

ФОТОИНДУЦИРОВАННОЕ ЛИНЕЙНОЕ ДВУПРЕЛОМЛЕНИЕ В КРИСТАЛЛЕ С КООПЕРАТИВНЫМ УПОРЯДОЧЕНИЕМ ЯН-ТЕЛЛЕРОВСКИХ ИСКАЖЕНИЙ

С.Л.Гнатченко, В.В.Еременко, С.В.Софронеев, Н.Ф.Харченко

Обнаружено и исследовано фотоиндуцированное линейное двупреломление (ФЛД) в тетрагональном гранате $\text{Ca}_3\text{Mn}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ – кристалле с кооперативным упорядочением ян-теллеровских искажений. Проведено феноменологическое описание анизотропии ФЛД и предложен микроскопический механизм для его объяснения. Сделан вывод о возможности наблюдения ФЛД в других кристаллах с кооперативным эффектом Яна – Теллера.

Фотоиндуцированное двупреломление света – явление известное для ряда полупроводников и сегнетоэлектриков ¹. Изменение оптической анизотропии этих материалов под действием света происходит вследствие электрооптического эффекта, обусловленного фотоиндуцированным изменением внутреннего электрического поля кристалла. Известны также случаи наблюдения фотоиндуцированного двупреломления в магнитоупорядоченных кристаллах, в которых световое облучение вызывает изменения в магнитной подсистеме ². В настоящей работе сообщается о наблюдении фотоиндуцированного линейного двупреломления в тетрагональном гранате $\text{Ca}_3\text{Mn}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ – кристалле с кооперативным упорядочением ян-теллеровских искажений. В результате облучения линейно поляризованным светом оптическая индикатриса кристалла деформируется и поворачивается. Эти изменения зависят от ориентации плоскости поляризации и направления распространения света относительно кристаллографических осей. ФЛД наблюдалось при температурах намного превышающих температуру магнитного упорядочения MnGeG ($T_N \cong 13,5$ К) в отсутствие внешних полей.

Исследования ФЛД проводились в тонких пластинах MnGeG ($d \approx 45$ мкм) вырезанных перпендикулярно тетрагональной оси c и оси a кристалла, для двух направлений распространения света: $\mathbf{k} \parallel c$ и $\mathbf{k} \parallel a$. Определялась ориентация главных осей оптической индикатрисы и измерялась величина двупреломления в зависимости от поляризации и интенсивности света, индуцирующего двупреломление, времени облучения и температуры кристалла. Часть измерений проводилась одновременно с облучением, с использованием двух независимых пучков света. Источником света, индуцирующим двупреломление, были дуговая лампа ДКСШ-150 с фильтрами СЗС26 и ОС14 или гелий-неоновый лазер ($\lambda = 6328 \text{ \AA}$). При из-

мерении двупреломления использовался ослабленный лазерный луч. Временные зависимости ФЛД имели вид экспоненциальных кривых. При интенсивности света, индуцирующего дву- преломление, $I_u \approx 1 \text{ Вт/см}^2$ постоянная времени была около 2 минут. Уменьшение I_u в пределах $1 \div 0,2 \text{ Вт/см}^2$ приводило к росту постоянной времени от 2 до 10 минут, но не влияло на максимальную величину двупреломления. ФЛД наблюдалось в MnGeG при азотных температурах. При $T \approx 200 \text{ К}$ эффект не был замечен. ФЛД сохранялось при выключении воздействия. В темноте при температуре жидкого азота ФЛД оставалось без заметных изменений в течение 20 часов (более длительные эксперименты не проводились).

