

АНИЗОТРОПИЯ НЕЛИНЕЙНОГО ПОКАЗАТЕЛЯ ПРЕЛОМЛЕНИЯ В АЦЕНТРИЧЕСКИХ КРИСТАЛЛАХ. ЛИНЕЙНЫЙ ЭЛЕКТРООПТИЧЕСКИЙ ЭФФЕКТ

Ю. В. Шалдин и Д. А. Белогуров

Из анализа уравнения оптической индикатрисы в обобщенных сферических координатах выведены выражения для нелинейного показателя преломления δn_{ij} с учетом воздействия внешнего электрического поля. Простота и наглядность изложения дают возможность получить дополнительные условия симметрии на коэффициенты тензора линейного электрооптического эффекта r_{ijk} за счет инфинитизимальности тензора δn_{ij} . Изложенный подход был применен для сравнительного изучения анизотропии δn_{ij} в кристаллах $N_4(CH_2)_6$, ZnS, KH_2PO_4 , $\alpha-HIO_3$, ZnO, $LiNbO_3$ и $KNC_8H_4O_4$. Условие инфинитизимальности δn_{ij} позволило из разности $(n_{ii}^3 r_{iii} - n_{jj}^3 r_{jjj})$ вычислить отдельно каждый член.

Из самых общих соображений следует, что анизотропия физических свойств материальных сред является следствием симметрии эквивалентных направлений. Исходная симметрия последних может быть изменена внешним воздействием. В частном случае кристаллооптики внешнее воздействие приводит к возникновению эффектов индуцированного двуупреломления, феноменологическому описанию которых посвящен ряд работ [1-4]. Так как любое внешнее воздействие индуцирует двуупреломление в среде, представляется вполне возможным описать все многообразие анизотропных эффектов индуцированного двуупреломления на языке нелинейного показателя преломления, аналитические выражения для которого в кристаллах любой сингонии могут быть выведены из уравнения оптической индикатрисы в обобщенных сферических координатах. Помимо простоты и наглядности изложения такой подход дает возможность получить дополнительные условия симметрии для тензоров ранга выше второго за счет инфинитизимальности тензора ¹ нелинейного показателя преломления δn_{ij} . Результаты, изложенные в первой части работы, были положены в основу исследования анизотропии δn_{ij} в кристаллах ацентрического класса. Экспериментально исследовались зависимости результата интерференции между компонентами оптических полей частот ν и $(\nu \pm \nu_0)$, смещенной на частоту электрического поля, от угла поворота кристаллической пластинки относительно оси пучка. По данным опыта определялась анизотропия нелинейного показателя преломления, значения которой были положены в основу уточнения величин коэффициентов линейного электрооптического эффекта (лээ) r_{ijk} . Сравнительное изучение анизотропии δn_{ij} позволило существенно повысить точность измерения лээ, что представляет интерес при попытке построения количественной теории динамических электрооптических эффектов в кристаллах. Приводимые данные могут быть привлечены и для решения ряда практических задач построения модуляторов света.

¹ Иногда этот тензор называют тензором приращения поляризационных констант [3].

1. Индуцированная оптическая анизотропия и ее инварианты

Индуцированная оптическая анизотропия кристаллов за счет внешнего воздействия может быть описана квадратичной формой вида [5]

$$\epsilon_{ij}^{-1} x_i x_j = 1. \quad (1)$$

Компоненты симметричного по ij тензора ϵ_{ij}^{-1} ,² обратного тензору оптической диэлектрической проницаемости ϵ_{ij} , являются неявной функцией внешних воздействий. Пусть оптическая анизотропия наводится электрическим полем, а сама величина анизотропии является линейной функцией напряженности внешнего электрического поля E_k

$$\epsilon_{ij}^{-1} = \epsilon_{0ij}^{-1} + r_{ijk} E_k. \quad (2)$$

Как известно, такие явления реализуются в ацентрических классах кристаллов.

Для самого общего случая кристаллов примитивного класса (триклинная сингония, точечная группа I) уравнение оптической индикатрисы (1), записанное в обобщенных сферических координатах

$$x = \rho \epsilon_{11}^{1/2} \cos \varphi \sin \theta,$$

$$y = \rho \epsilon_{22}^{1/2} \sin \varphi \sin \theta,$$

$$z = \rho \epsilon_{33}^{1/2} \cos \theta,$$

с учетом (2), имеет следующий вид:

$$\rho^2 (1 + a_{ii} b_i^i + a_{ij} b_i^j) = 1. \quad (3)$$

Последние два слагаемых в терминах вектора-строки a_{ij} и вектора-столбца b_i^j описывают наведенную оптическую анизотропию кристаллической среды. Данное уравнение имеет отчетливый геометрический смысл, позволяя рассматривать отклонение от единичной сферы как наведенную оптическую анизотропию в кристалле. Последние два слагаемых являются функцией величин показателей преломления $n_{ij} = \epsilon_{ij}^{-1/2}$, компонент тензора лэ r_{ijk} и напряженности внешнего электрического поля

$$\left. \begin{aligned} a_{ii} &= n_{0ii}^2 r_{iik} E_k, \\ a_{ij} &= n_{0ii} n_{0jj} r_{ijk} E_k. \end{aligned} \right\} \quad (4)^3$$

