Оптическая активность несоразмерных кристаллов в режиме плосковолновой модуляции

© О.С. Кушнир, Л.О. Локоть

Львовский государственный университет им. И. Франко,
290005 Львов, Украина

(Поступила в Редакцию 10 ноября 1996 г.
В окончательной редакции 17 февраля 1997 г.)

В рамках феноменологического подхода рассматривается распространение поляризованного света в несоразмерно модулированных фазах кристаллов семейства A_2BX_4 с пространственно усредненной инверсионной симметрией. С помощью аппарата матриц Джонса для анизотропной неоднородной среды рассчитаны оптические параметры кристалла с синусоидально модулированными диэлектрическими параметрами. Показана возможность существования слабой по сравнению с ацентричными кристаллами оптической активности. Обсуждены граничные условия для фазы волны модуляции на поверхностях кристаллической пластинки. Полученные результаты свидетельствуют о том, что оптические свойства несоразмерно модулированного кристалла не должны зависеть до формы модуляционной волны.

В последние годы интенсивно изучаются оптические свойства кристаллов со сверхструктурами различной физической природы. Одним из наиболее дискуссионных вопросов в рамках данной проблематики является вопрос о существовании оптической активности (ОА) в несоразмерно модулированных диэлектрических кристаллах семейства A_2BX_4. Данное явление было обнаружено различными авторами (см., например, [1–5]) с помощью комплексной поляриметрической методики HAUP [1], примененной к линейно двулучепреломляющим кристаллическим срезам. Теоретические аспекты проблемы привлекают большое внимание исследователей [2,5–8], поскольку ОА как свойство, описываемое полярным тензором третьего ранга, должно быть макроскопически запрещено вследствие наличия центра инверсии как в точечной группе пространственно усредненной несоразмерной (НС) структуры, так и в сверхпространственных [9] группах симметрии НС-фаз.

С точки зрения макроскопической электродинамики оптические свойства модулированных НС-фаз естественно описывать зависящим от параметра порядка периодическим в пространстве распределением диэлектрического тензора [10]. Следует отметить, что с целью упрощения большинство конкретных расчетов кристаллооптических параметров было выполнено для случая П-образной формы модуляционной волны [7,8,11]. В первую очередь эти результаты справедливы для НС-фаз в солитонном режиме модуляции, а также для низкотемпературных упорядоченных фаз кристаллов A_2BX_4 в полидоменном состоянии. Наиболее же принципиальным является вопрос об ОА в плосковолновом (синусоидальном) режиме модуляции, где она ни в коем случае не может быть интерпретирована как остаточное явление сегнетофазы (см. данные [3]), тем более что, согласно [6], поведение ОА в упомянутых режимах должно быть существенно различным. Влияние синусоидальной модуляции структуры на поляризацию электромагнитных волн рассматривалось в работе [12]. Однако в ней фактически отсутствовала интерпретация оптических эффектов в модулированном кристалле. Цель настоящего исследования — более подробный феноменологический анализ ОА НС-кристаллов в плосковолновом режиме модуляции при распространении света в направлениях, отличных от направлений оптических осей.

1. Исходные предположения

Исключив из рассмотрения эффекты частотной дисперсии, оптические свойства кристаллов можно описывать, исходя из материального уравнения (см. [2,13])

$$D_i(\mathbf{q}) = \sum_{\mathbf{q}_l} (\varepsilon_q^{(0)}(\mathbf{q}_l) + ie_{ijk}g_{kl}(\mathbf{q}_i)q_l^u)E_j(\mathbf{q}-\mathbf{q}_l), \qquad (1)$$

где $\varepsilon_{ij}^{(0)}$ — симметричная часть диэлектрического тензора, e_{ijk} — единичный полностью антисимметричный псевдотензор, g_{kl} — псевдотензор гирации, $\mathbf{q}$ — волновой вектор света, $\mathbf{q}^u$ — единичный вектор вдоль $\mathbf{q}$, $\mathbf{q}_I$ — векторы обратной решетки кристалла. Для макроскопически однородной кристаллической среды волновые векторы света $\mathbf{q}$ очень малы по сравнению с любыми ненулевыми векторами $\mathbf{q}_I$, и (1) сводится к [13]

$$D_i(\mathbf{q}) = (\varepsilon_{ij}^{(0)}(0) + ie_{ijk}g_{kl}(0)q_l^u)E_j(\mathbf{q}). \qquad (2)$$

