

УДК 521.937  
PACS 07.60.Fs, 78.20.Ek, 78.20.Fm 33.55.+b

## ВИМІРЮВАННЯ ОПТИЧНОЇ АКТИВНОСТІ КРИСТАЛІВ ЗА НАЯВНОСТІ ДИХРОЇЗМУ ТА ЕФЕКТІВ БАГАТОКРАТНОГО ВІДБИВАННЯ СВІТЛА

Я. Шопа, Н. Фтомин

*Львівський національний університет імені Івана Франка  
вул. Кирила і Мефодія, 8, 79005 Львів, Україна  
e-mail: shopa@franko.lviv.ua*

Виміряно температурні залежності величини компоненти тензора гірації  $g_{11}$  і параметрів лінійного та циркулярного дихроїзму для активованих йонами хрому та марганцю кристалів  $\text{Ca}_3\text{Ga}_2\text{Ge}_4\text{O}_{14}$ . Визначено величини систематичних похибок поляриметричного експерименту. Одержано аналітичний вираз для функції оптичного пропускання системи поляризатор–кристал–аналізатор з урахуванням ефектів багатократного відбивання світла в дихроїчному оптично активному двоприменезаломлюючому кристалі.

**Ключові слова:** оптична активність, дихроїзм, двоприменезаломлення.

Методика НАУР (High-accuracy-universal-polarimeter) [1] дає змогу одночасно вимірювати декілька кристалооптичних параметрів за умови неідеальності поляризаційних елементів схеми [2]. Відомо, що паразитні еліптичності поляризатора  $p$  та аналізатора  $q$  можуть бути співмірними з вимірюваною еліптичністю власних хвиль  $k$  у кристалі, зумовленою оптичною активністю (ОА), тому визначення цих систематичних похибок є запорукою точного встановлення ОА. За наявності лінійного та циркулярного дихроїзму (ЛД та ЦД) задача ускладнюється, тому що ці ефекти анізотропії поглинання також даватимуть свій внесок у загальну різницю фаз  $\Gamma$ . Однак можна розширити межі застосування НАУР у випадку кристалів з ОА, ЛДЗ (лінійне двоприменезаломлення), ЛД та ЦД, що зробили автори [3, 4, 6].

Мета цієї праці — визначити кристалооптичні параметри діелектричних кристалів  $\text{Ca}_3\text{Ga}_2\text{Ge}_4\text{O}_{14}$  (далі скорочено **CGG**), активованих йонами хрому та марганцю, використовуючи споріднену з НАУР методику [7, 8], адаптовану для кристалів з ОА, ЛДЗ, ЛД та ЦД, а також розширити межі використання цієї методики, врахувавши ефекти багатократного відбивання світла (БВС). Попередні

дослідження стосувалися вимірювань параметрів ЛД та ОА кристалів галогерманатів перпендикулярно до оптичної осі ( $\lambda = 633$  нм) [8,9] та ОА, ЦД у напрямі оптичної осі [10]. У статті використано напівпровідниковий лазер з робочою довжиною хвилі 780 нм, що дає змогу встановити особливості дисперсії ОА цих сполук.

Перші спроби врахування ефектів БВС у методиці НАУР були зроблені в [3] через уведення відповідних поправок у матрицю **C**-методу, але функція пропускання системи поляризатор–зразок–аналізатор (PSA), розрахована на основі цієї матриці, не здатна повністю описати всі особливості нашої методики, зокрема, поворот головних осей еліпсів на мапах інтенсивності для кристалів за відсутності ЛД. Детальніше вплив ефектів БВС в НАУР поляриметрії проаналізовано у праці [11], де ОА кристалів кварцу визначалася як у напрямі оптичної осі, так і перпендикулярно до неї з урахуванням багатократного відбивання світла. Тут запропоновано алгоритм знаходження матриці Джонса з урахуванням БВС та спосіб опрацювання експериментальних результатів. Варто зазначити, що відповідну матрицю Джонса для плоскопаралельної анізотропної пластинки розраховували у [12–14].

Ми одержали функцію оптичного пропускання системи PSA за наявності ефектів БВС і робочі співвідношення для нашого поляриметра у наближенні малих змін азимутів  $\theta$  для поляризатора та  $\chi$  для аналізатора, обмежившись аналітичними виразами з коефіцієнтами при другому степені цих азимутів.

Кристали **CGG** належать до сімейства лангаситу ( $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$ , структурний тип галогерманату) із просторовою групою симетрії  $P321$  (точкова група симетрії  $32$ ) та двома можливими енантіоморфними модифікаціями [16]. Це також одновісні та оптично активні додатні ( $\Delta n > 0$ ) кристали [17].

Номінально чисті кристали зі структурою галогерманату, зокрема, **CGG** є прозорими до  $\sim 6500$  нм та мають пов'язані з ростовими дефектами смуги ЛД у ближній ультрафіолетовій ділянці спектра [18,20]. Активація **CGG** іонами хрому або марганцю призводить до появи ЛД та ЦД у видимому діапазоні [21]. Комплексні спектральні дослідження ОА та ЦД низки кристалів зі структурою галогерманатів проводили автори праць [18,22]. У кристалах, активованих домішками, смуги ЦД пов'язані з іонами хрому різної валентності [23]. Також спектроскопію ЦД застосовували й до номінально чистих кристалів **CGG** [24].

Ці матеріали застосовують у квантовій електроніці [25,26] (як лазерні матриці), в акусто-, п'єзоелектроніці. Відсутність фазових переходів у широкому температурному інтервалі [17] сприяє застосуванню цих матеріалів для побудови ефективних сенсорів.

Для вимірювань були підготовлені плоскопаралельні пластини кристалів **CGG**:  $\text{Cr}^{3+}$ , **CGG**:  $\text{Mn}^{3+}$ , вирізані паралельно до оптичної осі з товщиною 0,72 та 1,53 мм, відповідно. Концентрація домішки хрому та марганцю, за оцінками рентгенівського мікроаналізу на растровому електронному мікроскопі, є меншою 0,1 ат. %.

Для вимірювань використовували однопроменевий автоматизований високоточний поляриметр, оптична схема якого містить мінімальний набір поляризаційних елементів з двома високоякісними кальцитовими призмами Глана.

Джерелом світла слугував напівпровідниковий лазерний діод з робочою довжиною хвилі 780 нм, потужність якого не перевищувала 20 мВт. Вимірювання проводили в діапазоні температур 300–400 К.