Вектор-столбец, компоненты которого имеют вид

$$b_i^i = \begin{pmatrix} \cos^2 \varphi \sin^2 \theta \\ \sin^2 \varphi \sin^2 \theta \\ \cos^2 \theta \end{pmatrix}, \quad b_i^j = \begin{pmatrix} \cos \varphi \sin 2\theta \\ \sin \varphi \sin 2\theta \\ \sin 2\varphi \cos \theta \end{pmatrix} \quad (5)$$

задает направление распространения луча света в среде как функцию углов φ и θ сферических координат. Величина ρ характеризует собой показатель преломления исследуемого кристалла в обобщенных сферических координатах и при отсутствии внешнего воздействия $\rho^2=1$. Нетрудно видеть,⁴ что решение квадратного уравнения относительно ρ имеет вид

$$\rho = \left[1 - \frac{1}{2} (a_{ii} b_i^i + a_{ij} b_i^j) \right] + o(h). \quad (6)$$

² Тем самым мы пренебрегаем антисимметричной частью тензора оптической проницаемости, приводящей к ряду гиротропных явлений.

³ Здесь и далее подразумевается суммирование по дважды повторяющимся индексам.

⁴ При нахождении решения было использовано приближение вида $(\sqrt{1+x})^{-1} \simeq 1 - (1/2)x$ в силу малости $x \ll 1$.

Данная формула с точностью до следующего порядка малости $o(h)$ дает общее решение задачи о наведенной оптической анизотропии в среде и позволяет получить наглядное выражение для показателя преломления с учетом последней при переходе к сферической системе координат

$$\rho_{ij} = n_{ij} - \frac{1}{2} (n_{ii} a_{ij} b_{ij}^i + n_{ij} a_{ij} b_{ij}^j) \quad (7)$$

путем умножения (6) на n_{ij} . Для дальнейшего нам потребуется выделить тензорную часть из (7)

$$\delta n_{ij} = \rho_{ij} - n_{ij} = -\frac{1}{2} (n_{ii} a_{ij} b_{ij}^i + n_{ij} a_{ij} b_{ij}^j), \quad (8)$$

ответственную за наведенную оптическую анизотропию. Набор данных величин (это будет ясно из дальнейшего) образует тензор второго ранга, о котором в дальнейшем будем говорить как о тензоре нелинейного показателя преломления δn_{ij} . Согласно [6], любой тензор второго ранга, симметричный по ij , может быть представлен в виде скаляра и девиатора

$$\delta n_{ij} = \frac{1}{3} \delta n_{\alpha}^{\alpha} g_{ij} + \left(\delta n_{ij} - \frac{1}{3} \delta n_{\alpha}^{\alpha} g_{ij} \right), \quad (9)$$

где g_{ij} — единичный тензор второго ранга. Скаляр $\delta n_{\alpha}^{\alpha} = \text{Sp } \delta n_{ii}$ представляет собой сумму диагональных элементов и является инвариантом данного тензора. След девиатора по определению равен нулю. Инвариант тензора может принимать любое значение вплоть до нуля. В этом случае тензор является инфинитизимальным. Инфинитизимальность тензора δn_{ij} говорит о том, что объем оптической индикатрисы кристалла остается постоянным несмотря на внешнее воздействие. Все вышесказанное позволяет для дальнейшего упрощения изложения выделить две подгруппы из числа 20 ацентрических классов кристаллов: кристаллы классов $\bar{4}3m$, 23 , $\bar{4}2m$, 422 , 622 и 222 , в которых тензор δn_{ij} сводится к девиатору (это со всей очевидностью следует из значения вида тензора лээ); вторую подгруппу образуют кристаллы остальных точечных групп.