Уравнение (2), естественно, предполагает диэлектрические параметры кристалла $\varepsilon_{ij}^{(0)}$ и g_{kl} однородными. Для несоразмерно модулированных кристаллов такой подход соответствовал бы приближению пространственно усредненной структуры, в рамках которого влиянием модуляции пренебрегают [2,7]. В случае кристаллов группы A_2BX_4 усредненная структура НС-фазы описывается инверсионной орторомбической точечной группой mmm, запрещающей существование однородных тензора гирации ($g_{kl}(0) = 0$) и недиагональных компонент тензора $\varepsilon_{ij}^{(0)}$ ($\varepsilon_{ij}^{(0)}(0) = 0$, $i \neq j$).

Однако приближение (2) оказывается слишком грубым для НС-фаз. Вследствие модуляции последние являются макроскопически неоднородными средами. Их структура характеризуется существованием периодичностей с пространственными периодами, намного бо́льшими типичных параметров решетки. Соответствующие волновые векторы $\mathbf{q}_I$ можно определить как разность вектора соразмерной модуляции для низкотемпературной упорядоченной фазы и волнового вектора НС-модуляции (см., например, [14–16]).[1] Поэтому для НС-кристаллов следует учитывать появление в Фурье-образе диэлектрического тензора компонент $\varepsilon_{ij}^{(0)}(\mathbf{q}_I)$ и $g_{kl}(\mathbf{q}_I)$, связанных с модуляцией, и пользоваться материальным уравнением (1), подразумевая под $\mathbf{q}_I$ длинноволновые векторы обратной решетки, модифицированной НС-модуляцией [2,7]. Простые оценки [2,10,14,15] приводят к соотношению $q/q_I \cong 10^{-1}$ или несколько меньше, что подтверждает корректность работы в терминах макроскопических диэлектрических параметров. Заметим, что присутствие в (1) неоднородных вкладов $g_{kl}(\mathbf{q}_I)$ не противоречит сверхпространственной симметрии НС-фазы [2], так как структурные следствия наличия центра инверсии в пространственных и сверхпространственных группах различны. Появление локальных компонент гирационного тензора легко также понять, исходя из локальной симметрии (см. [10]), которая является более низкой по сравнению с симметрией усредненной НС-структуры.

Таким образом, макроскопическая неоднородность структуры кристалла, возникающая вследствие несоразмерного характера модуляции, фактически нарушает его инверсионную симметрию. Остается открытым вопрос о проявлениях и величине соответствующих оптических эффектов. Как и в [7], мы считаем в дальнейшем, что диэлектрические параметры кристалла пространственно промодулированы с однозначно определенным и неизменным по всему объему кристалла периодом λ_I ($\lambda_I = 2\pi/q_I$, где $\mathbf{q}_I$ вносит доминирующий вклад при данной температуре в диапазоне НС-фазы). Далее мы не будем учитывать модуляцию диагональных компонент $\varepsilon_{ii}^{(0)}$ (см. [10]), так как соответствующие модулированные слагаемые $\varepsilon_{ii}^{(0)}(\mathbf{q}_I)$ намного меньше усредненных величин $\varepsilon_{ii}^{(0)}(0)$. Ограничимся рассмотрением локальных недиагональных компонент $\varepsilon_{ij}^{(0)}(\mathbf{q}_I)$ и компонент тензора гирации $g_{kl}(\mathbf{q}_I)$, которые наиболее существенно влияют на поляризацию электромагнитных волн [7,8,12]. Анализ оптических свойств модулированной среды наиболее прост для направления оси модуляции (оси z, согласно кристаллографической установке, принятой в [2]). Тогда эквифазовые плоскости волны модуляции и волновой вектор света ортогональны, и свойства среды неизменны вдоль поперечных направлений x и y, но зависят от координаты z. При этом достаточно принять во внимание только пространственную модуляцию диэлектрических параметров $\varepsilon_{12}^{(0)}(\mathbf{r})$ и $g_{33}(\mathbf{r})$, которую в плосковолновом режиме с учетом симметрийных условий $\varepsilon_{ij}^{(0)}(-\mathbf{r}) = \varepsilon_{ij}^{(0)}(\mathbf{r})$ и $g_{kl}(-\mathbf{r}) = -g_{kl}(\mathbf{r})$ [2] можно описать выражениями

