInS₂ (фактично, твердих розчинів TlIn(S_{1-x}Se_x)₂ з $x = 0$) (Рисунок 2.30), можна знайти чотири особливі температурні точки.

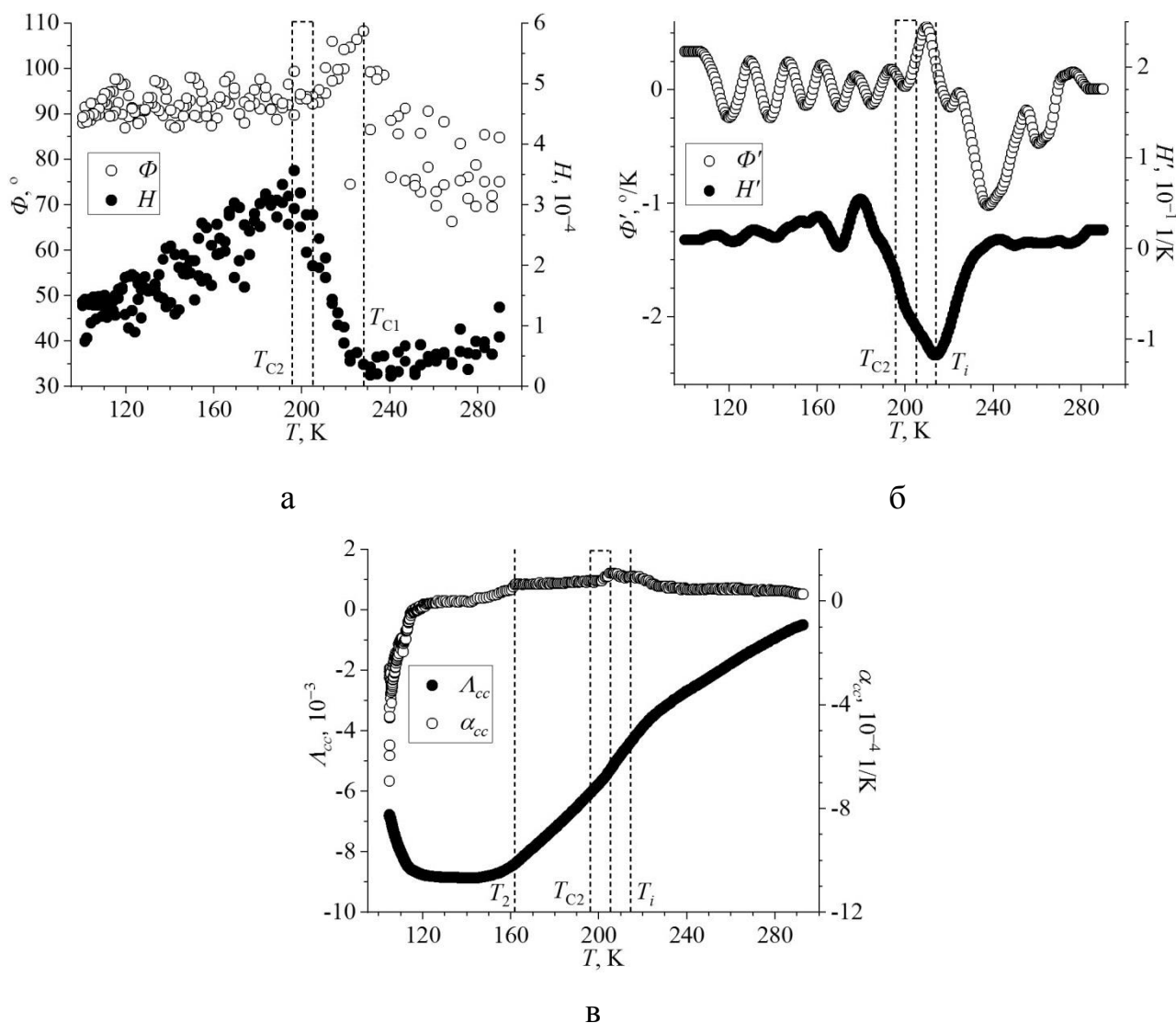


Рисунок 2.30. Температурні залежності Φ та H (а), Φ' та H' (б), A_{cc} та α_{cc} (в) для кристалів β -TlInS₂ [108, 169, 170].

Такими точками є:

- точка $T_{C1} = 228$ K, яка проявляється в температурній залежності Φ ;
- точка $T_i = 214$ K, яка проявляється в температурних залежностях H' , A_{cc} та α_{cc} ;

- точка T_{C2} з діапазону температур 196–205 К, яка проявляється в температурних залежностях H , H' , A_{cc} та α_{cc} ;
- $T_2 = 162$ К, яка проявляється в температурних залежностях A_{cc} та α_{cc} .

Як можна бачити, наведені вище температури ФП майже збігаються з температурами $T_C \approx 206$ К та $T_i \approx 214$ К (Рисунок 2.22–Рисунок 2.24), отриманими виключно з температурних залежностей коефіцієнта лінійного термічного розширення [168]. При цьому, порівнюючи отримані дані та результати досліджень кристалів β -TlInS₂, здійснених іншими авторами, можна зробити висновок, що температура T_{C1} відповідає температурі розмитого ФП з нормальної фази у впорядковану фазу в політипі з $c = 16c_0$, тоді як температура T_{C2} являє собою температуру розмитого ФП з неспівмірної фази в сегнетоелектричну фазу в політипі з $c = c_0$.

Аномалія при $T_i = 214$ К (Рисунок 2.30) є такою ж самою, що й точка 214 К з роботи [115] (або точка 216 К з робіт [167] та [120]), яка характеризує ФП у неспівмірну фазу в політипі з $c = c_0$. Натомість щодо додаткових аномалій, які спостерігаються при ще нижчих температурах ($T_2 = 162$ К), можна припустити, що вони належать до області температур, де розмитий ФП з неспівмірної фази у сегнетоелектричну фазу завершується в політипі з $c = c_0$. Причому це структурне перетворення починається при $T_{C2} \approx 197$ К (або 206 К).

За нормальних умов абсолютна величина двозаломлення для кристалів β -TlInS₂, визначена за двомірними картами розподілу оптичних параметрів, становить приблизно 4×10^{-4} [169], що задовільно узгоджується з даними з роботи [120]. Приріст кута орієнтації оптичної індикатрисы $\delta\varphi$ для кристалів β -TlInS₂ за нормальних умов ($T = 290$ К) дорівнює $(84,16 \pm 14,60)^\circ$ по всій карті; натомість приріст оптичної різниці фаз $\delta(\Delta\Gamma)$ за цих самих умов дорівнює $(18,64 \pm 7,61)^\circ$ (Рисунок 2.31).

В свою чергу, значення приросту кута орієнтації оптичної індикатрисы та приросту оптичної різниці фаз при $T = 219$ К становлять $(98,86 \pm 13,35)^\circ$ та $(33,72 \pm 9,73)^\circ$ відповідно (Рисунок 2.32).

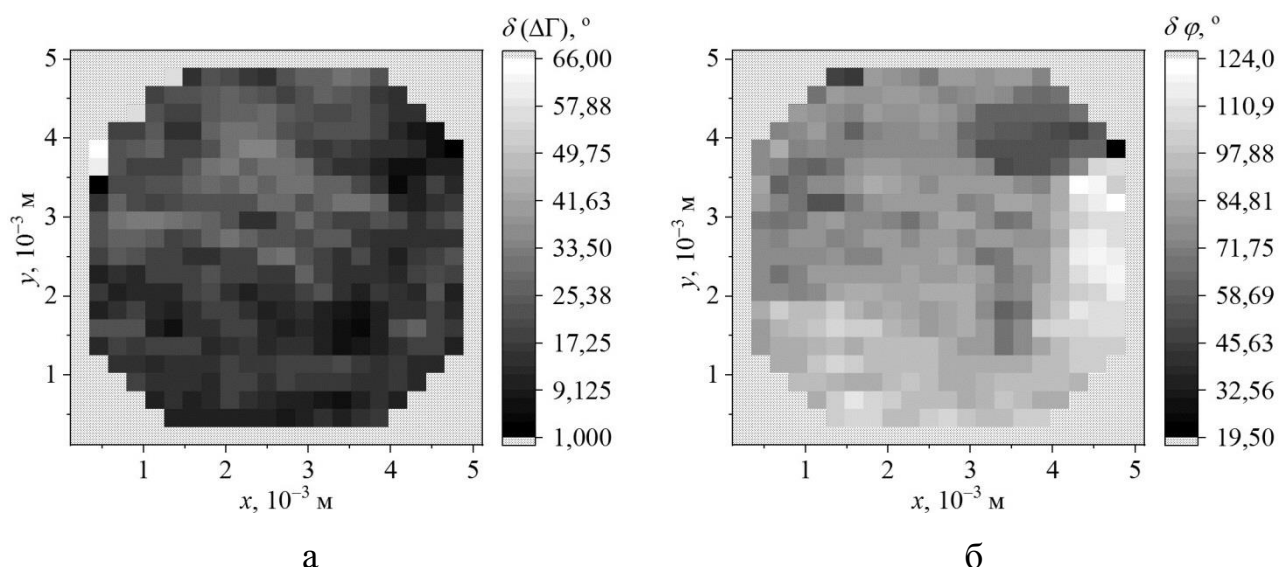


Рисунок 2.31. Двомірні карти розподілу $\delta(\Delta\Gamma)$ (а) та $\delta\varphi$ (б) для кристалів β -TlInS₂ при $T = 290$ К у кристалографічній площині ab [169].

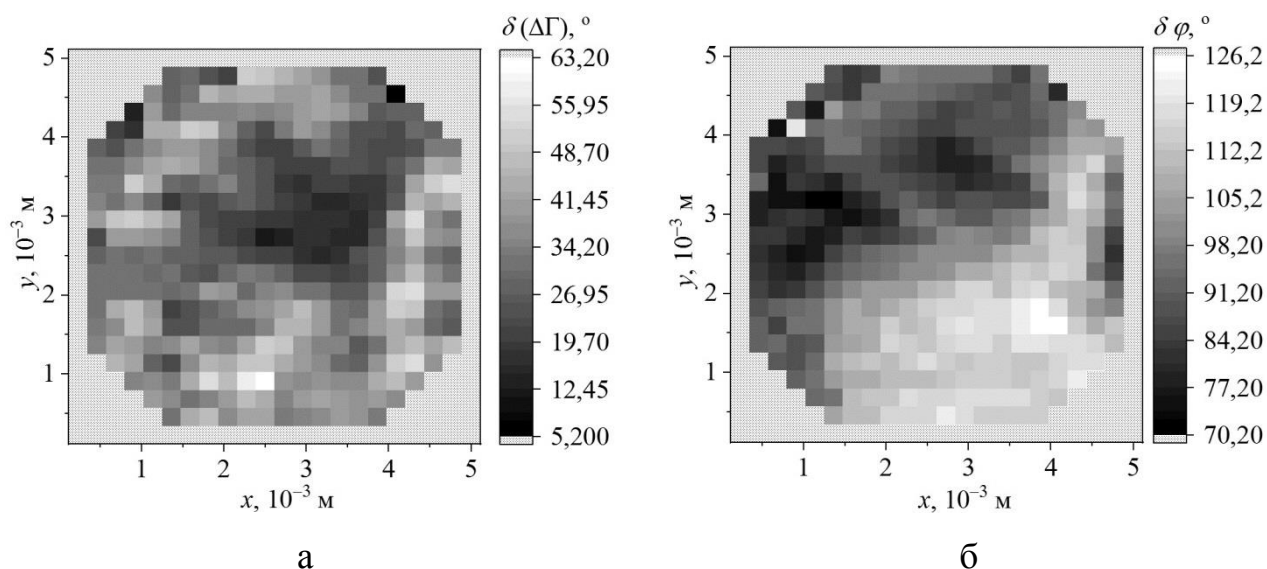


Рисунок 2.32. Двомірні карти розподілу $\delta(\Delta\Gamma)$ (а) та $\delta\varphi$ (б) для кристалів β -TlInS₂ при $T = 219$ К у кристалографічній площині ab [169].

Слід зауважити, що середньоквадратичні відхилення обох параметрів при цих температурах близькі. Це означає, що немає підстав припускати, що існують якісь неоднорідності двозаломлення та кута орієнтації оптичної індикатриси як прояви політипних станів. Просторові розподіли вищевказаних параметрів також досить рівномірні при нижчих температурах вище T_{C2} .

Однак у сегнетоелектричній фазі нижче T_{C2} ($T = 169$ K) розподіл приросту оптичної різниці фаз можна розділити на дві області, в яких прирости оптичної різниці фаз дорівнюють $(35,52 \pm 8,69)^\circ$ та $(60,79 \pm 8,82)^\circ$ – тобто, середні значення приросту оптичної різниці фаз у цих областях відрізняються майже вдвічі (Рисунок 2.33). Крім того, середньоквадратичні відхилення приросту оптичної різниці фаз у цих областях настільки малі, що значення обох параметрів не перекриваються. З іншого боку, приріст кута орієнтації оптичної індикатриси при $T = 169$ K для цих областей є однаковим – він дорівнює $(91,85 \pm 7,17)^\circ$.

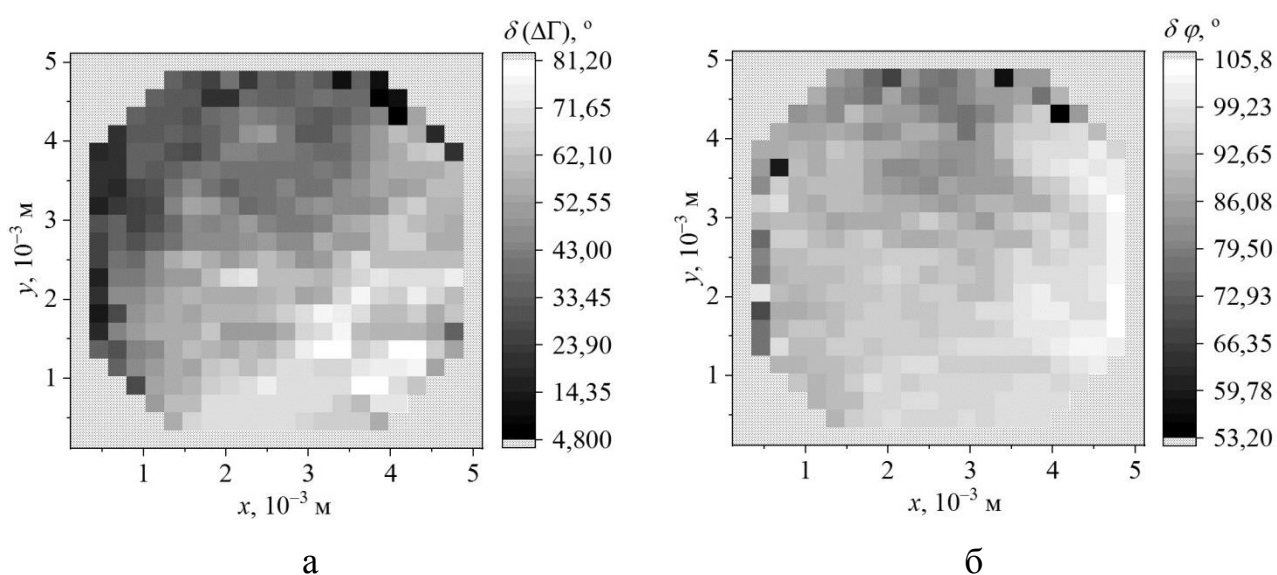


Рисунок 2.33. Двомірні карти розподілу $\delta(\Delta\Gamma)$ (а) та $\delta\varphi$ (б) для кристалів β -TlInS₂ при $T = 169$ K у кристалографічній площині ab [169].

Оскільки параелектрична фаза є центросиметричною, зміни лінійного двозаломлення та кута орієнтації оптичної індикатриси можна віднести лише до квадрата спонтанної поляризації. Іншими словами, ці зміни однакові в доменах з протилежними знаками спонтанної поляризації, й поляриметрично розрізнити такі домени неможливо. З іншого боку, домени є енантіоморфними й повинні мати протилежні знаки оптичної активності. Незважаючи на те, що лінійне двозаломлення є досить малим (близько 4×10^{-4}), його достатньо для маскуванню циркулярного двозаломлення, яке має порядок величини $10^{-5} - 10^{-4}$ в середньому по досліджуваному зразку. Отже, малоймовірно, що різниця

приростів оптичної різниці фаз у різних областях досліджуваного зразка викликана енантіоморфною доменною структурою. Крім того, кут орієнтації оптичної індикатриси достатньо рівномірно розподілений по площі досліджуваного зразка. З огляду на вищевикладене, ці області можна розглядати як такі, що відповідають різним політипам – а саме, політипам з $c = c_0$ та $c = 16c_0$. За допомогою поляриметричних методів ці області можна чітко розрізнити лише при більш низьких температурах, де параметри порядку для обох політипів стають достатньо високими.

Згідно з дилатометричними дослідженнями, особливими температурними точками для твердих розчинів $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ з $x = 0,02$ є точки $T_i = 201$ К, $T_{C2} = 180$ К та $T_2 = 160$ К (Рисунок 2.34). Ці результати близькі до результатів, отриманих з температурної залежності діелектричної проникності в роботі [171] ($T_i = 203$ К та $T_C = 183$ К) та наведених в роботі [134] ($T_i = 204$ К та $T_C = 190$ К). Тим не менше, ФП при T_{C2} для твердих розчинів $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ з $x = 0,02$ виявлено не було.

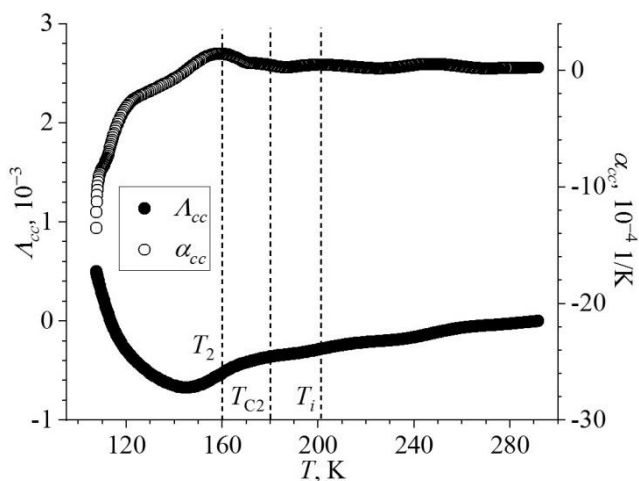


Рисунок 2.34. Температурні залежності A_{cc} та α_{cc} для кристалів $\text{TlIn}(\text{S}_{0,98}\text{Se}_{0,02})_2$ [108, 170].

Для твердих розчинів $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ з $x = 0,06$ (Рисунок 2.35) температурні залежності Φ , H , Φ' та H' характеризуються аномаліями, виявленими при

$T_{C2} = 166$ К та $T_i = 185$ К. Згладжені аномалії в температурних залежностях Λ_{cc} та α_{cc} спостерігаються в околах точок $T_i = 185$ К, $T_{C2} = 166$ К та $T_2 = 157$ К.

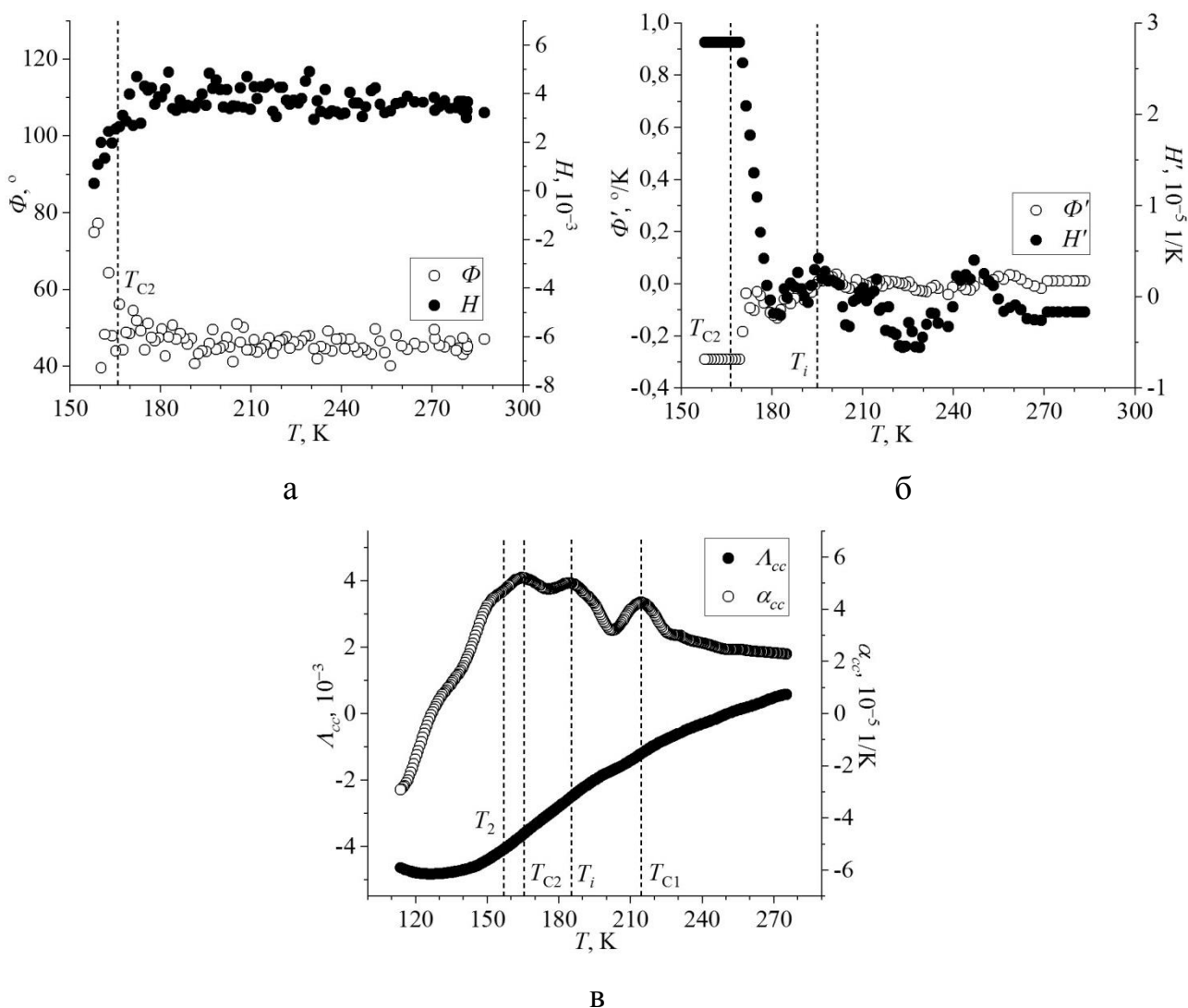


Рисунок 2.35. Температурні залежності Φ та H (а), Φ' та H' (б), Λ_{cc} та α_{cc} (в) для кристалів $\text{TlIn}(\text{S}_{0.94}\text{Se}_{0.06})_2$ [108, 170].

Ще одна чітка аномалія спостерігається в температурній залежності α_{cc} при $T_{C1} = 214$ К. Можна припустити, що ця точка відповідає ФП політипу з $c = 16c_0$. В свою чергу, температура $T_i = 185$ К, скоріше за все, відповідає ФП з параелектричної фази в неспівмірну фазу, тоді як точка $T_{C2} = 166$ К відповідає ФП з неспівмірної фази в сегнетоелектричну фазу.

Для твердих розчинів $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ з $x = 0,10$ (Рисунок 2.36) на температурних залежностях Φ та H можна виявити три особливі точки: $T_i = 175$ К, $T_{C2} = 150$ К та $T_2 = 132$ К. При цьому слід зазначити, що на температурній залежності Φ при $T = T_{C2}$ можна спостерігати чіткий стрибок, який свідчить про перший рід відповідного ФП. Натомість температурна залежність Λ_{cc} характеризується особливою температурою $T_2 = 132$ К, а в температурній залежності α_{cc} можна спостерігати три аномалії ($T_i = 175$ К, $T_{C2} = 150$ К та $T_2 = 132$ К).

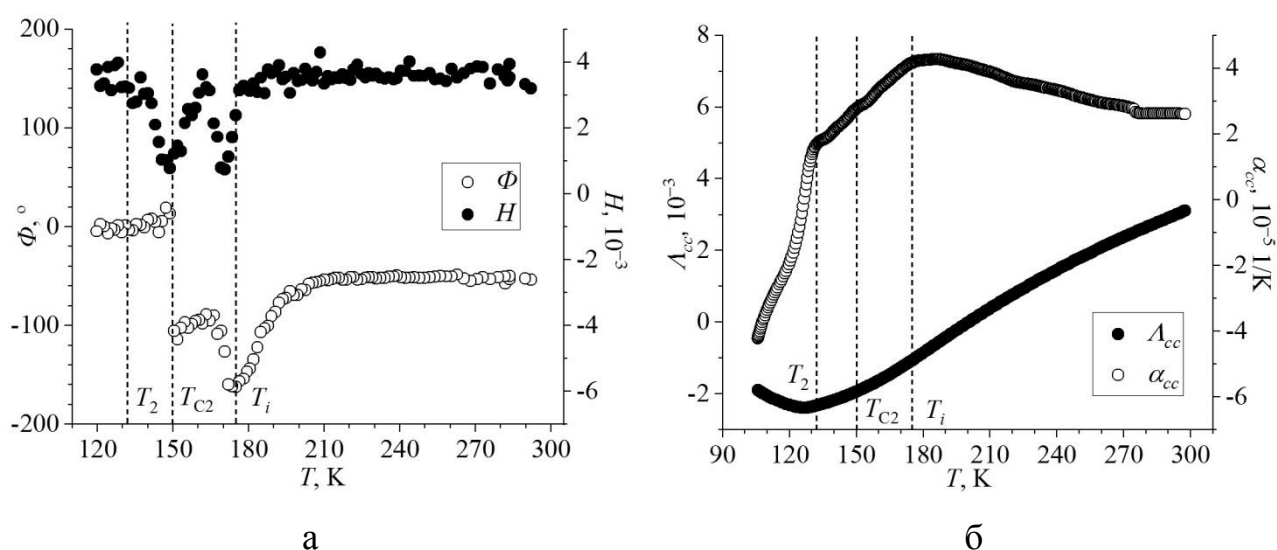


Рисунок 2.36. Температурні залежності Φ та H (а), Λ_{cc} та α_{cc} (б) для кристалів $\text{TlIn}(\text{S}_{0,90}\text{Se}_{0,10})_2$ [108].

Для твердих розчинів $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ з $x = 0,15$ (Рисунок 2.37) на температурній залежності Φ спостерігаються аномалії при $T_2 = 144$ К та $T_{C2} = 164$ К. Крім того, на температурній залежності H спостерігається особлива точка $T_i = 183$ К. Ті ж самі аномалії чітко спостерігаються в температурних залежностях Φ' , H' та α_{cc} . Натомість на температурній залежності Λ_{cc} можна виявити єдину особливу точку $T_2 = 144$ К.

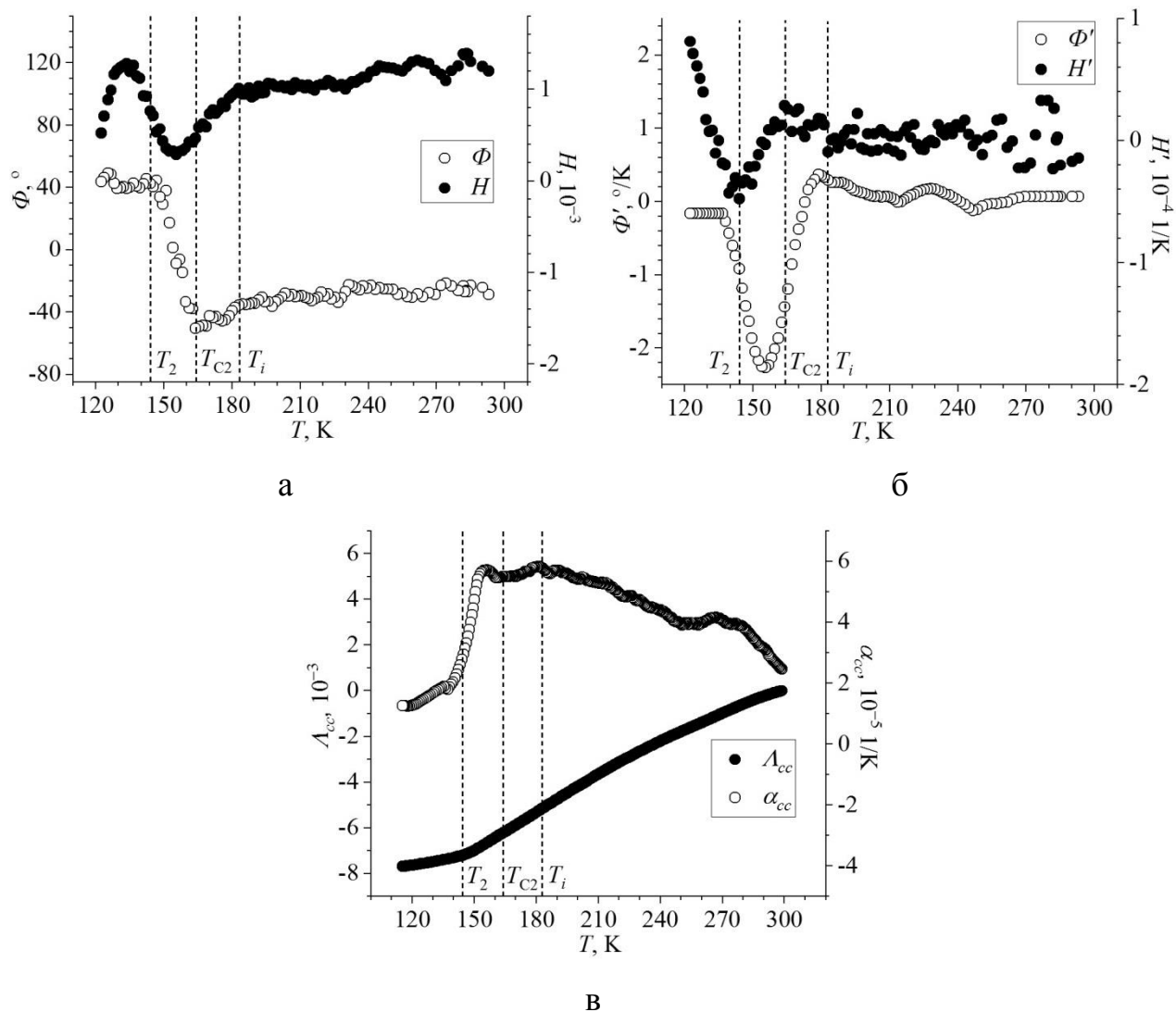


Рисунок 2.37. Температурні залежності Φ та H (а), Φ' та H' (б), Λ_{cc} та α_{cc} (в) для кристалів $\text{TlIn}(\text{S}_{0.85}\text{Se}_{0.15})_2$ [108].

Тверді розчини $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ з $x = 0,25$ (Рисунок 2.38) за нормальних умов близькі до оптично одновісного стану, з огляду на їхню коноскопічну картину (Рисунок 2.29). Їхнє двозаломлення демонструє тенденцію до зростання при охолодженні, тоді як кут орієнтації оптичної індикатриси майже не залежить від температури. При цьому в температурних залежностях Φ та H неможливо розпізнати якісь особливі точки, які можна було б віднести до ФП. С іншого боку, в температурних залежностях Φ' та H' спостерігається область "лінеаризації"; причому температура T_2 , нижче якої починається процес "лінеаризації", скоріше за все, дорівнює 133 К. Й, нарешті, на температурній залежності α_{cc} , окрім точки $T_2 = 133 \text{ K}$, чітко спостерігається температурна

точка $T_{C2} = 160$ К. Проте на температурній залежності Λ_{cc} можна розпізнати лише точку T_2 . На жаль, точка T_i на жодній температурній залежності з вищевказаних не спостерігається.

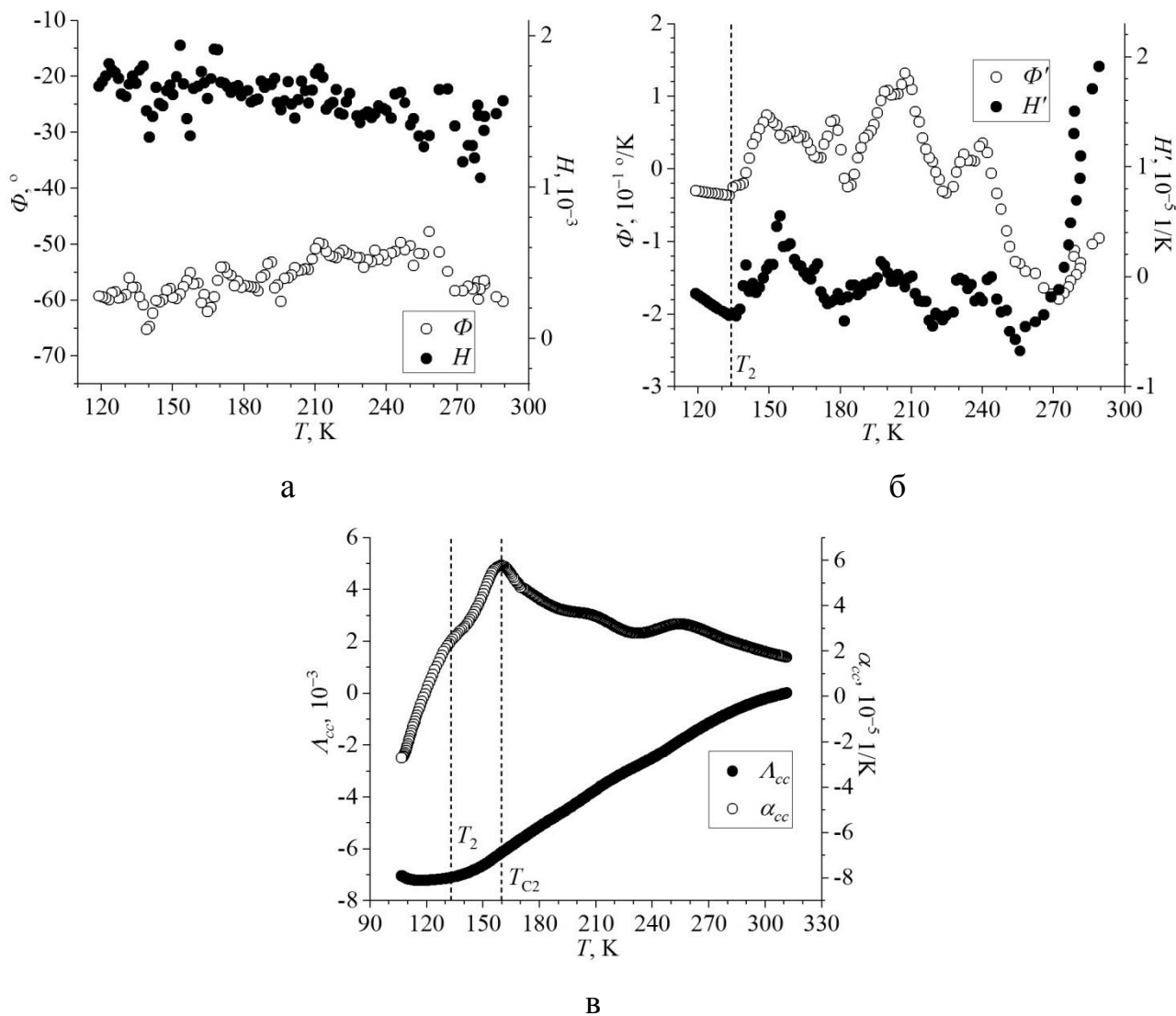


Рисунок 2.38. Температурні залежності Φ та H (а), Φ' та H' (б), Λ_{cc} та α_{cc} (в) для кристалів $\text{TlIn}(\text{S}_{0.75}\text{Se}_{0.25})_2$ [108].

Таблиця 2.4 містить температури ФП, виявлені в твердих розчинах $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ ($x = 0; 0,02; 0,06; 0,10; 0,15; 0,25$) в результаті експериментальних досліджень; при цьому, оскільки всі ці ФП тією чи іншою мірою є розмитими, наведені температури ФП є середніми значеннями відповідних діапазонів розмиття ФП.

Таблиця 2.4. Температури ФП для твердих розчинів $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ ($x = 0; 0,02; 0,06; 0,10; 0,15; 0,25$) [108].

x	0	0,02	0,06	0,10	0,15	0,25
T_{C1}, K	228	—	214	—	—	—
T_i, K	214	201	185	175	183	—
T_{C2}, K	201	180	166	150	164	160
T_2, K	162	160	157	132	144	133

Як можна бачити з (x,T) -фазової діаграми для твердих розчинів $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ (Рисунок 2.39), отримані результати щодо точок T_{C2} та T_i добре узгоджуються з відповідними даними, наведеними в роботі [133].

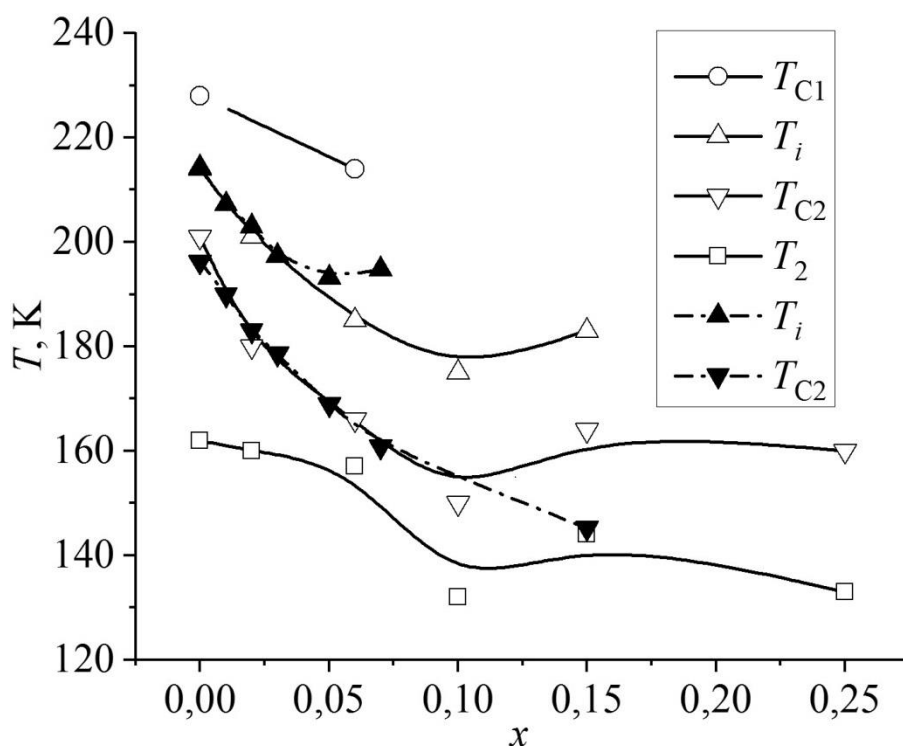


Рисунок 2.39. (x,T) -фазова діаграма для твердих розчинів $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ ($0 \leq x \leq 0,25$) [108]. Дані, позначені заповненими трикутниками, взяті з роботи [133].

Крім того, було виявлено, що сегнетоелектричний ФП є розмитим в області температур $T_{C2} > T > T_2$. Збільшення концентрації атомів Se x не має суттєвого впливу на температурну область, де існує неспівмірна фаза, хоча

існує невелика тенденція до її збільшення. Також можна бачити, що у твердих розчинах $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ з $0 \leq x \leq 0,05$ з'являється додатковий ФП, який, скоріше за все, відповідає сегнетоелектричному ФП у політипі з $c = 16c_0$. Можна припустити, що політипи у твердих розчинах $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ існують також й при більш високих концентраціях атомів Se x , тоді як ФП, властиві цим політипам, дуже розмиті, а аномалії, що відповідають цим ФП, виражені недостатньо.

Висновки до Розділу 2

1. Магнітооптичні параметри лужно-боратних стекол LiKB_4O_7 , $\text{Li}_2\text{B}_6\text{O}_{10}$ та $\text{LiCsB}_6\text{O}_{10}$, експериментально визначені за нормальних умов для довжини оптичної хвилі 632,8 нм, попри їхню меншу величину порівняно з відповідними характеристиками відомих магнітооптичних матеріалів, свідчать про принципову можливість використання цих стекол для роботи з потужним лазерним випромінюванням з огляду на такі їхні переваги, як нетоксичність, простота в отриманні, прозорість в широкому спектральному діапазоні та висока променева стійкість.

2. Ефективні коефіцієнти Фарадея та константи Верде були експериментально визначені для двовісних халькогенідних кристалів Tl_3AsS_4 , $\text{AgGaGe}_3\text{Se}_8$, AgGaGeS_4 та твердих розчинів $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ ($x = 0; 0,02; 0,06; 0,10; 0,15; 0,25$) за нормальних умов для довжини оптичної хвилі 632,8 нм в геометрії експерименту, яка відповідає напрямкам поширення світла та напруженості магнітного поля, паралельним одній з оптичних осей. При цьому встановлено, що в твердих розчинах $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ ($x = 0; 0,02; 0,06; 0,10; 0,15; 0,25$) ефективний коефіцієнт Фарадея та константа Верде мають тенденцію до зростання із збільшенням концентрації атомів Se x , що можна пояснити дисперсією коефіцієнтів Фарадея та зсувом краю поглинання в бік більших довжин оптичних хвиль.

3. Виходячи зі значень їхніх магнітооптичних параметрів, халькогенідні кристали Tl_3AsS_4 , $\text{AgGaGe}_3\text{Se}_8$ та тверді розчини $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$

($x = 0; 0,02; 0,06; 0,10; 0,15; 0,25$) можна вважати одними з найкращих магнітно-непорядкованих матеріалів для магнітооптичних застосувань, порівняно з такими конкурентами у цій сфері, як кристали $\text{Sn}_2\text{P}_2\text{S}_6$, ZnTe , Cu_2O та $\text{Tb}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$.

4. В результаті комплексного дослідження температурної поведінки анізотропії акустичних (швидкості АХ, коефіцієнти жорсткості й пружної податливості) та термічних (відносні термічні зміни розмірів та об'єму, коефіцієнти лінійного та об'ємного термічного розширення) параметрів халькогенідних кристалів TlInSe_2 було встановлено, що ці кристали зазнають декількох ФП та проходів через широкий температурний діапазон співіснування фаз. Так, зокрема, значна аномальна поведінка цих параметрів була виявлена при $T_1 \approx 245 \text{ K}$ та $T_2 \approx 145 \text{ K}$; причому температурні залежності швидкостей АХ та дилатометричні дані свідчать про те, що симетрія кристалів TlInSe_2 стає нижчою за тетрагональну нижче температури T_1 . Поряд з появою спонтанних деформацій вздовж основних кристалографічних напрямків це може вказувати на сегнетоеластичну природу відповідного ФП (більше того, можливим є співіснування фаз в області температур між T_1 та T_2). При цьому слід зауважити, що специфічна точка $T_2 \approx 145 \text{ K}$ виявляється близькою до температури 135 K , в якій іншими дослідниками було виявлено ФП з неспівмірної фази у впорядковану фазу. В свою чергу, точка $T_1 \approx 245 \text{ K}$ може відповідати температурі 185 K , в якій, згідно з деякими літературними даними, також відбувається ФП.

5. На основі експериментальних досліджень температурної поведінки анізотропії термічного розширення халькогенідних кристалів TlGaSe_2 було отримано залежності власних значень тензора лінійного термічного розширення. Показано, що в кристалах TlGaSe_2 спостерігається анізотропія термічного розширення не тільки вздовж напрямків, паралельних та перпендикулярних до площини спайності, але й в самій площині спайності. Ця анізотропія проявляється в тому, що власні значення α'_{11} та α'_{22} тензора лінійного термічного розширення суттєво відрізняються між собою.

Використовуючи температурні залежності термічного розширення, в кристалах TlGaSe_2 було виявлено аномалії, які, найбільш ймовірно, відповідають структурним ФП серед різних політипів. Так, зокрема, аномалії, виявлені при $T_C \approx 106 \text{ K}$ та $T_i \approx 113 \text{ K}$, можуть бути пов'язані з ФП відповідно в сегнетоелектричну фазу та неспівмірну фазу в політипі з $c = c_0$, тоді як аномалію в температурній області $T'_C = (124 \text{ K}; 137 \text{ K})$ можна віднести до ФП в політипі з $c = 2c_0$. Крім того, аномальна поведінка параметрів термічного розширення спостерігалася в області температур $\Delta T_k = (200 \text{ K}; 240 \text{ K})$. Ймовірно, це вказує на існування в кристалічній матриці досліджуваних зразків кристалів TlGaSe_2 політипів з певними вищими значеннями параметра c , які мають характеризуватися також й певними іншими структурними змінами.

6. В результаті комплексного дослідження температурної поведінки анізотропії термічних та оптичних (двомірні розподіли приростів кута орієнтації оптичної індикатрисы та оптичної різниці фаз) параметрів халькогенідних твердих розчинів $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ ($x = 0; 0,02; 0,06; 0,10; 0,15; 0,25$) було встановлено, що збільшення концентрації атомів Se x знижує майже всі температури ФП. Проте температура T_i для політипу з $c = c_0$ зростає при концентрації атомів Se $x > 0,10$. Крім того, спостерігається розширення області температур, де існує неспівмірна фаза. Також було встановлено, що ФП з неспівмірної фази в сегнетоелектричну фазу має чітко впізнаваний розмитий характер. Й, нарешті, було показано, що політипна структура властива не лише для чистих кристалів $\beta\text{-TlInS}_2$, але також й для твердих розчинів $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$, оскільки у цих твердих розчинах з $0 \leq x \leq 0,05$ виникає додатковий ФП, який є, скоріше за все, ФП в сегнетоелектричну фазу в політипі з $c = 16c_0$.

РОЗДІЛ 3. АКУСТООПТИЧНА ВЗАЄМОДІЯ З ВРАХУВАННЯМ НЕОРТОГОНАЛЬНОСТІ АКУСТИЧНИХ ВЛАСНИХ ХВИЛЬ

3.1. Аналіз деформацій, викликаних акустичними хвилями, в аспекті акустооптичної взаємодії

Коли АХ поширюється в оптично прозорому середовищі, вона завдяки ПО ефекту викликає періодичні зміни компонент тензора діелектричної непроникності $\mathbf{B}$ з амплітудними значеннями

$$\Delta B_{ij} = p_{ijkl} e_{kl}, \quad (3.1)$$

де p_{ijkl} – компоненти ПО тензора (полярного тензора четвертого рангу з внутрішньою симетрією $[V^2]^2$); e_{kl} – компоненти тензора деформацій (полярного тензора другого рангу), які викликані АХ. Взаємодія падаючої оптичної хвилі з періодичною структурою показника заломлення, індукованою АХ в матеріальному середовищі завдяки ПО ефекту, є АО дифракцією [1].

Необхідно зауважити, що, на відміну від чисто уявних внесків до тензора діелектричної непроникності $\mathbf{B}$, зумовлених оптичною активністю (природною або індукованою), внески (3.1) є дійсними. З огляду на це всі аспекти поширення оптичних хвиль в оптично активних середовищах, висвітлені у Розділах 1 та 2, залишаються в силі у випадку, коли в таких середовищах відбувається АО дифракція.

Ефективність АО дифракції Брегга, як відношення інтенсивностей дифрагованого (I) та падаючого (I_0) світла ($\eta = I/I_0$), залежить від низки геометричних та матеріальних параметрів відповідного АО елемента [2]:

$$\eta = \sin^2 \left(\frac{\pi}{\lambda \cos \theta_B} \sqrt{M_2 P_a \frac{L}{2H}} \right), \quad (3.2)$$

де КАОЯ

$$M_2 = \frac{n_i^3 n_d^3 p_{eff}^2}{\rho v^3}, \quad (3.3)$$

ρ – густина АО матеріалу; p_{eff} – ЕПОК; λ – довжина падаючої оптичної хвилі, θ_B – кут Брегга; v та P_a – відповідно швидкість та потужність АХ; L та H – відповідно довжина АО взаємодії та ширина пучка АХ; n_i та n_d – показники заломлення відповідно падаючої та дифрагованої оптичних хвиль. Натомість у випадку слабкої АО взаємодії ($\eta \leq 0,4$) використовується наступне співвідношення для ефективності АО дифракції Брегга [2]:

$$\eta = M_2 \frac{\pi^2 L}{2H \lambda^2 \cos^2 \theta_B} P_a. \quad (3.4)$$

Як можна бачити з формули (3.3), співвідношення для КАОЯ включає такі конститутивні параметри, як швидкість АХ, показники заломлення падаючої та дифрагованої оптичних хвиль, густина АО матеріалу та ЕПОК. Більшість з вищевказаних параметрів є тензорними величинами, що описуються тензорами другого або четвертого рангів, які містять достатньо велику кількість незалежних компонент, яка зростає зі зниженням симетрії АО середовища [16]. Таким чином, хоча КАОЯ й являє собою скалярну величину, він сильно залежить від геометрії АО взаємодії, яка, у свою чергу, передбачає різні набори матеріальних параметрів. Крім того, коли симетрія АО середовища стає нижчою, з'являються деякі додаткові ефекти – такі, наприклад, як неортогональність АХ, що визначається як відхилення від чисто поздовжнього або чисто поперечного стану поляризації власних АХ. Отже, при правильному виборі геометрії АО дифракції Брегга можна, в принципі, знайти оптимальну фазову векторну діаграму, для якої досягається максимальна величина КАОЯ.

Пошук кристалів з достатньо високими значеннями КАОЯ є однією з найважливіших проблем АО матеріалознавства. Це зумовлено тим, що цей параметр, як можна бачити зі співвідношення (3.4), відіграє роль коефіцієнта пропорційності між ефективністю АО взаємодії та потужністю АХ в певному визначеному АО активному елементі – якщо КАОЯ високий, робочу потужність АХ можна зменшити. Це означає зниження споживання енергії, що завжди важливо для пристроїв, які використовують АО взаємодію.

Вирішення вищевказаної проблеми є не настільки простим завданням, як це може здатися на перший погляд. В загальному випадку швидкості АХ можна отримати, виходячи з тензора Крістоффеля після знаходження його власних значень, що можна зробити наближено (чисельно) або аналітично. Однак ЕПОК визначається громіздкими співвідношеннями, які залежать від напрямків поширення і поляризації взаємодіючих оптичних хвиль та АХ. При цьому поляризація та напрямок поширення АХ визначають ненульові компоненти тензора деформацій ϵ , які впливають на тензор діелектричної непроникності $\mathbf{B}$ через ПО ефект, та обумовлюють набір компонент ПО тензора $\mathbf{p}$, залучених до визначення ЕПОК. Компоненти тензора деформацій задаються похідними від компонент вектора зміщень за координатами [16]. Слід зауважити, що вектори поляризації (зміщення) для кожної з трьох власних АХ – а саме, для Q_L АХ, Q_{T_1} АХ та Q_{T_2} АХ – збігаються з власними векторами тензора Крістоффеля. Проте врахування ефекту неортогональності АХ призводить до появи більш ніж однієї недіагональної компоненти в тензорі Крістоффеля, що унеможливорює аналітичне розв'язання відповідного рівняння.

Складність цієї загальної аналітичної задачі зумовлює те, що для її вирішення досить часто доводиться використовувати чисельний підхід [8, 9], який є менш інформативним, ніж аналітичний підхід [10–12]. З іншого боку, аналітичні підходи базуються на певних наближеннях. Так, наприклад, в роботі [10] анізотропія КАОЯ в кристалах LiNbO_3 була розрахована шляхом аналізу лише анізотропних АО взаємодій з поздовжніми АХ. В свою чергу, в роботі [172] для кристалів LiNbO_3 було проаналізовано лише колінеарний тип АО

взаємодії. Тим не менше, для розуміння причин певної визначеної ефективності АО дифракції необхідно отримати аналітичні співвідношення для ЕПОК – а отже, розробити загальний підхід для отримання аналітичних співвідношень для компонент тензора деформацій, які викликані АХ, що поширюються в довільних напрямках, з урахуванням ефекту їхньої неортогональності (квазіпоздовжності або квазіпоперечності).

Для опису всіх можливих напрямків поширення АХ оберемо початкову кристалофізичну систему координат XYZ . Вона є декартовою системою координат, в якій представлені всі матеріальні тензори [173]. Щоб перейти до довільних напрямків у кристалічному середовищі, необхідно повернути систему координат XYZ навколо двох неколінеарних осей. Така процедура включає в себе наступні послідовні етапи (Рисунок 3.1): поворот системи координат XYZ навколо осі Z на кут $+\varphi$ для отримання системи координат $X'Y'Z'$, де $Z' = Z$; поворот системи координат $X'Y'Z'$ навколо осі Y' на кут $+\theta$ для отримання системи координат $X''Y''Z''$, де $Y'' = Y'$.

Перетворення декартової системи координат при обертаннях навколо головних осей X , Y та Z в загальному випадку описуються так званими матрицями перетворення $\mathbf{T}_x(\chi)$, $\mathbf{T}_y(\theta)$ та $\mathbf{T}_z(\varphi)$:

$$\mathbf{T}_x(\chi) = \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & \cos \chi & \sin \chi \\ 0 & -\sin \chi & \cos \chi \end{bmatrix}, \quad (3.5)$$

$$\mathbf{T}_y(\theta) = \begin{bmatrix} \cos \theta & 0 & -\sin \theta \\ 0 & 1 & 0 \\ \sin \theta & 0 & \cos \theta \end{bmatrix}, \quad (3.6)$$

$$\mathbf{T}_z(\varphi) = \begin{bmatrix} \cos \varphi & \sin \varphi & 0 \\ -\sin \varphi & \cos \varphi & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix}. \quad (3.7)$$

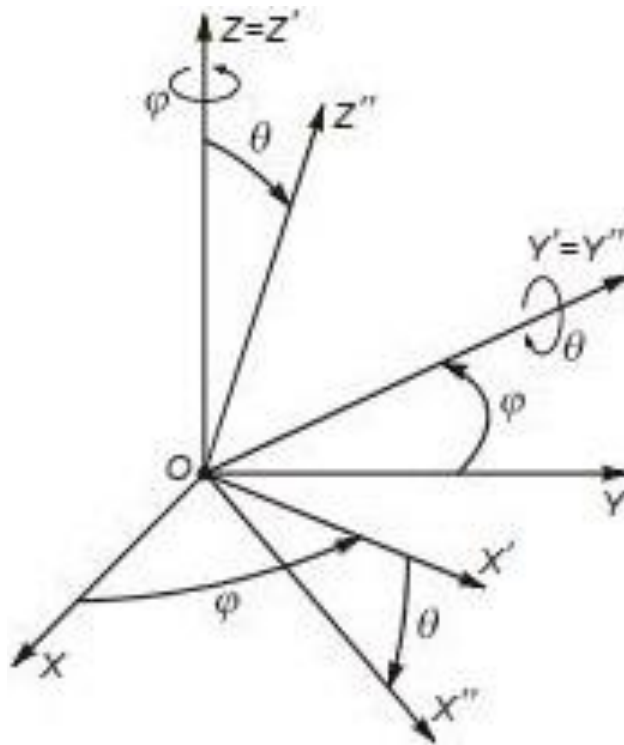


Рисунок 3.1. Перетворення декартової системи координат $XYZ \rightarrow X'Y'Z' \rightarrow X''Y''Z''$ шляхом послідовного здійснення повороту на кут $+\varphi$ навколо осі Z та повороту на кут $+\theta$ навколо осі Y' [173].

У разі послідовного здійснення повороту навколо осі Z на кут $+\varphi$ та повороту навколо осі Y' на кут $+\theta$ результуюча матриця перетворення $\mathbf{T}_2(\varphi, \theta)$ отримується шляхом перемноження елементарних матриць $\mathbf{T}_y(\theta)$ та $\mathbf{T}_z(\varphi)$ [173]:

$$\begin{aligned} \mathbf{T}_2(\varphi, \theta) &= \mathbf{T}_y(\theta) \mathbf{T}_z(\varphi) = \\ &= \begin{bmatrix} \cos \theta \cos \varphi & \cos \theta \sin \varphi & -\sin \theta \\ -\sin \varphi & \cos \varphi & 0 \\ \sin \theta \cos \varphi & \sin \theta \sin \varphi & \cos \theta \end{bmatrix}. \end{aligned} \quad (3.8)$$

Припустимо, що $\mathbf{A}\mathbf{X}$ поширюється вздовж осі Z'' . Це означає, що її хвильовий вектор $\mathbf{K}$ та одиничний вектор хвильової нормалі $\xi = \mathbf{K}/|\mathbf{K}|$ ($|\xi| = 1$) паралельні осі Z'' : $\mathbf{K} \parallel Z''$ та $\xi \parallel Z''$.

Кути φ та θ є відповідно азимутальним та полярним кутами вектора ξ у сферичній системі координат (Рисунок 3.1). Компоненти вектора ξ , записані в системі координат XYZ , є напрямними косинусами α , β та γ вектора $\mathbf{K}$:

$$\begin{aligned}
\alpha &= \xi_x = \xi_1 = \sin \theta \cos \varphi, \\
\beta &= \xi_y = \xi_2 = \sin \theta \sin \varphi, \\
\gamma &= \xi_z = \xi_3 = \cos \theta, \\
\xi &= [\sin \theta \cos \varphi; \sin \theta \sin \varphi; \cos \theta].
\end{aligned}
\tag{3.9}$$

Як відомо, пошук розв'язків тримірної рівняння руху у вигляді плоских хвиль призводить до рівняння Крістоффеля, яке є основним рівнянням теорії поширення АХ:

$$\Lambda \mathbf{u} = v^2 \mathbf{u}, \tag{3.10}$$

де Λ – приведений тензор Крістоффеля, $\mathbf{u}$ – вектор зміщення, v — фазова швидкість АХ. При цьому приведений тензор Крістоффеля Λ пов'язаний зі звичайним тензором Крістоффеля Γ як

$$\Lambda = \Gamma / \rho. \tag{3.11}$$

Симетричний тензор Крістоффеля другого рангу Γ виражається через одиничний вектор хвильової нормалі ξ та тензор жорсткості четвертого рангу C :

$$\Gamma = \xi C \xi, \quad \Gamma_{il} = C_{ijkl} \xi_j \xi_k. \tag{3.12}$$

Тоді компоненти λ_{il} тензора Λ можна записати у вигляді [173]

$$\lambda_{il} = \frac{1}{\rho} \sum_{j=1}^3 \sum_{k=1}^3 C_{ijkl} \xi_j \xi_k. \tag{3.13}$$

Останнє співвідношення можна представити в розгорнутому вигляді як

$$\begin{bmatrix} \lambda_{11} \\ \lambda_{22} \\ \lambda_{33} \\ \lambda_{23} \\ \lambda_{13} \\ \lambda_{12} \end{bmatrix} = \frac{1}{\rho} \begin{bmatrix} C_{11} & C_{66} & C_{55} & C_{56} + C_{56} & C_{15} + C_{15} & C_{16} + C_{16} \\ C_{66} & C_{22} & C_{44} & C_{24} + C_{24} & C_{46} + C_{46} & C_{26} + C_{26} \\ C_{55} & C_{44} & C_{33} & C_{34} + C_{34} & C_{35} + C_{35} & C_{45} + C_{45} \\ C_{16} & C_{26} & C_{45} & C_{46} + C_{25} & C_{14} + C_{56} & C_{12} + C_{66} \\ C_{15} & C_{46} & C_{35} & C_{45} + C_{36} & C_{13} + C_{55} & C_{14} + C_{56} \\ C_{56} & C_{24} & C_{34} & C_{44} + C_{23} & C_{36} + C_{45} & C_{45} + C_{46} \end{bmatrix} \times \begin{bmatrix} \xi_1^2 \\ \xi_2^2 \\ \xi_3^2 \\ \xi_2 \xi_3 \\ \xi_1 \xi_3 \\ \xi_1 \xi_2 \end{bmatrix}. \quad (3.14)$$

Оскільки тензор Λ є симетричним тензором другого рангу, його вказівна поверхня, що являє собою поверхню повільності $\Lambda X \cdot s = v^{-1}$, в загальному випадку є еліпсоїдом. Цю поверхню можна описати за допомогою рівняння, аналогічного рівнянню оптичної індикатрис $\mathbf{rBr} = B_{ij}x_i x_j = 1$, за умови, що компоненти B_{ij} тензора діелектричної непроникувості $\mathbf{B}$ замінені компонентами λ_{il} тензора Λ . При цьому головні показники заломлення n_1, n_2 та n_3 замінюються головними повільностями s_1, s_2 та s_3 . Подібно до оптичної індикатрис, центральний переріз вказівної поверхні тензора Λ площиною, перпендикулярною до напрямку поширення ΛX (тобто, до вектора $\xi \parallel Z''$), є еліпсом. Головні осі цього еліпса дають напрямки двох осей "власної" системи координат тензора Λ , яка відповідає цьому напрямку поширення ΛX . Для того, щоб знайти орієнтацію цих головних осей, необхідно перетворити тензор Λ , записаний в системі координат XYZ , на тензор Λ'' , записаний в системі координат $X''Y''Z''$, використовуючи процедуру перетворення тензорів

$$\Lambda'' = T_2(\varphi, \theta) \Lambda T_2^{-1}(\varphi, \theta), \quad (3.15)$$

де $T_2^{-1}(\varphi, \theta)$ – матриця, обернена до матриці перетворення $T_2(\varphi, \theta)$.

Шуканий еліпс лежить у площині $X''Y''$ й в загальному випадку його головні осі утворюють деякий кут ψ з осями X'' та Y'' [173]:

$$\operatorname{tg} 2\psi = \frac{2\lambda_{12}''}{\lambda_{22}'' - \lambda_{11}''}, \quad (3.16)$$

$$\psi = \frac{1}{2} \operatorname{arctg} \left(\frac{2\lambda_{12}''}{\lambda_{22}'' - \lambda_{11}''} \right). \quad (3.17)$$

При цьому компоненти $\lambda_{11}'', \lambda_{22}'', \lambda_{12}''$ знаходяться з рівняння (3.15):

$$\begin{aligned} \lambda_{11}'' &= (\lambda_{11} \cos^2 \varphi + \lambda_{22} \sin^2 \varphi + \lambda_{12} \sin 2\varphi) \cos^2 \theta + \\ &+ \lambda_{33} \sin^2 \theta - (\lambda_{13} \cos \varphi + \lambda_{23} \sin \varphi) \sin 2\theta, \\ \lambda_{22}'' &= \lambda_{11} \sin^2 \varphi + \lambda_{22} \cos^2 \varphi - \lambda_{12} \sin 2\varphi, \\ \lambda_{12}'' &= (0,5(\lambda_{22} - \lambda_{11}) \sin 2\varphi + \lambda_{12} \cos 2\varphi) \cos \theta + \\ &+ (\lambda_{13} \sin \varphi - \lambda_{23} \cos \varphi) \sin \theta. \end{aligned} \quad (3.18)$$

Після повороту системи координат $X''Y''Z''$ навколо осі Z'' на кут ψ отримаємо нову систему координат $X'''Y'''Z'''$, в якій осі X''' та Y''' спрямовані вздовж головних осей еліпса, а вісь $Z''' = Z''$ паралельна вектору ξ . При цьому матриця перетворення $XYZ \rightarrow X'''Y'''Z'''$ $T_3(\varphi, \theta, \psi)$ виглядає наступним чином [173]:

$$\begin{aligned} T_3(\varphi, \theta, \psi) &= T_z(\psi) T_2(\varphi, \theta) = T_z(\psi) T_y(\theta) T_z(\varphi) = \\ &= \begin{bmatrix} \begin{pmatrix} \cos \theta \cos \varphi \cos \psi - \\ -\sin \varphi \sin \psi \end{pmatrix} & \begin{pmatrix} \cos \theta \sin \varphi \cos \psi + \\ +\cos \varphi \sin \psi \end{pmatrix} & -\sin \theta \cos \psi \\ \begin{pmatrix} -\cos \theta \cos \varphi \sin \psi - \\ -\sin \varphi \cos \psi \end{pmatrix} & \begin{pmatrix} -\cos \theta \sin \varphi \sin \psi + \\ +\cos \varphi \cos \psi \end{pmatrix} & \sin \theta \sin \psi \\ \sin \theta \cos \varphi & \sin \theta \sin \varphi & \cos \theta \end{bmatrix}. \end{aligned} \quad (3.19)$$

Система координат $X'''Y'''Z'''$ є "системою відліку" для представлення компонент тензора деформацій, що індукуються кожною з трьох власних АХ, які поширюються вздовж вектора ξ . Один з векторів цієї системи координат задається вектором ξ (3.9), який записаний у вихідній системі координат XYZ . Два інші вектори, τ та ς , отримуються при зворотному перетворенні $X'''Y'''Z''' \rightarrow XYZ$ відповідно за формулами

$$\boldsymbol{\tau} = \mathbf{T}_3^{-1}(\varphi, \theta, \psi) \begin{bmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \cos \theta \cos \varphi \cos \psi - \sin \varphi \sin \psi \\ \cos \theta \sin \varphi \cos \psi + \cos \varphi \sin \psi \\ -\sin \theta \cos \psi \end{bmatrix}, \quad (3.20)$$

$$\boldsymbol{\varsigma} = \mathbf{T}_3^{-1}(\varphi, \theta, \psi) \begin{bmatrix} 0 \\ 1 \\ 0 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} -\cos \theta \cos \varphi \sin \psi - \sin \varphi \cos \psi \\ -\cos \theta \sin \varphi \sin \psi + \cos \varphi \cos \psi \\ \sin \theta \sin \psi \end{bmatrix}. \quad (3.21)$$

Порівнюючи рівняння (3.9) з рівняннями (3.19), (3.20) та (3.21), можна побачити, що матриці перетворення $\mathbf{T}_3(\varphi, \theta, \psi)$ та $\mathbf{T}_3^{-1}(\varphi, \theta, \psi)$ визначаються компонентами векторів $\boldsymbol{\tau}$, $\boldsymbol{\varsigma}$ та $\boldsymbol{\xi}$ [173]:

$$\mathbf{T}_3(\varphi, \theta, \psi) = \begin{bmatrix} \tau_1 & \tau_2 & \tau_3 \\ \varsigma_1 & \varsigma_2 & \varsigma_3 \\ \xi_1 & \xi_2 & \xi_3 \end{bmatrix}, \quad \mathbf{T}_3^{-1}(\varphi, \theta, \psi) = \begin{bmatrix} \tau_1 & \varsigma_1 & \xi_1 \\ \tau_2 & \varsigma_2 & \xi_2 \\ \tau_3 & \varsigma_3 & \xi_3 \end{bmatrix}. \quad (3.22)$$

З рівняння Крістоффеля (3.10) випливає, що власними значеннями тензора $\boldsymbol{\Lambda}$ є квадрати швидкостей власних АХ ($\lambda_{e1} = (v_1)^2$, $\lambda_{e2} = (v_2)^2$, $\lambda_{e3} = (v_3)^2$), тоді як власними векторами тензора $\boldsymbol{\Lambda}$ є вектори зміщення власних АХ $\mathbf{u}_1$, $\mathbf{u}_2$ та $\mathbf{u}_3$, довжина яких дорівнює одиниці ($|\mathbf{u}_1| = |\mathbf{u}_2| = |\mathbf{u}_3| = 1$). Оскільки тензор $\boldsymbol{\Lambda}$ записується у вихідній системі координат XYZ , його власні вектори $\mathbf{u}_i$ ($i = 1, 2, 3$) також записуються в цій системі координат. Щоб переписати їх у "системі відліку" $X'''Y'''Z'''$, можна використати наступні співвідношення:

$$\mathbf{u}_i''' = \begin{bmatrix} \mathbf{u}_i \cdot \boldsymbol{\tau} \\ \mathbf{u}_i \cdot \boldsymbol{\varsigma} \\ \mathbf{u}_i \cdot \boldsymbol{\xi} \end{bmatrix}. \quad (3.23)$$

Деформація суцільного середовища в нескінченно малому околі певної визначеної частинки цього середовища в загальному випадку може бути розкладена на поступальне переміщення цієї частинки разом з її околom

(визначається вектором зміщення $\mathbf{u}$), обертальне переміщення цього околу як твердого тіла навколо деякої осі, що проходить через цю частинку, та переміщення одних частинок цього околу відносно інших частинок цього околу, за якого змінюється відстань між цими частинками. Останні два переміщення визначаються похідними $\partial u_k / \partial x_l$ [16], які утворюють тензор дисторсії, що може бути розкладений на симетричний тензор деформацій $\mathbf{e}$ та антисиметричний тензор обертань $\mathbf{w}$ з компонентами, які дорівнюють

$$e_{kl} = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u_k}{\partial x_l} + \frac{\partial u_l}{\partial x_k} \right), \quad (3.24)$$

$$w_{kl} = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u_k}{\partial x_l} - \frac{\partial u_l}{\partial x_k} \right) \quad (3.25)$$

відповідно. Для подальшого аналізу приймається, що $w_{kl} = 0$; це дозволяє отримати умови $\partial u_k / \partial x_l = \partial u_l / \partial x_k$ [174].

Оскільки плоска АХ поширюється в напрямку $\xi \parallel Z'''$, зміщення частинок в кристалічному середовищі залежить тільки від координати Z''' (Рисунок 3.2).

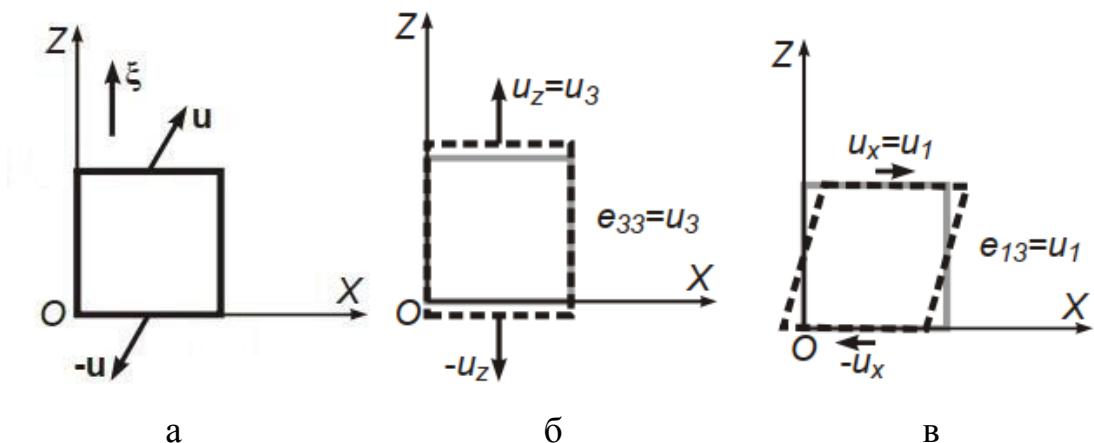


Рисунок 3.2. Деформації елементарного кристалічного об'єму при поширенні в кристалічному середовищі АХ в напрямку $\xi \parallel Z$ (а); виникнення нормальної (б) та зсувної (в) компонент тензора деформацій. Вектори ξ та $\mathbf{u}$ лежать у площині ХZ [173].