а. Подгруппа кристаллов с $\delta n_{ii} = 0$. Для этой подгруппы кристаллов индуцированная оптическая анизотропия описывается уравнением вида

$$\rho^2 (1 + a_{ij} b_{ij}^j) = 1 \quad (10)$$

являющемся частным случаем (3). Следуя вышеизложенному с учетом (5), имеем

$$\delta n_{ij} = \rho_{ij} - n_{ij} = -\frac{1}{2} n_{0i} n_{0i} n_{0j} n_{0j} z_{ijk} E_k \begin{pmatrix} \cos \varphi \sin 2\theta \\ \sin \varphi \sin 2\theta \\ \sin 2\varphi \cos 2\theta \end{pmatrix}, \quad (11)$$

которое, будучи записанным в развернутом виде, представляет собой сумму произведений i -члена строки на i -член столбца. Опуская громоздкие вычисления (для этого достаточно расписать (11)), можно показать, что след тензора $\text{Sp } \delta n_{ii}$ тождественно равен нулю. Этот факт говорит об инфинитизимальности δn_{ij} . Данный результат может быть получен непосредственным интегрированием (10) по сферическим координатам, результат которого говорит об неизменности объема оптической индикатрисы. В частном случае кристаллов со структурой сфалерита условие $\text{Sp } \delta n_{ii} = 0$ вытекает из анализа работы [7].

б. Подгруппа кристаллов с $\delta n_{ii} \neq 0$. Для кристаллов этой подгруппы выражение для δn_{ij} имеет более сложный вид

$$\delta n_{ij} = \rho_{ij} - n_{ij} = -\frac{1}{2} \left[n_{0ii}^3 r_{iik} E_k \left(\frac{\cos^2 \varphi \sin^2 \theta}{\cos^2 \theta} \right) + n_{0ii} n_{0ij} n_{0jj} r_{ijk} E_k \begin{pmatrix} \cos \varphi \sin 2\theta \\ \sin \varphi \sin 2\theta \\ \sin \varphi \cos \theta \end{pmatrix} \right], \quad (12)$$

Выпишем след этого тензора

$$\text{Sp } \delta n_{ii} = \sum n_{0ii}^3 r_{iik} E_k \quad (13)$$

и покажем, что он тождественно равен нулю. Непосредственное интегрирование (3) не дает желаемого результата. С этой целью выберем такие преобразования из группы вращений, которые оставляли бы данный инвариант неизменным. Очевидно, что это будут вращения относительно оси, совпадающей с направлением вектора E_k . Тогда можно утверждать, что $\text{Sp } \delta n_{ii}$ не зависит от E_k , и дифференцированием (13) по E получить

$$\frac{\partial}{\partial E_k} (\text{Sp } \delta n_{ii}) = \sum_{i=1}^3 n_{0ii}^3 r_{iik} \equiv 0, \quad (14)$$

из которого вытекают дополнительные условия симметрии для коэффициентов тензора нелинейного показателя преломления δn_{ij} . Это выражение позволяет получить ряд следствий для констант тензора линейного электрооптического эффекта вида r_{iik} . Частично эти следствия вытекают из условий симметрии r_{ijk} (классы 4, 32, 6m2, 6) [5], для других (6mm, 6, 3m, 3, 4, 4mm) ⁵ условие $\text{Sp } \delta n_{ii} = 0$ означает, что $2 n_{011}^3 r_{113} = -n_{033}^3 r_{333}$ (n_o и n_e — обыкновенный и необыкновенный показатели преломления одноосных кристаллов). Аналогичные соотношения имеют место и в двуосных кристаллах классов: $mm2 - n_{11}^3 r_{113} + n_{22}^3 r_{223} = -n_{33}^3 r_{333}$; $m - n_{11}^3 (r_{111} + r_{113}) + n_{22}^3 (r_{221} + r_{223}) = -n_{33}^3 (r_{331} + r_{333})$; $2 - n_{11}^3 r_{112} + n_{33}^3 r_{332} = -n_{22}^3 r_{222}$ и примитивного класса I.

Приведенные выше соображения могут быть привлечены для нахождения дополнительных условий симметрии на коэффициенты тензоров выше третьего ранга. Так, например, хорошо известное соотношение $\frac{\delta n_{\parallel}}{\delta n_{\perp}} = -2$ в случае квадратичного электрооптического эффекта (δn_{\parallel} — нелинейный показатель преломления вдоль поля E_k , δn_{\perp} — соответственно перпендикулярно полю) в газах и жидкостях [9] может быть получено из условия (14).