$$\varepsilon_{12}^{(0)} = \varepsilon_{a,12}^{(0)} \cos\varphi, \quad g_{33} = g_{a,33} \sin\varphi, \tag{3}$$

где $\varepsilon_{a,12}^{(0)}$ и $g_{a,33}$ — амплитудные множители, $\varphi = q_i z + \varphi_0$ — фаза модуляции.

[1] Процедура, предложенная в [2], дает возможность найти и более короткие $\mathbf{q}_I$, но их структурная значимость и, по-видимому, влияние на любые свойства кристалла быстро падают с ростом соответствующих индексов [2,5].

2. Расчет оптических параметров модулированного кристалла

Для установления характера световых волн, распространяющихся в "поперечно-однородной" среде, характеризуемой (3), наиболее удобно прибегнуть к операторному методу матриц Джонса [17,18]. В рамках этого подхода эволюция вектора напряженности $\mathbf{E}$ поперечной составляющей электрического поля электромагнитной волны в кристалле определяется соотношением (см. [17])

$$i d\mathbf{E}/dz = N\mathbf{E}, \tag{4}$$

где N — так называемая дифференциальная матрица распространения, фундаментально связанная с диэлектрическими параметрами среды и зависящая от направления распространения света в ней, а для неоднородной среды также и от продольной координаты z. Уравнение (4) имеет те же широкие границы применимости, что и принцип суперпозиции в кристаллооптике [19]. Фактически, если оптическая анизотропия вещества слаба (т. е. разность показателей преломления нормальных волн существенно меньше среднего показателя преломления, что выполняется почти для всех кристаллов), а чрезвычайно слабые эффекты неортогональности нормальных волн в прозрачных кристаллах не учитываются, можно считать, что данный подход не влечет за собой потери в общности рассмотрения (см., например, результаты численного анализа [20]).

Матрицу распространения N можно найти из интегральной джонсовской матрицы $M(z, \Delta z)$ тонкого среза модулированной среды толщиной Δz, расположенного в точке с координатой z [18]. Определив матрицы линейно двулучепреломляющей кристаллической пластинки с развернутыми относительно x и y главными осями ($M_\varepsilon(z, \Delta z)$), а также пластинки, обладающей одновременно двулучепреломлением и ОА ($M_g(z, \Delta z)$), использовав уравнения (3), факт относительной малости амплитуды модулированных параметров ($\varepsilon_{a,12}^{(0)}, g_{a,33} \ll \varepsilon_{11}^{(0)} - \varepsilon_{22}^{(0)}$) и свойство аддитивности матриц распространения, характеризующих различные элементарные типы оптической анизотропии

$(N = N_\varepsilon + N_g)$ [17], получим

$$N = \frac{1}{2}q_0 \begin{pmatrix} l & -ic_{33}\sin\varphi - l_{12}\cos\varphi \\ ic_{33}\sin\varphi - l_{12}\cos\varphi & -l \end{pmatrix}, \tag{5}$$

где $l = (\varepsilon_{11}^{(0)} - \varepsilon_{22}^{(0)})/(2\bar{n})$ — линейное двулучепреломление в немодулированном кристалле, $l_{12} = \varepsilon_{a,12}^{(0)}/\bar{n}$ — амплитуда модулированной добавки к нему, связанной с $\varepsilon_{12}^{(0)}$, $c_{33} = g_{a,33}\bar{n}$ — амплитуда модулированного циркулярного двулучепреломления [19], $\bar{n}$ — средний показатель преломления, $q_0 = 2\pi/\lambda_0$ — волновое число для света в вакууме. Подчеркнем, что выражение (5) верно для направлений, далеких от оптических осей в НС-кристаллах (l_{12}, $c_{33} \ll l$), т.е. при условиях, при которых как раз и были выполнены экспериментальные исследования ОА с помощью методики HAUP.