Тоді похідні вектора зміщення за координатами, пов'язані з осями X''' та Y''' , дорівнюють нулю. У результаті, використовуючи рівняння (3.8) та (3.23), в "системі відліку" $X'''Y'''Z'''$ можна записати тензори деформацій $\mathbf{e}_i'''$ ($i = 1, 2, 3$) для трьох власних АХ, які поширюються в напрямку ξ :

$$\mathbf{e}_i''' = \begin{bmatrix} 0 & 0 & \mathbf{u}_i \cdot \boldsymbol{\tau} \\ 0 & 0 & \mathbf{u}_i \cdot \boldsymbol{\varsigma} \\ \mathbf{u}_i \cdot \boldsymbol{\tau} & \mathbf{u}_i \cdot \boldsymbol{\varsigma} & \mathbf{u}_i \cdot \boldsymbol{\xi} \end{bmatrix}. \quad (3.26)$$

При цьому зазначені тензори можна переписати у вихідній системі координат XYZ наступним чином:

$$\mathbf{e}_i = \mathbf{T}_3^{-1}(\varphi, \theta, \psi) \mathbf{e}_i''' \mathbf{T}_3(\varphi, \theta, \psi). \quad (3.27)$$

Підставляючи співвідношення (3.19) та (3.26) у рівняння (3.27), отримуємо всі компоненти тензорів деформацій $\mathbf{e}_i$ ($i = 1, 2, 3$), індукованих трьома власними АХ, які поширюються в напрямку ξ [173]:

$$\begin{aligned} e_{i11} &= (e_{i13}''' \cos \psi - e_{i23}''' \sin \psi) \sin 2\theta \cos^2 \varphi - \\ &- (e_{i13}''' \sin \psi + e_{i23}''' \cos \psi) \sin \theta \sin 2\varphi + e_{i33}''' \sin^2 \theta \cos^2 \varphi, \\ e_{i12} &= 0,5(e_{i13}''' \cos \psi - e_{i23}''' \sin \psi) \sin 2\theta \sin 2\varphi + \\ &+ (e_{i13}''' \sin \psi + e_{i23}''' \cos \psi) \sin \theta \cos 2\varphi + 0,5e_{i33}''' \sin^2 \theta \sin 2\varphi, \\ e_{i13} &= (e_{i13}''' \cos \psi - e_{i23}''' \sin \psi) \cos 2\theta \cos \varphi - \\ &- (e_{i13}''' \sin \psi + e_{i23}''' \cos \psi) \cos \theta \sin \varphi + 0,5e_{i33}''' \sin 2\theta \cos \varphi, \end{aligned} \quad (3.28)$$

$$\begin{aligned} e_{i22} &= (e_{i13}''' \cos \psi - e_{i23}''' \sin \psi) \sin 2\theta \sin^2 \varphi + \\ &+ (e_{i13}''' \sin \psi + e_{i23}''' \cos \psi) \sin \theta \sin 2\varphi + e_{i33}''' \sin^2 \theta \sin^2 \varphi, \\ e_{i23} &= (e_{i13}''' \cos \psi - e_{i23}''' \sin \psi) \cos 2\theta \sin \varphi + \\ &+ (e_{i13}''' \sin \psi + e_{i23}''' \cos \psi) \cos \theta \cos \varphi + 0,5e_{i33}''' \sin 2\theta \sin \varphi, \\ e_{i33} &= -(e_{i13}''' \cos \psi - e_{i23}''' \sin \psi) \sin 2\theta + e_{i33}''' \cos^2 \theta. \end{aligned} \quad (3.29)$$

Й нарешті, помноживши ці тензори на тензор ПО коефіцієнтів, властивий досліджуваному кристалічному середовищу, можна отримати прирости всіх компонент тензора діелектричної непроникності (3.1), індуковані АХ, після чого можна розрахувати ЕПОК для певної визначеної геометрії АО взаємодії.

3.2. Вплив неортогональності акустичних хвиль на ефективність акустооптичної дифракції

В роботах [11], [12], [77] та [175–178] було розроблено аналітичний підхід до розгляду анізотропії КАОЯ в ізотропних та кристалічних середовищах, які належать до кубічної, тетрагональної, тригональної та гексагональної систем – тобто, для кристалів, які є оптично ізотропними або одновісними. Цей підхід ґрунтується на припущенні, що неортогональність АХ є достатньо малою й, отже, нею можна знехтувати. Слід зауважити, що поляризація АХ відіграє ключову роль, якщо визначати набір компонент ПО тензора, що беруть участь у такій АО взаємодії. А саме, у співвідношення для ЕПОК можуть увійти додаткові компоненти ПО тензора, якщо врахувати відхилення від чистого стану поляризації АХ. В цьому відношенні слід зауважити, що відхилення від станів чисто поздовжньої або чисто поперечної поляризації АХ іноді може досягати 45° . В такому випадку АХ стає напівпоздовжньою або напівпоперечною, як, наприклад, в орторомбічних кристалах AgGaGeS_4 [61]. З іншого боку, врахування відхилень від чисто поперечних чи чисто поздовжніх станів поляризації АХ призводить, у більшості випадків, до ситуації, коли неможливо вивести аналітичні співвідношення для ЕПОК та КАОЯ – тоді задачу можна розв'язати лише наближено (чисельно) [8, 9, 179]. Однак, на відміну від аналітичних розв'язків, будь-який чисельний розв'язок зазвичай унеможливорює всебічний аналіз причин того чи іншого прояву досліджуваного явища.

Вищевказані обставини зумовлюють необхідність розробки аналітичного підходу для дослідження анізотропії КАОЯ в АО кристалах різних точкових

груп симетрії з урахуванням неортогональності АХ. При цьому валідність такого підходу буде продемонстровано на прикладі низькосиметричних (оптично двовісних) кристалів Ti_3AsS_4 , а також середньосиметричних (оптично одновісних) кристалів $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$, $\alpha\text{-TeO}_2$, TlInSe_2 та $\gamma_1\text{-(Ga}_{0,3}\text{In}_{0,7})_2\text{Se}_3$.

Стосовно методики та техніки відповідних експериментальних досліджень слід зазначити, що швидкості АХ v_{ij} (i – напрямок поширення АХ, j – напрямок поляризації АХ; $X(1)$ $Y(2)$, $Z(3)$ – осі кристалофізичної системи координат XYZ) визначалися ехо-імпульсним методом [180] як $v_{ij} = 2L_{\text{імп}}/t_{\text{імп}}$, де $t_{\text{імп}}$ – часовий інтервал між сусідніми ехо-імпульсами (Рисунок 3.3).

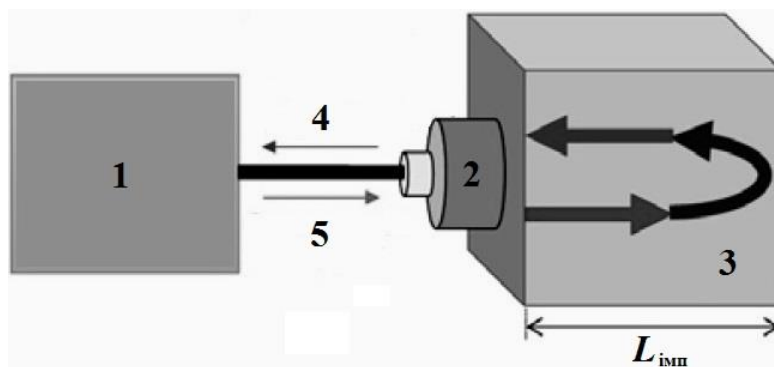


Рисунок 3.3. Принципова схема ехо-імпульсного методу: 1 – генератор/приймач; 2 – п'єзоелектричний перетворювач; 3 – досліджуваний зразок; 4 – прийом відбитої АХ; 5 – генерація імпульсного сигналу [181].

При цьому збудження АХ здійснювалось п'єзоелектричними перетворювачами (2) з пластин LiNbO_3 різної кристалографічної орієнтації з резонансною частотою $\Phi_p = (0,8\text{--}1) \times 10^7$ Гц, шириною смуги $\Delta\Phi = 10^5$ Гц та акустичною потужністю $P_a = 1\text{--}2$ Вт.

Коефіцієнти жорсткості C_{ij} розраховувалися за визначеними експериментально швидкостями АХ v_{ij} з використанням рівняння Крістоффеля

$$C_{ijkl}m_jm_ku_l = M_{il}u_l = \rho v^2u_i, \quad (3.30)$$

де величини

$$M_{il} = C_{ijkl} m_j m_k \quad (3.31)$$

є компонентами тензора Крістоффеля $\mathbf{M}$; C_{ijkl} – компоненти тензора жорсткості у тензорному записі; m_j та m_k – компоненти одиничного хвильового вектора АХ $\mathbf{m}$; u_i та u_l – компоненти одиничного вектора поляризації (зміщення) АХ $\mathbf{u}$; ρ – густина досліджуваного зразка. Натомість коефіцієнти пружної податливості S_{ij} визначалися з коефіцієнтів жорсткості C_{ij} з використанням співвідношення $C_{ij}S_{jk} = \delta_{ik}$, де δ_{ik} є символом Кронекера.

ПО коефіцієнти p_{ij} визначалися за допомогою методу Діксона–Коена [182], який полягає у порівнянні АО параметрів досліджуваного матеріалу з відповідними АО параметрами еталонного матеріалу (Рисунок 3.4).

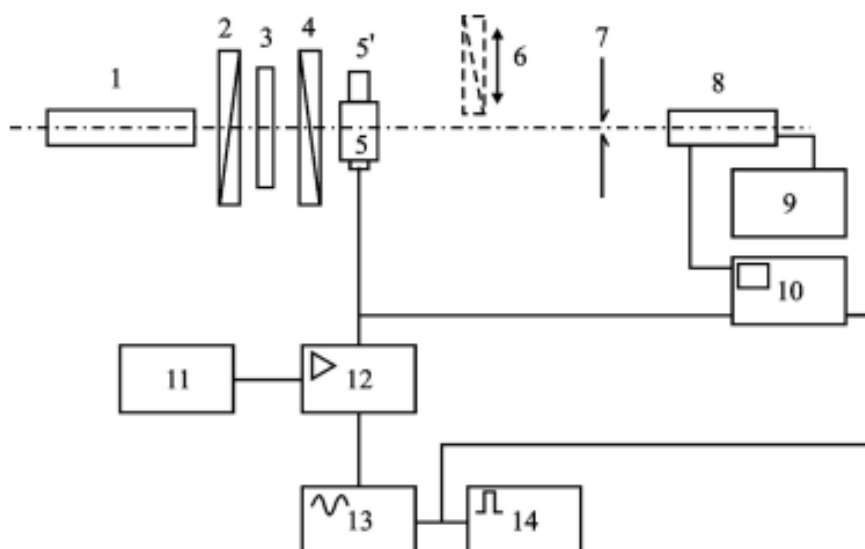


Рисунок 3.4. Схема експериментальної установки для вимірювання ПО коефіцієнтів методом Діксона–Коена: 1 – лазер; 2, 4, 6 – поляризатори; 3 – чвертьхвильова пластина; 5 та 5' – відповідно еталонна АО комірка та досліджуваний зразок; 7 – діафрагма; 8 – фотоприймач; 9, 11 – джерела живлення; 10 – осцилограф; 12 – підсилювач високої частоти; 13 – генератор високої частоти; 14 – генератор імпульсів [183].

Досліджуваний зразок (5') наклеювався на АО комірку (5), виготовлену з еталонного матеріалу – плавленого кварцу. АХ у цій АО комірці збуджувалася п'єзоелектричним перетворювачем, виготовленим з кристалів LiNbO_3 . Збуджена АХ хвиля з частотою $\Phi = 5 \times 10^7$ Гц модулювалася прямокутними імпульсами тривалістю 5×10^{-7} с та частотою повторення 3×10^{-4} с.

Слід відзначити, що в цій дисертації під коефіцієнтами жорсткості C_{ij} , коефіцієнтами пружної податливості S_{ij} та ПО коефіцієнтами p_{ij} розуміються відповідні коефіцієнти для електрично-розімкненого кристалу, тоді як коефіцієнти для електрично-закороченого кристалу позначаються індексом E .

3.2.1. Кристали Tl_3AsS_4

Основні оптичні характеристики кристалів Tl_3AsS_4 наведені в параграфі 2.1.2. Таблиця 3.1 містить коефіцієнти жорсткості C_{ij} [56] та ПО коефіцієнти p_{ij} [59] для кристалів Tl_3AsS_4 при $\lambda = 632,8$ нм, необхідні для проведення подальших досліджень. Густина кристалів Tl_3AsS_4 дорівнює $\rho = (6200 \pm 40)$ кг/м³ [57].

Таблиця 3.1. ПО коефіцієнти p_{ij} та коефіцієнти жорсткості C_{ij} для кристалів Tl_3AsS_4 при $\lambda = 632,8$ нм.

ij	p_{ij} [59]	ij	p_{ij} [59]	ij	$C_{ij}, 10^{10}$ Па [56]	ij	$C_{ij}, 10^{10}$ Па [56]
11	$0,44 \pm 0,05$	44	$0,08 \pm 0,02$	11	$3,19 \pm 0,08$	23	$1,82 \pm 0,20$
22	$0,54 \pm 0,07$	55	$0,04 \pm 0,02$	22	$2,84 \pm 0,08$	44	$0,25 \pm 0,01$
33	$0,43 \pm 0,05$	66	$0,00 \pm 0,03$	33	$3,48 \pm 0,19$	55	$0,86 \pm 0,01$
12	$0,32 \pm 0,05$	21	$0,45 \pm 0,05$	12	$1,62 \pm 0,18$	66	$0,89 \pm 0,02$
13	$0,31 \pm 0,06$	31	$0,28 \pm 0,05$	13	$1,50 \pm 0,25$	—	—
23	$0,36 \pm 0,06$	32	$0,28 \pm 0,05$	—	—	—	—

Як вже зазначалося, у роботі [57] було експериментально встановлено, що в кристалах Tl_3AsS_4 у випадку АО дифракції Брегга при поширенні поздовжньої АХ зі швидкістю $v = 2150$ м/с вздовж кристалографічної осі c та

поширенні падаючої оптичної хвилі з довжиною $\lambda = 632,8$ нм, поляризованої в напрямку кристалографічної осі c , вздовж кристалографічної осі b , КАОЯ дорівнює $792,8 \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$. Натомість в роботі [60], де аналіз АО взаємодій в головних кристалографічних площинах кристалів Tl_3AsS_4 при $\lambda = 632,8$ нм здійснювався за умови поширення АХ та оптичних хвиль вздовж головних кристалографічних осей, для тієї ж самої геометрії АО взаємодії розраховане значення КАОЯ становить $1140 \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$ при $v = 2829$ м/с. В свою чергу, в роботі [56], де здійснювалися експериментальні дослідження та аналіз анізотропії швидкостей АХ для кристалів Tl_3AsS_4 з врахуванням неортогональності АХ, було показано, що ефективність АО взаємодій у кристалах Tl_3AsS_4 може бути помітно збільшена у випадку анізотропної АО взаємодії в головній кристалографічній площині bc з найповільнішою РТ АХ ($v_{23} = 630$ м/с), для якої КАОЯ був оцінений як $3000 \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$ при $\lambda = 632,8$ нм. Вищевказані обставини зумовлюють доцільність отримання аналітичних співвідношень для ЕПОК з врахуванням неортогональності АХ.

Відомо, що власні вектори тензора Крістоффеля $\mathbf{M}$ (3.31) відповідають одиничним векторам зміщення $\mathbf{u}$ власних АХ [16]. При поширенні АХ вздовж головних кристалографічних осей у кристалах точкової групи симетрії mmm вони мають чисто поперечну та поздовжню поляризації, оскільки тензор Крістоффеля другого рангу містить лише діагональні компоненти.

В загальному випадку існує дев'ять типів АО взаємодій (Рисунок 3.5, Рисунок 3.6), шість з яких належать до ізотропної АО дифракції квазізвичайної (типи I, III, V) та квазінезвичайної (типи II, IV, VI) оптичних хвиль на QL АХ, QT₁ АХ, QT₂ АХ відповідно. Решта три типи АО взаємодій (а саме, типи VII, VIII, IX) належать до анізотропної АО дифракції лінійно-поляризованої оптичної хвилі на QL АХ, QT₁ АХ, QT₂ АХ відповідно [11, 184]. При цьому стосовно анізотропної АО дифракції зауважимо, що вона зазвичай передбачає, що лінійна поляризація дифрагованої оптичної хвилі перемикається на 90° відносно лінійної поляризації падаючої оптичної хвилі [1, 2]. Однак таке визначення є недостатньо коректним для оптично двовісних кристалів.

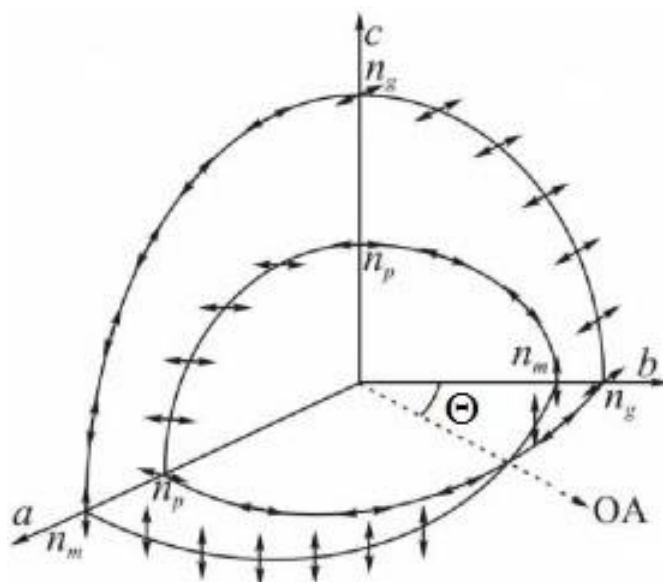


Рисунок 3.5. Схематичний вигляд поверхонь показників заломлення для кристалів Tl_3AsS_4 : двосторонні стрілки – поляризації оптичних власних хвиль; OA – оптична вісь; $2\Theta = 29,76^\circ$ [57, 184].

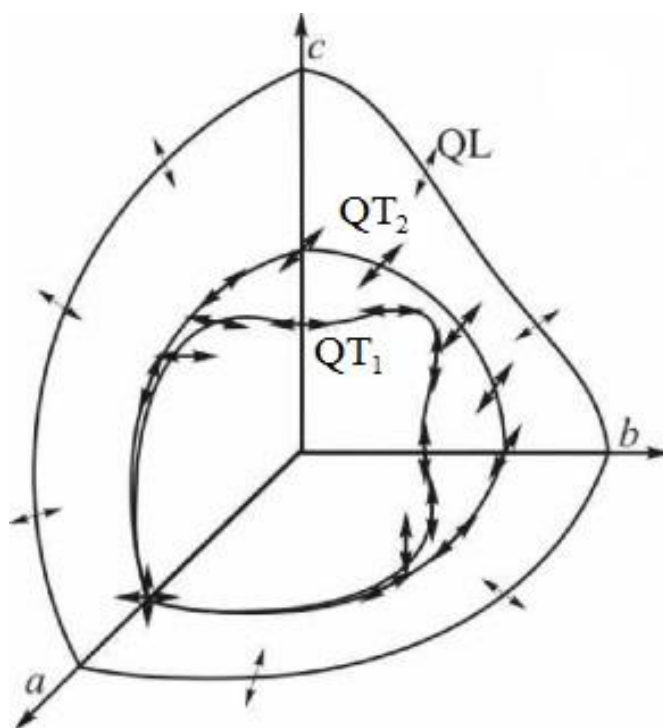


Рисунок 3.6. Схематичний вигляд поверхонь швидкостей AX для кристалів Tl_3AsS_4 : двосторонні стрілки – поляризації власних AX [184].

Так, зокрема, для напрямків, близьких до оптичних осей оптично двовісних кристалів, можна очікувати, що при анізотропній АО дифракції

поляризації дифрагованої та падаючої оптичних хвиль вже не відрізнятимуться на 90° , а можуть бути однаковими [185]. У цьому випадку порівняння поляризацій дифрагованої та падаючої оптичних хвиль вже не буде критерієм анізотропії АО дифракції. У результаті термін "анізотропна АО дифракція" у випадку оптично двовісних кристалів визначатиметься як взаємодія падаючої та дифрагованої оптичних хвиль, що поширюються зі швидкостями, які належать різним поверхням показників заломлення – "квазізвичайній" та "квазінезвичайній" [186]. В свою чергу, у випадку оптично одновісних кристалів анізотропна АО дифракція передбачає АО взаємодію звичайної та незвичайної оптичних хвиль, які мають взаємно ортогональні поляризації.

Розглянемо деформації, спричинені QL AX, що поширюється в площині ac під кутом θ відносно осі a (Рисунок 3.7). Нехай при цьому одиничний вектор зміщення QL AX $\mathbf{u}$ ($|\mathbf{u}| = u = 1$) спрямований під кутом ζ відносно осі a [184].

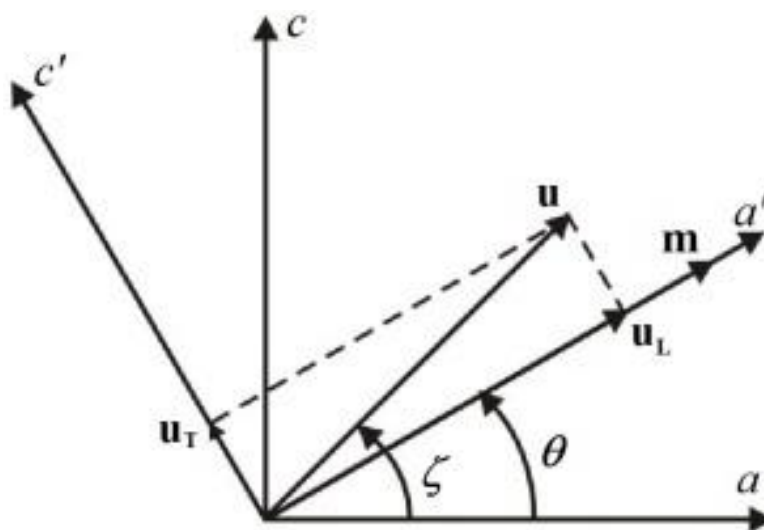


Рисунок 3.7. Схематичне зображення хвильового вектора та вектора поляризації QL AX у кристалографічних площинах ac та $a'c'$ для кристалів Tl_3AsS_4 [184, 187].

У системі координат $a'bc'$, пов'язаній з одиничним хвильовим вектором QL AX $\mathbf{m}$ ($|\mathbf{m}| = m = 1$), вектор $\mathbf{u}$ може бути розкладений на чисто поздовжні ($\mathbf{u}_L$) та чисто поперечні ($\mathbf{u}_T$) компоненти з відповідними довжинами

$$\begin{aligned} u_L &= u \cos(\zeta - \theta) \cos(\Omega t - m x_{a'}), \\ u_T &= u \sin(\zeta - \theta) \cos(\Omega t - m x_{a'}), \end{aligned} \quad (3.32)$$

де Ω – циклічна частота АХ; $x_{a'}$ – координата по напрямку хвильового вектора АХ (тобто, по напрямку осі a'); t – час.

В такому випадку ненульові амплітудні значення компонент (3.24) тензора деформацій $\mathbf{e}'$ в системі координат $a'bc'$ мають наступний вигляд:

$$\begin{aligned} e'_{11} = e'_1 &= \frac{\partial u_L}{\partial x_{a'}} = \cos(\zeta - \theta), \\ e'_{13} = e'_{31} &= 0,5e'_5 = 0,5 \frac{\partial u_T}{\partial x_{a'}} = 0,5 \sin(\zeta - \theta). \end{aligned} \quad (3.33)$$

Використовуючи матрицю повороту

$$\mathbf{R} = \begin{bmatrix} \cos \theta & 0 & \sin \theta \\ 0 & 1 & 0 \\ -\sin \theta & 0 & \cos \theta \end{bmatrix}, \quad (3.34)$$

запишемо цей тензор в системі координат abc :

$$\mathbf{e} = \mathbf{R}'\mathbf{e}'\mathbf{R} = \begin{bmatrix} e'_{11} \cos^2 \theta - e'_{13} \sin 2\theta & 0 & 0,5e'_{11} \sin 2\theta + e'_{13} \cos 2\theta \\ 0 & 0 & 0 \\ 0,5e'_{11} \sin 2\theta + e'_{13} \cos 2\theta & 0 & e'_{11} \sin^2 \theta + e'_{13} \sin 2\theta \end{bmatrix}. \quad (3.35)$$

Отже, у випадку QL АХ компоненти тензора деформацій $\mathbf{e}$ дорівнюють:

$$\begin{aligned} e_1 &= (\cos(\zeta - \theta) \cos \theta - \sin(\zeta - \theta) \sin \theta) \cos \theta = \cos \zeta \cos \theta, \\ e_3 &= (\cos(\zeta - \theta) \sin \theta + \sin(\zeta - \theta) \cos \theta) \sin \theta = \sin \zeta \sin \theta, \\ e_5 &= \cos(\zeta - \theta) \sin 2\theta + \sin(\zeta - \theta) \cos 2\theta = \sin(\zeta + \theta). \end{aligned} \quad (3.36)$$

Аналогічні співвідношення для компонент тензора деформацій **e** можна отримати також й для кристалографічних площин *ab* та *bc* – єдина відмінність стосується набору ненульових компонент тензора деформацій (*e*₁, *e*₂ та *e*₆ для площини *ab*; *e*₂, *e*₃ та *e*₄ для площини *bc*). Тобто, якщо індекси 1, 2, 3 відповідають кристалографічним площинам *bc*, *ac*, *ab*; кути ζ_1 , ζ_2 , ζ_3 та θ_1 , θ_2 , θ_3 – кутам орієнтації вектора зміщення та хвильового вектора QL AX, які відраховуються від осей *b*, *a*, *a*, будуть мати місце наступні рівняння:

$$\begin{aligned} e_2 &= \cos(\zeta_1 - \theta_1) \cos^2 \theta_1 - 0,5 \sin(\zeta_1 - \theta_1) \sin 2\theta_1 = \cos \zeta_1 \cos \theta_1, \\ e_3 &= \cos(\zeta_1 - \theta_1) \sin^2 \theta_1 + 0,5 \sin(\zeta_1 - \theta_1) \sin 2\theta_1 = \sin \zeta_1 \sin \theta_1, \\ e_4 &= \cos(\zeta_1 - \theta_1) \sin 2\theta_1 + \sin(\zeta_1 - \theta_1) \cos 2\theta_1 = \sin(\zeta_1 + \theta_1), \end{aligned} \quad (3.37)$$

$$\begin{aligned} e_1 &= \cos(\zeta_2 - \theta_2) \cos^2 \theta_2 - 0,5 \sin(\zeta_2 - \theta_2) \sin 2\theta_2 = \cos \zeta_2 \cos \theta_2, \\ e_3 &= \cos(\zeta_2 - \theta_2) \sin^2 \theta_2 + 0,5 \sin(\zeta_2 - \theta_2) \sin 2\theta_2 = \sin \zeta_2 \sin \theta_2, \\ e_5 &= \cos(\zeta_2 - \theta_2) \sin 2\theta_2 + \sin(\zeta_2 - \theta_2) \cos 2\theta_2 = \sin(\zeta_2 + \theta_2), \end{aligned} \quad (3.38)$$

$$\begin{aligned} e_1 &= \cos(\zeta_3 - \theta_3) \cos^2 \theta_3 - 0,5 \sin(\zeta_3 - \theta_3) \sin 2\theta_3 = \cos \zeta_3 \cos \theta_3, \\ e_2 &= \cos(\zeta_3 - \theta_3) \sin^2 \theta_3 + 0,5 \sin(\zeta_3 - \theta_3) \sin 2\theta_3 = \sin \zeta_3 \sin \theta_3, \\ e_6 &= \cos(\zeta_3 - \theta_3) \sin 2\theta_3 + \sin(\zeta_3 - \theta_3) \cos 2\theta_3 = \sin(\zeta_3 + \theta_3). \end{aligned} \quad (3.39)$$

Очевидно, що в наближенні PL AX $\zeta_1 = \theta_1$, $\zeta_2 = \theta_2$, $\zeta_3 = \theta_3$.

Надалі проаналізуємо деформації, спричинені QT₁ AX, що поширюється в площині *ac* під кутом θ відносно осі *a* [184]. Оскільки поляризації власних AX є взаємно ортогональними, кут орієнтації одиничного вектора зміщення QT₁ AX **u** ($|\mathbf{u}| = u = 1$) буде дорівнювати $90^\circ + \zeta$. Отже, в цьому випадку в системі координат *a'bc'*, пов'язаній з одиничним хвильовим вектором QT₁ AX **m** ($|\mathbf{m}| = m = 1$), вектор **u** може бути розкладений на чисто поздовжні (**u**_L) та чисто поперечні (**u**_T) компоненти з відповідними довжинами

$$\begin{aligned}
u_L &= u \cos(90^\circ + \zeta - \theta) \cos(\Omega t - m\chi_{a'}) = \\
&= -u \sin(\zeta - \theta) \cos(\Omega t - m\chi_{a'}), \\
u_T &= u \sin(90^\circ + \zeta - \theta) \cos(\Omega t - m\chi_{a'}) = \\
&= u \cos(\zeta - \theta) \cos(\Omega t - m\chi_{a'}).
\end{aligned}
\tag{3.40}$$

Таким чином, ненульові амплітудні значення компонент (3.24) тензора деформацій в системі координат $a'bc'$ записуються як

$$\begin{aligned}
e'_{11} = e'_1 &= \frac{\partial u_L}{\partial \chi_{a'}} = -\sin(\zeta - \theta), \\
e'_{13} = e'_{31} &= 0,5e'_5 = 0,5 \frac{\partial u_T}{\partial \chi_{a'}} = 0,5 \cos(\zeta - \theta).
\end{aligned}
\tag{3.41}$$

Використовуючи рівняння (3.35), отримуємо, що у випадку QT_1 АХ компоненти тензора деформацій e_1 , e_3 та e_5 в системі координат abc дорівнюють:

$$\begin{aligned}
e_1 &= (-\sin(\zeta - \theta) \cos \theta - \cos(\zeta - \theta) \sin \theta) \cos \theta = -\sin \zeta \cos \theta, \\
e_3 &= (-\sin(\zeta - \theta) \sin \theta + \cos(\zeta - \theta) \cos \theta) \sin \theta = \cos \zeta \sin \theta, \\
e_5 &= -\sin(\zeta - \theta) \sin 2\theta + \cos(\zeta - \theta) \cos 2\theta = \cos(\zeta + \theta).
\end{aligned}
\tag{3.42}$$

З огляду на подібність структури та враховуючи те, що кутами орієнтації вектора зміщення QT_1 АХ будуть кути $90^\circ + \zeta_1$, $90^\circ + \zeta_2$, $90^\circ + \zeta_3$, які відраховуються, відповідно, від осей b , a , a , в цілому для кристалографічних площин bc , ac , ab можна записати наступні рівняння:

$$\begin{aligned}
e_2 &= -\sin(\zeta_1 - \theta_1) \cos^2 \theta_1 - 0,5 \cos(\zeta_1 - \theta_1) \sin 2\theta_1 = -\sin \zeta_1 \cos \theta_1, \\
e_3 &= -\sin(\zeta_1 - \theta_1) \sin^2 \theta_1 + 0,5 \cos(\zeta_1 - \theta_1) \sin 2\theta_1 = \cos \zeta_1 \sin \theta_1, \\
e_4 &= -\sin(\zeta_1 - \theta_1) \sin 2\theta_1 + \cos(\zeta_1 - \theta_1) \cos 2\theta_1 = \cos(\zeta_1 + \theta_1).
\end{aligned}
\tag{3.43}$$

$$\begin{aligned}
e_1 &= -\sin(\zeta_2 - \theta_2) \cos^2 \theta_2 - 0,5 \cos(\zeta_2 - \theta_2) \sin 2\theta_2 = -\sin \zeta_2 \cos \theta_2, \\
e_3 &= -\sin(\zeta_2 - \theta_2) \sin^2 \theta_2 + 0,5 \cos(\zeta_2 - \theta_2) \sin 2\theta_2 = \cos \zeta_2 \sin \theta_2, \\
e_5 &= -\sin(\zeta_2 - \theta_2) \sin 2\theta_2 + \cos(\zeta_2 - \theta_2) \cos 2\theta_2 = \cos(\zeta_2 + \theta_2).
\end{aligned} \tag{3.44}$$

$$\begin{aligned}
e_1 &= -\sin(\zeta_3 - \theta_3) \cos^2 \theta_3 - 0,5 \cos(\zeta_3 - \theta_3) \sin 2\theta_3 = -\sin \zeta_3 \cos \theta_3, \\
e_2 &= -\sin(\zeta_3 - \theta_3) \sin^2 \theta_3 + 0,5 \cos(\zeta_3 - \theta_3) \sin 2\theta_3 = \cos \zeta_3 \sin \theta_3, \\
e_6 &= -\sin(\zeta_3 - \theta_3) \sin 2\theta_3 + \cos(\zeta_3 - \theta_3) \cos 2\theta_3 = \cos(\zeta_3 + \theta_3).
\end{aligned} \tag{3.45}$$

При цьому в наближенні PT_1 АХ $\zeta_1 = \theta_1$, $\zeta_2 = \theta_2$, $\zeta_3 = \theta_3$.

Й, нарешті, QT_2 АХ, що поширюється в площині ac , є PT_2 АХ – тобто, поляризована вздовж осі b [184]. Таким чином, в цьому випадку в системі координат $a'bc'$, поєднаній з одиничним хвильовим вектором PT_2 АХ $\mathbf{m}$ ($|\mathbf{m}| = m = 1$), існує лише чисто поперечна ($\mathbf{u}_T$) компонента одиничного вектора зміщення PT_2 АХ $\mathbf{u}$ ($|\mathbf{u}| = u = 1$) з довжиною

$$u_T = u \cos(\Omega t - mx_{a'}). \tag{3.46}$$

З огляду на це ненульове амплітудне значення буде мати лише одна компонента (3.24) тензора деформацій $\mathbf{e}'$ в системі координат $a'bc'$:

$$e'_{12} = e'_{21} = 0,5e'_6 = 0,5 \frac{\partial u_T}{\partial x_{a'}} = 0,5. \tag{3.47}$$

Записуючи цей тензор в системі координат abc за допомогою матриці повороту (3.34), отримуємо, що

$$\mathbf{e} = \mathbf{R}' \mathbf{e}' \mathbf{R} = \begin{bmatrix} 0 & e'_{12} \cos \theta & 0 \\ e'_{12} \cos \theta & 0 & e'_{12} \sin \theta \\ 0 & e'_{12} \sin \theta & 0 \end{bmatrix}. \tag{3.48}$$

Таким чином, у випадку $PT_2 AX$ компоненти тензора деформацій e_4 та e_6 в системі координат abc дорівнюють:

$$e_6 = \cos \theta, \quad e_4 = \sin \theta. \quad (3.49)$$

При цьому в цілому для кристалографічних площин bc , ac , ab можна записати наступні рівняння:

$$\begin{aligned} e_6 &= \cos \theta_1, & e_5 &= \sin \theta_1, \\ e_6 &= \cos \theta_2, & e_4 &= \sin \theta_2, \\ e_5 &= \cos \theta_3, & e_4 &= \sin \theta_3. \end{aligned} \quad (3.50)$$

Як можна бачити з рівнянь для компонент тензора деформацій e , наведених вище, єдиним невідомим параметром в них є кут орієнтації вектора зміщення ζ певної визначеної власної AX , що поширюється в певній визначеній кристалографічній площині AO взаємодії. Для його знаходження для певної визначеної кристалографічної площини AO взаємодії з рівняння

$$\det(\mathbf{M} - \lambda \mathbf{I}) = 0, \quad (3.51)$$

де $\mathbf{I}$ є одиничним тензором, визначаються власні значення $\lambda_1, \lambda_2, \lambda_3$ тензора Крістоффеля $\mathbf{M}$ (3.31) [184]. Кожному з цих власних значень буде відповідати одиничний вектор зміщення $\mathbf{u}$ певної визначеної власної AX , компоненти якого можуть бути знайдені з системи рівнянь

$$(\mathbf{M} - \lambda \mathbf{I})\mathbf{u} = 0. \quad (3.52)$$

В свою чергу, за цими компонентами можуть бути знайдені співвідношення для кута $\zeta = \zeta(\theta)$. При цьому слід відзначити, що власні значення тензора Крістоффеля можна знайти аналітично лише у випадку поширення AX у головних кристалографічних площинах. Натомість для

довільних напрямків поширення АХ розв'язки можуть бути отримані чисельно або, іншими словами, розв'язки в аналітичній формі можуть бути отримані з використанням деяких додаткових наближень.

Надалі можна отримати співвідношення для ЕПОК для різних типів АО взаємодій, використовуючи обчислені вище компоненти тензора деформацій ϵ , викликаних АХ, за допомогою процедур, детально описаних у роботах [11], [12], [77] та [175–178]. Так, спочатку для певної власної АХ, що поширюється в певній кристалографічній площині АО взаємодії, отримуються внески ΔB_{ij} (3.1). Надалі записуються співвідношення для компонент вектора напруженості електричного поля дифрагрованої оптичної хвилі $\mathbf{E}$

$$E_l = \varepsilon_0^{-1} \Delta B_{lj} D \cos \varphi_j \cos((\omega + \Omega)t - (\mathbf{k}_l + \mathbf{K})\mathbf{r}), \quad (3.53)$$

де $\cos \varphi_j$ ($j = 1, 2, 3$) – напрямні косинуси вектора електричної індукції падаючої оптичної хвилі $\mathbf{D}$ ($|\mathbf{D}| = D = 1$); $\mathbf{k}_l$, $\mathbf{K}$ – хвильові вектори відповідно падаючої оптичної хвилі та АХ; ω – циклічна частота падаючої оптичної хвилі. Й, нарешті, співвідношення для p_{eff} знаходиться з виразу для інтенсивності дифрагрованої оптичної хвилі I з врахуванням того, що $D = 1$:

$$I \sim \sum_{l=1}^3 E_l^2. \quad (3.54)$$

Так, для кристалів Ti_3AsS_4 у випадку типу I АО взаємодії, яка відбувається в кристалографічній площині ac [184], при нехтуванні відхиленням поляризації АХ від чисто поздовжнього стану вираз для ЕПОК можна записати як

$$p_{eff}^{(I)}(\theta) = (p_{11} \cos^2 \theta + p_{13} \sin^2 \theta) \cos^2(\theta + \theta_B) + (p_{31} \cos^2 \theta + p_{33} \sin^2 \theta) \sin^2(\theta + \theta_B) - 0,5 p_{55} \sin 2(\theta + \theta_B) \sin 2\theta, \quad (3.55)$$

а при врахуванні – наступним чином:

$$\begin{aligned}
 p_{eff}^{(I)}(\theta, \zeta) = & (p_{11}(\cos^2 \theta \cos(\theta - \zeta) - \sin 2\theta \sin(\theta - \zeta)) + \\
 & + p_{13}(\sin^2 \theta \cos(\theta - \zeta) + \sin 2\theta \sin(\theta - \zeta))) \cos^2(\theta + \theta_B) + \\
 & + (p_{31}(\cos^2 \theta \cos(\theta - \zeta) - \sin 2\theta \sin(\theta - \zeta)) + \\
 & + p_{33}(\sin^2 \theta \cos(\theta - \zeta) + \sin 2\theta \sin(\theta - \zeta))) \sin^2(\theta + \theta_B) - \\
 & - p_{55}(0,5 \sin 2\theta \cos(\theta - \zeta) + \cos 2\theta \sin(\theta - \zeta)) \sin 2(\theta + \theta_B).
 \end{aligned} \tag{3.56}$$

В свою чергу, відповідні співвідношення для ЕПОК для площини bc записуються як

$$p_{eff}^{(I)}(\theta) = p_{12} \cos^2 \theta + p_{13} \sin^2 \theta, \tag{3.57}$$

$$\begin{aligned}
 p_{eff}^{(I)}(\theta, \zeta) = & p_{12}(\cos^2 \theta \cos(\theta - \zeta) - \sin 2\theta \sin(\theta - \zeta)) + \\
 & + p_{13}(\sin^2 \theta \cos(\theta - \zeta) + \sin 2\theta \sin(\theta - \zeta)),
 \end{aligned} \tag{3.58}$$

де θ – кут між вектором AX та віссю b .

Як уже зазначалося, площина ab є площиною оптичних осей. Якщо кут падаючої оптичної хвилі, що відраховується відносно осі a , є меншим значення $90^\circ - \Theta = 75^\circ$ (Рисунок 3.5), можна записати наступні співвідношення:

$$p_{eff}^{(I)}(\theta) = p_{31} \cos^2 \theta + p_{32} \sin^2 \theta, \tag{3.59}$$

$$\begin{aligned}
 p_{eff}^{(I)}(\theta, \zeta) = & p_{31}(\cos^2 \theta \cos(\theta - \zeta) + \sin 2\theta \sin(\theta - \zeta)) + \\
 & + p_{32}(\sin^2 \theta \cos(\theta - \zeta) - \sin 2\theta \sin(\theta - \zeta)).
 \end{aligned} \tag{3.60}$$

Оскільки поляризація падаючої оптичної хвилі перемикається після перетину оптичним променем напрямку оптичної осі, співвідношення (3.59) та

(3.60) у випадку, коли кут падаючої оптичної хвилі є більшим 75° , переписуються, відповідно, у вигляді

$$p_{eff}^{(I)}(\theta) = (p_{11} \cos^2 \theta + p_{12} \sin^2 \theta) \cos^2(\theta + \theta_B) + (p_{21} \cos^2 \theta + p_{22} \sin^2 \theta) \sin^2(\theta + \theta_B) - 0,5 p_{66} \sin 2(\theta + \theta_B) \sin 2\theta, \quad (3.61)$$

$$\begin{aligned} p_{eff}^{(I)}(\theta, \zeta) = & (p_{11}(\cos^2 \theta \cos(\theta - \zeta) - \sin 2\theta \sin(\theta - \zeta)) + \\ & + p_{12}(\sin^2 \theta \cos(\theta - \zeta) + \sin 2\theta \sin(\theta - \zeta))) \cos^2(\theta + \theta_B) + \\ & + (p_{21}(\cos^2 \theta \cos(\theta - \zeta) - \sin 2\theta \sin(\theta - \zeta)) + \\ & + p_{22}(\sin^2 \theta \cos(\theta - \zeta) + \sin 2\theta \sin(\theta - \zeta))) \sin^2(\theta + \theta_B) - \\ & - (0,5 \sin 2\theta \cos(\theta - \zeta) + \cos 2\theta \sin(\theta - \zeta)) p_{66} \sin 2(\theta + \theta_B). \end{aligned} \quad (3.62)$$

Для типу II АО взаємодії [184] вираз для ЕПОК в площині ac при нехтуванні відхиленням поляризації АХ від чисто поздовжнього стану записується як

$$p_{eff}^{(II)}(\theta) = p_{21} \cos^2 \theta + p_{23} \sin^2 \theta, \quad (3.63)$$

а при врахуванні такого відхилення – як

$$\begin{aligned} p_{eff}^{(II)}(\theta, \zeta) = & p_{21}(\cos^2 \theta \cos(\theta - \zeta) - \sin 2\theta \sin(\theta - \zeta)) + \\ & + p_{23}(\sin^2 \theta \cos(\theta - \zeta) + \sin 2\theta \sin(\theta - \zeta)). \end{aligned} \quad (3.64)$$

В свою чергу, відповідні співвідношення для ЕПОК у випадку площини АО взаємодії bc є наступними:

$$\begin{aligned} p_{eff}^{(II)}(\theta) = & (p_{22} \cos^2 \theta + p_{23} \sin^2 \theta) \cos^2(\theta + \theta_B) + (p_{32} \cos^2 \theta + \\ & + p_{33} \sin^2 \theta) \sin^2(\theta + \theta_B) - 0,5 p_{44} \sin 2(\theta + \theta_B) \sin 2\theta, \end{aligned} \quad (3.65)$$

$$\begin{aligned}
p_{eff}^{(II)}(\theta, \zeta) = & (p_{22}(\cos^2 \theta \cos(\theta - \zeta) - \sin 2\theta \sin(\theta - \zeta)) + \\
& + p_{23}(\sin^2 \theta \cos(\theta - \zeta) + \sin 2\theta \sin(\theta - \zeta))) \cos^2(\theta + \theta_B) + \\
& + (p_{32}(\cos^2 \theta \cos(\theta - \zeta) - \sin 2\theta \sin(\theta - \zeta)) + \\
& + p_{33}(\sin^2 \theta \cos(\theta - \zeta) + \sin 2\theta \sin(\theta - \zeta))) \sin^2(\theta + \theta_B) - \\
& - p_{44}(0,5 \sin 2\theta \cos(\theta - \zeta) + \cos 2\theta \sin(\theta - \zeta)) \sin 2(\theta + \theta_B).
\end{aligned} \tag{3.66}$$

Нехай оптична хвиля падає під кутом, який є меншим 75° , в площині АО взаємодії ab . Тоді ЕПОК, розраховані для альтернативних випадків, коли враховується або не враховується відхилення поляризації АХ від чисто поздовжнього стану, визначаються, відповідно, за формулами

$$\begin{aligned}
p_{eff}^{(II)}(\theta) = & (p_{11} \cos^2 \theta + p_{12} \sin^2 \theta) \cos^2(\theta + \theta_B) + (p_{21} \cos^2 \theta + \\
& + p_{22} \sin^2 \theta) \sin^2(\theta + \theta_B) - 0,5 p_{66} \sin 2(\theta + \theta_B) \sin 2\theta,
\end{aligned} \tag{3.67}$$

$$\begin{aligned}
p_{eff}^{(II)}(\theta, \zeta) = & (p_{11}(\cos^2 \theta \cos(\theta - \zeta) - \sin 2\theta \sin(\theta - \zeta)) + \\
& + p_{12}(\sin^2 \theta \cos(\theta - \zeta) + \sin 2\theta \sin(\theta - \zeta))) \cos^2(\theta + \theta_B) + \\
& + (p_{21}(\cos^2 \theta \cos(\theta - \zeta) - \sin 2\theta \sin(\theta - \zeta)) + \\
& + p_{22}(\sin^2 \theta \cos(\theta - \zeta) + \sin 2\theta \sin(\theta - \zeta))) \sin^2(\theta + \theta_B) - \\
& - p_{66}(0,5 \sin 2\theta \cos(\theta - \zeta) + \cos 2\theta \sin(\theta - \zeta)) \sin 2(\theta + \theta_B).
\end{aligned} \tag{3.68}$$

В свою чергу, коли кут падаючої оптичної хвилі є більшим 75° , співвідношення для ЕПОК є наступними:

$$p_{eff}^{(II)}(\theta) = p_{31} \cos^2 \theta + p_{32} \sin^2 \theta, \tag{3.69}$$

$$\begin{aligned}
p_{eff}^{(II)}(\theta, \zeta) = & p_{31}(\cos^2 \theta \cos(\theta - \zeta) - \sin 2\theta \sin(\theta - \zeta)) + \\
& + p_{32}(\sin^2 \theta \cos(\theta - \zeta) + \sin 2\theta \sin(\theta - \zeta)).
\end{aligned} \tag{3.70}$$

На відміну від QL AX, поширення QT AX є своєрідним, оскільки існує акустична вісь, паралельна напрямку a [188]. Коли QT AX поширюються в цьому напрямку, швидкості для QT₁ AX та QT₂ AX є рівними між собою в межах похибок експерименту ($v_{12} = (1196 \pm 13)$ м/с та $v_{13} = (1176 \pm 9)$ м/с [56]). Ця особливість поширення QT AX є аналогом відомого кристалооптичного явища – так, зокрема, QT AX поширюються вздовж акустичної осі з довільними орієнтаціями вектора поляризації (Рисунок 3.6).

Типи III та IV АО взаємодії не можуть бути реалізовані для кристалів точкової групи симетрії mmm у кристалографічній площині ac , оскільки відповідні ПО коефіцієнти дорівнюють нулю [184]. Однак ці типи АО взаємодії можуть відбуватися у площині bc . При цьому ЕПОК для типу III АО взаємодії задається співвідношенням

$$p_{eff}^{(III)}(\theta) = (p_{12} - p_{13})\sin 2\theta, \quad (3.71)$$

якщо не враховувати відхилення поляризації AX від чисто поперечного стану, та

$$p_{eff}^{(III)}(\theta, \zeta) = p_{12}(\cos^2 \theta \cos(\theta - \zeta) - \sin 2\theta \sin(\theta - \zeta)) + p_{13}(\sin^2 \theta \cos(\theta - \zeta) + \sin 2\theta \sin(\theta - \zeta)), \quad (3.72)$$

якщо враховувати таке відхилення. Для типу IV АО взаємодії у площині bc вирази для ЕПОК при нехтуванні і врахуванні відхилення поляризації AX від чисто поперечного стану записуються, відповідно, у вигляді

$$p_{eff}^{(IV)}(\theta) = (p_{22} - p_{23})\cos^2(\theta + \theta_B)\sin 2\theta + (p_{32} - p_{33}) \times \sin^2(\theta + \theta_B)\sin 2\theta + p_{44}\sin 2(\theta + \theta_B)\cos 2\theta, \quad (3.73)$$

$$\begin{aligned}
p_{eff}^{(IV)}(\theta, \zeta) = & (p_{22}(\cos^2 \theta \cos(\zeta - \theta) - \sin 2\theta \sin(\zeta - \theta)) + \\
& + p_{23}(\sin^2 \theta \cos(\zeta - \theta) + \sin 2\theta \sin(\zeta - \theta))) \cos^2(\theta + \theta_B) + \\
& + (p_{32}(\cos^2 \theta \cos(\zeta - \theta) - \sin 2\theta \sin(\zeta - \theta)) + \\
& + p_{33}(\sin^2 \theta \cos(\zeta - \theta) + \sin 2\theta \sin(\zeta - \theta))) \sin^2(\theta + \theta_B) - \\
& - p_{44}(0,5 \sin 2\theta \cos(\zeta - \theta) + \cos 2\theta \sin(\zeta - \theta)) \sin 2(\theta + \theta_B).
\end{aligned} \tag{3.74}$$

В площині ab типи III та IV АО взаємодії неможливі, оскільки відповідні ПО коефіцієнти дорівнюють нулю.

Розглядаючи тип V АО взаємодії в площині ab , можна отримати наступні формули для ЕПОК у випадку кутів падіння оптичної хвилі відносно осі a , які є меншими 75° , при нехтуванні і врахуванні відхилення поляризації АХ від чисто поперечного стану, відповідно [184]:

$$p_{eff}^{(V)}(\theta) = (p_{31} - p_{32}) \sin 2\theta, \tag{3.75}$$

$$\begin{aligned}
p_{eff}^{(V)}(\theta, \zeta) = & p_{31}(\cos^2 \theta \cos(\zeta - \theta) - \sin 2\theta \sin(\zeta - \theta)) + \\
& + p_{32}(\sin^2 \theta \cos(\zeta - \theta) + \sin 2\theta \sin(\zeta - \theta)).
\end{aligned} \tag{3.76}$$

Натомість у випадку кутів падіння оптичної хвилі, які є більшими 75° :

$$\begin{aligned}
p_{eff}^{(V)}(\theta) = & (p_{11} - p_{12}) \cos^2(\theta + \theta_B) \sin 2\theta + (p_{21} - p_{22}) \times \\
& \times \sin^2(\theta + \theta_B) \sin 2\theta + p_{66} \sin 2(\theta + \theta_B) \cos 2\theta,
\end{aligned} \tag{3.77}$$

$$\begin{aligned}
p_{eff}^{(V)}(\theta, \zeta) = & (p_{11}(\cos^2 \theta \cos(\zeta - \theta) - \sin 2\theta \sin(\zeta - \theta)) + \\
& + p_{12}(\sin^2 \theta \cos(\zeta - \theta) + \sin 2\theta \sin(\zeta - \theta))) \cos^2(\theta + \theta_B) + \\
& + (p_{21}(\cos^2 \theta \cos(\zeta - \theta) - \sin 2\theta \sin(\zeta - \theta)) + \\
& + p_{22}(\sin^2 \theta \cos(\zeta - \theta) + \sin 2\theta \sin(\zeta - \theta))) \sin^2(\theta + \theta_B) - \\
& - p_{66}(0,5 \sin 2\theta \cos(\zeta - \theta) + \cos 2\theta \sin(\zeta - \theta)) \sin 2(\theta + \theta_B).
\end{aligned} \tag{3.78}$$

Для типу VI АО взаємодії в площині ab відповідні ЕПОК для кутів падіння оптичної хвилі відносно осі a , які є меншими 75° , при нехтуванні та врахуванні відхилення поляризації АХ від чисто поперечного стану визначаються співвідношеннями (3.77) та (3.78) відповідно, більшими 75° – співвідношеннями (3.75) та (3.76) відповідно.

Типи V та VI АО взаємодій не можуть бути реалізовані в площині cb . Натомість для площини ac відповідні ЕПОК при нехтуванні та врахуванні відхилення поляризації АХ від чисто поперечного стану є наступними:

$$p_{eff}^{(V)}(\theta) = (p_{11} - p_{13})\cos^2(\theta + \theta_B)\sin 2\theta + (p_{31} - p_{33}) \times \\ \times \sin^2(\theta + \theta_B)\sin 2\theta + p_{55}\sin 2(\theta + \theta_B)\cos 2\theta, \quad (3.79)$$

$$p_{eff}^{(V)}(\theta, \zeta) = (p_{11}(\cos^2 \theta \cos(\zeta - \theta) - \sin 2\theta \sin(\zeta - \theta)) + \\ + p_{12}(\sin^2 \theta \cos(\zeta - \theta) + \sin 2\theta \sin(\zeta - \theta)))\cos^2(\theta + \theta_B) + \\ + (p_{21}(\cos^2 \theta \cos(\zeta - \theta) - \sin 2\theta \sin(\zeta - \theta)) + \\ + p_{22}(\sin^2 \theta \cos(\zeta - \theta) + \sin 2\theta \sin(\zeta - \theta)))\sin^2(\theta + \theta_B) - \\ - p_{66}(0,5\sin 2\theta \cos(\zeta - \theta) + \cos 2\theta \sin(\zeta - \theta))\sin 2(\theta + \theta_B), \quad (3.80)$$

$$p_{eff}^{(VI)}(\theta) = (p_{21} - p_{23})\sin 2\theta, \quad (3.81)$$

$$p_{eff}^{(VI)}(\theta, \zeta) = p_{21}(\cos^2 \theta \cos(\zeta - \theta) - \sin 2\theta \sin(\zeta - \theta)) + \\ + p_{23}(\sin^2 \theta \cos(\zeta - \theta) + \sin 2\theta \sin(\zeta - \theta)). \quad (3.82)$$

Як можна бачити, для всіх шести типів ізотропної АО взаємодії, розглянутих вище, співвідношення для ЕПОК, отримані з урахуванням відхилень поляризацій АХ від чисто поздовжніх або чисто поперечних станів, у наближенні PL АХ або РТ АХ зводяться до співвідношень для ЕПОК, отриманих без урахування таких відхилень, що свідчить про самоузгодженість цих співвідношень.

З іншого боку, розгляд трьох типів анізотропної АО взаємодії в аспекті нехтування та врахування відхилення поляризації АХ від чисто поперечного стану є недоцільним, оскільки в головних кристалографічних площинах кристалів Ti_3AsS_4 анізотропна АО взаємодія може бути реалізована лише з РТ АХ.

Надалі проаналізуємо анізотропію КАОЯ для кристалів Ti_3AsS_4 , розраховану за формулою (3.3) з використанням ЕПОК, визначених за співвідношеннями, наведеними вище [184]. При цьому припускаємо, що кут Бреґга $\theta_B = 0,1^\circ$.

У випадку типу I АО взаємодії (Рисунок 3.8, Рисунок 3.9) врахування відхилення поляризації АХ від чисто поздовжнього стану не впливає на анізотропію КАОЯ. Максимальне значення КАОЯ ($2186 \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$) досягається в площині ab , коли падаюча та дифрагована оптичні хвилі поляризовані майже паралельно осі b , а АХ поширюється вздовж осі b . При цьому різкі зміни КАОЯ в площині ab при кутах $\theta = 90^\circ - \Theta = 75^\circ$, $90^\circ + \Theta = 105^\circ$, $270^\circ - \Theta = 255^\circ$, $270^\circ + \Theta = 285^\circ$ відповідають ситуаціям, коли падаюча та дифрагована оптичні хвилі поширюються в околі оптичної осі, де поляризація квазізвичайної оптичної хвилі перемикається на 90° .

У випадку типу II АО взаємодії (Рисунок 3.10, Рисунок 3.11) врахування відхилення поляризації АХ від чисто поздовжнього стану також не викликає змін у КАОЯ. Максимальне значення КАОЯ ($2186 \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$) спостерігається в площині взаємодії bc , коли падаюча та дифрагована оптичні хвилі поляризовані майже паралельно осі b , а АХ поширюється вздовж осі b . Значення КАОЯ також є дуже високим ($1936 \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$) в площині ab , коли АХ поширюється під кутами $\theta = 75^\circ$, 105° , 255° , 285° відносно осі a , а падаюча та дифрагована оптичні хвилі поширюються в околі оптичної осі. При цьому перемикання поляризації квазізвичайної оптичної хвилі на 90° , коли її хвильовий вектор перетинає оптичні осі, призводить до різких змін значення КАОЯ.

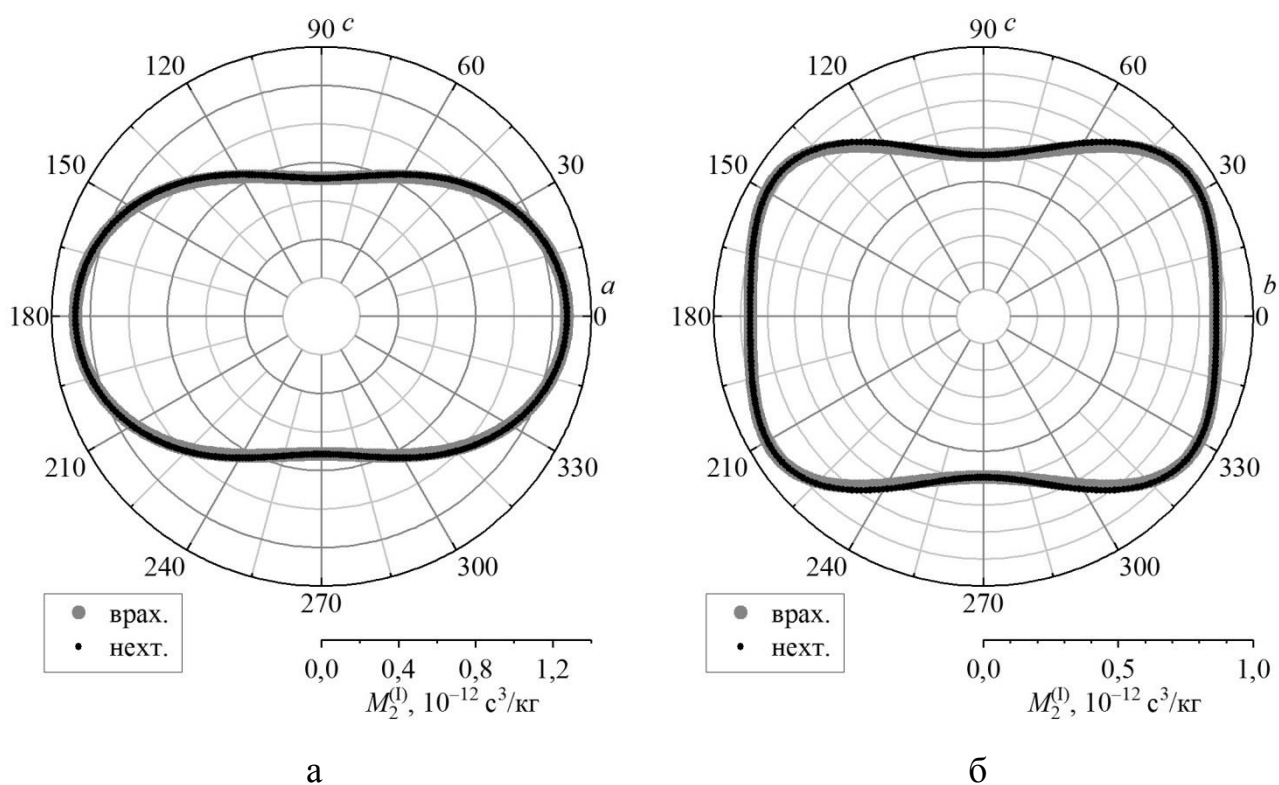


Рисунок 3.8. Залежності КАОЯ від кута θ для типу I АО взаємодії в площинах ac (а) та bc (б) кристалів Tl_3AsS_4 [184].

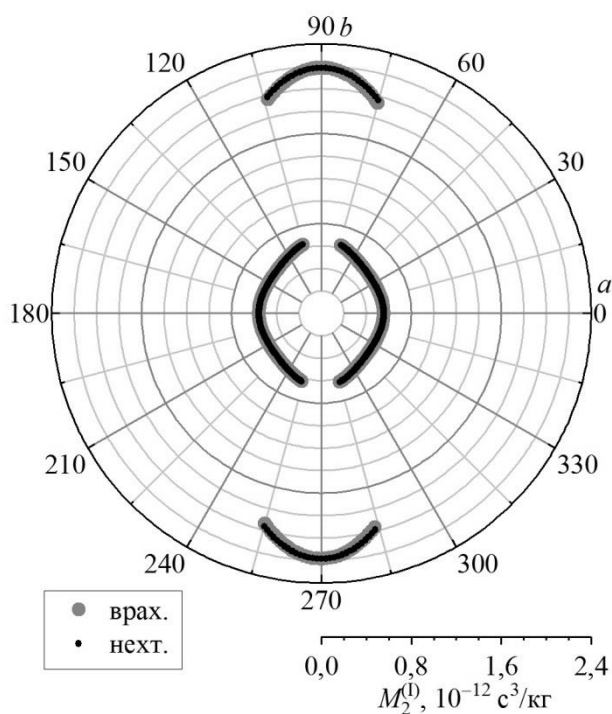


Рисунок 3.9. Залежності КАОЯ від кута θ для типу I АО взаємодії в площині ab кристалів Tl_3AsS_4 [184].

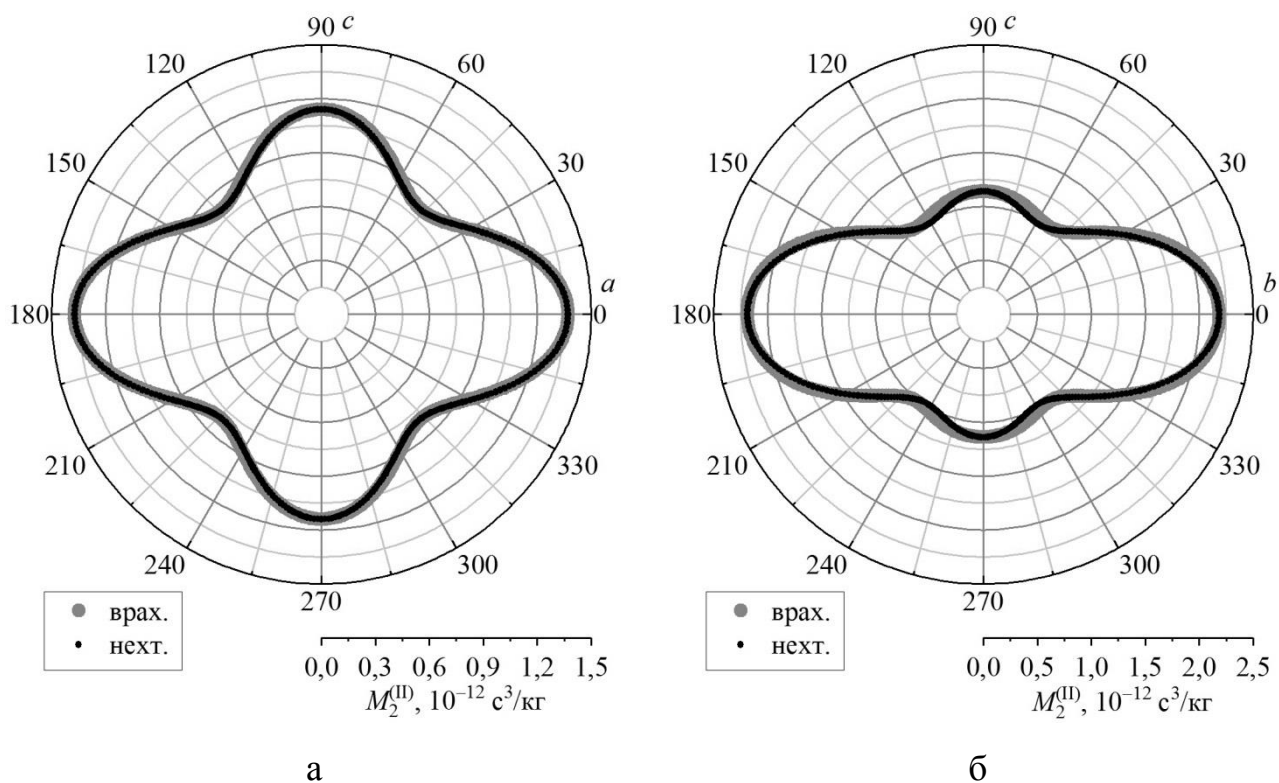


Рисунок 3.10. Залежності КАОЯ від кута θ для типу II АО взаємодії в площинах ac (а) та bc (б) кристалів Tl_3AsS_4 [184].

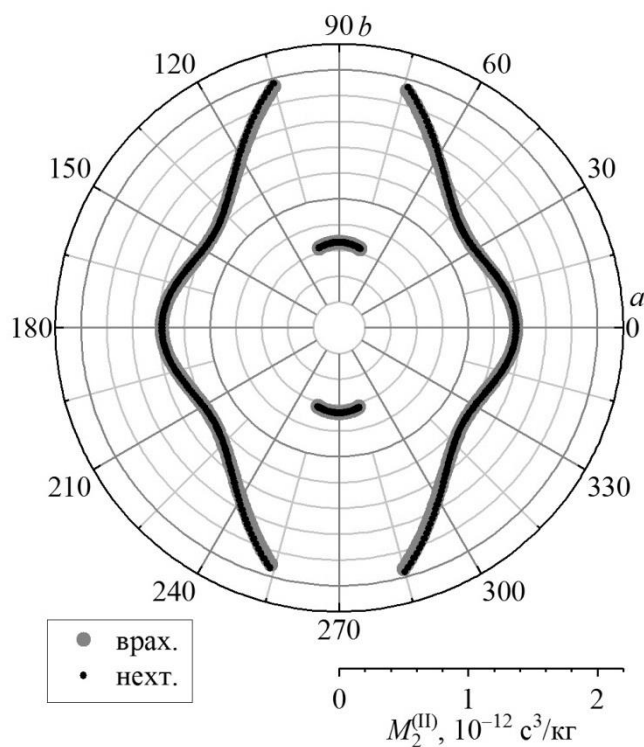


Рисунок 3.11. Залежності КАОЯ від кута θ для типу II АО взаємодії в площині ab кристалів Tl_3AsS_4 [184].

В свою чергу, врахування відхилення поляризації АХ від чисто поперечного стану для типу ІІІ АО взаємодії в площині bc збільшує величину КАОЯ на два порядки (Рисунок 3.12). Іншими словами, в цьому випадку спрощений підхід, який нехтує відхиленням поляризації АХ від чисто поперечного стану, не може бути використаний навіть як грубе наближення. Як випливає з рівняння (3.71), ЕПОК за такого підходу визначається різницею ПО коефіцієнтів p_{12} та p_{13} , які є майже однаковими. Якщо ж врахувати відхилення поляризації АХ від чисто поперечного стану, то величина КАОЯ зростає з огляду на те, що у рівнянні (3.72) наявний знак "+" замість знака "-" у рівнянні (3.71). Максимальне значення КАОЯ ($277 \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$) в такому випадку досягається для кутів $\theta = 66^\circ, 114^\circ, 246^\circ, 294^\circ$ відносно осі b .

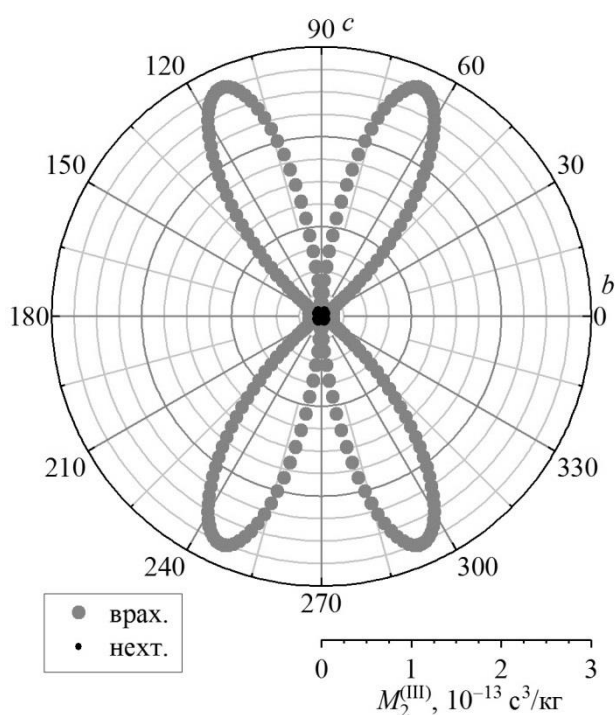


Рисунок 3.12. Залежності КАОЯ від кута θ для типу ІІІ АО взаємодії в площині bc кристалів Tl_3AsS_4 [184].

З іншого боку, врахування відхилення поляризації АХ від чисто поперечного стану для типу ІV АО взаємодії в площині bc призводить до суттєвого зниження величини КАОЯ – з $2083 \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$ до $823 \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$ при

$\theta = 73^\circ, 107^\circ, 253^\circ, 287^\circ$ та з $2333 \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$ до $1595 \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$ (максимальне значення) при $\theta = 19^\circ, 161^\circ, 199^\circ, 341^\circ$ (Рисунок 3.13).

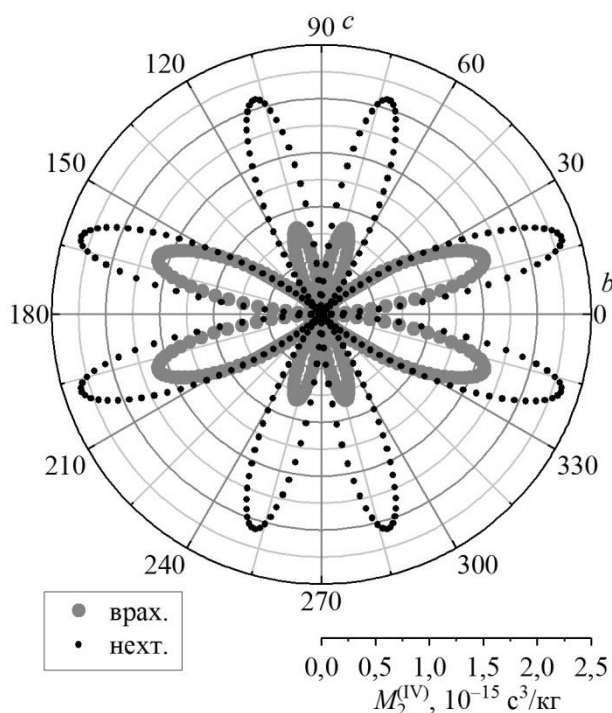


Рисунок 3.13. Залежності КАОЯ від кута θ для типу IV АО взаємодії в площині bc кристалів Tl_3AsS_4 [184].

Для типу V АО взаємодії в площині ac врахування відхилення поляризації АХ від чисто поперечного стану призводить до збільшення величини КАОЯ з $332 \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$ до $432 \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$ (максимальне значення) (Рисунок 3.14). Більше того, орієнтації максимальних значень КАОЯ на поверхнях $M_2(\theta)$ зміщуються на $\Delta\theta = 2^\circ$ та становлять $\theta = 47^\circ, 133^\circ, 227^\circ, 313^\circ$. Те ж саме стосується площини ab , де врахування відхилення поляризації АХ від чисто поперечного стану призводить, зокрема, до збільшення величини КАОЯ з $68 \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$ до $231 \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$, яке досягається, коли падаюча та дифрагована оптичні хвилі поширюються в околі оптичної осі, а кут $\theta = 75^\circ, 105^\circ, 255^\circ, 285^\circ$.