2. Методические замечания

Измерения анизотропии нелинейного показателя преломления в ацетрических кристаллах были выполнены на установке, методические основы которой детально рассмотрены в [10]. Блок-схема установки приведена на рис. 1. Сведения об анизотропии были получены путем обработки результатов измерения интерференции между компонентами оптических полей частот гелий-неонового лазера ν и $(\nu \pm \nu_0)$, смещенной на частоту внешнего электрического поля $\nu_0 = 1$ кГц, в зависимости от угла поворота кристаллической пластинки относительно направления распространения луча света. Можно показать [10], что при слабом внешнем воздействии интенсивность такого рода интерференции дается

$$2 \langle E_1(\nu_0) \times E_2^*(\nu \pm \nu_0) \rangle = 2I_{\sim} = k I_0(\nu_0) \delta n_{ijk}(\theta, \varphi) E_k l_0 \cos^{-1} \varphi, \quad (15)$$

где k — волновой вектор, l_0 — толщина образца, I_0 — интенсивность гелий-неонового лазера, $\delta n_{ijk} E_k \cos^{-1} \varphi$ — эффективный нелинейный показатель преломления среды, являющийся функцией θ и φ . Аналитические

⁵ Из чисто симметричных соображений Робинсоном [8] было показано, что $r_{333} = -2r_{113}$ для кристаллов со структурой вюрцита.

выражения для $\delta n_{ijk}(\theta, \varphi)$ в каждом конкретном случае будут выписаны в дальнейшем. Следует заметить, что в анизотропных средах соотношение вида (15) справедливо лишь при дискретных значениях угла преломления, вытекающих из условия $N\pi = 2k\Delta n(\varphi) l_0 \cos^{-1} \varphi$ (Δn — анизотропия показателей преломления, N — любое целое число.)

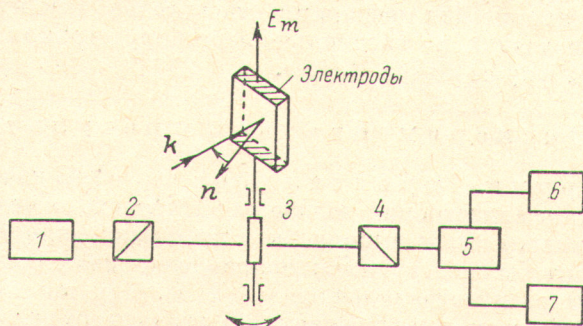


Рис. 1. Блок-схема установки для измерения анизотропии нелинейного показателя преломления в ацентрических кристаллах.

1 — гелий-неоновый лазер, 2, 4 — призмы Аренса, 3 — исследуемый образец, установленный на столике гониометра, 5 — фотоумножитель, 6 — селективный вольтметр ТТ-1301, 7 — вольтметр В2-11. Тройка векторов k, n, E_k задают направления распространения света, нормаль к поверхности и напряженность поля. Угол φ_0 определяет поворот пластинки относительно луча света.

Исследования анизотропии δn_{ij} были выполнены как в кубических ($N_4(CH_2)_6, ZnS$), так и анизотропных ($KH_2PO_4, KD_2PO_4, NH_4H_2PO_4, ND_4D_2PO_4, RbH_2PO_4, \alpha-HIO_3, LiNbO_3$ и т. д.) кристаллах. Образцы, как правило, готовились в виде квадратных пластинок с таким расчетом,

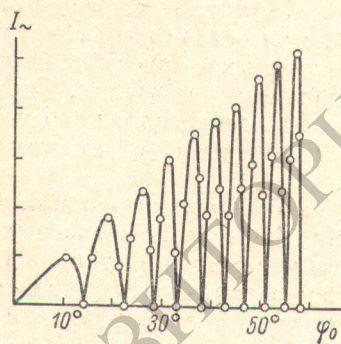


Рис. 2. Зависимость интерференции смешанных волн $I \sim (\nu \pm \nu_0)$ от угла поворота φ_0 кристаллической пластинки x -среза KH_2PO_4 .

Поле направлено по $\langle 001 \rangle$, свет при $\varphi_0 = 0$ распространяется по $\langle 100 \rangle$.

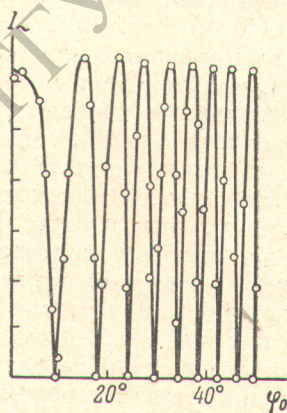


Рис. 3. Зависимость интерференции смешанных волн $I \sim (\nu \pm \nu_0)$ от угла поворота кристаллической пластинки z -среза $LiNbO_3$.

Поле направлено по $\langle 11\bar{2}0 \rangle$, свет при $\varphi_0 = 0$ распространяется вдоль $\langle 0001 \rangle$.

чтобы имелась возможность сравнительного изучения анизотропии δn_{ij} на одном препарате. Материалом для электродов служила серебряная паста, наносимая тонким слоем на предварительно очищенные поверхности. Геометрия опыта была выбрана таким образом, чтобы а) направление луча света было ортогонально вектору поля, б) начало отсчета соответствовало случаю, когда волновой вектор луча совпадал с нормалью к пластинке.