Уравнение (4) с N-матрицей (5), зависящей от z, приближенно решается с помощью стандартной теории возмущений. Записывая (4) в координатной форме, имеем

$$\left[i\delta_y \frac{d}{dz} + \frac{1}{2}q_0(ie_{ijk}c_{kk}\sin\varphi + l_y\cos\varphi)\right]E_j = \pm\frac{1}{2}q_0 l E_i, \tag{6}$$

где δ_{ij} — символ Кронекера, $i = x, y$ плюс относится к компоненте x, а минус — к y. В соответствии с периодическим характером возмущения, связанного с модуляцией $\varepsilon_{12}^{(0)}$ и g_{33}, решения ищем в виде блоховских волн [10]

$$E_i = u_i(\varphi)\exp(iqz), \tag{7}$$

где $u_i(\varphi)$ — периодические функции с периодом НС-сверхструктуры, которые можно представить рядом Фурье

$$u_i(\varphi) = \sum_n U_i^{(n)}\exp(in\varphi), \tag{8}$$

а для волнового вектора используем разложение

$$q = q^{(0)} + q^{(1)} + \ldots . \tag{9}$$

В нулевом ($n = 0$) приближении решениями являются две линейно поляризованные волны, обозначенные 1 и 2, причем

$$q_{1,2}^{(0)} = \mp q_0 l/2,$$
$$U_{1x}^{(0)} = 1, \quad U_{1y}^{(0)} = 0, \quad U_{2x}^{(0)} = 0, \quad U_{2y}^{(0)} = 1. \tag{10}$$

В первом приближении $q_{1,2}^{(1)} = 0$ и

$$U_{1x}^{(\pm1)} = 0, \quad U_{1y}^{(\pm1)} = (q_0/4)(\mp c_{33} + l_{12})/(q_1 - q_2 \pm q_I),$$
$$U_{2x}^{(\pm1)} = (q_0/4)(\pm c_{33} + l_{12})/(q_2 - q_1 \pm q_I), \quad U_{2y}^{(\pm1)} = 0, \tag{11}$$

где $q_{1,2} = q_{1,2}^{(0)}$ определяются из (10). Поскольку последующие коэффициенты $U_i^{(\pm n)}$ пропорциональны более высоким степеням возмущения, мы вправе оборвать на этом Фурье-спектр блоховской амплитуды, что будет соответствовать точности, с которой получена матрица (5).

Итак, волновые векторы световых волн, распространяющихся в модулированной среде, и дисперсионное уравнение остаются неизменными по сравнению с однородной (немодулированной) средой. Это объясняется тем, что для исследуемых направлений распространения основной вклад в показатели преломления нормальных волн вносит немодулированная составляющая линейного двулучепреломления. Следует подчеркнуть (см. (10)), что в рамках настоящего подхода в выражениях для $q_{1,2}$ удержана лишь анизотропная часть. Это соответствует тому, что базовая матрица распространения (5) является нормализированной [18], т.е. ее изотропная часть, зависящая от среднего показателя преломления, которая не может повлиять на поляризацию света, опущена. Из (7)–(11) можно найти выражения для напряженностей $\mathbf{E}_1$ и $\mathbf{E}_2$ электрического поля электромагнитных волн в модулированной среде

$$\mathbf{E}_1 = \left\{\mathbf{e}_x + (q_0/4)\left[\frac{(-c_{33} + l_{12})\exp(i\varphi)}{q_1 - q_2 + q_I} + \frac{(c_{33} + l_{12})\exp(-i\varphi)}{q_1 - q_2 - q_I}\right]\mathbf{e}_y\right\}\exp(iq_1 z),$$
$$\mathbf{E}_2 = \left\{(q_0/4)\left[\frac{(c_{33} + l_{12})\exp(i\varphi)}{q_2 - q_1 + q_I} + \frac{(-c_{33} + l_{12})\exp(-i\varphi)}{q_2 - q_1 - q_I}\right]\mathbf{e}_x + \mathbf{e}_y\right\}\exp(iq_2 z), \tag{12}$$