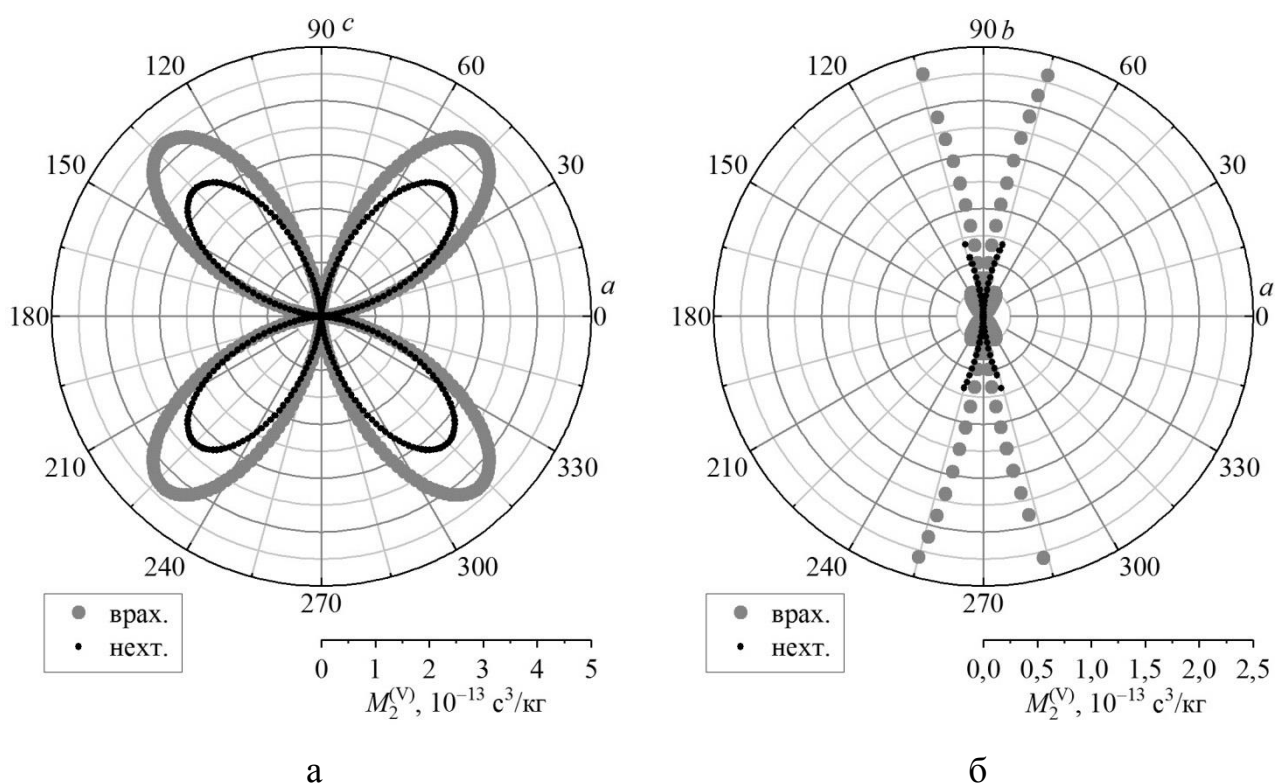


Рисунок 3.14. Залежності КАОЯ від кута θ для типу V АО взаємодії в площинах ac (а) та ab (б) кристалів Tl_3AsS_4 [184].

Для типу VI АО взаємодії у площині ac врахування відхилення поляризації АХ від чисто поперечного стану може призводити як до збільшення, так й до зменшення КАОЯ в залежності від величини кута θ (Рисунок 3.15). При цьому максимальне значення КАОЯ ($364 \times 10^{-15} \text{ c}^3/\text{kg}$) спостерігається при $\theta = 22^\circ, 158^\circ, 202^\circ, 338^\circ$. Для площини ab врахування відхилення поляризації АХ від чисто поперечного стану призводить, зокрема, до збільшення величини КАОЯ з $93 \times 10^{-15} \text{ c}^3/\text{kg}$ до $319 \times 10^{-15} \text{ c}^3/\text{kg}$ для $\theta = 67^\circ, 113^\circ, 247^\circ, 293^\circ$.

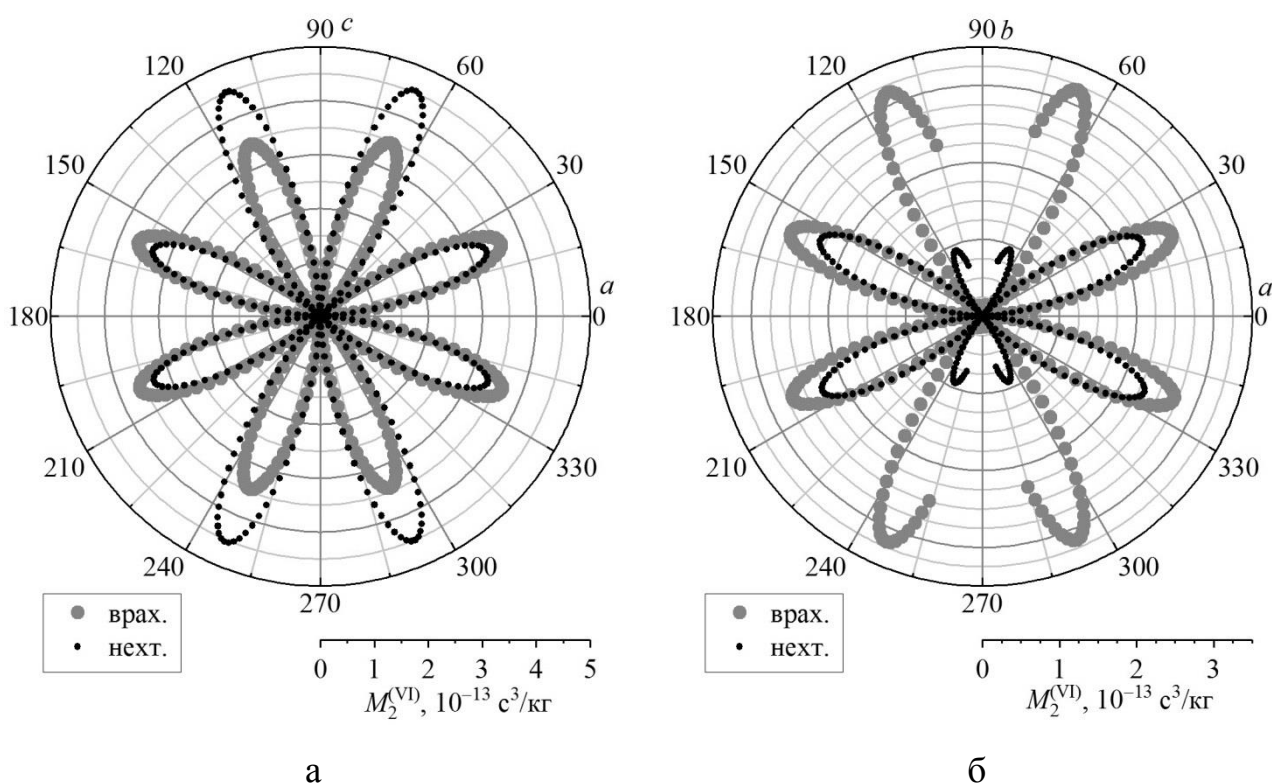


Рисунок 3.15. Залежності КАОЯ від кута θ для типу VI АО взаємодії в площинах ac (а) та ab (б) кристалів Tl_3AsS_4 [184].

Отже, максимальні значення КАОЯ досягаються для типів I та II АО взаємодії в головних кристалографічних площинах ab та bc відповідно (Таблиця 3.2).

Таблиця 3.2. Максимальні значення КАОЯ, розраховані для різних типів ізотропних АО взаємодій в кристалах Tl_3AsS_4 при врахуванні неортогональності поляризацій власних АХ [184].

Тип АО взаємодії	$\theta, ^\circ$	Площина АО взаємодії	$M_2, 10^{-15} \text{ c}^3/\text{кг}$
I	90, 270	ab	2186
II	0, 180	bc	2186
III	66, 114, 246, 294	bc	277
IV	19, 161, 199, 341	bc	1595
V	47, 133, 227, 313	ac	432
VI	22, 158, 202, 338	ac	364

Ці максимуми добре узгоджуються з даними, отриманими в роботі [60]. З наведених вище результатів випливає, що врахування відхилення поляризації АХ від чисто поздовжнього стану не впливає на анізотропію КАОЯ для типів I та II АО взаємодії. З іншого боку, для типів III–IV АО взаємодії врахування відхилення поляризації АХ від чисто поперечного стану помітно змінює кутові залежності КАОЯ. Крім того, в деяких випадках це може різко змінити саме максимальне значення КАОЯ (Рисунок 3.12).

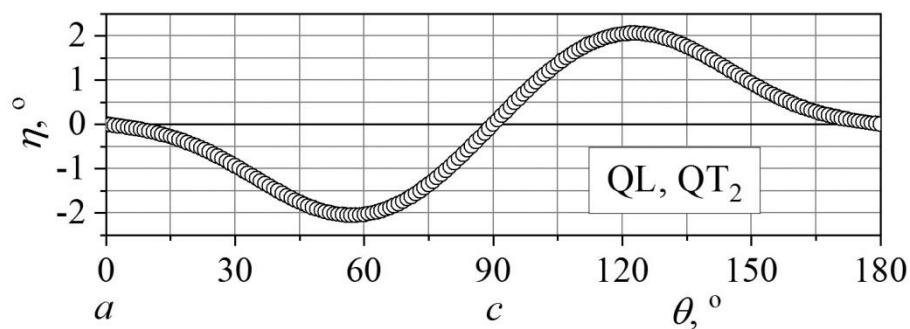
З огляду на вищевикладене, ступінь відхилення поляризації АХ від чистого (поздовжнього або поперечного) стану доцільно охарактеризувати кутом неортогональності АХ η , який в загальному випадку визначається як

$$\eta(\theta) = \begin{cases} \zeta(\theta) - \theta & \text{для QL АХ,} \\ \zeta(\theta) - \theta - 90^\circ & \text{для QT АХ,} \end{cases} \quad (3.83)$$

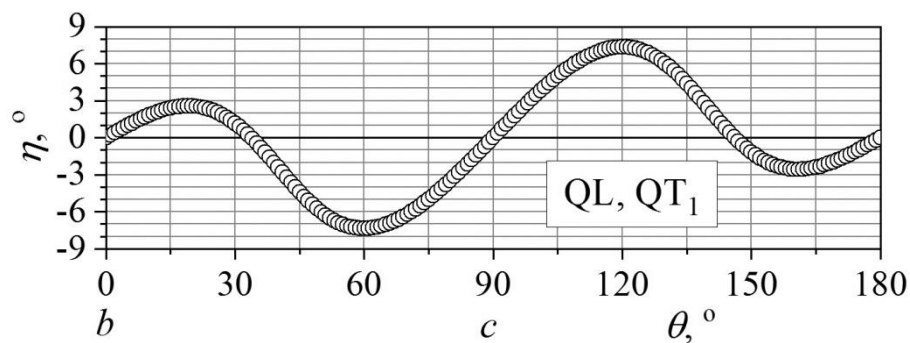
де $\zeta = \zeta(\theta)$ – кут орієнтації вектора зміщення АХ.

Аналізуючи залежності $\eta = \eta(\theta)$ для кристалів Tl_3AsS_4 (Рисунок 3.16), можна побачити, що для площини ac цей кут дуже малий та не перевищує $\sim 2^\circ$. Для площини ab кут η також невеликий ($\sim 4^\circ$). Найбільший кут η , який досягає значення $7,4^\circ$, спостерігається для площини bc . Звідси можна зробити висновок, що для кристалів Tl_3AsS_4 кут неортогональності АХ є відносно малим [184].

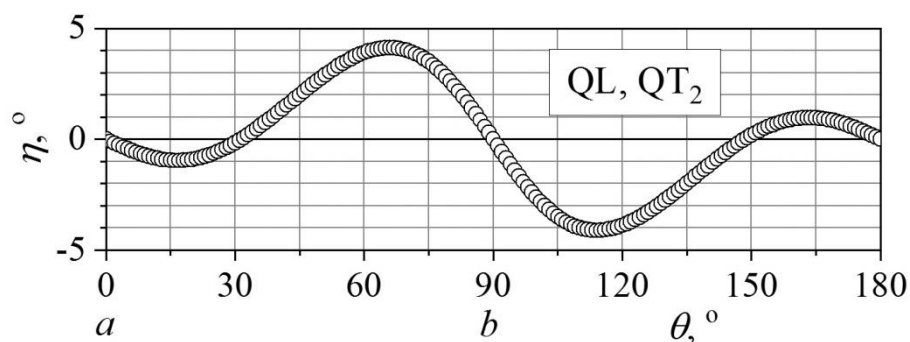
Наступна особливість кристалів Tl_3AsS_4 полягає в тому, що головні ПО коефіцієнти (тобто, ПО коефіцієнти p_{ij} з $i, j = 1, 2, 3$) близькі за своїми значеннями: $p_{31} = p_{32}$, $p_{11} \approx p_{33} \approx p_{21}$, $p_{12} \approx p_{13}$. У той самий час ПО коефіцієнти p_{44} , p_{55} та p_{66} є на порядок меншими за головні ПО коефіцієнти. Ці особливості призводять, наприклад, до того, що рівняння (3.57) та (3.58) можна звести до однакового вигляду – а саме, до вигляду $p_{ef}^{(I)} \approx p_{12}$. Те ж саме стосується також й інших співвідношень для ЕПОК у випадку типів I та II АО взаємодії.



а



б



в

Рисунок 3.16. Залежності $\eta = \eta(\theta)$ у площинах ac (а), bc (б) та ab (в) для кристалів Tl_3AsS_4 [184].

Однак ситуація стає іншою для типів III–IV АО взаємодії – наприклад, для АО взаємодії з QT_1 АХ з у площині bc , що описується рівняннями (3.71) та (3.72). В цьому випадку ЕПОК, визначений рівнянням (3.71), дорівнює нулю за умови $p_{12} \approx p_{13}$, тоді як рівняння (3.72) можна звести до співвідношення $p_{eff}^{(III)} = p_{12} \cos(\zeta - \theta)$ навіть при малих кутах η .

Таким чином, поведінка КАОЯ для QT АХ та QL АХ (принаймні, для орторомбічних кристалів Tl_3AsS_4) відрізняється, якщо враховувати

неортогональність поляризацій власних АХ або нехтувати такою неортогональністю. Ця різниця є наслідком специфічних властивостей кристалів Ti_3AsS_4 – зокрема, малих кутів неортогональності АХ та близьких або навіть однакових значень головних ПО коефіцієнтів.

3.2.2. Кристали $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ та $\alpha\text{-TeO}_2$

Значна кількість кристалів тетрагональної сингонії належить до середовищ, придатних для використання у галузі акустооптики. Такими кристалами є, зокрема, тетраборат літію $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$, який належить до точкової групи симетрії $4mm$ [73], та парателурит $\alpha\text{-TeO}_2$, який належить до точкової групи симетрії 422 [46].

Так, кристали $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$, попри відносно низькі значення КАОЯ у видимому спектральному діапазоні $((0,23-0,28) \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$ при $\lambda = 632,8 \text{ нм}$ [189]), мають високу стійкість до оптичного випромінювання великої потужності, з порогом пошкодження $\sim 10^{14} \text{ Вт/м}^2$ [69], а також є прозорими в ультрафіолетовому спектральному діапазоні до 170 нм [67]. Отже, з огляду на те, що $M_2 \sim n^6$ (3.3) та $\eta \sim \lambda^{-2}$ (3.4), кристали $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ є перспективним АО матеріалом для керування потужним короткохвильовим оптичним випромінюванням [190]. В свою чергу, експериментальні дослідження АО властивостей кристалів $\alpha\text{-TeO}_2$ показали, що у випадку ізотропної АО дифракції Бреґга максимальне значення КАОЯ, $34,5 \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$, досягається при взаємодії падаючої звичайної оптичної хвилі ($\lambda = 632,8 \text{ нм}$), яка поширюється в напрямку $[010]$ та поляризована в напрямку $[100]$, з найшвидшою поздовжньою АХ ($v = 4260 \text{ м/с}$), яка поширюється в напрямку $[001]$ [191]. Натомість для анізотропної АО дифракції Бреґга в кристалах $\alpha\text{-TeO}_2$ на найповільнішій поперечній АХ ($v = 617 \text{ м/с}$) з частотою $\Phi = 22 \times 10^6 \text{ Гц}$, яка поширюється в напрямку $[110]$ та поляризована в напрямку $[\bar{1}10]$, КАОЯ при $\lambda = 632,8 \text{ нм}$ дорівнює $1200 \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$ у випадку падаючих майже циркулярно-поляризованих ($\chi = 0,7$) оптичних хвиль та $(600-800) \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$ у випадку

падаючих лінійно-поляризованих оптичних хвиль при їхньому поширенні в околі оптичної осі (близько 1) кристалів α -TeO₂ [13, 191].

В роботах [192] та [193] було отримано аналітичні співвідношення для ЕПОК при різних типах АО взаємодії в кристалах Li₂B₄O₇ та α -TeO₂, які, втім, не враховують неортогональності поляризацій власних АХ.

Кристали Li₂B₄O₇ та α -TeO₂ є оптично одновісними при кімнатній температурі; причому на довжині оптичної хвилі $\lambda = 632,8$ нм кристали Li₂B₄O₇ є оптично-негативними ($n_o = 1,6088$; $n_e = 1,5520$ [194]), а кристали α -TeO₂ – оптично-позитивними ($n_o = 2,2597$; $n_e = 2,4119$ [195]). Густина ρ кристалів Li₂B₄O₇ та α -TeO₂ становить відповідно 2440 та 5990 кг/м³ [189, 191]. Таблиця 3.3 містить інші параметри кристалів Li₂B₄O₇ та α -TeO₂, необхідні для проведення подальших досліджень.

Таблиця 3.3. ПО коефіцієнти p_{ij} та коефіцієнти жорсткості C_{ij} для кристалів Li₂B₄O₇ та α -TeO₂ при $\lambda = 632,8$ нм [196].

ij	p_{ij}		$C_{ij}, 10^{10}$ Па	
	Li ₂ B ₄ O ₇ [197]	α -TeO ₂ [191]	Li ₂ B ₄ O ₇ [194]	α -TeO ₂
11	0,083±0,003	0,0074	13,527±0,012	5,32
12	0,227±0,017	0,187	0,109±0,006	4,86
13	0,227±0,005	0,34	3,186±0,010	2,12
33	0,163±0,006	0,24	5,480±0,010	10,85
44	-0,0075±0,0061	-0,17	5,739±0,008	2,44
66	-0,0066	-0,0463	4,738±0,006	5,52
31	0,209±0,011	0,0905	—	—

Для кристалів точкових груп симетрії $\bar{4}2m$, 4/ mmm , 422 та 4 mm кути орієнтації вектора зміщення QL АХ ζ_i , розраховані з використанням тензора Крістоффеля (3.31), дорівнюють

$$\zeta_{1,2} = \frac{1}{2} \arctg \frac{(C_{13} + C_{44}) \sin 2\theta_{1,2}}{(C_{11} - C_{44}) \cos^2 \theta_{1,2} + (C_{44} - C_{33}) \sin^2 \theta_{1,2}}, \quad (3.84)$$

$$\zeta_3 = \frac{1}{2} \operatorname{arctg} \frac{(C_{11} + C_{66}) \sin 2\theta_3}{(C_{11} - C_{66}) \cos^2 \theta_3 + (C_{66} - C_{11}) \sin^2 \theta_3}, \quad (3.85)$$

де індекси 1, 2, 3 відповідають головним кристалографічним площинам bc , ac , ab . Іншими словами, індекс i ($a \equiv 1$, $b \equiv 2$, $c \equiv 3$) позначає вісь, перпендикулярну до розглядуваної головної кристалографічної площини. При цьому кути орієнтації вектора зміщення QL AX ζ_1 , ζ_2 , ζ_3 та хвильового вектора QL AX θ_1 , θ_2 , θ_3 відраховуються, відповідно, від осей b , a , a [196].

Слід зауважити, що, оскільки поляризації власних AX є взаємно ортогональними, кути орієнтації вектора зміщення QT AX розраховуються за формулами (3.84) та (3.85), до правої частини яких додається 90° .

Кристали $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ мають дев'ять акустичних осей, які є тими напрямками поширення AX, для яких швидкості QT_1 AX та QT_2 AX співпадають. Одна з цих акустичних осей паралельна кристалографічній осі c , яка є оптичною віссю цього кристалу, чотири інші акустичні осі лежать у площині ab , та ще по дві акустичні осі належать площинам ac та bc (Рисунок 3.17). В площині ac (bc) акустичні осі лежать під кутами 22° та 158° відносно осі a (b); натомість в площині ab акустичні осі лежать під кутами 27° , 63° , 117° та 153° відносно осі a (Рисунок 3.18). Різниця швидкостей QL AX та QT AX, що поширюються вздовж осі c в кристалах $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$, дорівнює 244,6 м/с.

Кристали $\alpha\text{-TeO}_2$ мають п'ять акустичних осей; причому одна з цих акустичних осей паралельна кристалографічній осі c , яка є оптичною віссю цього кристалу (Рисунок 3.19), а чотири інші акустичні осі лежать в площині ab під кутами 17° , 73° , 107° та 163° відносно осі a (Рисунок 3.20). Також в кристалах $\alpha\text{-TeO}_2$ у площинах ac та bc існують по дві так звані поперечно-поздовжні акустичні осі, які є тими напрямками поширення AX, для яких швидкості QL AX та QT_2 AX співпадають. В площині ac (bc) ці поперечно-поздовжні акустичні осі лежать під кутами 9° та 171° відносно осі a (b).

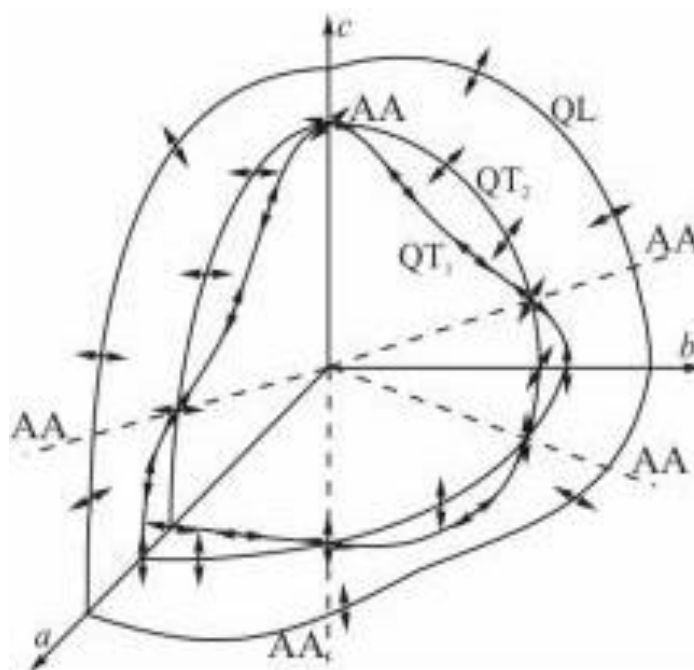


Рисунок 3.17. Схематичний вигляд поверхонь швидкостей АХ для кристалів $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$: двосторонні стрілки – поляризації власних АХ; АА – акустичні осі [196].

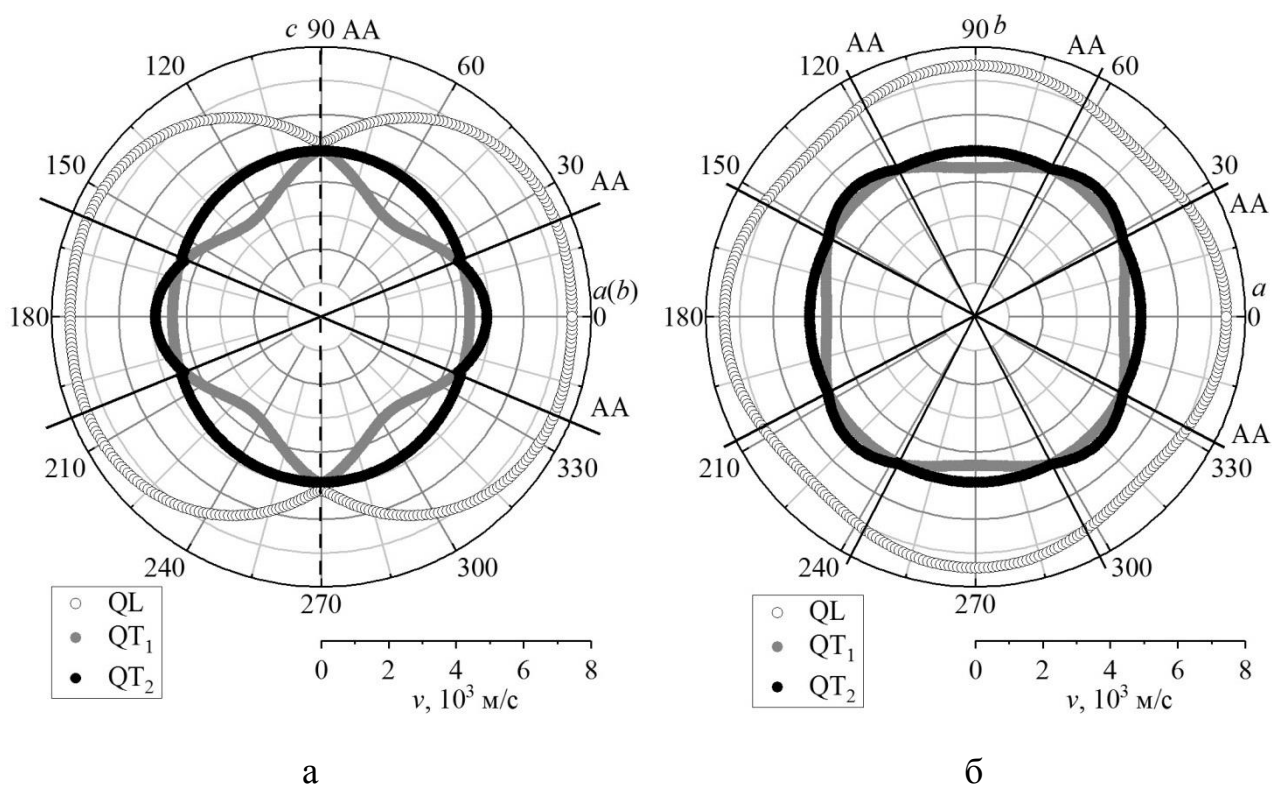


Рисунок 3.18. Перерізи поверхонь швидкостей АХ площинами ac (bc) (а) та ab (б) для кристалів $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$: АА – акустичні осі [196].

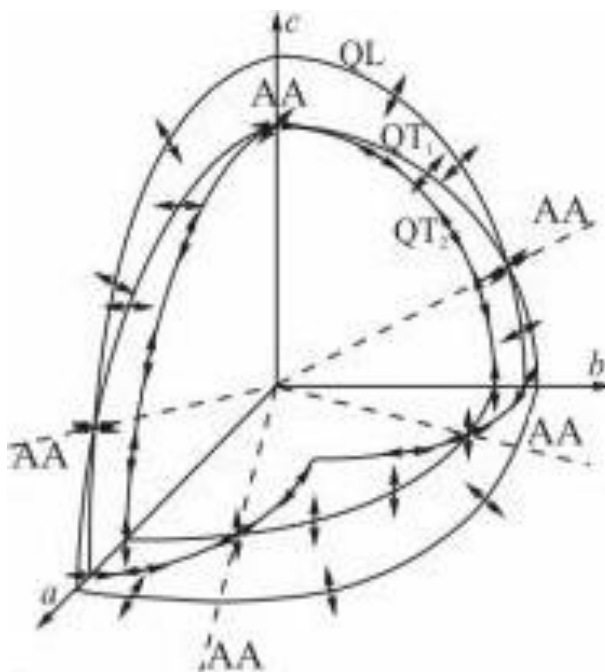


Рисунок 3.19. Схематичний вигляд поверхонь швидкостей АХ для кристалів α -TeO₂: двосторонні стрілки – поляризації власних АХ; АА – акустичні осі [196].

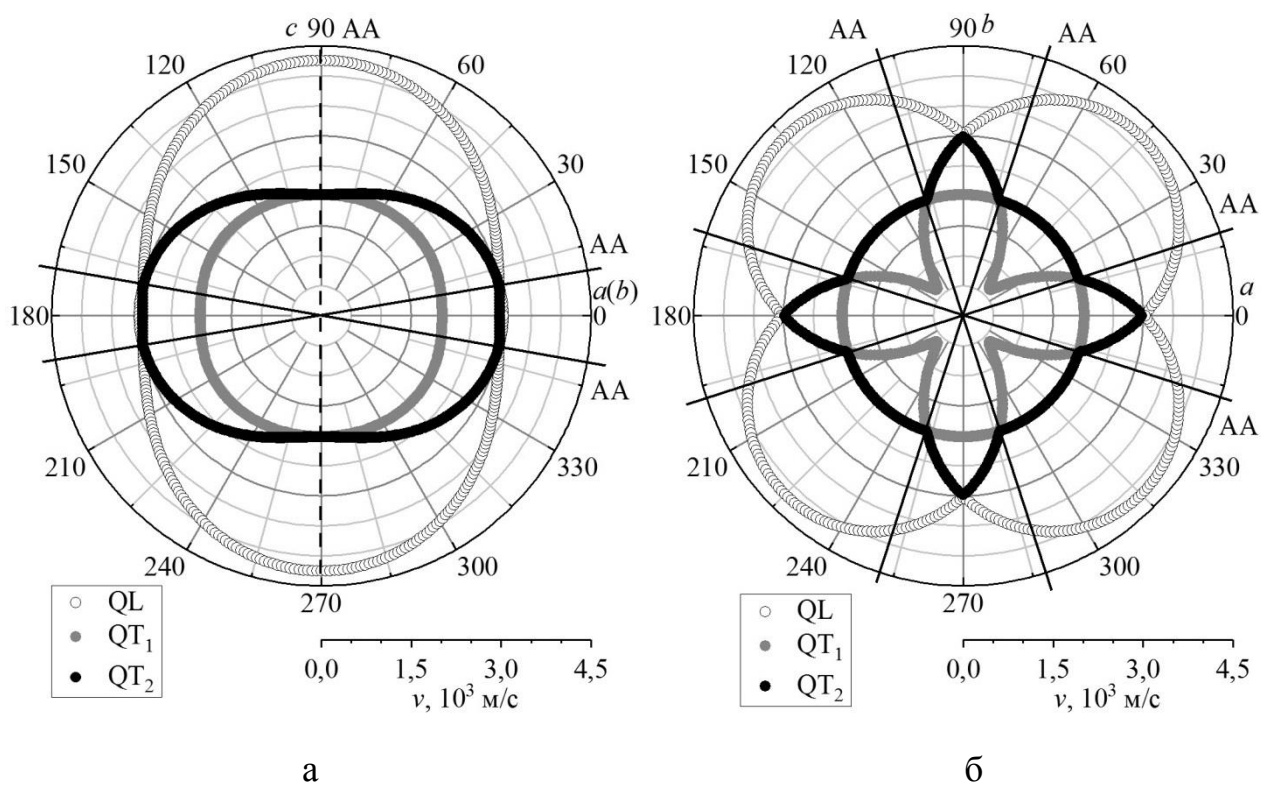


Рисунок 3.20. Перерізи поверхонь швидкостей АХ площинами ac (bc) (а) та ab (б) для кристалів α -TeO₂: АА – акустичні осі [196].

Для кристалів $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ кут неортогональності АХ η (3.83) досягає $-25,8^\circ$ в площині ac (bc) та $\pm 8,4^\circ$ в площині ab (Рисунок 3.21). Натомість для кристалів $\alpha\text{-TeO}_2$ кут неортогональності АХ досягає значення $-15,8^\circ$ в площині ac (bc) та $\pm 37,1^\circ$ в площині ab .

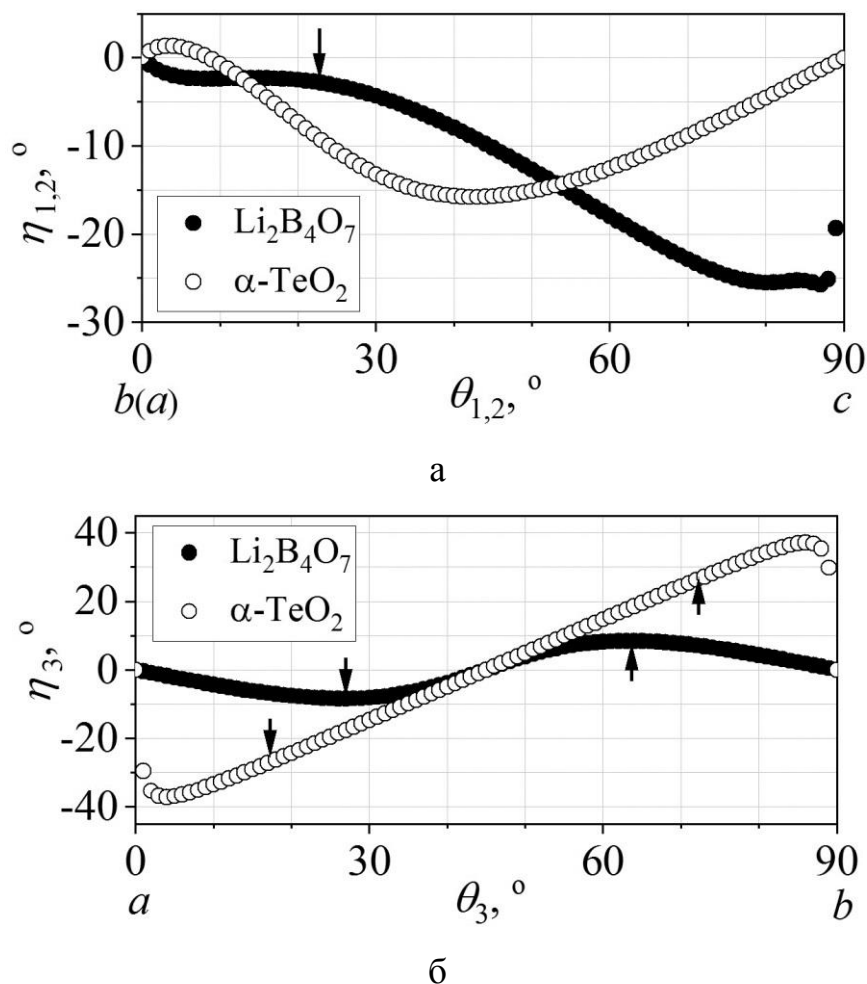


Рисунок 3.21. Залежності $\eta_i = \eta_i(\theta_i)$ для QL АХ та QT_1 АХ у площинах ac (bc) (а) та ab (б) кристалів $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ та $\alpha\text{-TeO}_2$. Стрілки: кутові положення акустичних осей [196].

Отже, як можна бачити, на відміну від кристалів Ti_3AsS_4 , проаналізованих у параграфі 3.2.1, кути неортогональності АХ в кристалах $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ та $\alpha\text{-TeO}_2$ є достатньо великими, що зумовлює доцільність та необхідність отримання аналітичних співвідношень для ЕПОК саме за умов врахування неортогональності поляризацій власних АХ (Таблиця 3.4–Таблиця 3.9).

Таблиця 3.4. ЕПОК для типу I АО взаємодії в кристалах $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ та $\alpha\text{-TeO}_2$ [196].

Площина	Співвідношення для p_{eff} у випадках нехтування (Н) та врахування (В) неортогональності поляризацій власних АХ
$ac (bc)$	(Н): $p_{12} \cos^2 \theta + p_{13} \sin^2 \theta$
	(В): $p_{12}(\cos^2 \theta \cos(\theta - \zeta) - \sin 2\theta \sin(\theta - \zeta)) +$ $+ p_{13}(\sin^2 \theta \cos(\theta - \zeta) + \sin 2\theta \sin(\theta - \zeta))$
ab	(Н): $(p_{11} \cos^2 \theta + p_{12} \sin^2 \theta) \cos^2(\theta + \theta_B) + (p_{12} \cos^2 \theta +$ $+ p_{11} \sin^2 \theta) \sin^2(\theta + \theta_B) + p_{66} \sin 2(\theta + \theta_B) \sin 2\theta$
	$(p_{11}(\cos^2 \theta \cos(\theta - \zeta) - \sin 2\theta \sin(\theta - \zeta)) + p_{12} \times$ $\times (\sin^2 \theta \cos(\theta - \zeta) + \sin 2\theta \sin(\theta - \zeta))) \cos^2(\theta + \theta_B) +$ (В): $+(p_{12}(\cos^2 \theta \cos(\theta - \zeta) - \sin 2\theta \sin(\theta - \zeta)) + p_{11} \times$ $\times (\sin^2 \theta \cos(\theta - \zeta) + \sin 2\theta \sin(\theta - \zeta))) \sin^2(\theta + \theta_B) +$ $+ 2 p_{66} \sin 2(\theta + \theta_B)(\cos 2\theta \sin(\theta - \zeta) + 0,5 \sin 2\theta \cos(\theta - \zeta))$

Таблиця 3.5. ЕПОК для типу II АО взаємодії в кристалах $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ та $\alpha\text{-TeO}_2$ [196].

Площина	Співвідношення для p_{eff} у випадках нехтування (Н) та врахування (В) неортогональності поляризацій власних АХ
$ac (bc)$	(Н): $(p_{11} \cos^2 \theta + p_{13} \sin^2 \theta) \cos^2(\theta + \theta_B) + (p_{31} \cos^2 \theta +$ $+ p_{33} \sin^2 \theta) \sin^2(\theta + \theta_B) + p_{44} \sin 2(\theta + \theta_B) \sin 2\theta$
	$(p_{11}(\cos^2 \theta \cos(\theta - \zeta) - \sin 2\theta \sin(\theta - \zeta)) +$ $+ p_{13}(\sin^2 \theta \cos(\theta - \zeta) + \sin 2\theta \sin(\theta - \zeta))) \cos^2(\theta + \theta_B) +$ (В): $+(p_{31}(\cos^2 \theta \cos(\theta - \zeta) - \sin 2\theta \sin(\theta - \zeta)) +$ $+ p_{33}(\sin^2 \theta \cos(\theta - \zeta) + \sin 2\theta \sin(\theta - \zeta))) \sin^2(\theta + \theta_B) +$ $+ 2 p_{44} \sin 2(\theta + \theta_B)(\cos 2\theta \sin(\theta - \zeta) + 0,5 \sin 2\theta \cos(\theta - \zeta))$
ab	(Н): p_{31}
	(В): $p_{31} \cos(\theta - \zeta)$

Таблиця 3.6. ЕПОК для типу III АО взаємодії в кристалах $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ та $\alpha\text{-TeO}_2$ [196].

Площина	Співвідношення для p_{eff} у випадках нехтування (Н) та врахування (В) неортогональності поляризацій власних АХ
$ac (bc)$	(Н): $0,5(p_{12} - p_{13})\sin 2\theta$
	(В): $0,5p_{12}(\cos^2 \theta \cos(\zeta - \theta) - \sin 2\theta \sin(\zeta - \theta)) +$ $+0,5p_{13}(\sin^2 \theta \cos(\zeta - \theta) + \sin 2\theta \sin(\zeta - \theta))$
ab	АО взаємодія не може бути реалізована, оскільки відповідні ПО коефіцієнти дорівнюють нулю

Таблиця 3.7. ЕПОК для типу IV АО взаємодії в кристалах $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ та $\alpha\text{-TeO}_2$ [196].

Площина	Співвідношення для p_{eff} у випадках нехтування (Н) та врахування (В) неортогональності поляризацій власних АХ
$ac (bc)$	(Н): $0,5(p_{11} - p_{13})\sin 2\theta \cos^2(\theta + \theta_B) + 0,5(p_{31} - p_{33}) \times$ $\times \sin 2\theta \sin^2(\theta + \theta_B) - p_{44} \sin 2(\theta + \theta_B) \cos 2\theta$
	$0,5(p_{11}(\cos^2 \theta \cos(\zeta - \theta) - \sin 2\theta \sin(\zeta - \theta)) +$ $+ p_{13}(\sin^2 \theta \cos(\zeta - \theta) + \sin 2\theta \sin(\zeta - \theta))) \cos^2(\theta + \theta_B) +$ (В): $+0,5(p_{31}(\cos^2 \theta \cos(\zeta - \theta) - \sin 2\theta \sin(\zeta - \theta)) +$ $+ p_{33}(\sin^2 \theta \cos(\zeta - \theta) + \sin 2\theta \sin(\zeta - \theta))) \sin^2(\theta + \theta_B) +$ $+ p_{44}(0,5 \sin 2\theta \cos(\zeta - \theta) + \cos 2\theta \sin(\zeta - \theta)) \sin 2(\theta + \theta_B)$
ab	АО взаємодія не може бути реалізована, оскільки відповідні ПО коефіцієнти дорівнюють нулю

Як можна бачити (Таблиця 3.4–Таблиця 3.9), для ізотропної АО взаємодії співвідношення для ЕПОК, отримані при врахуванні неортогональності поляризацій власних АХ, у наближенні PL АХ або РТ АХ зводяться до співвідношень для ЕПОК, отриманих при нехтуванні нею, що свідчить про їхню самоузгодженість. Слід зауважити, що для подальших розрахунків анізотропії КАОЯ в кристалах $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ та $\alpha\text{-TeO}_2$ приймається, що кут Брега $\theta_B = 1^\circ$.

Таблиця 3.8. ЕПОК для типу V АО взаємодії в кристалах $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ та $\alpha\text{-TeO}_2$ [196].

Площина	Співвідношення для p_{eff} у випадках нехтування (Н) та врахування (В) неортогональності поляризацій власних АХ
$ac (bc)$	АО взаємодія не може бути реалізована, оскільки відповідні ПО коефіцієнти дорівнюють нулю
ab	(Н): $0,5(p_{11} - p_{12})\sin 2\theta \cos^2(\theta + \theta_B) + 0,5(p_{12} - p_{11}) \times \sin 2\theta \sin^2(\theta + \theta_B) - p_{66} \sin 2(\theta + \theta_B) \cos 2\theta$
	$0,5(p_{11}(\cos^2 \theta \cos(\zeta - \theta) - \sin 2\theta \sin(\zeta - \theta)) + p_{12}(\sin^2 \theta \cos(\zeta - \theta) + \sin 2\theta \sin(\zeta - \theta))) \cos^2(\theta + \theta_B) +$ (В): $+0,5(p_{12}(\cos^2 \theta \cos(\zeta - \theta) - \sin 2\theta \sin(\zeta - \theta)) + p_{11}(\sin^2 \theta \cos(\zeta - \theta) + \sin 2\theta \sin(\zeta - \theta))) \sin^2(\theta + \theta_B) +$ $+ p_{66}(0,5 \sin 2\theta \cos(\zeta - \theta) + \cos 2\theta \sin(\zeta - \theta)) \sin 2(\theta + \theta_B)$

Таблиця 3.9. ЕПОК для типу VI АО взаємодії в кристалах $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ та $\alpha\text{-TeO}_2$ [196].

Площина	Співвідношення для p_{eff} у випадках нехтування (Н) та врахування (В) неортогональності поляризацій власних АХ
$ac (bc)$	АО взаємодія не може бути реалізована, оскільки відповідні ПО коефіцієнти дорівнюють нулю
ab	(Н): 0
	(В): $p_{31} \cos(\zeta - \theta)$

Для кристалів $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ у випадку типу I АО взаємодії врахування неортогональності АХ не впливає істотно на КАОЯ у площині ab (Рисунок 3.22). Натомість в площині $ac (bc)$ в кутових областях $45^\circ < \theta < 135^\circ$ та $225^\circ < \theta < 315^\circ$ спостерігається розщеплення значень КАОЯ, розрахованих за альтернативних умов врахування або нехтування неортогональністю АХ; причому врахування неортогональності АХ призводить до зменшення КАОЯ. У цих областях в площині $ac (bc)$ зростає кут неортогональності АХ, тоді як кут

неортогональності АХ в площині ab залишається достатньо малим (Рисунок 3.21).

Максимальне значення КАОЯ ($3,4 \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$) для типу І АО взаємодії досягається в площині ac (bc) при поширенні АХ вздовж осі c .

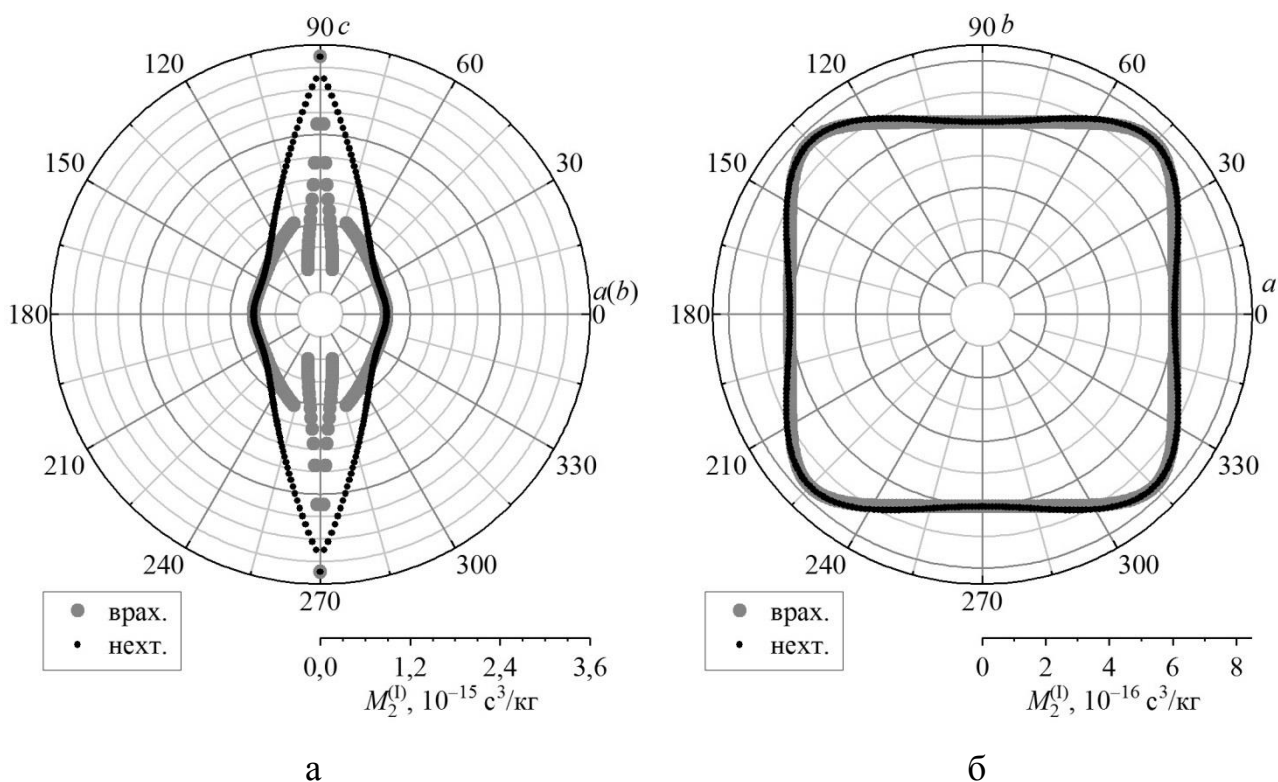


Рисунок 3.22. Залежності КАОЯ від кута θ для типу І АО взаємодії в площинах ac (bc) (а) та ab (б) кристалів $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ [196].

Аналогічна поведінка КАОЯ спостерігається для кристалів $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ також й у випадку типу ІІ АО взаємодії (Рисунок 3.23). А саме, врахування неортогональності АХ не впливає на КАОЯ для площини взаємодії ab , але впливає на нього для площини взаємодії ac (bc) та кутових областей $45^\circ < \theta < 135^\circ$ й $225^\circ < \theta < 315^\circ$; причому врахування неортогональності АХ призводить до зменшення КАОЯ.

Максимальне значення КАОЯ ($1,7 \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$) для типу ІІ АО взаємодії досягається в площині ab при кутах поширення АХ $\theta = 45^\circ, 135^\circ, 225^\circ$ та 315° .

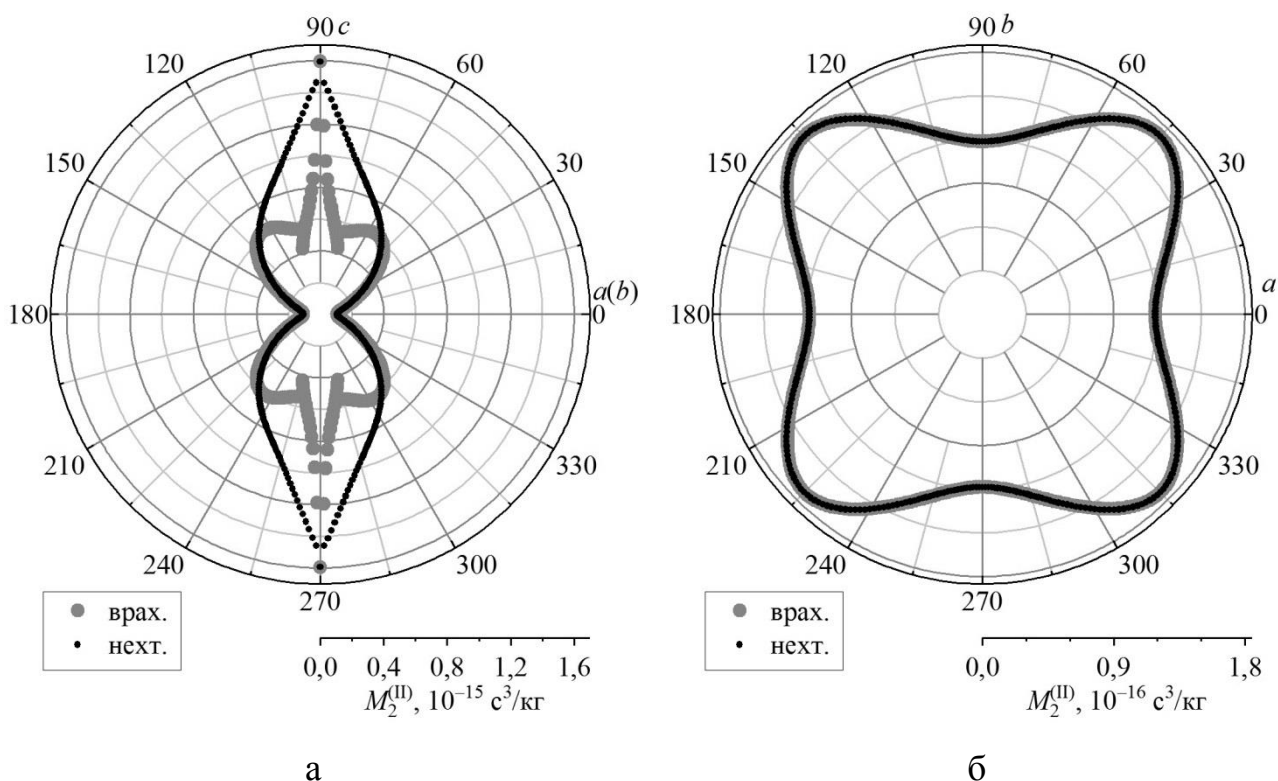


Рисунок 3.23. Залежності КАОЯ від кута θ для типу II АО взаємодії в площинах ac (bc) (а) та ab (б) кристалів $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ [196].

Для типу III АО взаємодії в кристалах $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ (Рисунок 3.24) в площині ac (bc) ЕПОК для кристалів $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ дорівнює нулю, якщо нехтувати неортогональністю АХ – тобто, за цієї умови такий тип взаємодій у площині ac (bc) є неможливим. Однак тип III АО взаємодії може бути реалізований в площині ac (bc) при врахуванні неортогональності АХ. Тоді максимальне значення КАОЯ ($8 \times 10^{-16} \text{ c}^3/\text{kg}$) досягається при $\theta = 90^\circ$ та 270° . У площині ab тип III АО взаємодії не може реалізуватися, коли АХ поширюється в кутових областях $27^\circ < \theta < 63^\circ$, $117^\circ < \theta < 163^\circ$, $207^\circ < \theta < 243^\circ$ та $297^\circ < \theta < 333^\circ$, оскільки в такому випадку ЕПОК дорівнює нулю. Натомість при поширенні АХ під іншими кутами величина КАОЯ за умови нехтування неортогональністю АХ є меншою, ніж розрахована за умови врахування неортогональності АХ. В останньому випадку максимальне значення КАОЯ ($5,6 \times 10^{-18} \text{ c}^3/\text{kg}$) досягається при кутах поширення АХ $\theta = 66^\circ, 156^\circ, 246^\circ$ та 336° .

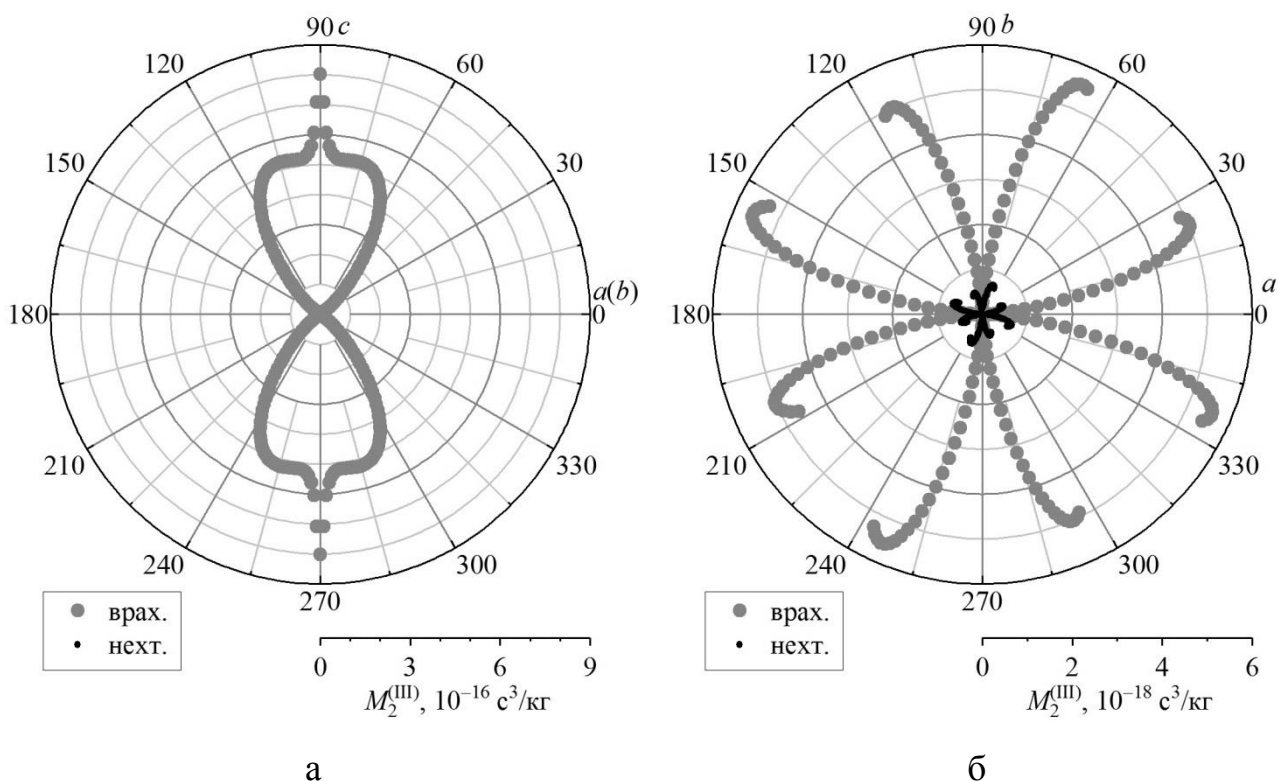


Рисунок 3.24. Залежності КАОЯ від кута θ для типу III АО взаємодії в площинах ac (bc) (а) та ab (б) кристалів $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ [196].

Тип IV АО взаємодії в кристалах $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ (Рисунок 3.25) у площині ac (bc) може бути реалізований лише за умови поширення АХ під кутами $21^\circ < \theta < 160^\circ$ та $200^\circ < \theta < 339^\circ$; причому врахування неортогональності АХ призводить до збільшення КАОЯ. Максимальне значення КАОЯ ($3,7 \times 10^{-16} \text{ c}^3/\text{кг}$) у площині ac (bc) досягається при кутах поширення АХ $\theta = 90^\circ$ та 270° . В свою чергу, в площині ab тип IV АО взаємодії є неможливим за умови нехтування неортогональністю АХ. Проте у разі врахування неортогональності АХ тип IV АО взаємодії в площині ab може існувати при кутах поширення АХ $333^\circ < \theta < 27^\circ$, $63^\circ < \theta < 117^\circ$, $153^\circ < \theta < 207^\circ$ та $243^\circ < \theta < 297^\circ$. В цьому випадку максимальне значення КАОЯ дорівнює $1,15 \times 10^{-17} \text{ c}^3/\text{кг}$ при кутах поширення АХ $\theta = 25^\circ, 65^\circ, 115^\circ, 155^\circ, 205^\circ, 245^\circ, 295^\circ$ та 335° .

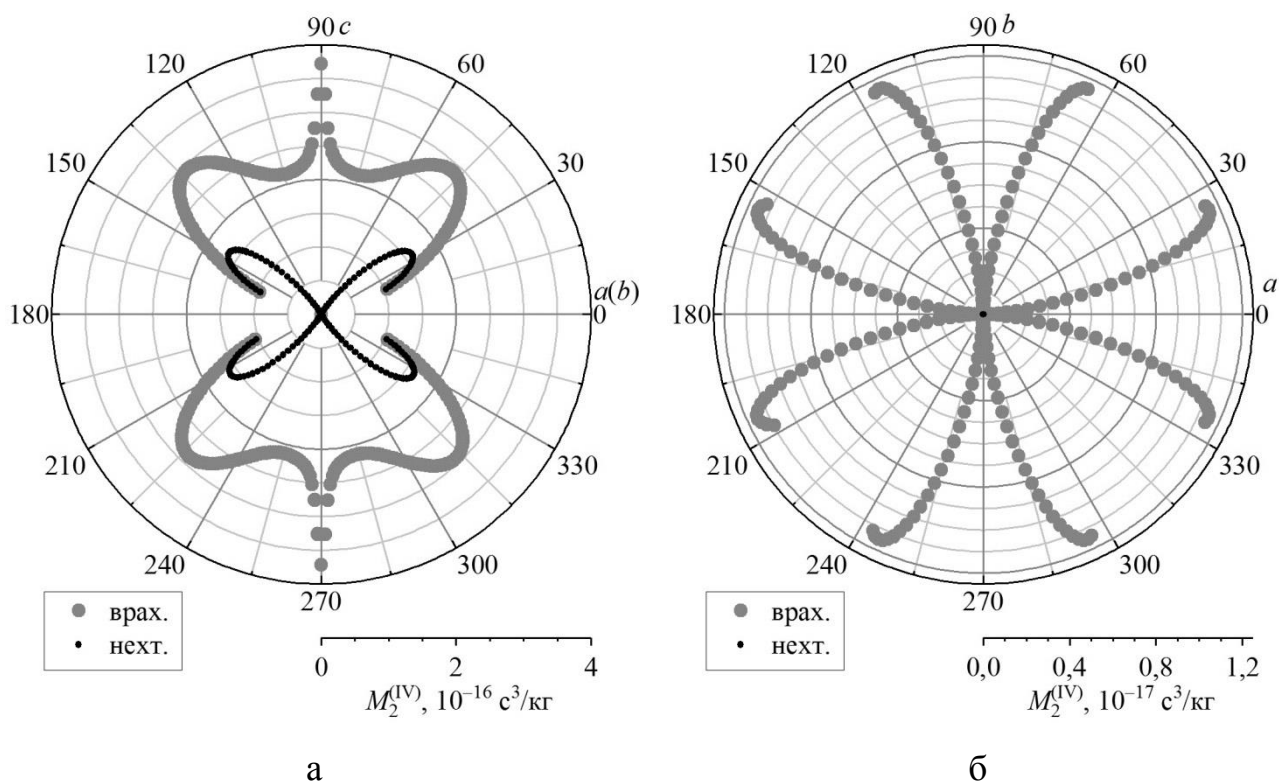


Рисунок 3.25. Залежності КАОЯ від кута θ для типу IV АО взаємодії в площинах ac (bc) (а) та ab (б) кристалів $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ [196].

Для типу V АО взаємодії в кристалах $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ (Рисунок 3.26) в площині ac (bc) ЕПОК для кристалів $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ дорівнює нулю, якщо нехтувати неортогональністю АХ – тобто, за цієї умови тип V АО взаємодії у площині ac (bc) є неможливим. Натомість при врахуванні неортогональності АХ тип V АО взаємодії може бути реалізований в площині ac (bc) для кутів поширення АХ $339^\circ < \theta < 21^\circ$ та $159^\circ < \theta < 201^\circ$. При цьому максимальне значення КАОЯ ($2,7 \times 10^{-19} \text{ c}^3/\text{kg}$) досягається при $\theta = 11^\circ, 169^\circ, 191^\circ$ та 349° . В свою чергу, в площині ab тип V АО взаємодії при врахуванні неортогональності АХ може бути реалізований в кутових областях $27^\circ < \theta < 63^\circ$, $117^\circ < \theta < 153^\circ$, $207^\circ < \theta < 243^\circ$ та $297^\circ < \theta < 333^\circ$. При цьому врахування неортогональності АХ призводить до збільшення КАОЯ. Максимальне значення КАОЯ ($5,5 \times 10^{-18} \text{ c}^3/\text{kg}$) в площині ab досягається при $\theta = 62^\circ, 152^\circ, 242^\circ$ та 332° .

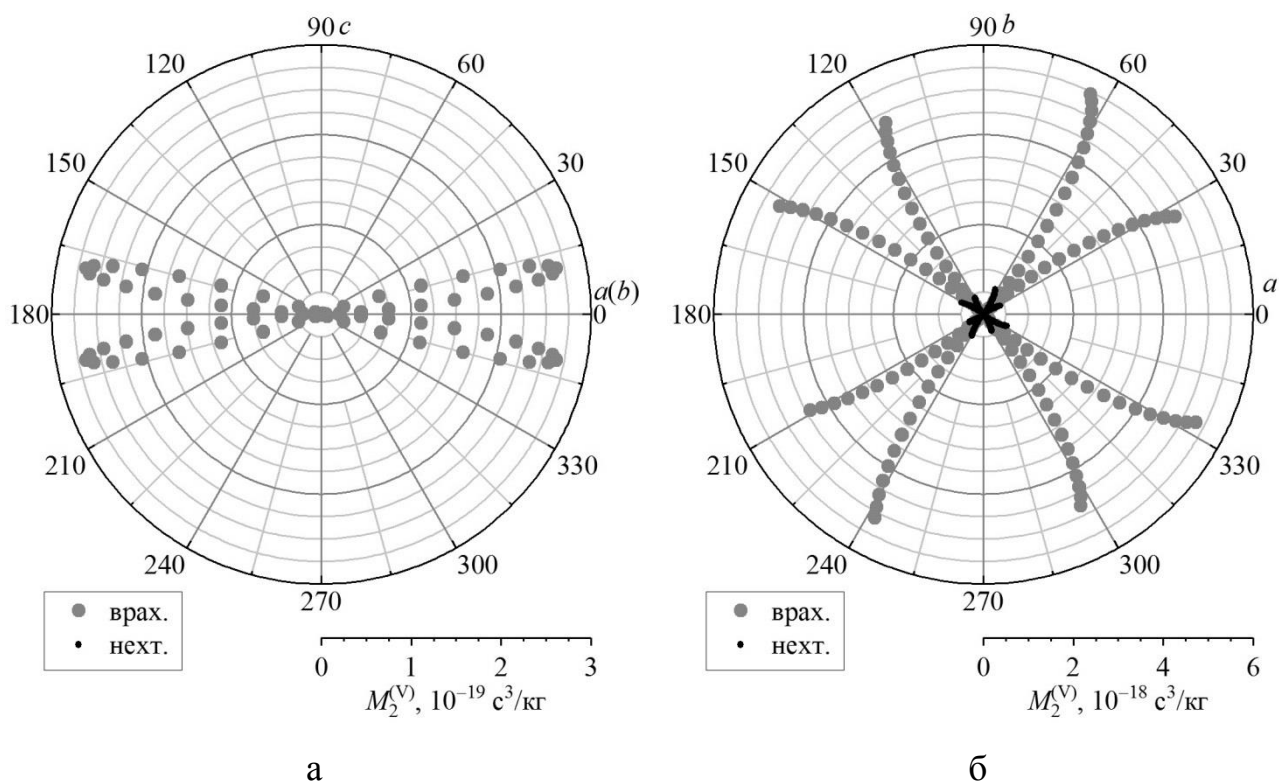


Рисунок 3.26. Залежності КАОЯ від кута θ для типу V АО взаємодії в площинах ac (bc) (а) та ab (б) кристалів $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ [196].

Для типу VI АО взаємодії в кристалах $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ (Рисунок 3.27) в площині ab ЕПОК для кристалів $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ дорівнює нулю, якщо нехтувати неортогональністю АХ – тобто, за цієї умови такий тип взаємодій в площині ab є неможливим. Однак при врахуванні неортогональності АХ тип VI АО взаємодії в площині ab може бути реалізований в кутових областях $27^\circ < \theta < 63^\circ$, $117^\circ < \theta < 153^\circ$, $207^\circ < \theta < 243^\circ$ та $297^\circ < \theta < 333^\circ$. Максимум КАОЯ ($1,12 \times 10^{-17} \text{ c}^3/\text{кг}$) в площині ab досягається при $\theta = 28^\circ, 62^\circ, 118^\circ, 152^\circ, 208^\circ, 242^\circ, 298^\circ$ та 332° . В площині ac (bc) тип VI АО взаємодії може реалізовуватися в кутових областях $339^\circ < \theta < 21^\circ$ та $159^\circ < \theta < 201^\circ$. В такому випадку максимум КАОЯ ($0,97 \times 10^{-16} \text{ c}^3/\text{кг}$) досягається при $\theta = 20^\circ, 160^\circ, 200^\circ$ та 340° ; причому врахування неортогональності АХ не впливає на величину КАОЯ.

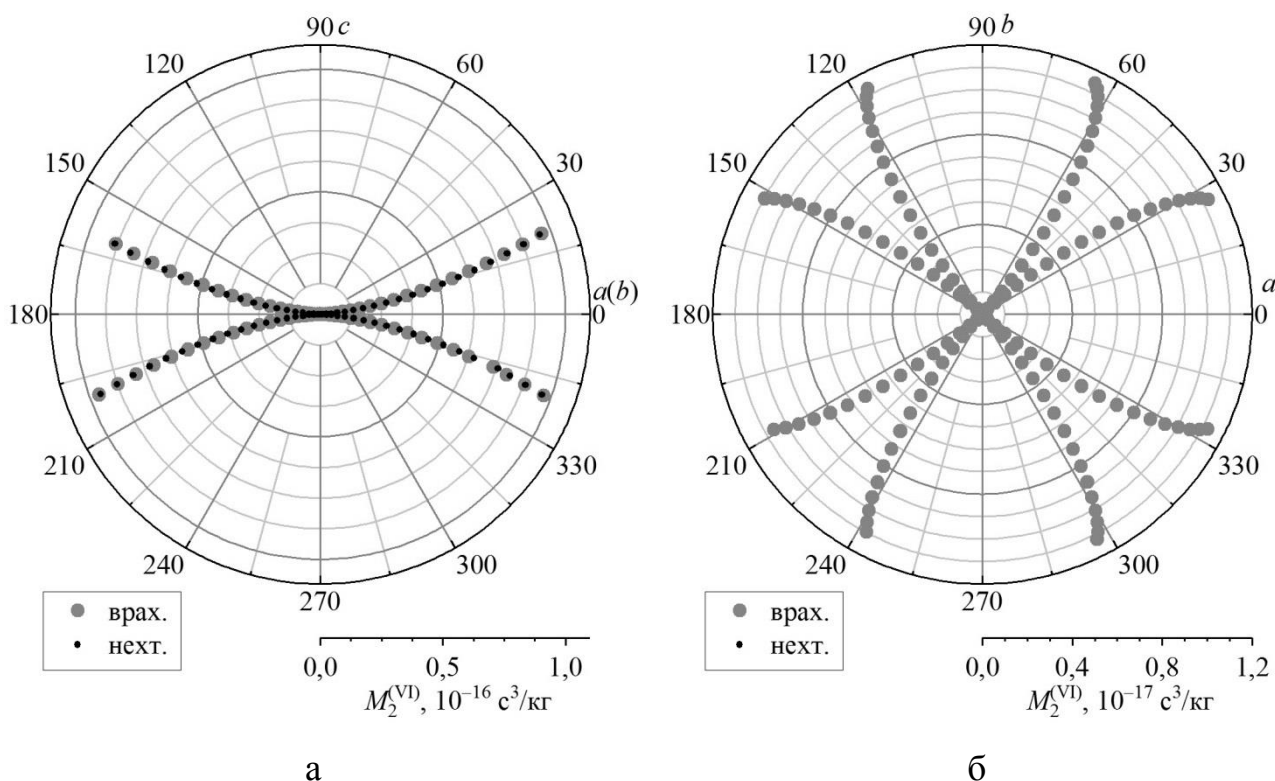


Рисунок 3.27. Залежності КАОЯ від кута θ для типу VI АО взаємодії в площинах ac (bc) (а) та ab (б) кристалів $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ [196].

Тип I АО взаємодії в кристалах $\alpha\text{-TeO}_2$ (Рисунок 3.28) для площини ac (bc) характеризується максимальним значенням КАОЯ ($33,3 \times 10^{-15} \text{ c}^3/\text{кг}$) при поширенні АХ вздовж осі c . При цьому максимальна різниця значень КАОЯ, розрахованих при врахуванні та нехтуванні неортогональності АХ, спостерігається при $\theta = 38^\circ$. Цей кут майже дорівнює куту, за якого неортогональність АХ досягає найбільшого значення (Рисунок 3.21). Натомість у площині ab максимальне значення КАОЯ ($9,6 \times 10^{-15} \text{ c}^3/\text{кг}$) спостерігається при $\theta = 0^\circ, 90^\circ, 180^\circ$ та 270° .

Для типу II АО взаємодії в кристалах $\alpha\text{-TeO}_2$ (Рисунок 3.29) максимальне значення КАОЯ ($31,2 \times 10^{-15} \text{ c}^3/\text{кг}$) в площині ac (bc) досягається при $\theta = 64^\circ, 116^\circ, 244^\circ$ та 296° . Натомість максимум КАОЯ для площини ab є достатньо малим ($7,8 \times 10^{-16} \text{ c}^3/\text{кг}$) та досягається при $\theta = 45^\circ, 135^\circ, 225^\circ$ та 315° .

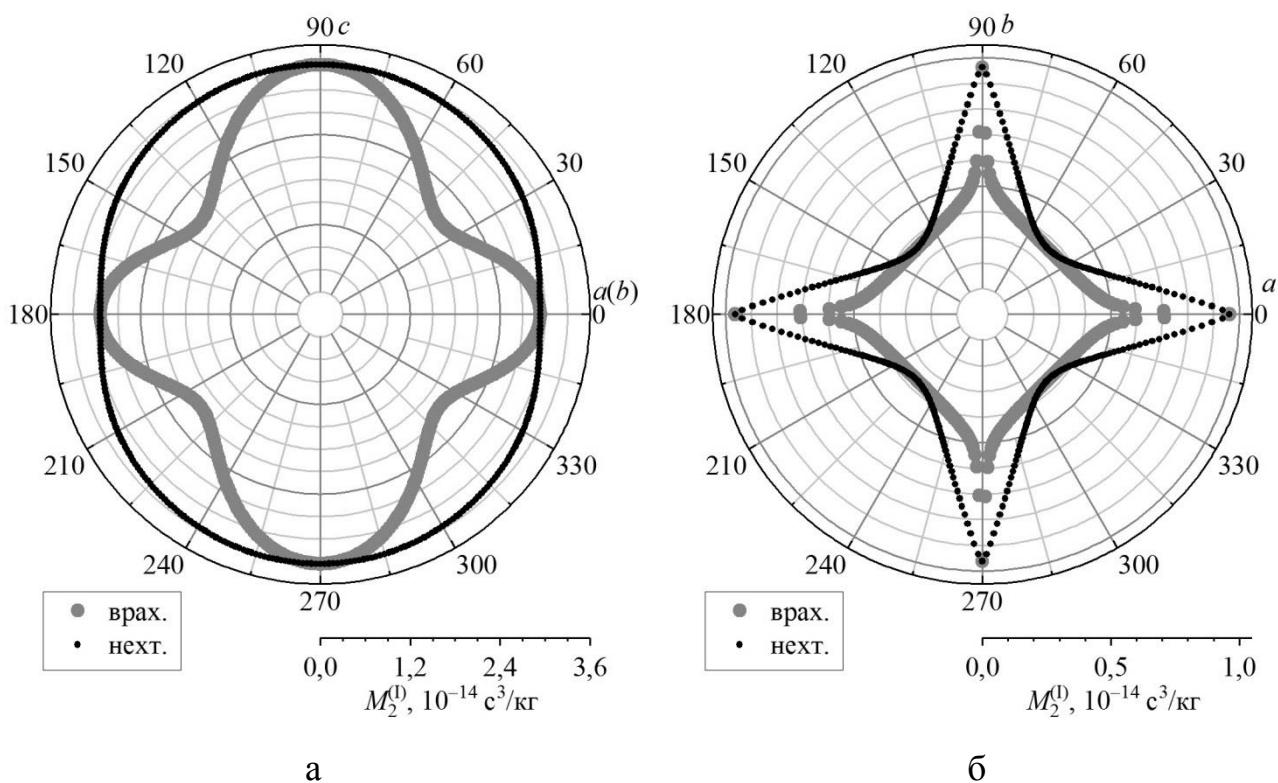


Рисунок 3.28. Залежності КАОЯ від кута θ для типу I АО взаємодії в площинах ac (bc) (а) та ab (б) кристалів α -TeO₂ [196].