На рис. 2 и 3 представлены экспериментальные зависимости $I_{\sim}(\nu \pm \nu_0)$ от угла поворота пластинки (последний соответствует углу падения) φ_0 на кристаллическую пластинку из KN_2PO_4 и LiNbO_3 : на рис. 2 поле совпадает с $\langle 001 \rangle$, свет распространяется вдоль $\langle 100 \rangle$ при $\varphi_0=0$, на рис. 3 $E - \langle 11\bar{2}0 \rangle$, а свет — по $\langle 0001 \rangle$ при $\varphi_0=0$. Во всех случаях поворот кристаллических препаратов относительно оси пучка достигался установкой последних на специально переоборудованном столике гониометра SGO 1.1 фирмы «Карл Цейсс».

3. Экспериментальные результаты

а. Подгруппа кристаллов с $\delta n_{ii}=0$. В качестве отправной точки измерения анизотропии величины эффективного нелинейного показателя преломления были выполнены в кубических кристаллах $\text{N}_4(\text{CH}_2)_6$. Геометрия опыта была следующей: направление поля совпадало с $\langle 110 \rangle$, свет при $\varphi_0=0$ распространялся вдоль $\langle 110 \rangle$. Как показали результаты исследований, эффективное значение δn_{41} не зависит от угла φ_0 , что обусловлено обратным пропорциональными законами уменьшения δn_{41}^m и возрастания оптического пути $l_{\text{эфф}}$. Вычисленный по данным эксперимента нелинейный показатель преломления на длине волны 6328 \AA в кристаллах гексамина составляет $(10 \pm 1) \cdot 10^{-8}$ ед. CGS, что позволяет с учетом данных работы [11] определить величину коэффициента лээ $r_{41} = (2.5 \pm 0.3) \times 10^{-8}$ ед. CGS. Тот факт, что результаты измерений не зависят от длины оптического пути, позволяет нам утверждать, что приводимое значение, совпадающее с данными для оптически весьма совершенных кристаллов [12], правильно отражает величину эффекта даже в кристаллах гексамина, далеких от совершенных.

Аналогичные зависимости при указанной геометрии опыта были реализованы и в кристаллах ZnS, величина нелинейного показателя в которых достигает значений $(59 \pm 6) \cdot 10^{-8}$ ед. CGS, что соответствует величине $r_{41} = (4.5 \pm 0.5) \cdot 10^{-8}$ ед. CGS. Приводимые данные отличаются от результатов Намбы на природных кристаллах [7], но совпадают с другими результатами [13], полученными для кристаллов сфалерита, выращенных в несколько отличных условиях. Возникшие несоответствия следует искать, как это показано в [14], в явлениях, связанных с неустойчивостью подсистемы свободных электронов в обследованных образцах, приводящей к перераспределению макроскопического электрического поля по образцу. По-видимому, аналогичная ситуация реализуется в кристаллах ZnO, данные для которых приведены ниже.

На рис. 4 представлены результаты измерения анизотропии эффективного нелинейного показателя преломления δn_{41} и δn_{63} в одноосных кристаллах группы KN_2PO_4 .⁷ Геометрия опыта для этих кристаллов приведена во 2-й части работы. При такой геометрии изменение эффективного нелинейного показателя преломления относительно направления $\langle 100 \rangle$ дается

$$\delta n_{ij} = \delta n_{ij}^m \sin \varphi, \quad (16)$$

где φ — угол преломления луча света в среде с показателем преломления n . Значения коэффициентов δn_{41}^m и δn_{63}^m , рассчитанных по данным опыта, представлены в таблице. Обращает на себя внимание некоторое расхождение с известными константами лээ, собранными в монографии [15]. Прежде всего это касается результатов измерения r_{63}^m в кристаллах KN_2PO_4 , которому соответствует значение $(35 \pm 3) \cdot 10^{-8}$ ед. CGS. Величина другого коэффициента $r_{41}^m = (26 \pm 3) \cdot 10^{-8}$ ед. CGS и совпадает с результатами других авторов. Вычисленное по данным сравнительного измерения отношение $\delta n_{63}^m / \delta n_{41}^m$ равно (1.35 ± 0.07) и указывает на высокую точность измерения

⁶ Далее будем использовать и матричную запись.

⁷ Так как экспериментальные результаты идентичны для всех обследованных кристаллов группы KN_2PO_4 , мы приводим данные только для $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ и $\text{ND}_4\text{D}_2\text{PO}_4$.