За фіксованої температури зразка вимірювали кутовий коефіцієнт нахилу прямої для мінімізованих інтенсивностей  $\partial\chi/\partial\theta$  і тангенс подвійного кута нахилу  $\xi$  головних осей еліпсів на НАУР-мапах [9], а також положення трьох характеристичних азимутів поляризатора  $\theta_i$  ( $i = 0, 1, 2$ ) [8]. Вираз для кута  $\theta_2$  має такий вигляд:

$$\theta_2 = \frac{e^E - \cos \Gamma}{2(\operatorname{ch} E - \cos \Gamma)} \delta\chi + k' - \frac{(p+q) \sin \Gamma}{2(\operatorname{ch} E - \cos \Gamma)}, \quad (1)$$

а для різниць  $\Delta\theta_{01} = \theta_0 - \theta_1$ ,  $\Delta\theta_{02} = \theta_0 - \theta_2$  можна записати:

$$\Delta\theta_{01} (e^E - \cos \Gamma) = -e^E \delta\chi + \frac{[k(1 + e^{2E}) - p + q^{2E} - e^E \cos \Gamma(2k - \gamma)]}{\sin \Gamma}, \quad (2)$$

$$2\Delta\theta_{02} (e^E - \cos \Gamma) (\operatorname{ch} E - \cos \Gamma) = -\delta\chi \sin^2 \Gamma + \sin \Gamma (2k \operatorname{ch} E + qe^E - p^{-E}) - \sin \Gamma \cos \Gamma (2k - \gamma), \quad (3)$$

де  $E$  — параметр ЛД;  $k, k'$  — еліптичності власних хвиль, пов'язані з ОА та ЦД;  $p, q$  — паразитні еліптичності поляризатора та аналізатора;  $\gamma = p - q$ ;  $\delta\chi$  — азимутальна систематична похибка. У співвідношеннях (1)–(3) нехтували доданками, пропорційними до  $(E/\Gamma)k$  та  $(E/\Gamma)^2$ , оскільки величина параметра  $E$  є малою [8].

Для визначення ЛД кристалів **CGG**: Cr<sup>3+</sup>, **CGG**: Mn<sup>3+</sup> використали методику [9]. Температурну залежність параметра ЛД для цих сполук у випадку двох положень зразка в поляризаційній системі зображено на рис. 1. Як бачимо, точність вимірювань є достатньою для того, щоб просторово розділити параметр ЛД для двох позицій зразка в системі PSA, величина якого для активованих кристалів **CGG** за нашими оцінками становить  $E = 1,4 \times 10^{-2}$  (**CGG**: Cr<sup>3+</sup>) та  $E = 2,2 \times 10^{-2}$  (**CGG**: Mn<sup>3+</sup>). Отримане значення параметра ЛД для того самого кристалічного зразка **CGG**: Cr<sup>3+</sup> є меншим, ніж для  $\lambda = 633$  нм [9].

Відомо, що ОА кристалів **CGG**: Cr<sup>3+</sup> у температурному діапазоні  $T = 300$ – $400$  К не зазнає суттєвих змін [8], тому еліптичність  $k$  можна наближено вважати постійною для малого інтервалу температур, а для її коректного визначення потрібно передусім вилучити систематичні похибки поляриметричного експерименту, а саме:  $p, q, \delta\chi$ . Зокрема, можна скористатися алгоритмом, який запропоновано у [8]. Величину  $\gamma$  визначали за виразом (2) враховуючи, що після розвертання зразка на кут  $90^\circ$  навколо напрямку поширення світла, величини  $\Gamma, E, k$  та  $k'$  змінюють свій знак на протилежний. Тоді

$$\varphi_{01}^0 - \varphi_{01}^{90} = -\frac{2\gamma (\operatorname{ch} E - \cos \Gamma)}{\sin \Gamma}, \quad (4)$$

де  $\varphi_{01}^{0,90} = \Delta\theta_{01} (1 - e^{\mp E} \cos \Gamma)$ .

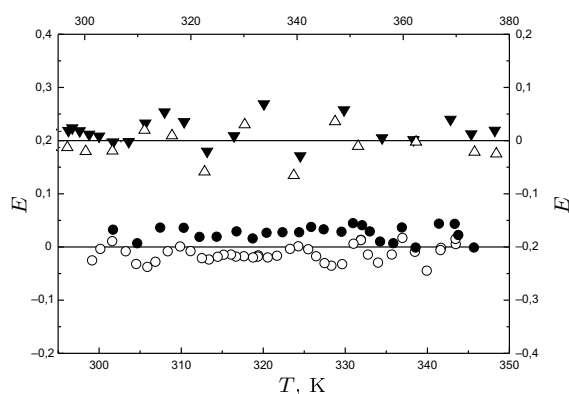


Рис. 1. Температурна залежність параметра ЛД кристалів **CGG**:  $\text{Cr}^{3+}$  ( $\circ$ ,  $\bullet$ ) та **CGG**:  $\text{Mn}^{3+}$  ( $\Delta$ ,  $\blacktriangledown$ ). Різні позначення експериментальних точок на кожній залежності відповідають двом взаємно перпендикулярним орієнтаціям зразка в поляризаційній системі

Відповідні залежності різниць  $\varphi_{01}^0 - \varphi_{01}^{90}$  від величини  $-2(\text{ch } E - \cos \Gamma) / \sin \Gamma$  для двох кристалів (рис. 2) добре апроксимуються прямими, кутовий коефіцієнт нахилу яких дає змогу визначити  $\gamma$ . Натомість  $p+q$  можна отримати за аналогією з [8] із залежностей  $\theta_2$  від  $\sin \Gamma / [2(\text{ch } E - \cos \Gamma)]$ .