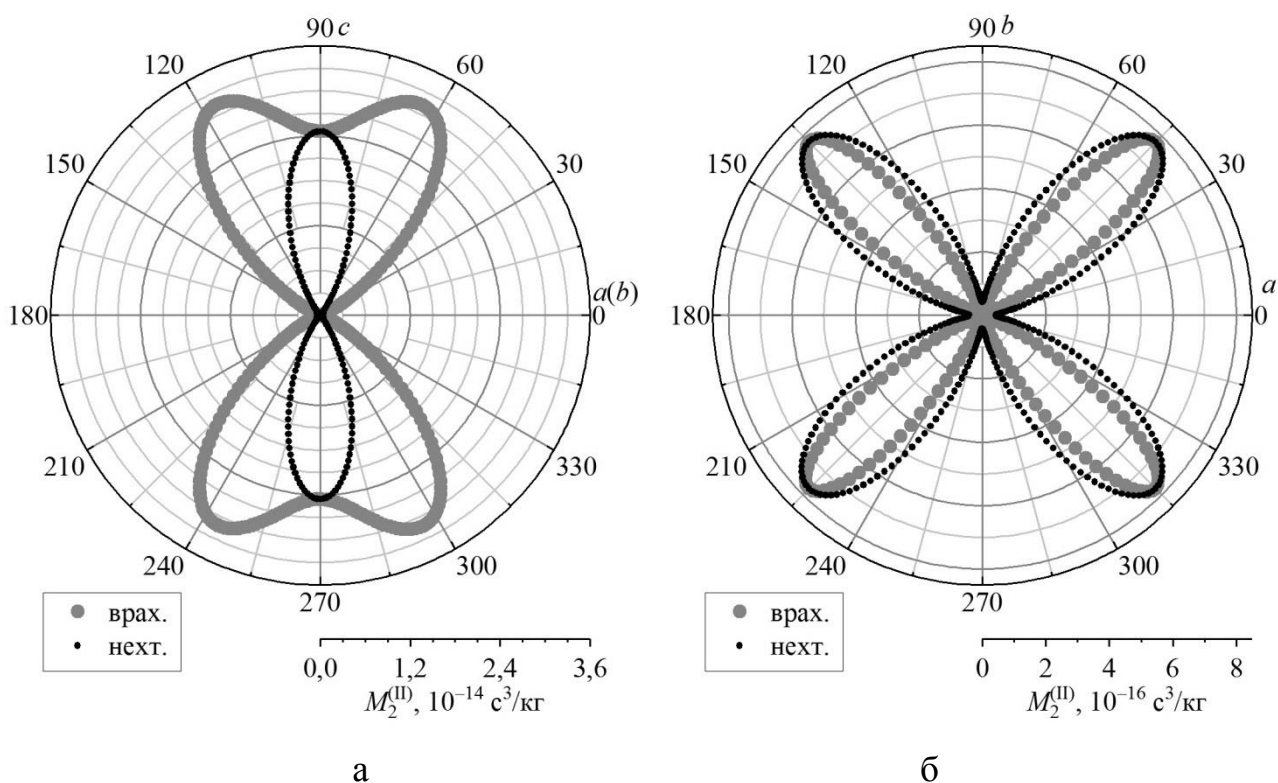


Рисунок 3.29. Залежності КАОЯ від кута θ для типу II АО взаємодії в площинах ac (bc) (а) та ab (б) кристалів α -TeO₂ [196].

Слід зауважити, що для типів I та II АО взаємодії врахування неортогональності АХ призводить до збільшення величини КАОЯ лише у випадку типу II АО взаємодії у площині ac (bc).

Для типу III АО взаємодії в кристалах α -TeO₂ (Рисунок 3.30) в площині ac (bc) максимальне значення КАОЯ ($3,6 \times 10^{-15}$ с³/кг) при врахуванні неортогональності АХ досягається при $\theta = 42^\circ, 138^\circ, 222^\circ$ та 318° . Натомість в площині ab максимальне значення КАОЯ ($2,7 \times 10^{-15}$ с³/кг) при врахуванні неортогональності АХ досягається при $\theta = 55^\circ, 145^\circ, 235^\circ$ та 325° . Необхідно зазначити, що в обох цих випадках врахування неортогональності АХ призводить до зменшення КАОЯ.

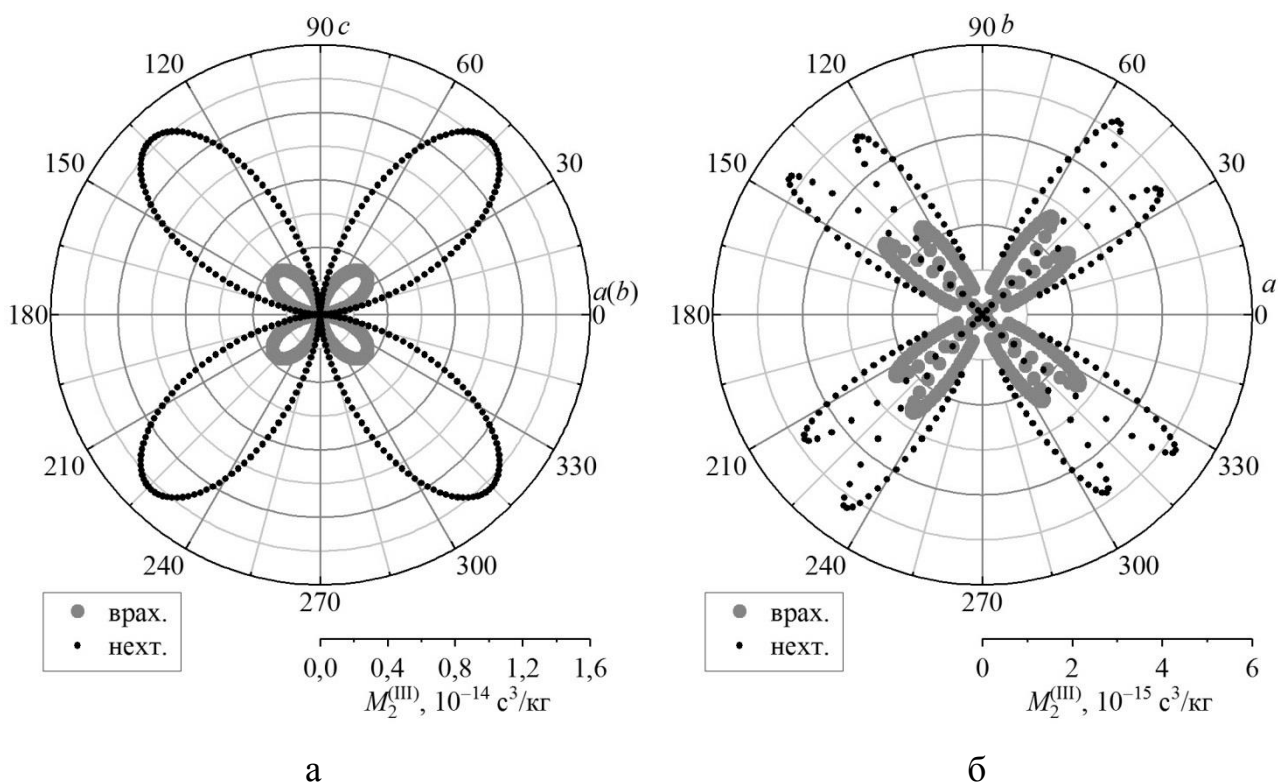


Рисунок 3.30. Залежності КАОЯ від кута θ для типу III АО взаємодії в площинах ac (bc) (а) та ab (б) кристалів α -TeO₂ [196].

У випадку типу IV АО взаємодії в кристалах α -TeO₂ (Рисунок 3.31) в площині ac (bc) максимум КАОЯ ($71,6 \times 10^{-15}$ с³/кг) при врахуванні неортогональності АХ досягається при $\theta = 61^\circ, 119^\circ, 241^\circ$ та 299° . В свою

чергу, для площини ab тип IV АО взаємодії характеризується значно меншим максимальним значенням КАОЯ ($9,3 \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$), яке досягається при $\theta = 33^\circ, 57^\circ, 123^\circ, 147^\circ, 213^\circ, 237^\circ, 303^\circ$ та 327° . Причому тип IV АО взаємодії в площині ab стає можливим лише за умови врахування неортогональності АХ.

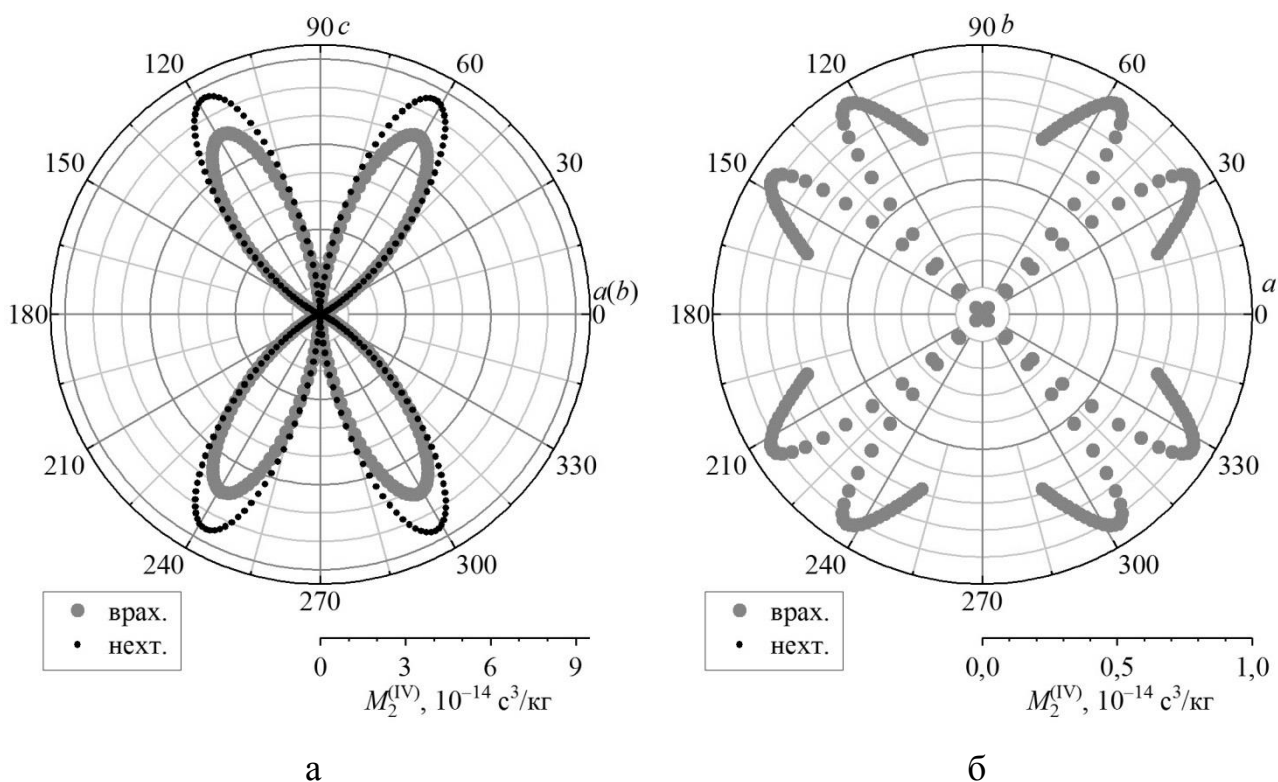


Рисунок 3.31. Залежності КАОЯ від кута θ для типу IV АО взаємодії в площинах ac (bc) (а) та ab (б) кристалів $\alpha\text{-TeO}_2$ [196].

Реалізація типів V та VI АО взаємодії для кристалів $\alpha\text{-TeO}_2$ в площині ac (bc) є неможливою. В свою чергу, в площині ab тип V АО взаємодії характеризується максимумом КАОЯ ($0,54 \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$) при врахуванні неортогональності АХ, який досягається при $\theta = 72^\circ, 162^\circ, 252^\circ$ та 342° . Натомість для типу VI АО взаємодії максимальне значення КАОЯ ($6,7 \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$) при врахуванні неортогональності АХ досягається при $\theta = 18^\circ, 72^\circ, 108^\circ, 162^\circ, 198^\circ, 252^\circ, 288^\circ$ та 342° (Рисунок 3.32). Зазначимо, що в площині ab при нехтуванні неортогональністю АХ тип VI АО взаємодії стає неможливим.

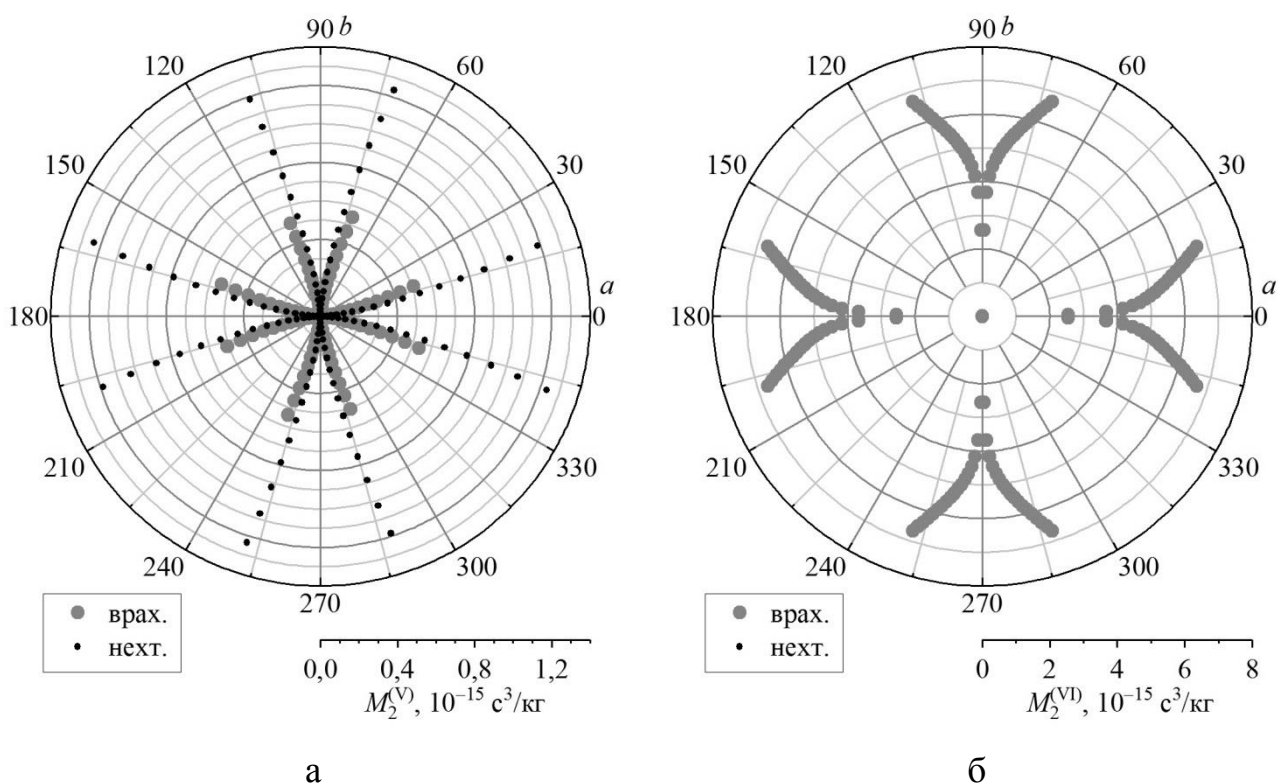


Рисунок 3.32. Залежності КАОЯ від кута θ для типів V (а) та VI (б) АО взаємодії в площині ab кристалів $\alpha\text{-TeO}_2$ [196].

Таблиця 3.10. Максимальні значення КАОЯ, розраховані для різних типів ізотропних АО взаємодій в кристалах $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ та $\alpha\text{-TeO}_2$ при врахуванні неортогональності поляризацій власних АХ [196].

Тип АО взаємодії	$\theta, ^\circ$		Площина АО взаємодії		$M_2, 10^{-15} \text{ c}^3/\text{кг}$	
	$\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$	$\alpha\text{-TeO}_2$	$\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$	$\alpha\text{-TeO}_2$	$\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$	$\alpha\text{-TeO}_2$
I	90, 270	90, 270	ac, bc	ac, bc	3,4	33,3
II	45, 135, 225, 315	64, 116, 244, 296	ab	ac, bc	1,7	31,2
III	90, 270	42, 138, 222, 318	ac, bc	ac, bc	0,8	3,6
IV	90, 270	61, 119, 241, 299	ac, bc	ac, bc	0,37	71,6
V	62, 152, 242, 332	72, 162, 252, 342	ab	ab	0,0055	0,54
VI	20, 160, 200, 340	18, 72, 108, 162, 198, 252, 288, 342	ac, bc	ab	0,097	6,7

Глобальний максимум КАОЯ у випадку ізотропних АО взаємодій в кристалах $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ дорівнює $3,4 \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$. Він досягається для типу I АО взаємодії у кристалографічній площині ac (bc) (Таблиця 3.10). При цьому необхідно зазначити, що врахування неортогональності поляризацій власних АХ не змінює типу АО взаємодії, при якому досягається максимум КАОЯ, як й величини самого максимуму. Так, в роботі [189], за умови нехтування неортогональністю поляризацій власних АХ, максимальне значення КАОЯ ($3,4 \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$) було виявлено у випадку типу I АО взаємодії. Й, нарешті, глобальний максимум КАОЯ у випадку ізотропних АО взаємодій в кристалах $\alpha\text{-TeO}_2$, $71,6 \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$, досягається для типу IV АО взаємодії у кристалографічній площині ac (bc).

3.2.3. Кристали TlInSe_2

Основні оптичні характеристики кристалів TlInSe_2 наведені в параграфі 2.2.1. Швидкості АХ v_{ij} в кристалах TlInSe_2 вимірювалися ехо-імпульсним методом (Рисунок 3.3) [180]. В свою чергу, коефіцієнти жорсткості C_{ij} в кристалах TlInSe_2 розраховувалися з використанням швидкостей АХ v_{ij} , визначених експериментально, за наступними формулами, отриманими з рівняння Крістоффеля (3.30):

$$\begin{aligned} C_{11} &= \rho v_{11}^2, \quad C_{33} = \rho v_{33}^2, \quad C_{44} = \rho v_{23}^2, \\ C_{66} &= \rho v_{12}^2, \quad C_{12} = 2(\rho v_{66}^2 - C_{66}) - C_{11}, \\ C_{13} &= ((C_{11} - 2\rho v_{55}^2 + C_{44})(C_{33} - 2\rho v_{55}^2 + C_{44}))^{1/2} - C_{44}, \end{aligned} \quad (3.86)$$

де $\rho = 6460 \text{ кг/м}^3$ – густина кристалів TlInSe_2 ; v_{ij} – швидкості АХ (i – напрямок поширення АХ, j – напрямок поляризації АХ). В свою чергу, коефіцієнти пружної податливості S_{ij} в кристалах TlInSe_2 розраховувалися, виходячи з матриці коефіцієнтів жорсткості C_{ij} та формул

$$\begin{aligned}
S_{11} = S_{22} &= \frac{C_{11}C_{33} - C_{13}^2}{C_{33}C_{11}^2 - 2C_{11}C_{13}^2 - C_{33}C_{12}^2 + 2C_{12}C_{13}^2}, \\
S_{12} &= -\frac{C_{12}C_{33} - C_{13}^2}{C_{33}C_{11}^2 - 2C_{11}C_{13}^2 - C_{33}C_{12}^2 + 2C_{12}C_{13}^2}, \\
S_{13} = S_{23} &= -\frac{C_{13}}{C_{11}C_{33} - 2C_{13}^2 + C_{12}C_{33}}, \quad S_{66} = \frac{1}{C_{66}}, \\
S_{33} &= \frac{C_{11} + C_{12}}{C_{11}C_{33} - 2C_{13}^2 + C_{12}C_{33}}, \quad S_{55} = S_{44} = \frac{1}{C_{44}}.
\end{aligned} \tag{3.87}$$

Кути орієнтації вектора зміщення QL AX ζ_i в кристалах TlInSe₂, аналогічно до кристалів Li₂B₄O₇ та α -TeO₂, визначаються зі співвідношень (3.84) та (3.85); причому зауваження щодо позначень в таких формулах та їхнього застосування у випадку QT AX викладені у параграфі 3.2.2. Натомість кут зносу (а саме, кут між напрямком акустичної групової швидкості та хвильовим вектором AX) Δ_i розраховується за формулою [198]

$$\Delta_i = \arctg\left(\frac{1}{v(\theta_i)} \frac{\partial v(\theta_i)}{\partial \theta_i}\right), \tag{3.88}$$

де $v(\theta_i)$ – швидкість AX.

Експериментально визначені швидкості QL AX в кристалах TlInSe₂ мають помірну величину; натомість швидкості QT AX, які поширюються вздовж головних кристалографічних осей, не перевищують 1356 м/с (Таблиця 3.11). Такі величини швидкостей AX зумовлюють високий КАОЯ для кристалів TlInSe₂, оскільки $M_2 \sim v^{-3}$ згідно зі співвідношенням (3.3).

Аналізуючи розраховані матриці коефіцієнтів жорсткості C_{ij} та пружної податливості S_{ij} (Таблиця 3.11), можна зазначити, що кристали TlInSe₂ найбільш податливі щодо напружень зсуву σ_4 , σ_5 та σ_6 , оскільки коефіцієнти $S_{44} = S_{55}$ та S_{66} є більшими, ніж інші коефіцієнти пружної податливості.

Таблиця 3.11. Експериментально визначені швидкості v_{ij} та розраховані коефіцієнти жорсткості C_{ij} й пружної податливості S_{ij} для кристалів TlInSe_2 [158].

ij	v_{ij} , м/с	ij	C_{ij} , 10^{10} Па	S_{ij} , 10^{-11} Па $^{-1}$
11, 22	2553 ± 25	11	$42,11 \pm 0,45$	$26,41 \pm 0,53$
33	3596 ± 30	33	$83,54 \pm 0,69$	$12,40 \pm 0,19$
55	2838 ± 25	12	$12,59 \pm 0,98$	$-7,47 \pm 0,77$
66	2444 ± 20	13	$8,93 \pm 1,61$	$-2,03 \pm 0,39$
12, 21	1319 ± 12	44, 55	$11,88 \pm 0,22$	$84,19 \pm 1,52$
23	1356 ± 15	66	$11,24 \pm 0,21$	$88,98 \pm 1,69$

Надалі, використовуючи матрицю коефіцієнтів жорсткості C_{ij} та рівняння Крістоффеля (3.30), для кристалів TlInSe_2 можна побудувати перерізи поверхонь швидкостей АХ головними кристалографічними площинами (Рисунок 3.33).

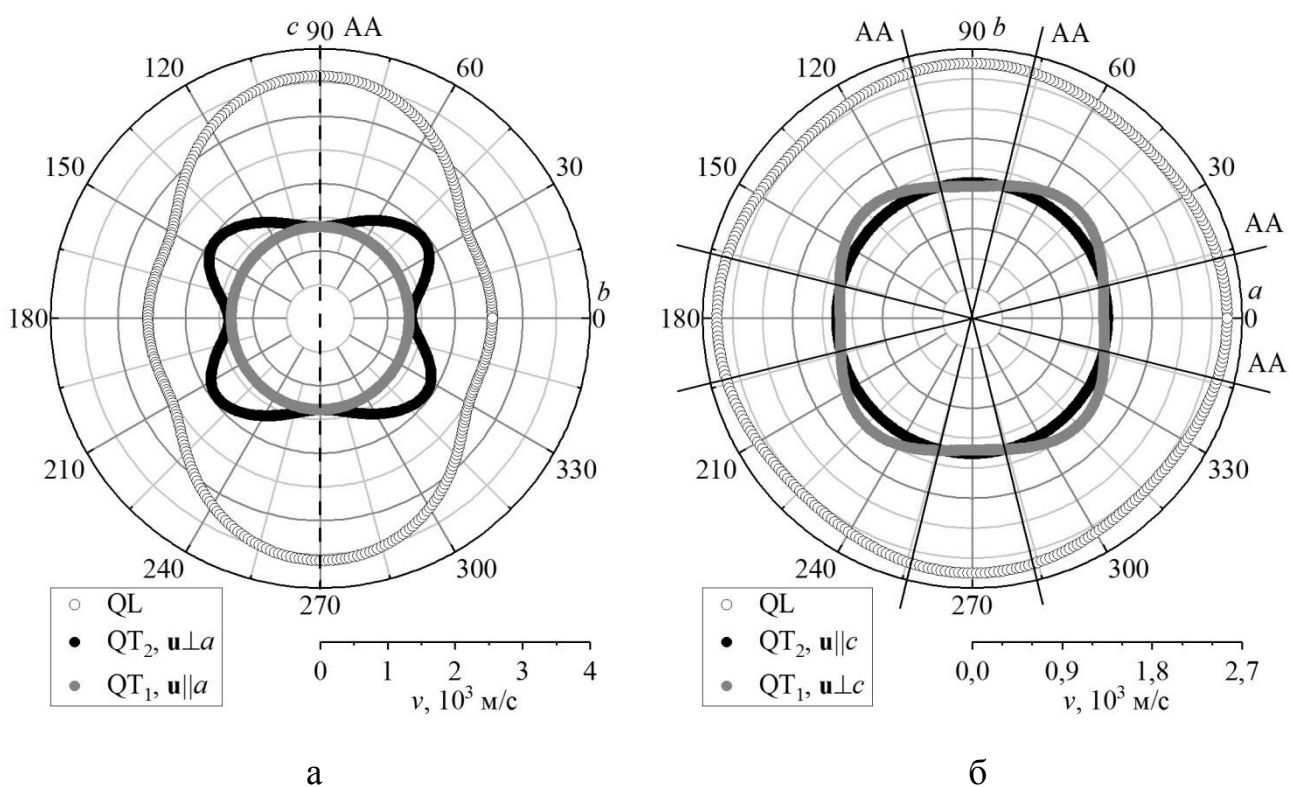


Рисунок 3.33. Перерізи поверхонь швидкостей АХ площинами bc (а) та ab (б) для кристалів TlInSe_2 [158].

Як можна бачити, у площині bc лише швидкість QT_1 АХ не залежить від напрямку поширення; натомість в площині ab усі власні АХ не виявляють значної анізотропії швидкостей. Мінімальна швидкість для QL АХ (2444 м/с) досягається у випадку, коли QL АХ поширюється в напрямку бісектриси між кристалографічними осями a та b . В свою чергу, мінімальна швидкість для QT_1 АХ та QT_2 АХ (1356 м/с) досягається, відповідно, у випадку, коли QT_1 АХ поширюється в довільному напрямку в площині bc та QT_2 АХ поширюється в довільному напрямку в площині ab . Кристали $TlInSe_2$ мають п'ять акустичних осей; причому одна з цих акустичних осей паралельна кристалографічній осі c , яка є оптичною віссю цього кристалу, а чотири інші акустичні осі лежать в площині ab під кутами 14° , 76° , 104° та 166° відносно осі a .

У площині bc кут Δ_1 для QT_2 АХ та QL АХ набуває достатньо високих значень (Рисунок 3.34). Так, цей кут становить $40,7^\circ$ у випадку, коли хвильовий вектор QT_2 АХ утворює кут $\theta_1 = 18^\circ$ з віссю b . Коли кут орієнтації хвильового вектора QL АХ θ_1 становить 45° відносно осі b в площині bc , кут Δ_1 дорівнює $28,6^\circ$. Натомість для QT_1 АХ кути Δ_1 у площині bc не перевищують $1,5^\circ$.

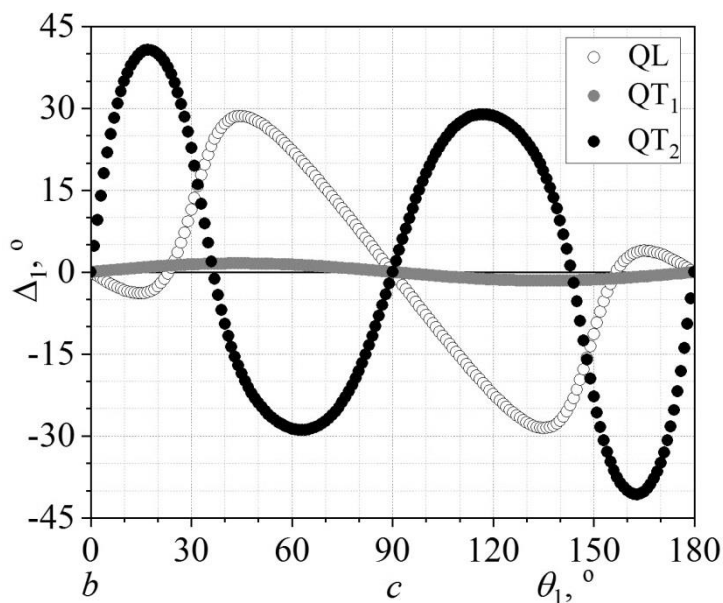


Рисунок 3.34. Залежності $\Delta_i = \Delta_i(\theta_i)$ у площині bc для кристалів $TlInSe_2$ [158].

Водночас QT_1 AX характеризується достатньо великим кутом Δ_3 у площині ab (Рисунок 3.35) – зміна цього кута становить $+15,2^\circ$ для орієнтацій хвильового вектора AX, визначених кутами 23° та 69° відносно осі a . Й, нарешті, кути Δ_3 для QL AX у площині ab є достатньо малими ($\sim 5^\circ$), тоді як для QT_2 AX кут Δ_3 у цій площині дорівнює нулю.

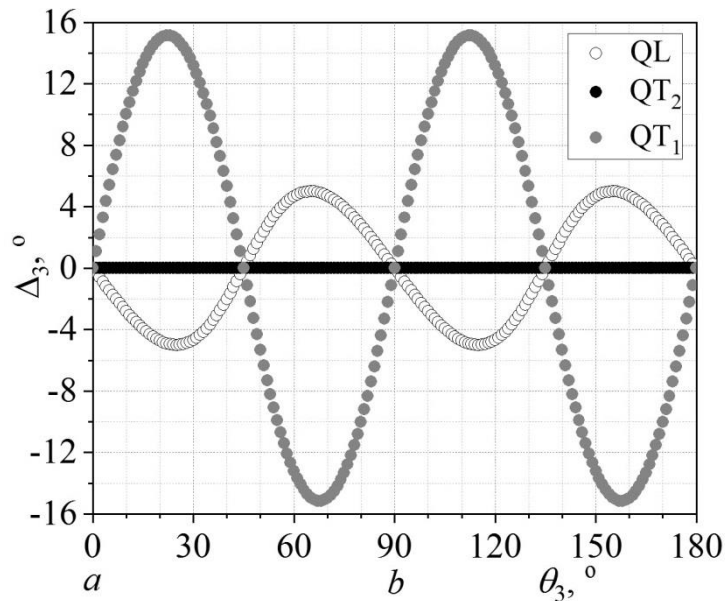
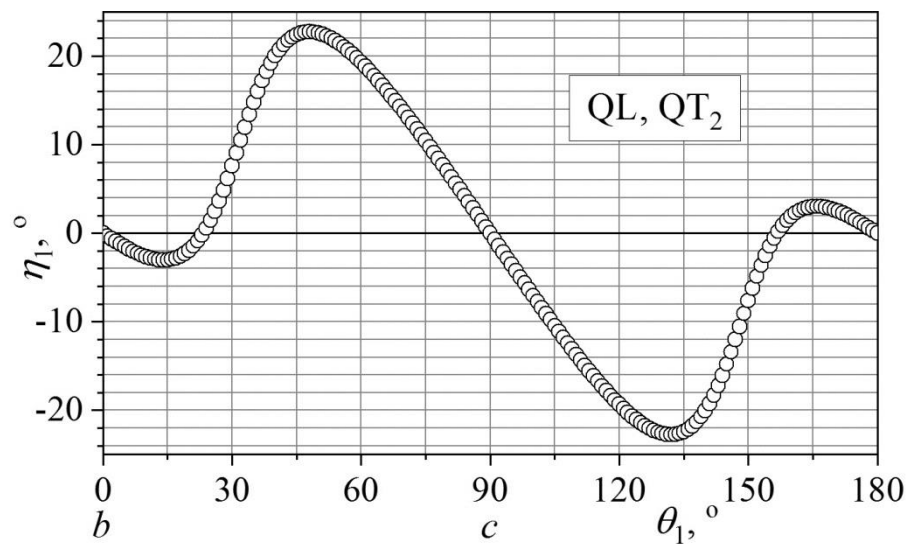


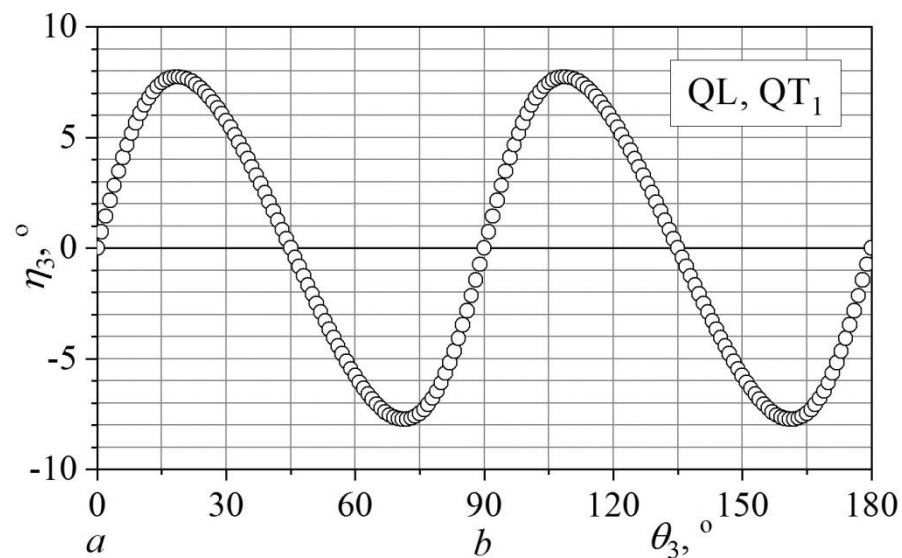
Рисунок 3.35. Залежності $\Delta_i = \Delta_i(\theta_i)$ у площині ab для кристалів TlInSe₂ [158].

Як можна бачити (Рисунок 3.36), кут η_1 досягає екстремального значення $\pm 22,8^\circ$ в площині bc , коли хвильовий вектор AX орієнтований під кутом $\theta_1 = 48^\circ$ відносно осі b в площині bc (для QL AX та QT_2 AX). Натомість екстремальне значення $\eta_3 = \pm 7,7^\circ$, коли хвильовий вектор AX орієнтований під кутами θ_3 , що дорівнюють 19° або 71° відносно осі a в площині ab (для QL AX та QT_1 AX).

Кути Δ_i (3.88) та η_i (3.83) характеризують ступінь анізотропії кристалів TlInSe₂. Наприклад, у так званому ізотропному наближенні ($C_{11} = C_{33}$, $C_{12} = C_{13}$, $C_{44} = C_{66} = (C_{11} - C_{12})/2$) вони стають нульовими.



а



б

Рисунок 3.36. Залежності $\eta_i = \eta_i(\theta_i)$ у площинах bc (а) та ab (б) для кристалів TlInSe_2 [158].

На жаль, дані для ПО коефіцієнтів p_{ij} кристалів TlInSe_2 при $\lambda = 1,15$ мкм відсутні в науковій літературі. Тим не менше, можна скористатися даними для КАОЯ з роботи [119] ($M_2 = 156,0 \times 10^{-15}$ с³/кг при $\lambda = 1,15$ мкм), які відповідають ізотропній АО взаємодії з поздовжньою АХ, що поширюється вздовж осі b зі швидкістю $v_{22} = 2480$ м/с (тип (1) АО взаємодії, Рисунок 3.37), та визначити ПО коефіцієнт $p_{11} = p_{22}$ за формулою $|p_{22}| = (\rho M_2 v_{22}^3 / n_0^6)^{1/2}$, яка отримується зі співвідношення (3.3). Згідно з цією формулою, $|p_{22}| \approx 0,15$.

Як зазначалося вище, найповільніша QL AX (2444 м/с) в кристалах TlInSe₂ поширюється вздовж бісектриси осей a та b у площині ab (тип (2) АО взаємодії, Рисунок 3.37). Нехтуючи малим кутом Бреґґа, ЕПОК для цього типу АО взаємодії можна записати як $p_{eff} = (p_{11} + p_{12} + 2p_{66})/2$. Використовуючи ізотропне наближення та припускаючи, що $p_{66} \approx (p_{11} - p_{12})/2$, знаходимо, що $p_{eff} = p_{11}$. В цьому випадку отримується дещо вище значення КАОЯ ($M_2 = 170 \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$), аніж в роботі [119], з огляду на те, що швидкість QL AX є меншою. Однак для більш надійного аналізу анізотропії КАОЯ необхідно знати всі компоненти ПО тензора кристалів TlInSe₂ при $\lambda = 1,15 \text{ мкм}$.

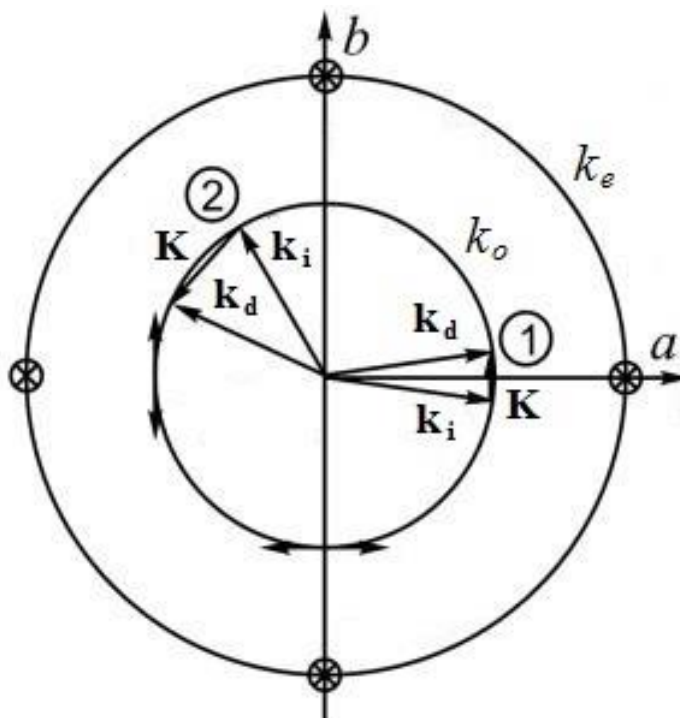


Рисунок 3.37. Схематична діаграма ізотропної АО взаємодії при поширенні QL AX вздовж осі b (1) та вздовж бісектриси осей a і b у площині ab (2) в кристалах TlInSe₂. $k_o = 2\pi n_o/\lambda$ та $k_e = 2\pi n_e/\lambda$ – відповідно перерізи вказівних поверхонь хвильових векторів для звичайної та незвичайної оптичних хвиль. Двосторонні стрілки та перехрещені кола – напрямки поляризації оптичних хвиль. k_i , k_d , K – відповідно хвильові вектори падаючої й дифрагованої оптичних хвиль та AX [158].

3.2.4. Кристали $\gamma_1-(\text{Ga}_{0.3}\text{In}_{0.7})_2\text{Se}_3$

Сполука $\gamma_1-(\text{Ga}_x\text{In}_{1-x})_2\text{Se}_3$ є широкозонним напівпровідниковим твердим розчином, що кристалізується в гексагональній вюрцитоподібній γ_1 -фазі системи $\text{Ga}_2\text{Se}_3 - \text{In}_2\text{Se}_3$. Кристали $\gamma_1-(\text{Ga}_x\text{In}_{1-x})_2\text{Se}_3$ описуються точковою групою симетрії 6 (просторові групи симетрії $P6_1$ або $P6_5$) при $0,02 < x < 0,55$; причому при збільшенні молярної частки Ga_2Se_3 від 0,05 до 0,49 параметри елементарної комірки цих кристалів зменшуються від $a = 7,10 \text{ \AA}$, $c = 19,30 \text{ \AA}$ до $a = 6,92 \text{ \AA}$, $c = 18,85 \text{ \AA}$ відповідно [199]. Оптична заборонена псевдозона E_g^* в кристалах $\gamma_1-(\text{Ga}_x\text{In}_{1-x})_2\text{Se}_3$ зростає зі збільшенням концентрації Ga x від 2,160 еВ для $x = 0,1$ до 2,344 еВ для $x = 0,4$ [200]. Край оптичного поглинання в кристалах $\gamma_1-(\text{Ga}_{0.3}\text{In}_{0.7})_2\text{Se}_3$ при низьких рівнях поглинання формується непрямыми міжзонними оптичними переходами [201]; причому з підвищенням температури від 77 до 300 К край оптичного поглинання зміщується в бік більших довжин хвиль, а лінійний дихроїзм проявляється у більшому поглинанні незвичайної оптичної хвилі порівняно зі звичайною [202].

Основні оптичні властивості кристалів $\gamma_1-(\text{Ga}_x\text{In}_{1-x})_2\text{Se}_3$ вивчено більш досконально. Так, зокрема, дисперсія показників заломлення цих кристалів була детально розглянута в роботі [202], де було отримано, що для кристалів $\gamma_1-(\text{Ga}_{0.3}\text{In}_{0.7})_2\text{Se}_3$ $n_o = 2,90$ та $n_e = 2,95$ на довжині оптичної хвилі $\lambda = 632,8 \text{ нм}$. Крім того, було досліджено низку температурних та композиційних перетворень кристалів $\gamma_1-(\text{Ga}_x\text{In}_{1-x})_2\text{Se}_3$ [200].

Найбільш характерною властивістю кристалів $\gamma_1-(\text{Ga}_x\text{In}_{1-x})_2\text{Se}_3$ ($x = 0,1 - 0,4$), яка є суттєвою в аспекті цього дисертаційного дослідження, є їхня відносно висока природна оптична активність – так, зокрема, для кристалів $\gamma_1-(\text{Ga}_{0.3}\text{In}_{0.7})_2\text{Se}_3$ при поширенні світла з довжиною $\lambda = 632,8 \text{ нм}$ вздовж оптичної осі вона дорівнює $1,03 \times 10^5$ °/м, що більш ніж у п'ять разів перевищує природну оптичну активність кристалів $\alpha\text{-SiO}_2$ [203].

Експериментальні дослідження АО властивостей кристалів $\gamma_1-(\text{Ga}_{0.3}\text{In}_{0.7})_2\text{Se}_3$, проведені в роботі [204], показали, що ці кристали є

високоєфективним АО матеріалом: КАОЯ кристалів $\gamma_1-(\text{Ga}_{0,3}\text{In}_{0,7})_2\text{Se}_3$ при $\lambda = 632,8$ нм у випадку колінеарної АО взаємодії дорівнює $445 \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$, $183 \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$, $165 \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$ для напрямків X , Y , Z відповідно ($X(1) \parallel [2\bar{1}\bar{1}0]$, $Y(2) \parallel [01\bar{1}0]$, $Z(3) \parallel [0001]$). Однак ці результати потребують додаткової перевірки з огляду на відсутність в роботі [204] будь-якої інформації щодо ПО коефіцієнтів та достатньо близькі значення швидкостей поздовжньої (~ 1600 м/с) і поперечної (~ 1200 м/с) АХ. Зауважимо також, що п'єзооптичний ефект у кристалах $\gamma_1-(\text{Ga}_{0,3}\text{In}_{0,7})_2\text{Se}_3$ вивчений лише частково й жодних окремих компонент їхнього п'єзооптичного тензора не визначено [205]. Вищевказані обставини зумовлюють доцільність подальших комплексних досліджень АО властивостей кристалів $\gamma_1-(\text{Ga}_{0,3}\text{In}_{0,7})_2\text{Se}_3$.

Зразки кристалів $\gamma_1-(\text{Ga}_{0,3}\text{In}_{0,7})_2\text{Se}_3$, що використовувалися для досліджень, мали форму паралелепіпедів. При цьому їхні грані були:

- зразок 1: перпендикулярні до осей X , Y і Z ;
- зразок 2: перпендикулярні до осі X та діагоналі осей Y і Z ;
- зразок 3: перпендикулярні до осі Y та діагоналі осей X і Z .

Середні розміри вищевказаних зразків становили $5 \times 5 \times 5 \text{ мм}^3$.

Швидкості АХ v_{ij} в кристалах $\gamma_1-(\text{Ga}_{0,3}\text{In}_{0,7})_2\text{Se}_3$ визначалися експериментально ехо-імпульсним методом [180] при температурі $T = 293 \text{ К}$ (Рисунок 3.4). Оскільки досліджувані кристали належать до гексагональної точкової групи симетрії 6, їхній тензор жорсткості містить 5 ненульових незалежних компонент. Швидкості АХ v_{ij} , які включають в себе п'єзоелектричні внески, та коефіцієнти жорсткості C_{ij} пов'язані між собою співвідношеннями [206]

$$\begin{aligned} C_{11} &= C_{22} = \rho v_{11}^2 = \rho v_{22}^2, \quad C_{33} = \rho v_{33}^2, \quad C_{12} = C_{11} - 2C_{66}, \\ C_{44} &= C_{55} = \rho v_{32}^2 = \rho v_{31}^2, \quad C_{66} = \rho v_{12}^2 = \rho v_{21}^2, \\ C_{13} &= 0,5((2\rho v_{44}^2 - 2\rho v_{44}^2)^2 - (C_{33} - C_{11})^2)^{1/2} - C_{44}, \end{aligned} \quad (3.89)$$

де $\rho = 5440 \text{ кг/м}^3$ [204] є густиною кристалу $\gamma_1\text{-(Ga}_{0,3}\text{In}_{0,7})_2\text{Se}_3$.

Для кристалів точкової групи симетрії 6 кути орієнтації вектора зміщення QL AX $\zeta_{1,2}$, розраховані з використанням тензора Крістоффеля (3.31) [207], дорівнюють

$$\zeta_{1,2} = \frac{1}{2} \arctg \left(\frac{(C_{13} + C_{44}) \sin 2\theta_{1,2}}{(C_{11} - C_{44}) \cos^2 \theta_{1,2} + (C_{44} - C_{33}) \sin^2 \theta_{1,2}} \right); \quad (3.90)$$

причому зауваження щодо позначень в таких формулах та їхнього застосування у випадку QT AX викладені у параграфі 3.2.2. Натомість кути зносу AX $\Delta_{1,2}$ для кристалів $\gamma_1\text{-(Ga}_{0,3}\text{In}_{0,7})_2\text{Se}_3$ розраховуються за загальною формулою (3.88).

Таблиця 3.12 містить результати описаних вище експериментальних досліджень та теоретичних розрахунків.

Таблиця 3.12. Експериментально визначені швидкості AX v_{ij} та розраховані коефіцієнти жорсткості C_{ij} й пружної податливості S_{ij} для кристалів $\gamma_1\text{-(Ga}_{0,3}\text{In}_{0,7})_2\text{Se}_3$ [206].

ij	$v_{ij}, \text{ м/с}$	ij	$C_{ij}, 10^{10} \text{ Па}$	$S_{ij}, 10^{-11} \text{ Па}^{-1}$
11, 22	3233±17	11	5,69±0,06	2,29±0,05
33	3150±13	33	5,40±0,05	2,18±0,04
44	3098±22	12	2,49±0,06	-0,85±0,05
12, 21	1713±3	13	1,83±0,08	-0,49±0,03
31, 32	1756±13	44	1,68±0,03	5,96±0,09
41	1718±11	66	1,60±0,01	6,26±0,02
44	1775±8	—	—	—

Як можна бачити, коефіцієнти C_{ij} та S_{ij} задовольняють умовам

$$\begin{aligned} C_{11} &\approx C_{33}, S_{11} \approx S_{33}, C_{44} \approx C_{66}, S_{44} \approx S_{66}, \\ C_{66} &= (C_{11} - C_{12}) / 2, S_{66} = 2(S_{11} - S_{12}), \end{aligned} \quad (3.91)$$

які є характерними для ізотропних твердотільних середовищ.

Надалі, використовуючи матрицю коефіцієнтів жорсткості C_{ij} та рівняння Крістоффеля (3.30), для кристалів $\gamma_1-(\text{Ga}_{0,3}\text{In}_{0,7})_2\text{Se}_3$ можна побудувати перерізи поверхонь швидкостей AX головними кристалофізичними площинами (Рисунок 3.38).

Як можна бачити, QT_1 AX та QT_2 AX в кристалах $\gamma_1-(\text{Ga}_{0,3}\text{In}_{0,7})_2\text{Se}_3$ поширюються з однаковими швидкостями вздовж оптичної осі Z, з огляду на що цей напрямок є акустичною віссю. При цьому швидкості QL AX, QT_1 AX та QT_2 AX у площині XZ (YZ) є майже незмінними – вони представлені квазіколами. Так, наприклад, максимальна різниця швидкостей QL AX, що дорівнює (83 ± 30) м/с, відповідає напрямкам поширення QL AX вздовж осей X (Y) та Z. В свою чергу, максимальна різниця швидкостей QT_1 AX, що дорівнює (114 ± 19) м/с, відповідає напрямкам поширення QT_1 AX вздовж осі X (Y) та під кутом 42° до осі X (Y).

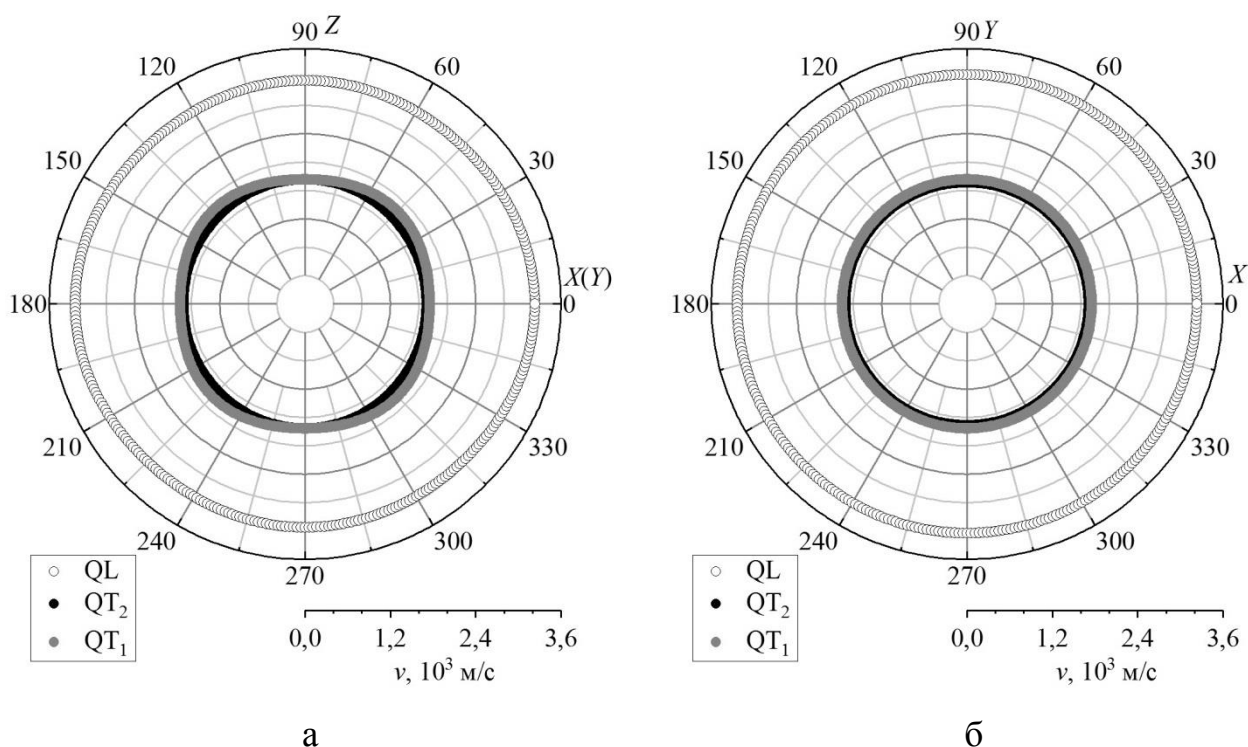


Рисунок 3.38. Перерізи поверхонь швидкостей AX площинами XZ (YZ) (а) та XY (б) для кристалів $\gamma_1-(\text{Ga}_{0,3}\text{In}_{0,7})_2\text{Se}_3$ [206].

У площині XU швидкості $QT_1 AX$ та $QT_2 AX$ майже рівні між собою – різниця між ними становить лише (43 ± 16) м/с. Крім того, в площині XU швидкості $QL AX$, $QT_1 AX$ та $QT_2 AX$ не залежать від напрямку поширення. Цей результат добре узгоджується з тим фактом, що гексагональні кристали являють собою поперечно ізотропне середовище [208].

В гексагональних кристалах може бути два можливих варіанти прояву акустичних осей [188]: (1) конус акустичних осей навколо осі Z є чисто уявним конусом, й тоді єдиною акустичною віссю є вісь Z , або (2) конус акустичних осей навколо осі Z є реальним круговим конусом, вісь якого співпадає з віссю Z , й тоді акустичними осями є напрямок Z та всі напрямки, що лежать на цьому реальному конусі. Кристалам $\gamma_1-(Ga_{0,3}In_{0,7})_2Se_3$ відповідає варіант (1) – тобто, єдина акустична вісь цих кристалів паралельна осі Z . Однак у наближенні, визначеному формулами (3.91), кожен напрямок поширення AX є акустичною віссю, з огляду на дуже малі різниці швидкостей $QT_1 AX$ та $QT_2 AX$.

Кути зносу AX $\Delta_{1,2}$ для кристалів $\gamma_1-(Ga_{0,3}In_{0,7})_2Se_3$ є достатньо малими. Так, зокрема, при поширенні $QT_1 AX$ в площині XZ (YZ) вони досягають екстремальних значень $+5,8^\circ$ при $\theta_{1,2} = 23^\circ$ та $-5,8^\circ$ при $\theta_{1,2} = 68^\circ$. В свою чергу, їхні екстремальні значення при поширенні $QL AX$ в площині XZ (YZ) дорівнюють $-3,0^\circ$ при $\theta_{1,2} = 28^\circ$ та $+3,0^\circ$ при $\theta_{1,2} = 152^\circ$. Натомість екстремальні значення цих кутів при поширенні $QT_2 AX$ в площині XZ (YZ) дорівнюють $+1,4^\circ$ при $\theta_{1,2} = 45^\circ$ та $-1,4^\circ$ при $\theta_{1,2} = 135^\circ$ (Рисунок 3.39). Й, нарешті, ці кути дорівнюють нулю в площині XU .

При поширенні $QL AX$ та $QT_1 AX$ в площині XZ (YZ) кути неортогональності AX $\eta_{1,2}$ (3.83) також є достатньо малими. При цьому вони досягають своїх екстремумів, $+2,2^\circ$ та $-2,2^\circ$, при $\theta_{1,2} = 27^\circ$ та $\theta_{1,2} = 153^\circ$ відповідно (Рисунок 3.40).

Ефективність АО дифракції в кристалах $\gamma_1-(Ga_{0,3}In_{0,7})_2Se_3$ була експериментально досліджена з використанням методу Діксона-Коена [182] (Рисунок 3.4) на довжині хвилі оптичного випромінювання $\lambda = 632,8$ нм в наступних геометріях:

- поширення АХ та оптичної хвилі вздовж осей X, Y, Z ;
- поширення АХ вздовж бісектриси осей $-Y$ і Z та поширення оптичної хвилі вздовж бісектриси осей Y і Z з поляризацією вздовж осі X .

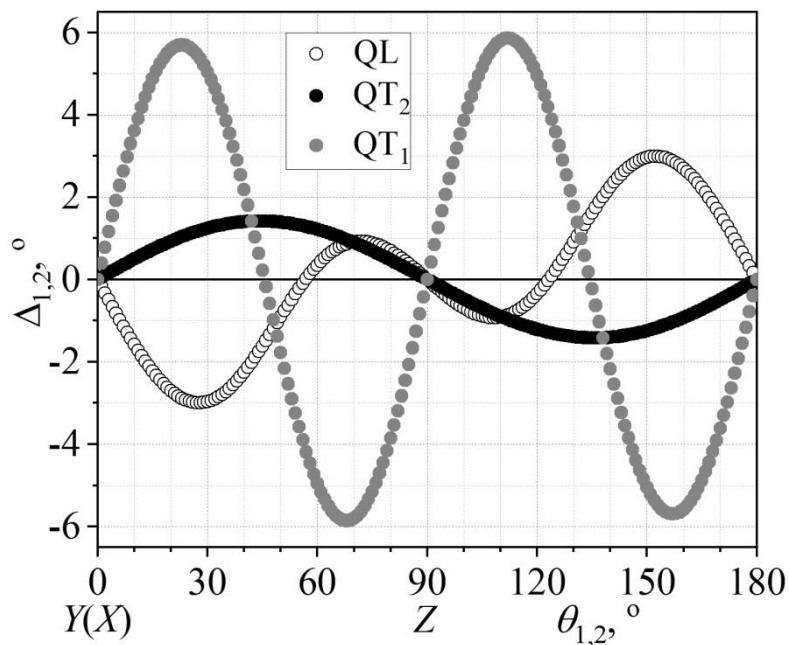


Рисунок 3.39. Залежності $\Delta_i = \Delta_i(\theta_i)$ у площині XZ (YZ) для кристалів γ_1 - $(\text{Ga}_{0,3}\text{In}_{0,7})_2\text{Se}_3$ [206].

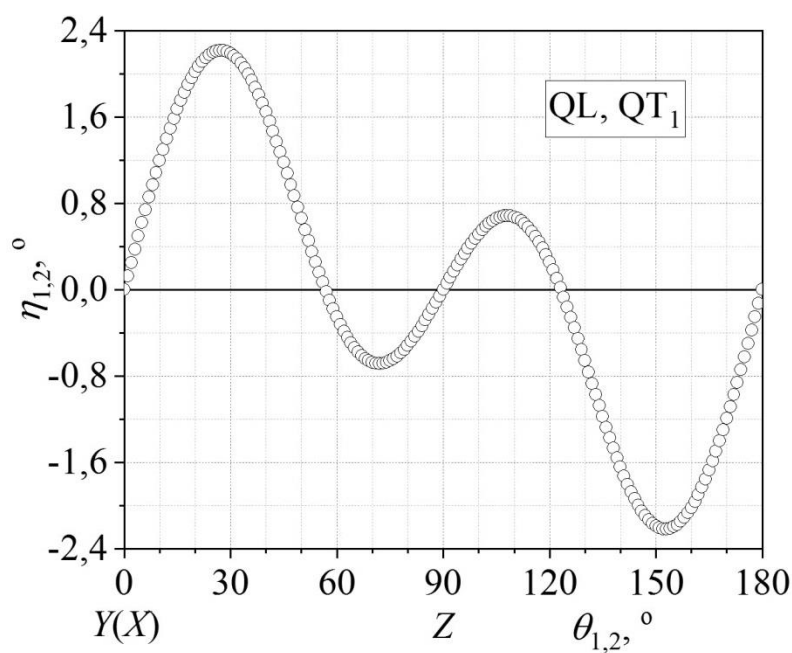


Рисунок 3.40. Залежності $\eta_i = \eta_i(\theta_i)$ у площині XZ (YZ) для кристалів γ_1 - $(\text{Ga}_{0,3}\text{In}_{0,7})_2\text{Se}_3$ [206].

У всіх вищевказаних геометріях в кристалах $\gamma_1-(\text{Ga}_{0,3}\text{In}_{0,7})_2\text{Se}_3$ досліджувалася ізотропна АО дифракція звичайної оптичної хвилі. При цьому було експериментально виміряно ПО коефіцієнти $|p_{11}|$ та $|p_{13}|$, які дорівнюють відповідно $0,105 \pm 0,014$ та $0,072 \pm 0,010$. Надалі за ними були розраховані КАОЯ, які становлять відповідно $(38,6 \pm 0,7) \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$ та $(18,1 \pm 0,3) \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$. При поширенні АХ вздовж бісектриси осей $-Y$ і Z та поширенні оптичної хвилі вздовж бісектриси осей Y і Z з поляризацією вздовж осі X експериментально виміряне значення ЕПОК дорівнює $0,06 \pm 0,01$. В свою чергу, відповідне йому значення КАОЯ становить $(12,6 \pm 0,3) \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$ [206]. З іншого боку, ЕПОК, розрахований за формулою $p_{\text{eff}} = (p_{11} + p_{13})/2$, дорівнює $0,089 \pm 0,024$. Як можна бачити, ця величина близька до значення ЕПОК, виміряного експериментально. Коефіцієнт $p_{12} = p_{21}$ було виміряно при поширенні світла вздовж оптичної осі кристалів $\gamma_1-(\text{Ga}_{0,3}\text{In}_{0,7})_2\text{Se}_3$ – тобто, в тому напрямку, в якому ці кристали демонструють високу природну оптичну активність. Оскільки поляризація дифрагованої оптичної хвилі не контролювалася, невідомо, чи беруть участь у АО взаємодії обидві (права та ліва) циркулярно-поляризовані оптичні хвилі чи лише одна з них. Тим не менше, за умов, згаданих вище, був знайдений ПО коефіцієнт $|p_{12}| = 0,09 \pm 0,03$.

Слід зауважити, що основною проблемою визначення ПО коефіцієнтів в кристалах $\gamma_1-(\text{Ga}_{0,3}\text{In}_{0,7})_2\text{Se}_3$ методом Діксона–Коена було відносно високе оптичне поглинання та лінійний дихроїзм, які виникають на довжині оптичної хвилі $\lambda = 632,8 \text{ нм}$. Саме це зумовило неможливість спостереження АО дифракції, в якій бере участь незвичайна оптична хвиля. З огляду на це, інші компоненти ПО тензора можна визначити лише в області більших довжин оптичної хвилі.

Висновки до Розділу 3

1. Методика, яка застосовується для отримання аналітичних співвідношень для компонент тензора деформацій, що викликані АХ з довільним напрямком хвильового вектора, передбачає використання стандартних матриць повороту декартових систем координат та побудову перерізів вказівних поверхонь, які описуються тензором Крістоффеля. Аналітичні співвідношення, отримані в результаті застосування цієї методики, можуть бути використані для послідовного аналізу анізотропії КАОЯ.

2. Вплив відхилень поляризації власних АХ від чисто поздовжнього та чисто поперечного станів на анізотропію КАОЯ було проаналізовано для АО взаємодій, що відбуваються в головних кристалографічних площинах. При цьому аналітичні співвідношення, які описують ЕПОК для 6 різних типів ізотропних АО взаємодій, були отримані для випадків нехтування та врахування таких відхилень. Слід зауважити, що формули для ЕПОК, які враховують відхилення поляризації власних АХ від чисто поздовжнього та чисто поперечного станів, у наближенні власних АХ з чистими станами поляризації можуть бути зведені до відповідних співвідношень, отриманих при нехтуванні такими відхиленнями, що свідчить про самоузгодженість цих формул. Виходячи з вищевказаних співвідношень, можна відзначити, що набір компонент ПО тензора, який визначає ЕПОК, залишається незмінним для випадків нехтування та врахування відхилень поляризацій власних АХ від чисто поздовжнього та чисто поперечного станів. Це стосується кристалів, що належать до орторомбічних точкових груп симетрії, а також кристалів інших точкових груп симетрії, які характеризуються тензорами жорсткості та ПО тензорами з аналогічною структурою. Відповідний аналіз було проведено на прикладі кристалів Ti_3AsS_4 , які є достатньо ефективним АО матеріалом. При цьому було виявлено, що для кристалів Ti_3AsS_4 відхилення поляризації власних АХ від чисто поздовжнього та чисто поперечного станів впливають на анізотропію КАОЯ лише у випадку АО взаємодій з QT АХ. Це зумовлено

специфічними властивостями кристалів Ti_3AsS_4 – а саме, малими кутами неортогональності власних АХ та близькістю значень головних ПО коефіцієнтів. Показано, що в більш загальній ситуації, характерній для інших кристалічних матеріалів, збільшення кута неортогональності власних АХ повинно призвести до суттєвих відмінностей між кутовими залежностями КАОЯ, отриманими у випадках нехтування та врахування такої неортогональності. При визначенні експериментальних геометрій АО взаємодій, за яких досягаються максимальні значення КАОЯ для кристалів Ti_3AsS_4 , було виявлено, що глобальний максимум КАОЯ ($2186 \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$) відповідає АО взаємодіям у площинах ab та bc з PL АХ, яка поширюється вздовж кристалографічної осі b .

3. Вплив неортогональності власних АХ на анізотропію КАОЯ було проаналізовано для ізотропних АО взаємодій, які відбуваються в головних кристалографічних площинах кристалів $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ та $\alpha\text{-TeO}_2$. При цьому були отримані геометрії АО взаємодій, за яких повинні спостерігатися максимальні значення КАОЯ. В результаті було виявлено, що глобальний максимум КАОЯ для кристалів $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ ($3,4 \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$) досягається при типі I АО взаємодії у кристалографічній площині ac (bc). Натомість глобальний максимум КАОЯ для кристалів $\alpha\text{-TeO}_2$ ($71,6 \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$) спостерігається при типі IV АО взаємодії у кристалографічній площині взаємодії ac (bc).

4. Результати експериментальних досліджень швидкостей АХ в кристалах TlInSe_2 дали можливість визначити всі компоненти тензорів жорсткості та пружної податливості. При цьому було встановлено, що пружні податливості $S_{44} = S_{55}$ та S_{66} значно більші за інші, що свідчить про надзвичайно високу податливість кристалів TlInSe_2 щодо напружень зсуву. Використовуючи поперечні перерізи поверхонь швидкостей АХ в кристалах TlInSe_2 , було виявлено, що найповільніша QL АХ (2444 м/с) поширюється вздовж бісектриси кристалографічних осей a та b . В свою чергу, найповільніші QT_1 АХ та QT_2 АХ (1356 м/с) поширюються, відповідно, в довільному напрямку в кристалографічній площині bc та в довільному напрямку в кристалографічній

площині ab . Показано, що кути зносу та неортогональності власних АХ для кристалів TlInSe_2 є відносно великими. При цьому КАОЯ в кристалах TlInSe_2 ($170 \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$) був оцінений при $\lambda = 1,15 \text{ мкм}$ для випадку ізотропної АО взаємодії з найповільнішою QL АХ.

5. Результати експериментальних досліджень швидкостей АХ в кристалах $\gamma_1\text{-(Ga}_{0,3}\text{In}_{0,7})_2\text{Se}_3$ дали можливість визначити всі компоненти тензорів жорсткості та пружної податливості. При цьому встановлено, що компоненти цих тензорів задовольняють наближені співвідношення $C_{11} \approx C_{33}$, $S_{11} \approx S_{33}$, $C_{44} \approx C_{66}$, $S_{44} \approx S_{66}$, $C_{66} = 0,5(C_{11} - C_{12})$ та $S_{66} = 2(S_{11} - S_{12})$, які характерні для ізотропних твердотільних середовищ. Кути зносу власних АХ для кристалів $\gamma_1\text{-(Ga}_{0,3}\text{In}_{0,7})_2\text{Se}_3$ є достатньо малими; те ж саме стосується кутів неортогональності QL АХ та QT_1 АХ, з огляду на що для них можна використовувати наближення чистих станів поляризації. Значення КАОЯ для кристалів $\gamma_1\text{-(Ga}_{0,3}\text{In}_{0,7})_2\text{Se}_3$ було виміряно для різних геометрій ізотропної АО дифракції звичайної оптичної хвилі з довжиною $\lambda = 632,8 \text{ нм}$. При цьому максимальна величина КАОЯ, $(38,6 \pm 0,7) \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$, відповідає ПО коефіцієнту $|p_{11}| = 0,105 \pm 0,014$. Слід зауважити, що, оскільки експериментально визначені повільності АХ та ПО коефіцієнти є не надто великими (так, наприклад, $|p_{11}| = 0,105 \pm 0,014$, $|p_{13}| = 0,072 \pm 0,010$ та $|p_{12}| = 0,09 \pm 0,03$), в кристалах $\gamma_1\text{-(Ga}_{0,3}\text{In}_{0,7})_2\text{Se}_3$ основний внесок в КАОЯ пов'язаний з високими показниками заломлення, що спостерігаються в спектральній області поблизу краю оптичного поглинання.

РОЗДІЛ 4. АКУСТООПТИЧНА ВЗАЄМОДІЯ ЗА УЧАСТЮ ЦИРКУЛЯРНО-ПОЛЯРИЗОВАНИХ ОПТИЧНИХ ВЛАСНИХ ХВИЛЬ В ОПТИЧНО АКТИВНИХ КРИСТАЛАХ

4.1. Аналіз акустооптичної дифракції циркулярно-поляризованих оптичних хвиль в кристалах AgGaS_2

Як вже відзначалося у Розділі 1, оптична активність проявляється в еліптичному або циркулярному двозаломленні: оптична хвиля з довжиною λ , що проходить через кристалічне середовище в напрямку, для якого скалярний параметр гірації G (1.7) є відмінним від нуля, розкладається на дві еліптично-поляризовані або циркулярно-поляризовані оптичні хвилі протилежної орієнтації, що поширюються з різними швидкостями [16]. Якщо ж усунути виродження швидкостей лінійно-поляризованих хвиль, оптична активність призводить до появи циркулярно-поляризованих оптичних власних хвиль.

Циркулярно-поляризовані оптичні хвилі можуть відігравати роль власних хвиль в оптично активному середовищі, якщо лінійне двозаломлення в цьому середовищі відсутнє. Гази [209, 210], рідини [211], тверді полімери [212] та кристали [213] належать до тих середовищ, які можуть володіти природною оптичною активністю та не володіти лінійним двозаломленням. Відповідними умовами для кристалів є кубічна сингонія або поширення оптичної хвилі вздовж однієї з оптичних осей кристалу. Так, для середовищ з кубічною або вищою сингонією вказівні поверхні показників заломлення для лівої та правої циркулярно-поляризованих оптичних хвиль являють собою сфери різного радіуса, які не виявляють анізотропії (іншими словами, в такому випадку відсутня анізотропія швидкостей циркулярно-поляризованих оптичних хвиль). Натомість в оптично одновісних або оптично двовісних кристалах циркулярне двозаломлення маскується лінійним двозаломленням, яке зазвичай є набагато більшим, ніж його циркулярний аналог, однак у напрямках оптичних осей воно призводить до розщеплення поверхонь показників заломлення.

