КРИСТАЛЛОГРАФИЯ

Том 15 | 1970 | Вып. 3

УДК 548.0:535.56

Б. В. БОКУТЬ

ОБ ОПРЕДЕЛЕНИИ ПАРАМЕТРОВ ОПТИЧЕСКОЙ АКТИВНОСТИ ДВУОСНЫХ КРИСТАЛЛОВ

Показано, что по измерению азимута большой оси эллипса поляризации или эллиптичности прошедшей волны можно определить все диагональные и сумму недиагональных компонент тензора оптической активности двуосных кристаллов.

Известно, что из всех естественных и искусственных оптически активных кристаллов только для кварца экспериментально измерены все параметры активности. Трудности определения параметров оптической активности связаны с наличием двупреломления, которое оказывается значительно бо́льшим по сравнению с эффектом оптической активности в направлениях, отличных от направлений оптических осей. С другой стороны, до настоящего времени не существует общего метода определения всех параметров оптической активности, который был бы применим для кристаллов всех видов симметрии.

Совсем недавно предложен новый метод определения параметров, входящих в симметричную часть тензора оптической активности одноосных кристаллов. Этот метод успешно проверен на кварце [1]. В [2] предложен метод определения параметра активности, связанного с антисимметричной частью тензора оптической активности одноосных кристаллов.

В настоящей работе делается попытка обобщить метод определения параметров активности, изложенный в [1], на случай двуосных кристаллов. Для этой цели необходимо решить граничную задачу о прохождении плоской монохроматической волны, падающей нормально на пластинку из двуосного активного кристалла, вырезанного произвольно по отношению к оптическим осям. При этом должны учитываться отражения и преломления волн на обеих гранях пластинки.

Пусть $n_\pm$, $n_\pm{}^0$ и n — соответственно показатели преломления с учетом, без учета оптической активности кристалла и изотропной среды, окружающей пластинку толщины d, ε и α — тензоры диэлектрической проницаемости и оптической активности, $\mathbf{n}$ — единичный вектор волновой нормали, совпадающий с нормалью к пластинке, $\mathbf{g} = (k/2)(n_+{}^0 + n_-{}^0)\alpha\mathbf{n}$ — вектор активности, k — волновое число для вакуума. Тогда из уравнения Максвелла и граничных условий получается следующее выражение для вектора магнитного поля прошедшей волны $\mathbf{H}_1$ как функция вектора падающей волны $\mathbf{H}$:

$$\begin{aligned}\mathbf{H}_1 = (2e^{i\varphi}/\theta)\{&\mathbf{h}_+ n_+[(1+\gamma^2)(n_- + n)\xi\mathbf{H}\mathbf{h}_+{}^* e^{i\varphi_-} - \\ &-(1-\gamma^2)(n_- - n)\zeta\mathbf{H}\mathbf{h}_+ e^{-i\varphi_-}] + \mathbf{h}_- n_-[(1+\gamma^2)(n_+ + \\ &+ n)\xi\mathbf{H}\mathbf{h}_-{}^* e^{i\varphi_+} + (1-\gamma^2)(n_+ - n)\zeta\mathbf{H}\mathbf{h}_- e^{-i\varphi_-}] - \\ &-\mathbf{h}_+{}^* n_+[(1+\gamma^2)(n_- - n)\xi\mathbf{H}\mathbf{h}_+ e^{i\varphi_+} - (1-\gamma^2)(n_- + n)\zeta\mathbf{H}\mathbf{h}_+{}^* e^{i\varphi_+}] - \\ &-\mathbf{h}_-{}^* n_-[(1+\gamma^2)(n_+ - n)\xi\mathbf{H}\mathbf{h}_- e^{i\varphi_-} + (1-\gamma^2)(n_+ + \\ &+ n)\zeta\mathbf{H}\mathbf{h}_-{}^* e^{i\varphi_+}]\},\end{aligned} \qquad (1)$$