Азимутальну систематичну похибку  $\delta\chi$  визначають із залежності  $\varphi_{02}(\text{tg } \Gamma/2) / \sin^2 \Gamma$  (де  $\varphi_{02}$  тотожне із співвідношенням (3)) від величини  $\text{tg } \Gamma/2$ . Як видно з рис. 3, маємо досить добру апроксимацію квадратичною функцією експериментальних залежностей, а величину азимутальної похибки можна отримати, користуючись інформацією про коефіцієнт при першій степені відповідної апроксимаційної функції. Також на рис. 3 представлено величину  $\Delta_{err}$  (див. [8]),

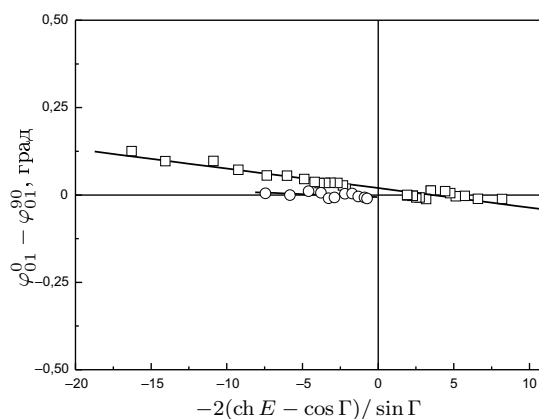


Рис. 2. Залежність  $\varphi_{01}^0 - \varphi_{01}^{90}$  від  $-2(\text{ch } E - \cos \Gamma) / \sin \Gamma$  для кристалів **CGG**:  $\text{Cr}^{3+}$  ( $\circ$ ), **CGG**:  $\text{Mn}^{3+}$  ( $\square$ ). Прямая лінія — результат апроксимації

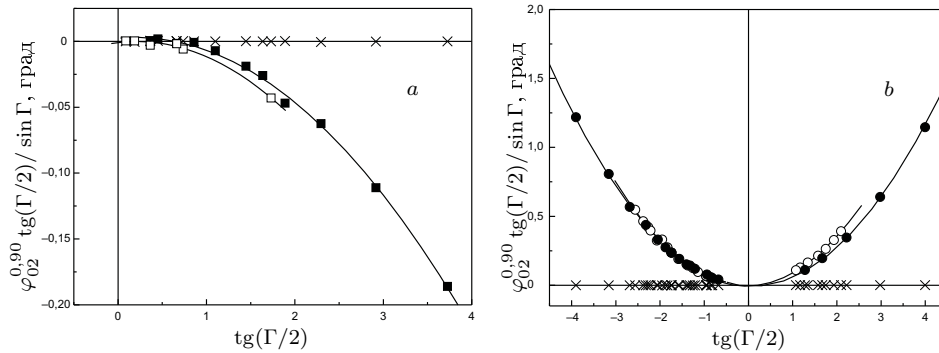


Рис. 3. Залежність  $\varphi_{02}^{0,90} \text{tg}(\Gamma/2) / \sin \Gamma$  (позначення експериментальних точок  $\square$ ,  $\blacksquare$ ,  $\circ$ ,  $\bullet$ ) та  $\Delta_{err}$  (позначення  $\times$ ) від  $\text{tg}(\Gamma/2)$ ;  $a - \text{CGG: Cr}^{3+}$ ,  $b - \text{CGG: Mn}^{3+}$

яку використовують для перевірки правильності ходу вимірювань. Експериментальні точки, для яких відхилення  $\Delta_{err}$  було більшим за  $1,6 \times 10^{-5}$ , відкидали.

Систематичні похибки та параметри недосконалості поляризаторів, визначені за вже згаданими методами, подано у табл. 1. Варто зазначити, що у випадку кристалів **CGG: Mn<sup>3+</sup>** азимутальна систематична похибка змінює свій знак після розвертання зразка, але абсолютні значення є однаковим у межах похибки та їх можна використовувати для розрахунку ОА.

Для точкової групи симетрії  $32$  тензор гірації  $g_{ij}$  має дві незалежні діагональні компоненти:  $g_{11} = g_{22}, g_{33}$  [27], а  $g_{11}$  пов'язаний з кристалооптичними параметрами зразка простим співвідношенням:  $g_{11} = 2k\bar{n}\Delta n$ . Тому потрібно мати інформацію про величини середнього показника заломлення  $\bar{n}$  та двопронезаломлення  $\Delta n$ . Скориставшись результатами спектральних досліджень [18] для **CGG**, а саме:  $n_o = 1,7867$ ,  $n_e = 1,8114$  та  $\Delta n = 0,0247$ , отримали температурну залежність компоненти тензора гірації для двох кристалів (рис. 4). За нашими оцінками величина  $g_{11} = 6,1 \times 10^{-5}$  для **CGG: Mn<sup>3+</sup>** є дещо більшою за відповідний аналог **CGG: Cr<sup>3+</sup>**, для якого  $g_{11} = 1,0 \times 10^{-5}$ .

Описана тут методика може бути використана для визначення ЦД кристалів. Зокрема, для НАУР-поляриметрії задача знаходження ЦД кристалів успішно розв'язувалася у [3–5]. Варто зауважити, що еліптичність власних хвиль  $k'$ ,

Табл. 1. Параметри недосконалості поляризаторів та систематичні похибки, зафіксовані під час вимірювання ОА в активованих кристалах **CGG**

Кристал	$\delta\chi$	$p + q$	$\gamma$	$p$	$q$
	$10^{-4}$	$10^{-4}$	$10^{-4}$	$10^{-4}$	$10^{-4}$
<b>CGG: Cr<sup>3+</sup></b>	-1,2	16,1	0,3	8,2	7,9
<b>CGG: Mn<sup>3+</sup></b>	$\pm 1,8$	14,6	-1,0	6,8	7,8

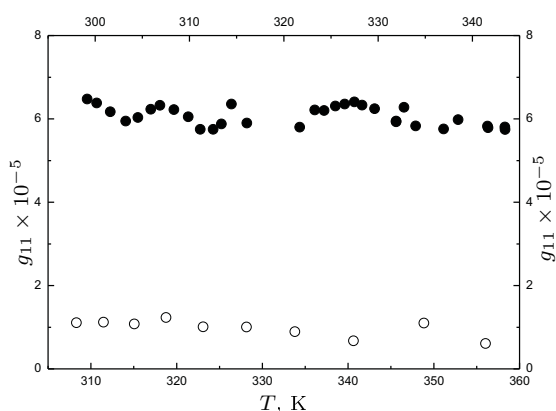


Рис. 4. Температурна залежність  $g_{11}$  для кристалів галогерманатів. Позначення експериментальних точок:  $\circ$  – **CGG**: Cr<sup>3+</sup>;  $\bullet$  – **CGG**: Mn<sup>3+</sup>

пов'язану з ЦД, можна визначити, використовуючи температурну залежність позиції характеристичного азимута  $\theta_2$ , врахувавши систематичні похибки апаратури. У цьому випадку можна виявити особливості температурної поведінки ЦД досліджуваного зразка, а  $k'$  можна визначити лише з точністю до константи  $\theta'$ , яка пов'язана з відсутністю інформації про початок відліку по відношенню до азимута поляризатора [8].