δn_{63} . Для кристаллов KD_2PO_4 $r_{63}^m = (54 \pm 5) \cdot 10^{-8}$ ед. CGS и $r_{41}^m = (27 \pm 3) \times 10^{-8}$ ед. CGS. Полученное значение r_{63}^m подчеркивает частичное дейтерирование образцов. В антисегнетоэлектриках $NH_4H_2PO_4$ значения аналогичных коэффициентов достигают величин соответственно $(26 \pm 3) \cdot 10^{-8}$ и $(78 \pm 8) \cdot 10^{-8}$ ед. CGS. Дейтерирование этого соединения приводит к возрастанию r_{63}^m до $(31 \pm 3) \cdot 10^{-8}$ ед. CGS и r_{41}^m до $(120 \pm 12) \cdot 10^{-8}$ ед. CGS.

Для другого представителя этой группы соединений RbH_2PO_4 вычисленные значения достигают: $r_{63}^m = (43 \pm 4) \cdot 10^{-8}$ и $r_{41}^m = (31 \pm 3) \cdot 10^{-8}$ ед. CGS. Приводимое значение r_{63}^m находится в удовлетворительном согласии с данными других авторов [15].

Детальное исследование анизотропии δn_{ij} в кристаллах группы KH_2PO_4 показывает, что дейтерирование кристаллов сегнетоэлектриков существенно сказывается только на величине r_{63} . В антисегнетоэлектриках изоморфное замещение N на D приводит к возрастанию как r_{63} , так и r_{41} . Замена иона K на Rb в основном мотиве структуры изменяет соотношения между r_{63} и r_{41} ($r_{63}^m/r_{41}^m = (1.35 \pm 0.07)$ в KH_2PO_4 и $r_{63}^m/r_{41}^m = (1.49 \pm 0.07)$ в RbH_2PO_4). Абсолютные значения коэффициентов r_{63} и r_{41} в этом ряду тоже возрастают.

На рис. 5 представлены результаты измерения анизотропии δn_{ij} в образцах x- и z-срезов двуосных кристаллов $\alpha-NiO_3$, изменение эффек-

Значения нелинейного показателя преломления δn_{ij}^m для ряда кристаллов

Наименование	δn_{63}^m	δn_{52}^m	δn_{41}^m
	$\times 10^{-8}$ ед. CGS		
KH_2PO_4	117 ± 11	87 ± 9	87 ± 9
KD_2PO_4	180 ± 18	88 ± 9	88 ± 9
$NH_4H_2PO_4$	87 ± 9	261 ± 26	261 ± 26
$ND_4D_2PO_4$	100 ± 10	400 ± 40	400 ± 40
RbH_2PO_4	149 ± 15	99 ± 10	99 ± 10
$\alpha-NiO_3$	171 ± 17	105 ± 10	90 ± 9

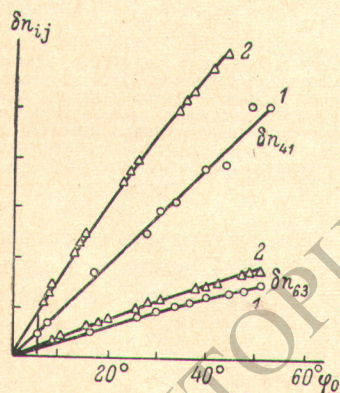


Рис. 4. Анизотропия нелинейного показателя преломления δn_{41} и δn_{63} в кристаллах $NH_4H_2PO_4$ (1) и $ND_4D_2PO_4$ (2).

Поле направлено либо по $\langle 001 \rangle$ при измерении δn_{41} и по $\langle 010 \rangle$ в другом случае, свет при $\varphi_0 = 0$ распространяется вдоль $\langle 100 \rangle$.

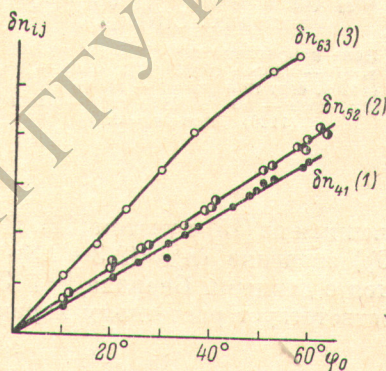


Рис. 5. Анизотропия нелинейного показателя преломления δn_{41} (1), δn_{52} (2) и δn_{63} (3) в двуосных кристаллах $\alpha-NiO_3$.

Поле направлено либо по $\langle 001 \rangle$, либо по $\langle 010 \rangle$, либо по $\langle 100 \rangle$, свет распространяется для первых двух случаев по $\langle 100 \rangle$, для двух последних случаев по $\langle 001 \rangle$ при $\varphi_0 = 0$.