где введены обозначения

$$\begin{aligned}
\xi &= (n_+ + n)(n_- + n) - (n_+ - n)(n_- - n)\, e^{-i(\varphi_+ - \varphi_-)},\\
\zeta &= (n_+ + n)(n_- - n) - (n_+ - n)(n_- + n)\, e^{-i(\varphi_+ - \varphi_-)},\\
\theta &= (1 + \gamma^2)\xi^2 e^{i(\varphi_+ + \varphi_-)} - (1 - \gamma^2)\zeta^2 e^{i(\varphi_+ - \varphi_-)},\\
\varphi_\pm &= kn_\pm d, \quad \varphi = knd.
\end{aligned}$$

Комплексные векторы $\mathbf{h}_\pm$ выражаются через эллиптичность γ и единичные векторы магнитного поля в кристалле $\mathbf{h}_\pm^0$ при отсутствии активности следующим образом:

$$\mathbf{h}_\pm = \mathbf{h}_\pm^0 + i\gamma \mathbf{h}_\mp^0, \qquad \gamma = \frac{n_\pm^2\, n_\mp^{02}}{|\varepsilon|\,(n_\pm^2 - n_\mp^{02})}\,\mathbf{n}\varepsilon\mathbf{g}. \tag{2}$$

Рассмотрим случай, когда нормаль к пластинке совпадает с направлением одной из оптических осей $\mathbf{n} = \mathbf{c}_i$ $(i = 1, 2)$. Следует иметь в виду, что в этом случае круговая поляризация волн в кристалле возможна только при определенной связи между компонентами тензоров оптической активности и диэлектрической проницаемости, в общем же поляризация является эллиптической. Будем считать, что поляризация волн вдоль осей мало отличается от круговой, т. е.

$$\gamma = 1 - \delta_i, \tag{3}$$

где $\delta_i = \mathbf{c}_i \varepsilon \mathbf{g} / \varepsilon_1 \varepsilon_3 \ll 1$ (для одноосных аксиальных и примитивных кристаллов при $\mathbf{n} = \mathbf{c}$ эллиптичность $\gamma \equiv 1$).

Предполагая, что падающая волна линейно поляризована, $\mathbf{H} = H\mathbf{h}_+^0$, и опуская члены, содержащие произведения δ_i на параметры оптической активности, из (1) получаем

$$\mathbf{H}_1 = \frac{4n(n_+ + n_-)He^{i\varphi}}{(1 - 2\delta_i)\,\xi}\{(1 - \delta_i)(e^{-i\varphi_+} + e^{-i\varphi_-})\mathbf{h}_+^0 + \\ + i(1 - 2\delta_i)(e^{-i\varphi_+} - e^{-i\varphi_-})\mathbf{h}_-^0\};$$

тогда приведенный вектор [3] будет равен

$$\mathbf{H}_{1r} = \frac{8n(n_+ + n_-)H}{(1 - 2\delta_i)\,|\xi|}\{(1 - \delta_i)\cos {}^1\!/_2(\varphi_+ - \varphi_-)\mathbf{h}_+^0 + \\ + (1 - 2\delta_i)\sin {}^1\!/_2(\varphi_+ - \varphi_-)\mathbf{h}_-^0\}.$$

Таким образом, на выходе из пластинки волна оказывается линейно поляризованной. Угол поворота плоскости поляризации χ_i определяется выражением

$$\cos\chi_i = \frac{\mathbf{H}_{1r}\, h_+^0}{|\mathbf{H}_{1r}|} \approx [1 + \delta_i \sin^2 {}^1\!/_2(\varphi_+ - \varphi_-)]\cos {}^1\!/_2(\varphi_+ - \varphi_-). \tag{4}$$

При $\delta_i = 0$ (4) переходит в известные выражения для угла поворота плоскости поляризации $\chi_i = {}^1\!/_2 kd(n_+ - n_-)$. Уравнение (4) можно переписать в виде

$$\delta_i \cos^3({}^1\!/_2 kd\sqrt{\varepsilon_2}\,\delta_i) - (1 - \delta_i)\cos({}^1\!/_2 kd\sqrt{\varepsilon_2}\,\delta_i) + \cos\chi_i = 0. \tag{5}$$

Измеряя на опыте угол χ_i, из (5) можно определить величину $\delta_i = \mathbf{c}_i \varepsilon \mathbf{g} / \varepsilon_1 \varepsilon_3$, в которую входят инвариантные параметры оптической активности.