На рис. 5 представлені температурні залежності еліптичності власних хвиль, пов'язані з ЦД кристалів **CGG**: Cr<sup>3+</sup>, **CGG**: Mn<sup>3+</sup>. Як видно з отриманих результатів, ЦД не зазнає суттєвих змін зі зміною температури у вибраному діапазоні.

Отже, методика високоточної поляриметрії дає можливість одночасного вимірювання кількох параметрів оптичної анізотропії кристалів, зокрема, ОА, ЛД, приріст ЛДЗ та ЦД, а врахування таких ефектів, як багатократне відбивання

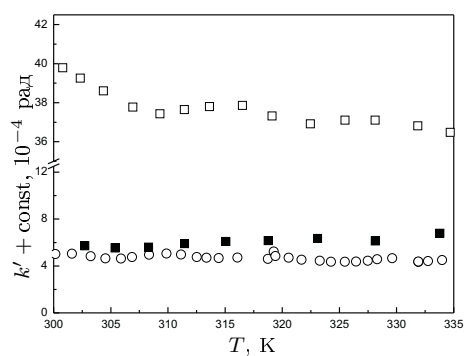


Рис. 5. Температурна залежність  $k' + \text{const}$  для кристалів Са-галогерманатів. Позначення експериментальних точок:  $\square$  – **CGG**: Cr<sup>3+</sup> (633 нм);  $\blacksquare$  – **CGG**: Cr<sup>3+</sup> (780 нм);  $\circ$  – **CGG**: Mn<sup>3+</sup> (780 нм)

світла, які, зазвичай, спостерігаються у відповідних експериментальних залежностях, дасть змогу розширити межі застосування цієї методики та підвищити її універсальність.

Підвищені вимоги щодо якості поверхні зразків, які використовують в задачах НАУР поляриметрії та споріднених з нею методиках, спричиняють появу наслідків дії ефектів БВС, які безпосередньо пов'язані з кристалооптичними властивостями досліджуваних кристалів. У класичній методиці НАУР ефекти БВС проявлялися себе у вигляді осциляцій в температурних залежностях величин, зокрема,  $\partial\chi/\partial\theta$ , що вимірюються під час експерименту. У нашому випадку БВС найбільш інтенсивно проявляють себе у температурних залежностях параметра ЛД [9] (див. рис. 1).

У нашому випадку функція оптичного пропускання системи PSA в наближенні малих змін азимутів поляризатора  $\theta$  та аналізатора  $\chi$  даватиме можливість з'ясувати вплив ефектів багатократного відбивання світла на основні вимірвальні величини, зокрема, кутовий коефіцієнт нахилу прямої для мінімізованих інтенсивностей, кут нахилу головних осей еліпсів на НАУР-мапах та характеристичні азимуты поляризатора.

Матриця Джонса  $\widetilde{\mathbf{M}}$  анізотропного кристала із врахуванням ефектів БВС розраховувалася багатьма авторами [11–15], а один з можливих алгоритмів її знаходження є [11]:  $\widetilde{\mathbf{M}} = \mathbf{t}' \times \mathbf{S} \times \mathbf{M} \times \mathbf{t}$ ;  $\mathbf{S} = (\mathbf{I} - \mathbf{N})^{-1}$ ;  $\mathbf{N} = \mathbf{M} \times \mathbf{\Omega} \times \mathbf{M} \times \mathbf{\Omega}$ ; де  $\mathbf{I}$  — одинична матриця,  $\mathbf{M}$  — матриця Джонса для кристала з ОА, ЛДЗ, ЛД та ЦД, явний вигляд якої з точністю до фазового множника  $e^{i\varphi - \alpha d/2}$  (де  $\varphi = (2\pi/\lambda)\bar{n}d$  — ізотропний фазовий зсув;  $\alpha$  — ізотропний коефіцієнт поглинання) подано у [6]. Вплив оптичного пропускання та відбивання вхідної та вихідної поверхонь плоскопаралельної пластинки кристала можна представити у вигляді матриць, для яких, нехтуючи анізотропією коефіцієнтів пропускання та відбивання, запишемо [11, 14]:

$$\mathbf{t} \times \mathbf{t}' = t^2 \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix}, \mathbf{\Omega} = r_0 \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix}. \quad (5)$$

де  $t^2 = 4\bar{n}/(\bar{n}+1)^2$ ,  $r_0^2 = 1 - t^2 = (\bar{n} - 1)^2 / (\bar{n} + 1)^2$ . Тоді для матриці  $\widetilde{\mathbf{M}}$  матимемо:

$$\widetilde{\mathbf{M}} = t^2 e^{-\alpha d/2} \begin{pmatrix} \widetilde{M}_{11} & \widetilde{M}_{12} \\ \widetilde{M}_{21} & \widetilde{M}_{22} \end{pmatrix}, \quad (6)$$

а коефіцієнти  $\widetilde{M}_{ij}$ :

$$\widetilde{M}_{11} = \frac{e^{i(\varphi+\Gamma/2)+E/2}}{1 - r_0^2 e^{i(2\varphi+\Gamma)-\alpha d+E}}, \quad (7)$$

$$\widetilde{M}_{22} = \frac{e^{i(\varphi-\Gamma/2)-E/2}}{1 - r_0^2 e^{i(2\varphi-\Gamma)-\alpha d-E}}, \quad (8)$$

$$\widetilde{M}_{12} = -\frac{2e^{i\varphi} (k' - ik) \operatorname{sh} \frac{E+i\Gamma}{2}}{S'} [1 - r_0^2 e^{i2\varphi-\alpha d}], \quad (9)$$

$$\widetilde{M}_{21} = \frac{2e^{i\varphi} (k' - ik) \operatorname{sh} \frac{E+i\Gamma}{2}}{S'} [1 - r_0^2 e^{i2\varphi-\alpha d}], \quad (10)$$

де  $S' = [1 - r_0^2 e^{i(2\varphi + \Gamma) - \alpha d + E}] [1 - r_0^2 e^{i(2\varphi - \Gamma) - \alpha d - E}]$ .