тивных значений нелинейных показателей преломления которых дается выражением типа (15). В таблице приведены результаты расчета для всех трех коэффициентов δn_{41} , δn_{52} и δn_{63} . По этим данным были определены константы лэз: $r_{63}^m = (23 \pm 2) \cdot 10^{-8}$, $r_{52}^m = (15 \pm 2) \cdot 10^{-8}$ и $r_{41}^m = (13 \pm 1) \times 10^{-8}$ ед. CGS. Детальное сравнение с результатами других работ показывает удовлетворительное согласие лишь для r_{63} [16, 17]. Значительное расхождение величин r_{52} и r_{41} обусловлено, вероятно, сильной анизотропией показателей преломления, приводящей к повышенным требованиям установки образца относительно оси пучка света, монохроматичности излу-

чения и его расходимости, что в условиях нашего опыта контролировалось.

б. Подгруппа кристаллов с $\delta n_{ii} \neq 0$. Анизотропия нелинейного показателя преломления для одного из представителей кристаллов этой группы, а именно LiNbO_3 , приведена на рис. 6. Кривая 1 соответствует изменению δn_{22} как функции угла поворота пластинки относительно луча света, 2 — соответственно δn_{42} и 3 — $\delta n_{33} - \delta n_{11}$. Оказалось, что эффективное значение δn_{22}^m не зависит от угла падения и составляет $(1.9 \pm 0.2) \cdot 10^{-8}$ ед. CGS. Данная оценка хорошо согласуется с результатами других авторов [18]. Эффективное значение другого коэффициента как функции угла преломления хорошо описывается соотношением вида

$$\delta n_{42} = (1/2) [n_0 n_0 e n_e r_{42} + 2n_0^3 r_{22} \text{tg } \varphi],$$

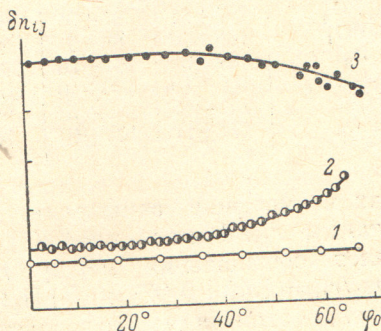


Рис. 6. Анизотропия нелинейного показателя преломления δn_{22} (1), δn_{42} (2) и $\delta n_{33} - \delta n_{11}$ (3) в кристаллах LiNbO_3 .

Поле направлено по $\langle 11\bar{2}0 \rangle$, свет при $\varphi_0 = 0$ — вдоль $\langle 0001 \rangle$ (1); поле — по $\langle 11\bar{2}0 \rangle$, свет при $\varphi_0 = 0$ — вдоль $\langle 10\bar{1}0 \rangle$ (2); поле — по $\langle 0001 \rangle$, свет — вдоль $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ при $\varphi_0 = 0$.

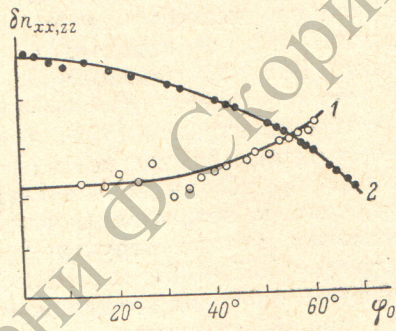


Рис. 7. Анизотропия нелинейного показателя преломления $\delta n_{33} - \delta n_{11}$ (1) и $\delta n_{33} - \delta n_{11}$ (2) в кристаллах ZnO и $\text{KNC}_8\text{H}_4\text{O}_4$.

Поле направлено по $\langle 0001 \rangle$, свет распространяется вдоль $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ (1); поле — по $\langle 001 \rangle$, свет — вдоль $\langle 010 \rangle$ при $\varphi_0 = 0$. Во всех рисунках по оси абсцисс — угол поворота кристаллической пластинки в градусах; по оси ординат — относительные значения $1 - (\nu \pm \nu_0)$ и δn_{ij} .

полученным из (15) с учетом (12). При $\varphi_0 = 0$ (это направление соответствует $\langle 11\bar{2}0 \rangle$) значение $\delta n_{42}^m = (2.3 \pm 0.2) \cdot 10^{-8}$ ед. CGS. Приводимая оценка расходитсся с данными Бернала [18]. Зависимость $\delta n_{33} - \delta n_{11}$ от угла падения не соответствует расчетному характеру

$$\delta n_{33} - \delta n_{11} = (1/2) [n_3^2 r_{33} - n_1^2 r_{13}] \cos^{-1} \varphi,$$

полученному из (15) с учетом (12). Уменьшение эффективного значения $\delta n_{33,11}$ с углом падения, как нам представляется, обусловлено пространственным разделением интерферирующих лучей за счет сильного двупреломления близкого к нормальному $\delta n_{33} - \delta n_{11}^m = (10 \pm 1) \cdot 10^{-8}$ ед. CGS и более чем на 1.5 порядка превосходит данные Бернала [18] и в 1.5 раза результаты Ленцо [19]. Используя дополнительные условия симметрии (13), имеем для δn_{33}^m и δn_{11}^m значения $(6.7 \pm 0.7) \cdot 10^{-8}$ и $(3.3 \pm 0.3) \cdot 10^{-8}$ ед. CGS.