Певні прояви впливу оптичної активності на АО дифракцію відзначалися науковцями й раніше. Наприклад, як вже зауважувалося, в роботі [13] було виявлено, що КАОЯ, який визначається співвідношенням (3.3), для кристалів α -TeO₂ у випадку АО взаємодії за участю еліптично-поляризованих оптичних власних хвиль ($1200 \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$), є вищим, ніж КАОЯ для АО взаємодії за участю лінійно-поляризованих оптичних хвиль $((600-800) \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг})$. При цьому падаюча та дифрагована оптичні хвилі поширювалися в напрямках, близьких до оптичної осі в оптично активних кристалах α -TeO₂, так що відповідні оптичні власні хвилі були майже циркулярно-поляризованими оптичними хвилями. Іншими словами, належне врахування ефекту оптичної активності може призводити до підвищення ефективності АО дифракції та вдосконалення відповідних АО пристроїв [214].

В свою чергу, в роботі [215] було показано, що врахування оптичної активності при АО дифракції дозволяє підвищити ефективність невзаємного АО елемента. Згідно з роботою [216], врахування оптичної активності може вплинути на профіль амплітуди дифрагованого світла; причому при поширенні світла вздовж однієї з оптичних осей у оптично двовісних кристалах необхідно враховувати перетворення гауссівських пучків на більш складні світлові пучки – наприклад, пучки Бесселя. Анізотропна АО дифракція світлових пучків Бесселя в оптично одновісних кристалах, які володіють природною оптичною активністю, досліджена в роботах [217] та [218] для випадку, коли світло поширюється вздовж напрямків, близьких до оптичної осі. В такому випадку анізотропна АО дифракція може розглядатися фактично як взаємодія лівої та правої циркулярно-поляризованих оптичних хвиль. У роботі [219] було розглянуто АО взаємодію циркулярно-поляризованих оптичних хвиль у кристалах, що належать до кубічної сингонії, в аспекті збереження моменту імпульсу для взаємодіючих оптичних фотонів.

Необхідно зазначити, що важливим випадком прояву анізотропії циркулярного двозаломлення є ситуація, коли лінійне двозаломлення дорівнює нулю на довжині хвилі так званої "ізотропної точки" λ_i в некубічних кристалах.

Тоді виконується умова рівності звичайного (n_o) та незвичайного (n_e) показників заломлення, однак такі кристали продовжують залишатися анізотропними щодо інших своїх оптичних властивостей.

З огляду на вищевикладене в рамках цього дисертаційного дослідження аналіз АО взаємодії в оптично активних кристалах за участю циркулярно-поляризованих оптичних власних хвиль доцільно проводити для випадку анізотропних кристалів, що належать до точкових груп симетрії, нижчих за кубічну, та в яких знято виродження швидкостей лінійно-поляризованих оптичних хвиль. Такими кристалами є, зокрема, кристали тіогалату срібла AgGaS_2 , які належать до точкової групи симетрії $\bar{4}2m$ та володіють ізотропною точкою на довжині оптичної хвилі $\lambda_i = 497,4$ нм, що лежить на межі спектрального діапазону прозорості [220]. При цьому кристали AgGaS_2 характеризуються дуже великою оптичною активністю – для напрямків поширення світла, паралельних кристалографічним осям a або b , вона становить $5,22 \times 10^5$ °/м при $\lambda_i = 497,4$ нм [221].

Слід відзначити, що кристали AgGaS_2 є тими нехіральними кристалами, в яких було вперше виявлено оптичну активність, тоді як раніше вона інтуїтивно пов'язувалася з енантіоморфізмом середовища, хоча теорія й передбачала принципову можливість існування оптичної активності в кристалах неенантіоморфних точкових груп симетрії, за що свого часу її неодноразово ставили під сумнів [222].

Тензор гірації $\mathbf{g}$ для точкової групи симетрії $\bar{4}2m$ має наступний вигляд:

$$\mathbf{g} = \begin{bmatrix} g_{11} & 0 & 0 \\ 0 & -g_{11} & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}. \quad (4.1)$$

Для кристалів AgGaS_2 компонента тензора гірації $g_{11} = \pm 3,88 \times 10^{-3}$. Отже, скалярний параметр гірації G (1.7) в цьому випадку можна записати як

$$G = g_{ij}m_i m_j = g_{11} \sin^2 \phi \cos 2\varphi, \quad (4.2)$$

де $m_1 = \sin\phi \cos\varphi$, $m_2 = \sin\phi \sin\varphi$, $m_3 = \cos\phi$ – компоненти одиничного хвильового вектора оптичної хвилі (одиничного вектора оптично-хвильової нормалі) $\mathbf{m} = \mathbf{k}/|\mathbf{k}|$ в сферичній системі координат, ϕ та φ – відповідно полярний та азимутальний кути одиничного вектора оптично-хвильової нормалі відносно декартової системи координат abc .

На довжині хвилі $\lambda_i = 497,4$ нм в кристалах AgGaS_2 відбувається розщеплення вказівних поверхонь показників заломлення для правої (n_R) та лівої (n_L) циркулярно-поляризованих оптичних хвиль [16]

$$n_{R,L} = n_o \pm \frac{1}{2} n_o^3 G = n_o \pm \frac{1}{2} n_o^3 g_{11} \sin^2 \phi \cos 2\varphi, \quad (4.3)$$

де $\Delta n_C = n_R - n_L$ – циркулярне двозаломлення, зумовлене оптичною активністю; $n_o = n_e = 2,685$ [25].

Слід зауважити, що, оскільки параметр G залежить від матеріального тензора гірації $\mathbf{g}$, поверхні показників заломлення для правої та лівої циркулярно-поляризованих оптичних хвиль в середньо- та низькосиметричних кристалах в загальному випадку є вже не сферами, а складними поверхнями вищого порядку [223, 224].

Перерізами вказівних поверхонь хвильових векторів для правої ($k_R = 2\pi n_R/\lambda$) та лівої ($k_L = 2\pi n_L/\lambda$) циркулярно-поляризованих оптичних хвиль є еліпси в площині ab та криві шостого степеня, які є близькими до еліпсів, в кристалографічній площині ac (Рисунок 4.1). Зазначені криві перетинають одна одну вздовж напрямків $[110]$, $[\bar{1}10]$, $[1\bar{1}0]$, $[\bar{1}\bar{1}0]$ та $[001]$.

Оскільки швидкості правої та лівої циркулярно-поляризованих оптичних хвиль однакові вздовж цих напрямків, вони можуть бути визначені як "оптичні осі" для циркулярно-поляризованих оптичних хвиль. Слід зауважити, що ці оптичні осі лежать у взаємно перпендикулярних площинах (110) та $(\bar{1}10)$. Всі

інші напрямки поширення світла в кристалі характеризуються ненульовим циркулярним двозаломленням Δn_C .

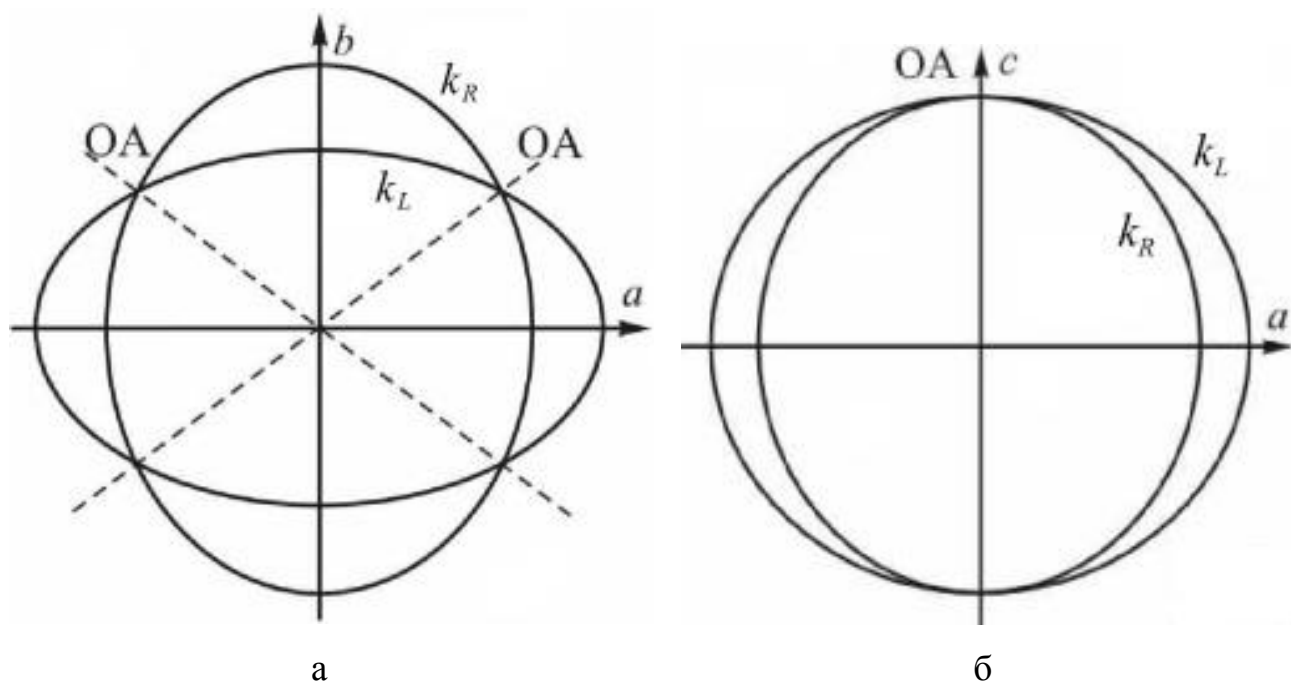


Рисунок 4.1. Перерізи вказівних поверхонь хвильових векторів для правої (k_R) та лівої (k_L) циркулярно-поляризованих оптичних хвиль кристалографічними площинами ab (а) та ac (б) для кристалів точкової групи симетрії $\bar{4}2m$. OA – "оптичні осі" для циркулярно-поляризованих оптичних хвиль [225].

Ізотропна АО дифракція Брегга має місце, коли падаюча та дифрагована оптичні хвилі мають однаковий знак обертання вектора напруженості електричного поля – тобто, обидві циркулярно-поляризовані оптичні хвилі є або правими, або лівими [225]. Розглянемо векторні діаграми для двох різних типів ізотропної АО дифракції Брегга в кристалах AgGaS_2 (Рисунок 4.2).

Тип (1) ізотропної АО дифракції Брегга являє собою взаємодію між падаючою лівою циркулярно-поляризованою оптичною хвилею, дифрагованою лівою циркулярно-поляризованою оптичною хвилею та поздовжньою АХ, яка поширюється вздовж кристалографічної осі b .

Запишемо вектор електричної індукції падаючої оптичної хвилі $\mathbf{D}^L$ (для спрощення записів величина ε_0^{-1} в залежностях $\mathbf{E}$ від $\mathbf{D}$ не вказується) у вигляді

$$\begin{cases} D_2^L = D_0 \sin \delta \\ D_3^L = D_0 \cos \delta \end{cases}, \quad (4.4)$$

де D_0 та δ – відповідно амплітуда та фаза падаючої оптичної хвилі; D_2^L , D_3^L – компоненти вектора електричної індукції.

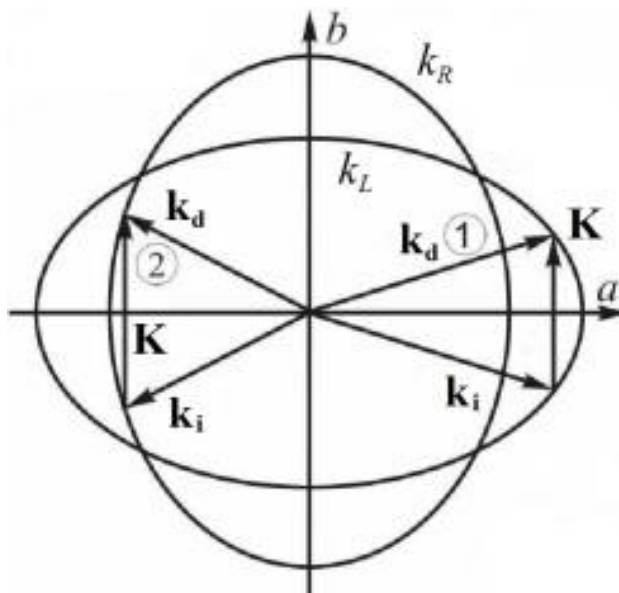


Рисунок 4.2. Схематична векторна діаграма типів (1) та (2) ізотропної АО дифракції Брегга в кристалах AgGaS_2 . $\mathbf{k}_i$, $\mathbf{k}_d$, $\mathbf{K}$ – відповідно хвильові вектори падаючої й дифрагованої оптичних хвиль та AX [225].

Якщо прийняти, що кут Брегга залишається настільки малим, що їм можна знехтувати, компоненти E_2 , E_3 вектора напруженості електричного поля дифрагованої оптичної хвилі в загальному випадку можна представити як

$$\begin{cases} E_2 = D_0(\Delta B_{22} \sin \delta + \Delta B_{23} \cos \delta) \\ E_3 = D_0(\Delta B_{32} \sin \delta + \Delta B_{33} \cos \delta) \end{cases}, \quad (4.5)$$

де ΔB_{jl} – приріст компонент тензора діелектричної непроникувості $\mathbf{B}$, спричинений ПО ефектом. Оскільки умови фазового синхронізму ($\mathbf{k}_d = \mathbf{k}_i + \mathbf{K}$) в цьому випадку задовольняються для АО взаємодій за участю двох лівих циркулярно-поляризованих оптичних хвиль, система рівнянь (4.5) має відповідати лівій циркулярно-поляризованій оптичній хвилі. Це стає можливим, якщо $\Delta B_{23} = \Delta B_{32} = 0$. Тоді система рівнянь (4.5) записується як

$$\begin{cases} E_2^L = D_0 \Delta B_{22} \sin \delta \\ E_3^L = D_0 \Delta B_{33} \cos \delta \end{cases} \quad (4.6)$$

Система рівнянь (4.6) описує вектор напруженості електричного поля дифрагованої оптичної хвилі $\mathbf{E}^L$. В свою чергу, для інтенсивності дифрагованого світла записується наступне співвідношення:

$$\begin{aligned} I \sim (E_2^L)^2 + (E_3^L)^2 &= (D_0 \Delta B_{22})^2 \sin^2 \delta + \\ &+ (D_0 \Delta B_{33})^2 \cos^2 \delta = D_0^2 e_2^2 (p_{22}^2 \sin^2 \delta + p_{32}^2 \cos^2 \delta), \end{aligned} \quad (4.7)$$

де p_{mn} – компоненти ПО тензора $\mathbf{p}$, e_n – компоненти тензора деформацій $\mathbf{e}$, викликаних АХ (всі ці компоненти представлені у матричному записі). Для точкової групи симетрії $\bar{4}2m$ $p_{11} = p_{22}$, $p_{12} = p_{21}$, $p_{31} = p_{32}$, $p_{13} = p_{23}$ та $p_{44} = p_{55}$, з огляду на що ЕПОК p_{eff} дорівнює [225]

$$p_{eff} = ((p_{11}^2 + p_{31}^2) / 2)^{1/2}. \quad (4.8)$$

Оскільки ЕПОК (4.8) не дорівнює нулю, розглянута вище АО взаємодія є можливою. З іншого боку, АО дифракція на поперечних АХ не може бути реалізована в цій геометрії АО взаємодії з огляду на нульові ПО коефіцієнти.

Тип (2) ізотропної АО дифракції Брегга являє собою взаємодію між падаючою правою циркулярно-поляризованою оптичною хвилею,

дифрагованою правою циркулярно-поляризованою оптичною хвилею та позовжньою AX , яка поширюється вздовж кристалографічної осі b (Рисунок 4.2). В цьому випадку вектор електричної індукції падаючої оптичної хвилі задається системою рівнянь

$$\begin{cases} D_2^R = D_0 \sin \delta \\ D_3^R = -D_0 \cos \delta \end{cases}, \quad (4.9)$$

тоді як вектор напруженості електричного поля дифрагованої оптичної хвилі можна записати як

$$\begin{cases} E_2^R = D_0 \Delta B_{22} \sin \delta \\ E_3^R = -D_0 \Delta B_{33} \cos \delta \end{cases}. \quad (4.10)$$

З огляду на співвідношення (4.7), для типу (2) ізотропної АО дифракції Брегга ЕПОК p_{eff} також визначається формулою (4.8). Слід зауважити, що для обох типів ізотропної АО дифракції Брегга, розглянутих вище, дифрагована оптична хвиля має таку ж саму фазу, що й падаюча оптична хвиля.

Анізотропна АО дифракція Брегга має місце, коли падаюча та дифрагована оптичні хвилі мають протилежні знаки обертання вектора напруженості електричного поля. Тобто, якщо падаюча оптична хвиля є правою циркулярно-поляризованою оптичною хвилею, то дифрагована оптична хвиля є лівою циркулярно-поляризованою оптичною хвилею. В свою чергу, якщо падаюча оптична хвиля є лівою циркулярно-поляризованою оптичною хвилею, то дифрагована оптична хвиля є правою циркулярно-поляризованою оптичною хвилею [225].

Розглянемо анізотропну АО дифракцію Брегга з падаючою лівою циркулярно-поляризованою оптичною хвилею та дифрагованою правою циркулярно-поляризованою оптичною хвилею (Рисунок 4.3).

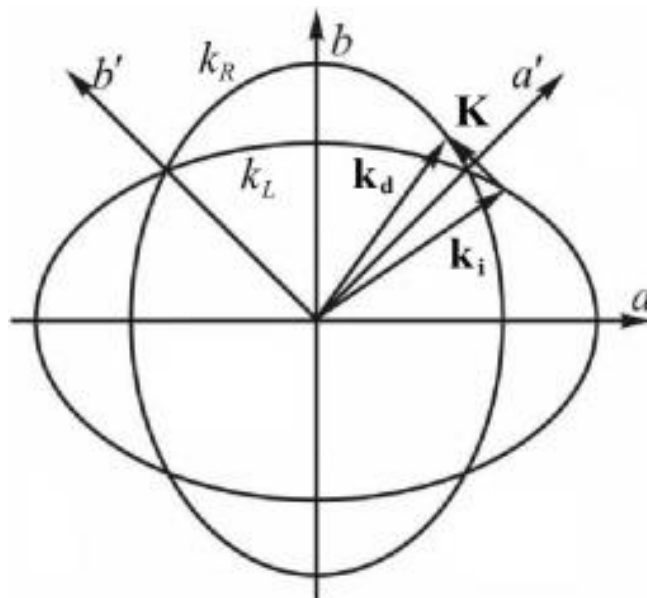


Рисунок 4.3. Схематична векторна діаграма анізотропної АО дифракції Брегга в кристалах AgGaS_2 . $\mathbf{k}_i$, $\mathbf{k}_d$, $\mathbf{K}$ – відповідно хвильові вектори падаючої й дифрагованої оптичних хвиль та AX [225].

Нехтуючи кутом Брегга, можна побачити, що як падаюча, так дифрагована оптичні хвилі поширюються майже паралельно напрямку [110]. Для спрощення розгляду система координат повертається на кут 45° навколо кристалографічної осі c . Тоді компоненти вектора електричної індукції падаючої оптичної хвилі $\mathbf{D}^L$ в системі координат $a'b'c$ записуються як

$$\begin{cases} D_2^{L'} = D_0 \sin \delta \\ D_3^{L'} = D_3^L = D_0 \cos \delta \end{cases} \quad (4.11)$$

В свою чергу, співвідношення для компонент вектора напруженості електричного поля дифрагованої оптичної хвилі $\mathbf{E}^R$ в системі координат $a'b'c$ є наступними:

$$\begin{cases} E_2^{R'} = D_0 \Delta B_{23} \cos \delta \\ E_3^{R'} = E_3^R = D_0 \Delta B_{32} \sin \delta \end{cases} \quad (4.12)$$

Слід зауважити, що фаза дифрагованої оптичної хвилі зміщена на -90° відносно фази падаючої оптичної хвилі. Враховуючи рівність $\Delta B_{23} = \Delta B_{32}$, для інтенсивності дифрагованого світла можна записати наступне співвідношення [225]:

$$I \sim (E_2^{R'})^2 + (E_3^{R'})^2 = (D_0 \Delta B_{23})^2 \cos^2 \delta + (D_0 \Delta B_{32})^2 \sin^2 \delta = D_0^2 (e_4')^2 (p_{44}' / 2)^2, \quad (4.13)$$

де e_4' та p_{44}' – відповідно компоненти тензора деформацій $\mathbf{e}'$ та ПО тензора $\mathbf{p}'$ в системі координат $a'b'c$. Оскільки $p_{44}' = p_{44}$, ця компонента ПО тензора інваріантна відносно повороту системи координат навколо кристалографічної осі c на кут 45° . Таким чином, $p_{eff} = p_{44}/2$.

Слід зауважити, що анізотропні АО дифракції Брегга на поздовжній АХ, яка індукує деформацію e_2' , та поперечній АХ з ортогональною поляризацією, яка індукує деформацію e_6' , не можуть бути реалізовані у цій геометрії АО взаємодії з огляду на нульові значення відповідних ПО коефіцієнтів.

Анізотропна колінеарна АО дифракція заборонена у кристалографічній площині ab , оскільки для кристалів AgGaS_2 відповідні ПО коефіцієнти дорівнюють нулю, однак її можна реалізувати у площині ac (Рисунок 4.4).

Розглянемо випадок, коли падаюча права циркулярно-поляризована оптична хвиля та АХ поширюються в площині ac під кутом 45° до осі a . Для спрощення розгляду система координат повертається на кут 45° навколо кристалографічної осі b . Тоді компоненти вектора електричної індукції падаючої оптичної хвилі $\mathbf{D}^R$ в системі координат $a'bc'$ записуються як

$$\begin{cases} D_2^{R'} = D_2^R = -D_0 \cos \delta \\ D_3^{R'} = D_0 \sin \delta \end{cases}. \quad (4.14)$$

В свою чергу, співвідношення для компонент вектора напруженості електричного поля дифрагованої оптичної хвилі $\mathbf{E}^L$ в системі координат $a'b'c'$ є наступними:

$$\begin{cases} E_2^{L'} = E_2^L = D_0 \Delta B_{23} \sin \delta \\ E_3^{L'} = -D_0 \Delta B_{32} \cos \delta \end{cases} \quad (4.15)$$

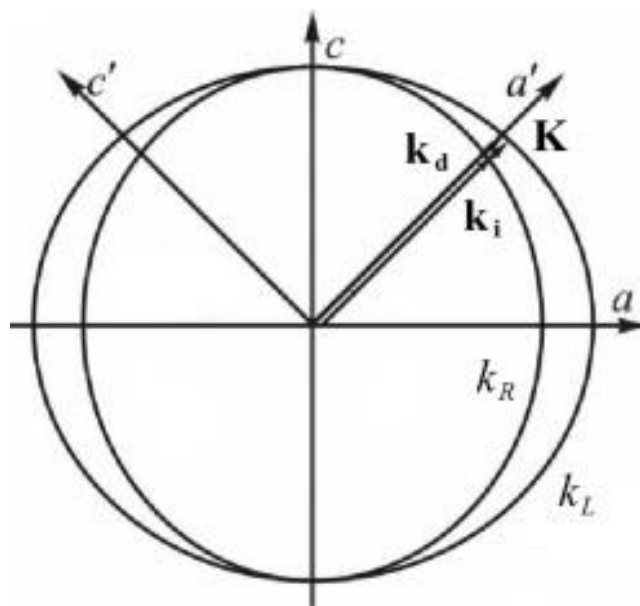


Рисунок 4.4. Схематична векторна діаграма анізотропної колінеарної АО дифракції в кристалах AgGaS_2 . $\mathbf{k}_i$, $\mathbf{k}_d$, $\mathbf{K}$ – відповідно хвильові вектори падаючої й дифрагованої оптичних хвиль та AX [225].

Отже, для інтенсивності дифрагованого світла можна записати наступне співвідношення:

$$\begin{aligned} I &\sim (E_2^{L'})^2 + (E_3^{L'})^2 = (D_0 \Delta B_{23})^2 \sin^2 \delta + (D_0 \Delta B_{32})^2 \cos^2 \delta = \\ &= D_0^2 (e_6')^2 (p_{46}' / 2)^2 = D_0^2 (e_6')^2 ((p_{44} - p_{66}) / 2)^2, \end{aligned} \quad (4.16)$$

Таким чином, в цьому випадку ЕПОК $p_{\text{eff}} = (p_{44} - p_{66})/4$ [225].

Використовуючи коефіцієнти жорсткості C_{ij} [226] та розв'язуючи рівняння Крістоффеля (3.30), було визначено, що поперечна АХ, відповідна

цьому випадку анізотропної колінеарної АО дифракції, поширюється зі швидкістю 2417 м/с вздовж напрямку [101]. В свою чергу, використовуючи зв'язок хвильових векторів, дійсний за умови фазового синхронізму ($\mathbf{k}_d = \mathbf{k}_i + \mathbf{K}$), можна оцінити частоту цієї АХ як $\Phi = 3,5 \times 10^6$ Гц. Зазначимо, що анізотропна колінеарна АО дифракція може бути реалізована тоді, коли взаємодіючі хвилі поширюються в кристалі AgGaS_2 вздовж будь-якого напрямку, крім кристалографічної площини ab та напрямків оптичних осей.

ПО коефіцієнти кристалів AgGaS_2 , необхідні для того, щоб розрахувати КАОЯ для тих типів АО дифракції, які були проаналізовані вище, визначалися для довжин оптичних хвиль 632,8 та 532,0 нм, використовуючи метод Діксона–Коена (Рисунок 3.4) [182]. В свою чергу, КАОЯ для кристалів AgGaS_2 розраховувався за формулою

$$M_2^{sa} = M_2^{st} \frac{I_{st}}{I_{sa}} \left(\frac{I_3 I_4}{I_1 I_5} \right)^{1/2}, \quad (4.17)$$

де M_2^{st} – КАОЯ для плавленого кварцу як еталонного матеріалу ($1,56 \times 10^{-15}$ с³/кг для АО дифракції на поздовжній АХ та $0,47 \times 10^{-15}$ с³/кг для АО дифракції на поперечній АХ [1, 2]); I_{sa} та I_{st} – інтенсивності світла, що пройшло через досліджуваний та еталонний зразки відповідно. Інтенсивності АО дифракції, які фігурують в рівнянні (4.17), відповідають АО взаємодії з акустичним імпульсом, що поширюється вперед в еталонному зразку (I_1); акустичним імпульсом, що відбивається від поверхні розділу між еталонним зразком та досліджуваним зразком (I_2); акустичним імпульсом, що поширюється вперед в досліджуваному зразку (I_3); акустичним імпульсом, що відбивається у досліджуваному зразку (I_4); акустичним імпульсом, що відбивається від тильної сторони досліджуваного зразка та повертається назад до еталонного зразка (I_5).

Для розрахунку ЕПОК p_{eff} використовувалися співвідношення

$$|p_{eff}| = \frac{1}{n^3} (M_2^{sa} \rho v_{ij}^3)^{1/2}, \quad (4.18)$$

де n – показник заломлення, що відповідає певній визначеній поляризації оптичної хвилі (показники заломлення для кристалів AgGaS_2 $n_o = 2,5507$ та $n_e = 2,5039$ при $\lambda = 632,8$ нм [221]); v_{ij} – швидкість АХ (індекс i відповідає напрямку поширення АХ, індекс j відповідає напрямку поляризації АХ); $\rho = 4700$ кг/м³ – густина кристалу AgGaS_2 [227].

Швидкості АХ розраховувалися за допомогою рівняння Крістоффеля (3.30) та коефіцієнтів жорсткості C_{ij} (Таблиця 4.1).

Таблиця 4.1. Коефіцієнти жорсткості C_{ij} для кристалів AgGaS_2 при $\lambda = 632,8$ нм [227].

ij	11	33	44	66	12	13
$C_{ij}, 10^{10}$ Па	8,79±0,05	7,58±0,05	2,41±0,05	3,08±0,05	5,84±0,05	5,92±0,06

Хоча довжини оптичних хвиль 632,8 та 532,0 нм й не збігаються з довжиною хвилі ізотропної точки ($\lambda_i = 497,4$ нм), ПО коефіцієнти для цих довжин хвиль дозволяють з певною точністю оцінити КАОЯ для тих типів АО дифракції, які були проаналізовані вище. Очевидно, що ця точність є тим більшою, чим слабшими є дисперсії відповідних ПО коефіцієнтів (Таблиця 4.2).

Таблиця 4.2. Значення ПО коефіцієнтів для кристалів AgGaS_2 [225].

$ p_{ij} $	λ , нм	
	532,0	632,8
$ p_{11} $	0,135±0,004	0,144±0,004
$ p_{12} $	0,027±0,005	0,043±0,005
$ p_{31} $	0,024±0,005	0,036±0,005
$ p_{66} $	0,056±0,003	0,053±0,003

ПО коефіцієнти p_{ij} ($i, j = 1, 2, 3$) визначалися для ізотропних АО взаємодій з поздовжніми АХ, що поширювалися вздовж головних кристалографічних осей кристалу AgGaS_2 . В свою чергу, ПО коефіцієнти p_{44} та p_{66} визначалися для анізотропних АО взаємодій з поперечними АХ v_{32} та v_{12} відповідно; при цьому падаюча оптична хвиля поширювалася, відповідно, під різними кутами відносно кристалографічної осі a та під кутом $\sim 3^\circ$ відносно кристалографічної осі c в кристалографічній площині ac (Таблиця 4.3).

Таблиця 4.3. ПО коефіцієнти, КАОЯ та геометрії АО взаємодій для кристалів AgGaS_2 при $\lambda = 632,8$ нм [225].

Швидкість АХ v_{ij} , м/с	Напрямок поширення та поляризація падаючої й дифрагованої оптичних хвиль (показник заломлення)	M_2 , 10^{-15} с ³ /кг	$ p_{ij} $
Ізотропна АО дифракція			
$v_{11}=4230$	$k_2, D_1, E_1 (n_o)$	16,1	$ p_{11} =0,144\pm 0,004$
	$k_2, D_3, E_3 (n_e)$	0,9	$ p_{31} =0,036\pm 0,005$
	$k_3, D_1, E_1 (n_o)$	16,1	$ p_{11} =0,144\pm 0,004$
	$k_3, D_2, E_2 (n_o)$	1,4	$ p_{12} =0,043\pm 0,005$
$v_{22}=4230$	$k_1, D_2, E_2 (n_o)$	16,1	$ p_{11} =0,144\pm 0,004$
	$k_1, D_3, E_3 (n_e)$	0,9	$ p_{31} =0,036\pm 0,005$
	$k_3, D_1, E_1 (n_o)$	1,4	$ p_{12} =0,043\pm 0,005$
	$k_3, D_2, E_2 (n_o)$	16,1	$ p_{11} =0,144\pm 0,004$
$v_{33}=4016$	$k_1, D_2, E_2 (n_o)$	0,6	$ p_{13} =0,026\pm 0,003$
	$k_1, D_3, E_3 (n_e)$	35,0	$ p_{33} =0,208\pm 0,011$
	$k_2, D_1, E_1 (n_o)$	0,6	$ p_{13} =0,026\pm 0,003$
	$k_2, D_3, E_1 (n_e)$	35,0	$ p_{33} =0,208\pm 0,011$
Анізотропна АО дифракція			
$v_{12}=2560$	Під кутом $\sim 3^\circ$ відносно осі c в площині ac , $D_1, E_2 (n= 2,5506; n_o)$	11,0	$ p_{66} =0,053\pm 0,003$
$v_{32}=2264$	Під різними кутами відносно осі a в площині ac , $D_3, E_2 (n_e; n_o)$	<0,02	$ p_{44} <0,003$

Як можна бачити, ПО коефіцієнти та КАОЯ для кристалів AgGaS_2 є відносно малими – максимальне значення КАОЯ не перевищує $35,0 \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$ (Таблиця 4.3). Крім того, експериментальні дослідження анізотропної АО дифракції показують, що ПО коефіцієнт p_{44} є настільки малим, що відповідна АО дифракція не може бути виявлена.

Нехтуючи дисперсією ПО коефіцієнтів та враховуючи дисперсію показників заломлення, можна оцінити КАОЯ на довжині хвилі ізотропної точки $\lambda_i = 497,4 \text{ нм}$ для тих типів АО дифракції, які були проаналізовані вище, за формулою (3.3), де $n_i = n_d = n_o = n_e = 2,685$. В результаті отримуємо, що КАОЯ для ізотропної АО дифракції Брегга ($p_{\text{eff}} = ((p_{11})^2 + (p_{31})^2)/2)^{1/2}$; Рисунок 4.2) є величиною порядку $10^{-14} \text{ с}^3/\text{кг}$; КАОЯ для анізотропної АО дифракції Брегга ($p_{\text{eff}} = p_{44}/2$; Рисунок 4.3) є величиною порядку $10^{-17} \text{ с}^3/\text{кг}$; КАОЯ для анізотропної колінеарної АО дифракції ($p_{\text{eff}} = (p_{44} - p_{66})/4 \approx -p_{66}/4$; Рисунок 4.4) є величиною порядку $10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$.

4.2. Вплив циркулярної поляризації оптичних хвиль на ефективність акустооптичної дифракції в кристалах AgGaS_2

Аналіз анізотропії швидкостей АХ у кристалах AgGaS_2 був здійснений з використанням коефіцієнтів жорсткості C_{ij} (Таблиця 4.1). Використовуючи рівняння Крістоффеля (3.30) [16] та значення густини $\rho = 4700 \text{ кг/м}^3$ для кристалів AgGaS_2 [227], були отримані перерізи поверхонь швидкостей АХ головними кристалографічними площинами ac (bc) та ab (Рисунок 4.5).

Як можна бачити, швидкості QT АХ з ортогональними поляризаціями рівні між собою вздовж напрямків акустичних осей (Рисунок 4.6), одна з яких (AA1) паралельна кристалографічній осі c , а чотири інші лежать у кристалографічній площині ab під кутами 72° (AA2), 18° (AA3), 162° (AA4) та 108° (AA5) відносно кристалографічної осі a .

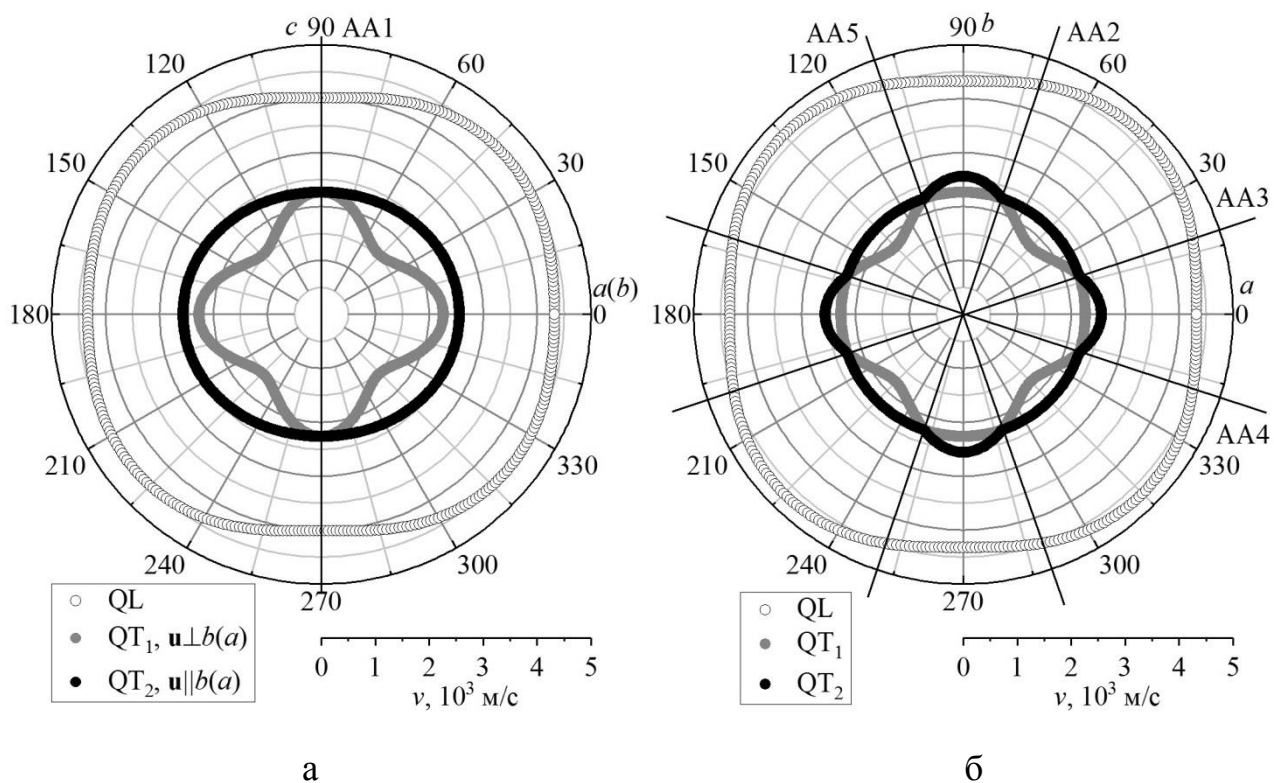


Рисунок 4.5. Перерізи поверхонь швидкостей AX площинами ac (bc) (а) та ab (б) для кристалів AgGaS_2 : AA – акустичні осі [228].

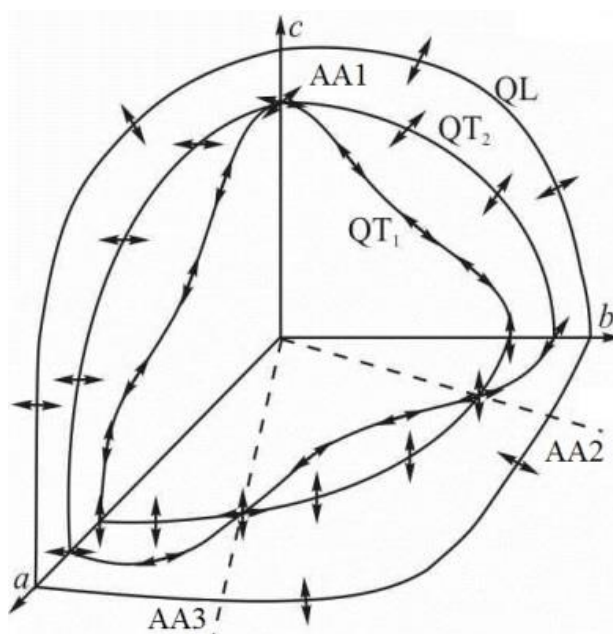


Рисунок 4.6. Схематичний вигляд поверхонь швидкостей AX для кристалів AgGaS_2 : двосторонні стрілки – поляризації власних AX; AA – акустичні осі [228].

Кути орієнтації вектора зміщення QL AX ζ_i в кристалах AgGaS₂, аналогічно до кристалів Li₂B₄O₇, α -TeO₂ та TlInSe₂, визначалися зі співвідношень (3.84) та (3.85). Слід нагадати, що зауваження щодо позначень в таких формулах та їхнього застосування у випадку QT AX викладені у параграфі 3.2.2.

Кути зносу AX Δ_i для кристалів AgGaS₂ розраховувалися за загальною формулою (3.88). При цьому максимальні значення кута зносу для QT AX становлять 39° та 36° в площинах *ac* (*bc*) та *ab* відповідно (Рисунок 4.7). Натомість для QL AX кут зносу є меншим – його максимальні значення дорівнюють 5° та 10° в площинах *ac* (*bc*) та *ab* відповідно.

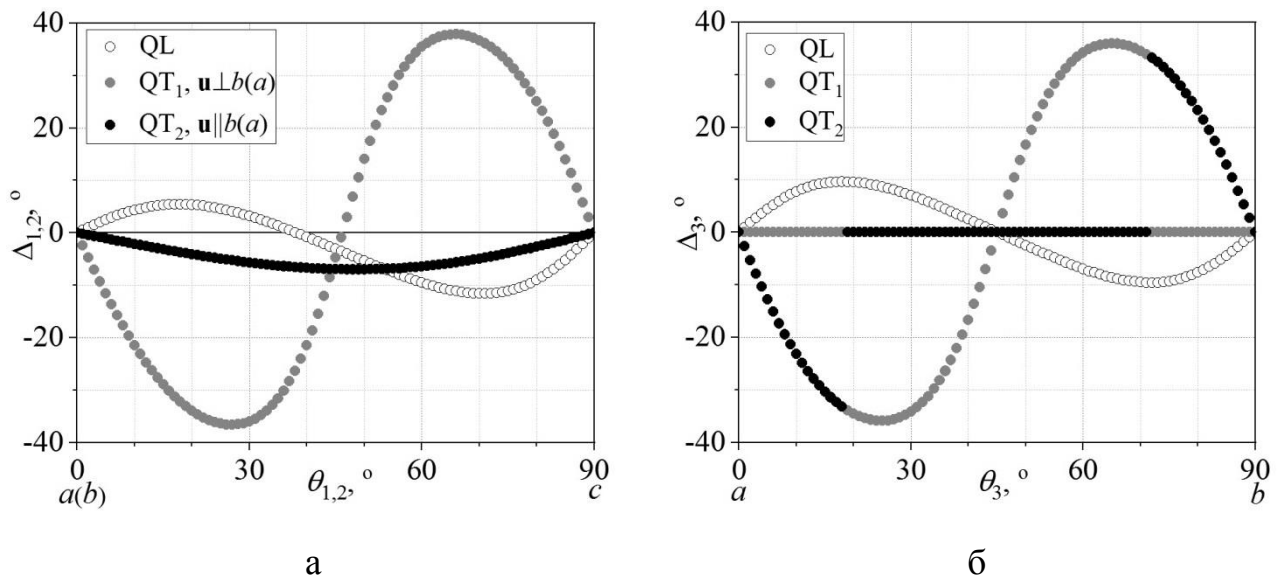
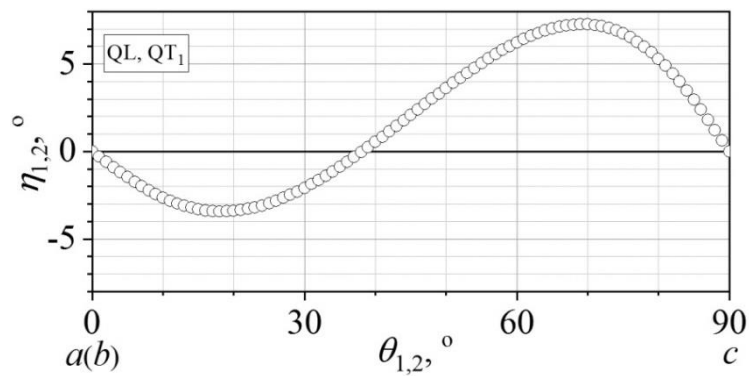
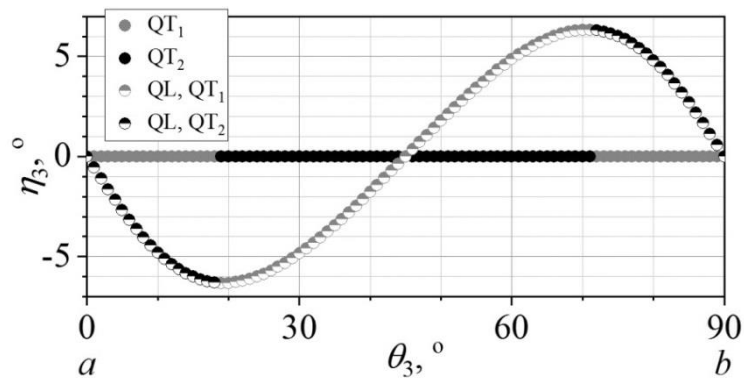


Рисунок 4.7. Залежності $\Delta_i = \Delta_i(\theta_i)$ у площинах *ac* (*bc*) (а) та *ab* (б) для кристалів AgGaS₂ [228].

Як можна бачити, кути неортогональності AX η_i (3.83) в кристалах AgGaS₂ є відносно малими – їхні екстремальні значення не перевищують 8° (Рисунок 4.8). Тому для подальшого аналізу впливу циркулярної поляризації оптичних хвиль на ефективність акустооптичної дифракції в цих кристалах можна застосувати наближення чистих станів поляризації власних AX.



а



б

Рисунок 4.8. Залежності $\eta_i = \eta_i(\theta_i)$ у площинах ac (bc) (а) та ab (б) для кристалів AgGaS_2 [228].

За вищевказаного наближення можна отримати наступні співвідношення для ЕПОК у випадку колінеарних АО взаємодій за участю циркулярно-поляризованих оптичних хвиль та власних АХ [11, 184, 225]:

$$p_{eff}^{QL} = -0,25(2p_{12} - 2p_{11} + p_{66})\cos 2\varphi \sin 2\varphi \sin \phi \cos^2 \phi, \quad (4.19)$$

$$p_{eff}^{QT_1} = -0,5(2p_{12} - 2p_{11} + p_{66})\cos 2\varphi \sin 2\varphi \cos \phi \sin^2 \phi, \quad (4.20)$$

$$p_{eff}^{QT_2} = 0,5(0,5(p_{66} \cos^2 2\varphi - p_{44}) + (p_{11} - p_{12})\sin^2 2\varphi)\sin 2\phi. \quad (4.21)$$

де ϕ та φ – відповідно полярний та азимутальний кути хвильового вектора АХ відносно декартової системи координат abc .

Як можна бачити зі співвідношень (4.19), (4.20) та (4.21), у головній кристалографічній площині ab , для якої $\phi = 90^\circ$, усі ці ЕПОК дорівнюють нулю, що унеможливорює колінеарні АО взаємодії в цій кристалографічній площині. В свою чергу, в кристалографічній площині ac (bc), для якої $\phi = 0^\circ$ (90°), колінеарні АО взаємодії з QL АХ та QT_1 АХ є неможливими з тієї ж самої причини, однак для колінеарної АО взаємодії з QT_2 АХ

$$p_{eff}^{QT_2} = 0,25(p_{66} - p_{44})\sin 2\phi \approx 0,25p_{66}\sin 2\theta, \quad (4.22)$$

враховуючи те, що $\phi = 90^\circ - \theta$, $p_{44} \approx 0$ та $p_{66} = 0,053$ [225].

Як можна бачити, максимум ЕПОК досягається, коли взаємодіючі хвилі поширюються під кутами $\theta = 45^\circ, 135^\circ, 225^\circ, 315^\circ$ відносно осі a (b) в площині ac (bc) (Рисунок 4.9). Натомість анізотропія оберненого куба швидкості QT_2 АХ в площині ac (bc) помітно не виражена (Рисунок 4.10).

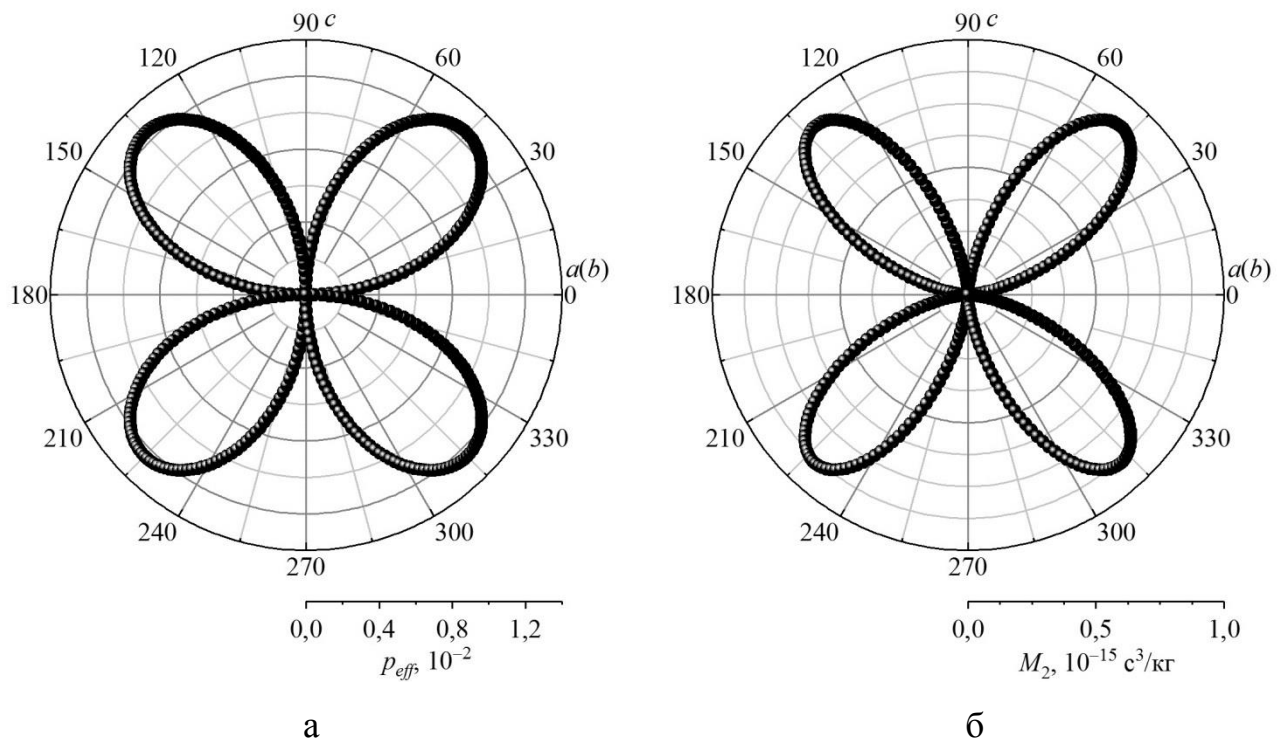


Рисунок 4.9. Залежності ЕПОК (а) та КАОЯ (б) від кута θ для колінеарної АО взаємодії з QT_2 АХ у площині ac (bc) кристалів $AgGaS_2$ [228].

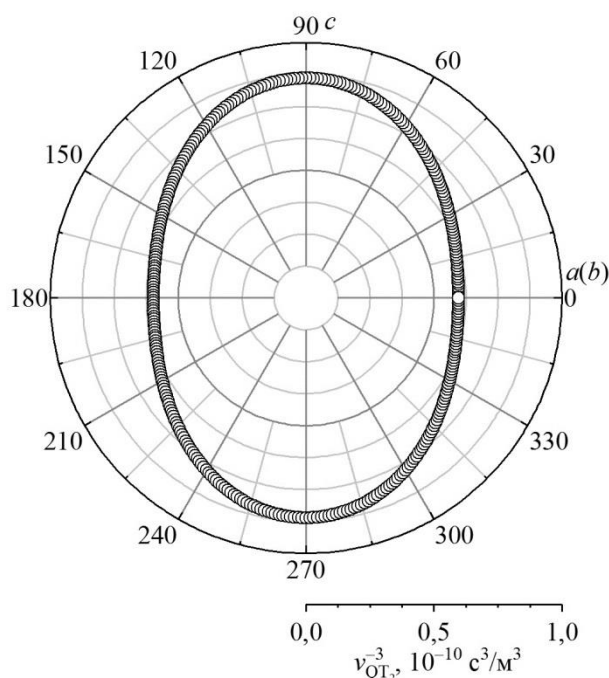


Рисунок 4.10. Залежність оберненого куба швидкості QT_2 АХ від кута θ у площині ac (bc) для кристалів $AgGaS_2$ [228].

Таким чином, анізотропія КАОЯ у випадку колінеарної АО взаємодії з QT_2 АХ у площині ac (bc) зумовлена насамперед анізотропією ЕПОК. Як можна бачити, КАОЯ досягає максимального значення ($0,9 \times 10^{-15} \text{ c}^3/\text{кг}$) при $\theta = 48^\circ$, 132° , 228° , 312° (Рисунок 4.9). При цьому різниця в $\pm 3^\circ$ між відповідними кутами максимальних значень КАОЯ та ЕПОК викликана анізотропією швидкості QT_2 АХ.

Проаналізуємо залежність частоти АХ Φ від кута θ , що задовольняє умови фазового синхронізму хвильових векторів падаючої правої циркулярно-поляризованої оптичної хвилі $\mathbf{k}_R$, дифрагованої лівої циркулярно-поляризованої оптичної хвилі $\mathbf{k}_L$ та QT_2 АХ $\mathbf{K}$ ($\mathbf{k}_L = \mathbf{k}_R + \mathbf{K}$) у випадку колінеарної АО дифракції в кристалографічній площині ac (bc) (Рисунок 4.11). Як можна бачити, частота АХ Φ змінюється від $7,4 \times 10^6$ Гц до нуля, коли напрямок поширення взаємодіючих хвиль θ змінюється від 0° (вдovж кристалографічної осі a (b)) до 90° (вдovж кристалографічної осі c). При цьому слід зазначити, що АО взаємодії не можуть бути реалізовані при $\theta = 90^\circ$ з огляду на відсутність циркулярного двозаломлення. З іншого боку, при $\theta = 0^\circ$ ЕПОК дорівнює нулю,

що, як вже зазначалося, унеможливилює колінеарні АО взаємодії в площині ab . Й, нарешті, частота АХ Φ дорівнює $3,1 \times 10^6$ Гц при $\theta = 48^\circ$, що відповідає максимуму КАОЯ.

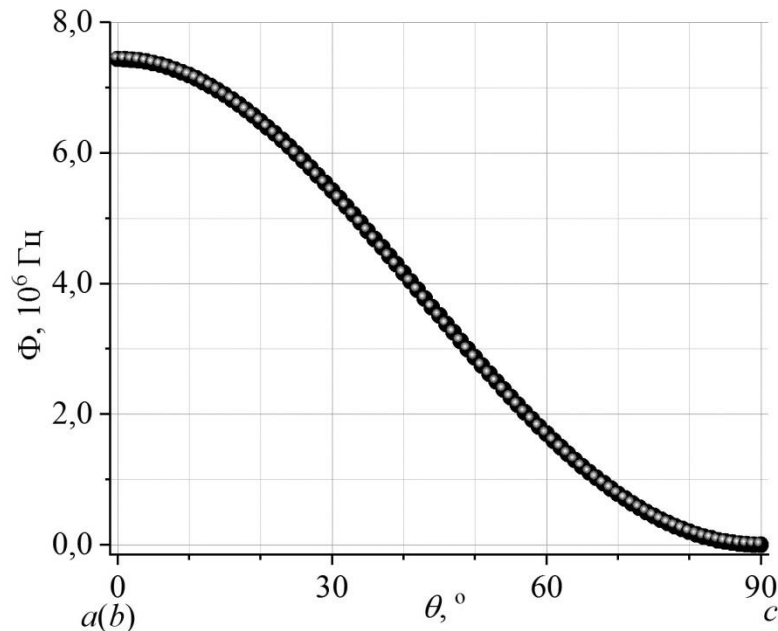


Рисунок 4.11. Залежність частоти АХ Φ від кута θ у випадку колінеарної АО дифракції за участю циркулярно-поляризованих оптичних хвиль та QT_2 АХ в кристалографічній площині ac (bc) кристалів $AgGaS_2$ за умови $\mathbf{k}_L = \mathbf{k}_R + \mathbf{K}$ [228].

Висновки до Розділу 4

1. Аналіз АО взаємодії в оптично активних кристалах $AgGaS_2$ на довжині оптичної хвилі $\lambda_i = 497,4$ нм, в якій показники заломлення звичайної та незвичайної оптичних хвиль рівні між собою (на довжині хвилі ізотропної точки), показав, що за умови врахування циркулярного двозаломлення, викликаного оптичною активністю, в цих кристалах можна виділити два типи АО дифракції: ізотропну та анізотропну. Ізотропна АО дифракція являє собою АО дифракцію за участю циркулярно-поляризованих оптичних власних хвиль з однаковими знаками обертань їхніх векторів напруженості електричного поля, в свою чергу, для анізотропної АО дифракції ці знаки є протилежними. При

цьому було отримано співвідношення для ЕПОК у випадку вищевказаних типів АО дифракції, а також встановлено, що при анізотропній АО дифракції фаза дифрагованої оптичної хвилі зсувається на -90° відносно фази падаючої оптичної хвилі, тоді як при ізотропній АО дифракції фазовий зсув між падаючою та дифрагованою оптичними хвилями дорівнює нулю.

2. Використовуючи результати експериментальних досліджень ПО властивостей кристалів AgGaS_2 , величину КАОЯ було оцінено для низки випадків АО взаємодії за участю циркулярно-поляризованих оптичних власних хвиль на довжині хвилі ізотропної точки. В результаті було виявлено, що достатньо малі значення ПО коефіцієнтів в цих кристалах призводять до малих значень КАОЯ – а отже, й до низької ефективності АО дифракції.

3. Аналіз анізотропії швидкостей АХ кристалів AgGaS_2 показав, що ці кристали мають п'ять акустичних осей (напрямків рівності швидкостей QT_1 АХ та QT_2 АХ), одна з яких паралельна кристалографічній осі c , а чотири інші лежать у кристалографічній площині ab . Для кристалів AgGaS_2 кут зносу власних АХ є достатньо великим – він досягає значення 36° в головних кристалографічних площинах. Натомість кут неортогональності поляризацій власних АХ для кристалів AgGaS_2 не перевищує 8° в цих площинах, що дозволяє проводити аналіз анізотропії КАОЯ в наближенні чистих станів поляризації власних АХ.

4. В результаті розгляду часткового випадку колінеарної АО дифракції за участю циркулярно-поляризованих оптичних власних хвиль на довжині хвилі ізотропної точки $\lambda_i = 497,4$ нм в кристалах AgGaS_2 було виявлено, що анізотропія КАОЯ в кристалографічній площині ac (bc) зумовлена насамперед анізотропією ЕПОК. При цьому максимальне значення КАОЯ ($0,9 \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$) досягається за умови поширення взаємодіючих хвиль під кутами $\theta = 48^\circ, 132^\circ, 228^\circ, 312^\circ$ відносно кристалографічної осі a (b).

РОЗДІЛ 5. АКУСТООПТИЧНА ВЗАЄМОДІЯ З ВРАХУВАННЯМ ЕЛІПТИЧНОСТІ ОПТИЧНИХ ВЛАСНИХ ХВИЛЬ

У Розділі 4 було продемонстровано, що у випадку, коли оптичні власні хвилі поляризовані циркулярно через наявність оптичної активності, відповідну АО дифракцію можна розглядати як окремий тип АО взаємодії між оптичними власними хвилями та власними АХ. Причому кількість принципово різних типів АО взаємодій для випадку циркулярно-поляризованих оптичних хвиль зменшується з 9 до 6 – тобто, співвідношення для ЕПОК є однаковими для правої та лівої циркулярно-поляризованих оптичних хвиль, які приймають участь в ізотропній АО дифракції [229].

Як вже відзначалося, врахування оптичної активності в одному з найбільш ефективних АО матеріалів, кристалі парателуриту α -TeO₂, призводить до збільшення КАОЯ від $(600-800) \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$ для лінійно-поляризованих оптичних хвиль до $1200 \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$ для циркулярно-поляризованих оптичних хвиль у випадку, коли падаюча та дифрагована оптичні хвилі поширюються в околі оптичної осі [13]. В свою чергу, у роботі [14] було встановлено, що ефективність АО дифракції в оптично активних двовісних кристалах α -HfO₃ значно зростає, коли падаюча та дифрагована оптичні хвилі поширюються вздовж напрямків, близьких до однієї з оптичних осей.

У роботі [187] була розглянута анізотропія КАОЯ в площині XZ для кристалів Pb₅Ge₃O₁₁ без врахування оптичної активності, зумовленої спонтанною електрогірацією, та п'єзоелектричного внеску у швидкість АХ. В свою чергу, в роботі [229] АО взаємодії в кристалах Pb₅Ge₃O₁₁ аналізувалися для випадку поширення падаючої оптичної хвилі під настільки малими кутами відносно оптичної осі, щоб дифрагована оптична хвиля поширювалася строго вздовж оптичної осі. При цьому в роботі [229] було висунуто припущення, що еліптичність падаючої оптичної хвилі дорівнює одиниці, хоча така умова може й не виконуватися у тій чи іншій практичній ситуації.

З огляду на вищевикладене виникають наступні питання, які будуть вирішуватися при дослідженні кристалів $\alpha\text{-SiO}_2$, $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}$ та KH_2PO_4 :

- Чи може врахування еліптичності взаємодіючих оптичних власних хвиль змінити величину ЕПОК?
- Чи може врахування оптичної активності підвищити ефективність АО дифракції для всіх типів ізотропних та анізотропних АО взаємодій?
- Чи відбувається збільшення КАОЯ у випадку, коли оптична активність в кристалах індукується тими чи іншими зовнішніми впливами (зокрема, зовнішнім магнітним полем)?

5.1. Кристали $\alpha\text{-SiO}_2$

Кварц SiO_2 є добре відомим матеріалом, який використовується в оптиці та оптоелектроніці завдяки широкому діапазону прозорості, високій оптичній однорідності, високому порогу оптичного пошкодження та низькому тепловому розширенню [230]. З плавленого кварцу виготовляють різноманітні оптичні елементи, такі як клини, призми, вікна, лінзи тощо. Натомість кристалічний кварц є одним з перших відкритих та одним з найбільш ефективних кристалічних п'єзоелектричних матеріалів, який знаходить своє застосування в широкому діапазоні пристроїв, таких як п'єзоелектричні резонатори [231], осцилятори [232], кварцові годинники [233] тощо.

До АО пристроїв, виготовлених на основі кристалів SiO_2 , належать, зокрема, об'ємні та інтегровані АО модулятори [234, 235], а також керовані АО фільтри [236]. Слід відзначити, що кристали SiO_2 мають достатньо низький КАОЯ – так, зокрема, він становить $(1,48\text{--}2,38) \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$ для випадку АО взаємодії за участю поздовжніх АХ, що пов'язане з високими швидкостями цих АХ, які складають приблизно 6000 м/с [46]. З іншого боку, саме високі швидкості АХ є перевагою для АО пристроїв, оскільки це дозволяє забезпечити їхню високу швидкодію, яка, наприклад, є одним з найважливіших параметрів для лазерів з АО модуляцією добротності [237]. Таким чином, пошук можливих

шляхів збільшення величини КАОЯ в кристалах SiO_2 є доцільним та актуальним завданням.

Кристали $\alpha\text{-SiO}_2$ (низькотемпературна поліморфна модифікація) належать до точкової групи симетрії 32 та можуть існувати у двох енантіоморфних модифікаціях, які відрізняються знаком оптичної активності. Оптична активність кристалів $\alpha\text{-SiO}_2$ становить $1,88 \times 10^4$ °/м при $\lambda = 632,8$ нм [238]. При цьому ненульові компоненти тензора гірації $\mathbf{g}$ правообертових кристалів $\alpha\text{-SiO}_2$ g_{33} та g_{11} при $\lambda = 632,8$ нм дорівнюють відповідно $(10,06 \pm 0,07) \times 10^{-5}$ та $-(4,8 \pm 0,5) \times 10^{-5}$ [239]. Звичайний (n_o) та незвичайний (n_e) показники заломлення кристалів $\alpha\text{-SiO}_2$ становлять відповідно 1,543 та 1,552 [46]. Густина кристалів $\alpha\text{-SiO}_2$ ρ дорівнює 2649 кг/м^3 . Таблиця 5.1 містить інші параметри кристалів $\alpha\text{-SiO}_2$, необхідні для проведення подальших досліджень; при цьому припускається, що дисперсією ПО коефіцієнтів в спектральному діапазоні 589,3–632,8 нм можна знехтувати.

Таблиця 5.1. ПО коефіцієнти p_{ij} ($\lambda = 589,3$ нм) та коефіцієнти жорсткості C_{ij} для кристалів $\alpha\text{-SiO}_2$ [240, 241].

ij	11	12	13	31	33	14	41	44
p_{ij}	0,16	0,27	0,27	0,29	0,10	−0,03	−0,047	−0,079
ij	11	33	12	13	44	66	14	—
$C_{ij}, 10^{10} \text{ Па}$	8,7486	10,72	0,6244	1,191	5,798	4,0626	−1,809	—

Кристалофізична система координат XYZ для кристалів $\alpha\text{-SiO}_2$ обирається таким чином, щоб головні осі X та Z еліпсоїда оптичної індикатрисы були паралельні осям симетрії кристалу другого та третього порядку відповідно, а вісь Y була перпендикулярною до площини XZ .

У подальшому аналізі буде розглядатися АО взаємодія між оптичними хвилями та QL AX або QT AX в площині YZ . Зауважимо, що в площині YZ , на відміну від площини XZ , власні вектори тензора Крістоффеля обертаються лише навколо осі X , а власні значення тензора Крістоффеля можна отримати аналітично. В свою чергу, розгляд АО взаємодії в площині XY є недоцільним

для цього аналізу, оскільки еліптичність оптичних власних хвиль у цій площині є занадто малою, хоча КАОЯ у випадку ізотропної АО взаємодії QL AX з n_e -поляризованою оптичною хвилею в площині XY й досягає глобального максимуму ($2,38 \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$ [46]).

За вищевказаних умов співвідношення (1.6) для еліптичності оптичних власних хвиль та співвідношення (1.7) для скалярного параметра гірації записуються, відповідно, як

$$\chi(\phi) = \frac{n_o^2 - n_e'^2 - ((n_o^2 - n_e'^2)^2 + 4G^2(\phi))^{1/2}}{2G(\phi)} \approx \frac{G(\phi)}{n_o^2 - n_e'^2} \quad (5.1)$$

та

$$G(\phi) = g_{33} \cos^2 \phi + g_{11} \sin^2 \phi, \quad (5.2)$$

де

$$n_e' = \left(\frac{n_o^2 n_e^2}{n_e^2 \cos^2 \phi + n_o^2 \sin^2 \phi} \right)^{1/2}, \quad (5.3)$$

ϕ – кут між напрямком поширення падаючої оптичної хвилі та віссю Z в площині YZ. Кут між падаючою та дифрагрованою оптичними хвилями приймається достатньо малим ($0,2^\circ$) при куті Бреґга θ_B , рівному $0,1^\circ$. Тоді кут θ між напрямком хвильового вектора AX та віссю Y в площині YZ пов'язаний з кутом ϕ співвідношенням

$$\phi = \theta + \theta_B. \quad (5.4)$$

Частота AX Φ у випадку QL AX для $\theta_B = 0,1^\circ$ та швидкості AX $v_{22} = 6022 \text{ м/с}$ дорівнює $49,8 \times 10^6 \text{ Гц}$. Натомість у випадку QT AX для

швидкостей АХ v_{23} та v_{21} за інших рівних умов Φ дорівнює, відповідно, $35,7 \times 10^6$ Гц та $32,7 \times 10^6$ Гц.

Швидкості АХ, отримані з використанням рівняння Крістоффеля (3.30), можуть бути записані як [242]:

$$v_{22}^{QL} = ((C_{11} + C_{44})\cos^2 \theta + (C_{44} + C_{33})\sin^2 \theta - C_{14}\sin 2\theta + \\ + (((C_{11} - C_{44})\cos^2 \theta + (C_{44} - C_{33})\sin^2 \theta - C_{14}\sin 2\theta)^2 + \\ + ((C_{13} + C_{44})\sin 2\theta - 2C_{14}\cos^2 \theta)^2)^{1/2} / (2\rho)^{1/2}, \quad (5.5)$$

$$v_{23}^{QT_1} = ((C_{11} + C_{44})\cos^2 \theta + (C_{44} + C_{33})\sin^2 \theta - C_{14}\sin 2\theta - \\ - (((C_{11} - C_{44})\cos^2 \theta + (C_{44} - C_{33})\sin^2 \theta - C_{14}\sin 2\theta)^2 + \\ + ((C_{13} + C_{44})\sin 2\theta - 2C_{14}\cos^2 \theta)^2)^{1/2} / (2\rho)^{1/2}, \quad (5.6)$$

$$v_{21}^{QT_2} = (C_{66}\cos^2 \theta + C_{44}\sin^2 \theta + C_{14}\sin 2\theta)^{1/2} / (\rho)^{1/2}. \quad (5.7)$$

Для кристалів точкової групи симетрії 32 кут орієнтації вектора зміщення QL АХ ζ_1 , розрахований з використанням тензора Крістоффеля (3.31), дорівнює

$$\zeta_1 = \frac{1}{2} \arctg \frac{(C_{13} + C_{44})\sin 2\theta - 2C_{14}\cos^2 \theta}{(C_{11} - C_{44})\cos^2 \theta + (C_{44} - C_{33})\sin^2 \theta - C_{14}\sin 2\theta}; \quad (5.8)$$

причому зауваження щодо позначень в таких формулах та їхнього застосування у випадку QT АХ викладені у параграфі 3.2.2.