где $\mathbf{e}_x$ и $\mathbf{e}_y$ — единичные векторы вдоль осей x и y. Поляризация этих волн, которую легко установить на основе параметра $\varkappa_{1,2} = E_{1,2y}/E_{1,2x}$ [18], является в общем случае эллиптической и эволюционирует с пройденным расстоянием z в среде, т.е. волны в силу своей пространственной неоднородности перестают быть нормальными в обычном смысле [18].

Общеизвестно, что характер собственных световых волн определяется кристаллооптическими эффектами, существующими в анизотропной среде. Для оптически неоднородной среды однозначное решение обратной задачи (идентификация кристаллооптических эффектов по известной поляризации световых волн) затруднено прежде всего по причине упомянутой выше пространственной зависимости состояния поляризации нормальных волн (см. также [11]). Неоднозначности удается избежать, если рассматривать кристаллическую пластинку конечной толщины (d). Воспользуемся следующим приемом [11]. Вычислим интегральную матрицу Джонса M пластинки на основе соотношения $\mathbf{E}_{\text{out}} = M\mathbf{E}_{in}$ ($\mathbf{E}_{\text{in}}$ и $\mathbf{E}_{\text{out}}$ — джонсовские векторы падающего ($z = 0$) и прошедшего ($z = d$) пластинку света соответственно) и разложения $\mathbf{E}_{\text{in}}$ и $\mathbf{E}_{\text{out}}$ по джонсовским векторам, определяющим нормальные волны. Тогда от анализа пространственно неоднородных нормальных волн можно перейти к анализу эффективных нормальных волн кристалла (т.е. собственных векторов матрицы M), поляризация которых формально не зависит от текущей координаты, а зависит лишь от толщины кристалла и значений фазы волны модуляции на его границах $\varphi_0 = \varphi(0)$ и $\varphi_1 = \varphi(d)$. Именно такими эффективными оптическими параметрами будем характеризовать модулированный кристалл. Согласно описанной процедуре, из (12) можно прийти к

$$M = \begin{pmatrix} \exp(-i\Delta/2) & -2(k+i\Delta\theta)\sin(\Delta/2) \\ 2(k-i\Delta\theta)\sin(\Delta/2) & \exp(i\Delta/2) \end{pmatrix}, \quad (13)$$

где

$$k = \alpha_+(\cos\varphi_1 - \cos\varphi_0)\,\mathrm{ctg}(\Delta/2) + \alpha_-(\sin\varphi_1 + \sin\varphi_0),$$

$$\Delta\theta = -\alpha_-(\sin\varphi_1 - \sin\varphi_0)\mathrm{ctg}(\Delta/2) + \alpha_+(\cos\varphi_1 + \cos\varphi_0), \quad (14)$$

коэффициенты $\alpha_\pm$ выражаются через суммы и разности амплитуд волн $U_{2x}^{(+1)} \pm U_{2x}^{(-1)}$ (или $U_{1y}^{+1} \pm U_{1y}^{(-1)}$

$$\alpha_+ = \frac{c_{33}(q_I/q_0) - l_{12}l}{2[l^2 - (q_I/q_0)^2]}, \quad \alpha_- = \frac{c_{33}l - l_{12}(q_I/q_0)}{2[l^2 - (q_I/q_0)^2]}, \quad (15)$$

а $\Delta = (q_2 - q_1)d = q_0 ld$ — разность фаз волн. Параметры k и $\Delta\theta$ в (13), (14) определяют соответственно эллиптичность и азимут одной из (ортогональных) эффективных нормальных волн в кристалле [8]. Отметим, что выражения (14) неприменимы при $\Delta \to 0$ в силу сделанных выше предположений. Как показывает анализ, члены, пропорциональные $\mathrm{ctg}(\Delta/2)$ и ответственные за поведение k и $\Delta\theta$ при приближении направления волновой нормали к оптическим осям, на самом деле остаются конечными ($k \to \pm 1$ или 0, $\Delta\theta \to \pm\pi/4$ или 0).