Облучение MnGeG линейно поляризованным светом в случае $k \parallel c$ приводило к понижению оптического класса кристалла. Из оптически одноосного кристалл становился двухосным. Зависимости величины двупреломления $\Delta n = n_1 - n_2$ (n_1 и n_2 — главные показатели преломления) и положения плоскости оптических осей кристалла от ориентации плоскости поляризации света, индуцирующего двупреломление, приведены на рис.1 и рис.2. ϕ — угол между осью a кристалла и плоскостью поляризации индуцирующего света, а θ — угол между осью a и плоскостью оптических осей (с точностью до $\pi/2$). В общем случае азимут плоскости оптических осей не совпадает с азимутом плоскости поляризации ($\theta \neq \phi$). Их совпадение в пределах ошибок эксперимента наблюдалось при $E \parallel [100]$, $[010]$ или $[110]$. В случае $k \parallel a$ облучение приводило к повороту оптической индикатрисы. Величина угла поворота индикатрисы вокруг оси a достигает $1,5^\circ$.

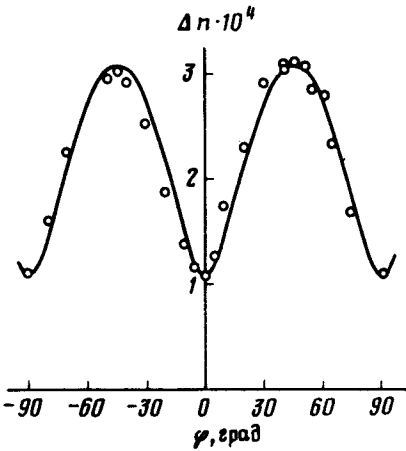


Рис.1

Рис.1. Зависимость ФЛД от азимута плоскости поляризации индуцирующего света

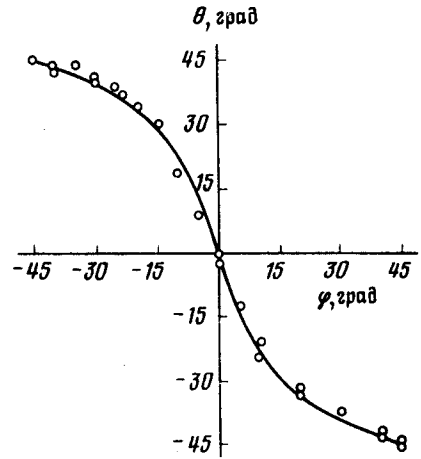


Рис.2

Рис.2. Зависимость азимута плоскости оптических осей от азимута плоскости поляризации индуцирующего света

Естественно предположить, что наблюдаемый эффект ФЛД связан с воздействием электрического поля световой волны на состояние кристалла. Симметрию наведенного дву- преломления можно описать феноменологическим выражением, связывающим компоненты симметричной части тензора диэлектрической проницаемости кристалла с ориентацией вектора электрического поля $\Delta^s \epsilon_{ij} = C_{ijkl} e_k e_l$, где $e = E/E$ — единичный вектор. Симметрия тензора C_{ijkl} такая же, как и симметрия тензоров, описывающих эффект Керра и пьезооптический эффект. Учитывая, что симметрия тетрагонального MnGeG описывается точечной группой $4/m$, находим зависимость $\Delta n(\phi)$ и $\theta(\phi)$.

$$\Delta n = \frac{1}{n_0} \left\{ \frac{1}{4} [(C_{xxyy} - C_{xxxx}) \cos 2\phi - C_{xxxy} \sin 2\phi]^2 + [C_{xyxx} \cos 2\phi + \frac{1}{2} C_{xyxy} \sin 2\phi]^2 \right\}^{1/2},$$

(1)

$$\theta = \frac{1}{2} \operatorname{arctg} \left\{ \frac{2C_{xyxx} \cos 2\phi + C_{xyxy} \sin 2\phi}{(C_{xyxy} - C_{xxxx}) \cos 2\phi - C_{xyxy} \sin 2\phi} \right\}. \quad (2)$$

Используя экспериментальные значения $\Delta n(0) \cong \Delta n_{\min}$, $\Delta n(\pi/4) \cong \Delta n_{\max}$, $\theta(0) \approx 0$ и $\theta(\pi/4) \approx \pi/4$, определяем феноменологические параметры $C_{xyxy} \approx C_{xyxx} \approx 0$, $|C_{xyxy} - C_{xxxx}| \approx 2n_0 \Delta n_{\min}$, $|C_{xyxy}| \approx 2n_0 \Delta n_{\max}$ и $C_{xyxy}/C_{xyxy} - C_{xxxx} < 0$. Наблюдается хорошее согласие экспериментальных точек с зависимостями, описываемыми формулами (1) и (2).