Слід зауважити, що при виведенні аналітичних виразів для ЕПОК в кристалах α -SiO₂ буде використовуватися параметр $\mu_1(\theta) = \theta - \zeta_1(\theta)$, який характеризує неортогональність поляризацій власних АХ, подібно до параметру $\eta(\theta)$ (3.83), та визначає кут повороту власної системи координат тензора Крістоффеля навколо осі Х. При цьому в аналізованому випадку QT₂ АХ являє собою PT₂ АХ

Співвідношення для ЕПОК для типів I та II АО взаємодії в кристалах α -SiO₂ є наступними [242]:

$$\begin{aligned}
 (p_{eff}^{(I)})^2 = & (p_{12} \cos \theta \cos \mu_1 + p_{13} \sin \theta \sin \mu_1)^2 + \chi^2 \times \\
 & \times [(p_{11} \cos \theta \cos \mu_1 + p_{13} \sin \theta \sin \mu_1 - p_{14} \sin(\mu_1 + \theta))^2 \cos^4 \theta + \\
 & + (p_{31} \cos \theta \cos \mu_1 + p_{33} \sin \theta \sin \mu_1)^2 \sin^4 \theta + 0,5 p_{44}^2 \times \\
 & \times \sin^2(\mu_1 + \theta) \sin^2 2\theta + p_{44} (p_{11} \cos \theta \cos \mu_1 + p_{13} \sin \theta \sin \mu_1 - \\
 & - p_{14} \sin(\mu_1 + \theta)) \sin(\mu_1 + \theta) \sin 2\theta \cos^2 \theta + p_{44} \sin(\mu_1 + \theta) \times \\
 & \times (p_{31} \cos \theta \cos \mu_1 + p_{33} \sin \theta \sin \mu_1) \sin 2\theta \sin^2 \theta],
 \end{aligned} \tag{5.9}$$

$$\begin{aligned}
 (p_{eff}^{(II)})^2 = & ((p_{11} \cos \theta \cos \mu_1 + p_{13} \sin \theta \sin \mu_1 - p_{14} \sin(\mu_1 + \theta))^2 \times \\
 & \times \cos^2 \theta + (p_{44} \sin(\mu_1 + \theta) - p_{41} \cos \theta \cos \mu_1)^2 \sin^2 \theta) \times \\
 & \times \cos^2(\theta_B + \theta) + ((p_{11} \cos \theta \cos \mu_1 + p_{13} \sin \theta \sin \mu_1 - \\
 & - p_{14} \sin(\mu_1 + \theta)) \cos^2 \theta + (p_{31} \cos \theta \cos \mu_1 + p_{33} \sin \theta \sin \mu_1) \times \\
 & \times \sin^2 \theta) (p_{44} \sin(\mu_1 + \theta) - p_{41} \cos \theta \cos \mu_1) \sin 2(\theta_B + \theta) + \\
 & + ((p_{44} \sin(\mu_1 + \theta) - p_{41} \cos \theta \cos \mu_1)^2 \cos^2 \theta + \\
 & + (p_{31} \cos \theta \cos \mu_1 + p_{33} \sin \theta \sin \mu_1)^2 \sin^2 \theta) \sin^2(\theta_B + \theta) + \\
 & + \chi^2 [p_{12} \cos \theta \cos \mu_1 + p_{13} \sin \theta \sin \mu_1 + p_{14} \sin(\mu_1 + \theta)]^2.
 \end{aligned} \tag{5.10}$$

Натомість для типів III та IV АО взаємодії в кристалах α -SiO₂ співвідношення для ЕПОК записуються наступним чином [242]:

$$\begin{aligned}
 (p_{eff}^{(III)})^2 = & (p_{13} \sin \theta \cos \mu_1 - p_{12} \cos \theta \sin \mu_1 + p_{14} \cos(\mu_1 + \theta))^2 + \\
 & + \chi^2 [(p_{13} \sin \theta \cos \mu_1 - p_{11} \cos \theta \sin \mu_1 - p_{14} \cos(\mu_1 + \theta))^2 \cos^4 \theta + \\
 & + (p_{33} \sin \theta \cos \mu_1 - p_{31} \cos \theta \sin \mu_1)^2 \sin^4 \theta + 0,5 (p_{41} \sin \theta \cos \mu_1 + \\
 & + p_{44} \cos(\mu_1 + \theta))^2 \sin^2 2\theta + (p_{13} \sin \theta \cos \mu_1 - p_{11} \cos \theta \sin \mu_1 - \\
 & - p_{14} \cos(\mu_1 + \theta)) (p_{41} \sin \theta \cos \mu_1 + p_{44} \cos(\mu_1 + \theta)) \times \\
 & \times \sin 2\theta \cos^2 \theta + (p_{41} \sin \theta \cos \mu_1 + p_{44} \cos(\mu_1 + \theta)) \times \\
 & \times (p_{33} \sin \theta \cos \mu_1 - p_{31} \cos \theta \sin \mu_1) \sin 2\theta \sin^2 \theta],
 \end{aligned} \tag{5.11}$$

$$\begin{aligned}
(p_{eff}^{(IV)})^2 = & ((p_{13} \sin \theta \cos \mu_1 - p_{11} \cos \theta \sin \mu_1 - p_{14} \cos(\mu_1 + \theta))^2 \times \\
& \times \cos^2 \theta + (p_{44} \cos(\mu_1 + \theta) + p_{41} \cos \theta \sin \mu_1)^2 \sin^2 \theta) \times \\
& \times \cos^2(\theta_B + \theta) + ((p_{13} \sin \theta \cos \mu_1 - p_{11} \cos \theta \sin \mu_1 - \\
& - p_{14} \cos(\mu_1 + \theta)) \cos^2 \theta + (p_{33} \sin \theta \cos \mu_1 - p_{31} \cos \theta \sin \mu_1) \times \\
& \times \sin^2 \theta)(p_{44} \cos(\mu_1 + \theta) + p_{41} \cos \theta \sin \mu_1) \sin 2(\theta_B + \theta) + \\
& + (p_{13} \sin \theta \cos \mu_1 - p_{12} \cos \theta \sin \mu_1 + p_{14} \cos(\mu_1 + \theta))^2 + \\
& + \chi^2 [((p_{44} \cos(\mu_1 + \theta) + p_{41} \cos \theta \sin \mu_1)^2 \cos^2 \theta + \\
& + (p_{33} \sin \theta \cos \mu_1 - p_{31} \cos \theta \sin \mu_1)^2 \sin^2 \theta) \sin^2(\theta_B + \theta)].
\end{aligned} \tag{5.12}$$

Й, нарешті, співвідношення для ЕПОК для типів V та VI АО взаємодії в кристалах α -SiO₂ можна представити як [242]

$$\begin{aligned}
(p_{eff}^{(V)})^2 = & p_{14}^2 \sin^2 \theta + 0,25 \chi^2 [(p_{44}^2 \sin^2 \theta - \\
& - p_{14}^2 \cos^2 \theta) \sin^2 2\theta - p_{14} p_{44} \sin^3 2\theta],
\end{aligned} \tag{5.13}$$

$$\begin{aligned}
(p_{eff}^{(VI)})^2 = & (p_{44}^2 \sin^4 \theta - 0,25 p_{14}^2 \sin^2 2\theta) \times \\
& \times \cos^2(\theta_B + \theta) + 0,25 p_{44} (p_{44} \sin^2(\theta_B + \theta) - \\
& - p_{14} \sin 2(\theta_B + \theta)) \sin^2 2\theta + \chi^2 p_{14}^2 \sin^2 \theta.
\end{aligned} \tag{5.14}$$

Аналізуючи перерізи поверхонь швидкостей АХ для кристалів α -SiO₂ головними площинами кристалофізичної системи координат XYZ (Рисунок 5.1, Рисунок 5.2), можна побачити, що акустична вісь цих кристалів паралельна осі Z – тобто, вздовж неї з однаковою швидкістю поширюються QT АХ з ортогональними поляризаціями. Ця акустична вісь зумовлена симетрією кристалу α -SiO₂ [16]. Натомість різниця швидкостей QT АХ з ортогональними поляризаціями при поширенні під кутами 33° та 147° до осі X в площині XZ становить близько 156 м/с, а при поширенні під кутом 157° до осі Y в площині YZ – близько 20 м/с, з огляду на що ці напрямки не можна віднести до акустичних осей. Й, нарешті, у площині XY акустичні осі не реалізуються.

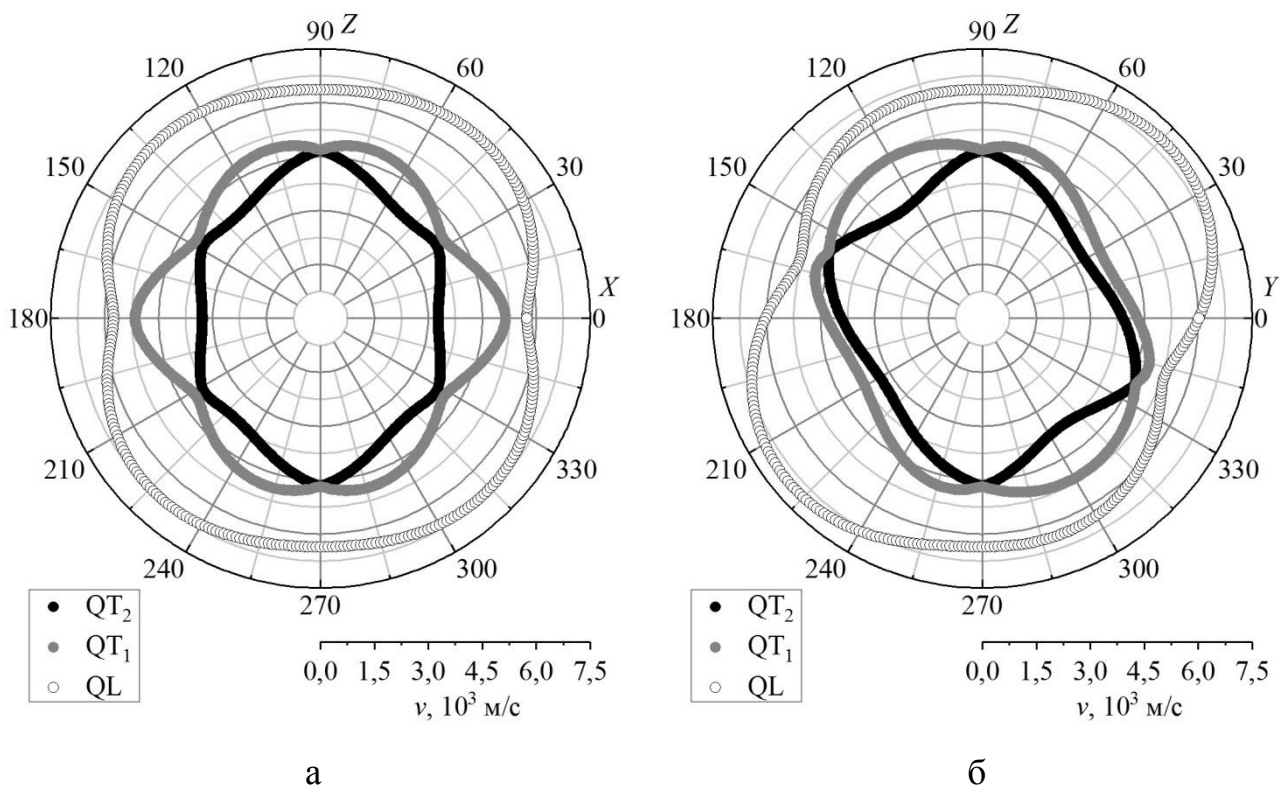


Рисунок 5.1. Перерізи поверхонь швидкостей AX площинами XZ (а) та YZ (б) для кристалів α - SiO_2 [242].

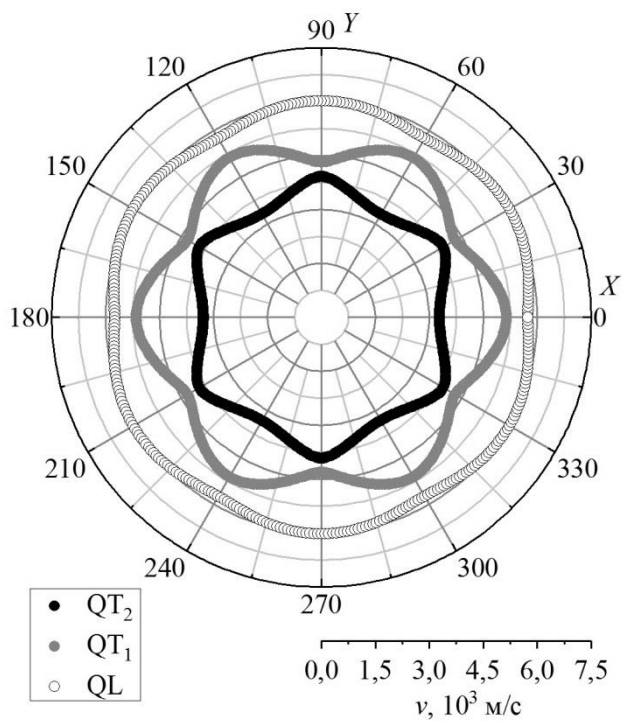


Рисунок 5.2. Переріз поверхонь швидкостей AX площиною XY для кристалів α - SiO_2 [242].

Розглядаючи залежність $\mu_1 = \mu_1(\theta)$ в площині YZ для кристалів $\alpha\text{-SiO}_2$ (Рисунок 5.3), можна побачити, що кут μ_1 дорівнює нулю, коли $\theta = 40,5^\circ$; $90,0^\circ$; $107,5^\circ$; $162,0^\circ$. Натомість при $\theta = 150^\circ$ спостерігається максимум кута μ_1 ($20,0^\circ$), а при $\theta = 175^\circ$ – його мінімум ($-26,3^\circ$).

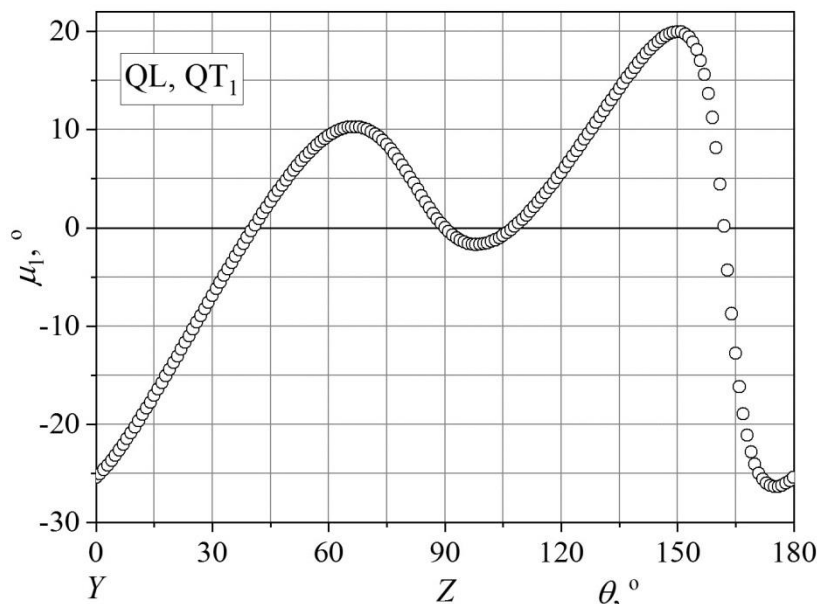


Рисунок 5.3. Залежність $\mu_1 = \mu_1(\theta)$ у площині YZ для кристалів $\alpha\text{-SiO}_2$ [242].

Для типів I–IV АО взаємодії ЕПОК та КАОЯ пікоподібно зростають при поширенні падаючої та дифрагованої оптичних хвиль в околі оптичної осі за рахунок врахування еліптичності оптичних власних хвиль, зумовленої природною оптичною активністю. Такі напрямки поширення оптичних хвиль відповідають напрямку поширення АХ, майже паралельному осі Y ($\theta \approx 0^\circ$). При цьому для оцінки піку КАОЯ вводиться параметр ШНВ піку КАОЯ, під якою розуміється різниця між двома значеннями кутів θ у певному визначеному піку, для яких приріст КАОЯ дорівнює половині пікового приросту КАОЯ.

Так, для типу I АО взаємодії (Рисунок 5.4) ЕПОК зростає з 0,23 до 0,28, що призводить до збільшення КАОЯ з $1,08 \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$ до $1,58 \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$. При цьому ШНВ піку КАОЯ приблизно дорівнює 4° .

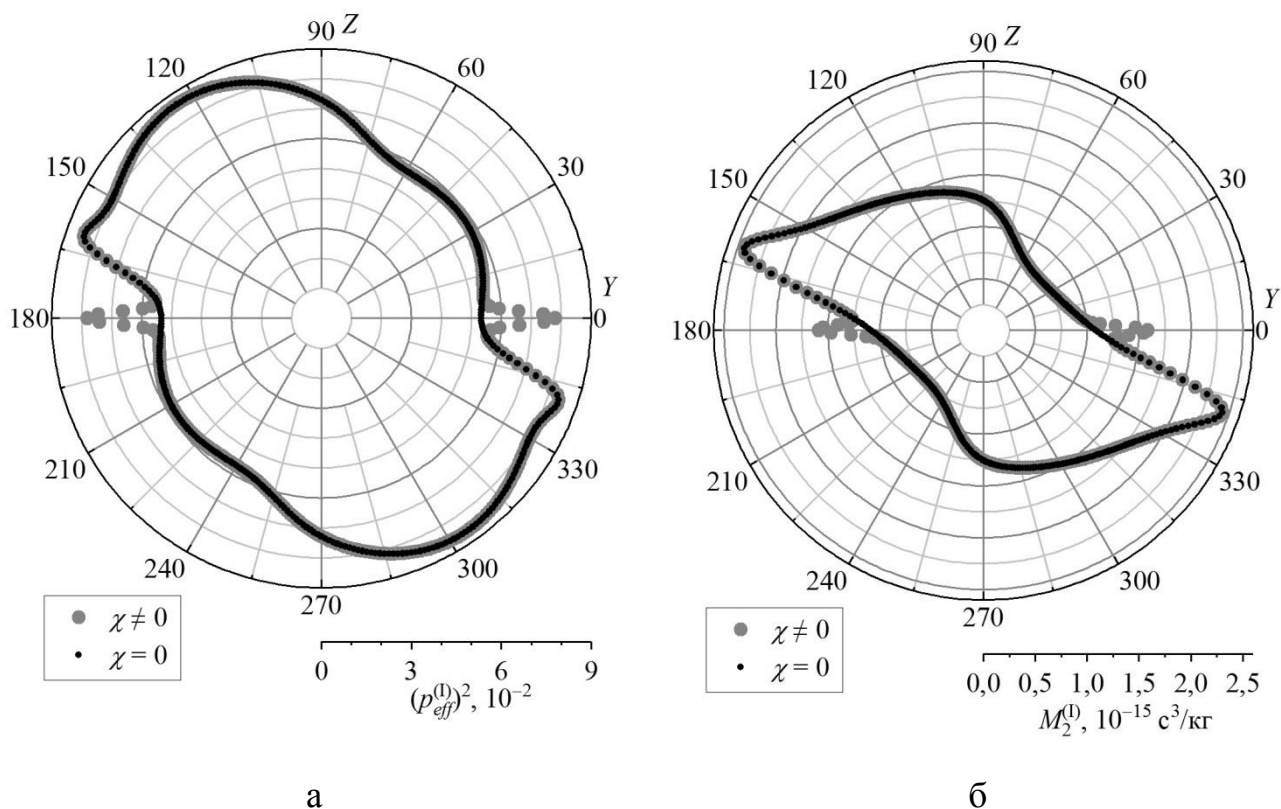
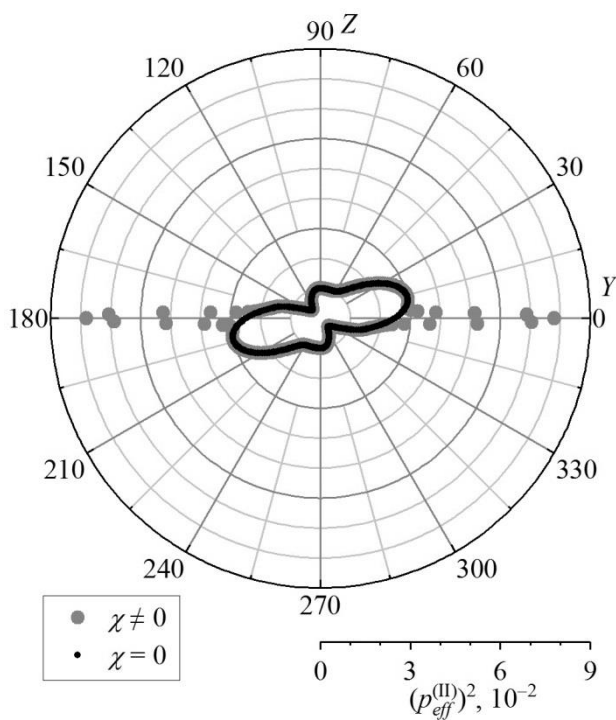


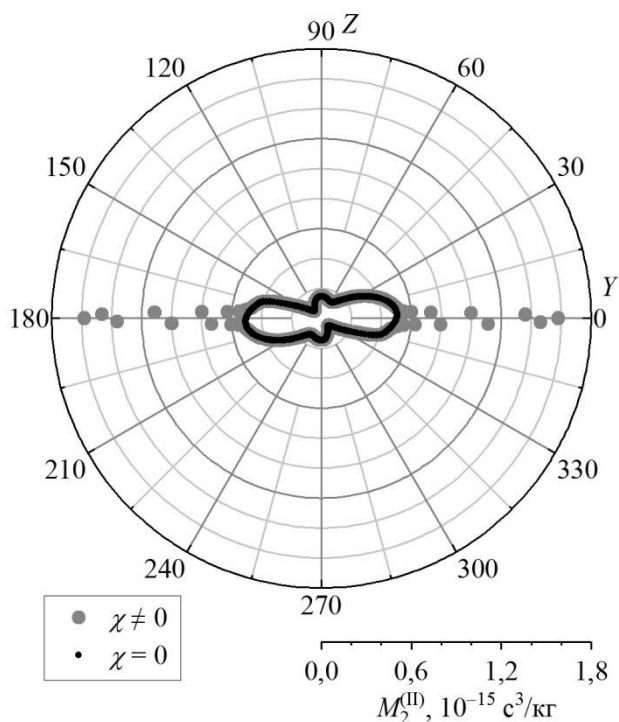
Рисунок 5.4. Залежності квадрату ЕПОК (а) та КАОЯ (б) від кута θ для типу I АО взаємодії в площині YZ кристалів α -SiO₂ [242].

Натомість для типу II АО взаємодії (Рисунок 5.5) ЕПОК зростає від 0,16 до 0,28, що призводить до збільшення КАОЯ з $0,50 \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$ до $1,58 \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$. При цьому ШНВ піку КАОЯ приблизно дорівнює 4° .

Для типів III та IV АО взаємодії також спостерігається збільшення ЕПОК та КАОЯ за рахунок врахування еліптичності оптичних власних хвиль. Так, зокрема, для типу III АО взаємодії (Рисунок 5.6) КАОЯ зростає з $1,12 \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$ до $1,22 \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$; при цьому ШНВ піку КАОЯ приблизно дорівнює 4° . В свою чергу, для типу IV АО взаємодії (Рисунок 5.7) збільшення ЕОПК та КАОЯ за рахунок врахування еліптичності оптичних власних хвиль є ще більш суттєвим. Й дійсно, для типу IV АО взаємодії КАОЯ підвищується більш ніж на порядок (а саме, з $9,6 \times 10^{-17} \text{ с}^3/\text{кг}$ до $1,22 \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$); при цьому ШНВ піку КАОЯ приблизно дорівнює 4° .

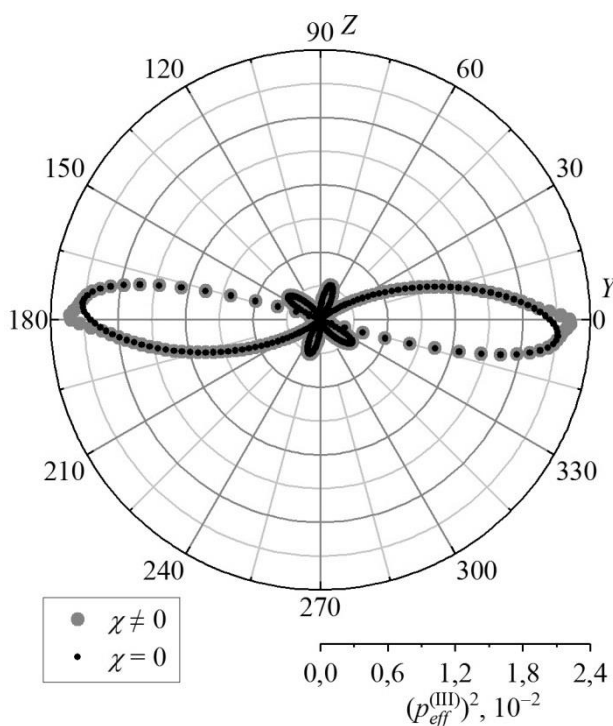


а

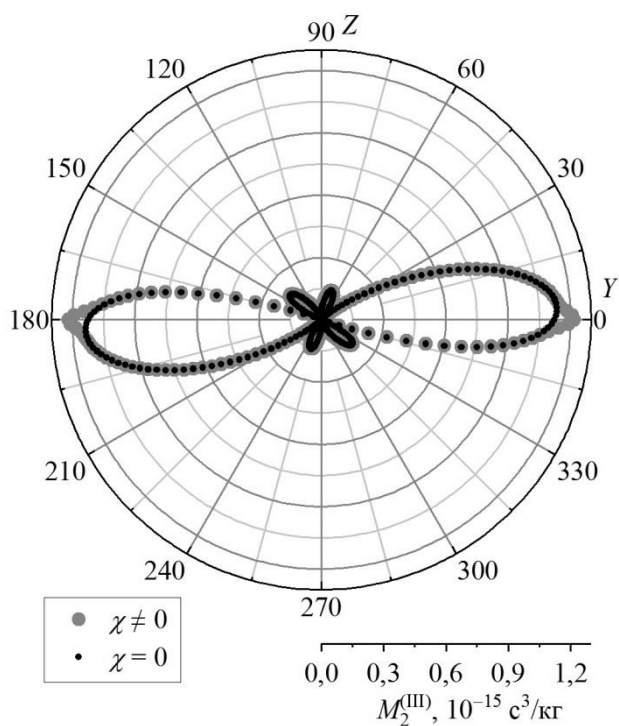


б

Рисунок 5.5. Залежності квадрату ЕПОК (а) та КАОЯ (б) від кута θ для типу II АО взаємодії в площині YZ кристалів α -SiO₂ [242].



а



б

Рисунок 5.6. Залежності квадрату ЕПОК (а) та КАОЯ (б) від кута θ для типу III АО взаємодії в площині YZ кристалів α -SiO₂ [242].

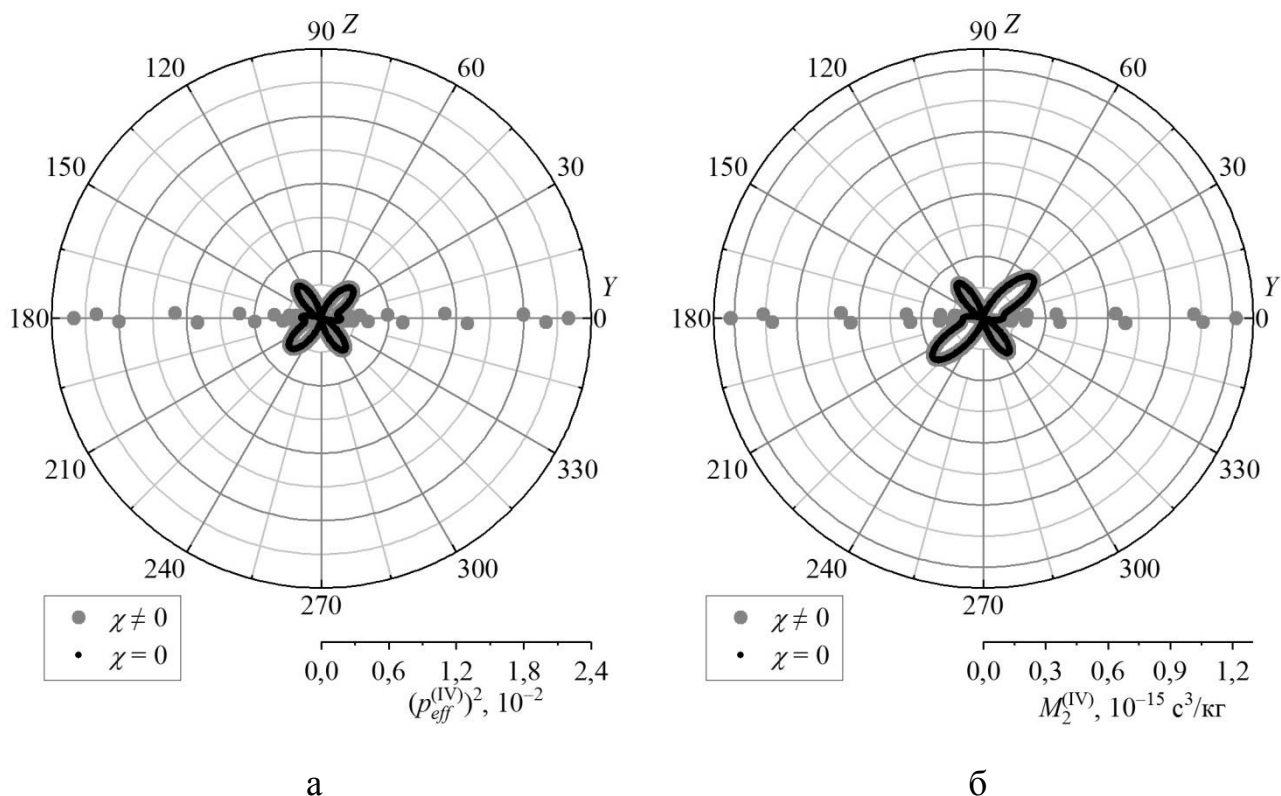
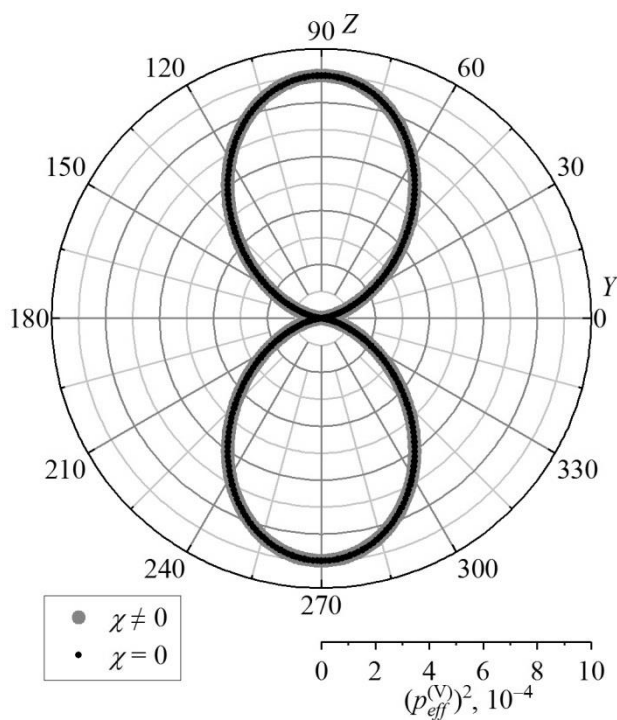


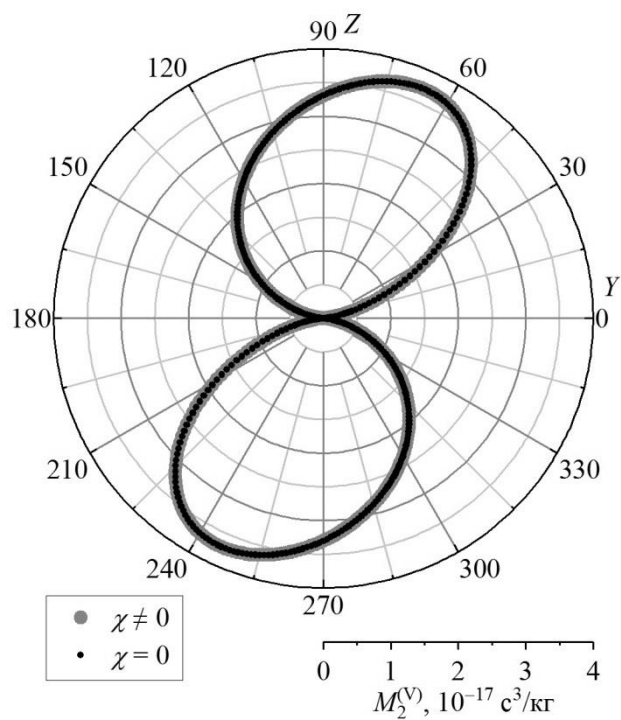
Рисунок 5.7. Залежності квадрату ЕПОК (а) та КАОЯ (б) від кута θ для типу IV АО взаємодії в площині YZ кристалів α -SiO₂ [242].

Для типів V (Рисунок 5.8) та VI (Рисунок 5.9) АО взаємодії збільшення ЕПОК та КАОЯ за рахунок врахування еліптичності оптичних власних хвиль не спостерігається. Причому з рівнянь (5.13) та (5.14) можна побачити, що при $\theta = 0^\circ$ ЕПОК для цих типів АО взаємодії дорівнюють нулю.

Аналізуючи залежність приросту КАОЯ від частоти АХ Φ в кристалах α -SiO₂ на прикладі типу II АО взаємодії (Рисунок 5.10), можна побачити, що зі збільшенням частоти АХ Φ з $49,8 \times 10^6$ Гц до 10^9 Гц пік приросту КАОЯ зміщується приблизно на 3° . При цьому його висота зростає з $1,08 \times 10^{-15}$ с³/кг до $1,13 \times 10^{-15}$ с³/кг. Зазначений кутовий зсув пов'язаний із залежностями незвичайного показника заломлення n'_e (5.3), еліптичності оптичних власних хвиль χ (5.1) та ЕПОК p_{eff} (5.10) від кута Брегга θ_B , який, в свою чергу, залежить від частоти АХ Φ .

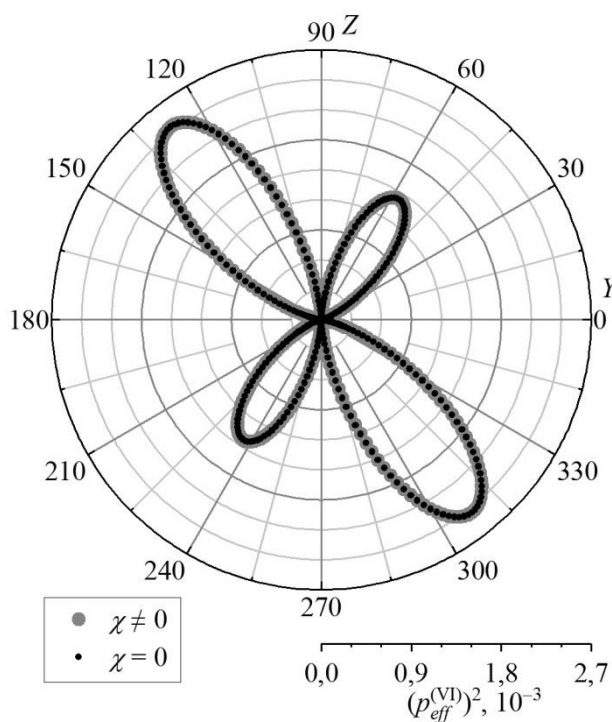


а

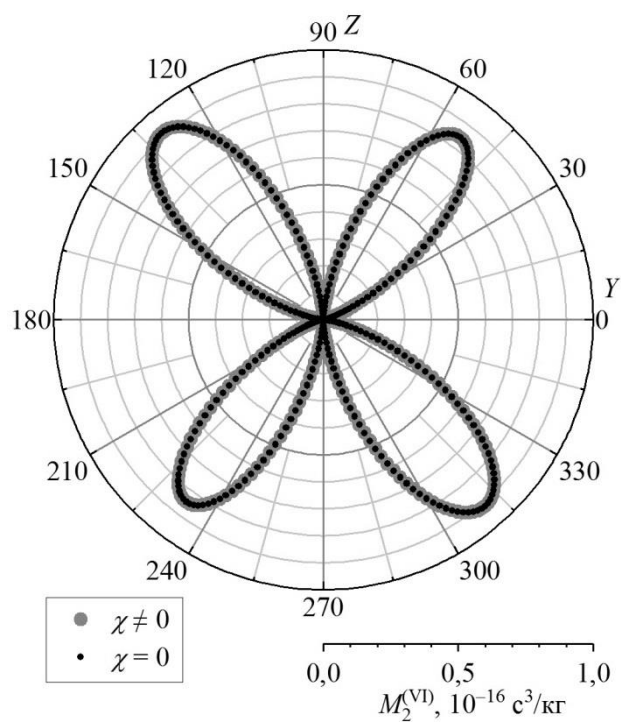


б

Рисунок 5.8. Залежності квадрату ЕПОК (а) та КАОЯ (б) від кута θ для типу V АО взаємодії в площині YZ кристалів α -SiO₂ [242].



а



б

Рисунок 5.9. Залежності квадрату ЕПОК (а) та КАОЯ (б) від кута θ для типу VI АО взаємодії в площині YZ кристалів α -SiO₂ [242].

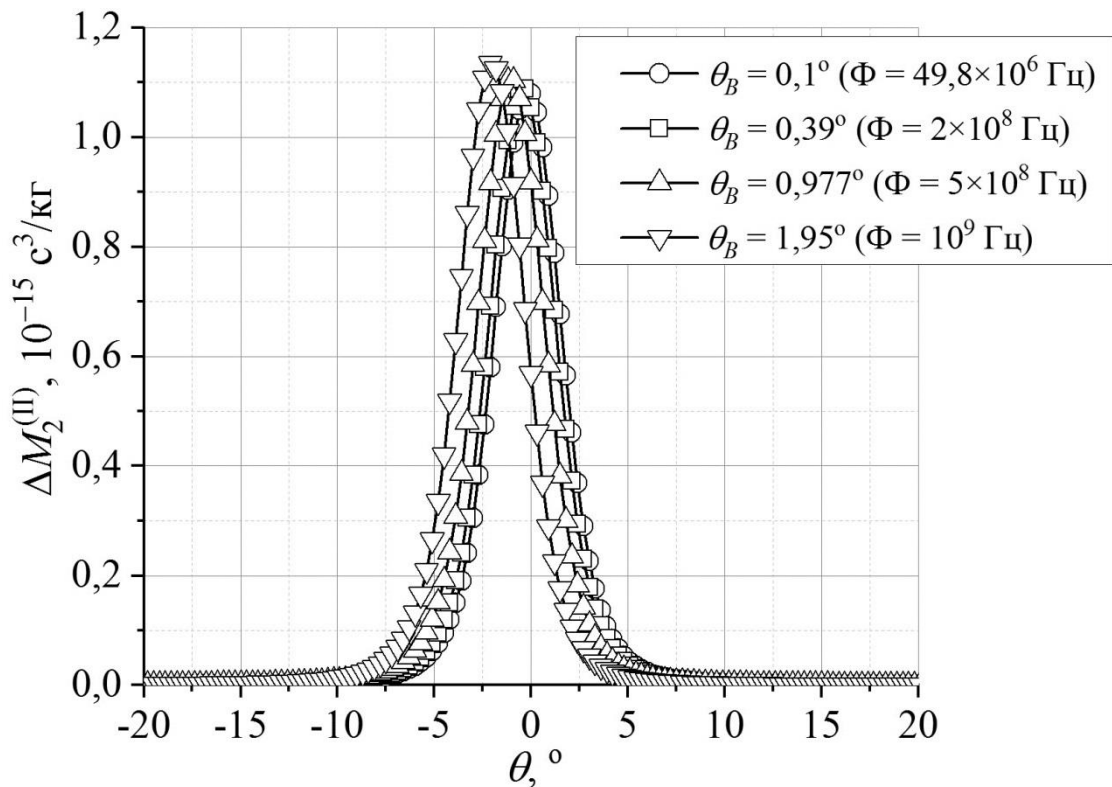


Рисунок 5.10. Залежності приросту КАОЯ від кута θ для типу II АО взаємодії в площині YZ кристалів α -SiO₂ при різних частотах АХ Φ [242].

Слід зауважити, що, з огляду на співвідношення (5.4), для кута θ , який дорівнює половині ШНВ піку КАОЯ (тобто, становить близько 2°), та при $\theta_B > 0,1^\circ$ кут ϕ є меншим, ніж $1,9^\circ$, й при такому малому куті падіння відносно осі Z еліптичність оптичної власної хвилі (5.1) є більшою за 0,96. Це означає, що немає необхідності зрівнювати поляризацію падаючої оптичної хвилі з поляризацією еліптично-поляризованої власної оптичної хвилі – замість цього можна використовувати падаючу циркулярно-поляризовану оптичну хвилю.

Таким чином, результати проведеного аналізу демонструють, що ефективність АО дифракції при взаємодії з еліптично-поляризованими (або циркулярно-поляризованими) оптичними хвилями в кристалах α -SiO₂ може бути збільшена. Так, наприклад, при типі II АО взаємодії досягнення тієї ж самої величини ефективності АО дифракції η , з огляду на співвідношення (3.4), можна забезпечити при втричі меншому значенні потужності АХ P_a за інших рівних умов.

Крім того, було виявлено нову перспективну геометрію АО взаємодії в кристалах α -SiO₂, яка зумовлена врахуванням еліптичності оптичних власних хвиль. Нею є ізотропна АО взаємодія n_e -поляризованої оптичної хвилі з QT₁ АХ (тип IV АО взаємодії), що поширюється вздовж осі Y. За такої геометрії АО взаємодії КАОЯ, завдяки врахуванню еліптичності оптичних власних хвиль, зростає від майже нульового значення до $1,22 \times 10^{-15}$ с³/кг. З іншого боку, хоча КАОЯ для типів II, III та IV АО взаємодії, проаналізованих вище, й помітно зростає у разі врахування еліптичності оптичних власних хвиль, він все ж таки є меншим за значення $2,38 \times 10^{-15}$ с³/кг, яке досягається за рахунок достатньо високого ПО коефіцієнта $p_{31} = 0,29$ в площині XY для ізотропної АО взаємодії n_e -поляризованої оптичної хвилі з QL АХ, що поширюється вздовж осі X [46].

5.2. Кристали Pb₅Ge₃O₁₁

Основні оптичні характеристики кристалів Pb₅Ge₃O₁₁ наведені в підрозділах 1.2 та 1.3. Так, зокрема, оптична активність кристалів Pb₅Ge₃O₁₁, викликана спонтанною електрогірацією, для напрямку поширення світла, паралельного оптичній осі, становить $5,58 \times 10^3$ °/м при $\lambda = 632,8$ нм; при цьому перемикання напрямку спонтанної електричної поляризації на протилежний змінює знак оптичної активності [19]. Відповідні компоненти тензора гірації **g** для кристалів Pb₅Ge₃O₁₁ дорівнюють $g_{33} = 4,16 \times 10^{-5}$ [14] та $g_{11} = 10,5 \times 10^{-5}$ при $\lambda = 632,8$ нм [243]. При цьому монокристали Pb₅Ge₃O₁₁ можуть бути як лівооберттовими, так й правооберттовими, оскільки їхні домени з протилежними знаками спонтанної електричної поляризації є енантіоморфними. Звичайний та незвичайний показники заломлення кристалів Pb₅Ge₃O₁₁ дорівнюють відповідно $n_o = 2,116$ та $n_e = 2,151$ при $\lambda = 632,8$ нм [14], а густина цих кристалів становить $\rho = 7330$ кг/м³ [244].

Як вже зазначалося у Розділі 1, максимальне значення КАОЯ, $22,2 \times 10^{-15}$ с³/кг, для полідоменних кристалів Pb₅Ge₃O₁₁ спостерігається у випадку АО взаємодії в площині XY ($Z \parallel c$, $X \parallel a$) звичайної оптичної хвилі

($\lambda = 632,8$ нм), яка поширюється в напрямку осі Y , з поздовжньою АХ ($v = 3010$ м/с), яка поширюється в напрямку осі X [15], що відповідає типу І АО взаємодії згідно з класифікацією, яка використовується у цьому дисертаційному дослідженні.

Для дослідження впливу оптичної активності на АО взаємодію в кристалах $Pb_5Ge_3O_{11}$ було обрано правообертовий монодомений кристал. В такому випадку незвичайна оптична хвиля є правою циркулярно-поляризованою оптичною хвилею, а звичайна оптична хвиля – лівою циркулярно-поляризованою оптичною хвилею.

Таблиця 5.2 містить інші параметри кристалів $Pb_5Ge_3O_{11}$, необхідні для проведення подальшого аналізу.

Таблиця 5.2. Коефіцієнти жорсткості $(C_E)_{ij}$, ПО коефіцієнти p_{ij} ($\lambda = 632,8$ нм) та п'єзоелектричні коефіцієнти d_{ij} для кристалів $Pb_5Ge_3O_{11}$.

ij	$(C_E)_{ij}, 10^{10}$ Па [245]	ij	p_{ij} [229, 246]	ij	p_{ij} [229, 246]	ij	$d_{ij}, \text{Кл/м}^2$ [245]
11	6,84	11	0,162±0,009	16	-0,008±0,001	11	0
12	2,68	12	0,177±0,005	41	0,005±0,013	14	0
13	1,79	13	0,119±0,006	51	-0,002±0,013	15	0,08
33	9,43	31	0,136±0,016	44	-0,025±0,012	22	0,09
14	0	14	0,005±0,006	45	-0,003±0,014	31	0,61
25	0,12	15	0,011±0,002	33	0,159±0,009	33	0,77
44	2,26	11	0,162±0,009	16	-0,008±0,001	11	0
66	2,08	—	—		—		—

В монодоменому стані кристал $Pb_5Ge_3O_{11}$ є п'єзоелектриком (Таблиця 5.2), однак в полідоменому стані п'єзоелектричний ефект нівелюється, оскільки п'єзоелектричні коефіцієнти d_{ij} мають протилежні знаки в доменах з протилежною спонтанною поляризацією.

Як відомо, врахування п'єзоелектричного ефекту при поширенні АХ в кристалічному середовищі, строго кажучи, зводиться до заміни в рівнянні Крістоффеля (3.30) тензора Крістоффеля $\mathbf{M}$ (3.31) на тензор $\mathbf{M} + \Delta\mathbf{M}$, де $\Delta\mathbf{M}$ –

терм, зумовлений п'єзоелектричним ефектом [16]. Для того, щоб перевірити реальний ступінь впливу п'єзоелектричного ефекту на результати подальшого аналізу, швидкості АХ v_{ij} в кристалах $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}$ були визначені експериментально ехо-імпульсним методом [180] при температурі $T = 293 \text{ K}$ (Рисунок 3.4). Вочевидь, ці експериментально отримані швидкості АХ v_{ij} містять внески, зумовлені п'єзоелектричним ефектом (Таблиця 5.3).

З одного боку, коефіцієнти жорсткості C_{ij} були розраховані з рівняння Крістоффеля (3.30), в якому фігурує тензор Крістоффеля $\mathbf{M}$ (3.31), з використанням експериментально отриманих швидкостей АХ v_{ij} . З іншого боку, коефіцієнти жорсткості C_{ij} були обчислені за відомими з роботи [245] коефіцієнтами жорсткості $(C_E)_{ij}$ (Таблиця 5.2) як

$$C_{ij} = (C_E)_{ij} + \Delta C_{ij} = (C_E)_{ij} + \frac{d_{ik}d_{jk}}{\varepsilon_0(\varepsilon_\sigma)_k}, \quad (5.15)$$

де $(\varepsilon_\sigma)_k$ – діелектрична проникність у механічно незатиснутому кристалі $((\varepsilon_\sigma)_1 = 22, (\varepsilon_\sigma)_3 = 39)$ [247].

Таблиця 5.3. Експериментально визначені швидкості АХ v_{ij} , коефіцієнти жорсткості C_{ij} , розраховані з рівняння Крістоффеля, та внески до них, зумовлені п'єзоелектричним ефектом, ΔC_{ij} для кристалів $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}$ [247].

ij	$v_{ij}, \text{ м/с}$	ij	$v_{ij}, \text{ м/с}$	ij	$C_{ij}, 10^{10} \text{ Па}$	$\Delta C_{ij}, 10^{10} \text{ Па}$
11	3042±27	21	1694±5	11	6,83±0,09	0
22	3038±24	13	1773±11	12	2,80±0,09	0,004
33	3555±6	31	1729±6	13	1,71±0,52	0,005
55	3170±16	32	1729±6	33	9,34±0,03	0,170
12	1652±6	23	1736±19	14	0	0
$\bar{4}4$	2007±18	41	1766±2	25	0,14±0,08	0,003
–	–	–	–	44	2,27±0,04	0,003

Як можна бачити, всі внески ΔC_{ij} , окрім ΔC_{33} , є меншими, ніж точність розрахунку відповідних коефіцієнтів жорсткості C_{ij} з рівняння Крістоффеля

(Таблиця 5.3). В свою чергу, навіть внесок ΔC_{33} не перевищує 2 % від величини C_{ij} . З огляду на це в подальших розрахунках можуть бути використані коефіцієнти жорсткості C_{ij} (Таблиця 5.3), а також ПО коефіцієнти p_{ij} (Таблиця 5.2), в яких враховано вторинний ПО ефект, викликаний п'єзоелектричним та електрооптичним ефектами.

Оскільки кристали $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}$ в сегнетоелектричній фазі мають найнижчу симетрію серед оптично одновісних кристалічних матеріалів (точкова група симетрії 3), вони можуть слугувати прийнятним модельним об'єктом для досліджень анізотропії КАОЯ, які будуть здійснюватися в площині XZ .

Кристалοфізична система координат XYZ для кристалів $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}$ обирається таким чином, щоб головні осі X та Z еліпсоїда оптичної індикатриси були паралельні кристалографічним напрямкам $[2\bar{1}\bar{1}0]$ та $[0001]$ відповідно, а вісь Y була перпендикулярною до площини XZ .

Для отримання ЕПОК в цьому дослідженні використовується метод, висвітлений у параграфі 3.2.1, який заснований на рівняннях зв'язаних хвиль для АО дифракції Брегга [2] та полягає у пошуку приростів (3.1) компонент тензора діелектричної непроникності $\mathbf{B}$, що виникають під впливом деформацій, індукованих AX [247].

Так, компоненти тензора деформацій, викликані QL AX , задаються формулами

$$\begin{aligned} e_1 &= \cos \zeta_2 \cos \theta, \\ e_3 &= \sin \zeta_2 \sin \theta, \\ e_5 &= \sin(\zeta_2 + \theta), \end{aligned} \tag{5.16}$$

де θ – кут між хвильовим вектором AX та віссю X , та ζ_2 – кут між вектором зміщення QL AX та віссю X .

В свою чергу, компоненти тензора деформацій, викликані QT AX , поляризованою у площині XZ (QT_1 AX), записуються як

$$\begin{aligned}
e_1 &= -\sin \zeta_2 \cos \theta, \\
e_3 &= \cos \zeta_2 \sin \theta, \\
e_5 &= \cos(\zeta_2 + \theta),
\end{aligned}
\tag{5.17}$$

Й, нарешті, компоненти тензора деформацій, викликані РТ АХ, поляризованою паралельно осі Y ($PT_2 AX$), є наступними:

$$\begin{aligned}
e_6 &= \cos \theta, \\
e_4 &= \sin \theta.
\end{aligned}
\tag{5.18}$$

Рисунок 5.11 демонструє умови фазового синхронізму для ізоотропної та анізотропної АО дифракцій в кристалах $Pb_5Ge_3O_{11}$.

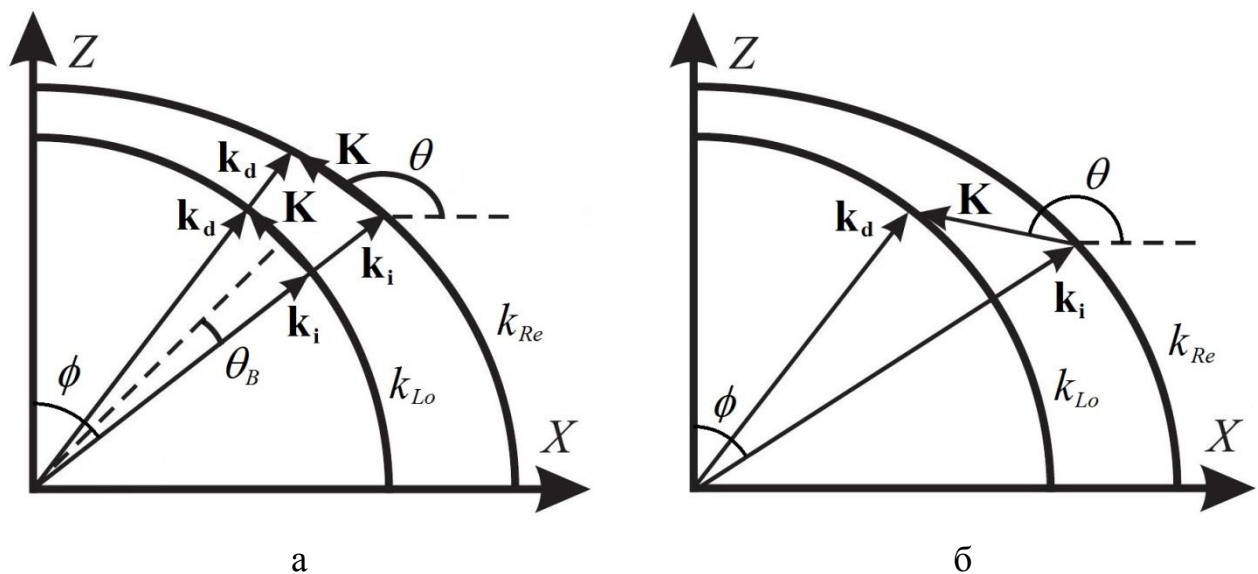


Рисунок 5.11. Схематична векторна діаграма ізоотропної (а) та анізотропної (б) АО дифракцій в кристалах $Pb_5Ge_3O_{11}$: k_i , k_d та K – хвильові вектори відповідно падаючої оптичної хвилі, дифрагованої оптичної хвилі та АХ; k_{Lo} та k_{Re} – перерізи вказівних поверхонь хвильових векторів для лівої звичайної та правої незвичайної циркулярно-поляризованих оптичних хвиль відповідно [247].

В цьому випадку еліптичність оптичних власних хвиль χ (5.1), скалярний параметр гірації G (5.2) та показник заломлення n'_e (5.3) залежать від кута ϕ між напрямком поширення падаючої оптичної хвилі та віссю Z [17, 246]. Причому, оскільки кут між падаючою та дифрагованою оптичними хвилями є достатньо малим ($\sim 1^\circ$), ним можна знехтувати.

Врахування еліптичності оптичних власних хвиль у випадку типу I АО взаємодії призводить до появи трьох компонент напруженості електричного поля дифрагованої оптичної хвилі, а не однієї компоненти E_2 , як у випадку нехтування еліптичністю [247]:

$$\begin{aligned} E_1 &= \varepsilon_0^{-1}(\chi\Delta B_{11}D_2 \cos\theta + \chi\Delta B_{13}D_2 \sin\theta)\cos\theta, \\ E_2 &= \varepsilon_0^{-1}(\chi\Delta B_{12}D_2 \cos\theta + \Delta B_{22}D_2 + \chi\Delta B_{23}D_2 \sin\theta), \\ E_3 &= \varepsilon_0^{-1}(\chi\Delta B_{13}D_2 \cos\theta + \chi\Delta B_{33}D_2 \sin\theta)\sin\theta. \end{aligned} \quad (5.19)$$

При цьому співвідношення для приростів (3.1) компонент тензора діелектричної непроникувості $\mathbf{B}$ мають наступний вигляд:

$$\begin{aligned} \Delta B_{11} &= p_{11}e_1 + p_{13}e_3 + p_{15}e_5, \quad \Delta B_{12} = -p_{16}e_6 + p_{14}e_5, \\ \Delta B_{13} &= p_{51}e_1 + p_{55}e_5, \quad \Delta B_{23} = p_{41}e_1 + p_{45}e_5, \\ \Delta B_{22} &= p_{21}e_1 + p_{23}e_3 + p_{25}e_5, \quad \Delta B_{33} = p_{31}e_1 + p_{33}e_3. \end{aligned} \quad (5.20)$$

В кінцевому рахунку ЕПОК можна отримати зі співвідношення (3.54). Вищевказані міркування справедливі також й для інших типів АО взаємодії.

Метод визначення ЕПОК, розглянутий вище, було перевірено на прикладі кристалів α -TeO₂, для яких КАОЯ у випадку циркулярно-поляризованих оптичних хвиль був визначений експериментально в роботі [13]. Так, як вже зазначалося в параграфі 3.2.2, в роботі [13] було встановлено, що для кристалів α -TeO₂ КАОЯ, який дорівнює $1200 \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$, досягається за умов анізотропної АО дифракції, коли майже циркулярно-поляризована падаюча оптична хвиля ($\chi = 0,7$) поширюється під кутом близько 1° до оптичної осі. Згідно з

класифікацією, що використовується у цьому дисертаційному дослідженні, вищевказані умови відповідають типу IX АО взаємодії.

Нехай QT_2 АХ з частотою $\Phi = 22 \times 10^6$ Гц поширюється в кристалі $\alpha\text{-TeO}_2$ в площині АО взаємодії $X'Z$, де X' – бісектриса осей X та Y . У розрахунках, окрім ПО коефіцієнтів p_{ij} та коефіцієнтів жорсткості C_{ij} (Таблиця 5.4), використовувалися показники заломлення $n_o = 2,26$ та $n_e = 2,412$ для $\lambda = 632,8$ нм [195], компоненти тензора гірації $g_{33} = -7,37 \times 10^{-4}$ та $g_{11} = -12,8 \times 10^{-4}$ [248], а також густина $\rho = 5990$ кг/м³ [191].

Таблиця 5.4. ПО коефіцієнти p_{ij} ($\lambda = 632,8$ нм) та коефіцієнти жорсткості C_{ij} для кристалів $\alpha\text{-TeO}_2$ [191].

ij	11	33	44	66	12	13	31
p_{ij}	0,0074	0,24	-0,17	-0,0463	0,187	0,34	0,0905
$C_{ij}, 10^{10}$ Па	5,32	10,85	2,44	5,52	4,86	2,12	–

Квадрат ЕПОК для типу IX АО взаємодії в кристалах $\alpha\text{-TeO}_2$ записується як [247]

$$\begin{aligned}
 (p_{eff}^{(IX)})^2 = & 0,25((p_{11} - p_{12})\cos\theta')^2 \cos^2\varphi' + 0,5(p_{44}\sin\theta')^2 \times \\
 & \times \sin^2\varphi' + 0,125(p_{11} - p_{12})p_{44}\sin 2\theta'\sin 2\varphi' + \\
 & + 0,5\chi^2[(0,5(p_{11} - p_{12})\cos\theta'\cos\varphi')^2 + (p_{44}\sin\theta'\sin\varphi')^2],
 \end{aligned}
 \tag{5.21}$$

де φ' – кут між напрямком поляризації падаючої оптичної хвилі та віссю X' в площині $X'Z$; θ' – кут між хвильовим вектором АХ та віссю X' в площині $X'Z$.

Для залежностей квадрату ЕПОК та КАОЯ від кута θ' з врахуванням еліптичності оптичних власних хвиль ($\chi \neq 0$) спостерігаються вузькі піки, що відповідають поширенню QT_2 АХ поблизу осі X' (Рисунок 5.12). Для цього випадку хвильові вектори оптичних хвиль, паралельні осі Z , майже перпендикулярні хвильовому вектору QT_2 АХ. Врахування еліптичності оптичних власних хвиль збільшує КАОЯ з 673×10^{-15} до 1345×10^{-15} с³/кг. При

цьому той факт, що розрахований КАОЯ вищий за КАОЯ, експериментально визначений в роботі [13], може бути зумовлений тим, що в експерименті падаюча оптична хвиля поширювалася під малим кутом до оптичної осі ($\sim 1^\circ$), а не саме вздовж оптичної осі. Натомість ШНВ піку КАОЯ, зумовленого наявністю еліптичності оптичних власних хвиль, становить близько 2° .

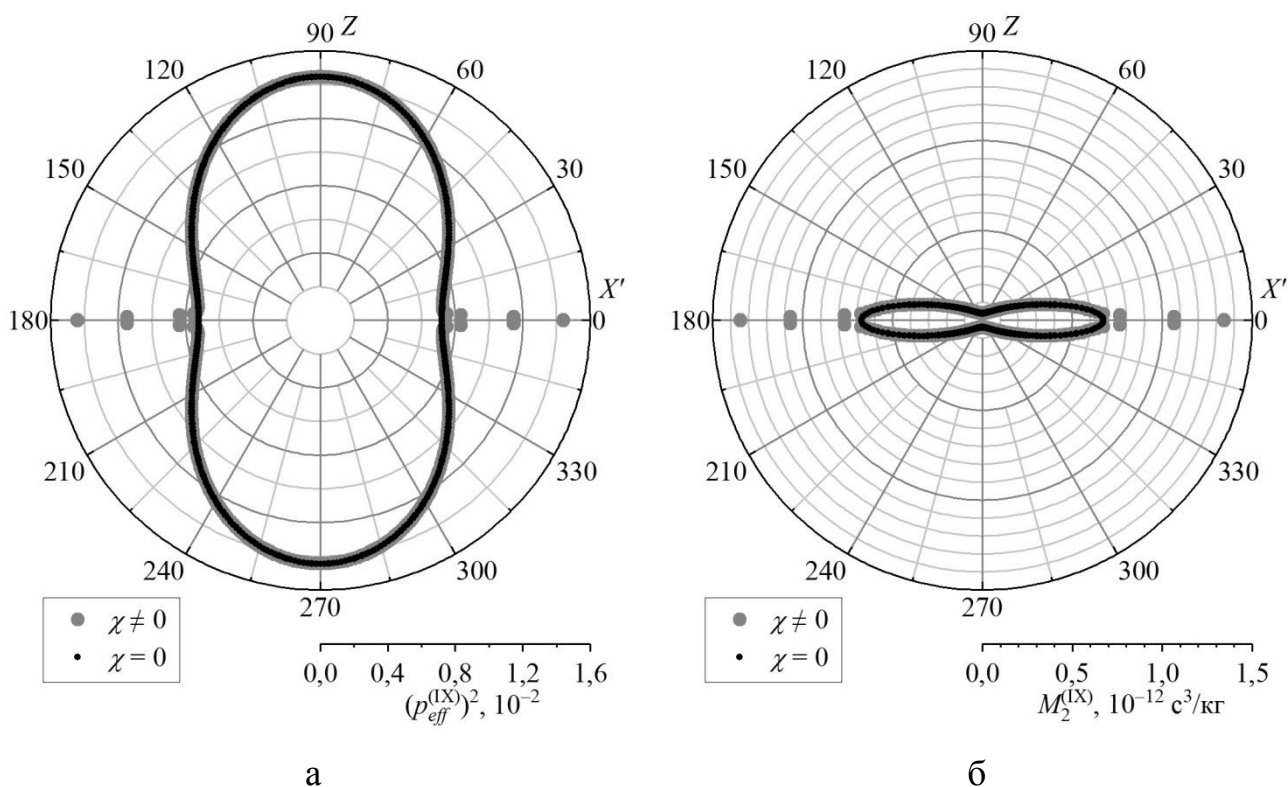


Рисунок 5.12. Залежності квадрату ЕПОК (а) та КАОЯ (б) від кута θ' для типу IX АО взаємодії в площині $X'Z$ кристалів $\alpha\text{-TeO}_2$ [247].

Таким чином, величина КАОЯ, отримана для кристалів $\alpha\text{-TeO}_2$ за умови взаємодії лінійно-поляризованих оптичних хвиль, та більш високе значення КАОЯ, зумовлене наявністю еліптичності оптичних власних хвиль, добре узгоджуються з експериментальними даними, отриманими в роботі [13], що свідчить про валідність застосованого методу визначення ЕПОК.

Для типу I АО взаємодії в кристалах $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}$ врахування еліптичності оптичних власних хвиль призводить до підвищення як ЕПОК, так й КАОЯ (Рисунок 5.13). Так, КАОЯ збільшується майже вдвічі (з $6,8 \times 10^{-15} \text{ c}^3/\text{кг}$ до

$12,4 \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$); при цьому ШНВ піку КАОЯ становить приблизно 2. Причиною цього є зміна ЕПОК за рахунок появи додаткових компонент ПО тензора, які здійснюють свій внесок у співвідношення для ЕПОК:

$$\begin{aligned}
 (p_{eff}^{(I)})^2 = & (p_{12} \cos \theta \cos \zeta_2 + p_{13} \sin \theta \sin \zeta_2 + p_{25} \sin(\zeta_2 + \theta))^2 + \\
 & + 0,5 \chi^2 [(p_{11} \cos \theta \cos \zeta_2 + p_{13} \sin \theta \sin \zeta_2 - p_{25} \sin(\zeta_2 + \theta))^2 \times \\
 & \times \cos^4 \theta + (p_{31} \cos \theta \cos \zeta_2 + p_{33} \sin \theta \sin \zeta_2)^2 \sin^4 \theta + 0,5 \times \\
 & \times (p_{44} \sin(\zeta_2 + \theta) - p_{52} \cos \theta \cos \zeta_2)^2 \sin^2 2\theta + (p_{11} \cos \theta \times \\
 & \times \cos \zeta_2 + p_{13} \sin \theta \sin \zeta_2 - p_{25} \sin(\zeta_2 + \theta))(p_{44} \sin(\zeta_2 + \theta) - \\
 & - p_{52} \cos \theta \cos \zeta_2) \sin 2\theta \cos^2 \theta + (p_{44} \sin(\zeta_2 + \theta) - p_{52} \cos \theta \times \\
 & \times \cos \zeta_2)(p_{31} \cos \theta \cos \zeta_2 + p_{33} \sin \theta \sin \zeta_2) \sin 2\theta \sin^2 \theta + \\
 & + (p_{14} \sin(\zeta_2 + \theta) - p_{16} \cos \theta \cos \zeta_2)^2 \cos^2 \theta + (p_{41} \cos \theta \cos \zeta_2 + \\
 & + p_{45} \sin(\zeta_2 + \theta))^2 \sin^2 \theta + (p_{14} \sin(\zeta_2 + \theta) - p_{16} \cos \theta \cos \zeta_2) \times \\
 & \times (p_{41} \cos \theta \cos \zeta_2 + p_{45} \sin(\zeta_2 + \theta)) \sin 2\theta].
 \end{aligned} \tag{5.22}$$

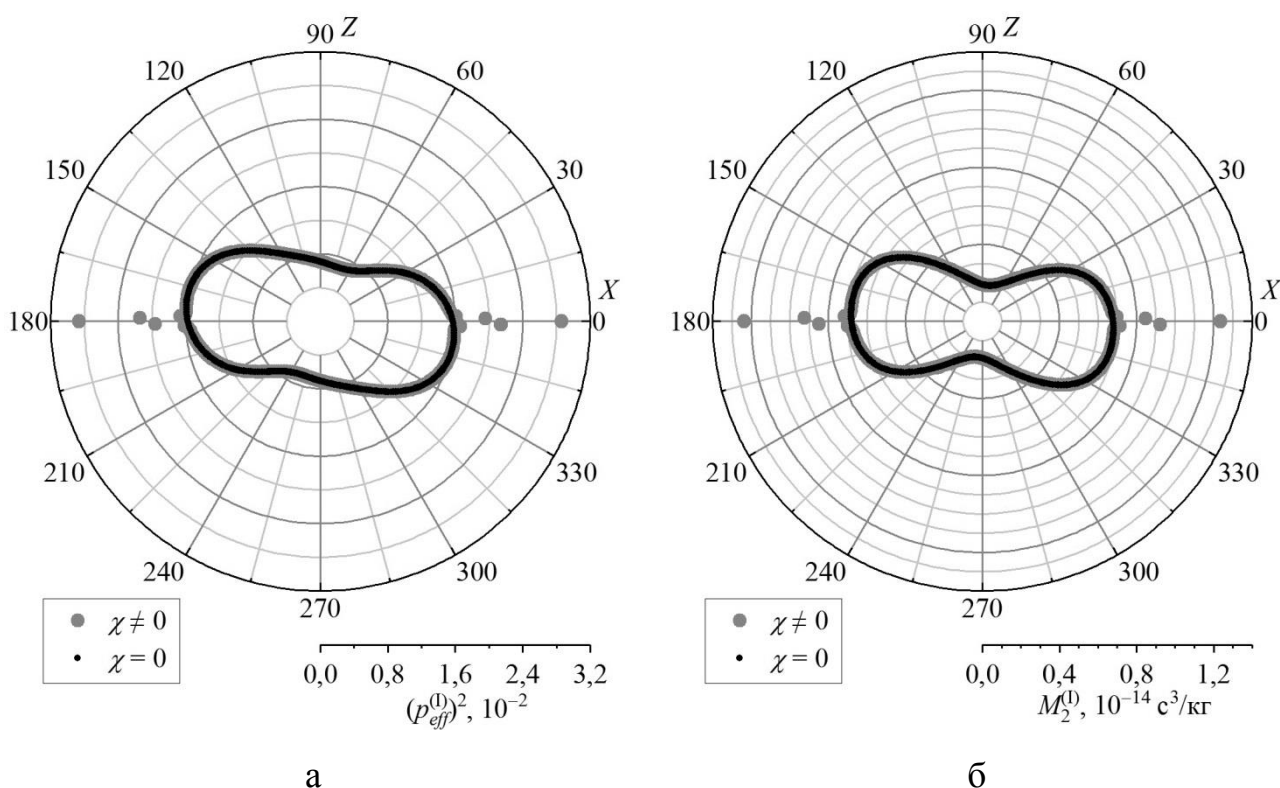


Рисунок 5.13. Залежності квадрату ЕПОК (а) та КАОЯ (б) від кута θ для типу I АО взаємодії в площині XZ кристалів $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}$ [247].

При цьому ними, в першу чергу, є компоненти p_{11} та p_{13} , які на два порядки вищі за такі компоненти ПО тензора, як p_{16} , p_{14} , p_{52} , p_{41} , p_{45} та p_{25} .

Зростання ЕПОК та КАОЯ при врахуванні еліптичності оптичних власних хвиль, яке відбувається при поширенні падаючої оптичної хвилі у вузькому околі оптичної осі (оскільки ШНВ піку КАОЯ дорівнює приблизно 2), спостерігається також й для типу II АО взаємодії (Рисунок 5.14).

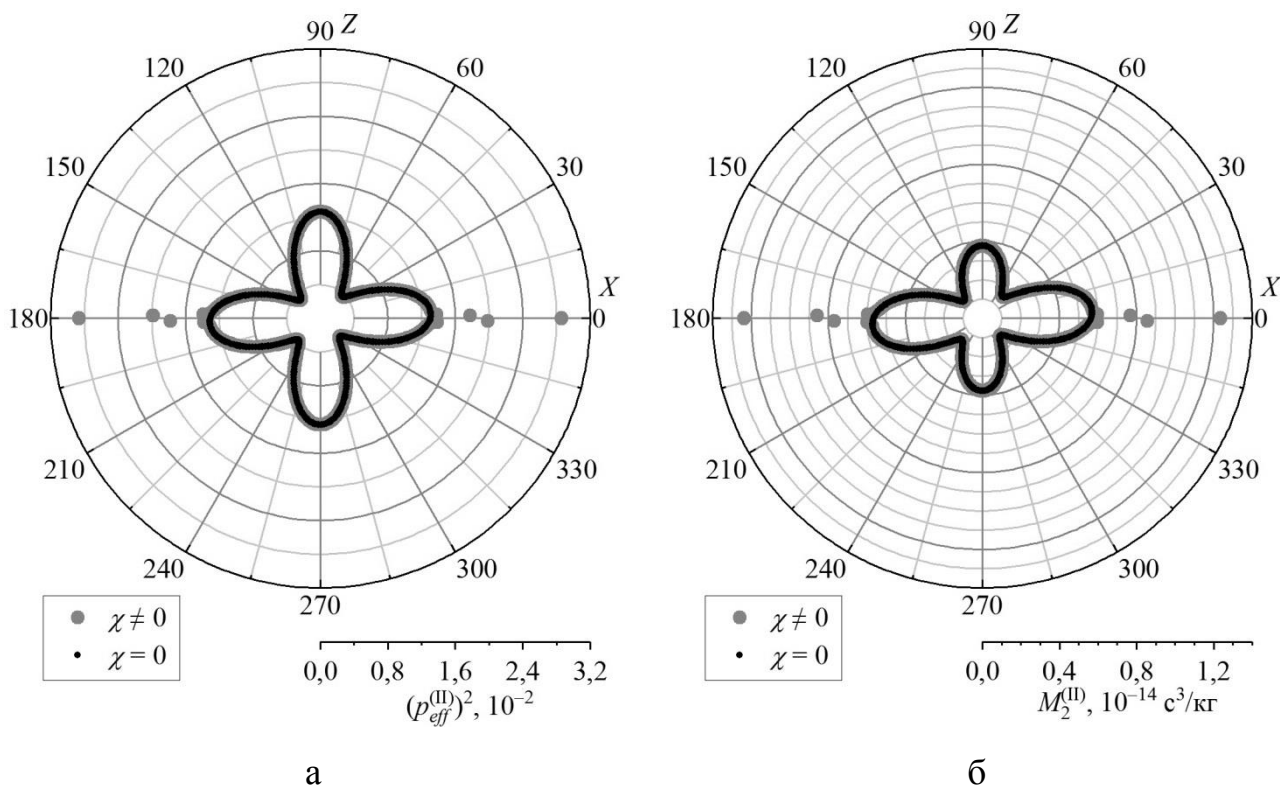


Рисунок 5.14. Залежності квадрату ЕПОК (а) та КАОЯ (б) від кута θ для типу II АО взаємодії в площині XZ кристалів $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}$ [247].

В цьому випадку КАОЯ зростає з $5,6 \times 10^{-15} \text{ c}^3/\text{kg}$ до $12,4 \times 10^{-15} \text{ c}^3/\text{kg}$. Як можна бачити, це збільшення є майже таким самим, як й те, що було отримане для типу I АО взаємодії. Причиною такого підвищення ефективності АО взаємодії за умови врахування еліптичності оптичних власних хвиль є зміна ЕПОК за рахунок появи додаткових компонент ПО тензора p_{16} , p_{14} , p_{41} та p_{45} , які здійснюють свій внесок у співвідношення для ЕПОК:

$$\begin{aligned}
(p_{eff}^{(II)})^2 = & ((p_{11} \cos \theta \cos \zeta_2 + p_{13} \sin \theta \sin \zeta_2 - p_{25} \times \\
& \times \sin(\zeta_2 + \theta))^2 \cos^2 \theta + (p_{44} \sin(\zeta_2 + \theta) - p_{52} \cos \theta \cos \zeta_2)^2 \times \\
& \times \sin^2 \theta) \cos^2(\theta_B + \theta) + (p_{44} \sin(\zeta_2 + \theta) - p_{52} \cos \theta \cos \zeta_2) \times \\
& \times ((p_{11} \cos \theta \cos \zeta_2 + p_{13} \sin \theta \sin \zeta_2 - p_{25} \sin(\zeta_2 + \theta)) \cos^2 \theta + \\
& + (p_{31} \cos \theta \cos \zeta_2 + p_{33} \sin \theta \sin \zeta_2) \sin^2 \theta) \sin 2\theta + ((p_{44} \times \\
& \times \sin(\zeta_2 + \theta) - p_{52} \cos \theta \cos \zeta_2)^2 \cos^2 \theta + (p_{31} \cos \theta \cos \zeta_2 + \\
& + p_{33} \sin \theta \sin \zeta_2)^2 \sin^2 \theta) \sin^2(\theta_B + \theta) + 0,5 \chi^2 \times \\
& \times [(p_{14} \sin(\zeta_2 + \theta) - p_{16} \cos \theta \cos \zeta_2)^2 \cos^2 \theta + \\
& + (p_{41} \cos \theta \cos \zeta_2 + p_{45} \sin(\zeta_2 + \theta))^2 \sin^2 \theta].
\end{aligned} \tag{5.23}$$

У випадку типу III АО взаємодії (Рисунок 5.15) КАОЯ та квадрат ЕПОК мають, відповідно, порядки $\sim 10^{-17} \text{ с}^3/\text{кг}$ та $\sim 10^{-5}$, коли лінійно-поляризовані оптичні хвилі поширюються в околі оптичної осі.