3. Обсуждение результатов

Как и в работах [8,11], естественно считать, что параметры k и $\Delta\theta$ описывают соответственно ОА и поворот оптической индикатрисы, возникающие вследствие НС-модуляции структуры кристалла, несмотря на то что происхождение данных явлений существенно отличается от случая пространственно однородных кристаллов. Интересно отметить, что в отличие от ОА повороту индикатрисы уделялось мало внимания, хотя порядки их величин совпадают и последнее явление также можно зарегистрировать в экспериментах типа HAUP [4]. Для оценки величины кристаллооптических эффектов учтем малость отношения $\lambda_I\lambda_0$ и параметра l. Тогда выражения (15) для амплитудных коэффициентов α_+ и α_- упростятся до

$$\alpha_+ \approx -k_0(l\lambda_I/\lambda_0) + \Delta\theta_0(l\lambda_I/\lambda_0)^2,$$

$$\alpha_- \approx -k_0(l\lambda_I/\lambda_0)^2 + \Delta\theta_0(l\lambda_I/\lambda_0), \quad (16)$$

где под $k_0 = g_{a,33}/(2\bar{n}l)$ и $\Delta\theta_0 = \varepsilon^{(0)}_{a,12}/(2\bar{n}l)$ подразумеваются соответственно эллиптичность нормальных волн (т.е. ОА) и поворот индикатрисы в ацентричном низкосимметричном немодулированном кристалле. Пользуясь результатами для П-образной волны модуляции [8], можно получить в первом приближении $k/k_0 \cong \delta = \pi(l\lambda_I/\lambda_0)$ (δ — разность фаз на полупериоде модуляционной волны), но в k присутствуют и вклады, пропорциональные $(l\lambda_I/\lambda_0)^2$. Таким образом, мы имеем почти количественное согласование результатов, полученных для обоих режимов модуляции. Можно ожидать, что этот вывод также останется в силе, если усложнять модель анализом локальных искажений модуляционной волны за счет взаимодействия модулированной структуры с дефектами и влияния униполярности [8]. Поскольку последние явления в плосковолновой области слабы, основной причиной появления ОА является именно пространственная неоднородность идеальной (неискаженной влиянием дефектов) модулированной структуры.

Интересно сравнить результаты данной работы и [12]. Из выражений для нормальных световых волн, полученных в [12], можно прийти к соотношениям, похожим по структуре на (14), в которых в отличие от (16) коэффициенты α_+ и α_- пропорциональны $(\lambda_I/\lambda_0)^2$ и $(\lambda_I/\lambda_0)^3$. Это должно означать фактическое отсутствие наблюдаемой ОА. Кроме того, относительные величины вкладов k_0 и $\Delta\theta_0$ в α_+ и α_- также отличаются от полученных здесь и в [7,8].

Отдельного обсуждения заслуживают граничные условия для фазы волны модуляции, которые, как видно из (14), сильно влияют на величину оптических явлений в модулированном кристалле. В ранней работе [10] считалось, что положение границы кристалла с НС-сверхструктурой может составлять доли от периода сверхструктуры. Это должно привести к случайному распределению величин φ_0 и φ_1 по поверхности пластинки. Учитывая процессы "усреднения" измеряемых оптических параметров вследствие исключительной малости λ_I, конечности поперечного сечения светового луча и неизбежной неплоскопараллельности поверхности образца, в рамках модели можно заключить, что ОА, наблюдаемая в любом практическом эксперименте, должна усредниться до нуля (см. также [5]). Для объяснения наблюдаемой в НС-кристаллах ОА авторы [7] предположили, что фаза модуляции должна быть одинаковой на обеих поверхностях пластинки на основании некоторых энергетических соображений и требований периодичности. Тогда на длине кристалла вдоль оси модуляции должно умещаться целое число m модуляционных периодов ($m\lambda_I = d$), что напоминает до некоторой степени ситуацию с нормальными модами открытого оптического резонатора. Несколько условно можно считать, что в узком приповерхностном слое, представляющем собой определенное дефектное образование, имеет место пиннинг модуляционной волны, обусловленный требованием энергетической стабильности модулированной системы. Конкретными механизмами, обеспечивающими постоянство фазы модуляции на поверхности при перепадах толщины кристалла, могут быть как локальные изменения модуляционного периода, так и изменения числа m. Отметим, что для случая солитонного режима модуляции сделанное выше предположение согласуется с выводами [21] о том, что солитоны зарождаются и аннигилируют парами.