Рис.3. Запись изображения в кристалле $\text{Ca}_3\text{Mn}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ с помощью ФЛД

Для демонстрации возможности использования наблюдаемого в MnGeG ФЛД для записи изображения в исследуемом кристалле была проведена запись слова „свет”. Графарет со словом „свет” проектировался на кристалл. Запись проводилась светом с азимутом $\phi = \pi/4$ в участке кристалла, предварительно облучавшимся светом с азимутом $\phi = -\pi/4$. При восстановлении изображения светом с азимутом $\phi = 0$ в оптическую схему вводилась четвертьволновая пластинка. Стирание изображения можно проводить светом с другой поляризацией (перезапись), неполяризованным светом или нагревом кристалла до $T > 200$ К.

Природа ФЛД в MnGeG может быть связана с наблюдаемым в этом кристалле при $T \leq 516$ К кооперативным упорядочением вызванных эффектом Яна – Теллера (ЯТ) искажений локального окружения ионов Mn^{3+} . В MnGeG упорядочение ЯТ искажений носит неферродисторсионный характер, и можно выделить несколько подрешеток с различным искажением кислородных октаэдров. Часть октаэдрических позиций в кристалле могут занимать ионы Mn^{4+} . Одной из возможных причин присутствия ионов Mn^{4+} является требование электронейтральности кристалла при замещении во время роста части ионов Ge^{4+} , расположенных в тетраэдрических позициях, ионами Ca^{3+} . В необлученном кристалле ионы Mn^{4+} равномерно распределены по подрешеткам. Основное состояние иона Mn^{4+} ${}^4A_{2g}$ не вырождено орбитально в октаэдрическом кристаллическом поле и окружающие его кислородные октаэдры не искажены. Ориентация орбиталей иона Mn^{3+} связана с искажением окружающего октаэдра, а вероятность электронных переходов зависит от взаимной ориентации орбиталей и направления поляризации света. Облучение MnGeG линейно поляризованным светом может привести к перераспределению ионов Mn^{4+} по подрешеткам в результате электронных переходов с переносом заряда между ионами Mn^{3+} из одной подрешетки и ионами Mn^{4+} из другой подрешетки. Это приведет к неэквивалентности подрешеток из-за разного числа в них неискаженных октаэдров, к анизотропной деформации кристалла и изменению его оптической анизотропии. Времена обратного перехода к равновероятному распределению ионов Mn^{4+} в кристалле без внешнего воздействия могут быть большими при низких температурах. Кроме рассмотренного механизма с переносом заряда между ионами Mn^{3+} и Mn^{4+} возможны и другие механизмы захвата фотозлектрона.

Механизм обнаруженного в MnGeG ФЛД может оказаться общим для кристаллов с кооперативным эффектом Яна – Теллера. В этом случае к электрооптическим и магни-

тоупорядоченным кристаллам, в которых наблюдается ФЛД, добавляется обширный класс ЯТ кристаллов.

Авторы благодарят директора лаборатории оптики и магнетизма ИЦНИ Франции А. Ле Галля за интерес к работе и доктора Дж.-М.Девина за предоставленные монокристаллы.

Литература

1. *Levanyuk A.P., Osipov V.V.* Phys. Stat. Sol.,(a), 1976, 35, 605.
2. *Федоров Ю.М., Лексиков А.А.* Письма в ЖЭТФ, 1978, 27, 389.
3. *Казей З.А., Новак П., Соколов В.И.* ЖЭТФ, 1982, 83, 1483.

Физико-технический институт
низких температур
Академии наук Украинской ССР

Поступила в редакцию
19 июля 1983 г.