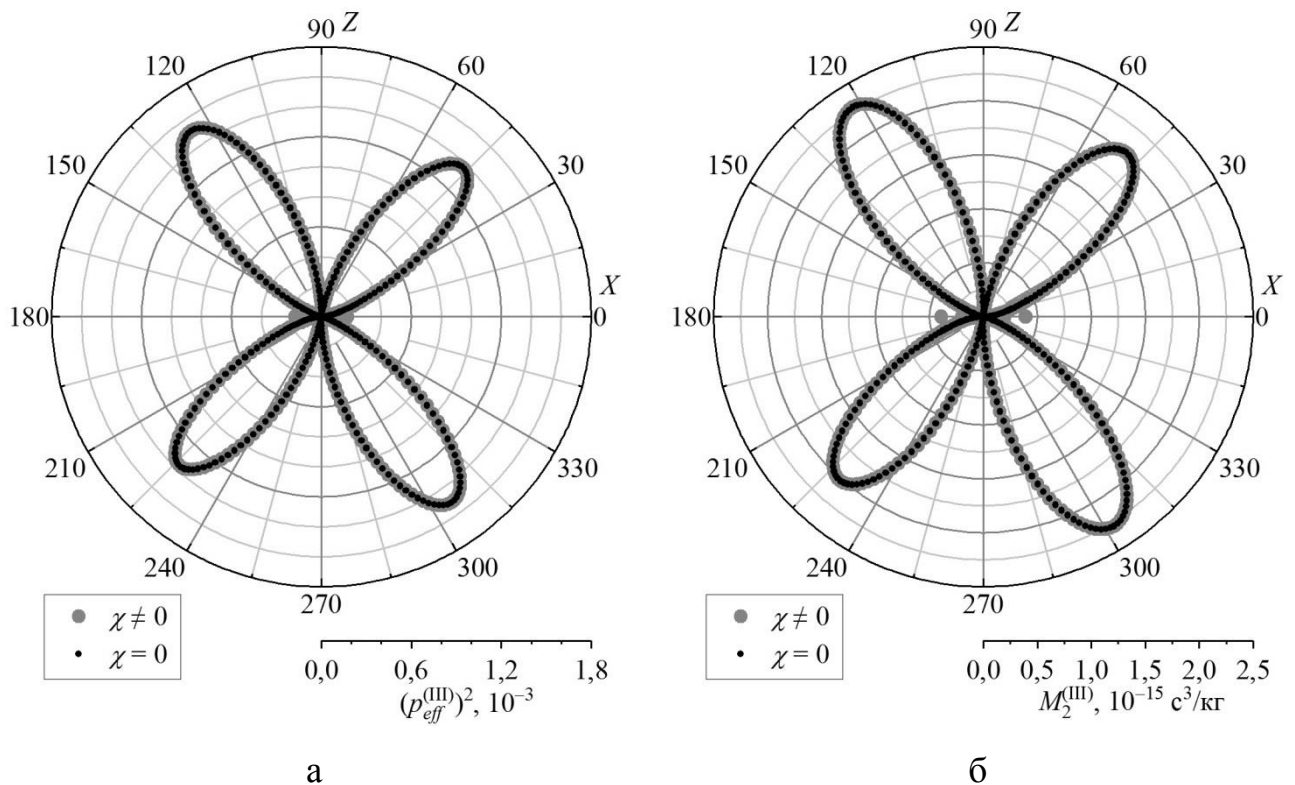


Рисунок 5.15. Залежності квадрату ЕПОК (а) та КАОЯ (б) від кута θ для типу III АО взаємодії в площині XZ кристалів $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}$ [247].

Натомість після врахування еліптичності оптичних власних хвиль у співвідношення для ЕПОК починають здійснювати свій внесок деякі додаткові компоненти ПО тензора – зокрема, компонента p_{11} , величина якої є достатньо високою:

$$\begin{aligned}
 (p_{eff}^{(III)})^2 = & (p_{13} \sin \theta \cos \zeta_2 - p_{12} \cos \theta \sin \zeta_2 + p_{25} \cos(\zeta_2 + \theta))^2 + \\
 & + 0,5 \chi^2 [(p_{13} \sin \theta \cos \zeta_2 - p_{11} \cos \theta \sin \zeta_2 - p_{25} \cos(\zeta_2 + \theta))^2 \times \\
 & \times \cos^4 \theta + (p_{33} \sin \theta \cos \zeta_2 - p_{31} \cos \theta \sin \zeta_2)^2 \sin^4 \theta + 0,5(p_{52} \times \\
 & \times \cos \theta \sin \zeta_2 + p_{44} \cos(\zeta_2 + \theta))^2 \sin^2 2\theta + (p_{13} \sin \theta \cos \zeta_2 - \\
 & - p_{11} \cos \theta \sin \zeta_2 - p_{25} \cos(\zeta_2 + \theta))(p_{52} \cos \theta \sin \zeta_2 + p_{44} \times \\
 & \times \cos(\zeta_2 + \theta)) \sin 2\theta \cos^2 \theta + (p_{52} \cos \theta \sin \zeta_2 + p_{44} \cos(\zeta_2 + \theta)) \times \\
 & \times (p_{33} \sin \theta \cos \zeta_2 - p_{31} \cos \theta \sin \zeta_2) \sin 2\theta \sin^2 \theta + (p_{16} \cos \theta \times \\
 & \times \sin \zeta_2 + p_{14} \cos(\zeta_2 + \theta))^2 \cos^2 \theta + (p_{45} \cos(\zeta_2 + \theta) - \\
 & - p_{41} \cos \theta \sin \zeta_2)^2 \sin^2 \theta + (p_{16} \cos \theta \sin \zeta_2 + p_{14} \cos(\zeta_2 + \theta)) \times \\
 & \times (p_{45} \cos(\zeta_2 + \theta) - p_{41} \cos \theta \sin \zeta_2) \sin 2\theta].
 \end{aligned} \tag{5.24}$$

В результаті вони підвищують величину КАОЯ з $3,4 \times 10^{-17} \text{ с}^3/\text{кг}$ до $3,9 \times 10^{-16} \text{ с}^3/\text{кг}$, однак вона продовжує залишатися відносно малою.

Аналогічна ситуація щодо впливу додаткових компонент ПО тензора на вираз для ЕПОК спостерігається й для типу IV АО взаємодії (Рисунок 5.16):

$$\begin{aligned}
 (p_{eff}^{(IV)})^2 = & ((p_{13} \sin \theta \cos \zeta_2 - p_{11} \cos \theta \sin \zeta_2 - p_{25} \cos(\zeta_2 + \theta))^2 \times \\
 & \times \cos^2 \theta + (p_{52} \cos \theta \sin \zeta_2 + p_{44} \cos(\zeta_2 + \theta))^2 \sin^2 \theta) \cos^2(\theta_B + \\
 & + \theta) + (p_{52} \cos \theta \sin \zeta_2 + p_{44} \cos(\zeta_2 + \theta))((p_{13} \sin \theta \cos \zeta_2 - p_{11} \times \\
 & \times \cos \theta \sin \zeta_2 - p_{25} \cos(\zeta_2 + \theta)) \cos^2 \theta + (p_{33} \sin \theta \cos \zeta_2 - p_{31} \times \\
 & \times \cos \theta \sin \zeta_2) \sin^2 \theta) \sin 2(\theta_B + \theta) + ((p_{52} \cos \theta \sin \zeta_2 + p_{44} \times \\
 & \times \cos(\zeta_2 + \theta))^2 \cos^2 \theta + (p_{33} \sin \theta \cos \zeta_2 - p_{31} \cos \theta \sin \zeta_2)^2 \times \\
 & \times \sin^2 \theta) \sin^2(\theta_B + \theta) + 0,5 \chi^2 [(p_{16} \cos \theta \sin \zeta_2 + p_{14} \cos(\zeta_2 + \\
 & + \theta))^2 \cos^2 \theta + (p_{45} \cos(\zeta_2 + \theta) - p_{41} \cos \theta \sin \zeta_2)^2 \sin^2 \theta].
 \end{aligned} \tag{5.25}$$

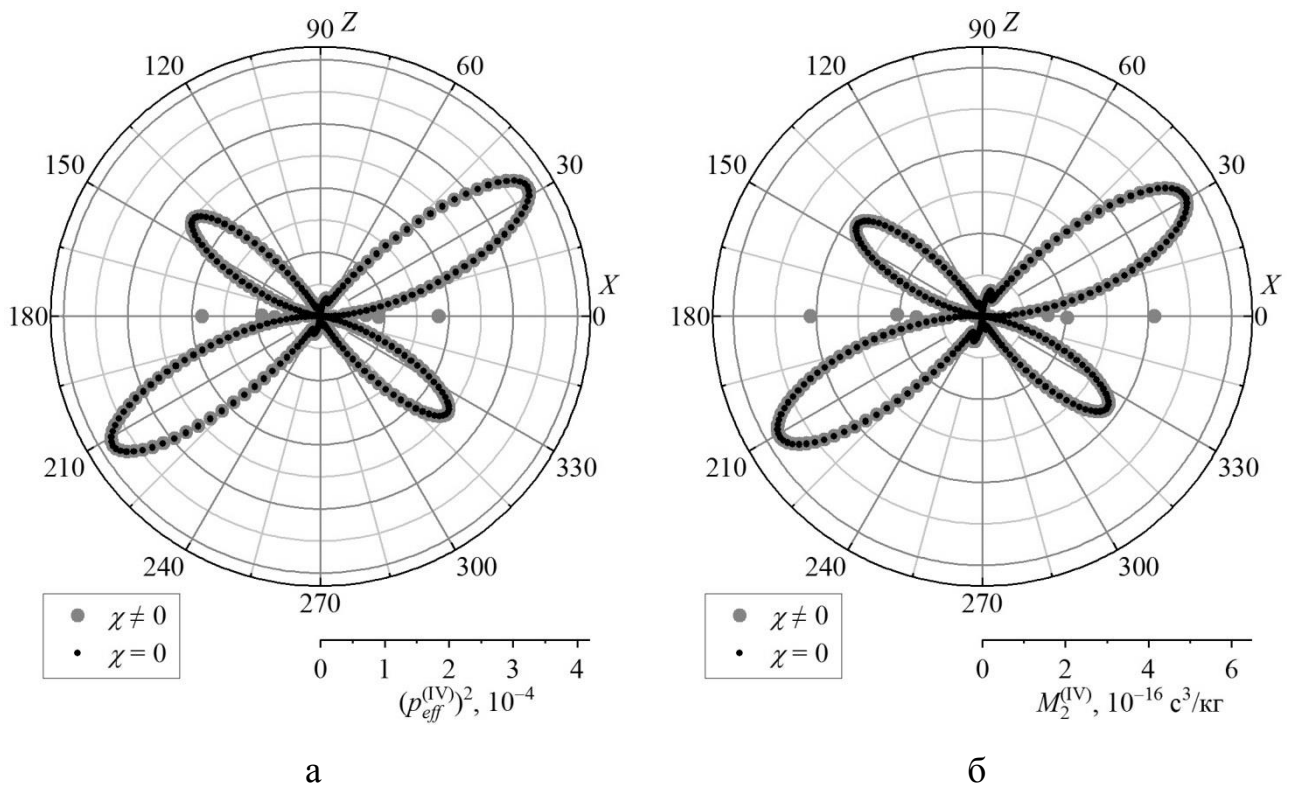


Рисунок 5.16. Залежності квадрату ЕПОК (а) та КАОЯ (б) від кута θ для типу IV АО взаємодії в площині XZ кристалів $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}$ [247].

При цьому відбувається збільшення КАОЯ на порядок (з $4,0 \times 10^{-17} \text{ c}^3/\text{кг}$ до $4,1 \times 10^{-16} \text{ c}^3/\text{кг}$). ШНВ піку КАОЯ, що спостерігається при типах III та IV АО взаємодії, становить близько $(1-2)^\circ$.

Тип V АО взаємодії характеризується різким зростанням ЕПОК та КАОЯ (Рисунок 5.17) при врахуванні еліптичності оптичних власних хвиль. Так, зокрема, КАОЯ зростає з нуля до $7,5 \times 10^{-17} \text{ c}^3/\text{кг}$. Знову ж таки, основну роль у такому підвищенні АО ефективності відіграє внесок додаткових компонент ПО тензора у співвідношення для ЕПОК:

$$\begin{aligned}
 (p_{\text{eff}}^{(\text{V})})^2 = & (p_{14} \sin \theta + p_{16} \cos \theta)^2 + 0,5 \chi^2 [(p_{14} \sin \theta + \\
 & + p_{16} \cos \theta)^2 \cos^4 \theta + 0,5 (p_{41} \cos \theta - p_{45} \sin \theta)^2 \sin^2 2\theta + \\
 & + (p_{14} \sin \theta + p_{16} \cos \theta)(p_{41} \cos \theta - p_{45} \sin \theta) \sin 2\theta \cos^2 \theta + \\
 & + (p_{25} \sin \theta + p_{66} \cos \theta)^2 \cos^2 \theta + (p_{44} \sin \theta + p_{52} \cos \theta)^2 \times \\
 & \times \sin^2 \theta + (p_{25} \sin \theta + p_{66} \cos \theta)(p_{44} \sin \theta + p_{52} \cos \theta) \sin 2\theta].
 \end{aligned}
 \tag{5.26}$$

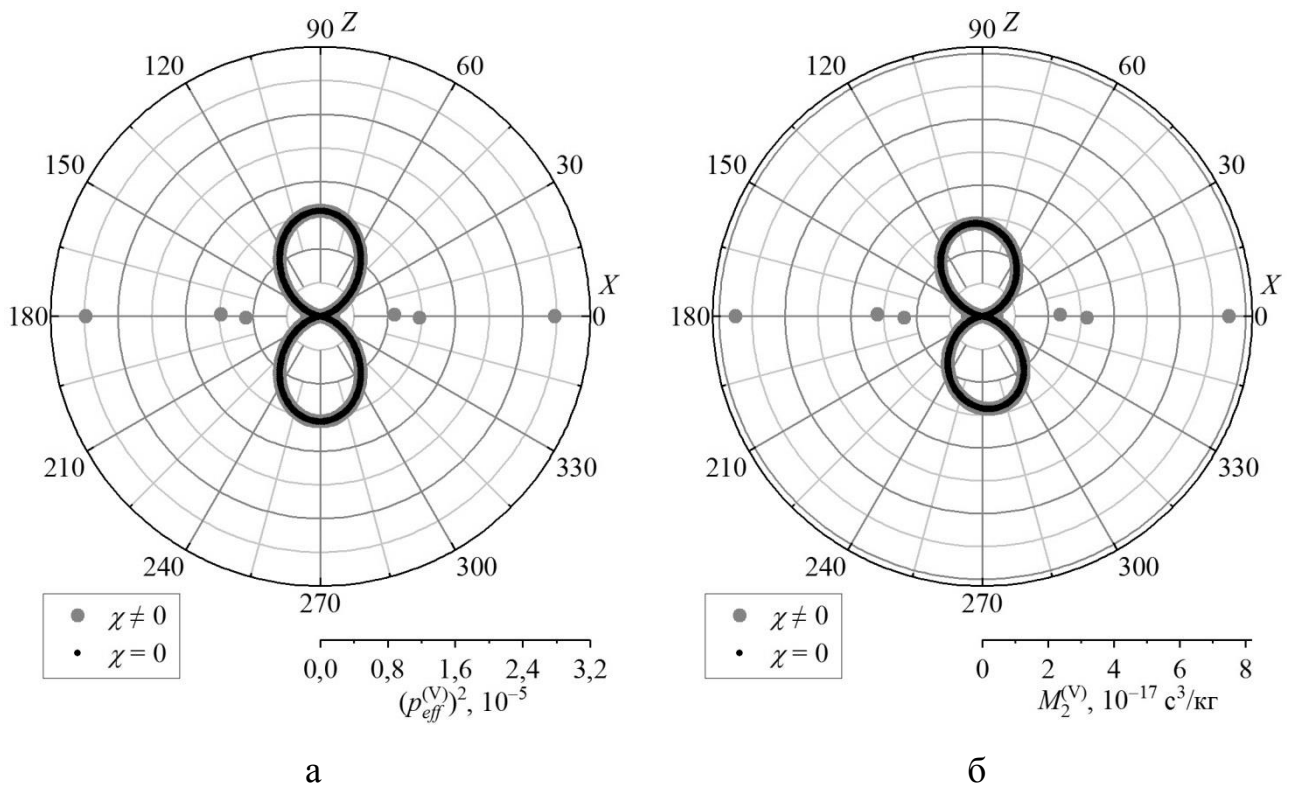


Рисунок 5.17. Залежності квадрату ЕПОК (а) та КАОЯ (б) від кута θ для типу V АО взаємодії в площині XZ кристалів $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}$ [247].

Тип VI АО взаємодії також характеризується помітним збільшенням ЕПОК та КАОЯ в результаті врахування еліптичності оптичних власних хвиль (Рисунок 5.18). Й дійсно, КАОЯ зростає з нуля до $7,5 \times 10^{-17} \text{ c}^3/\text{кг}$. Таке підвищення АО ефективності відбувається насамперед завдяки внеску у співвідношення для ЕПОК, який здійснює додаткова ПО компонента p_{66} :

$$\begin{aligned}
 (p_{\text{eff}}^{(\text{VI})})^2 = & ((p_{14} \sin \theta + p_{16} \cos \theta)^2 \cos^2 \theta + (p_{41} \cos \theta - p_{45} \sin \theta)^2 \times \\
 & \times \sin^2 \theta) \cos^2(\theta_B + \theta) + (p_{41} \cos \theta - p_{45} \sin \theta)(p_{14} \sin \theta + \\
 & + p_{16} \cos \theta) \cos^2 \theta \sin 2(\theta_B + \theta) + (p_{41} \cos \theta - p_{45} \sin \theta)^2 \cos^2 \theta \times \\
 & \times \sin^2(\theta_B + \theta) + 0,5 \chi^2 [(p_{25} \sin \theta + p_{66} \cos \theta)^2 \cos^2 \theta + (p_{44} \sin \theta + \\
 & + p_{52} \cos \theta)^2 \sin^2 \theta + (p_{14} \sin \theta + p_{16} \cos \theta)^2].
 \end{aligned} \tag{5.27}$$

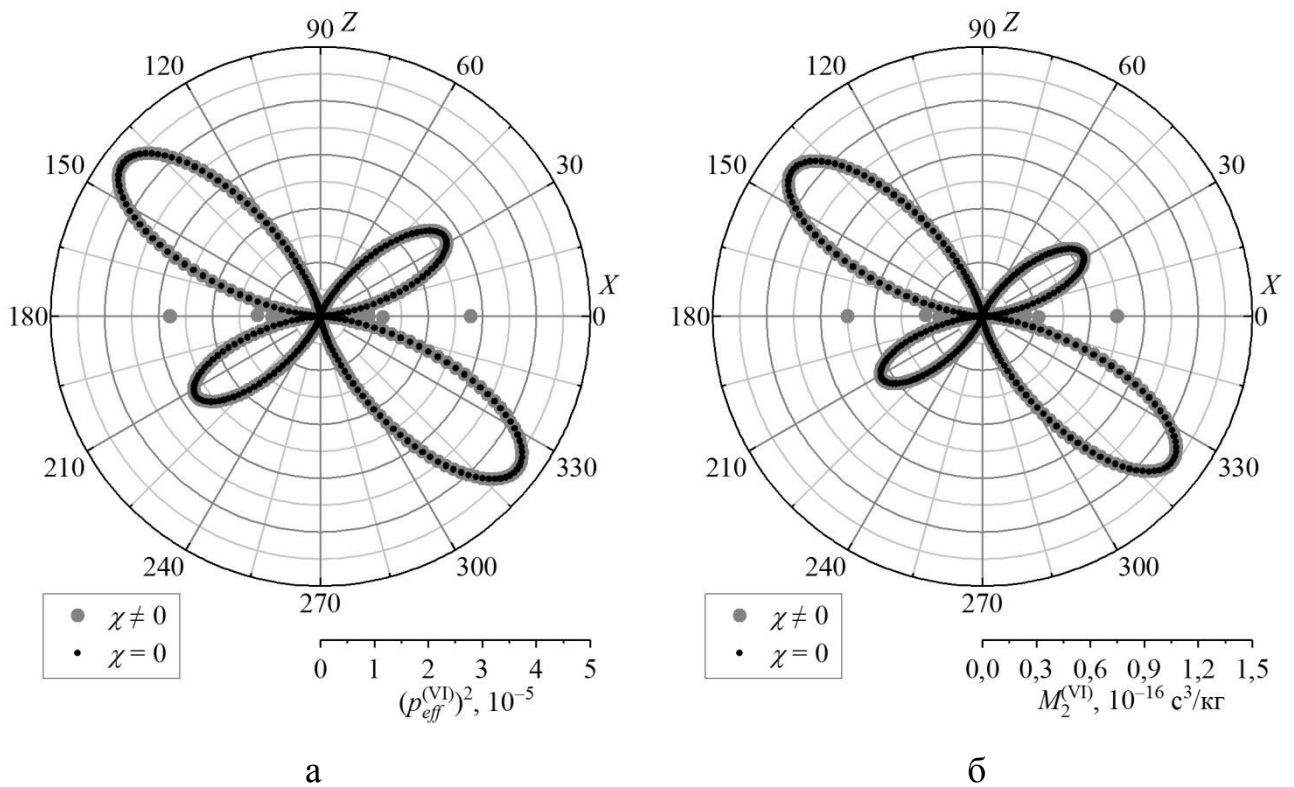


Рисунок 5.18. Залежності квадрату ЕПОК (а) та КАОЯ (б) від кута θ для типу VI АО взаємодії в площині XZ кристалів $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}$ [247].

Для типів VII (Рисунок 5.19), VIII (Рисунок 5.20) та IX (Рисунок 5.21) АО взаємодії спостерігається підвищення КАОЯ при врахуванні еліптичності оптичних власних хвиль. Таке підвищення зумовлено появою додаткових термів у співвідношеннях для ЕПОК після врахування еліптичності оптичних власних хвиль, хоча додаткові компоненти ПО тензора у цих термах відсутні:

$$\begin{aligned}
 (p_{eff}^{(VII)})^2 = & (p_{14} \sin(\zeta_2 + \theta) - p_{16} \cos \theta \cos \zeta_2)^2 \cos^2 \varphi_i + \\
 & + (p_{41} \cos \theta \cos \zeta_2 + p_{45} \sin(\zeta_2 + \theta))^2 \sin^2 \varphi_i + (p_{14} \sin(\zeta_2 + \theta) - \\
 & - p_{16} \cos \theta \cos \zeta_2)(p_{41} \cos \theta \cos \zeta_2 + p_{45} \sin(\zeta_2 + \theta)) \sin 2\varphi_i + \\
 & + 0,5\chi^2[(p_{14} \sin(\zeta_2 + \theta) - p_{16} \cos \theta \cos \zeta_2)^2 \cos^2 \varphi_i + \\
 & + (p_{41} \cos \theta \cos \zeta_2 + p_{45} \sin(\zeta_2 + \theta))^2 \sin^2 \varphi_i],
 \end{aligned} \tag{5.28}$$

$$\begin{aligned}
(p_{eff}^{(VIII)})^2 = & (p_{16} \cos \theta \sin \zeta_2 + p_{14} \cos(\zeta_2 + \theta))^2 \cos^2 \varphi_i + \\
& + (p_{45} \cos(\zeta_2 + \theta) - p_{41} \cos \theta \sin \zeta_2)^2 \sin^2 \varphi_i + (p_{16} \cos \theta \sin \zeta_2 + \\
& + p_{14} \cos(\zeta_2 + \theta))(p_{45} \cos(\zeta_2 + \theta) - p_{41} \cos \theta \sin \zeta_2) \sin 2\varphi_i + \\
& + 0,5 \chi^2 [(p_{16} \cos \theta \sin \zeta_2 + p_{14} \cos(\zeta_2 + \theta))^2 \cos^2 \varphi_i + \\
& + (p_{45} \cos(\zeta_2 + \theta) - p_{41} \cos \theta \sin \zeta_2)^2 \sin^2 \varphi_i],
\end{aligned} \tag{5.29}$$

$$\begin{aligned}
(p_{eff}^{(IX)})^2 = & (p_{25} \sin \theta + p_{66} \cos \theta)^2 \cos^2 \varphi_i + (p_{44} \sin \theta + \\
& + p_{52} \cos \theta)^2 \sin^2 \varphi_i + (p_{25} \sin \theta + p_{66} \cos \theta)(p_{44} \sin \theta + \\
& + p_{52} \cos \theta) \sin 2\varphi_i + 0,5 \chi^2 [(p_{25} \sin \theta + p_{66} \cos \theta)^2 \times \\
& \times \cos^2 \varphi_i + (p_{44} \sin \theta + p_{52} \cos \theta)^2 \sin^2 \varphi_i].
\end{aligned} \tag{5.30}$$

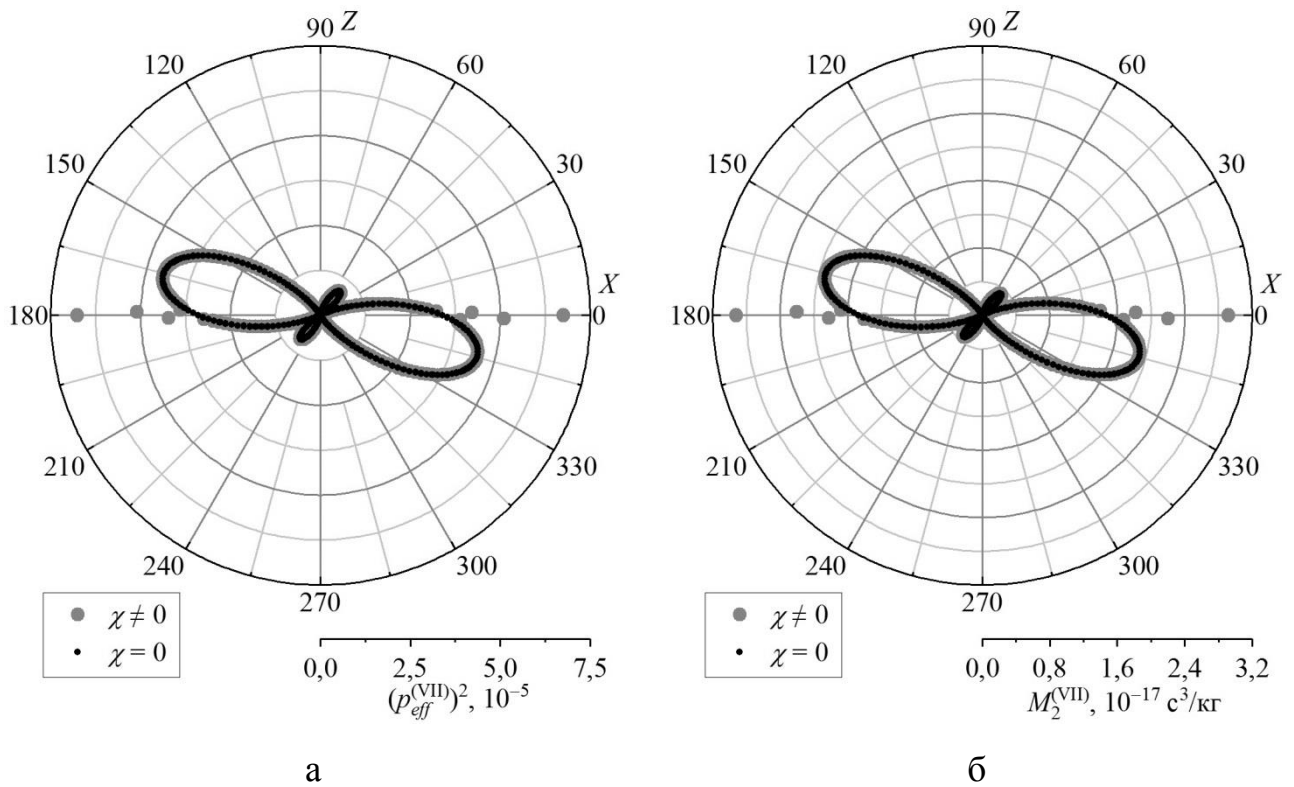
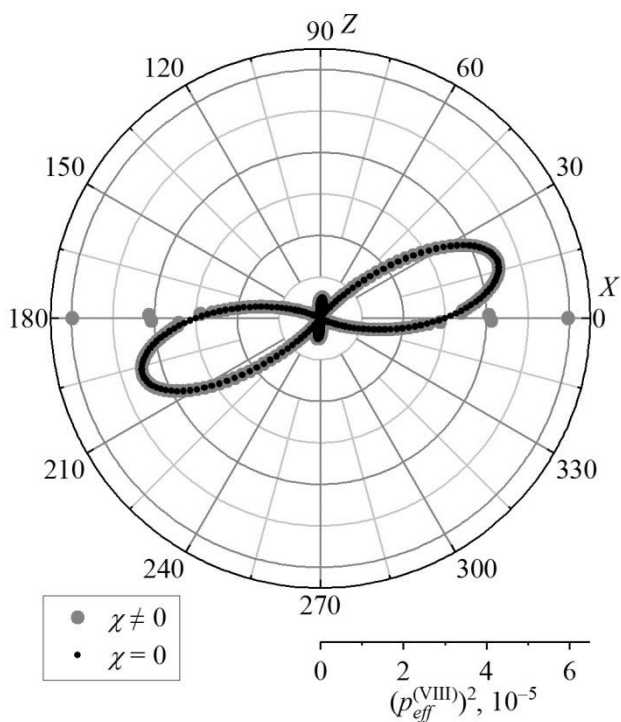
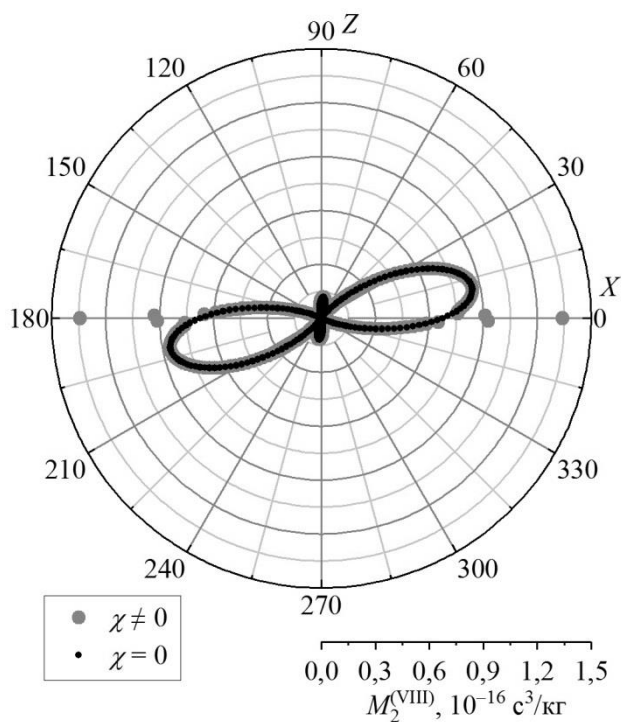


Рисунок 5.19. Залежності квадрату ЕПОК (а) та КАОЯ (б) від кута θ для типу VII АО взаємодії в площині XZ кристалів $Pb_5Ge_3O_{11}$ [247].

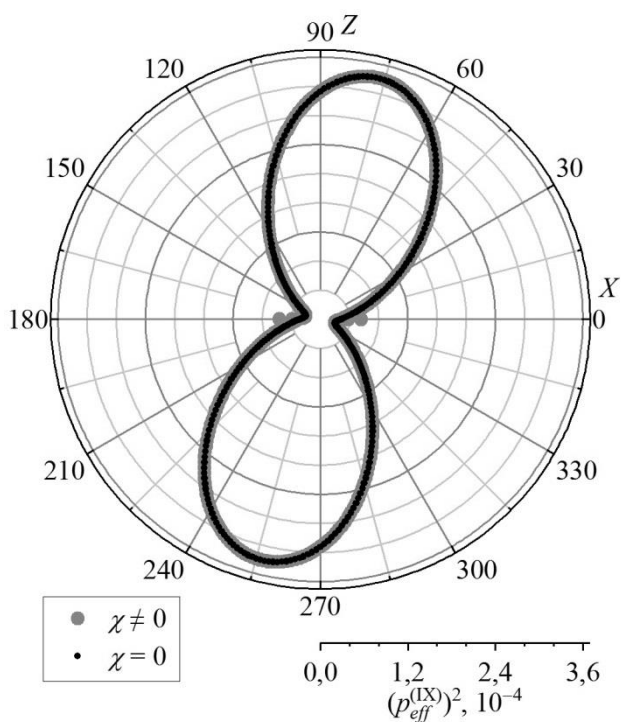


а

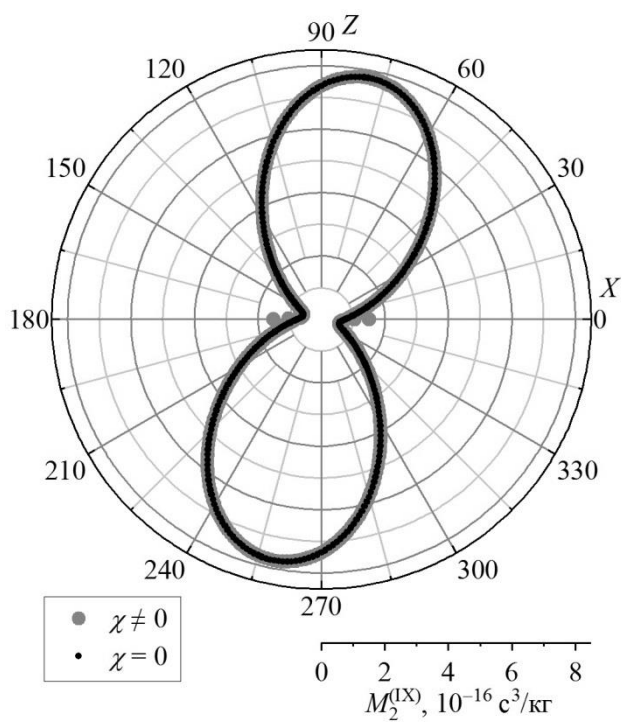


б

Рисунок 5.20. Залежності квадрату ЕПОК (а) та КАОЯ (б) від кута θ для типу VIII АО взаємодії в площині XZ кристалів $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}$ [247].



а



б

Рисунок 5.21. Залежності квадрату ЕПОК (а) та КАОЯ (б) від кута θ для типу IX АО взаємодії в площині XZ кристалів $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}$ [247].

Як можна бачити, у випадку анізотропної АО дифракції максимальні значення ЕПОК та КАОЯ досягаються для типів VIII (Рисунок 5.20) та IX (Рисунок 5.21) АО взаємодії – так, наприклад, КАОЯ зростає з $6,7 \times 10^{-17} \text{ с}^3/\text{кг}$ до $1,3 \times 10^{-16} \text{ с}^3/\text{кг}$ та з $7,6 \times 10^{-17} \text{ с}^3/\text{кг}$ до $1,5 \times 10^{-16} \text{ с}^3/\text{кг}$, відповідно. ШНВ піку КАОЯ для анізотропної АО дифракції є майже такою ж самою, як й у випадку ізотропної АО дифракції – тобто, приблизно 2. Натомість за межами кутового околу оптичної осі $\pm 5^\circ$ КАОЯ, розраховані для альтернативних випадків врахування та нехтування еліптичністю оптичних власних хвиль, є майже однаковими.

Підсумовуючи вищевикладене, можна зазначити, що підвищення КАОЯ, яке відбувається для всіх типів АО взаємодій в кристалах $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}$ після врахування еліптичності оптичних власних хвиль, що наближається до одиниці в околі оптичної осі, зумовлено появою додаткових термів у співвідношеннях для ЕПОК. При цьому у такі терми можуть залучатися також й ті компоненти ПО тензора, які відсутні у співвідношеннях для ЕПОК, записаних для випадку нехтування еліптичністю оптичних власних хвиль. Як можна бачити, КАОЯ є однаковими (або майже однаковими) для типів I та II, типів III та IV, типів V та VI АО взаємодії попарно, коли АХ поширюється вздовж осі X, а оптичні хвилі – в околі оптичної осі. Так, наприклад, КАОЯ, що відповідає цим умовам для типів I та II АО взаємодії, приблизно дорівнює $12,4 \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$. В свою чергу, для типів III та IV АО взаємодії КАОЯ становить, приблизно, $4,0 \times 10^{-16} \text{ с}^3/\text{кг}$. Й, нарешті, КАОЯ для типів V та VI АО взаємодії приблизно дорівнює $7,5 \times 10^{-17} \text{ с}^3/\text{кг}$. Ці результати добре узгоджуються з висновками роботи [229] про зменшення кількості типів ізотропної АО взаємодії з 6 до 3. Іншими словами, типи I та II, типи III та IV, типи V та VI АО взаємодії повинні, по суті, бути однаковими. З іншого боку, врахування еліптичності оптичних власних хвиль призводить до ненульових КАОЯ для типів III – VI АО взаємодії, на відміну від того, що впливає з наближених результатів роботи [229]. Цей факт є прямим результатом застосування аналітичного підходу до розгляду впливу еліптичності оптичних власних хвиль на АО взаємодію.

Крім того, у рамках цього дослідження на монодоменому зразку $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}$ було експериментально визначено ЕПОК ($0,173 \pm 0,011$) для випадку ізотропної АО дифракції правої циркулярно-поляризованої оптичної хвилі на $QL\ AX$, що поширюється вздовж осі X . Та ж сама величина, знайдена для лівої циркулярно-поляризованої оптичної хвилі, дорівнює $0,181 \pm 0,013$. Очевидно, що з урахуванням типових похибок експерименту зазначені ЕПОК є однаковими [247]. ЕПОК, розраховані для типів I та II АО взаємодії, дорівнюють $0,17 \pm 0,05$. В свою чергу, ЕПОК, визначені експериментально на полідоменому зразку $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}$ для випадку ізотропної АО дифракції та падаючих лінійно-поляризованих оптичних хвиль, паралельних осям Y та X , дорівнюють, відповідно, $(p_E)_{12} = 0,157 \pm 0,008$ (тип I АО взаємодії) та $(p_E)_{11} = 0,128 \pm 0,010$ (тип II АО взаємодії). ПО коефіцієнти $(p_E)_{11}$ та $(p_E)_{33}$ для полідоменого зразка $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}$, які дорівнюють $0,128 \pm 0,010$ та $0,195 \pm 0,014$ відповідно, не містять внесків, зумовлених вторинним ПО ефектом, оскільки вони отримані для електрично-закороченого кристалу. Хоча в експерименті потрібно визначити лише ПО коефіцієнти p_{ij} для електрично-розімкненого кристалу, насправді виконуються наближені рівності $p_{11} \approx (p_E)_{11}$ та $p_{12} \approx (p_E)_{12}$, оскільки електрооптичні внески в ці коефіцієнти співмірні або навіть менші типових похибок експерименту. ЕПОК, розраховані для типів I та II АО взаємодії при нехтуванні еліптичністю оптичних власних хвиль, становлять $0,13 \pm 0,05$ та $0,11 \pm 0,05$ відповідно. Таким чином, врахування еліптичності оптичних власних хвиль в кристалах $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}$ збільшує як розрахункові, так й експериментальні значення ЕПОК порівняно з тими ж самими коефіцієнтами, отриманими для випадку взаємодіючих лінійно-поляризованих оптичних хвиль. До того ж, теоретичні та експериментальні дані задовільно узгоджуються; при цьому відповідні розбіжності не перевищують похибок експерименту [247].

Слід зауважити, що оптичні власні хвилі можуть набувати еліптичної або циркулярної поляризації не лише в нецентросиметричних енантіоморфних кристалах, що володіють природною оптичною активністю, або в випадку, коли оптична активність індукується спонтанною електричною поляризацією – як

вже зазначалося у Розділі 2, такий ефект також може бути викликаний зовнішнім магнітним полем в центросиметричних кристалах. Отже, можна припустити, що ефект Фарадея може призвести до аналогічного збільшення ефективності АО дифракції.

5.3. Кристали KN_2PO_4

Для перевірки вищевказаної гіпотези було здійснено аналіз впливу еліптичності оптичних власних хвиль, індукованої зовнішнім магнітним полем, на ЕПОК та КАОЯ на прикладі канонічних кристалів KN_2PO_4 (KDP), з яких виготовляються робочі елементи оптико-електронних пристроїв.

Вибір кристалів KDP в якості об'єкту аналізу був зумовлений низкою чинників. Насамперед, КАОЯ для цих кристалів є недостатньо високим – так, експериментальні дослідження АО властивостей кристалів KDP показали, що у випадку ізотропної АО дифракції Бреґга падаючої звичайної оптичної хвилі ($\lambda = 632,8$ нм), яка поширюється в напрямку $[010]$, на поздовжній АХ ($v = 5500$ м/с), яка поширюється в напрямку $[100]$, КАОЯ цих кристалів становить лише $1,91 \times 10^{-15}$ с³/кг [249]. Крім того, кристали KDP за нормальних умов належать до точкової групи симетрії $\bar{4}2m$ та не є оптично активними при поширенні світла вздовж оптичної осі, оскільки ненульовими компонентами їхнього тензора гірації $\mathbf{g}$ є лише компоненти g_{11} та $g_{22} = -g_{11}$.

У цьому дослідженні розглядається ізотропна АО взаємодія в площинах (010) та (110) з QL АХ. При цьому еліптичність оптичних власних хвиль при поширенні світла вздовж осей X та Y не береться до уваги, з огляду на її мале значення й те, що вона маскується лінійним двозаломленням.

На довжині оптичної хвилі $\lambda = 632,8$ нм звичайний (n_o) та незвичайний (n_e) показники заломлення для кристалів KDP дорівнюють 1,5073 та 1,4668 відповідно [250]. Для частоти АХ $\Phi \approx 46 \times 10^6$ Гц кут Бреґга $\theta_B = 0,1^\circ$. Густина кристалів KDP $\rho = 2338$ кг/м³ [251]. Таблиця 5.5 містить інші параметри кристалів KDP, необхідні для проведення подальших досліджень.

Таблиця 5.5. ПО коефіцієнти p_{ij} ($\lambda = 632,8$ нм) та коефіцієнти жорсткості C_{ij} для кристалів KDP.

ij	p_{ij} [252]	ij	C_{ij} , 10^{10} Па [176, 253]
11	$0,238 \pm 0,024$	11, 22	$7,14 \pm 0,08$
12	$0,249 \pm 0,013$	33	$5,62 \pm 0,03$
13	$0,242 \pm 0,012$	12	$-0,49 \pm 0,10$
31	$0,227 \pm 0,011$	13, 23	$1,29 \pm 0,03$
33	$0,242 \pm 0,024$	44	$1,27 \pm 0,01$
44	$-0,021 \pm 0,0021$	66	$0,624 \pm 0,005$
66	$-0,068 \pm 0,003$	—	—

Для випадку точкової групи симетрії $\bar{4}2m$ тензор Фарадея в кристалофізичній системі координат, пов'язаній з головними осями X , Y , Z еліпсоїда оптичної індикатриси, набуває наступного вигляду:

$$\mathbf{F} = \begin{bmatrix} F_{11} & 0 & 0 \\ 0 & F_{11} & 0 \\ 0 & 0 & F_{33} \end{bmatrix}. \quad (5.31)$$

При цьому вісь Z співпадає з оптичною віссю кристалу KDP. Оскільки константа Верде V_F для кристалів KDP дорівнює $3,61 \text{ (Тл} \times \text{м)}^{-1}$ для довжини оптичної хвилі $\lambda = 632,8$ нм [254], то $F_{33} = \lambda V_F \mu_0 / (\pi(n_o)^3) = 2,67 \times 10^{-13} \text{ м/А}$. У подальшому аналізі припускається, що зовнішнє магнітне поле до кристалу KDP прикладено вздовж осі Z , а кут між віссю Z та напрямком поширення падаючої оптичної хвилі дорівнює ϕ [255].

Отже, в такому випадку еліптичність оптичних власних хвиль, аналогічно до співвідношення (5.1), записується як [17]

$$\chi(\phi) = \frac{n_o^2 - n_e'^2 - ((n_o^2 - n_e'^2)^2 + 4G_H^2(\phi))^{1/2}}{2G_H(\phi)} \approx \frac{G_H(\phi)}{n_o^2 - n_e'^2}, \quad (5.32)$$

де

$$G_H(\phi) = F_{33} H_3 \cos^2 \phi = F'_{33}(\phi) H_3, \quad (5.33)$$

показник заломлення n'_e визначається співвідношенням (5.3), а кут ϕ між віссю Z та напрямком поширення падаючої оптичної хвилі – співвідношенням (5.4). Тоді квадрат ЕПОК для типів I та II АО взаємодії в площині (010) може бути записаний як [255]

$$\begin{aligned} (p_{eff}^{(I)})^2 = & (p_{12} \cos \theta \cos \mu_2 + p_{13} \sin \theta \sin \mu_2)^2 + 0,5 \chi^2 [(p_{11} \cos \theta \times \\ & \times \cos \mu_2 + p_{13} \sin \theta \sin \mu_2)^2 \cos^4 \theta + (p_{31} \cos \theta \cos \mu_2 + p_{33} \sin \theta \times \\ & \times \sin \mu_2)^2 \sin^4 \theta + 0,5 p_{44}^2 \sin^2(\mu_2 + \theta) \sin^2 2\theta + p_{44} (p_{11} \cos \theta \times \\ & \times \cos \mu_2 + p_{13} \sin \theta \sin \mu_2) \sin(\mu_2 + \theta) \sin 2\theta \cos^2 \theta + p_{44} \times \\ & \times (p_{31} \cos \theta \cos \mu_2 + p_{33} \sin \theta \sin \mu_2) \sin(\mu_2 + \theta) \sin 2\theta \sin^2 \theta] \end{aligned} \quad (5.34)$$

та

$$\begin{aligned} (p_{eff}^{(II)})^2 = & ((p_{11} \cos \theta \cos \mu_2 + p_{13} \sin \theta \sin \mu_2)^2 \cos^2 \theta + p_{44}^2 \times \\ & \times \sin^2(\mu_2 + \theta) \sin^2 \theta) \cos^2(\theta + \theta_B) + p_{44} ((p_{11} \cos \theta \cos \mu_2 + \\ & + p_{13} \sin \theta \sin \mu_2) \cos^2 \theta + (p_{31} \cos \theta \cos \mu_2 + p_{33} \sin \theta \sin \mu_2) \times \\ & \times \sin^2 \theta) \sin 2\theta \sin(\mu_2 + \theta) + ((p_{31} \cos \theta \cos \mu_2 + p_{33} \sin \theta \times \\ & \times \sin \mu_2)^2 \sin^2 \theta + p_{44}^2 \sin^2(\mu_2 + \theta) \cos^2 \theta) \sin^2(\theta + \theta_B) + \\ & + \chi^2 [p_{12} \cos \theta \cos \mu_2 + p_{13} \sin \theta \sin \mu_2]^2 \end{aligned} \quad (5.35)$$

відповідно, де θ – кут між хвильовим вектором QL AX та віссю X ; $\mu_2(\theta) = \theta - \zeta_2(\theta)$; ζ_2 – кут між вектором поляризації (зміщення) QL AX та віссю X при поширенні QL AX в площині (010), який визначається зі співвідношення [256]

$$\zeta_2 = \frac{1}{2} \arctg \left(\frac{(C_{13} + C_{44}) \sin 2\theta}{(C_{11} - C_{44}) \cos^2 \theta + (C_{44} - C_{33}) \sin^2 \theta} \right). \quad (5.36)$$

Терми з χ^2 в рівняннях (5.34) та (5.35) визначають приріст квадрату ЕПОК (Δp_{eff}^2) за рахунок магніто-індукованої еліптичності оптичних власних хвиль χ [255].

Залежність швидкості QL AX від кута θ визначається як

$$\begin{aligned} v_{QL}(\theta) = & 0,5((C_{11} + C_{44})\cos^2 \theta + (C_{44} + C_{33})\sin^2 \theta + \\ & + (((C_{11} - C_{44})\cos^2 \theta + (C_{44} - C_{33})\sin^2 \theta)^2 + \\ & + (C_{13} + C_{44})\sin^2 2\theta)^{1/2}). \end{aligned} \quad (5.37)$$

Надалі проаналізуємо залежність ЕПОК та КАОЯ для площини взаємодії (110) [255]. В цьому випадку залежність швидкості QL AX від кута θ' між хвильовим вектором AX та бісектрисою осей X й Y (тобто, віссю X') можна записати наступним чином:

$$\begin{aligned} v_{QL}(\theta') = & 0,5((0,5(C_{11} + C_{12}) + C_{66} + C_{44})\cos^2 \theta' + (C_{44} + C_{33}) \times \\ & \times \sin^2 \theta' + (((0,5(C_{11} + C_{12}) + C_{66} - C_{44})\cos^2 \theta' + (C_{44} - C_{33}) \times \\ & \times \sin^2 \theta')^2 + (C_{13} + C_{44})\sin^2 2\theta')^{1/2}). \end{aligned} \quad (5.38)$$

В свою чергу, квадрат ЕПОК для типів I та II АО взаємодії в площині (110) має вигляд

$$\begin{aligned} (p_{eff}^{(I)})^2 = & (p_{12} \cos \theta' \cos \mu'_2 + p_{13} \sin \theta' \sin \mu'_2)^2 + 0,5\chi^2[(0,5(p_{11} + \\ & + p_{12} + 0,5p_{66})\cos \theta' \cos \mu'_2 + p_{13} \sin \theta' \sin \mu'_2)^2 \cos^4 \theta' + \\ & + (p_{31} \cos \theta' \cos \mu'_2 + p_{33} \sin \theta' \sin \mu'_2)^2 \sin^4 \theta' + 0,5p_{44}^2 \times \\ & \times \sin^2(\mu'_2 + \theta')\sin^2 2\theta' + p_{44}(0,5(p_{11} + p_{12} + 0,5p_{66})\cos \theta' \times \\ & \times \cos \mu'_2 + p_{13} \sin \theta' \sin \mu'_2)\sin(\mu'_2 + \theta')\sin 2\theta' \cos^2 \theta' + p_{44} \times \\ & \times (p_{31} \cos \theta' \cos \mu'_2 + p_{33} \sin \theta' \sin \mu'_2)\sin(\mu'_2 + \theta')\sin 2\theta' \sin^2 \theta'] \end{aligned} \quad (5.39)$$

та

$$\begin{aligned}
(p_{eff}^{(II)})^2 = & ((0,5(p_{11} + p_{12} + 0,5p_{66})\cos\theta'\cos\mu'_2 + \\
& + p_{13}\sin\theta'\sin\mu'_2)^2\cos^2\theta' + p_{44}^2\sin^2(\mu'_2 + \theta')\sin^2\theta') \times \\
& \times \cos^2(\theta' + \theta_B) + p_{44}((0,5(p_{11} + p_{12} + 0,5p_{66})\cos\theta'\cos\mu'_2 + \\
& + p_{13}\sin\theta'\sin\mu'_2)\cos^2\theta' + (p_{31}\cos\theta'\cos\mu'_2 + p_{33}\sin\theta'\sin\mu'_2) \times \\
& \times \sin^2\theta')\sin(\mu'_2 + \theta')\sin 2\theta' + (p_{44}^2\sin^2(\mu'_2 + \theta')\cos^2\theta' + \\
& + (p_{31}\cos\theta'\cos\mu'_2 + p_{33}\sin\theta'\sin\mu'_2)^2\sin^2\theta')\sin^2(\theta' + \theta_B) + \\
& + \chi^2(p_{12}\cos\theta'\cos\mu'_2 + p_{13}\sin\theta'\sin\mu'_2)^2
\end{aligned} \tag{5.40}$$

відповідно, де $\mu'_2(\theta') = \theta' - \zeta'_2(\theta')$; ζ'_2 – кут між вектором зміщення QL AX та віссю X' при поширенні QL AX у площині (110), який визначається зі співвідношення

$$\begin{aligned}
\zeta'_2 = \\
= \frac{1}{2} \arctg \left(\frac{(C_{13} + C_{44})\sin 2\theta'}{(0,5(C_{11} + C_{12} + 2C_{66}) - C_{44})\cos^2\theta' + (C_{44} - C_{33})\sin^2\theta'} \right). \tag{5.41}
\end{aligned}$$

Як можна бачити, для типів I (Рисунок 5.22) та II (Рисунок 5.23) АО взаємодії в площині (010) кристалів KDP пікоподібні аномалії квадрата ЕПОК та КАОЯ виникають при поширенні QL AX вздовж осі X та при прикладанні магнітного поля з напруженістю H_3 вздовж осі Z . При цьому прикладене магнітне поле для типу I АО взаємодії в площині (010) кристалів KDP (Рисунок 5.22) призводить до збільшення ЕПОК з 0,25 при $H_3 = 0$ до 0,35 при $H_3 \sim 10^8$ А/м. В свою чергу, КАОЯ зростає з $1,84 \times 10^{-15}$ с³/кг при $H_3 = 0$ до $3,53 \times 10^{-15}$ с³/кг при $H_3 \sim 10^8$ А/м. Натомість для типу II АО взаємодії в площині (010) кристалів KDP (Рисунок 5.23), за тих самих умов, ЕПОК зростає з 0,24 до 0,35; тоді як КАОЯ – з $1,69 \times 10^{-15}$ с³/кг до $3,53 \times 10^{-15}$ с³/кг. Таким чином, під впливом зовнішнього магнітного поля з напруженістю $H_3 \sim 10^8$ А/м ЕПОК зростає приблизно на 45 %, а КАОЯ – приблизно вдвічі.

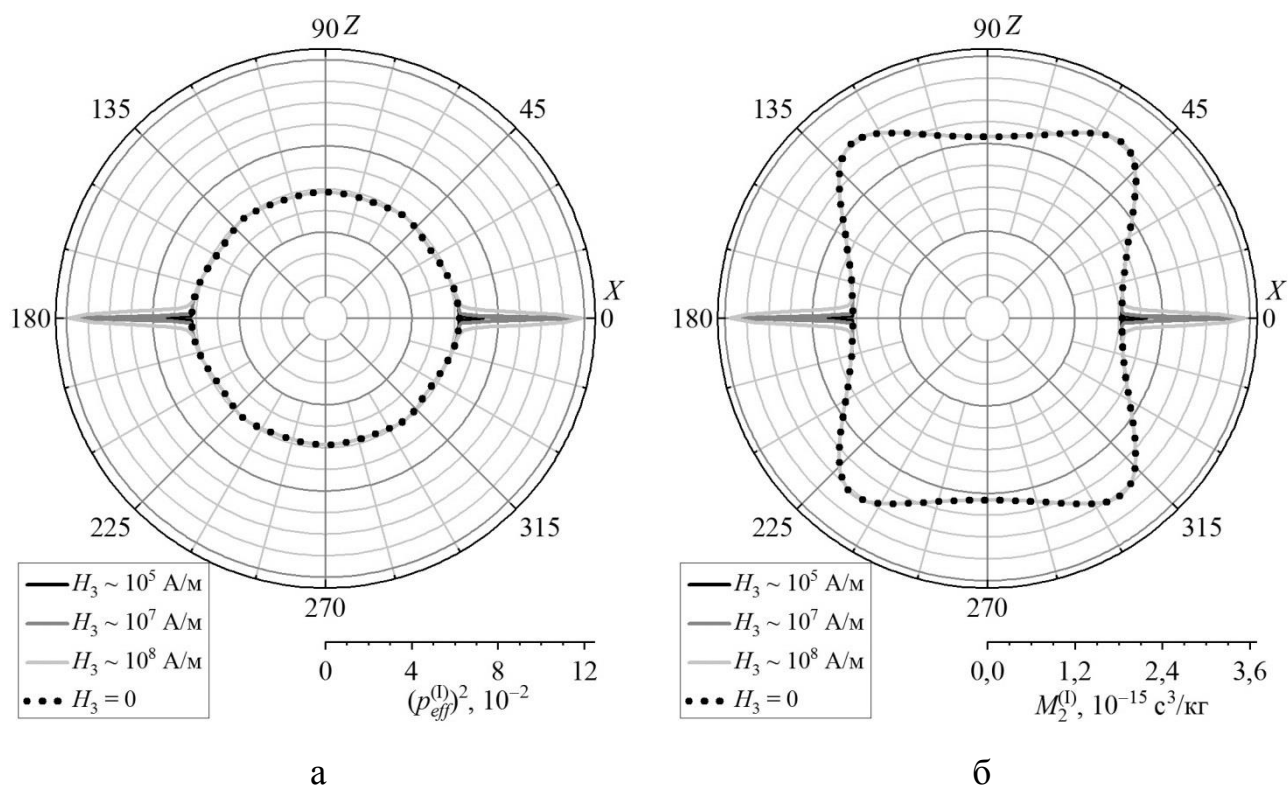


Рисунок 5.22. Залежності квадрату ЕПОК (а) та КАОЯ (б) від кута θ для типу I АО взаємодії в площині (010) кристалів KDP [255].

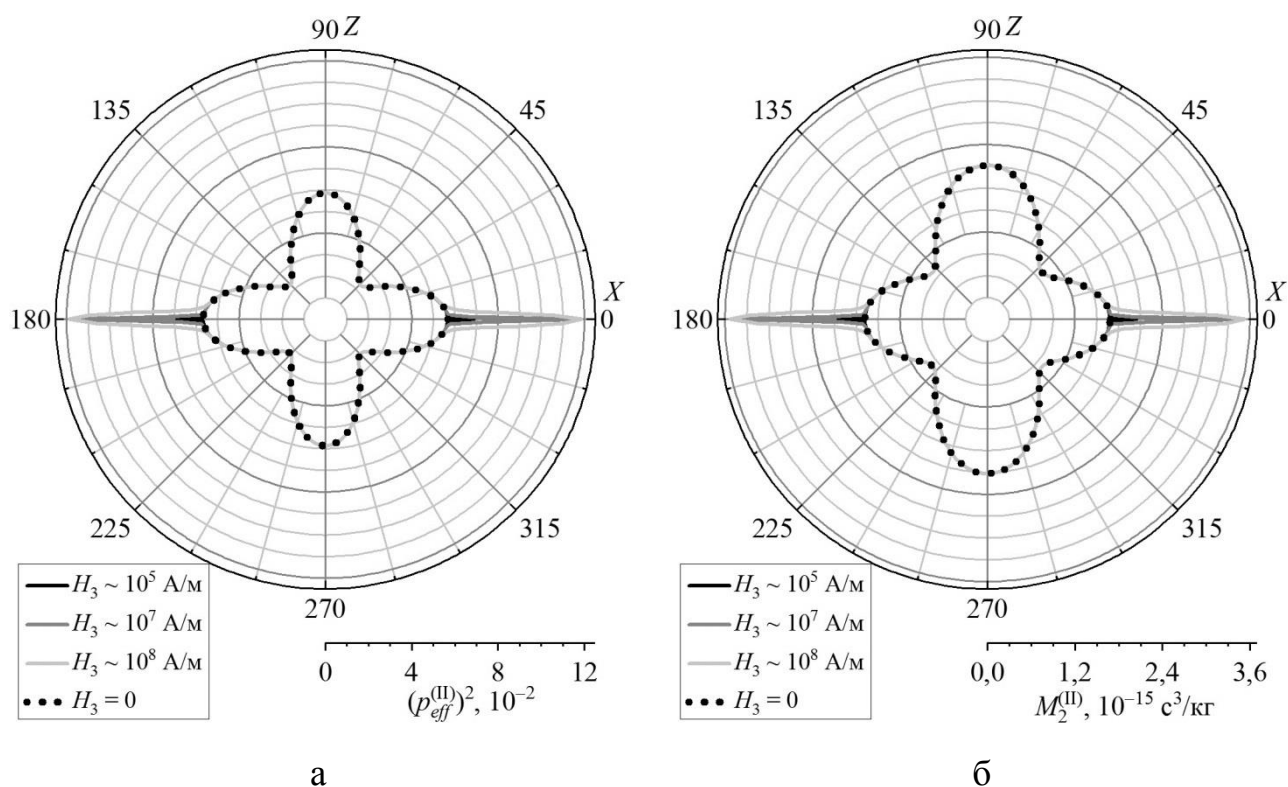


Рисунок 5.23. Залежності квадрату ЕПОК (а) та КАОЯ (б) від кута θ для типу II АО взаємодії в площині (010) кристалів KDP [255].

Пікове значення приросту квадрата ЕПОК швидко зростає зі збільшенням напруженості зовнішнього магнітного поля, досягаючи насичення при $H_3 \sim 10^8$ А/м (Рисунок 5.24). Натомість поведінка ШНВ піку ЕПОК при збільшенні напруженості зовнішнього магнітного поля не є монотонною (Рисунок 5.25). Так, для обох типів АО взаємодій ШНВ піку ЕПОК достатньо швидко зростає від нуля до приблизно $0,8^\circ$ при збільшенні напруженості зовнішнього магнітного поля від нуля до $\sim 10^5$ А/м, а потім майже не змінює своєї величини, зростаючи до приблизно $1,3^\circ$ при збільшенні напруженості зовнішнього магнітного поля до $\sim 10^8$ А/м. При подальшому збільшенні напруженості зовнішнього магнітного поля швидкість зростання ШНВ піку ЕПОК різко збільшується. Таким чином, вище $H_3 \sim 10^8$ А/м приріст квадрату ЕПОК зупиняється, але ШНВ піку ЕПОК є надалі зростає.

Аналіз анізотропії КАОЯ в кристалах KDP показав, що найвище значення КАОЯ ($7,1 \times 10^{-15}$ с³/кг) досягається для ізотропної АО взаємодії падаючої оптичної хвилі, яка поширюється в напрямку $[\bar{1}10]$ та поляризована в площині (001), з найповільнішою поздовжньою АХ ($v = 4109,8$ м/с), яка поширюється в площині (001) в напрямку $[110]$ – тобто, для типу I АО взаємодії в площині (001) [176]. З іншого боку, якщо проаналізувати вплив фарадеївської оптичної активності на КАОЯ у випадку АО взаємодії в площині (001), можна побачити, що в такому випадку магніто-індукована еліптичність оптичних власних хвиль є мізерно малою на фоні величини лінійного двозаломлення.

З огляду на це доцільно розглянути АО взаємодію в площині (110) з найповільнішою QL АХ, яка поширюється вздовж напрямку $[110]$. У цьому випадку оптичні хвилі поширюються в напрямку, близькому до оптичної осі, де магніто-індукована еліптичність оптичних власних хвиль є достатньо великою. За таких умов при прикладанні зовнішнього магнітного поля з напруженістю $H_3 \sim 10^8$ А/м ЕПОК зростає з 0,25 до 0,37 для типу I АО взаємодії (Рисунок 5.26) та з 0,23 до 0,34 для типу II АО взаємодії (Рисунок 5.27). В свою чергу, КАОЯ зростає з $4,48 \times 10^{-15}$ с³/кг до $8,18 \times 10^{-15}$ с³/кг для типу I АО взаємодії та з $3,7 \times 10^{-15}$ с³/кг до $8,18 \times 10^{-15}$ с³/кг для типу II АО взаємодії.

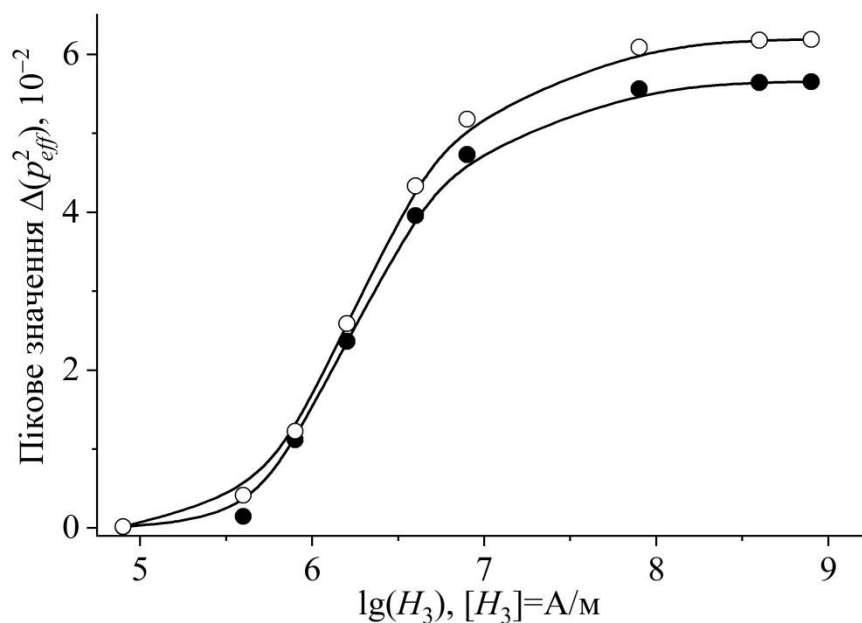


Рисунок 5.24. Залежності пікового значення приросту квадрату ЕПОК $\Delta(p_{eff}^2)$, зумовленого наявністю магніто-індукованої еліптичності оптичних власних хвиль, від $\lg(H_3)$ для типів I (заповнені кола) та II (незаповнені кола) АО взаємодії в кристалах KDP [255].

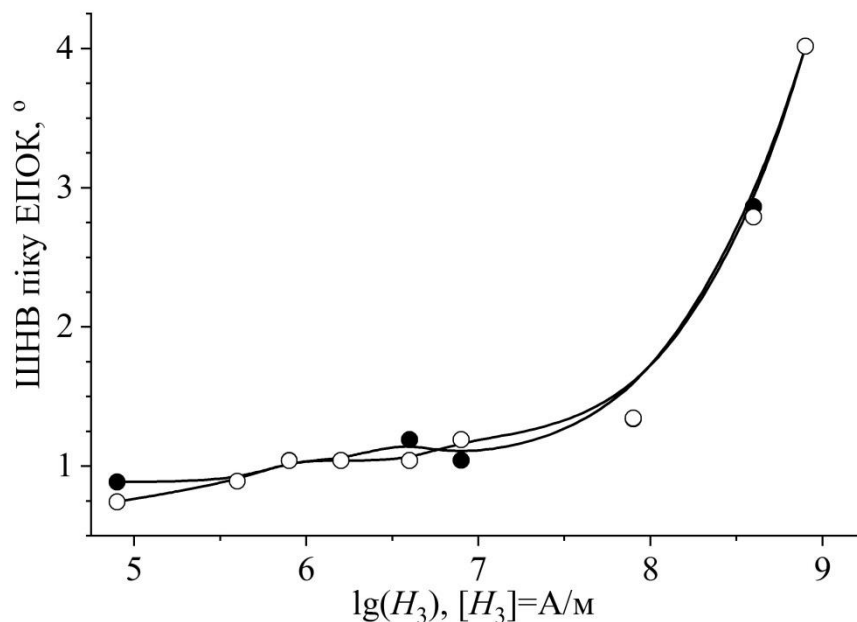


Рисунок 5.25. Залежності ШНВ піку ЕПОК, зумовленого наявністю магніто-індукованої еліптичності оптичних власних хвиль, від $\lg(H_3)$ для типів I (заповнені кола) та II (незаповнені кола) АО взаємодії в кристалах KDP [255].

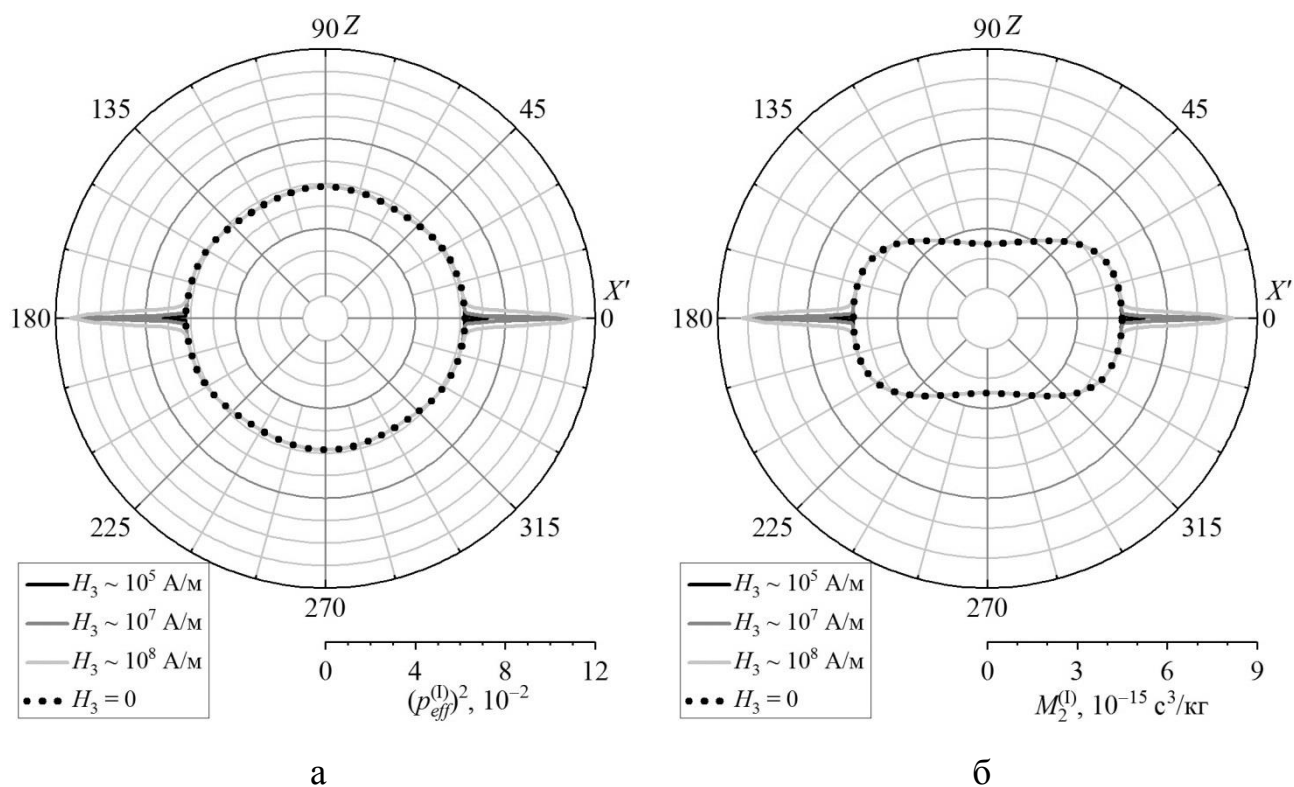


Рисунок 5.26. Залежності квадрату ЕПОК (а) та КАОЯ (б) від кута θ' для типу I АО взаємодії в площині (110) кристалів KDP [255].