Теперь обратимся к другому случаю, а именно, когда направление волновой нормали сильно отличается от направлений оптических осей. При такой ситуации эллиптичность γ будет мала. Выберем, как и раньше, вектор $\mathbf{H}$, совпадающим с $\mathbf{h}_+^0$. Пренебрегая величинами γ^2 и произведениями γ на анизотропию при быстропеременных членах, из (1) получаем выражение для приведенного вектора

$$\mathbf{H}_{1r} = \frac{2nH}{|\theta_+|}(\mathbf{a} + i\mathbf{b}), \quad \mathbf{a} = \mathbf{h}_+{}^0 + \mathbf{h}_-{}^0 \gamma \times$$

$$\times \frac{n_-{}^0 [n^2(n_+{}^0 + n_-{}^0)^2 + (n_+{}^0 n_-{}^0 + n^2)^2] \sin(\varphi_+{}^0 - \varphi_-{}^0)}{2n_+{}^0(n_-{}^{02} + n^2)^2},$$

$$\mathbf{b} = \mathbf{h}_-{}^0 \gamma n [n_+{}^{02} + n_-{}^{02})(n_-{}^{02} + n^2) + 2n_-{}^{02}(n_+{}^{02} + n^2) - 2n_-{}^0(n_-{}^0 + n_-{}^0) \times$$

$$\times (n_+{}^0 n_-{}^0 + n^2)\cos(\varphi_+{}^0 - \varphi_-{}^0)] \,/\, 2n_2{}^0(n_-{}^{02} + n^2)^2, \tag{6}$$

$$\theta_+ = (n_+ + n)^2 e^{i\varphi_+} - (n_+ - n)^2 e^{-i\varphi_+}.$$

Из (6) следуют выражения для азимута большой оси эллипса поляризации $\varkappa$ и эллиптичности b / a прошедшей волны

$$\operatorname{tg} \varkappa = \gamma n_-{}^0 \frac{[n^2(n_0{}^+ + n_-{}^0)^2 + (n_+{}^0 n_-{}^0 + n^2)^2] \sin(\varphi_+{}^0 - \varphi_-{}^0)}{2n_+{}^0(n_-{}^{02} + n^2)^2},$$

$$b / a = \gamma n [(n_+{}^{02} + n_-{}^{02})(n_-{}^{02} + n^2) + 2n_-{}^{02}(n_+{}^{02} + n^2) - 2n_-{}^0(n_+{}^0 + n_-{}^0) \times$$

$$\times (n_+{}^0 n_-{}^0 + n^2)\cos(\varphi_+{}^0 - \varphi_-{}^0)] \,/\, 2n_+{}^0(n_-{}^{02} + n^2)^2. \tag{7}$$

Выражения (7) показывают, что азимут большой оси эллипса будет максимальным для четвертьволновых, а эллиптичность — для полуволновых пластинок. Измеряя $\varkappa$ или b / a на таких пластинках, можно затем вычислить величину $\mathbf{n}\varepsilon\mathbf{g}$, в которую входят параметры активности, по следующим формулам:

$$\mathbf{n}\varepsilon\mathbf{g} = \operatorname{tg} \varkappa \frac{2|\varepsilon|(n_+{}^{02} - n_-{}^{02})(n_-{}^{02} + n^2)^2}{n_+{}^0 n_-{}^{03}[n^2(n_+{}^0 + n_-{}^0)^2 + (n_+{}^0 n_-{}^0 + n^2)^2]},$$