Відносне пропускання  $J$  світла системою PSA залежно від азимутів поляризатора  $\theta$  та аналізатора  $\chi$ , розраховане на основі методу [6] ( $J(\theta, \chi) = |\mathbf{A}^+ \widetilde{\mathbf{M}} \mathbf{P}|^2$ , де  $\mathbf{P}$ ,  $\mathbf{A}$  — вектори Джонса для поляризатора та аналізатора) з точністю до множника, у який входять параметри ізотропного поглинання та пропускання, матиме вигляд:

$$J(\theta, \chi) = \frac{e^{-E}}{b} \theta^2 + \frac{e^E}{a} \chi^2 - 2\theta\chi \frac{1}{ab} \left( \cos \Gamma - 2r_0^2 e^{-\alpha d} \left[ 2 \cos^2(\Gamma/2) \operatorname{sh} E + 2 \cos^2 \varphi \operatorname{ch} E - e^E \right] \right) + F_1 \theta + F_2 \chi + \text{const}, \quad (11)$$

де

$$\begin{cases} a = 1 - 2r_0^2 e^{-\alpha d + E} \cos(2\varphi + \Gamma) \\ b = 1 - 2r_0^2 e^{-\alpha d - E} \cos(2\varphi - \Gamma) \end{cases}. \quad (12)$$

Очевидно, що явний вигляд функцій  $F_1$  та  $F_2$  у співвідношенні (11) є необхідним для отримання виразів, які описуватимуть характеристичні азимуты поляризатора, але, зважаючи на громіздкість цих співвідношень, ми їх не подаємо. Також нехтуватимемо доданками, що містять коефіцієнт  $r_0^4$ , через їхній відносно невеликий внесок, а обмежимося доданками типу  $r_0^2$ , як це було зроблено у [11, 13, 14] під час аналізу експериментальних результатів.

З функції оптичного пропускання системи поляризатор–кристал–аналізатор неважко отримати аналітичні вирази для кутового коефіцієнта нахилу прямої для мінімізованих інтенсивностей та кута нахилу еліпсів на НАУР-мапах. Відомо, що ці співвідношення можна використати для знаходження температурних залежностей величини  $\cos \Gamma$  та параметра лінійного дихроїзму  $E$  [9]. Так кутовий коефіцієнт нахилу  $\partial\chi/\partial\theta$  визначатиметься:

$$\frac{\partial\chi}{\partial\theta} = \frac{\cos \Gamma - 2r_0^2 e^{-\alpha d} [2 \cos^2(\Gamma/2) \operatorname{sh} E + 2 \cos^2 \varphi \operatorname{ch} E - e^E]}{e^E - 2r_0^2 e^{-\alpha d} \cos 2\varphi \cos \Gamma - 2r_0^2 e^{-\alpha d} \sin 2\varphi \sin \Gamma}, \quad (13)$$

а тангенс подвійного кута  $\xi$  нахилу головних осей еліпсів на мапах інтенсивності матиме вигляд:

$$\operatorname{tg} 2\xi = \frac{\cos \Gamma - 2r_0^2 e^{-\alpha d} [2 \cos^2(\Gamma/2) \operatorname{sh} E + 2 \cos^2 \varphi \operatorname{ch} E - e^E]}{\operatorname{sh} E - 2r_0^2 e^{-\alpha d} \sin 2\varphi \sin \Gamma}. \quad (14)$$

Очевидно, якщо не враховувати ефекти БВС ( $r_0 \rightarrow 0$ ), співвідношення (13) та (14) матимуть вигляд аналогічний наведеним у [9], а функція (11) також збігатиметься з відповідним аналогом [9].

На прикладі зразка кристала  $\text{SiO}_2$  товщиною 2,55 мм розглянемо результати експерименту, які отримані для довжини хвилі 633 нм. На температурних залежностях вимірюваної  $\partial\chi/\partial\theta$ , спостерігаються характерні осциляції, пов'язані з БВС (рис. 6). Натомість, за відсутності ЛД, головні осі еліпсів на НАУР-мапах мають бути нахиленими під кутом  $45^\circ$  в системі координат  $(\theta, \chi)$ , а кут  $\xi$  не мав би змінюватися (зазвичай, змінюється тільки ексцентриситет еліпсів). Вплив



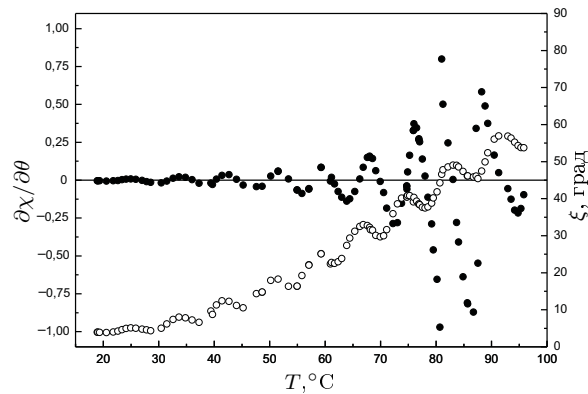


Рис. 6. Температурна залежність  $\partial\chi/\partial\theta$  (позначення експериментальних точок  $\circ$ ) та  $\xi$  (позначення  $\bullet$ ) для кристалів  $\text{SiO}_2$

ефектів БВС докорінно змінює цю особливість, що й підтверджує температурна залежність кута нахилу головних осей еліпсів на мапах інтенсивності для кварцу (див. рис. 6), а відхилення кута  $\xi$  від величини  $45^\circ$  є найсуттєвішим і в околі температур (80–90°C), коли  $\alpha \cos \Gamma = 0$ .

Щоб визначити правдиву величину  $\cos \Gamma$ , можна скористатися системою рівнянь (13)–(14), застосувавши деякі спрощення. Перш за все кристали кварцу не мають ЛД на довжині хвилі 633 нм, а також, їх можна вважати прозорими для випромінювання He-Ne лазера. Тому співвідношення (13)–(14) у цьому випадку ( $E \approx 0$ ,  $\alpha \approx 0$ ) матимуть вигляд:

$$\frac{\partial\chi}{\partial\theta} = \frac{\cos \Gamma - 2r_0^2 \cos 2\varphi}{1 - 2r_0^2 \cos 2\varphi \cos \Gamma - 2r_0^2 \sin 2\varphi \sin \Gamma}, \quad (15)$$

$$\text{tg } 2\xi = -\frac{\cos \Gamma - 2r_0^2 \cos 2\varphi}{2r_0^2 \sin 2\varphi \sin \Gamma}. \quad (16)$$

Крім того, основні вирази методики високоточної поляриметрії з БВС потрібно коректувати, врахувавши ефекти розсіяння світла зразком, а також непаралельність його сторін. Для цього додатково вводять емпіричний параметр  $\beta$  ( $0 \leq \beta \leq 1$ ) [12–14], величину якого визначають експериментально, а відповідні рівняння уточнюють шляхом заміни:  $r_0^2 \rightarrow \beta r_0^2$ . У випадку з кристалами  $\text{SiO}_2$ , які вже стали своєрідним еталоном цих методик, наближено вважатимемо, що  $\beta = 1$ .