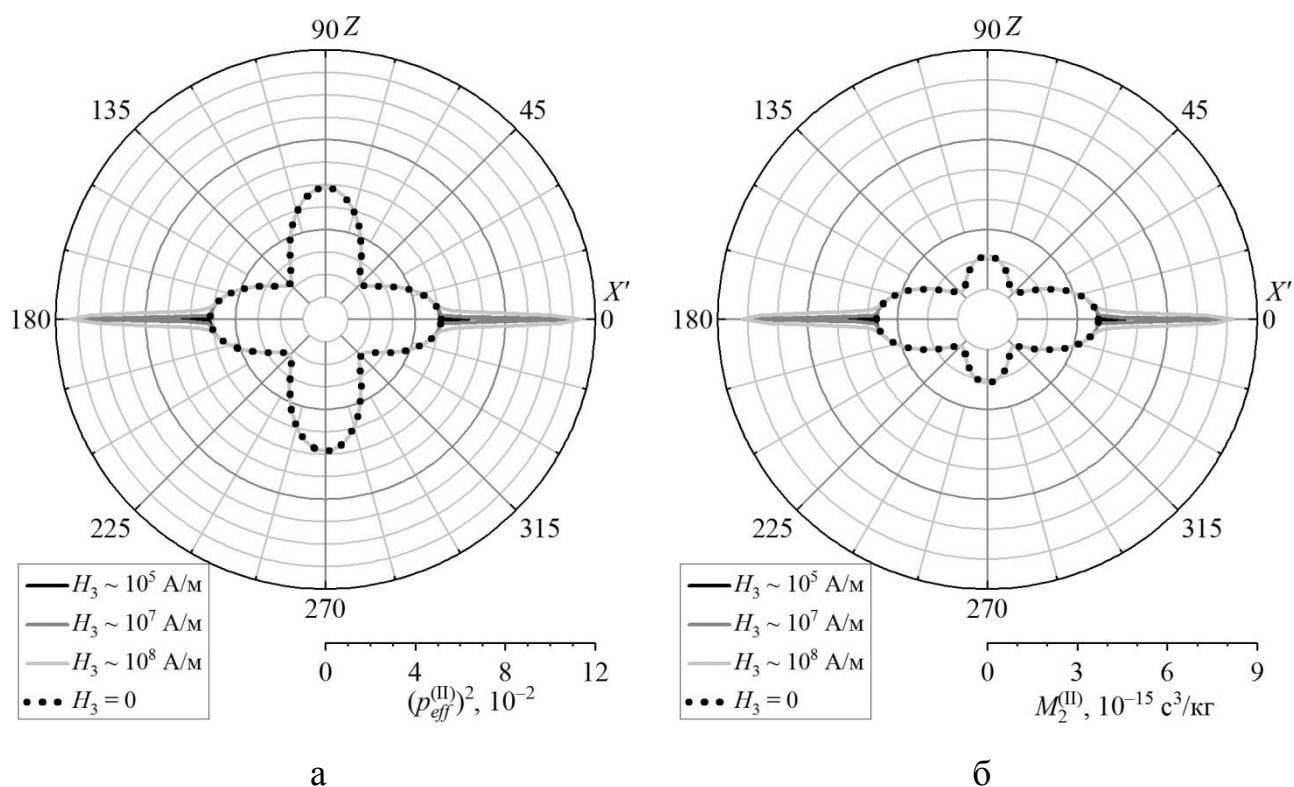


Рисунок 5.27. Залежності квадрату ЕПОК (а) та КАОЯ (б) від кута θ' для типу II АО взаємодії в площині (110) кристалів KDP [255].

З огляду на вищевикладене, можна стверджувати про принципову можливість керування ефективністю АО дифракції Брегга за допомогою зовнішнього магнітного поля. При цьому робочі величини напруженості зовнішнього магнітного поля залежать, вочевидь, від величини тих компонент тензора Фарадея відповідного АО матеріалу, що формують ефективний коефіцієнт Фарадея, який (по аналогії з ЕПОК) є діючим для певної визначеної геометрії АО дифракції Брегга. З точки зору основних аспектів формування ефективного коефіцієнту Фарадея, розглянутих у Розділі 2, видається найбільш доцільним використання в магніто-керованих АО приладах таких АО середовищ, які належать до найкращих магнітооптичних матеріалів.

Висновки до Розділу 5

1. Аналіз впливу природної оптичної активності на ефективність АО взаємодії в кристалах α -SiO₂ показав, що для типів I та II АО взаємодії за участю оптичних власних хвиль вона призводить до пікоподібного зростання ЕПОК та КАОЯ. При цьому для типу I АО взаємодії КАОЯ зростає на 46 %, досягаючи значення $1,58 \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$, а для типу II АО взаємодії – більш ніж утричі, досягаючи значення $1,58 \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$. Аналогічна ситуація спостерігається також й у випадку типів III та IV АО взаємодії: для типу III АО взаємодії КАОЯ зростає на 9 %, досягаючи значення $1,22 \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$, тоді як для типу IV АО взаємодії – більш ніж на порядок, досягаючи значення $1,22 \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$.

2. Аналіз анізотропії ЕПОК та КАОЯ для випадку АО взаємодій у головній площині XZ кристалів Pb₅Ge₃O₁₁ показав, що в цих кристалах наявність оптичної активності, зумовленої спонтанною електрогірацією, суттєво підвищує КАОЯ внаслідок ненульової еліптичності оптичних власних хвиль, що приймають участь у АО взаємодіях. При цьому таке підвищення відбувається з огляду на те, що еліптичність оптичних власних хвиль наближається до одиниці поблизу оптичної осі, а також тому, що в

співвідношення для ЕПОК при врахуванні еліптичності оптичних власних хвиль можуть включатися додаткові компоненти ПО тензора. На прикладі кристалів $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}$ показано, що той чи інший ступінь підвищення ефективності АО взаємодії завжди характерний для всіх типів АО взаємодій, коли падаюча оптична хвиля поширюється в околі оптичної осі. При цьому встановлено, що у випадку АО взаємодії, яка відбувається в площині XZ кристалів $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}$, максимальна АО ефективність досягається для типів I та II ізотропної АО взаємодії – завдяки відмінній від нуля еліптичності оптичних власних хвиль КАОЯ зростає відповідно з $6,8 \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$ та $5,6 \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$ до $12,4 \times 10^{-15} \text{ с}^3/\text{кг}$.

3. Аналіз, проведений на прикладі кристалів KN_2PO_4 , в яких відсутня природна оптична активність при поширенні світла вздовж оптичної осі, для типів I та II АО взаємодії показав, що АО ефективність може бути підвищена шляхом індукування зовнішнім магнітним полем еліптичності оптичних власних хвиль за рахунок ефекту Фарадея. Так, зокрема, при дії зовнішнього магнітного поля вздовж оптичної осі та поширенні падаючої й дифрагованої оптичних хвиль у напрямках, близьких до оптичної осі, з поляризаціями, що є такими ж самими, як й магніто-індукована поляризація еліптичних оптичних власних хвиль, КАОЯ може бути збільшений приблизно в два рази. Отримані результати демонструють принципову можливість керування ефективністю АО дифракції Бреґга за допомогою зовнішнього магнітного поля. При цьому робочі величини напруженості зовнішнього магнітного поля залежать від величини тих компонент тензора Фарадея відповідного АО матеріалу, що формують ефективний коефіцієнт Фарадея для певної визначеної геометрії АО дифракції Бреґга, з огляду на що видається найбільш доцільним використання в магніто-керуваних АО приладах таких АО середовищ, які є найкращими магнітооптичними матеріалами.

ОСНОВНІ РЕЗУЛЬТАТИ ТА ВИСНОВКИ

В результаті виконання дисертаційного дослідження:

- вирішена проблема акустооптичної взаємодії в оптично активних середовищах з врахуванням еліптичної та циркулярної поляризації власних оптичних хвиль, а також неортогональності поляризації власних акустичних хвиль;
- показано, що ефективністю акустооптичної дифракції можна керувати зовнішнім магнітним полем;
- запропоновано метод визначення параметрів розмитих сегнетоелектричних фазових переходів, який базується на результатах експериментальних досліджень оптичної активності;
- виявлені нові ефективні магнітооптичні матеріали.

При цьому, зокрема:

1. На прикладі кристалів $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}$ та $\alpha\text{-SiO}_2$ показано, що наявність оптичної активності суттєво підвищує коефіцієнт акустооптичної якості за рахунок ненульової еліптичності взаємодіючих оптичних власних хвиль. Встановлено, що таке підвищення відбувається за рахунок того, що еліптичність оптичних власних хвиль наближається до одиниці поблизу оптичної осі, а в співвідношення для ефективного пружнооптичного коефіцієнта можуть включатися додаткові компоненти пружнооптичного тензора.

2. На прикладі кристалів KN_2PO_4 , які не володіють природною оптичною активністю при поширенні оптичних хвиль вздовж оптичної осі, продемонстровано, що індукована зовнішнім магнітним полем фарадеївська еліптичність оптичних власних хвиль призводить до суттєвого зростання коефіцієнта акустооптичної якості, що, у свою чергу, свідчить про принципову можливість керування ефективністю акустооптичної дифракції за допомогою зовнішнього магнітного поля. При цьому робочі значення напруженості зовнішнього магнітного поля залежать від величини ефективного коефіцієнта Фарадея відповідного акустооптичного середовища для певної визначеної

геометрії акустооптичної дифракції.

3. Запропоновано метод визначення параметрів розмитих сегнетоелектричних фазових переходів, який базується на поділі досліджуваного зразка на нескінченно велику кількість однорідних елементарних комірок, в кожній з яких фазовий перехід є нерозмитим та характеризується певною локальною температурою Кюрі; гауссівському розподілі локальних температур Кюрі в межах досліджуваного зразка; описі температурної поведінки термодинамічних параметрів при фазових переходах другого роду в рамках теорії Ландау. Метод передбачає інтерполяцію експериментальної температурної залежності оптичної активності, оберненої діелектричної проникності або оберненого коефіцієнта лінійного електрогіраційного ефекту середнім по ансамблю відповідних локальних температурних залежностей. Метод апробований на прикладі кристалів сімейства германату свинцю.

4. Експериментально досліджено фарадеївську оптичну активність в халькогенідних кристалах Tl_3AsS_4 , AgGaGeS_4 , $\text{AgGaGe}_3\text{Se}_8$, халькогенідних твердих розчинах $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ ($x = 0; 0,02; 0,06; 0,10; 0,15; 0,25$) та лужно-боратних стеклах LiKB_4O_7 , $\text{Li}_2\text{B}_6\text{O}_{10}$, $\text{LiCsB}_6\text{O}_{10}$. При цьому отримані значення ефективних коефіцієнтів Фарадея халькогенідних кристалів Tl_3AsS_4 й $\text{AgGaGe}_3\text{Se}_8$ та халькогенідних твердих розчинів $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ ($x = 0; 0,02; 0,06; 0,10; 0,15; 0,25$) дозволяють віднести їх до одних з найкращих магнітно-невпорядкованих матеріалів для магнітооптичних застосувань.

5. Показано, що за наявності лише циркулярного двозаломлення в оптично активних кристалах акустооптична дифракція проявляється у взаємодії між власними циркулярно-поляризованими оптичними хвилями. На прикладі оптично активних кристалів AgGaS_2 для довжини хвилі ізотропної точки 497,4 нм встановлено, що наявність циркулярного двозаломлення призводить до двох типів акустооптичної дифракції – а саме, ізотропної акустооптичної дифракції за участю циркулярно-поляризованих оптичних власних хвиль з однаковими знаками обертань їхніх векторів напруженості електричного поля та анізотропної акустооптичної дифракції, для якої ці знаки є протилежними.

На основі аналізу анізотропії швидкостей акустичних хвиль та експериментальних досліджень пружнооптичних коефіцієнтів кристалів AgGaS_2 визначено кути зносу та неортогональності власних акустичних хвиль, а також кутову залежність коефіцієнта акустооптичної якості для випадку колінеарної акустооптичної взаємодії з циркулярно-поляризованими оптичними власними хвилями на довжині хвилі ізотропної точки.

6. Отримано аналітичні вирази для деформацій, спричинених акустичними хвилями, з врахуванням неортогональності їх поляризації. На основі аналізу впливу неортогональності поляризацій власних акустичних хвиль на анізотропію коефіцієнта акустооптичної якості для ізотропних акустооптичних взаємодій, що відбуваються в головних кристалографічних площинах кристалів Tl_3AsS_4 , $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ та $\alpha\text{-TeO}_2$, показано, що набір компонент пружнооптичного тензора, який визначає ефективний пружнооптичний коефіцієнт, не змінюється при врахуванні або нехтуванні неортогональністю акустичних хвиль для цих кристалів, а також кристалів, які характеризуються тензорами жорсткості та пружнооптичними тензорами з аналогічною структурою. Встановлено, що за цих умов при врахуванні або нехтуванні неортогональністю поляризацій акустичних хвиль змінюється співвідношення між компонентами пружнооптичного тензора, які формують ефективний пружнооптичний коефіцієнт.

7. Експериментально досліджено швидкості акустичних хвиль в кристалах TlInSe_2 та $\gamma_1\text{-(Ga}_{0,3}\text{In}_{0,7})_2\text{Se}_3$, що дозволило визначити всі компоненти тензорів жорсткості та пружної податливості, кути зносу та неортогональності власних акустичних хвиль, а також оцінити коефіцієнт акустооптичної якості для випадку ізотропної акустооптичної взаємодії.

8. З використанням експериментально отриманих поляриметричних двомірних карт розподілу приростів кута орієнтації оптичної індикатриси та оптичної різниці фаз для різних температур показано, що політипна структура акустооптичних халькогенідних твердих розчинів $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ ($x = 0; 0,02; 0,06; 0,10; 0,15; 0,25$) проявляється в неоднорідному розподілі параметрів оптичної анізотропії.

СПИСОК ВИКОРИСТАНИХ ДЖЕРЕЛ

1. V. Balakshiy, V. Parygin, and L. Chirkov, Physical principles of acousto-optic, Moscow: Radio i Svyaz, 1985 (in Russian).
2. L. Magdich and V. Molchanov, Acoustooptic devices and their applications, Philadelphia: Gordon and Breach Science Publisher, 1989.
3. C. Tsai, Guided-Wave Acousto-Optics: Interactions, Devices, and Applications (Springer Series in Electronics and Photonics, 23), Heidelberg: Springer, 1990.
4. J. Xu and R. Stroud, Acousto-Optic Devices, New York: Wiley, 1992.
5. A. Goutzoulis and D. Pape, Designing and Fabrication of Acousto-Optic Devices, New York: Marcel Dekker, 1994.
6. L. Brillouin, "Diffusion de la lumière et des rayons X par un corps transparent homogène. Influence de l'agitation," *Ann. Phys.*, vol. 9, pp. 88-122, 1922.
7. R. Lucas and P. Bigaud, "Nouvelles propriétés optiques des liquides soumis à des ondes ultrasonores," *C. R. Acad. Sci.*, vol. 194, pp. 2132-2134, 1932.
8. A. Andrushchak et al., "Spatial anisotropy of the acousto-optical efficiency in lithium niobate crystals," *J. Appl. Phys.*, vol. 108, p. 103118, 2010.
9. O. Buryy et al., "Global maxima for the acoustooptic effect in SrB_4O_7 crystals," *Appl. Opt.*, vol. 56, pp. 1839-1845, 2017.
10. Y. Zyuryukin, S. Zavarin, and A. Yulaev, "Characteristic features of wideband anisotropic light diffraction in lithium-niobate crystal by a longitudinal acoustic wave," *Opt. Spectrosc.*, vol. 107, pp. 152-156, 2009.
11. O. Mys, O. Krupych, and R. Vlokh, "Anisotropy of an acousto-optic figure of merit for $\text{NaBi}(\text{MoO}_4)_2$ crystals," *Appl. Opt.*, vol. 55, pp. 7941-

7955, 2016.

12. O. Mys, M. Kostyrko, O. Krupych, and R. Vlokh, "Anisotropy of the acousto-optic figure of merit for LiNbO_3 crystals: isotropic diffraction," *Appl. Opt.*, vol. 54, pp. 8176-8186, 2015.
13. T. Yano and A. Watanabe, "Acousto-optic figure of merit of TeO_2 for circularly polarized light," *J. Appl. Phys.*, vol. 45, pp. 1243-1245, 1974.
14. M. Kurpeychik and V. Balakshy, "Peculiarities of acousto-optic interaction in biaxial crystal of alpha-iodic acid," *Appl. Opt.*, vol. 57, pp. 5549-5555, 2018.
15. Y. Ohmachi and N. Uchida, "Acousto-optic property of single-crystal $5\text{PbO} \cdot 3\text{GeO}_2$," *J. Appl. Phys.*, vol. 43, pp. 3583-3584, 1972.
16. Y. Sirotin and M. Shaskolskaya, *Fundamentals of Crystal Physics*, Moscow: Mir Publishers, 1982 (in Russian).
17. A. Konstantinova, B. Grechushnikov, B. Bokut, and E. Valyashko, *Optical properties of crystals*, Minsk: Navuka i Tekhnika, 1995 (in Russian).
18. O. Vlokh, L. Lazko, and Y. Shopa, "Electrooptic and electrogyration properties of the solid solutions on the basis of lead germanate," *Phys. Status Solidi A*, vol. 65, pp. 371-378, 1981.
19. H. Iwasaki, S. Miyazawa, H. Koizumi, K. Sugii, and N. Niizeki, "Ferroelectric and optical properties of $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}$ and its isomorphous compound $\text{Pb}_5\text{Ge}_2\text{SiO}_{11}$," *J. Appl. Phys.*, vol. 43, pp. 4907-4915, 1972.
20. V. Vazhenin, E. Rumyantsev, M. Artemov, and K. Starichenko, "Mechanisms of EPR line broadening in $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}$ near a structural transition," *Phys. Solid State*, vol. 40, pp. 293-298, 1998.
21. V. Novik and N. Gavrilova, "Low-temperature pyroelectricity," *Phys. Solid State*, vol. 42, pp. 991-1008, 2000.
22. M. Trubitsyn and V. Pozdeev, "The effect of off-center Cu^{2+} ions on the phase transition in lead germanate crystals," *Phys. Solid State*, vol. 42,

- pp. 2254-2257, 2000.
23. R. Rolli, G. Samoggia, M. Bettinelli, A. Speghini, and M. Wachtler, "Site-selective spectroscopy of Er^{3+} doped lead germanate glasses," *J. Non-Cryst. Solids*, vol. 288, pp. 114-120, 2001.
 24. D. Adamenko, I. Klymiv, V. Duda, R. Vlokh, and O. Vlokh, "Electrogyration and Faraday rotation in pure and Cr-doped lead germanate crystals," *J. Phys. Condens. Matter*, vol. 20, p. 075201, 2008.
 25. O. Vlokh, Spatial dispersion phenomena in parametric crystal optics, Lviv: Vyshcha Shkola, 1984 (in Russian).
 26. K. Aizu, "Reversal in optical rotatory power – "gyroelectric" crystals and "hypergyroelectric" crystals," *Phys. Rev.*, vol. 133, pp. A1584-A1588, 1964.
 27. R. Newnham and L. Cross, "Ambidextrous crystals," *Endeavour*, vol. 13, pp. 18-22, 1974.
 28. E. Kostova, N. Ivanchev, and M. Kostov, "Polarimeter with electrogyratory modulators," *Bulg. J. Phys.*, vol. 13, pp. 167-169, 1986.
 29. E. Kostova and M. Kostov, "Electrogyratory communication device," *Opt. Commun.*, vol. 60, pp. 211-212, 1986.
 30. D. Adamenko, I. Klymiv, V. Duda, R. Vlokh, and O. Vlokh, "Electrically and magnetically induced optical rotation in $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}:\text{Cr}$ crystals at the phase transition. 1. Electrogyration effect in $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}:\text{Cr}$," *Ukr. J. Phys. Opt.*, vol. 8, pp. 42-53, 2007.
 31. Č. Koňák, J. Fousek, and H. Kürsten, "Induced and spontaneous optical activity in $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}$ single crystals," *Ferroelectrics*, vol. 21, pp. 347-348, 1978.
 32. M. Trubitsyn, M. Volnianskii, A. Ermakov, and V. Linnik, "Ferroelectric phase transition in lead germanate $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}$ studied by ESR of Gd^{3+} probe," *Condens. Matter Phys.*, vol. 2, pp. 677-684, 1999.
 33. Y. Shaldin, A. Bush, S. Matyjasik, and M. Rabadanov, "Characteristic of

- spontaneous polarization in $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}$ crystals," *Crystallogr. Rep.*, vol. 50, pp. 836-842, 2005.
34. S. Miga, J. Dec, A. Molak, and M. Koralewski, "Temperature dependence of nonlinear susceptibilities near ferroelectric phase transition of a lead germanate single crystal," *J. Appl. Phys.*, vol. 99, p. 124107, 2006.
 35. O. Kushnir, R. Shopa, and R. Vlokh, "Optical studies of order parameter fluctuations in solid solutions based on lead germanate crystals," *Ukr. J. Phys. Opt.*, vol. 9, pp. 169-181, 2008.
 36. B. Rolov and V. Yurkevych, *Physics of diffuse phase transitions*, Rostov: Rostov University Press, 1983 (in Russian).
 37. D. Adamenko, I. Klymiv, Y. Vasylykiv, and R. Vlokh, "Optical activity and critical exponent of the order parameter in lead germanate crystals. 1. The case of diffused phase transition in $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}$ doped with Cu, Ba and Si ions," *Ukr. J. Phys. Opt.*, vol. 10, pp. 182-193, 2009.
 38. D. Adamenko and R. Vlokh, "Critical exponents of the order parameter of diffuse ferroelectric phase transitions in the solid solutions based on lead germanate: studies of optical rotation," *Condens. Matter Phys.*, vol. 25, p. 43703, 2022.
 39. G. Smolenskiy, *Physics of ferroelectric phenomena*, Leningrad: Nauka, 1985 (in Russian).
 40. O. Vlokh, L. Lazko, and Y. Shopa, "Electrogyration and electro-optic properties of the solid solutions on the basis of lead germanate," *J. Phys. Soc. Jpn.*, vol. 49, pp. 150-151, 1980.
 41. B. Strukov et al., "Ultrasonic relaxation, smearing of phase transition and some physical properties of lead germanate crystals and solid solutions on their basis," *Izv. AN USSR, Ser. Fiz.*, vol. 41, pp. 692-699, 1977.
 42. O. Vlokh, E. Sinyakov, L. Lazko, and V. Monya, "Spontaneous and induced electrogyration in the $(\text{Pb}_{1-x}\text{Bi}_x)_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}$ crystals," *Fiz. Tverd.*

- Tela*, vol. 20, pp. 2098-2100, 1978.
43. M. Trubitsyn, S. Vaplak, and A. Ermakov, "EPR and dielectrically properties $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}$ crystals with decentric ions Cu^{2+} ," *Fiz. Tverd. Tela*, vol. 42, pp. 1303-1309, 2000.
 44. D. Adamenko et al., "Optical activity and critical exponent of the order parameter in lead germanate crystals. 2. Electrogyration and dielectric properties of $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}:\text{Cu}^{2+}$," *Ukr. J. Phys. Opt.*, vol. 10, pp. 194-200, 2009.
 45. D. Adamenko, "Dispersion of optical activity and absorption in $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}:\text{Cu}^{2+}$ crystals," *Ukr. J. Phys. Opt.*, vol. 11, pp. 114-118, 2010.
 46. M. Shaskolskaya, Acoustic crystals, Moscow: Nauka, 1982 (in Russian).
 47. W. Xianjun, X. Jiayue, X. Jingzhong, W. Anhua, and J. Weiqing, "Growth of ferroelectric lead germanate single crystal by the vertical Bridgman method," *J. Cryst. Growth*, vol. 263, pp. 208-213, 2004.
 48. V. Vazhenin, A. Potapov, A. Fokin, and M. Artyomov, "Trigonal and Triclinic Fe^{3+} Paramagnetic Centers in Ferroelectric $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}$," *Phys. Solid State*, vol. 54, pp. 2450-2455, 2012.
 49. X. Yue, S. Mendricks, Y. Hu, H. Hesse, and D. Kip, "Photorefractive effect in doped $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}$ and in $(\text{Pb}_{1-x}\text{Ba}_x)_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}$," *J. Appl. Phys.*, vol. 83, pp. 3473-3479, 1998.
 50. O. Vlokh, E. Sinyakov, L. Lazko, V. Monya, and I. Klimov, "Electrogyration and dielectric properties of the solid solutions on the basis of lead germanate," *Fiz. Tverd. Tela*, vol. 19, pp. 149-152, 1977.
 51. O. Vlokh, E. Sinyakov, L. Lazko, Y. Shopa, and A. Kreycherek, "Electrogyration and dielectric properties of the lead germanate crystals with silicon admixture," *Fiz. Tverd. Tela*, vol. 22, pp. 227-229, 1980.
 52. Y. Goto and E. Sawaguchi, "Electric conductivity of ferroelectric $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}$," *J. Phys. Soc. Jpn.*, vol. 46, pp. 1580-1582, 1979.
 53. Y. Shopa, D. Adamenko, R. Vlokh, and O. Vlokh, "Electrogyration effect

- in lead germanate crystal family. 1. Electrogyration in the solid solutions based on lead germanate crystals," *Ukr. J. Phys. Opt.*, vol. 8, pp. 197-208, 2007.
54. Y. Shopa, O. Kushnir, D. Adamenko, R. Shopa, V. Dzyubanski, R. Vlokh, and O. Vlokh, "Electrogyration effect in lead germanate crystal family. 2. The case of crystals doped with Li, Eu, La, Nd and (Li, Bi)," *Ukr. J. Phys. Opt.*, vol. 10, pp. 71-81, 2009.
 55. L. Lazko, V. Monia, V. Sergayuk, and Y. Shopa, "Influence of Li, Eu, La and Nd impurities on the electrogyration properties of lead germanate," *Visnyk Lviv Univ. Ser. Fiz.*, vol. 16, pp. 35-40, 1982.
 56. I. Martynyuk-Lototska et al., "Acoustic anisotropy of acoustooptic Tl_3AsS_4 crystals," *Appl. Opt.*, vol. 54, pp. 1302-1308, 2015.
 57. G. Roland, M. Gottlieb, and J. Feichtner, "Optoacoustic properties of thallium arsenic sulphide Tl_3AsS_4 ," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 21, pp. 52-54, 1972.
 58. A. Goutzoulis, M. Gottlieb, K. Davies, and Z. Kun, "Thallium arsenic sulfide acoustooptic Bragg cells," *Appl. Opt.*, vol. 24, pp. 4183-4188, 1985.
 59. B. Mytsyk et al., "Piezo-, elasto- and acousto-optic properties of Tl_3AsS_4 crystals," *Appl. Opt.*, vol. 57, pp. 3796-3801, 2018.
 60. O. Mys, T. Kryvyy, B. Mytsyk, and R. Vlokh, "Acoustooptic figure of merit of Tl_3AsS_4 crystals. The case of acoustic propagation along crystallographic axes," *Ukr. J. Phys. Opt.*, vol. 19, pp. 99-105, 2018.
 61. I. Martynyuk-Lototska, O. Parasyuk, and R. Vlokh, "Acoustic and elastic anisotropies of acoustooptic AgGaGeS_4 crystals," *Ukr. J. Phys. Opt.*, vol. 17, pp. 141-147, 2016.
 62. I. Martynyuk-Lototska, M. Kushnirevych, G. Myronchuk, O. Parasyuk, and R. Vlokh, "Acoustic anisotropy of $\text{AgGaGe}_3\text{Se}_8$ crystals and their acoustooptic applications," *Ukr. J. Phys. Opt.*, vol. 16, pp. 77-84, 2015.

63. I. Martynyuk-Lototska, I. Trach, O. Kokhan, and R. Vlokh, "Efficient acousto-optic crystal, TlInS_2 : acoustic and elastic anisotropy," *Appl. Opt.*, vol. 56, pp. 3179-3184, 2017.
64. Y. Burak et al., "The center of the colour in $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ single crystals," *Inorg. Mater.*, vol. 25, pp. 1226-1228, 1989.
65. O. Antonyak, Y. Burak, I. Lysejko, M. Pidzyrilo, and Z. Khapko, "Luminescence of the $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ single crystals," *Opt. Spectrosc.*, vol. 61, pp. 550-553, 1986.
66. R. Komatsu et al., "Growth and ultraviolet application of $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ crystals: generation of the fourth and fifth harmonics of $\text{Nd:Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ lasers," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 70, pp. 3492-3494, 1997.
67. V. Petrov et al., "Vacuum ultraviolet application of $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ crystals: generation of 100 fs pulses down to 170 nm," *J. Appl. Phys.*, vol. 84, pp. 5887-5892, 1998.
68. Y. Ono et al., "Structural study of LiKB_4O_7 and LiRbB_4O_7 : new nonlinear optical crystals," *J. Cryst. Growth*, vol. 229, pp. 472-476, 2001.
69. R. Vlokh et al., "Study of laser induced damage of borate crystals," *Ukr. J. Phys. Opt.*, vol. 4, pp. 101-104, 2003.
70. I. Martynyuk-Lototska et al., "Acousto-optic diffraction in borate crystals," *Ukr. J. Phys. Opt.*, vol. 5, pp. 111-114, 2004.
71. I. Martynyuk-Lototska et al., "Elastic, piezooptic and acoustooptic properties of borate crystals (BaB_2O_4 , $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ and $\text{CsLiB}_6\text{O}_{10}$)," *Integrated Ferroelectrics*, vol. 63, pp. 99-103, 2004.
72. I. Martynyuk-Lototska et al., "Acousto-optic interaction in $\alpha\text{-BaB}_2\text{O}_4$ and $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ crystals," *Appl. Opt.*, vol. 47, pp. 3446-3454, 2008.
73. I. Martynyuk-Lototska, O. Mys, V. Adamiv, Y. Burak, and R. Vlokh, "Elastical, piezooptical and acousto-optic properties of lithium tetra borate crystals," *Ukr. J. Phys. Opt.*, vol. 3, pp. 264-266, 2002.
74. O. Mys, "Obliquity of the acoustic energy flow in the acousto-optic α -

- BaB₂O₄ and Li₂B₄O₇ crystals," *Ukr. J. Phys. Opt.*, vol. 9, pp. 256-260, 2008.
75. O. Mys, "Acoustooptic and acoustic properties of KLiB₄O₇ crystals," *Ukr. J. Phys. Opt.*, vol. 10, pp. 165-174, 2009.
 76. S. Kaczmarek, "Li₂B₄O₇ glasses doped with C, Co, Eu and Dy," *Opt. Mater.*, vol. 19, pp. 189-194, 2002.
 77. O. Mys, M. Kostyrko, M. Smyk, O. Krupych, and R. Vlokh, "Anisotropy of acousto-optic figure of merit in optically isotropic media," *Appl. Opt.*, vol. 53, pp. 4616-4627, 2014.
 78. V. Adamiv et al., "Synthesis and optical characterization of LiKB₄O₇, Li₂B₆O₁₀ and LiCsB₆O₁₀ glasses," *Appl. Opt.*, vol. 49, pp. 5360-5365, 2010.
 79. V. Adamiv et al., "Synthesis and optical characterization of LiKB₄O₇, Li₂B₆O₁₀ and LiCsB₆O₁₀ glasses: erratum," *Appl. Opt.*, vol. 53, pp. 4481-4482, 2014.
 80. S. Haussühl and W. Effgen, "Faraday effect in cubic crystals. Additivity rule and phase transitions," *Z. Kristallogr. Cryst. Mater.*, vol. 183, pp. 153-174, 1988.
 81. Y. Hwang, S. Chung, and Y. Um, "Giant Faraday rotation in Cd_{1-x}Mn_xTe (0<x<0.82) crystals," *Phys. Status Solidi C*, vol. 4, pp. 4453-4456, 2007.
 82. Y. Hwang et al., "Magnetic and magneto-optical properties in diluted magnetic semiconductors: Cd_{1-x-y}Mn_xFe_yTe single crystals," *J. Magn. Magn. Mater.*, vol. 304, pp. e309-e311, 2006.
 83. R. Yasuhara et al., "Cryogenic temperature characteristics of Verdet constant on terbium gallium garnet ceramics," *Opt. Express*, vol. 15, pp. 11255-11261, 2007.
 84. D. Adamenko, V. Adamiv, I. Klymiv, and R. Vlokh, "Kerr and Faraday effects in borate glasses," *Ukr. J. Phys. Opt.*, vol. 12, pp. 1-9, 2011.
 85. O. Krupych, D. Adamenko, O. Mys, A. Grabar, and R. Vlokh, "Faraday

- effect in $\text{Sn}_2\text{P}_2\text{S}_6$ crystals," *Appl. Opt.*, vol. 47, pp. 6040-6045, 2008.
86. J. Wilson, P. Sen Gupta, P. Robinson, and A. Criddle, "Fangite, Tl_3AsS_4 , a new thallium arsenic sulfosalt from the Mercur Au deposit, Utah, and revised optical data for gillulyite," *Am. Mineral.*, vol. 78, pp. 1096-1103, 1993.
 87. D. Adamenko, M. Kushnirevych, O. Kokhan, and R. Vlokh, "Faraday effect in Tl_3AsS_4 crystals," *Ukr. J. Phys. Opt.*, vol. 16, pp. 134-137, 2015.
 88. V. Badikov et al., "Orthorhombic nonlinear crystals of $\text{Ag}_x\text{Ga}_x\text{Ge}_{1-x}\text{Se}_2$ for the mid-infrared spectral range," *Opt. Mater.*, vol. 31, pp. 590-597, 2009.
 89. I. Kityk et al., "Photoinduced anisotropy in the $\text{AgGaGe}_3\text{Se}_8\text{:Cu}$ chalcogenide crystals," *Mater. Lett.*, vol. 107, pp. 218-220, 2013.
 90. I. Olekseyuk, A. Gulyak, L. Sysa, G. Gorgut, and A. Lomzin, "Crystal chemical properties and preparation of single crystals of $\text{AgGaSe}_2 - \text{GeSe}_2$ γ -solid solutions," *J. Alloys Compd.*, vol. 241, pp. 187-190, 1996.
 91. D. Knuteson et al., "Quaternary $\text{AgGaGe}_n\text{Se}_{2(n+1)}$ crystals for NLO applications," *J. Cryst. Growth*, vol. 312, pp. 1114-1117, 2010.
 92. G. Davidyuk et al., "Effect of doping with transition and rare-earth metals on the electrical and optical properties of $\text{AgGaGe}_3\text{Se}_8$ single crystals," *Inorg. Mater.*, vol. 44, pp. 361-365, 2008.
 93. E. Al-Harbi et al., "IR laser induced spectral kinetics of $\text{AgGaGe}_3\text{Se}_8\text{:Cu}$ chalcogenide crystals," *Spectrochim. Acta A Mol. Biomol. Spectrosc.*, vol. 111, pp. 142-149, 2013.
 94. I. Kityk et al., "Laser-induced piezoelectric effects in chalcogenide crystals," *Physica B Condens. Matter*, vol. 423, pp. 60-63, 2013.
 95. N. Chbani, A. Loireau-Lozac'h, J. Rivet, and J. Dugue, "Systeme pseudo-ternaire $\text{Ag}_2\text{S}-\text{Ga}_2\text{S}_3-\text{GeS}_2$: Diagramme de phases – Domaine vitreux," *J. Solid State Chem.*, vol. 117, pp. 189-200, 1995.
 96. E. Pobedinskaya, L. Alimova, N. Belov, and V. Badikov, "The crystal

- structure of the Ag-germanogallium sulfide and GeS_2 ," *Dokl. Phys.*, vol. 26, pp. 259-263, 1981.
97. V. Badikov, A. Tyulyupa, G. Shevyrdyaeva, and S. Sheina, "Solid solutions in the AgGaS_2 – GeS_2 and AgGaSe_2 – GeSe_2 systems," *Inorg. Mater.*, vol. 27, pp. 177-180, 1991.
 98. G. Davidyuk et al., "IR-induced features of AgGaGeS_4 crystalline semiconductors," *J. Phys. Chem. Solids*, vol. 73, pp. 439-443, 2012.
 99. O. Yurchenko, I. Olekseyuk, O. Parasyuk, and V. Pankevich, "Single crystal growth and properties of AgGaGeS_4 ," *J. Cryst. Growth*, vol. 275, pp. 1983-1985, 2005.
 100. K. Miyata, V. Petrov, and K. Kato, "Phase-matching properties for AgGaGeS_4 ," *Appl. Opt.*, vol. 46, pp. 5728-5731, 2007.
 101. S. Das, C. Ghosh, S. Gangopadhyay, Y. Andreev, and V. Badikov, " AgGaGeS_4 crystals for nonlinear laser device applications," *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 45, pp. 9000-9002, 2006.
 102. D. Ren et al., "Optical properties and frequency conversion with AgGaGeS_4 crystal," *Chin. Phys. B*, vol. 13, pp. 1468-1473, 2004.
 103. G. Matvienko et al., "Wide band frequency converters for lidar systems," *Proc. SPIE 4546, Laser Radar: Ranging and Atmospheric Lidar Techniques III*, pp. 119-126, 23 January 2002.
 104. V. Petrov, V. Badikov, G. Shevyrdyaeva, V. Panyutin, and V. Chizhikov, "Phase-matching properties and optical parametric amplification in single crystals of AgGaGeS_4 ," *Opt. Mater.*, vol. 26, pp. 217-222, 2004.
 105. F. Jonsson and C. Flytzanis, "Polarization state dependence of optical parametric processes in artificially gyrotropic media," *J. Opt. A: Pure Appl. Opt.*, vol. 2, pp. 299-302, 2000.
 106. D. Adamenko, O. Parasyuk, and R. Vlokh, "Faraday effect in $\text{AgGaGe}_3\text{Se}_8$ crystals," *Ukr. J. Phys. Opt.*, vol. 17, pp. 27-31, 2016.
 107. D. Adamenko, A. Say, O. Parasyuk, I. Martynyuk-Lototska, and R.

- Vlokh, "Magneto optic rotation and thermal expansion of AgGaGeS_4 crystals," *Ukr. J. Phys. Opt.*, vol. 17, pp. 105-111, 2016.
108. D. Adamenko et al., "(x,T)-phase diagram of $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ solid solutions ($x = 0, 0.02, 0.06, 0.10, 0.15$ and 0.25)," *Phase Transit.*, vol. 93, pp. 935-944, 2020.
 109. D. Adamenko et al., "Faraday effect in $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ solid solutions ($x = 0, 0.02, 0.06, 0.10, 0.15$ and 0.25)," *Ukr. J. Phys. Opt.*, vol. 21, pp. 178-183, 2020.
 110. D. Adamenko, Y. Vasylykiv, A. Pogodin, O. Kokhan, and R. Vlokh, "Faraday effect in TlInS_2 crystals," *Ukr. J. Phys. Opt.*, vol. 18, pp. 197-200, 2017.
 111. N. Gasanly, "Effect of temperature and isomorphic atom substitution on optical absorption edge of $\text{TlInS}_{2x}\text{Se}_{2(1-x)}$ mixed crystals ($0.25 \leq x \leq 1$)," *Cryst. Res. Technol.*, vol. 45, pp. 525-528, 2010.
 112. R. Vlokh and I. Martynyuk-Lototska, "Ferroelastic crystals as effective acoustooptic materials," *Ukr. J. Phys. Opt.*, vol. 10, pp. 89-99, 2009.
 113. R. Matviiv et al., "Thermal and refractive properties of doped K_2SO_4 crystals in the region of the phase transition," *J. Phys. Stud.*, vol. 25, p. 2703, 2021.
 114. A. Panich, "Electronic properties and phase transitions in low-dimensional semiconductors," *J. Phys. Condens. Matter*, vol. 20, p. 293202, 2008.
 115. S. Kashida and Y. Kobayashi, "X-ray study of the incommensurate phase of TlInS_2 ," *J. Phys. Condens. Matter*, vol. 11, pp. 1027-1035, 1999.
 116. G. Delgado, A. Mora, F. Pérez, and J. González, "Crystal structure of the ternary semiconductor compound thallium gallium sulfide, TlGaS_2 ," *Physica B Condens. Matter*, vol. 391, pp. 385-388, 2007.
 117. N. Gasanly, B. Mavrin, K. Sterin, V. Tagirov, and Z. Khalafov, "Raman study of layer TlGaS_2 , $\beta\text{-TlInS}_2$, and TlGaSe_2 crystals," *Phys. Status*

- Solidi B*, vol. 86, pp. K49-K53, 1978.
118. D. Muller, G. Eulenberger, and H. Hahn, "Über ternäre Thalliumchalkogenide mit Thalliumselenidstruktur," *Z. Anorg. Allg. Chem.*, vol. 398, pp. 207-220, 1973.
 119. M. Gottlieb, T. Isaacs, J. Feichtner, and G. Roland, "Acousto-optic properties of some chalcogenide crystals," *J. Appl. Phys.*, vol. 45, pp. 5145-5151, 1974.
 120. R. Aliev et al., "Ferroelectricity and structural phase transitions in the crystals of TlInS_2 family," *Fiz. Tverd. Tela*, vol. 26, pp. 1271-1276, 1984.
 121. S. Vakhrushev et al., "Incommensurate phase transition in TlInS_2 crystals," *JETP Lett.*, vol. 39, pp. 291-293, 1984.
 122. Y. Gololobov, N. Borovoy, G. Isayenko, and A. Polovina, "Ferroelectric phases in the polytypes of TlInS_2 ternary compound," *Phys. Status Solidi C*, vol. 6, pp. 989-992, 2009.
 123. O. Alekperov, G. Ibragimov, A. Nadjafov, and A. Fakix, "Polytypes in ferroelectric TlInS_2 and its dielectric and optic properties," *Phys. Status Solidi C*, vol. 6, pp. 977-980, 2009.
 124. A. Salnik, Y. Gololobov, and N. Borovoy, "The incommensurate phase transformation in TlInS_2 ferroelectric," *Ferroelectrics*, vol. 484, pp. 62-68, 2015.
 125. A. Volkov et al., "Structural phase transitions in TlInS_2 crystal," *Sov. Phys. Solid State*, vol. 25, pp. 2061-2062, 1983.
 126. R. Suleymanov, M. Seidov, F. Salayev, and M. Mikailov, "The model of sequence of phase transitions in layered TlInS_2 crystals," *Fiz. Tverd. Tela*, vol. 35, pp. 348-354, 1993.
 127. P. Guranich et al., "Ferroelasticity of TlInS_2 crystal," *Solid State Commun.*, vol. 184, pp. 21-24, 2014.
 128. K. Mamedov, A. Abdulaev, and E. Kerimova, "Heat capacities of TlInS_2 and TlInSe_2 crystals at low temperatures," *Phys. Status Solidi A*, vol. 94,

- pp. 115-119, 1986.
129. N. Bakhyshov, N. Gasanly, B. Yavadov, V. Tagirov, and S. Efendiev, "Mixed one- and two-mode behaviour of optical phonons in $\text{TlGaS}_{2x}\text{Se}_{2(1-x)}$ and $\text{TlInS}_{2x}\text{Se}_{2(1-x)}$ layer solid solutions," *Phys. Status Solidi B*, vol. 91, pp. K1-K3, 1979.
 130. N. Tekhanovich, A. Sheleg, and V. Aliev, "Heat capacity of $\text{TlInS}_{1.8}\text{Se}_{0.2}$ the temperature range 60–300 K," *Fiz. Tverd. Tela*, vol. 34, p. 1038, 1992.
 131. N. Gasanly, "Influence of isomorphic atom substitution on lattice anisotropy of thallium dichalcogenide layered mixed crystals," *Acta Phys. Pol. A*, vol. 110, pp. 471-477, 2006.
 132. O. Gomonnai et al., "Temperature-dependent dielectric functions and interband critical points of sulfur-rich $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ layered solid solution crystals," *Appl. Surf. Sci.*, vol. 424, pp. 383-388, 2017.
 133. P. Guranich et al., "Phase (x,T) and (p,T) diagrams of $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ polycrystal in the compositional range $0 \leq x \leq 0.15$," *Phase Transit.*, vol. 92, pp. 508-516, 2019.
 134. M. Seyidov, R. Suleymanov, and F. Salehli, "Origin of structural instability in $\text{TlInS}_{2(1-x)}\text{Se}_{2x}$ solid solutions," *Phys. Scr.*, vol. 84, p. 015601, 2011.
 135. R. Suleymanov, M. Seidov, and F. Salayev, "Elastic properties of layered crystals TlInS_2 and TlGaSe_2 ," *Fiz. Tverd. Tela*, vol. 33, pp. 1797-1780, 1991.
 136. S. Jabarov et al., "Structural phase transition in TlGaSe_2 under high pressure," *J. Surf. Investig.*, vol. 9, pp. 35-40, 2015.
 137. A. Sheleg, V. Shautsova, V. Hurtavy, S. Mustafaeva, and E. Kerimova, "Low-temperature X-ray studies of TlInS_2 , TlGaS_2 , and TlGaSe_2 single crystals," *J. Surf. Investig.*, vol. 7, pp. 1052-1055, 2013.
 138. H. Hochheimer et al., "Study of the ferroelectric phase transition of

- TlGaSe₂ by dielectric, calorimetric, infrared and X-ray diffraction measurements," *Z. Phys. B*, vol. 73, pp. 257-263, 1988.
139. R. Paucar et al., "Phase transitions and Raman scattering spectra of TlGaSe₂," *J. Phys. Conf. Ser.*, vol. 619, p. 012018, 2015.
 140. N. Borovoi, Y. Gololobov, G. Isaenko, and N. Stepanishchev, "Influence of polytypism on structural phase transformations in TlGaSe₂ crystals," *Phys. Solid State*, vol. 51, pp. 2367-2370, 2009.
 141. V. Aliev, M. Aldzhanov, and S. Aliev, "Incommensurate phase transition in TlGaTe₂," *JETP Lett.*, vol. 45, pp. 534-536, 1987.
 142. J. Banys, F. Wondre, and G. Guseinov, "Powder diffraction study of TlGaTe₂, TlInTe₂ and TlInSe₂," *Mater. Lett.*, vol. 9, pp. 269-274, 1990.
 143. N. Mamedov and A. Panich, "Phase transition in TlGaTe₂," *Phys. Status Solidi A*, vol. 117, pp. K15-K17, 1990.
 144. A. Sheleg, V. Hurtavy, V. Shautsova, and V. Aliev, "Dielectric properties and phase transitions in crystals of TlInS_xSe_{2-x} solid solutions," *Phys. Solid State*, vol. 54, pp. 622-625, 2012.
 145. A. Sheleg, E. Zub, A. Yachkovskii, S. Mustafaeva, and E. Kerimova, "X-ray diffraction study of (TlInSe₂)_{1-x}(TlGaTe₂)_x crystal system," *Crystallogr. Rep.*, vol. 57, pp. 283-285, 2012.
 146. O. Alekperov, M. Aljanov, and E. Kerimova, "Low-temperature phase transition in TlInSe₂ crystals," *Turkish J. Phys.*, vol. 22, pp. 1053-1058, 1998.
 147. S. Hosokawa et al., "Structural studies on TlInSe₂ thermoelectric material by X-ray fluorescence holography, XAFS, and X-ray diffraction," *Phys. Status Solidi B*, vol. 252, pp. 1225-1229, 2015.
 148. S. Hosokawa et al., "Lattice distortions in TlInSe₂ thermoelectric material studied by X-Ray absorption fine structure," *Phys. Status Solidi A*, vol. 215, p. 1700416, 2017.
 149. M. Ishikawa, T. Nakayama, K. Wakita, Y. Shim, and N. Mamedov,

- "First-principles study of giant thermoelectric power in incommensurate TlInSe_2 ," *J. Appl. Phys.*, vol. 123, p. 161575, 2018.
150. K. Mimura et al., "Temperature-dependent angle-resolved photoemission spectra of TlInSe_2 : manifestations of incommensurate and commensurate phases," *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 47, p. 8188, 2008.
 151. S. Johnsen et al., "Thallium chalcogenide-based wide-band-gap semiconductors: TlGaSe_2 for radiation detectors," *Chem. Mater.*, vol. 23, pp. 3120-3128, 2011.
 152. V. Grivickas, V. Bikbajevs, K. Gulbinas, V. Gavryushin, and J. Linnros, "Strong photoacoustic oscillations in layered TlGaSe_2 semiconductor," *Phys. Status Solidi B*, vol. 244, pp. 4624-4628, 2007.
 153. M. Halias, A. Anagnostopoulos, K. Kambas, and J. Spyridelis, "On the non-linear properties of TlInX_2 ($X = \text{S}, \text{Se}, \text{Te}$) ternary compounds," *Physica B Condens. Matter*, vol. 160, pp. 154-160, 1989.
 154. S. Youssef, "Phase transitions and electrical conductivity of TlInS_2 ," *Physica A*, vol. 215, pp. 176-180, 1995.
 155. Y. Shim, W. Okada, K. Wakita, and N. Mamedov, "Refractive indices of layered semiconductor ferroelectrics TlInS_2 , TlGaS_2 , and TlGaSe_2 from ellipsometric measurements limited to only layer-plane surfaces," *J. Appl. Phys.*, vol. 102, p. 083537, 2007.
 156. K. Allakhverdiev, T. Mamedov, E. Salaev, and I. Efendieva, "The Fundamental Absorption Edge of TlInSe_2 ," *Phys. Status Solidi B*, vol. 113, pp. K43-K47, 1982.
 157. N. Mamedov, K. Wakita, Y. Shim, K. Abe, and N. Ogushi, "Temperature-dependent and pump-probe ellipsometric studies of TlInSe_2 ," *Thin Solid Films*, vol. 517, pp. 1434-1438, 2008.
 158. I. Martynyuk-Lototska, O. Mys, A. Say, I. Trach, D. Adamenko, O. Gomonnai, I. Roman, and R. Vlokh, "Anisotropy of acoustic and thermal expansion properties of TlInSe_2 crystals," *Phase Transit.*, vol. 92, pp. 23-

- 35, 2019.
159. M. Kurbanov, D. Bairamov, and N. Sardarova, "Thermal expansion of TlInX_2 ($X = \text{S}, \text{Se}, \text{Te}$)," *Inorg. Mater.*, vol. 36, pp. 132-133, 2000.
 160. S. Novikova, Thermal expansion of solids, Moskva: Nauka, 1974 (in Russian).
 161. J. Sapriel, "Domain-wall orientations in ferroelastics," *Phys. Rev. B*, vol. 12, pp. 5128-5140, 1975.
 162. D. Müller and H. Hahn, "Zur Struktur des TlGaSe_2 ," *Z. Anorg. Allg. Chem.*, vol. 438, pp. 258-272, 2004.
 163. T. Isaacs and J. Fekhtner, "Growth and optical properties of TlGaSe_2 , and $\beta\text{-TlInS}_2$," *J. Solid State Chem.*, vol. 14, pp. 260-263, 1975.
 164. A. Say, D. Adamenko, O. Gomonnai, I. Roman, I. Martynyuk-Lototska, and R. Vlokh, "Anisotropy of thermal expansion of TlGaSe_2 crystals," *Phase Transit.*, vol. 92, pp. 824-830, 2019.
 165. K. Allakhverdiev, T. Mammadov, R. Suleymanov, and N. Gasanov, "Deformation effects in electronic spectra of the layered semiconductors TlGaS_2 , TlGaSe_2 and TlInS_2 ," *J. Phys. Condens. Matter*, vol. 15, pp. 1291-1298, 2003.
 166. M. Halias, A. Anagnostopoulos, K. Kambas, and J. Spyridelis, "Electrical and optical properties of as-grown TlInS_2 , TlGaSe_2 and TlGaS_2 single crystals," *Mater. Res. Bull.*, vol. 27, pp. 25-38, 1992.
 167. T. Isaacs, "Determination of the crystal symmetry of the polymorphs of thallium indium disulfide TlInS_2 ," *Z. Kristallogr. Cryst. Mater.*, vol. 141, pp. 104-108, 1975.
 168. A. Say, I. Martynyuk-Lototska, D. Adamenko, A. Pogodin, O. Kokhan, and R. Vlokh, "Thermal expansion anisotropy of $\beta\text{-TlInS}_2$ crystals in the course of phase transitions," *Phase Transit.*, vol. 91, pp. 1-8, 2018.
 169. D. Adamenko, A. Pogodin, Y. Vasylykiv, I. Martynyuk-Lototska, and R. Vlokh, "Manifestations of the polytype structure of $\beta\text{-TlInS}_2$ crystals in

- their optical anisotropy parameters," *Ukr. J. Phys. Opt.*, vol. 20, pp. 151-158, 2019.
170. A. Say, I. Martynyuk-Lototska, O. Mys, D. Adamenko, M. Kostyrko, O. Gommonai, and R. Vlokh, "Temperature dependences of optical indicatrix and thermal expansion parameters of $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ solid solutions ($x = 0, 0.02$ and 0.06)," *Ukr. J. Phys. Opt.*, vol. 21, pp. 57-64, 2020.
 171. R. Rosul et al., "Dielectric properties of $\text{TlIn}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ polycrystals near phase transitions," *Semicond. Phys. Quantum Electron. Optoelectron.*, vol. 15, pp. 35-37, 2012.
 172. Y. Fujii and H. Hayashi, "Acousto-optic tunable filter using LiNbO_3 crystals," *Proc. SPIE 0099, 3rd European Electro-Optics Conf.*, pp. 110-115, 10 April 1977.
 173. O. Krupych, D. Adamenko, and R. Vlokh, "Analytical relations for the strain tensor components caused by acoustic waves with arbitrary wave vector directions in crystals: acousto-optic applications," *Ukr. J. Phys. Opt.*, vol. 20, pp. 16-22, 2019.
 174. V. Krasilnikov and V. Krylov, *Acoustic Wave Propagation in Anisotropic Media (Introduction to Physical Acoustics)*, Moscow: Nauka, 1984 (in Russian).
 175. O. Mys, M. Kostyrko, and R. Vlokh, "Anisotropy of acousto-optic figure of merit for LiNbO_3 crystals: anisotropic diffraction," *Appl. Opt.*, vol. 55, pp. 2439-2450, 2016.
 176. O. Mys, O. Krupych, and R. Vlokh, "Anisotropy of acoustooptic figure of merit in KH_2PO_4 crystals," *Ukr. J. Phys. Opt.*, vol. 18, pp. 83-94, 2017.
 177. T. Kryvyy, O. Mys, O. Krupych, and R. Vlokh, "The anisotropy of acoustooptic figure of merit for the collinear diffraction in LiNbO_3 crystals," *Ukr. J. Phys. Opt.*, vol. 17, pp. 176-187, 2016.
 178. O. Mys, M. Kostyrko, O. Krupych, and R. Vlokh, "Spiral patterns in the

- anisotropy of acousto-optic figure of merit for LiNbO_3 crystals: The case of anisotropic diffraction in the interaction plane XY," *Ukr. J. Phys. Opt.*, vol. 17, pp. 1-9, 2016.
179. O. Buryy et al., "Method of extreme surfaces for optimizing geometry of acousto-optic interactions in crystalline materials: Example of LiNbO_3 crystals," *J. Appl. Phys.*, vol. 113, p. 083103, 2013.
 180. E. Papadakis, "Ultrasonic phase velocity by the pulse-echo-overlap method incorporating diffraction phase corrections," *J. Acoust. Soc. Am.*, vol. 42, pp. 1045-1051, 1967.
 181. H. Seo, D. Song, and K. Jhang, "Measurement of elastic constants by simultaneously sensing longitudinal and shear waves as an overlapped signal," *J. Korean Soc. Nondestruct. Test.*, vol. 36, pp. 138-148, 2016.
 182. R. Dixon and M. Cohen, "A new technique for measuring magnitudes of photoelastic tensors and its application to lithium niobate," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 8, pp. 205-207, 1966.
 183. I. Martynyuk-Lototska, T. Dudok, O. Mys, A. Grabar, and R. Vlokh, "Elasto-optic coefficients of $\text{Sn}_2\text{P}_2\text{S}_6$ crystals as determined with Dixon–Cohen method," *Ukr. J. Phys. Opt.*, vol. 20, pp. 54-59, 2019.
 184. O. Mys, D. Adamenko, O. Krupych, and R. Vlokh, "Effect of deviation from purely transverse and longitudinal polarization states of acoustic waves on the anisotropy of acoustooptic figure of merit: the case of Ti_3AsS_4 crystals," *Appl. Opt.*, vol. 57, pp. 8320-8330, 2018.
 185. O. Krupych, Y. Vasylykiv, T. Kryvyy, I. Skab, and R. Vlokh, "Topological defects of optical indicatrix orientation in optically biaxial crystals. The case of light propagation in the directions close to the optic axes," *Ukr. J. Phys. Opt.*, vol. 18, pp. 131-138, 2017.
 186. G. New, "Biaxial media revisited," *Eur. J. Phys.*, vol. 34, pp. 1263-1276, 2013.
 187. O. Mys, I. Orykhivskyi, M. Kostyrko, and R. Vlokh, "Anisotropy of

- acousto-optic figure of merit in the XZ plane of $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}$ crystals," *Ukr. J. Phys. Opt.*, vol. 22, pp. 110-122, 2021.
188. P. Boulanger and M. Hayes, "Acoustic axes for elastic waves in crystals: theory and applications," *Proc. R. Soc. Lond. A*, vol. 454, pp. 2323-2346, 1998.
 189. T. Shiosaki, M. Adachi, H. Kobayashi, K. Araki, and A. Kawabata, "Elastic, piezoelectric, acousto-optic and electro-optic properties of $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$," *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 24, pp. 25-27, 1985.
 190. O. Mys, O. Krupych, and R. Vlokh, "Anisotropy of acousto-optic figure of merit in lithium tetraborate crystals," *J. Mod. Opt.*, vol. 65, pp. 1486-1494, 2018.
 191. N. Uchida and Y. Ohmachi, "Elastic and photoelastic properties of TeO_2 single crystal," *J. Appl. Phys.*, vol. 40, pp. 4692-4695, 1969.
 192. O. Mys, M. Kostyrko, M. Smyk, O. Krupych, and R. Vlokh, "Anisotropy of acoustooptic figure of merit for TeO_2 crystals. 1. Isotropic diffraction," *Ukr. J. Phys. Opt.*, vol. 15, pp. 132-154, 2014.
 193. O. Mys, M. Kostyrko, B. Zapeka, O. Krupych, and R. Vlokh., "Anisotropy of acoustooptic figure of merit for TeO_2 crystals. 2. Anisotropic diffraction: Errata," *Ukr. J. Phys. Opt.*, vol. 17, pp. 148-166, 2016.
 194. L. Bohaty, S. Haussühl, and J. Liebertz, "Electrooptical coefficients and temperature and pressure derivatives of the elastic constants of tetragonal $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$," *Cryst. Res. Technol.*, vol. 24, pp. 1159-1163, 1989.
 195. N. Uchida, "Optical properties of single-crystals paratellurite (TeO_2)," *Phys. Rev. B*, vol. 4, pp. 3736-3745, 1971.
 196. O. Mys, V. Savaryn, M. Kostyrko, D. Adamenko, O. Krupych, and R. Vlokh, "Anisotropy of acousto-optic figure of merit in tetragonal crystals with accounting for non-orthogonality of acoustic eigenwave polarizations. 2. The cases of $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ and TeO_2 crystals," *Ukr. J. Phys.*

- Opt.*, vol. 20, pp. 23-36, 2019.
197. O. Krupych et al., "Photoelastic properties of lithium tetraborate crystals," *Appl. Opt.*, vol. 55, pp. 10457-10462, 2016.
 198. Y. Ohmachi, N. Uchida, and N. Niizeki, "Acoustic wave propagation in TeO_2 single crystals," *J. Acoust. Soc. Am.*, vol. 51, pp. 164-168, 1972.
 199. S. Popović, B. Čelustka, Ž. Ružić-Toroš, and D. Broz, "X-ray diffraction study and semiconducting properties of the system $\text{Ga}_2\text{Se}_3\text{--In}_2\text{Se}_3$," *Phys. Status Solidi A*, vol. 41, pp. 255-262, 1977.
 200. M. Kranjčec, I. Studenyak, and Y. Azhniuk, "Photoluminescence and optical absorption spectra of $\gamma_1\text{-(Ga}_x\text{In}_{1-x})_2\text{Se}_3$ mixed crystals," *Phys. Status Solidi B*, vol. 242, pp. 2113-2120, 2005.
 201. M. Kranjčec, B. Čelustka, B. Etlinger, and D. Desnica, "The indirect allowed optical transitions in $(\text{Ga}_{0.3}\text{In}_{0.7})_2\text{Se}_3$," *Phys. Status Solidi A*, vol. 109, pp. 329-336, 1988.
 202. M. Kranjčec et al., "On some crystal-optic properties of $\gamma_1\text{-(Ga}_x\text{In}_{1-x})\text{Se}_3$ single crystals," *Phys. Status Solidi A*, vol. 153, pp. 539-546, 1996.
 203. J. Ye, T. Yoshida, Y. Nakamura, and O. Nittono, "Optical activity in the vacancy ordered III_2VI_3 compound semiconductor $(\text{Ga}_{0.3}\text{In}_{0.7})_2\text{Se}_3$," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 67, pp. 3066-3068, 1995.
 204. M. Kranjčec et al., "Acousto-optic modulator with a $(\text{Ga}_{0.4}\text{In}_{0.6})_2\text{Se}_3$ monocrystal as the active element," *Appl. Opt.*, vol. 36, pp. 490-493, 1997.
 205. I. Studenyak, M. Kranjčec, L. Suslikov, and D. Kovach, "Piezobirefringence in $\gamma_1\text{-(Ga}_x\text{In}_{1-x})_2\text{Se}_3$ single crystals," *Opt. Spectrosc.*, vol. 95, pp. 427-430, 2003.
 206. I. Martynyuk-Lototska, O. Mys, D. Adamenko, M. Kostyrko, S. Bereznyuk, A. Solomon, A. Pogodin, I. Studenyak, and R. Vlokh, "Elastic quasi-isotropy and acousto-optics of $\gamma_1\text{-(Ga}_{0.3}\text{In}_{0.7})_2\text{Se}_3$ crystals," *Ukr. J. Phys. Opt.*, vol. 23, pp. 1-8, 2022.

207. S. Prawer, T. Smith, and T. Finlayson, "The room temperature elastic behaviour of CsH_2PO_4 ," *Aust. J. Phys.*, vol. 38, pp. 63-83, 1985.
208. F. Fedorov, *Theory of elastic waves in crystals*, New York: Springer-Verlag, 2012.
209. K. Wiberg, Y. Wang, M. Murphy, and P. Vaccaro, "Temperature dependence of optical rotation: α -pinene, β -pinene pinane, camphene, camphor and fenchone," *J. Phys. Chem. A*, vol. 108, pp. 5559-5563, 2004.
210. T. Muller, K. Wiberg, and P. Vaccaro, "Cavity ring-down polarimetry (CRDP): a new scheme for probing circular birefringence and circular dichroism in the gas phase," *J. Phys. Chem. A*, vol. 104, pp. 5959-5968, 2000.
211. F. Gray, "The optical activity of liquids and gases," *Phys. Rev.*, vol. 7, pp. 472-488, 1916.
212. J. Kobayashi, T. Asahi, M. Ichiki, and A. Oikawa, "Optical activity of solid polymers," *Ferroelectrics*, vol. 171, pp. 69-94, 1995.
213. V. Kizel and V. Burkov, *Gyrotropy of crystals*, Moscow: Nauka, 1980 (in Russian).
214. V. Kotov, S. Averin, E. Kotov, A. Voronko, and S. Tikhomirov, "Acousto-optic gyrotropic-crystal-based modulator with a rotating polarisation vector," *Quantum Electron.*, vol. 47, pp. 135-139, 2017.
215. V. Belyi, N. Kazak, S. Kurilkina, and S. Kovchur, "Nonreciprocal acoustooptic effects in crystals with complex anisotropy," *Proc. SPIE 3580, Photoconversion: Science and Technologies*, pp. 112-117, 6 November 1998.
216. G. Kulak, "Ultrasound diffraction of light beams in gyrotropic crystals," *J. Appl. Spectrosc.*, vol. 67, pp. 510-516, 2000.
217. V. Belyi, G. Kulak, G. Krokh, P. Ropot, and O. Shakin, "Ultrasonic diffraction of Bessel light beams in uniaxial gyrotropic crystals," *Opt.*

- Spectrosc.*, vol. 121, pp. 424-430, 2016.
218. V. Belyi, G. Kulak, G. Krokh, P. Ropot, and O. Shakin, "Double Bragg diffraction of Bessel light beams on ultrasound in uniaxial crystals," *J. Appl. Spectrosc.*, vol. 85, pp. 724-729, 2018.
 219. I. Skab and R. Vlokh, "Spin-to-orbit conversion at acousto-optic diffraction of light: conservation of optical angular momentum," *Appl. Opt.*, vol. 51, pp. C22-C26, 2012.
 220. G. Catella and D. Burlage, "Crystal Growth and Optical Properties of AgGaS_2 and AgGaSe_2 ," *MRS Bull.*, vol. 23, pp. 28-36, 1998.
 221. M. Hobden, "Optical activity in a non-enantiomorphous crystal: AgGaS_2 ," *Acta Crystallogr. A*, vol. 24, pp. 676-680, 1968.
 222. O. Kushnir, "Optical activity of dichroic crystals with "isotropic point"," *J. Phys. Stud.*, vol. 8, pp. 63-71, 2004.
 223. R. Vlokh, O. Parkhomenko, Y. Pyatak, and I. Skab, "Anisotropy of refraction of the circular polarized waves in gyrotropic crystals," *Ukr. J. Phys.*, vol. 35, pp. 680-682, 1990.
 224. R. Vlokh, Y. Pyatak, and I. Skab, "The refraction anisotropy and the interference of the circularly polarized optical waves in gyrotropic crystals," *Ferroelectrics*, vol. 126, pp. 243-246, 1992.
 225. O. Mys, I. Martynyuk-Lototska, A. Pogodin, T. Dudok, D. Adamenko, O. Krupych, I. Skab, and R. Vlokh, "Acousto-optic interaction between circularly polarized optical eigenwaves: example of AgGaS_2 crystals," *Appl. Opt.*, vol. 58, pp. 6012-6018, 2019.
 226. H. Hai-Jun, Z. Shi-Fu, Z. Bei-Jun, Y. You, and X. Lin-Hua, "First-principles calculations of the elastic, electronic and optical properties of AgGaS_2 ," *Phys. Scr.*, vol. 82, p. 055601, 2010.
 227. M. Grimsditch and G. Holah, "Brillouin scattering and elastic moduli of silver thiogallate (AgGaS_2)," *Phys. Rev. B*, vol. 12, pp. 4377-4382, 1975.
 228. O. Mys, D. Adamenko, I. Skab, and R. Vlokh, "Anisotropy of acousto-

- optic figure of merit for the collinear diffraction of circularly polarized optical waves at the wavelength of isotropic point in AgGaS_2 crystals," *Ukr. J. Phys. Opt.*, vol. 20, pp. 73-80, 2019.
229. O. Mys et al., "Types of acousto-optic interactions between acoustic and circularly polarized optical waves: case of $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}$ crystals," *Appl. Opt.*, vol. 60, pp. 2846-2853, 2021.
 230. L. Moore and C. Smith, "Fused silica as an optical material [Invited]," *Opt. Mater. Express*, vol. 12, pp. 3043-3059, 2022.
 231. W. Cady, "The piezoelectric resonator," *Phys. Rev.*, vol. 17, pp. 531-533, 1921.
 232. G. Pierce, "Piezoelectric crystal resonators and crystal oscillators applied to the precision calibration of wavemeters," *Proc. Am. Acad. Arts Sci.*, vol. 59, pp. 79-106, 1923.
 233. M. Lombardi, "The accuracy and stability of quartz watches," *Horological Journal*, pp. 57-59, February 2008.
 234. S. Khorsheed and N. Yaseen, "Effect of square shaped acousto-optic modulators on the Bragg diffraction," *J. Phys. Conf. Ser.*, vol. 1897, p. 012074, 2021.
 235. C. Pitt, J. Skinner, and P. Townsend, "Acousto-optic diffraction of optical guided waves in crystal quartz," *Electron. Lett.*, vol. 20, pp. 4-5, 1984.
 236. I. Chang, "Tunable acousto-optic filter utilizing acoustic beam walkoff in crystal quartz," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 25, pp. 323-324, 1974.
 237. D. Wang et al., "Modulation frequency characteristics in a doubly Q-switched $\text{Nd:Gd}_{0.63}\text{Y}_{0.37}\text{VO}_4$ laser with an acousto-optic modulator and a V^{3+} :YAG saturable absorber," *Opt. Quantum Electron.*, vol. 48, p. 553, 2016.
 238. H. Tompkins and E. Irene, *Handbook of ellipsometry*, Norwich: William Andrew Publishing, 2005.
 239. O. Arteaga, A. Canillas, and G. Jellison, "Determination of the

- components of the gyration tensor of quartz by oblique incidence transmission two-modulator generalized ellipsometry," *Appl. Opt.*, vol. 48, pp. 5307-5317, 2009.
240. T. Narasimhamurty, "Photoelastic constants of α -quartz," *J. Opt. Soc. Am.*, vol. 59, pp. 682-686, 1969.
 241. R. Bechmann und R. Hearmon, Landolt-Börnstein. Zahlenwerte und Funktionen aus Naturwissenschaften und Technik. Neue Serie. Gruppe III: Kristall- und Festkörperphysik. Band 1: Elastische, piezoelektrische, piezooptische und elektrooptische Konstanten von Kristallen, Berlin: Springer, 1966.
 242. O. Mys, D. Adamenko, and R. Vlokh, "Enhancement of acousto-optic diffraction efficiency in SiO_2 crystals due to the ellipticity of eigen optical waves. Isotropic acousto-optic interaction," *Ukr. J. Phys. Opt.*, vol. 24, pp. 124-133, 2023.
 243. O. Vlokh, O. Kushnir, and Y. Shopa, "Gyrotropic properties of $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}$ ferroelectrics crystals," *Ferroelectrics*, vol. 126, pp. 97-102, 1992.
 244. H. Iwasaki and K. Sugii, "Optical activity of ferroelectric $5\text{PbO} \cdot 3\text{GeO}_2$ single crystals," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 19, pp. 92-93, 1971.
 245. T. Yamada, H. Iwasaki, and N. Niizeki, "Elastic and piezoelectric properties of ferroelectric $5\text{PbO} \cdot 3\text{GeO}_2$ crystals," *J. Appl. Phys.*, vol. 43, pp. 771-775, 1972.
 246. I. Martynyuk-Lototska et al., "Experimental determination of full matrices of the piezo-optic and elasto-optic coefficients for $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}$ crystals," *Appl. Opt.*, vol. 59, pp. 6717-6723, 2020.
 247. O. Mys, M. Kostyrko, D. Adamenko, I. Martynyuk-Lototska, I. Skab, and R. Vlokh, "Effect of ellipticity of optical eigenwaves on the enhancement of efficiency of acousto-optic Bragg diffraction. A case of optically active $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}$ crystals," *AIP Adv.*, vol. 12, p. 055130, 2022.

248. W. Kaminsky, "Experimental and phenomenological aspects of circular birefringence and related properties in transparent crystals," *Rep. Prog. Phys.*, vol. 63, pp. 1575-1640, 2000.
249. R. Dixon, "Photoelastic Properties of Selected Materials and Their Relevance for Applications to Acoustic Light Modulators and Scanners," *J. Appl. Phys.*, vol. 38, pp. 5149-5153, 1967.
250. F. Zernike, "Refractive indices of ammonium dihydrogen phosphate and potassium dihydrogen phosphate between 2000 Å and 1.5 μ," *J. Opt. Soc. Am.*, vol. 54, pp. 1215-1219, 1964.
251. T. Bystrova and F. Fedorov, "Debye temperatures of tetragonal and trigonal crystals," *Sov. Phys. Crystallogr.*, vol. 12, pp. 493-498, 1968.
252. L. Avakyants, D. Kiselev, N. Perelomova, and V. Sugrej, "Elastooptics of KH_2PO_4 , KD_2PO_4 and RbH_2PO_4 ," *Fiz. Tverd. Tela*, vol. 25, pp. 580-582, 1983.
253. W. Price and H. Huntington, "Acoustical properties of anisotropic materials," *J. Acoust. Soc. Am.*, vol. 22, pp. 32-37, 1950.
254. M. Koralewski, "Dispersion of the Faraday rotation in KDP-type crystals by pulse high magnetic field," *Phys. Status Solidi A*, vol. 65, pp. K49-K53, 1981.
255. O. Mys, D. Adamenko, and R. Vlokh, "Influence of Faraday elliptical birefringence on the acousto-optic diffraction efficiency: a case of isotropic interaction with quasi-longitudinal acoustic waves in KH_2PO_4 crystals," *Ukr. J. Phys. Opt.*, vol. 24, pp. 95-103, 2023.
256. O. Mys, M. Kostyrko, D. Adamenko, and R. Vlokh, "Anisotropy of acousto-optic figure of merit in tetragonal crystals with accounting for non-orthogonality of acoustic eigenwave polarizations. 1. The cases of KH_2PO_4 and $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ crystals," *Ukr. J. Phys. Opt.*, vol. 19, pp. 220-236, 2018.