$$\mathbf{n}\varepsilon\mathbf{g} = \left(\frac{b}{a}\right) \frac{2|\varepsilon|(n_+{}^{02} - n_-{}^{02})({}^2n_-{}^{02} + n^2)^2}{nn_+{}^0 n_-{}^{02}[(n_+{}^0 + n_-{}^0)^2(n_-{}^{02} + n^2) + 4n_-{}^{02}(n_+{}^{02} + n^2)]}. \tag{8}$$

В случае поляризации падающей волны $\mathbf{H}$ вдоль вектора $\mathbf{h}_-{}^0$ выражения для $\varkappa$ и b / a получаются из (7) заменой ($\pm$) на ($\mp$) при фазах и показателях преломления.

Проиллюстрируем применение изложенного метода на кристаллах аксиального класса моноклинной системы, у которых плоскость оптических осей перпендикулярна кристаллографической оси второго порядка. Тензор оптической активности для таких кристаллов можно записать через векторы оптических осей в следующем виде [4]:

$$\alpha = g_1 \frac{[\mathbf{c}_1\mathbf{c}_2] \cdot [\mathbf{c}_1\mathbf{c}_2]}{[\mathbf{c}_1\mathbf{c}_2]^2} + g_2 \frac{(\mathbf{c}_1 + \mathbf{c}_2) \cdot (\mathbf{c}_1 + \mathbf{c}_2)}{2(1 + \mathbf{c}_1\mathbf{c}_2)} + g_3 \frac{(\mathbf{c}_1 - \mathbf{c}_2) \cdot (\mathbf{c}_1 - \mathbf{c}_2)}{2(1 - \mathbf{c}_1\mathbf{c}_2)} +$$

$$+ g_4 \frac{(\mathbf{c}_1 + \mathbf{c}_2) \cdot (\mathbf{c}_1 - \mathbf{c}_2)}{2\sqrt{[\mathbf{c}_1\mathbf{c}_2]^2}} + g_5 \frac{(\mathbf{c}_1 - \mathbf{c}_2) \cdot (\mathbf{c}_1 + \mathbf{c}_2)}{2\sqrt{[\mathbf{c}_1\mathbf{c}_2]^2}}.$$

Точка между векторами означает диаду, g_i $(i = 1, 2, \ldots, 5)$ — скалярные параметры активности. Для этого тензора величина $\mathbf{n}\varepsilon\mathbf{g}$ при произвольном направлении волновой нормали $\mathbf{n}$ выражается следующим образом:

$$\mathbf{n}\varepsilon\mathbf{g} = \frac{k}{4}(n_+{}^0 + n_-{}^0) \Big\{ 2g_1\varepsilon_2 \frac{(\mathbf{n}[\mathbf{c}_1\mathbf{c}_2])^2}{[\mathbf{c}_1\mathbf{c}_2]^2} +$$

$$+ g_2\varepsilon_1 \frac{(\mathbf{n}\mathbf{c}_1 + \mathbf{n}\mathbf{c}_2)^2}{1 + \mathbf{c}_1\mathbf{c}_2} + g_3\varepsilon_3 \frac{(\mathbf{n}\mathbf{c}_1 - \mathbf{n}\mathbf{c}_2)^2}{1 - \mathbf{c}_1\mathbf{c}_2} + (g_4\varepsilon_1 + g_5\varepsilon_3) \frac{(\mathbf{n}\mathbf{c}_1)^2 - (\mathbf{n}\mathbf{c}_2)^2}{\sqrt{[\mathbf{c}_1\mathbf{c}_2]^2}} \Big\}. \tag{9}$$