Система рівнянь (15)–(16) є нелінійною, тому її зручно розв'язувати відносно  $\Gamma$ ,  $\varphi$ , користуючись чисельними методами розрахунку, вважаючи, що параметр  $r_0^2$  залишатиметься постійним при зміні температури зразка (показники заломлення для кварцу при  $\lambda = 632,8$  нм —  $n_o = 1,5425$ ,  $n_e = 1,5515$  [11], а  $r_0^2 = 0,0461$ ). Температурна залежність величини  $\cos \Gamma$ , отримана відповідно розв'язку системи (15)–(16), представлена на рис. 7, а. На рис. 7, б зображено залежність ще однієї величини, а саме,  $\cos 2\varphi$ , температурна зміна якої, вочевидь, і дає основний

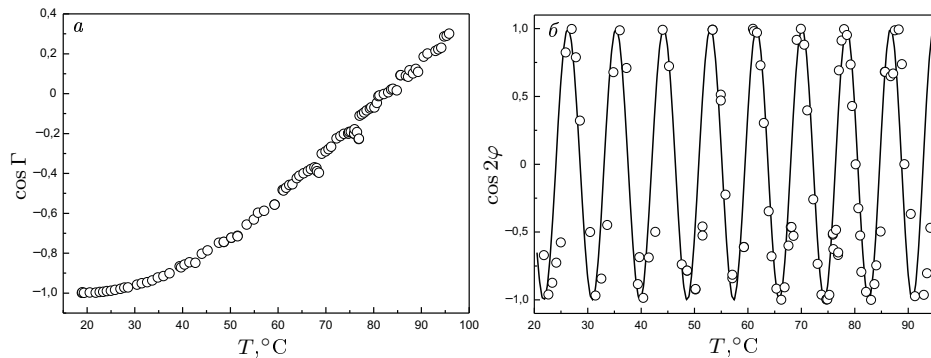


Рис. 7. Температурна залежність  $\cos \Gamma$  (а) та  $\cos 2\varphi$  (б) для кристала  $\text{SiO}_2$ . Позначення експериментальних точок:  $\circ$  — розраховані величини  $\cos \Gamma$  (а) та  $\cos 2\varphi$  (б), суцільна крива — результат апроксимації

внесок у виникнення характерних осциляцій у відповідних залежностях величин, що вимірюються безпосередньо під час експерименту.

Розглянемо детальніше співвідношення (13)–(14) для випадку, коли ефектами ЛД не можна знехтувати. Для спрощення вважатимемо, що  $E$  є малою величиною, а функції, які міститимуть цей параметр, можна розкласти в ряд, обмежившись тільки лінійними членами розкладу ( $e^E = 1 + E$ ). Крім того, нехтуватимемо добутками типу  $E r_0^2$ . Як наслідок, відповідні рівняння (13), (14) дещо спрощуватимуться. У цьому лінійному по  $E$  наближенні можна розрахувати величину:

$$\frac{\partial \chi / \partial \theta}{\text{tg } 2\xi - \partial \chi / \partial \theta} = \frac{E - 2r_0^2 e^{-\alpha d} \sin 2\varphi \sin \Gamma}{1 - 2r_0^2 e^{-\alpha d} \cos 2\varphi \cos \Gamma} \simeq E - 2r_0^2 e^{-\alpha d} \sin 2\varphi \sin \Gamma = \tilde{E}, \quad (17)$$

яка, очевидно, співпадатиме з параметром ЛД, якщо ефектами БВС знехтувати ( $r_0 \rightarrow 0$ ). Зважаючи на величину параметра ЛД кристалів Са-галогерманатів, відхилення між результатами, отриманими згідно зі співвідношенням (17) та з використанням робочих формул [9], буде незначним, тому при врахуванні ефектів БВС матимемо справу вже з ефективним ЛД ( $\tilde{E}$ ), а саме: на температурну залежність параметра ЛД накладатимуться осциляції, пов'язані з БВС, що й доводить співвідношення (17). Власне, температурні залежності саме ефективного дихроїзму показано на рис. 1, а також у [9].

Розглянемо результати досліджень ЛД активованих хромом кристалів CGG для двох орієнтацій зразка в поляризаційній системі [9]. Хоча насправді коректніше було б говорити про ефективний дихроїзм, адже реально матимемо температурні залежності величини  $\tilde{E}$  згідно (17). Параметр ЛД можна з достатньою точністю визначити як середнє значення ефективного дихроїзму —  $E = \langle \tilde{E} \rangle = 0,13$ . Крім того, для довжини хвилі He-Ne лазера, використовуючи такі величини коефіцієнтів відбивання  $r_0$  та поглинання  $\alpha$ :  $2r_0^2 \simeq 0,17$  [18],  $e^{-\alpha d} \simeq 0,59$  [21], можна оцінити величину параметра  $\beta \simeq 0,2$ ,  $\beta \simeq 0,1$  для двох можливих орієнтацій зразка. Припускаючи, що для діапазону зміни температури (20–100°C) коефіцієнт

відбивання та параметр ЛД не зазнаватимуть суттєвих змін, матимемо задачу, аналогічну як для кристалів кварцу.

Користуючись чисельним методом розв'язку нелінійних рівнянь, матимемо залежність величини  $\cos 2\varphi$  від температури, зображену на рис. 8. Варто зазначити, що параметр  $\beta$  для двох позицій зразка в системі PSA є різним, тобто є певна анізотропія величини емпіричного коефіцієнта, що зумовлена геометричною недосконалістю досліджуваного зразка. Крім того, простежується фазовий зсув у залежностях величин  $\cos 2\varphi$  (див. рис. 8), який можна пояснити з одного боку тим, що після розвертання зразка деякі величини у співвідношеннях (13)–(14) змінюють свій знак на протилежний, а з іншого — тим, що величину  $\varphi$  розраховують з точністю до фазового множника. Натомість відхилення величини  $\cos \Gamma$ , розрахованої згідно з системою рівнянь (13)–(14), від представленої у [9] є незначним, тому використання останньої не надто впливатиме на точність визначення ОА кристалів CGG:  $\text{Cr}^{3+}$ .