Если условие $\varphi_1 = \varphi_0$ выполняется, оптические параметры НС-кристалла определяются только вторыми членами справа в (14), причем ОА связана в первую очередь с модуляцией компоненты диэлектрического тензора $\varepsilon_{12}^{(0)}$. Кроме того, ОА вдоль направлений оптических осей в модулированных кристаллах тогда должна отсутствовать, поскольку она определяется первыми членами справа в (14). Последний вывод прекрасно согласуется как с результатами анализа [8], так и со всеми экспериментальными данными по оптическому вращению в НС-кристаллах (см. ссылки в [8]). Остается открытым вопрос о том, какие из величин φ_0 ($\rho_0 = \rho_1$) являются предпочтительными и реализуются на практике. Последовательность полных модуляционных ячеек (полупериодов П-образной волны модуляции), рассмотренная в [7,8], соответствует нулевой величине модулированного параметра на границах кристалла, что дает $\varphi_0 = 0$ (или π) в случае модуляции компоненты g_{33} (формулы (3)). Кроме данной ("совершенной" в терминах [8]) структуры модулированная структура с $\varphi_0 = \pi/2$ (или $-\pi/2$), для которой модуль g_{33} имеет максимум на границах, также является физически различимой и может оказаться стабильной. Из (14) мы заключаем, что лишь значения $\varphi_0 = \pm\pi/2$ приводят к ситуации, наблюдаемой в большинстве экспериментов ($k \neq 0$, $\Delta\theta = 0$). Тогда на границах кристалла будут иметь место "узел" волны модуляции $\varepsilon_{12}^{(0)}$ и "пучность" волны g_{33}. В рамках настоящего подхода вряд ли можно указать условия, приводящие к бóльшей вероятности реализации одной из двух из энантиоморфных структур, характеризуемых $\varphi_0 = \pi/2$ или $-\pi/2$. Если эта вероятность определяется случайными эффектами (взаимодействием с дефектами и т. п.), то ОА, измеренная на различных образцах, может иметь противоположные знаки (см. также обсуждение в [7,8]).

Поскольку в HAUP-экспериментах [1–3,5] измерялась в основном макроскопическая компонента тензора гирации g_{13}, мы обратимся теперь к вопросу об обобщении полученных результатов на случай распространения света вдоль направлений, отличных от оси модуляции. Такое обобщение нетривиально, так как использованная выше модель "поперечно-однородной" среды становится некорректной. Очевидно, что диэлектрические свойства поверхности тогда меняются от точки к точке, и граничные условия для фазы модуляции невозможно сформулировать, оперируя понятием плоской электромагнитной волны [12]. Обоснованным выглядит предположение [10] о том, что для направлений распространения, перпендикулярных оси модуляции, электрическое поле световой волны допускает усреднение по z, и модуляция структуры не должна проявляться в оптических явлениях. Для "косых" же направлений (например, в плоскости xz) будет иметь место промежуточный случай. Поэтому можно ожидать, что основные выводы настоящей работы останутся качественно верными. Для того чтобы макроскопическая ОА не усреднилась до нуля, следует в духе изложенных выше предположений допустить, что поверхность кристалла имеет тенденцию преимущественно удерживать определенную величину фазы модуляции, т. е. является "квази-эквифазовой" поверхностью. Отличиями непринципиального плана для направлений распространения света в плоскости xz будут возрастание эффективного периода сверхструктуры ($\lambda_l^{\mathrm{eff}} = \lambda_l \cos\alpha$, где α — угол между волновой нормалью и осью модуляции), а также необходимость учета модуляции других компонент $\varepsilon_{ij}^{(0)}$ и g_{kl}.