Аналогичные измерения δn_{ij} были выполнены на гексагональных кристаллах ZnO (рис. 7, кривая 1). Как и ожидалось, эффективное значение нелинейного показателя преломления возрастает по закону $\cos^{-1} \varphi$, а само значение $\delta n_{33} - \delta n_{11}^m$ равно $(19 \pm 2) \cdot 10^{-8}$ ед. CGS. Прибегая к дополнительным условиям симметрии, имеем для $\delta n_{33}^m = (13 \pm 1) \cdot 10^{-8}$ и $\delta n_{11}^m = (6.5 \pm 0.7) \cdot 10^{-8}$ ед. CGS. На этом же рис. (кривая 2) приведена зависимость эффективного показателя преломления в двуосных кристаллах $\text{KNC}_8\text{H}_4\text{O}_4$, что не соответствует расчетной кривой, определяемой формулой

$$\delta n_{33} - \delta n_{11} = 1/2 [n_{33}^2 r_{33} - (n_{11}^2 r_{13} \cos^2 \varphi + n_{22}^2 r_{23} \sin^2 \varphi)] \cos^{-1} \varphi.$$

Такое несоответствие, на наш взгляд, обусловлено пространственным расщеплением луча света за счет сильного двупреломления ($\Delta n \sim 0.15$). При нормальном падении луча величина $\delta n_{33}^m - \delta n_{11}^m$ составляет значение $(36 \pm 4) \cdot 10^{-8}$ ед. CGS.

В заключение следует отметить, что исследование анизотропии нелинейного показателя преломления позволяет избежать значительных систематических ошибок и тем самым существенно повысить надежность результатов измерений.

Авторы приносят глубокую признательность Н. А. Ангерту, И. В. Гавриловой, Г. С. Беликовой, Г. Ф. Добржанскому и И. П. Кузьминой за любезно предоставленные кристаллы.

Литература

- [1] W. P. Mason. Bell System Tech. J., 29, 1961, 1950.
- [2] C. N. Ramachandran, S. Ramanseshan. Crystal Optic. Handbuck g. Physik., 25, 1, 1961.
- [3] О. Г. Влох, И. С. Желудев. Кристаллография, 5, 390, 1960.
- [4] Ф. И. Федоров, Л. М. Барковский. Ж. прик. спектр., 3, 83, 1965.
- [5] Дж. Най. Физические свойства кристаллов. Изд. «Мир», М., 1964.
- [6] Я. А. Схоутен. Тензорный анализ для физиков. Изд. «Наука», 1965.
- [7] S. Namba. J. Opt. Soc. Am., 51, 73, 1961.
- [8] F. N. Robinson. Phys. Lett., 26A, 435, 1968.
- [9] М. В. Волькинштейн. Молекулярная оптика. М.—Л., 1951.
- [10] Ю. В. Шалдин, Ю. В. Писаревский, Ю. С. Мельников. Ж. прик. спектр., 3, 463, 1965.
- [11] G. H. Heilmeyer. Appl. Opt., 3, 1500, 1965.
- [12] R. W. Lee. J. Opt. Soc. Am., 59, 1574, 1969.
- [13] Ю. В. Шалдин. Автореф. канд. дисс., МИСИС, М., 1967.
- [14] Ю. В. Шалдин, Д. А. Белогуров. ФТП, 6, 934, 1972.
- [15] А. С. Сонин, В. А. Василевская. Электрооптические кристаллы. Атомиздат, М., 1971.
- [16] Г. Ф. Добржанский, Л. А. Кулевский, Ю. Н. Поливанов, А. М. Прохоров, В. В. Смирнов. Крат. сообщ. по физике, 8, 61, 1970.
- [17] Е. И. Волкова, В. А. Дианова, А. Л. Зуев, А. И. Израйленко, А. С. Лигатов, В. Н. Парыгин, Л. Н. Рышкович, Л. Е. Чирков. Кристаллография, 16, 346, 1971.
- [18] E. Vernall. Phys. Lett., 21, 259, 1966.
- [19] P. V. Henzo, E. G. Spencer. J. Opt. Soc. Am., 56, 633, 1966.

Поступило в Редакцию 21 марта 1972 г.