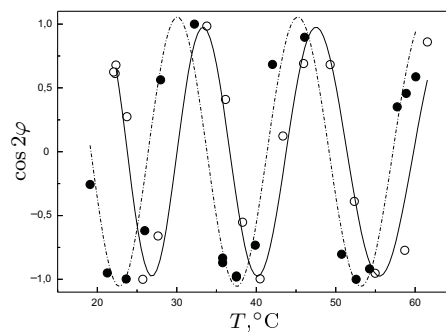


Рис. 8. Температурна залежність розрахованої величини  $\cos 2\varphi$  для кристалів CGG:  $\text{Cr}^{3+}$ . Експериментальні точки  $\circ$ ,  $\bullet$  відповідають двом орієнтаціям кристала в поляризаційній схемі; суцільні криві (—, ---) — результат апроксимації

Величини параметра  $\beta$ , отримані для активованих кристалів CGG, є меншими порівняно з кристалами кварцу, для яких розрахунки проводили за умови  $\beta \simeq 1$ . Цей параметр можна пов'язати з оптичною якістю зразка, чи просто мірою плоскопаралельності [12–14], а кристали  $\text{SiO}_2$  в цьому випадку можуть слугувати еталоном. Однак і систематичні похибки поляриметричного експерименту для зразка CGG:  $\text{Cr}^{3+}$  виявилися великими [8] (параметр  $\beta$  малий) порівняно з кристалами  $\text{SiO}_2$  [28]. Тому матимемо певний взаємозв'язок між величиною паразитних похибок поляриметра та емпіричним параметром, що відповідає за оптичну якість зразка.

У результаті наших досліджень адаптовано методику високоточної поляриметрії для одночасного вимірювання ОА, ЛДЗ, ЛД та ЦД.

Отримано температурні залежності компоненти тензора гірації  $g_{11}$  активованих іонами хрому та марганцю кристалів Са-галогерманатів та розраховано величини систематичних похибок апаратури.

Розраховано функцію оптичного пропускання системи PSA за наявності ефектів багатократного відбивання світла. Коректність одержаних співвідношень

перевірили на тестових зразках кварцу та дихроїчних кристалах **CGG**, пояснено результати вимірювання НАУР-мап та лінійного дихроїзму за таких умов експерименту.

1. *Kobayashi J.* A new optical method and apparatus "HAUP" for measuring simultaneously optical activity and birefringence of crystals. I. Principles and construction / J. Kobayashi, Y. Uesu // *J. Appl. Cryst.* – 1983. – Vol. 16. – P. 204–211.
2. *Аззам Р.* Эллипсометрия и поляризованный свет / Р. Аззам, Н. Башара – М. : Мир, 1981.
3. *Moxon J. R. L.* The simultaneous measurement of optical activity and circular dichroism in birefringent linearly dichroic crystal sections: I. Introduction and description of the method / J. R. L. Moxon, A. R. Renshaw // *J. Phys. : Condens. Matter.* – 1990. – Vol. 2. – P. 6807–6836.
4. *Moxon J. R. L.* The simultaneous measurement of optical activity and circular dichroism in birefringent linearly dichroic crystal sections: II. Description of apparatus and results for quartz, nickel sulphate hexahydrate and benzil / J. R. L. Moxon, A. R. Renshaw, I. J. Tebbutt // *J. Phys. D : Appl. Phys.* – 1991. – Vol. 24. – P. 1187–1192.
5. *Asahi T.* Measurement of circular dichroism of ferroelectric fresnoite  $\text{Ba}_2\text{Si}_2\text{TiO}_8$  / T. Asahi, T. Osaka, S. Abrahams et al. // *Proceedings SPIE.* – 2003. – Vol. 5218. – P. 223–231.
6. *Kobayashi J.* Optical properties of superconducting  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$  / J. Kobayashi, T. Asahi, M. Sakurai et al. // *Phys. Rev. B.* – 1996. – Vol. 53, № 17. – P. 11784–11795.
7. *Шопя Я.І.* Вимірювання оптичної активності в кристалах групи КДР методами високоточної поляриметрії / Я.І. Шопя // *Журн. фіз. досл.* – 2001. – Т. 5, № 1. – С. 70–74.
8. *Шопя Я.І.* Оптична активність активованих хромом кристалів  $\text{Ca}_3\text{Ga}_2\text{Ge}_4\text{O}_{14}$  / Я.І. Шопя, Н.Є. Фтомин // *Журн. фіз. досл.* – 2010. – Т. 14, № 4 – С. 4001-1–4001-6.
9. *Shopa Y.* Polarimetric studies of linear dichroism in Cr-doped gallogermanate crystals / Y. Shopa, N. Ftomyn // *Ukr. J. Phys. Opt.* – 2006. – Vol. 7, № 4. – P. 183–188.
10. *Шопя Я.І.* Оптична анізотропія в кристалах групи галогерманатів / Я.І. Шопя, А.Е. Носенко, М.О. Кравчук та ін. // *Укр. фіз. журн.* – 1998. – Т. 43, № 8. – С. 1002–1004.
11. *Hernández-Rodríguez C.* Optical anisotropy of quartz in the presence of temperature-dependent multiple reflections using a high-accuracy universal polarimeter / C. Hernández-Rodríguez, P. Gómez-Garrido // *J. Phys. D : Appl. Phys.* – 2000. – Vol. 33. – P. 2985–2994.
12. *Кушнір О.С.* Прояви оптичної анізотропії кристалів у багатопробієвій інтерференції Фабрі–Перо / О.С. Кушнір // *Журн. фіз. досл.* – 2002. – Т. 6, № 3. – С. 354–361.