В случае трех частных направлений волновой нормали

$$\mathbf{n}_1 = \frac{[\mathbf{c}_1\mathbf{c}_2]}{\sqrt{[\mathbf{c}_1\mathbf{c}_2]^2}}, \quad \mathbf{n}_2 = \frac{\mathbf{c}_1 + \mathbf{c}_2}{\sqrt{2(1 + \mathbf{c}_1\mathbf{c}_2)}}, \quad \mathbf{n}_3 = \frac{\mathbf{c}_1 - \mathbf{c}_2}{\sqrt{2(1 - \mathbf{c}_1\mathbf{c}_2)}}$$

из (9) соответственно получаем

$$\begin{aligned} \mathbf{n}_1\varepsilon\mathbf{g}_1 &= (k/2)(n_+{}^0 + n_-{}^0)\,\varepsilon_2 g_1, \\ \mathbf{n}_2\varepsilon\mathbf{g}_2 &= (k/2)(n_+{}^0 + n_-{}^0)\,\varepsilon_1 g_2, \\ \mathbf{n}_3\varepsilon\mathbf{g}_3 &= (k/2)(n_+{}^0 + n_-{}^0)\,\varepsilon_3 g_3. \end{aligned} \tag{10}$$

Следовательно, по измеренным азимуту или эллиптичности прошедшей волны согласно (8) и (10) можно вычислить параметры g_1, g_2, g_3. Следует отметить, что при $\mathbf{n} = \mathbf{c}_i$ измерением углов χ_1 и χ_2, которые для рассматриваемых кристаллов различны по величине и знаку, можно определить δ_1 и δ_2, связанные с g_2 и g_3 следующим образом:

$$\delta_1 + \delta_2 = (k/2)(n_+{}^0 + n_-{}^0)\{g_2\varepsilon_1(1 + \mathbf{c}_1\mathbf{c}_2) + g_3\varepsilon_3(1 - \mathbf{c}_1\mathbf{c}_2)\}. \tag{11}$$

Один из параметров g_2 или g_3 можно определить по (10), (8), а второй по (11).

Выражение (9) показывает, что невозможно выбрать такие направления нормали $\mathbf{n}$, при которых можно было бы по отдельности определить параметры g_4 и g_5. По измерению χ, $\varkappa$ или b/a можно вычислить только сумму $g_4\varepsilon_1 + g_5\varepsilon_3$. Например, при $\mathbf{n} = \mathbf{c}_i$ получаем

$$\delta_1 - \delta_2 = \left(\frac{k}{2}\right)(n_+{}^0 + n_-{}^0)\,\frac{\sqrt{[\mathbf{c}_1\mathbf{c}_2]^2}}{\varepsilon_1\varepsilon_3}\,(g_4\varepsilon_1 + g_5\varepsilon_3). \tag{12}$$

Для вычисления этих параметров по отдельности необходимо использовать измерения эллиптичности отраженного света [5, 6].

Анализ величины $\mathbf{n}\varepsilon\mathbf{g}$ для всех классов двуосных кристаллов показывает, что поляризационными измерениями прошедшего света можно определить все диагональные и сумму недиагональных компонент тензора оптической активности. Для разделения недиагональных компонент необходимо привлекать поляризационные измерения отраженного света.

Литература

1. А. Ф. Константинова. Диссертация. Ин-т кристаллогр. АН СССР, М., 1969.
2. Ф. И. Федоров, Б. В. Бокуть, А. Ф. Константинова. Кристаллография, **7**, *6*, 910, 1962.
3. Ф. И. Федоров. Оптика анизотропных сред. Изд-во АН БССР, Минск, 1958.
4. Б. В. Бокуть. Кристаллография, **14**, *6*, 102, 1969.
5. Б. В. Бокуть, Ф. И. Федоров. Оптика и спектроскопия, **15**, 797, 1963.
6. Б. В. Бокуть, Ф. И. Федоров. Оптика и спектроскопия, **17**, 607, 1964.

Институт физики АН БССР

Поступила в редакцию
6.V.1969