Таким образом, представленные в работе результаты объясняют наличие ОА в макроскопически центросимметричных НС-фазах кристаллов семейства A_2BX_4 и показывают, что оптические свойства модулированных фаз не должны существенно зависеть от формы модуляционной волны (ср. выводы [6]). Однако конкретные физические механизмы пространственной модуляции локальных диэлектрических параметров в доменоподобном и плосковолновом режимах различны. Они связаны соответственно с электрогирационным эффектом вследствие наличия в соразмерных доменах спонтанной поляризации и с прямой зависимостью диэлектрической восприимчивости от параметра порядка НС-фазового перехода. В рамках разработанной модели величина ОА модулированных кристаллов мала по сравнению с однородными ацентричными кристаллами. Наконец, модель очень критична к граничным условиям для фазы модуляции; чтобы избежать макроскопического усреднения ОА, необходимо предположить, что фаза модуляции остается постоянной на обеих границах кристалла.

Авторы признательны А.В. Китыку за полезное обсуждение некоторых результатов работы.

Список литературы

[1] J. Kobayashi, H. Kumomi, K. Saito. J. Appl. Cryst. **19**, 377 (1986).
[2] H. Meekes, A. Janner. Phys. Rev. **B 38**, *12*, 8075 (1988).
[3] K. Saito, H. Sugiya, J. Kobayashi. J. Appl. Phys. **68**, *2*, 732 (1990).
[4] O.S. Kushnir, Y.I. Shopa, O.G. Vlokh, I.I. Polovinko, S.A. Sveleba. J. Phys.: Cond. Matter **5**, 4759 (1993).
[5] J. Ortega, J. Etxebarria, J. Zubillaga, T. Breczewski, M.J. Tello. Phys. Rev. **B 45**, *10*, 5155 (1992).
[6] J. Kobayanshi. Phys. Rev. **B 42**, *13*, 8332 (1990).
[7] E. Dijkstra, A. Janner, H. Meekes. J. Phys. Cond. Matter **4**, 693 (1992).
[8] O.S. Kushnir. O.G. Vlokh. J. Phys.: Cond. Matter **5**, 7017 (1993).
[9] A. Janner, T. Janssen. Acta Cryst. **A 36**, *3*, 399 (1980).
[10] В.А. Головко, А.П. Леванюк. ЖЭТФ **50**, *4(10)*, 1556 (1979).
[11] O.S. Kushnir. J. Phys.: Cond. Matter **8**, 3921 (1996).
[12] И.В. Стасюк, А.М. Швайка. Препринт Ин-та физики конденсированных систем АН УССР № 91-53Р. Киев (1991).

[13] В.М. Агранович, В.Л. Гинзбург. Кристаллооптика с учетом пространственной дисперсии и теория экситонов. Наука, М. (1979). 432 с.
[14] K. Hamano, Y. Ikeda, T. Fujimoto, K. Ema, S. Hirotsu. J. Phys. Soc. Jap. **49**, *6*, 2278 (1980).
[15] R. Sanctuary, D. Jundt, J.-C. Baumert, P. Gunter. Phys. Rev. **B32**, *3*, 1649 (1985).
[16] Б.А. Струков, А.П. Леванюк. Физические основы сегнетоэлектрических явлений в кристаллах. Наука, М. (1983). 240 с.
[17] R.C. Jones, J. Opt. Soc. Am. **38**, *8*, 671 (1948).
[18] Р. Аззам, Н. Башара. Эллипсометрия и поляризованный свет. Мир, М. (1981). 583 с.
[19] Дж. Най. Физические свойства кристаллов. Мир, М. (1979). 388 с.
[20] Е.А. Евдищенко, А.Ф. Константинова, Б.Н. Гречушников. Кристаллография **36**, *4*, 812 (1991).
[21] T. Nattermann. Phys. Stat. Sol. (b) **133**, *1*, 65 (1986).