13. *Kushnir O. S.* Effect of multiple reflections of light on the optical characteristics of crystals / O. S. Kushnir // *J. Opt. A : Pure Appl. Opt.* – 2003. – Vol. 5. – P. 478–488.
14. *Kushnir O. S.* Multiple reflections in crystals: natural and faraday optical activity / O. S. Kuushnir // *Ukr. J. Phys. Opt.* – 2004. – Vol. 5, № 3. – P. 87–95.
15. *Folcia C. L.* Study of the systematic errors in HAUP measurements / C. L. Folcia, J. Ortega, J. Etxebarria // *J. Phys. D : Appl. Phys.* – 1999. – Vol. 32. – P. 2266–2277.
16. *Mill B. V.* Enantiomorphism of the  $\text{Ca}_3\text{Ga}_2\text{Ge}_4\text{O}_{14}$  compound and comparison of the  $\text{Ca}_3\text{Ga}_2\text{Ge}_4\text{O}_{14}$  and  $\text{Sr}_3\text{Ga}_2\text{Ge}_4\text{O}_{14}$  structures / B. V. Mill, A. A. Klimenkova, B. A. Maximov et al. // *Crystallography Reports.* – 2005. – Vol. 50, № 5. – P. 785–794.
17. *Каминский А. А.* Физика и спектроскопия лазерных кристаллов / А. А. Каминский, Л. К. Аминов, В. Л. Ермолаева – М. : Наука, 1986. – С. 197–224.
18. *Калдыбаев К. А.* Гиротропия одноосных поглощающих кристаллов / К. А. Калдыбаев, А. Ф. Константинова, З. Б. Перекалина – М. : ISPIN, 2000. – С. 222–255.
19. *Носенко А. Е.* О валентном состоянии примесных ионов марганца в кристаллах  $\text{Ca}_3\text{Ga}_2\text{Ge}_4\text{O}_{14} : \text{Mn}$  / А. Е. Носенко, Р. Е. Лещук, Б. В. Падляк // *Журн. прикл. спектр.* – 1993. – Т. 59, № 1–2. – С. 147–151.
20. *Konstantinova A. F.* Anisotropic optical properties of crystals with the Ca-gallogermanate structure / A. F. Konstantinova, K. A. Kaldybayev, Z. B. Perekalina et al. // *Crystallography Reports.* – 2002. – Vol. 47, № 3. – P. 527–530.
21. *Shopa Y.* Linear dichroism spectra of doped calcium gallogermanate crystals / Y. Shopa, N. Ftomyn // *Acta Physica Polonica A.* – 2010. – Vol. 117, № 1. – P. 114–116.
22. *Perekalina Z. B.* Absorption spectra and circular dichroism of  $\text{Sr}_3\text{Ga}_2\text{Ge}_4\text{O}_{14} : \text{Cr}$  and  $\text{Ca}_3\text{Ga}_2\text{Ge}_4\text{O}_{14} : \text{Cr}$  crystals / Z. B. Perekalina, V. P. Orechova, K. A. Kaldybayev et al. // *Crystallography Reports.* – 2001. – Vol. 46, № 5. – P. 826–829.
23. *Burkov V. I.* The absorption and circular dichroism spectra of langasite family crystals doped with chromium ions / V. I. Burkov, A. F. Konstantinova, B. V. Mill et al. // *Crystallography Reports.* – 2009. – Vol. 54, № 4. – P. 613–618.
24. *Burkov V. I.* Circular dichroism of langasite family crystals in the range of electronic transition of structure defects / V. I. Burkov, E. P. Perederei, E. V. Fedotov et al. // *Crystallography Reports.* – 2008. – Vol. 53, № 5. – P. 843–846.
25. *Nosenko A. E.* Laser materials on basis of disordered crystals with  $\text{Ca}_3\text{Ga}_2\text{Ge}_4\text{O}_{14}$  structure / A. E. Nosenko, R. Ye. Leshchuk, V. V. Kravchishin // *Journal de Physique IV.* – 1994. – Vol. 4. – P. C4-455–C4-458.
26. *Azkargorta J.* Spectroscopy and laser action of  $\text{Cr}^{3+}$ ,  $\text{Nd}^{3+}$  codoped crystal with Ca-Gallogermanate structure / J. Azkargorta, I. Iparraguirre, J. Fernández, A. Kaminskii // *Journal de Physique IV.* – 1994. – Vol. 4. – P. C4-353–C4-356.
27. *Романюк М. О.* Кристаллооптика / М. О. Романюк. – Київ : ІЗМН, 1997.
28. *Shopa Y.* Systematic errors elimination in two wavelength laser polarimeter / Y. Shopa, N. Ftomyn // *Proceedings SPIE.* – 2009. – Vol. 7388. – P. 7388OX-1–7388OX-7.

MEASUREMENTS OF OPTICAL ACTIVITY OF CRYSTALS  
IN THE PRESENCE OF DICHROISM  
AND MULTIPLE LIGHT REFLECTION EFFECTS

Y. Shopa, N. Ftomyn

*Ivan Franko National University of Lviv  
Kyrylo and Mefodiy str., 8, 79005 Lviv, Ukraine  
e-mail: shopa@franko.lviv.ua*

Temperature dependences of the gyration tensor component  $g_{11}$ , as well as the parameters of linear and circular dichroisms are measured for  $\text{Ca}_3\text{Ga}_2\text{Ge}_4\text{O}_{14}$  crystals doped by chromium and manganese ions. The systematic errors of the polarimetric experiments are determined. The optical transmission function for the polarizer–specimen–analyzer system is obtained for the case when the effects of multiple reflections of light are taken into account for a birefringent, optically active and dichroic crystal.

**Key words:** optical activity, dichroism, optical birefringence.

ИЗМЕРЕНИЕ ОПТИЧЕСКОЙ АКТИВНОСТИ  
КРИСТАЛЛОВ ПРИ НАЛИЧИИ ДИХРОИЗМА И  
ЭФФЕКТОВ МНОГОКРАТНОГО ОТРАЖЕНИЯ СВЕТА

Я. Шопя, Н. Фтомын

*Львовский национальный университет имени Ивана Франко  
ул. Кирилла и Мефодия 8, 79005 Львов, Украина  
e-mail: shopa@franko.lviv.ua*

Измерены температурные зависимости компоненты тензора гирации  $g_{11}$  и параметров линейного и циркулярного дихроизма для активированных ионами хрома и марганца кристаллов  $\text{Ca}_3\text{Ga}_2\text{Ge}_4\text{O}_{14}$ . Определены систематические погрешности поляриметрического эксперимента. Получено аналитическое выражение для функции оптического пропускания системы поляризатор–кристалл–анализатор с учетом эффектов многократного отражения света в дихроичном оптически активном двулучепреломляющем кристалле.

**Ключевые слова:** оптическая активность, дихроизм, двулучепреломление.

Статтю отримано: 30.05.2011  
Прийнято до друку: 14.07.2011